

СВЯЗАННЫЕ ВОЗБУЖДЕННЫЕ
ПЯТИФОНОННЫЕ КОМПЛЕКСЫ НОВОГО ТИПА

О. А. Дубовский, А. В. Орлов

Исследован спектр многофононных колебаний в области пятого обертона ангармонических оптических колебаний. Показано, что вследствие ангармонизма колебаний взаимодействие фононов приводит к образованию связанных пятифононных комплексов в основном и возбужденном состояниях. Определено положение термов этих связанных комплексов в спектре колебаний относительно полос диссоциированных пятифононных состояний. Показано, что термы возбужденных пятифононных комплексов s - и p -типа отщепляются от низкочастотной и высокочастотной границ зоны диссоциированных состояний трифонон (в основном состоянии) + бифонон. Найдены волновые функции этих состояний и соответственно определен физический смысл этих комплексов как состояний, в которых при сильном ангармонизме два фонона спариваются на одном узле решетки, а остальные три фонона связанного пятифононного комплекса локализируются на ближайшем узле решетки, но не на узле спаривания. Найдена зависимость термов связанных колебаний от константы ангармонизма. Развита теория может быть использована для расшифровки тонкой структуры спектров многофононных колебаний, которая экспериментально наблюдается методами нейтронной, электронной и оптической спектроскопии.

В настоящее время проводятся теоретические и экспериментальные исследования колебательных спектров кристаллов, в которых вследствие ангармонизма колебаний взаимодействие фононов приводит к образованию связанных комплексов из двух, трех, четырех и т. д. фононов. Таким связанным многофононным состояниям в спектре колебаний отвечают отдельные линии или полосы, расположенные вне континуума частот несвязанных диссоциированных многофононных состояний. Существующее состояние теории связанных двухфононных колебаний (бифононов) и трехфононных колебаний (трифононов), а также состояние экспериментальных исследований в этой области представлены в обзорах [1-3]. Представляют интерес последние экспериментальные исследования в области многофононных колебаний методами нейтронной, электронной и оптической спектроскопии, в частности нейтронные исследования многофононных колебаний водорода и дейтерия в гидридах металлов [4-9]. Например, в [5] методом рассеяния медленных нейтронов в гидридах титана, тантала, ниобия и ванадия наблюдалась тонкая структура спектров многофононных колебаний в обертонах до 5-го порядка. В [8] тем же методом в гидриде ванадия наблюдались обертоны до 14-го порядка. При этом энергия высоковозбужденных многофононных колебаний — обертонов 5-го порядка в [5] — составляет уже величину порядка 600—700 мэВ, т. е. порядка высоты барьера, определяющего вероятность диффузионного скачка водорода в металле. По-видимому, такие высоковозбужденные околороговые существенно нелинейные многофононные колебания могут заметно влиять на сам механизм диффузионного перемещения водорода в металле и в более общем плане на процессы массопереноса в твердом теле.

В связи с этим представляет интерес изучение тонкой структуры спектров связанных многофононных колебаний в области обертонов высокого

порядка. Как известно [1-4], в области 2-го тона оптических колебаний (например, группы NH_4^+ в ионных кристаллах NH_4Br , NH_4Cl , водорода в гидридах металлов и т. д.) вблизи низкочастотной границы полосы диссоциированных несвязанных двухфононных колебаний при сильном ангармонизме существует одна выделенная зона связанных двухфононных колебаний (бифононов), проявляющаяся экспериментально в виде узкого интенсивного пика в спектре колебаний. При достаточно сильном ангармонизме $A > T$, где A — соответствующая константа ангармонизма (см. ниже) и T — полуширина однофононной полосы, энергия бифонона E составляет величину порядка $E \approx 2E_0 - 2A$, где E_0 — энергия первого возбужденного колебательного терма соответствующего изолированного осциллятора, например атома водорода в металле с низкой концентрацией водорода.

