Краткие сообщения по физике № 10 1982

СВЯЗАННЫЕ СОСТОЯНИЯ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ ДЛЯ ИДЕАЛИЗИРОВАННЫХ МОДЕЛЕЙ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ РЕШЕТОК

А. А. Аникьев, В. С. Горелик, Б. С. Умаров

УДК 535.361

Показано, что для скалярной модели кристалла связанные состояния оптических фононов образуются при определенных значениях константы связи. Рассчитанные плотности состояний сопоставляются с экспериментальными спектрами кристаллов хлористого аммония.

Вследствие больших сложностей, возникающих при анализе условий связывания фононов для реальных кристаллов, целесообразно провести такое рассмотрение для идеализированных моделей. Простейшей моделью, описывающей свойства оптических ветвей, является скалярная модель решетки с дополнительными связями /I/. В этой модели закон дисперсии имеет вид

$$\omega^2(k) = \omega_0^2 + 4\frac{s^2}{a^2}\left(\sin^2\frac{\vec{k}\vec{a}_1}{2} + \sin^2\frac{\vec{k}\vec{a}_2}{2} + \sin^2\frac{\vec{k}\vec{a}_3}{2}\right). \qquad (I)$$

В пределе больших длин волн $(k \to 0)$, закон дисперсии (I) переходит в соотношение:

$$\omega^2(k) = \omega_0^2 + s^2k^2. \qquad (2)$$

В настоящей работе изучаются условия образования связанных состояний для фононов с законами дисперсии (I) и (2). Рассмотрение проводится на основе общей теории /2,3/. Согласно результатам этих работ, спектр возбуждений решетки с ангармонизмом четвертого порядка определяется полюсами двухфононной функции Грина (ФГ):

$$G_2(\vec{K},\omega) = 2\pi(\vec{K},\omega)/\left[1 - \lambda_4\pi(\vec{K},\omega)/2\right], \qquad (3)$$

где $\vec{K}$ – суммарный импульс двух фононов, λ_4 – константа ангармонизма четвертого порядка и $\pi(\vec{K},\omega)$ определяется соотношением

$$\pi(\vec{K},\omega) = \frac{i}{(2\pi)^4}\int d\vec{k}_1 \int d\omega_1 G_1^\circ(\vec{K}-\vec{k}_1, \omega-\omega_1)G_1^\circ(\vec{k}_1,\omega_1). \qquad (4)$$

Функцию (4) можно рассчитать, задавая явный вид ФГ свободных фононов

$$G_1^\circ(\vec{k},\omega) = \omega^2(\vec{k})/\left[\omega^2 - \omega^2(\vec{k}) + 2i\omega\delta\right] \qquad (5)$$

с законом дисперсии $\omega(\vec{k})$ в форме (I) или (2). Плотность двухфононных состояний определяется соотношением

$$\rho_2(\vec{K},\omega) = -(1/\pi)\,\mathrm{Im}G_2(\vec{K},\omega). \qquad (6)$$

Исследуем сначала условия связывания фононов с законом дисперсии (2). Функция $\pi(K = 0,\omega)$ после интегрирования по $d\omega_1$ принимает вид:

$$\pi(\varepsilon) = \frac{\omega_0^4}{8\pi^2 s^3}\int_0^\Lambda \frac{(1+t)^{3/2}t^{1/2}dt}{\varepsilon - 2t + i\Delta},$$

где введены обозначения $\Delta = 4\omega\delta/\omega_0^2$, $\varepsilon = (\omega^2 - 2\omega_0^2)/\omega_0^2$, $t = s^2k^2/\omega_0^2$ и верхний предел интегрирования $\Lambda = s^2k_{max}^2/\omega_0^2$.
В случае $\varepsilon<0$, интегрирование дает:

$$\pi(\varepsilon) = -\frac{\omega_0^4}{32\pi^2 s^3}\left\{\frac{\Lambda^{1/2}}{(1+\Lambda)^{1/2}}\left[\Lambda^2 + \frac{7}{2}\Lambda + \frac{5}{2} + |\varepsilon|(\Lambda+1)\right] - \right.$$

