

СВОЙСТВА ОПТИЧЕСКИХ И АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В КРИСТАЛЛАХ АЛМАЗА

Н. С. Васильев, В. С. Горелик

Анализируется зависимость энергии от квазиимпульса оптических и акустических фононов в кристаллах типа алмаза. Показано, что в таких кристаллах закон дисперсии оптических ветвей вблизи центра зоны Бриллюэна может быть получен на основе модифицированного уравнения Клейна–Гордона, соответствующего квазичастицам (оптическим фононам) с отрицательной эффективной массой. Получены аналитические выражения для дисперсионных кривых акустических и оптических ветвей во всей зоне Бриллюэна на основе использования синусоидального приближения. Проведено сопоставление полученных аналитических зависимостей законов дисперсии с результатами экспериментального исследования спектров неупругого рассеяния нейтронов в кристаллах алмаза. Установлен закон преобразования координат и времени для оптических фононов с отрицательной эффективной массой покоя при переходе к новой инерциальной системе отсчёта, аналогичный преобразованиям Лоренца в релятивистской механике.

Ключевые слова: фонон, эффективная масса, квазичастица, скорость, закон дисперсии, оптическая ветвь, акустическая ветвь, синусоидальное приближение.

В квазигармоническом приближении в кристалле присутствует газ квазичастиц, соответствующих элементарным возбуждениям кристаллической решётки – акустическим и оптическим фононам [1–4]. При определённых условиях акустические и оптические фононы можно рассматривать как классические частицы, характеризующиеся определённой зависимостью энергии $E(p) = \hbar\omega(k)$ от квазиимпульса $p = \hbar k$. Соответ-

Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru.

ственно находится закон дисперсии $\omega(k) = \frac{E(p/\hbar)}{\hbar}$ оптических и акустических ветвей кристаллической решётки, а также скорость распространения $V = dE/dp = d\omega(k)/dk$ и эффективная масса $m = \frac{1}{\frac{d^2 E}{dp^2}} = \frac{\hbar}{\frac{d^2 \omega}{dk^2}}$ фононов. Одной из главных задач динамики кристаллических решёток является установление вида закона дисперсии $\omega(k)$. Обычно для установления закона дисперсии $\omega(k)$ акустических и оптических ветвей решается динамическая задача колебаний атомов кристаллической решётки при определенном законе взаимодействия между ними. При этом вычисляются элементы динамической матрицы и решается соответствующее секулярное уравнение [1, 2]. В результате устанавливается закон дисперсии $\omega(k)$ акустических и оптических ветвей в численном виде. Решение такой задачи для реальных трёхмерных кристаллических структур в аналитическом виде, как правило, оказывается невозможным.

В данной работе ставилась задача нахождения аналитического вида законов дисперсии $\omega(k)$ акустических и оптических ветвей в кристалле алмаза и установления характеристик оптических и акустических фононов в этом кристалле, связанных с установленными законами дисперсии. Для решения поставленной задачи анализировались свойства идеализированной модели кристаллической решётки, моделирующей структуру типа алмаза в определённом кристаллографическом направлении.

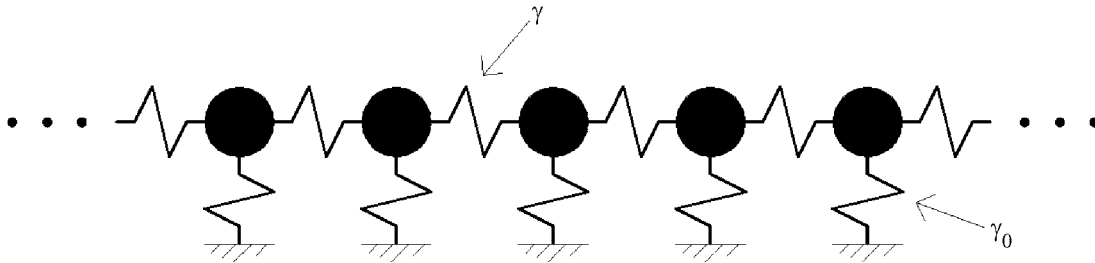


Рис. 1: Одномерная моноатомная цепочка с дополнительными связями. Упругость γ_0 дополнительной связи действует в продольном направлении!