Как показано в [10, 11], связанные трехфононные колебания (трифононы) могут существовать как в основном состоянии с энергией $E \approx 3E_0 - 6A$, так и в возбужденном состоянии с энергией $E \approx 3E_0 - 2A$. При этом два терма возбужденных трифононов могут находиться вблизи обеих, низкочастотной и высокочастотной, границ полосы диссоциированных состояний бифонон + свободный фонон, так что общее число зон связанных трехфононных колебаний (трифононов) в отличие от области 2-го тона равно трем. Мультиимодовый спектр связанных трехфононных колебаний типа найденных в [10, 11] экспериментально наблюдался в [7] методом рассеяния медленных нейтронов.

Теоретические исследования в области 4-го тона проводились в [12]. Авторы, используя метод анзаца Бете, подтвердили выводы работы [11] о существовании связанных трифононов в возбужденном состоянии. В работе [13] с использованием ранее развитой общей теории связанных многофононных колебаний [1-3, 10, 11] исследовался спектр связанных четырехфононных колебаний. Было показано, что связанные четырехфононные колебания (квартафононы) существуют как в основном состоянии ($E \approx 4E_0 - 12A$), так и в возбужденном состоянии с энергией $E \approx 4E_0 - 4A$. Изолированный терм этого связанного возбужденного состояния типа «бифононной молекулы» [13] расположен вблизи высокочастотного края полосы диссоциированных состояний бифонон + бифонон.

В связи с тем что, во-первых, экспериментальные исследования, как указано выше, проводятся в области до 5-го тона и выше и, во-вторых, существует определенная неравномерность в последовательности чисел связанных многофононных состояний (во втором оберitone одно связанное состояние, в третьем оберitone три связанных состояния и в четвертом оберitone два связанных состояния), представляет интерес исследование связанных пятифононных колебаний для установления закономерности в такой последовательности. В настоящей работе показано, что в спектре связанных пятифононных колебаний наряду с термом основного связанного состояния присутствуют два терма связанных пятифононных комплексов (СПФК) принципиально нового типа. Эти термы СПФК расположены вблизи низкочастотной и высокочастотной границ полосы диссоциированных состояний свободный трифонон (в основном состоянии) + свободный бифонон (TR + BR). Отщепление термов этих состояний от границ TR + BR зоны при сильном ангармонизме постоянно, как и для трифононов [11], но не для «бифононной молекулы» [13]. Физический смысл этих состояний следует из вида найденных ниже волновых функций — он отвечает при сильном ангармонизме локализации связанных пары и тройки фононов пятифононного комплекса на ближайших узлах решетки, но не на одном и том же узле (в этом случае волновая функция равна нулю).

При учете ангармонизма 3-го и 4-го порядков по смещениям соответствующих осцилляторов [1-3] в представлении вторичного квантования модельный гамильтониан \hat{H} кристалла имеет следующий вид:

$$\hat{H} = \sum_n E_n \hat{B}_n^+ \hat{B}_n + \sum_{n \neq m} V_{nm} \hat{B}_n^+ \hat{B}_m - A \sum_n (\hat{B}_n^+)^2 (\hat{B}_n)^2, \quad (1)$$

где E_0 — энергия собственных колебаний изолированного осциллятора; \hat{B}_n^+ , \hat{B}_n — Бозе-операторы рождения, уничтожения колебательного возбуждения в узле n ; V_{nm} — энергия межатомного взаимодействия, определяющая перенос колебательного возбуждения; $A > 0$ — константа ангармонизма, определяющая двухчастичное взаимодействие возбуждений (учет трехчастичного взаимодействия см. в [2, 3]).