$$- \frac{1}{4}(-9 + 3|\varepsilon| + \varepsilon^2)\ln\left|\frac{(1+\Lambda)^{1/2} - \Lambda^{1/2}}{(1+\Lambda)^{1/2} + \Lambda^{1/2}}\right| + \frac{|\varepsilon|^{1/2}}{(|\varepsilon| + 2)^{1/2}} \times$$

$$\times (1 + |\varepsilon| + \varepsilon^2/4)\operatorname{arctg}\left[\frac{\Lambda(|\varepsilon| + 2)}{|\varepsilon|(\Lambda + 1)}\right]^{1/2} - i\sigma\Big\}. \tag{7}$$

Здесь обозначено $\sigma = \pi(1+t)^{-1/2}(t^{1/2} + t^{3/2} + t^{5/2})\delta(\varepsilon - 2t)$. Используя соотношения (3) и (6) и учитывая свойство δ-функции: $\delta(x) = \lim_{\mu \to 0} \mu/(x^2 + \mu^2)$, плотность состояний для энергий ниже двухфононного континуума можно записать в виде:

$$\rho_2(\varepsilon) = (\xi/4\lambda_4^{\prime\prime})\delta[1 - \lambda_4^{\prime\prime}\operatorname{Re}\pi(\varepsilon)]. \tag{8}$$

В (8) вводится константа $\lambda_4^{\prime\prime} = (\omega_0^4/32\pi^2 s^3)\lambda_4 \equiv \xi\lambda_4$. Из (7) видно, что $\operatorname{Re}\pi(\varepsilon)$ имеет отрицательный знак; поэтому ниже двухфононного континуума $(\varepsilon < 0)$, связанное состояние фононов может существовать только для отрицательных значений константы связи $\lambda_4^{\prime\prime}$. Образование связанного состояния фононов зависит от массы "покоя" фононов $m = \hbar\omega_0/s$ при $s = \mathrm{const}$, а при постоянной массе – от параметра s или верхнего предела интегрирования Λ. Как видно из (7) и (8), возрастание массы понижает пороговое значение $\lambda_4^{\prime\prime}$, необходимое для связывания фононов. При постоянной массе из (7) и (8) следует, что как при больших, так и при очень малых s связанное состояние существует при малых значениях константы связи $\lambda_4^{\prime\prime}$.

Если $\varepsilon > 0$, то интегрирование в (4) дает:

$$\pi(\varepsilon) = -\xi\Big\{\frac{\Lambda^{1/2}}{(1+\Lambda)^{1/2}}\left[\Lambda^2 + \frac{7}{2}\Lambda + \frac{5}{2} + \varepsilon(1+\Lambda)\right] - \frac{1}{4}(9 + 4\varepsilon +$$

$$+ 4\varepsilon^2)\ln\left|\frac{(1+\Lambda)^{1/2} - \Lambda^{1/2}}{(1+\Lambda)^{1/2} + \Lambda^{1/2}}\right| + \frac{1}{2}\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 2}\right)^{1/2}\left(1 + \varepsilon + \frac{\varepsilon^2}{4}\right) \times \tag{9}$$

$$\times \ln\left|\frac{[\varepsilon(1+\Lambda)/\Lambda(\varepsilon+2)]^{1/2} - 1}{[\varepsilon(1+\Lambda)/\Lambda(\varepsilon+2)]^{1/2} + 1}\right| - i\pi\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon+2}\right)^{1/2}(1 + 2\varepsilon + \varepsilon^2)\Big\}.$$

При этом невозмущенная плотность состояний ($\lambda_4^{\circ} = 0$), согласно (6), (3) и (9) имеет вид:

$$\rho_2^{\circ}(\varepsilon) = \varepsilon\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 2}\right)^{1/2}(1 + 2\varepsilon + \varepsilon^2). \qquad (10)$$