Простейшим примером (см. [5–8]) такой модели является одномерная моноатомная цепочка с дополнительными связями (см. рис. 1). Будем учитывать связь только между ближайшими соседями, а также дополнительную связь, действующую в продольном направлении, показанную на рис. 1. При этом уравнение движения для отдельного атома с номером n в цепочке принимает вид:

$$m\ddot{u}(n) = -\gamma_0 u(n) - \gamma(2u(n) - u(n-1) - u(n+1)). \quad (1)$$

Здесь m – масса атома, u – перемещение атома, γ_0 и γ – соответствующие коэффициенты упругих связей. Подстановка в уравнение (1) решения в виде плоской монохроматической волны $u(x, t) = u_0 \exp[i(kan - \omega t)] = u_0 \exp\left[i\left(\frac{p}{\hbar}an - \frac{E}{\hbar}t\right)\right]$ с волновым числом k и частотой $\omega(k)$ (a – период кристаллической цепочки) приводит к алгебраическому уравнению, задающему закон дисперсии $\omega(k)$ цепочки и зависимость энергии от квазиимпульса $E(p)$ фонона.

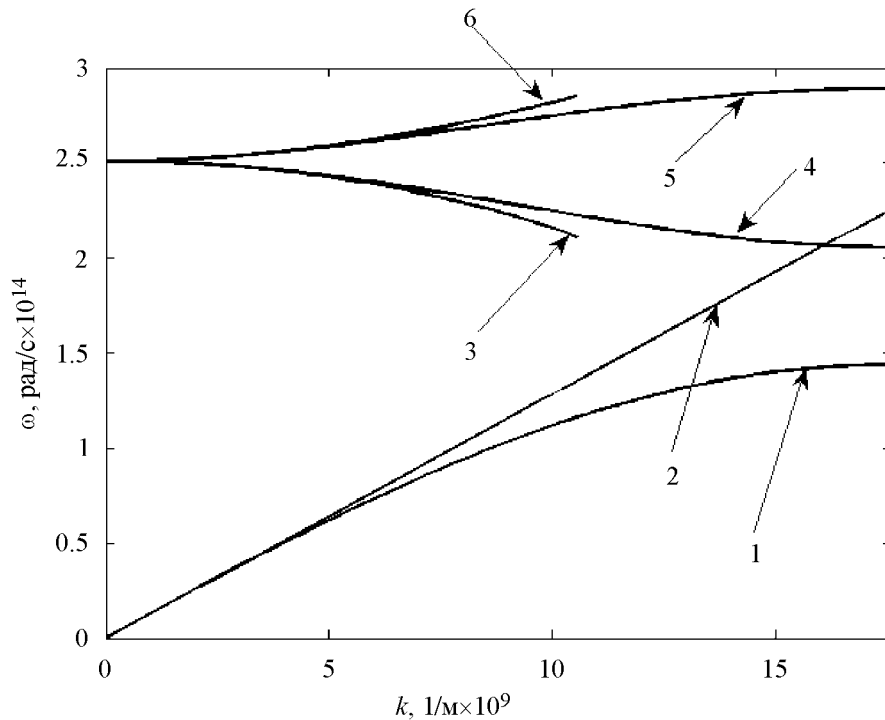


Рис. 2: Результаты расчета законов дисперсии для идеализированной модели – одномерной моноатомной цепочки с дополнительными связями с использованием следующих параметров: $S = 12.82 \cdot 10^3$ м/с, $\omega_0 = 2.51 \cdot 10^{14}$ рад/с, $a = 0.1784$ нм. Кривые 2, 3 и 6 соответствуют континуальному приближению; кривые 1, 4 и 5 – синусоидальному приближению.

