

Левое неравенство получено из условия $\omega_0(q) \geq \Delta$, где $\omega_0(q)$ — старый закон дисперсии, полученный в [1]; правое — из условия $\text{Im} \omega(q) \leq \leq \text{Re} \omega(q)$, при котором из (2) получалось (6). Таким образом, в условиях дробного КЭХ в спектре КМП имеется область, где частота примерно постоянна (добавка к константе Δ мала при выполнении (7) и (8)), а добротность значительно ниже, чем в случае целого заполнения [1].

Автор выражает благодарность В. Л. Покровскому за постановку задачи и С. М. Апенко за стимулирующие обсуждения.

Список литературы

- [1] Волков В. А., Михайлов С. А. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 8. Р. 217.
- [2] McDonald A. H., Girvin S. M., Platzman P. M. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. P. 2481.
- [3] McDonald A. H., Girvin S. M., Platzman P. M. // Phys. Rev. B. 1985. V. 32. P. 8458.
- [4] Götze, Hajdu // J. Phys. C. 1978. V. 11. P. 3993.
- [5] McDonald A. H., Liu K. L., Girvin S. M., Platzman P. M. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. P. 4014.

Институт теоретической физики
им. Л. Д. Ландау
Черноголовка
Московская обл.

Поступило в Редакцию
12 июня 1991 г.

УДК 539.2 : 548.3

© Физика твердого тела, том 33, № 11, 1991
Solid State Physics, vol. 33, N 11, 1991

РАСЧЕТ ЧАСТОТ ЩЕЛЕВЫХ КОЛЕБАНИЙ ДЕФЕКТНЫХ ИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ РЕКУРСИВНЫМ МЕТОДОМ В МОДЕЛИ ОБОЛОЧЕК

В. Г. Мазуренко, А. Н. Кислов

В работах [1, 2] мы сообщали о расчетах резонансных и щелевых колебаний, индуцируемых собственными и примесными дефектами в ионных кристаллах, на основе рекурсивного метода в модели жестких ионов. Получено удовлетворительное согласие рассчитанных частот дефектных колебаний с экспериментальными значениями. Естественным продолжением этих работ является реализация рекурсивного метода в модели оболочек.

В данной работе приводятся результаты расчетов рекурсивным методом в оболочечной модели частот щелевых колебаний в кристалле KI, обусловленных примесью хлора (ион замещения) и F-центром. При этом использовали два набора параметров межионных потенциалов, полученных в рамках полуэмпирического [3] и эмпирического подхода [4] (модели I и II соответственно). Эти параметры успешно использовались для вычисления различных энергетических характеристик идеальных и дефектных кристаллов [3, 4].

С помощью данных параметров потенциалов межионного взаимодействия нами рассчитаны дисперсионные кривые кристалла KI для трех высокосимметричных направлений зоны Бриллюэна. Кроме того, дисперсионные кривые были вычислены в модели жестких ионов с неэмпирическим потенциалом [5] (модель III). Сравнение с экспериментом [6] дает наилучшее согласие для моделей I и II.

Для моделирования динамики решетки дефектных кристаллов в рекурсивном методе нами создан пакет программ RESMOD. Необходимые формулы и методика определения частот дефектных колебаний изложены

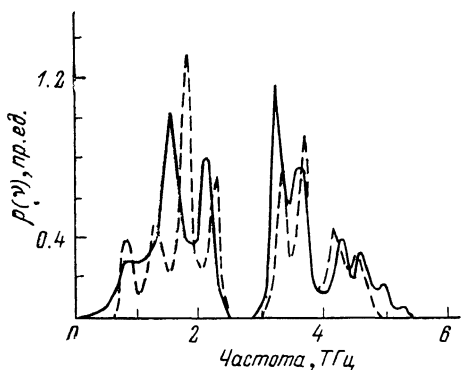
в работах [1, 2]. Остановимся на основных моментах, связанных с реализацией рекурсивного метода в модели оболочек.

Для расчета локальной плотности состояний фононов в рекурсивном методе используется динамическая матрица кластера в реальном пространстве, определяемая в оболочечной модели выражением

$$D = M^{-1/2} \{ (\Phi_{cc} + \Phi_{cs} + \Phi_{sc} + \Phi_{ss}) - (\Phi_{cs} + \Phi_{ss}) \Phi_{ss}^{-1} (\Phi_{sc} + \Phi_{ss}) \} M^{-1/2},$$

где M — диагональная матрица масс ионов, а Φ_{cc} , Φ_{cs} , Φ_{ss} — матрицы силовых постоянных взаимодействий ядро—ядро, ядро—оболочка, оболочка—оболочка. Выражения для элементов матриц Φ_{cc} , Φ_{cs} , Φ_{ss} приведены в работе [7]. Диагональные элементы этих матриц, соответствующие кулоновскому взаимодействию, рассчитывали по методу Эвальда [7]. Так как матрицы силовых постоянных имеют много нулевых элементов, при построении динамической матрицы использовали теорию разреженных матриц. В оболочечной модели из-за увеличения вычислительных сложностей значительно возрастают временные затраты ЭВМ. Использование

технологии разреженных матриц уменьшает их и позволяет рассматривать кластеры, содержащие до 250 атомов. Для сравнения при моделировании фононного спектра в модели жестких ионов использовали кластер из 1000—3000 атомов.



ППС фононов в кристалле KI, вычисленные с потенциалом модели III, для кластера, содержащего 2100 (сплошная линия) и 150 ионов (штриховая линия).