На рис. 1 представлены рассчитанные графики плотности двухфононных состояний в зависимости от величины константы связи λ_4°. Пунктиром изображена невозмущенная плотность состояний $\rho_2^{\circ}(\varepsilon)$, на интервале изменения ε/Λ (0,1). Учет взаимодействия ($\lambda_4^{\circ} \neq 0$) искажает исходную плотность состояний. На нижней границе зоны ($\varepsilon \to 0$) ангармоническое взаимодействие меняет закон спадания плотности состояний (10). В этой области возникает пик резонансного состояния при $|\lambda_4^{\circ}| < 1{,}0$. На высокочастотной границе зоны при $\lambda_4^{\circ} \leq 0$ плотность состояний спадает по логарифмическому

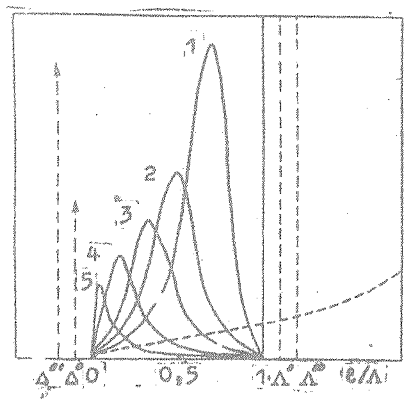


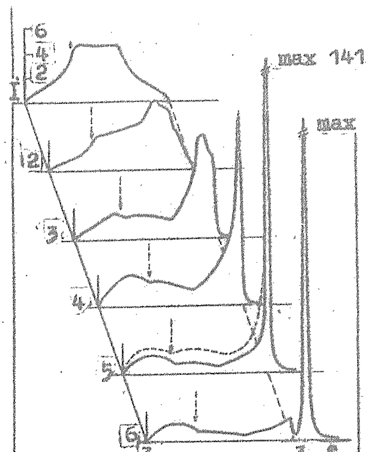
Рис. 1. Зона двухчастичных состояний оптических фононов, имеющих закон дисперсии (2). Пунктирная кривая – невозмущенная плотность состояний. Сплошными линиями показана плотность состояний с различными значениями константы связи $\lambda_4^{\circ} = -0{,}2$ (1); $\lambda_4^{\circ} = -0{,}3$ (2); λ_4° $-0{,}4$ (3); $\lambda_4^{\circ} = -0{,}6$ (4); $\lambda_4^{\circ} = -0{,}9$ (5) и фиксированном Λ. Пунктирные стрелки обозначают связанные состояния фононов, соответствующие энергиям ε/Λ' и ε/Λ''. Верхние пределы интегрирования Λ' и Λ'' ($\Lambda' < \Lambda''$) отвечают разным параметрам a ($a' < a''$)

закону. При увеличении $|\lambda_4^o|$ плотность состояний представляет собой плавную кривую с максимумом внутри зоны.

Исследуем теперь условия связывания оптических фононов, имеющих закон дисперсии (I), и проведем сопоставление с экспериментальными результатами, полученными в работах /4,5/ для кристаллов NH_4Cl. В соотношении (I) введем обозначение $4s^2/a^2 = (2/3)\beta$. Функция (4) после простых преобразований и перехода к безразмерным переменным принимает вид:

$$\pi(\varepsilon) = \int_{-3}^{+3} \frac{\rho_2^o(\varepsilon')d\varepsilon'}{\varepsilon - 2 \ldots + i\gamma}, \qquad (II)$$

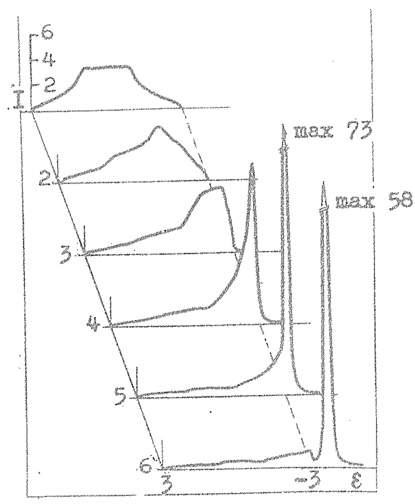
где $\rho_2^o(\varepsilon') = (3\omega_0/16\pi^3\beta) \int_{-\infty}^{+\infty} [I_0(t)]^3 \exp(i\varepsilon' t)dt$ – невозмущенная плотность состояний оптических фононов с законом