Если $\gamma_0 = 0$ и $\gamma > 0$, то рассматриваемая цепочка становится эквивалентной простой моноатомной цепочке с законом дисперсии, соответствующим акустической ветви (см. кривую 1 на рис. 2):

$$\omega(k) = 2 \frac{S}{a} \left| \sin \frac{ka}{2} \right|, S^2 = \frac{\gamma}{m} a^2. \quad (2)$$

Если $\gamma_0 > 0$ и $\gamma > 0$, то решение уравнения (1) принимает вид:

$$\omega^2(k) = \omega_0^2 + 4 \frac{S^2}{a^2} \sin^2 \frac{ka}{2}. \quad (3)$$

Здесь $\omega_0 = \sqrt{\frac{\gamma_0}{m}}$ – частота, соответствующая $k = 0$, и $S^2 = \frac{\gamma}{m} a^2$.

Если $\gamma_0 > 0$ и $\gamma < 0$, то дисперсионное соотношение имеет вид:

$$\omega^2(k) = \omega_0^2 - 4 \frac{S^2}{a^2} \sin^2 \frac{ka}{2}. \quad (4)$$

Здесь $\omega_0 = \sqrt{\frac{\gamma_0}{m}}$ и $S^2 = \frac{|\gamma|}{m} a^2$.

Закон дисперсии, задаваемый соотношениями (2)–(4), в дальнейшем будем называть синусоидальным приближением. На рис. 2 представлен вид законов дисперсии идеализированной модели кристаллической решётки, задаваемых соотношением (2)–(4) при различных параметрах.

Уравнения (3) и (4) задают оптические ветви в кристаллах, соответствующие оптическим фононам с положительной или отрицательной эффективной массой покоя. Как следует из этих уравнений, в синусоидальном приближении групповые скорости волн, соответствующих оптическим ветвям, и скорости распространения оптических фононов ($V = \frac{d\omega}{dk}$) обращаются в нуль при $k = 0$ и $k = \pi/a$, т.е. в центре и на границе зоны Бриллюэна (см. кривые 4 и 5 на рис. 2).

Как показывает численный расчёт закона дисперсии в кристаллах алмаза, оптические фононы для этого кристалла имеют отрицательную эффективную массу фонона, что соответствует закону дисперсии, задаваемому уравнением (4). При этом групповая скорость ($V = \frac{d\omega}{dk}$) оказывается отрицательной.

Осуществим теперь предельный переход от дискретной цепочки к упругому континууму ($a \rightarrow 0$). Для этого воспользуемся известным выражением для аппроксимации второй производной: $\frac{\partial^2 y}{\partial x^2} \approx \frac{-2y_i + y_{i+1} + y_{i-1}}{(\Delta x)^2}$. Учитывая, что $(\Delta x)^2 = a^2$, от соотношения (1) переходим к волновому уравнению для нити:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{S^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) u(x, t) = 0. \quad (5)$$

Подстановка решения в виде плоской волны $u(x, t) = u_0 \exp(i(\omega t - kan))$ даёт линейный закон дисперсии (см. кривую 2 на рис. 2):

$$\omega = Sk. \quad (6)$$

Выражение (6) следует также из (2) при малых значениях волнового вектора, т.е. вблизи центра зоны Бриллюэна.

Аналогичным образом при $\gamma_0 > 0$ и $\gamma > 0$ приходим к известному в теории поля для массивных частиц уравнению Клейна–Гордона:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{S^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) u(x, t) = \frac{\omega_0^2}{S^2} u(x, t). \quad (7)$$

При этом имеет место соотношение:

$$E_0 = \hbar\omega_0 = m_0 S^2, \quad (8)$$

где E_0 и m_0 – энергия покоя и масса покоя соответствующей частицы.