Решение уравнения Шредингера $\hat{H} |5\rangle = E |5\rangle$ для пятифононных колебательных состояний $|5\rangle$ с энергией E ищется в виде

$$|5\rangle = \sum_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5} \Psi_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5} \hat{B}_{n_1}^+ \hat{B}_{n_2}^+ \hat{B}_{n_3}^+ \hat{B}_{n_4}^+ \hat{B}_{n_5}^+ |0\rangle. \quad (2)$$

Подстановка (2) в уравнение Шредингера с использованием соответствующих коммутационных соотношений для операторов \hat{B}_n^+ , \hat{B}_n позволяет сформулировать следующую систему уравнений для функций $\Psi_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5}$ и величины E :

$$\left[E - 5E_0 + 2A \left(\sum_{i < j} \delta_{ij} \right) \right] \Psi_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5} = \sum_p (V_{n_1, p} \Psi_{pn_2, n_3, n_4, n_5} + V_{n_2, p} \Psi_{n_1, pn_3, n_4, n_5} + V_{n_3, p} \Psi_{n_1, n_2, pn_4, n_5} + V_{n_4, p} \Psi_{n_1, n_2, n_3, pn_5} + V_{n_5, p} \Psi_{n_1, n_2, n_3, n_4, p}), \quad i, j = 1, 2, \dots, 5. \quad (3)$$

Перейдем в (3) к соответствующему Фурье-представлению для функций Ψ

$$\Psi_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5} = \sum_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5} \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5} \exp \left[i \sum_{j=1}^5 (k_j n_j) \right]. \quad (4)$$

В результате получаем следующую систему уравнений для волновых функций $\tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}$ в волновом представлении и энергии E :

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5} + 2AG_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}(E) \frac{1}{N} \sum_q (\tilde{\Psi}_{k_1+q, k_2-q, k_3, k_4, k_5} + \tilde{\Psi}_{k_1+q, k_2, k_3-q, k_4, k_5} + \\ + \tilde{\Psi}_{k_1+q, k_2, k_3, k_4-q, k_5} + \tilde{\Psi}_{k_1+q, k_2, k_3, k_4, k_5-q} + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2+q, k_3-q, k_4, k_5} + \\ + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2+q, k_3, k_4-q, k_5} + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2+q, k_3, k_4, k_5-q} + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3+q, k_4-q, k_5} + \\ + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3+q, k_4, k_5-q} + \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4+q, k_5-q}) = 0, \end{aligned} \quad (5)$$

где функции Грина $G_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}(E)$ связаны с энергией однофононных колебаний E_k соотношением

$$\begin{aligned} G_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}(E) = (E - E_{k_1} - E_{k_2} - E_{k_3} - E_{k_4} - E_{k_5})^{-1}, \\ E_k = E_0 + \sum_{n(\neq m)} V_{nm} \exp [ik(n-m)], \end{aligned} \quad (6)$$

N — число осцилляторов в основном объеме.

Как это следует из (5), СПФК вследствие трансляционной инвариантности классифицируются по полному волновому вектору $K = k_1 + k_2 + k_3 + k_4 + k_5$, который в дальнейшем считается фиксированным.

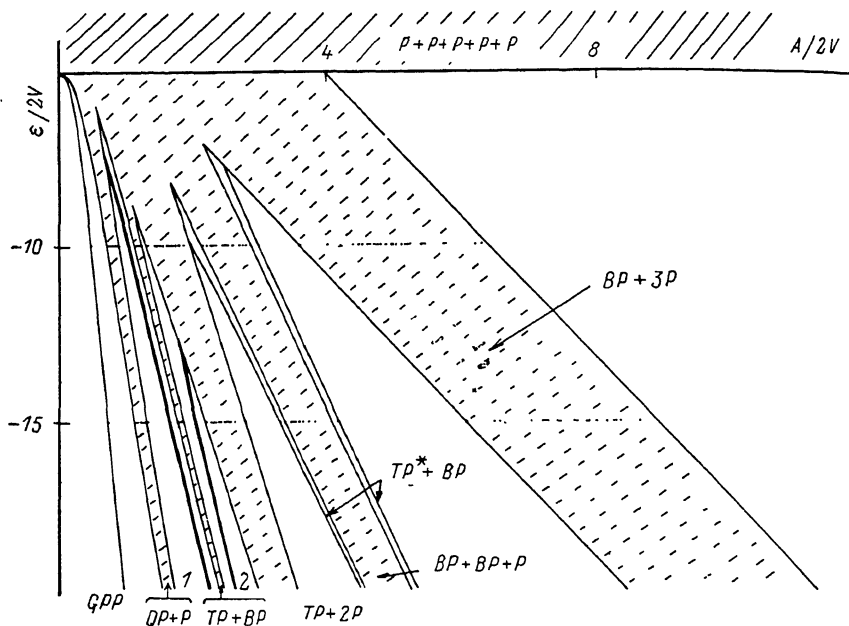
Из (5) следует, что значения волновых функций $\tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}$ и энергии E определяются следующими линейными суперпозициями волновых функций $\tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}$:

$$S_{k_1, k_2, k_3} = \frac{1}{N} \sum_{k_4} \tilde{\Psi}_{k_1, k_2, k_3, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4}. \quad (7)$$

После некоторых вычислений из (5) для функций S_{k_1, k_2, k_3} и E получаем следующее сложное интегральное уравнение:

$$\begin{aligned} S_{k_1, k_2, k_3} \left[\frac{1}{2A} + \frac{1}{N} \sum_{k_4} G_{k_1, k_2, k_3, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4}(E) \right] + \frac{1}{N} \sum_{k_4} G_{k_1, k_2, k_3, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4}(E) \times \\ \times (S_{k_1, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + S_{k_2, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + S_{k_3, k_4, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + S_{k_1, k_2, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + \\ + S_{k_1, k_3, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + S_{k_2, k_3, K-k_1-k_2-k_3-k_4} + S_{k_1, k_2, k_4} + S_{k_1, k_3, k_4} + S_{k_2, k_3, k_4}) = 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Из (8) следует, что в спектре пятифононных колебаний присутствует полоса полностью диссоциированных пятифононных колебаний $P+P+P+P+P$ в области энергий $5E_0+5T$, $5E_0-5T$, отвечающая полюсам функции Грина $G_{k_1, k_2, k_3, k_4, k_5}(E)$, являющимися и полюсами ядра интегрального уравнения (8). Наряду с полосой связанных пятифононных колебаний в основном состоянии GPP ($E \approx 5E_0 - 20A$ при $V \rightarrow 0$) в спектре присутствует полоса диссоциированных состояний бифонон + три свободных фонона с энергией колебаний $E = \tilde{E}(K, k_1, k_2, k_3) = E^{BP}(K - k_1 - k_2 - k_3) + E_{k_1} + E_{k_2} + E_{k_3}$ в области $5E_0 - 2A + 3T$, $5E_0 - 2A - 3T$, где $E^{BP}(K -$



Зависимость спектра пятифононных колебаний от константы ангармонизма.

1, 2 — термы связанных возбужденных пятифононных комплексов s - и p -типа.

$-k_1 - k_2 - k_3$) — энергия бифонона с волновым вектором $K - k_1 - k_2 - k_3$. При этом величина $\tilde{E}(K, k_1, k_2, k_3)$ определяется из уравнения

$$1 + 2A \frac{1}{N} \sum_{k_i} G_{k_1, k_2, k_3, k_4, K - k_1 - k_2 - k_3 - k_4}(\tilde{E}) = 0, \quad (9)$$

которое непосредственно следует из общего дисперсионного уравнения для зависимости энергии бифонона от волнового вектора [l^{-3}].

Из более детального анализа уравнения (8) и его численного решения (см. рисунок) следует, что в спектре пятифононных колебаний наряду с указанными GPP ($E \approx 5E_0 - 20A$), $P+P+P+P+P$ ($E \approx 5E_0$) и $BP+3P$ ($E \approx 5E_0 - 2A$) полосами присутствуют полоса диссоциированных состояний бифонон + бифонон + свободный фонон $BP+BP+P$ ($E \approx 5E_0 - 4A$), полоса диссоциированных состояний трифонон (в основном состоянии) + два свободных фонона $TP+2P$ ($E \approx 5E_0 - 6A$), полоса квартафонон + свободный фонон $QP+P$ ($E \approx 5E_0 - 12A$) и полоса диссоциированных состояний трифонон + бифонон $TP+BP$ ($E \approx 5E_0 - 8A$).