Р и с. 2. Плотность состояний оптических фононов для трехмерной кубической решетки при различных значениях константы ангармонизма $\lambda_4^o = 0,0$ (1); $\lambda_4^o = -0,2$ (2); $\lambda_4^o = -0,4$ (3); $\lambda_4^o = -0,6$ (4); $\lambda_4^o = -0,8$ (5); $\lambda_4^o = -1,0$ (6). Параметр затухания $\gamma = 0,01$. Пунктирной линией показан участок спектра кристалла NH_4Cl, исследованный в работе /5/

дисперсии (I) в единичном объеме, $I_0(t)$ – функция Бесселя нулевого порядка и безразмерные переменные $\varepsilon' = 3(\omega'^2 - \omega_0^2)/\beta - 3$, $\varepsilon = 3(\omega^2/2 - \omega_0^2)/\beta - 3$ и $\gamma = 3\omega_0\Gamma/\beta$. Плотность двухфононных состояний рассчитывалась нами по соотношениям (3), (6) и (IO) с параметрами колебательного экситона $\nu_4(F_2) = 1400$ см$^{-I}$ кристалла NH_4Cl в области частот $(2\omega_0;\ 2\omega_0 + 4\beta/\omega_0)$, соответствующей обертону колебания $\nu_4(F_2)$. Рассчитанная плотность состояний сравнивалась со спектрами КР, полученными в работах /4,5/. Резкий максимум, наблюдаемый у низкочастотной границы зоны $2\nu_4$, был интерпретирован в работах /4,5/ как квазисвязанное (резонансное) состояние оптических фононов.

На рис. 2 представлены графики плотности двухфононных состояний, рассчитанные нами при различных значениях константы ангармонизма λ_4° и константе затухания $\gamma = 0{,}01$. По оси абсцисс отложены частоты в безразмерных единицах ε. Пунктирными стрелками показано изменение максимумов функции плотности



Р и с. 3. Плотность состояний оптических фононов с законом дисперсии (I) и параметром затухания $\gamma = 0{,}05$. Кривые I–6 соответствуют тем же значениям λ_4°, что и на рис. 2

состояний с увеличением константы связи $|\lambda_4^0|$. При $\lambda_4^0 = -0{,}8$ рассчитанная плотность состояний удовлетворительно согласуется с экспериментальным спектром комбинационного рассеяния (КР) /5/. На рис. 3 приведены рассчитанные плотности состояний с параметром $\gamma = 0{,}05$ для различных значений λ_4^0. Как видно из рис. 2 и 3, с увеличением затухания происходит уширение и уменьшение интенсивности максимума, соответствующего квазисвязанному состоянию.

Таким образом нами установлено, что для закона дисперсии (2) связанные состояния оптических фононов образуются ниже двухфононной зоны при отрицательных значениях константы взаимодействия λ_4^0. Численное значение λ_4^0 определяется граничным импульсом при интегрировании в $\pi(\varepsilon)$ и массой "покоя" фононов $m = \hbar\omega_0/s^2$.

Показано, что в случае оптических фононов с законом дисперсии (I), на основе используемой теории удается удовлетворительно объяснить наблюдаемые особенности спектров КР в области двухфононных зон кристалла хлористого аммония.

Поступила в редакцию
4 июня 1982 г.

Литература

1. В. С. Горелик, Препринт ФИАН № 193, М., 1976 г.
2. J. Ruvalds, A. Zawadowski, Phys. Rev., B2, 1172 (1970).
3. A. Zawadowski, J. Ruvalds, Phys. Rev. Lett., 24, 1111 (1970).
4. Г. Г. Митин, В. С. Горелик, М. М. Сущинский, ФТТ, 16, 2956 (1974).
5. М. В. Белоусов, Д. Е. Погарев, Письма в ЖЭТФ, 28, 692 (1978).