Зависимость энергии от квазиимпульса оптических фононов, описываемых в континуальном приближении уравнением (7), как следует из этого уравнения при подстановке решения в виде плоской монохроматической волны, имеет вид:

$$E^2 = E_0^2 + S^2 p^2; \quad E_0 = \hbar\omega_0. \quad (9)$$

Соответственно в этом приближении (при малых значениях волнового вектора) закон дисперсии оптической ветви кристалла принимает вид:

$$\omega^2 = \omega_0^2 + S^2 k^2. \quad (10)$$

Если $\gamma_0 > 0$ и $\gamma < 0$, то из (1) при переходе к континууму получаем модифицированное уравнение Клейна–Гордона для оптических фононов с отрицательной эффективной массой покоя $\left(m_0 = -\frac{\hbar\omega_0}{S^2} = -\frac{E_0}{S^2} \right)$:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{1}{S^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) u(x, t) = -\frac{\omega_0^2}{S^2} u(x, t). \quad (11)$$

Подстановка решения в (11) в виде плоской монохроматической волны даёт закон дисперсии оптической ветви при малых волновых векторах в кристаллах типа алмаза:

$$\omega^2 = \omega_0^2 - S^2 k^2. \quad (12)$$

Зависимость энергии от квазиимпульса для оптических фононов с отрицательной эффективной массой покоя в континуальном приближении приобретает вид:

$$E^2 = E_0^2 - S^2 p^2. \quad (13)$$

Законы дисперсии, задаваемые соотношениями (6), (10) и (12), соответствуют континуальному приближению (см. рис. 2).

Закон дисперсии для акустических и оптических ветвей кристаллов алмаза, соответствующих различным поляризациям фононов, изучался ранее методом спектроскопии неупругого рассеяния медленных нейтронов [9].

На рис. 3(а) треугольниками приведены экспериментальные данные по закону дисперсии акустических и оптических ветвей в направлении [100] для поперечной поляризации соответствующих волн, полученные методом медленных нейтронов. На этом же рисунке сплошные кривые соответствуют расчёту, выполненному нами на основе идеализированной модели (рис. 1) в синусоидальном приближении (см. соотношения (2) и (4)) с использованием следующих параметров: $S = 1282$ м/с; $a = 0.3567$ нм; $\omega_0 = 2.51 \cdot 10^{14}$ рад/с.

Как видно из рис. 3(а), наблюдается хорошее согласие теории (синусоидальное приближение) с экспериментом при использовании для обеих ветвей одного и того же параметра S , совпадающего со значением скорости звука в кристалле алмаза для поперечных акустических волн, распространяющихся в направлении [100].

На рис. 3(б) приведено сопоставление законов дисперсии акустической и оптической ветвей кристалла алмаза для направления [100], полученных в [9] методом медленных нейтронов (треугольники), и результатов расчёта, выполненного при тех же параметрах рассматриваемой модели в континуальном приближении (соотношения (6) и (12)). Как видно из этого рисунка, хорошее согласие теории с экспериментом имеет место лишь при малых значениях k , т.е. вблизи центра зоны Бриллюэна. Следует отметить, что и в этом случае можно использовать одно и то же значение параметра S как для оптической, так и для акустической ветви, близкое к скорости звука в этом кристаллографическом направлении.

Аналогичная ситуация имеет место для направления [111] кристаллов алмаза. Рис. 4(а) иллюстрирует сопоставление полученных в [9] методом медленных нейтронов экспериментальных данных (треугольники), задающих законы дисперсии акустических и оптических ветвей в направлении [111] кристаллов алмаза для поперечной поляризации. На этом же рисунке приведены сплошные кривые, соответствующие расчёту, выполненному нами в синусоидальном приближении (см. соотношения (2) и (4)), с использованием следующих параметров: $S = 1206$ м/с; $a = 0.6178$ нм; $\omega_0 = 2.51 \cdot 10^{14}$ рад/с.