С целью исследования влияния размера кластера на колебательные спектры кристаллов для кластеров с 150 и 2100 атомами в модели III были проведены расчеты полной плотности состояний (ППС) фононов идеального кристалла KI (см. рисунок), а также частот целевых колебаний, индуцируемых ионом хлора и F -центром (см. таблицу). Анализ рисунка и таблицы показывает, что значение ширины запрещенной зоны для кластера, содержащего 150 ионов, практически не меняется. Наблюдается сужение как высокочастотной, так и низкочастотной части спектра, что, вероятно, связано с числом неправильно вычисленных пар коэффициентов разложения функции Грина в непрерывную дробь. Несмотря на искажения в ППС, частоты целевых колебаний удовлетворительно коррелируют между собой.

Частоты целевых колебаний, связанных с ионом хлора и F -центром в кристалле KI

| Кристалл | Симметрия | Частота, ТГц | | | | | |
|-------------------|-----------|--------------|-----------|------------|-------------|------------|-------------|
| | | модель I | модель II | модель III | модель* III | расчет [°] | эксперимент |
| KI : Cl | E_g | — | — | — | — | 2.23 | — |
| | T_{1u} | 2.65 | 2.20 | 2.55 | 2.70 | 2.34 | 2.31 [10] |
| | T_{1u} | 2.72 | 2.88 | 3.24 | 2.95 | 2.88 | — |
| KI с F -центром | E_g | — | — | — | — | — | 2.34 [12] |
| | T_{1u} | 2.26 | 2.31 | 2.41 | 2.40 | — | 2.46 [11] |
| | A_{1g} | 2.85 | 2.85 | — | — | — | 2.86 [12] |
| Ширина щели | | 2.05—2.75 | 2.16—2.95 | 2.50—3.00 | 2.50—2.90 | 2.25—2.93 | 2.10—2.87 |

* Кластер содержит 2100 ионов.

Нами вычислены ППС фононов для KI с потенциалами моделей I и II. Щель и основные максимумы в спектре частот хорошо согласуются с точным расчетом путем интегрирования по зоне Бриллюэна [6]. Дополнительные пики и искажения ППС в низкочастотной области обусловлены, возможно, небольшим размером кластера и связанной с этим неточностью рекурсивного метода.

В кристалле KI: Cl⁻ релаксацию решетки около Cl⁻ рассчитывали на основе метода молекулярной статистики по программе MOLSTAT [8]. В расчетах частот щелевых колебаний учитывали смещения ионов первых двух координационных сфер, так как смещения остальных ионов малы.

Результаты расчетов в разных моделях частот колебаний, связанных с ионом Cl⁻ и F-центром в KI, а также экспериментальные значения частот и вычисленные методом внедренного кластера [9] представлены в таблице. Для иона Cl⁻ в KI мы получили два щелевых колебания симметрии T_{1u} во всех трех моделях. В эксперименте по ИК поглощению [10] наблюдается только одна. Расхождение с экспериментом можно объяснить тем, что измерения ИК спектров не проводились за 2.7 ТГц, поэтому колебания с частотами, находящимися за этой границей, не обнаружены. Наши расчеты предсказывают существование колебания с частотой выше 2.7 ТГц, так же как и расчет [9]. Следует подчеркнуть, что расчет в модели жестких ионов дает одну из частот не чисто щелевую, так как она находится несколько выше запрещенной зоны. Для системы KI с F-центром вычисления в оболочечной модели предсказывают две частоты (T_{1u} и A_{1g}), а в модели III — только одну. Значения частот, полученные в моделях I и II, удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными. Колебание симметрии E_g не обнаружено. Это, вероятно, связано с тем, что в наших расчетах мы не учитывали релаксацию ионов около F-центра, так как программа MOLSTAT не позволяет ее вычислить. Надо отметить, что выбор параметров потенциала взаимодействия является важным моментом в расчетах, так как от потенциалов зависят частоты колебаний. Таким образом, проведенные расчеты показывают, что рекурсивный метод в рамках оболочечной модели может быть использован для вычисления частот колебаний, индуцируемых дефектами в ионных кристаллах.

Авторы выражают свою благодарность А. Н. Вараксину за предоставление программы MOLSTAT.

Список литературы

- [1] Мазуренко В. Г. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 1. С. 3399—3403.
- [2] Мазуренко В. Г., Кислов А. Н. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 4. С. 1220—1225.
- [3] Catlow C. R. A., Diller K. M., Norgett M. J. // J. Phys. C.: Solid State Phys. 1977. V. 10. N 9. P. 1395—1412.
- [4] Sangster M. J. L., Atwood R. M. // J. Phys. C.: Solid State Phys. 1978. V. 11. N 8. P. 1541—1555.
- [5] Boyer L. L. // Phys. Rev. B. 1981. V. 23. N 8. P. 3673—3685.
- [6] Dolling G., Cowley R. A., Schittenhelm C., Thorson I. M. // Phys. Rev. 1966. V. 147. N 2. P. 577—582.
- [7] Gillan M. J., Jacobs P. W. M. // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. N 2. P. 759—777.
- [8] Колмогоров Ю. Н., Вараксин А. Н. // Деп. в ВИНТИ. 1989. № 2395-B89.
- [9] Sangster M. J. L., Harding J. H. // J. Phys. C.: Solid State Phys. 1986. V. 19. P. 6153—6167.
- [10] Nolt I. G., Westwig R. A., Alexander R. W., Sievers A. J. // Phys. Rev. 1967. V. 157. N 3. P. 730—737.
- [11] Bauerle D., Hubner R. // Phys. Rev. 1976. V. 2. N 10. P. 4252—4262.
- [12] Buisson J. P., Taurel L. // Phys. Stat. Solidi. 1974. V. 63. N 1. P. k81—k84.

Уральский политехнический институт
им С М Кирова
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
17 июня 1991 г.