Последующий анализ и непосредственное численное решение уравнения (8) на ЭВМ показывают (см. ниже), что именно вблизи обеих границ последней полосы диссоциированных состояний $TP+BP$ находятся термы связанных пятифононных колебаний нового типа. Будем в дальнейшем считать суммарный волновой вектор СПФК фиксированным и равным нулю $K=0$. Именно такого рода состояния должны, как известно, прежде всего проявляться в оптических спектрах. Эффекты дисперсии

могут быть изучены впоследствии, так же как это было выполнено для трифононов в [14, 15]. Поскольку в данной сложной проблеме пяти тел — пяти элементарных возбуждений в кристалле — точное решение системы уравнений (8) неизвестно (так же как это имеет место и для более простых проблем трех и четырех тел), будем искать аналитическое решение уравнения (8) в случае сильного ангармонизма, т. е. при $A > T$. Далее, как и в работах [11, 13], будем рассматривать одномерный кристалл. В этом случае известно точное решение уравнения (9) для определения энергии бифонона в одномерной кристаллической цепочке при учете взаимодействия ближайших соседей [1-3]. Будем полагать $V_{nm} = -V\delta_{n, m+l}$, $V > 0$, где l — единичный вектор, направленный из m в ближайшие узлы. При этом энергия однофононных колебаний $E_k = E_0 - 2V \cos(ka)$, где a — постоянная кристаллической цепочки, и решение (9) дает следующую дисперсионную зависимость для энергии бифонона с волновым вектором k :

$$E^{\text{вп}}(k) = 2E_0 - \sqrt{(2A)^2 + (2T)^2 \cos^2(ka/2)}, \quad T \equiv 2V. \quad (10)$$

Из (10) видно, что высокочастотный край бифононной зоны отвечает волновому вектору $k = \pi/a$ и имеет энергию $E_{\pi}^{\text{вп}} = 2E_0 - 2A$, в то время как низкочастотный край бифононной зоны отвечает волновому вектору $k = 0$ и равен $E_0^{\text{вп}} = 2E_0 - \sqrt{(2A)^2 + (2T)^2}$.

Решения уравнения (8) будем искать в рамках уже использованной нами ранее процедуры [11, 13]. Именно мы будем считать фиксированным значение энергии E , и для этого E мы будем искать такие значения констант ангармонизма $A = A(E)$, при которых уравнение (8) имеет нетривиальное решение. Найдя решение такой «обратной» задачи $A(E)$, нетрудно затем восстановить и прямую зависимость $E = E(A)$. Вместо величин E и A удобно ввести величину энергии связи $\epsilon = |E - 5E_0|$ и функцию $\bar{A}(\epsilon) = 1/2A(E)$. Будем искать зависимость $\bar{A}(\epsilon)$ для СПФК вблизи $TP + BP$ зоны при $A > T$ или, что то же, при $\epsilon > T$ в виде разложения

$$\bar{A}(\epsilon) = \frac{4}{\epsilon} - \delta^{(1)} \frac{\mu}{\epsilon} - \delta^{(2)} \frac{\mu^2}{\epsilon}, \quad \mu = \frac{T}{\epsilon}. \quad (11a)$$

Отметим, что, согласно общей теории [1-3], ширина бифононной зоны при сильном ангармонизме $\sim T^2/A$, а ширина трифононной зоны $\sim T^3/A^2$ [10]. Следовательно, ширина зоны диссоциированных состояний $TP + BP$ определяется в указанном в (11a) приближении шириной бифононной зоны, так что для низкочастотной $E = E_{\pi}$ и высокочастотной $E = E_0$ границ $TP + BP$ полосы $\bar{A}_{\pi} = 1/2A_{\pi}$ и $\bar{A}_0 = 1/2A_0$ имеем, согласно (10),

$$\bar{A}_{\pi} = \frac{4}{\epsilon} + \frac{8(2T)^2}{\epsilon^3}, \quad \bar{A}_0 = \frac{4}{\epsilon}. \quad (11b)$$