Как видно из рис. 4(а), наблюдается хорошее согласие теории с экспериментом при использовании для обеих ветвей одного и того же параметра S , совпадающего со зна-

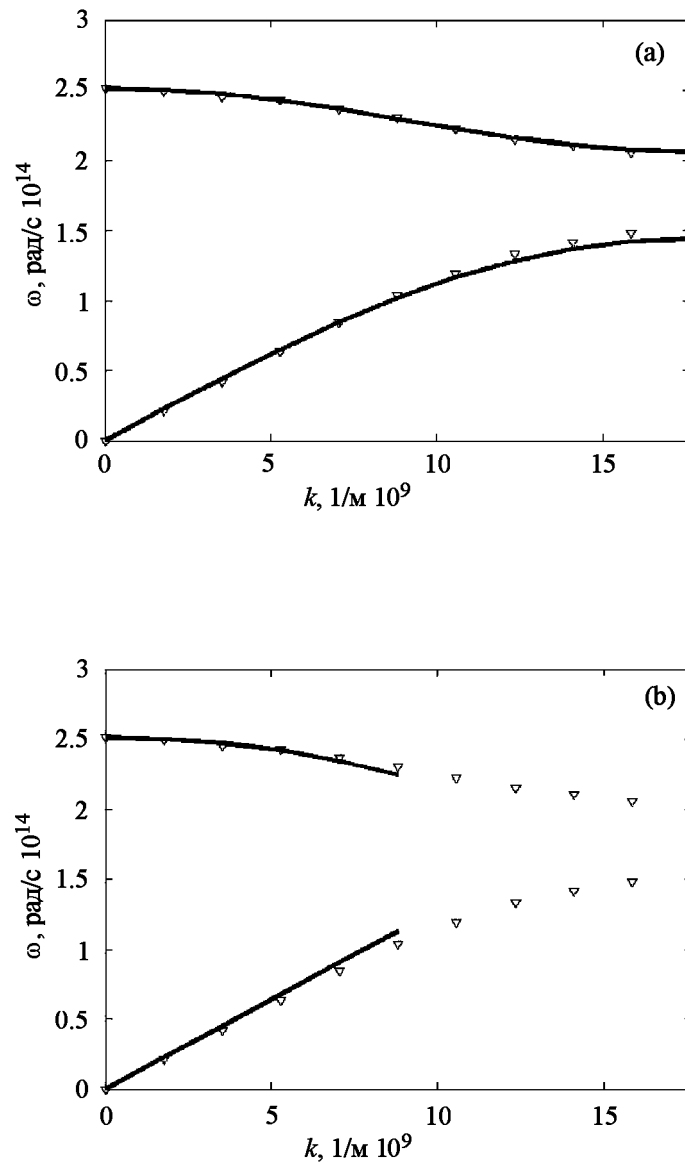


Рис. 3: Сравнение законов дисперсии для поперечной поляризации волн, распространяющихся в направлении $[100]$ кристаллов алмаза, полученных экспериментально [9] методом медленных нейтронов (треугольники) и в результате расчетов, выполненных на основе использования идеализированной модели одномерной моноатомной цепочки с дополнительными связями; (а) сплошные кривые соответствуют синусоидальному приближению, (б) сплошные кривые соответствуют континуальному приближению.

чением скорости звука в кристалле алмаза для поперечных акустических волн, распространяющихся в направлении $[111]$.