Введенные в (10) безразмерные константы $\delta^{(1)}$ и $\delta^{(2)}$, которые и находятся в дальнейшем, определяют отщепление термов СПФК нового типа от границ (11) зоны $TP + BP$. Волновые функции $S_{k_1 k_2 k_3}$ ищутся соответственно (10) в виде

$$S_{k_1 k_2 k_3} = S_{k_1 k_2 k_3}^{(0)} + \mu S_{k_1 k_2 k_3}^{(1)} + \mu^2 S_{k_1 k_2 k_3}^{(2)}. \quad (12)$$

Приравнивая в (8) члены нулевого, а затем и первого по μ порядка, получаем последовательно систему связанных интегральных уравнений для функций $S_{k_1 k_2 k_3}^{(j)}$, $j = 0, 1, 2$ и величин $\delta^{(1)}$, $\delta^{(2)}$. Подробное изложение процедуры решения этой сложной системы уравнений предполагается в дальнейшем. Здесь же приведем лишь окончательные результаты.

Решения (8) разделяются на симметричные s и антисимметричные p по волновым векторам, причем термы соответствующих СПФК отщепляются от низкочастотной и высокочастотной границ $TP + BP$ зоны. Волновые функции $S_{k_1 k_2 k_3}$ — решения (8) — могут быть при соответствующей нормировке представлены в следующем виде:

$$S_{k_1 k_2 k_3} = c_{k_1+k_2} + c_{k_1+k_3} + c_{k_2+k_3} + c_{-k_1-k_2-k_3} + \frac{1}{8} \{ c_{-2(k_1+k_2)} + c_{-2(k_1+k_3)} + c_{-2(k_2+k_3)} + c_{2(k_1+k_2+h_3)} \} - 8(c_{k_1} + c_{k_2} + c_{k_3}) - (c_{-k_1-k_2} + c_{-k_1-k_3} + c_{-k_2-k_3} + 3c_{k_1+k_2+k_3}) + 2(\bar{c}_{k_1} + \bar{c}_{k_2} + \bar{c}_{k_3})(c_{k_1+k_2} + c_{k_1+k_3} + c_{k_2+k_3} + c_{-k_1-k_2-k_3}) + 2\{(\bar{c}_{k_1} + \bar{c}_{k_2})c_{k_1+k_3} + (\bar{c}_{k_1} + \bar{c}_{k_3})c_{k_1+k_2} + (\bar{c}_{k_2} + \bar{c}_{k_3})c_{k_2+k_3}\}. \quad (13)$$

В (13) функции c_k для симметричных состояний c_{k_s} и антисимметричных c_{k_p} имеют следующий вид:

$$c_{k_s} = \bar{c}_{k_s} = \cos(ka), \quad c_{k_p} = \sin(ka). \quad (14)$$

Соответственно для s - и p -состояний величины $\delta_s^{(1,2)}$, определяющие отщепления термов СПФК от границ $TP+BP$ полосы, равны

$$\delta_s^{(1)} = -\delta_p^{(1)} = -6, \quad \delta_s^{(2)} = \delta_p^{(2)} = -7, \quad (15)$$

так что полное представление зависимостей $\bar{A}(\varepsilon)$ для s -состояний $\bar{A}_s(\varepsilon)$ и p -состояний $\bar{A}_p(\varepsilon)$ имеет вид

$$\bar{A}_s(\varepsilon) = \frac{4}{\varepsilon} + \frac{6T}{\varepsilon^2} + \frac{7T^2}{\varepsilon^3}, \quad \bar{A}_p(\varepsilon) = \frac{4}{\varepsilon} - \frac{6T}{\varepsilon^2} + \frac{7T^2}{\varepsilon^3}. \quad (16)$$

Следовательно, отщепления термов СПФК от границ $TP+BP$ зоны уже непосредственно в энергетическом представлении $\Delta\varepsilon_s = E_{11} - E_s$, $\Delta\varepsilon_p = E_s - E_p$ имеют следующие зависимости от констант ангармонизма:

$$\Delta\varepsilon_s = -\Delta\varepsilon_p = \frac{3}{2}T - \frac{17}{16}\frac{T^2}{A}. \quad (17)$$

Соотношения (13), (14) и (4), (5)—(8) позволяют определить волновую функцию СПФК в координатном представлении, что дает возможность выяснить физический смысл этих состояний. Из (4), (5)—(8) следует, что при сильном ангармонизме $\Psi_{n_1 n_2 n_3 n_4 n_5}^{(1)}$ в координатном представлении имеет следующий вид:

$$\Psi_{n_1 n_2 n_3 n_4 n_5}^{(0)} = \delta_{n_1 n_2} \delta_{n_2 n_3} \delta_{n_3 n_4} \varphi_{n_5 n_4}^{(0)} + \delta_{n_1 n_2} \delta_{n_3 n_4} \delta_{n_4 n_5} \varphi_{n_2 n_3}^{(0)} + \delta_{n_1 n_4} \delta_{n_2 n_3} \delta_{n_3 n_5} \varphi_{n_1 n_2}^{(0)} + \delta_{n_1 n_3} \delta_{n_2 n_3} \delta_{n_3 n_4} \varphi_{n_1 n_2}^{(0)} + \delta_{n_1 n_4} \delta_{n_4 n_5} \delta_{n_2 n_3} \varphi_{n_1 n_2}^{(0)} + \dots, \quad (18)$$

где функция $\varphi_r^{(0)}$ относительного движения в комплексе является вырожденной функцией следующего вида:

$$\varphi_r^{(0)} = \begin{cases} 0, & r=0, |r| > a, \\ 1, & r = \pm a, \end{cases} \quad \varphi_r^{(0)} = \begin{cases} 0, & r=0, |r| > a, \\ r/|r|, & r = \pm a. \end{cases} \quad (19)$$

Из (18), (19) непосредственно следует указанный выше физический смысл СПФК нового типа, а именно представление о связанном пятифононном комплексе, в котором два фонона комплекса локализованы на одном узле спаривания, а остальные три фонона комплекса локализованы на ближайшем узле решетки, но не на узле спаривания, поскольку в этом случае при $r=0$ и $\varphi_{r=0}=0$. В следующем относительно (18), (19) приближении φ_r отлична от нуля уже при $|r|=2a$. Последующие $m=3, 4, \dots$ приближения дают, очевидно, отличные от нуля φ_r при дальнейшем увеличении $|r|$, причем эти значения уменьшаются, поскольку они пропорциональны ε^{-m+1} . В этом и заключается интересное принципиальное отличие волновой функции найденных СПФК от волновых функций возбужденных трифононов [11] и «бифононной молекулы» [13]. Отметим, что волновая функция симметричных СПФК монотонно уменьшается при увеличении $|r|$ и, естественно, $\varphi_r = \varphi_{-r}$, в то время как φ_r для антисимметричного СПФК при увеличении $|r|$ осциллирует и $\varphi_r = -\varphi_{-r}$, причем и в том и в другом случаях $\varphi_{r=0}=0$.