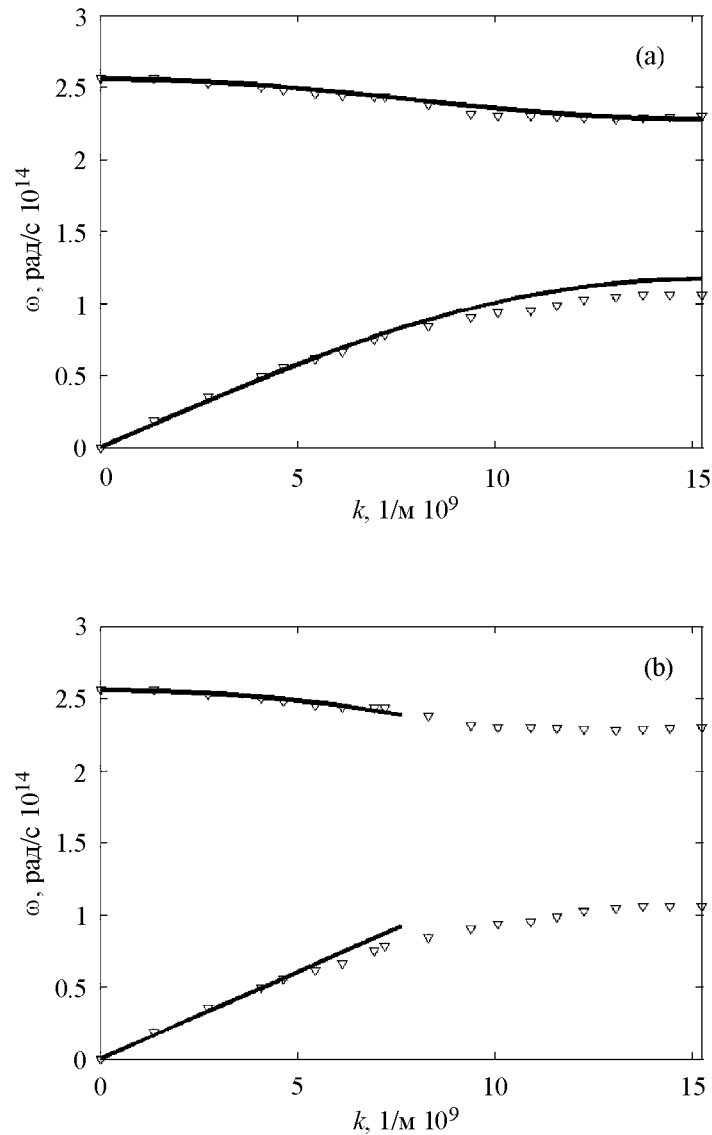


Рис. 4: Сравнение законов дисперсии для поперечной поляризации волн, распространяющихся в направлении [111] кристаллов алмаза, полученных экспериментально [9] (методом медленных нейтронов – треугольники) и в результате расчетов, выполненных на основе использования идеализированной модели одномерной монокристаллической цепочки с дополнительными связями; (a) сплошные кривые соответствуют синусоидальному приближению, (b) сплошные кривые соответствуют континуальному приближению.

На рис. 4(b) проведено сопоставление тех же экспериментальных данных и результатов расчёта, выполненного при тех же параметрах рассматриваемой идеализированной

модели в континуальном приближении (соотношения (6) и (12)). Как и для направления [100], хорошее согласие теории с экспериментом имеет место лишь при малых значениях k , т.е. вблизи центра зоны Бриллюэна. Как и в случае направления [100], при этом одно и то же значение параметра S как для оптической, так и для акустической ветви обеспечивает удовлетворительное согласие теории с экспериментом.

Таким образом, нами установлено, что простое аналитическое выражение (синусоидальное приближение) удовлетворительно описывает закон дисперсии акустических и оптических ветвей кристаллов алмаза в большой области k -пространства. Это открывает возможность для получения соответствующих зависимостей от волнового числа k скорости распространения $V = dE/dp = d\omega(k)/dk$ и эффективной массы $m = \left(\frac{d^2 E}{dp^2}\right)^{-1} = \frac{\hbar}{\frac{d^2 \omega}{dk^2}}$ акустических и оптических фононов.

Остановимся в данной работе на анализе свойств оптических фононов с учётом аналитического выражения для закона дисперсии, полученного в континуальном приближении.

Уравнение типа Клейна–Гордона (7), используемое для описания частиц с положительной массой, инвариантно относительно преобразований, аналогичных преобразованиям Лоренца:

$$x = \frac{x' + Vt'}{\sqrt{1 - \frac{V^2}{S^2}}}, \quad t = \frac{t' + \frac{V}{S^2}x'}{\sqrt{1 - \frac{V^2}{S^2}}}. \quad (14)$$