Параллельно с аналитическими расчетами было выполнено численное решение системы уравнений (8) на ЭВМ ЕС-1061 во всем интервале значений A , в том числе и при $A \simeq T$. Использовались стандартные программы

определения собственных значений (в данном случае величин $1/2A$ в (8)) и собственных функций при диагонализации соответствующей (8) матрицы $L_{k_1 k_2 k_3}^{k_1' k_2' k_3'}$. Отметим, что с увеличением N катастрофически возрастает порядок \hat{L} . Этот порядок может быть понижен при использовании условий симметрии. Наши возможности позволили выполнить расчет спектра пятифононных колебаний с $N=8$. При этом порядок диагонализуемой матрицы $N_0=120$. Результаты расчета представлены на рисунке, полученном с графопостроителя ЭВМ в виде зависимости $\epsilon(A)$. Из рисунка видно, что спектр пятифононных колебаний включает терм основного связанного пятифононного комплекса GPP , полосы $QP+P$, $TP+BP$, $TP+2P$, $BP+BP+P$, $BP+3P$ и полосу $P+P+P+P$. Горизонтальные ряды точек при двух значениях ϵ представляют схематически результаты расчетов собственных значений величины $1/2A$ при фиксированном ϵ . Плотность точек дает представление о плотности состояний в полосах. Вблизи границ полосы $BP+BP$ видны термы состояний TP^*+BP (трифонон (в возбужденном состоянии)+бифонон).

На рисунке вблизи высокочастотной и низкочастотной границ, сужающихся в соответствии с [11], при увеличении A зоны $TP+BP$ отчетливо видны отщепленные термы 1, 2 связанных пятифононных колебаний указанных выше типов. Функциональные зависимости $\epsilon(A)$ описываются соотношениями (16), (17) с высокой точностью. Отметим, что терм 2 при уменьшении A удаляется от полосы $TP+BP$ и приближается к низкочастотному краю полосы $TP+2P$, терм же 1 приближается к верхнему краю $QP+P$ полосы.

Отметим, что изучение спектров связанных многофононных колебаний, в частности трифононных [11], привлекает внимание исследователей в смежных областях, в частности в области многомагнанных состояний [16]. Поэтому представляет интерес дальнейшее изучение возможности существования связанных многочастичных состояний указанного вида и для элементарных возбуждений иного типа (многоэкситонных, многомагнанных и т. д.).

Авторы выражают искреннюю признательность В. М. Аграновичу за полезные замечания.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Agranovich V. M. // Spectroscopy and Excitation Dynamics of Condensed Molecular Systems / Ed. V. M. Agranovich, R. M. Hochstrasser. North-Holland, Amsterdam, 1983. P. 83—185.
- [2] Agranovich V. M., Dubovsky O. A. // Int. Rev. Phys. Chem. 1986. V. 5. N 1. P. 93—101.
- [3] Agranovich V. M., Dubovsky O. A. // Optical Properties of Mixed Crystals / Ed. R. J. Elliott, I. P. Ipatova. North-Holland, Amsterdam, 1988. P. 297—398.
- [4] Anderson I. S., Rush J. J., Uvodic T., Rowe J. M. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. N 22. P. 2822—2827.
- [5] Ikeda S., Watanabe N. // КЕК Preprint. 1986. N 66. 30 p.
- [6] Жижин Г. Н., Москалева М. А., Шафрановский П. А., Шуб Б. П. // Поверхность. 1987. В. 7. С. 141—143.
- [7] Goyal P. S., Penfold J., Tomkinson J. // Chem. Phys. Lett. 1986. V. 127. N 5. P. 483—486.
- [8] Hempelman R., Richter D., Price D. L. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. N 10. P. 1016—1019.
- [9] Richter L. J., Germer T. A., Sethna J. P., Ho W. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 15. P. 10403—10420.
- [10] Dubovsky O. A. // Sol. St. Comm. 1985. V. 54. N 3. P. 261—266.
- [11] Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V. // Phys. Lett. A. 1986. V. 119. N 2. P. 83—88.
- [12] Ораевский А. Н., Судаков М. Ю. // Препринт ФИАН. 1989. № 45. 41 с.
- [13] Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V. // Sol. St. Comm. 1989. V. 72. N 5. P. 491—496.
- [14] Дубовский О. А., Орлов А. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1688—1698.
- [15] Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V. // Sol. St. Comm. 1989. V. 70. N 6. P. 675—681.
- [16] Могильнер А. И. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 5 (11). С. 1828—1836.