Как известно, преобразования Лоренца можно интерпретировать как повороты в псевдоевклидовом пространстве-времени, при которых остаётся инвариантом интервал ds (расстояние между двумя точками в двумерном пространстве – времени), удовлетворяющий соотношению:

$$ds^2 = S^2 dt^2 - dx^2. \quad (15)$$

Таким образом, свойства оптических фононов, имеющих положительную эффективную массу (кривая 5 на рис. 2) как классических частиц, аналогичны свойствам релятивистских частиц, вытекающим из теории относительности. При этом относительность (равноправность инерциальных систем отсчёта) имеет место в континуальном приближении и только для заданного кристаллографического направления, что связано с анизотропией упругих свойств реальных кристаллических структур. Таким образом, все выводы специальной теории относительности справедливы в континуальном приближении для оптических фононов с положительной эффективной массой, распространяющихся в бесконечном кристалле в заданном кристаллографическом направлении (каждо-

му кристаллографическому направлению соответствует определённое значение параметра S).

Скорость оптического фонона при этом, как следует из (9), (10), удовлетворяет соотношению:

$$V = \frac{S^2 p}{\sqrt{E_0^2 + S^2 p^2}}. \quad (16)$$

Из (16) получаем, что в рассматриваемом приближении зависимость квазиимпульса оптического фонона от его скорости такова:

$$p = \frac{E_0 V}{S^2 (1 - \frac{V^2}{S^2})^{1/2}} = \frac{m_0 V}{(1 - \frac{V^2}{S^2})^{1/2}}. \quad (17)$$

Для зависимости эффективной массы $m = \frac{1}{\frac{d^2 E}{dp^2}} = \frac{\hbar}{\frac{d^2 \omega}{dk^2}}$ оптического фонона с положительной эффективной массой покоя m_0 от его скорости соответственно получаем:

$$m = \frac{E_0}{S^2 (1 - \frac{V^2}{S^2})^{3/2}} = \frac{m_0}{(1 - \frac{V^2}{S^2})^{3/2}}. \quad (18)$$

Согласно модифицированному отмеченным образом принципу относительности, время жизни оптических фононов с положительной эффективной массой, движущихся в заданном кристаллографическом направлении со скоростью V , удовлетворяет соотношению:

$$\tau = \frac{\tau_0}{\sqrt{1 - \frac{V^2}{S^2}}}, \quad (19)$$

где τ_0 – время жизни покоящейся квазичастицы. Зависимость классического размера такого типа оптического фонона (т.е. размера соответствующего волнового пакета при классическом описании) от его скорости находится по формуле:

$$L = L_0 \sqrt{1 - \frac{V^2}{S^2}}, \quad (20)$$

где L_0 – размер покоящейся квазичастицы.

Важно подчеркнуть, что соотношения (7)–(16) относятся к оптическим фононам с положительной эффективной массой покоя. В случае кристалла типа алмаза, как уже было отмечено, оптические фононы имеют отрицательную эффективную массу покоя. Для их описания необходимо использовать модифицированное уравнение Клейна–Гордона (11).

Модифицированное уравнение Клейна–Гордона (11) является инвариантным относительно простых поворотов в двумерном пространстве-времени, задаваемых соотношениями:

$$x = \frac{x' - Vt'}{\sqrt{1 + \frac{V^2}{S^2}}}, \quad t = \frac{t' + \frac{V}{S^2}x'}{\sqrt{1 + \frac{V^2}{S^2}}}. \quad (21)$$

При этом выражение для квадрата интервала принимает вид:

$$ds^2 = S^2 dt^2 + dx^2. \quad (22)$$

Из соотношения (12) получаем выражение для зависимости скорости оптического фонона с отрицательной эффективной массой покоя $m_0 = -\frac{E_0}{S^2} < 0$ от его квазиимпульса (в континуальном приближении):

$$V = -\frac{S^2 p}{\sqrt{E_0^2 - S^2 p^2}}. \quad (23)$$

Отсюда для квазиимпульса оптического фонона с отрицательной эффективной массой покоя получаем:

$$p = -\frac{E_0 V}{S^2 (1 + \frac{V^2}{S^2})^{1/2}} = \frac{m_0 V}{(1 + \frac{V^2}{S^2})^{1/2}}. \quad (24)$$

Соответственно для времени жизни и размеров оптического фонона с отрицательной эффективной массой покоя (случай кристаллов типа алмаза) в зависимости от скорости его движения имеет место:

$$\tau = \frac{\tau_0}{\sqrt{1 + \frac{V^2}{S^2}}}; \quad L = L_0 \sqrt{1 + \frac{V^2}{S^2}}. \quad (25)$$

Полученные выражения для зависимости времени жизни оптического фонона от его скорости могут быть подвергнуты экспериментальной проверке, например, методом комбинационного рассеяния света при исследовании ширин линий при различных углах рассеяния.

Полученные выражения для эффективных масс оптических и акустических фононов вблизи центра и на границе зоны Бриллюэна представляют интерес для оценки температуры бозе–эйнштейновской конденсации [10] фононов в кристаллах типа алмаза.

Таким образом, нами установлено, что закон дисперсии акустических и оптических ветвей в кристаллах типа алмаза для направлений [100] и [111] удовлетворительным образом описывается аналитическим выражением (синусоидальным приближением)

практически во всей зоне Бриллюэна. На основе полученных аналитических выражений (2), (4) для законов дисперсии в синусоидальном приближении могут быть установлены простые соотношения для зависимости скорости $V = dE/dp = d\omega(k)/dk$ и эффективной массы $m = \frac{1}{\frac{d^2E}{dp^2}} = \frac{\hbar}{\frac{d^2\omega}{dk^2}}$ от квазиимпульса как акустических, так и оптических фононов в кристаллах типа алмаза во всей зоне Бриллюэна.

Показано, что вблизи центра зоны Бриллюэна закон дисперсии оптических фононов в кристаллах алмаза для направлений [100] и [111] удовлетворительно описывается континуальным приближением (соотношения (12) и (13)). При этом оптические фононы характеризуются отрицательной эффективной массой покоя. Для описания свойств оптических фононов с отрицательной эффективной массой покоя в континуальном приближении может быть использован модифицированный принцип относительности, в котором в качестве аналога скорости света выступает скорость звука; при этом значение скорости звука зависит от кристаллографического направления распространения соответствующей волны.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ №№ 09-02-00582, 08-02-00114, 08-02-90020, 08-02-12032 и Программы Президиума РАН № 27.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] G. Leibfried, *Gittertheory der mechanischen und thermischen eigenschaften der kristalle*, Handbuch der Physik. Band VII. Teil 2. (Springer-Verlag, Berlin, 1953).
- [2] M. Born and H. Kun, *Dynamical Theory of Crystal Lattices* (Clarendon Press, Oxford, 1954).
- [3] А. М. Косевич, *Физическая механика реальных кристаллов* (Наукова Думка, Киев, 1981).
- [4] J. A. Reissland, *The Physics of Phonons* (J. Willey and Sons, London, 1975).
- [5] V. S. Gorelik, Dynamic of Lattice Models of Media and Physical Vacuum. In: *“Physical Interpretations of Relativity Theory”. Proceedings of International Scientific Meeting PIRT-2005* (BNSTU, Moscow, 2005), p. 70.
- [6] V. S. Gorelik, Gravitation and Cosmology **12**, No. 2–3, 151 (2006).
- [7] V. S. Gorelik, Quasi-particles in Crystalline Chains and in Physical Vacuum. In: *“Physical Interpretations of Relativity Theory”. Proceedings of International Scientific Meeting PIRT-2007* (BMSTU, Moscow, 2007), p. 253.

- [8] V. S. Gorelik, Relativistic Effects in Lattice Dynamic Theory and Crystalline Model of Physical Vacuum. In: *“Physical Interpretations of Relativity Theory”. Proceedings of International Scientific Meeting PIRT-2009* (BMSTU, Moscow, 2009), p. 282.
- [9] W. Weber, Phys. Rev. **В 15**, 10 4789 (1977).
- [10] Л. Д. Ландау, И. М. Лифшиц, *Статистическая физика. Часть 1.* (Наука–Физматлит, Москва, 1995).

Поступила в редакцию 31 января 2011 г.