

УДК 538.913

## ДИСПЕРСИЯ ТРИФОНОНОВ НОВОГО ТИПА

О. А. Дубовский, А. В. Орлов

Развита теория дисперсии связанных трехфононных комплексов нового типа, найденных авторами в предыдущей работе для колебательных состояний с нулевым полным волновым вектором комплекса. Определена зависимость энергии связанных трехфононных комплексов этого типа от волнового вектора в одномерных и двумерных кристаллах, найдены соответствующие волновые функции колебательных состояний. Показано, что в одномерных кристаллах ширина полосы квадратична по параметру, равному отношению ширины однофононной полосы к энергии двухчастичного взаимодействия, а в двумерных кристаллах — линейна по этому параметру. Это обстоятельство может существенно определять условия образования локальных трифононов данного типа в кристаллах с дефектами.

В настоящее время проводятся экспериментальные и теоретические исследования колебательных спектров кристаллов, в которых вследствие ангармонизма колебаний взаимодействие фононов приводит к образованию связанных комплексов из двух, трех и т. д. фононов. Таким связанным многофононным состояниям в спектре колебаний отвечают отдельные линии и полосы, расположенные вне континуума несвязанных многочастичных состояний. Существующее состояние теории связанных двухфононных колебаний (бифононов) и состояние экспериментальных исследований в этой области представлены в обзорах [1-3]. Представляют интерес последние экспериментальные исследования в области многофононных колебаний методами нейтронной и оптической спектроскопии, в частности колебаний водорода и дейтерия в гидридах металлов [4-7].

Наряду с изучением бифононных колебаний в последнее время также проводятся исследования связанных трехфононных комплексов (СТФК) — трифононов. В [3, 8-10] изучались различные особенности спектра трифононов: условия образования, дисперсионные зависимости, особенности образования локальных СТФК в кристаллах с дефектами и т. д. Численные расчеты спектра связанных трехчастичных бозонных, фермионных и спин-волновых состояний проводились в [8] с использованием метода Монте-Карло. При этом изучались особенности колебательных термов, отвечающих, как это впоследствии выяснилось, основному состоянию трифононов. Волновая функция этого основного состояния в случае сильного ангармонизма колебаний отвечает локализации всех трех оптических фононов связанного комплекса на одних и тех же узлах решетки.

В [11] был найден новый тип СТФК, отвечающий в том же случае сильного ангармонизма локализации только двух фононов трехфононного комплекса на одном и том же узле решетки с локализацией третьего фонона связанного комплекса на ближайших узлах (но не на узле спаривания). При этом были изучены колебательные состояния с нулевым полным волновым вектором  $\mathbf{K}=0$ , найдены энергия и волновые функции таких колебаний в кристаллах различной размерности. В [3, 11] было показано, что в спектре колебаний соответствующие этим связанным состояниям изолированные термы отщепляются от обеих границ полосы диссоциированных состояний бифонон+свободный фонон ( $BP+P$ ), отделенной в свою очередь от полосы полностью диссоциированных трехфононных состояний

(P+P+P) (см. ниже рисунок, е). Заметим, что найденные в [3, 11] состояния существенно отличаются от изучаемых в ядерной физике «эфимовских» состояний в системе трех нуклонов [12].

В настоящей работе исследован весь спектр СТФК нового типа для состояний с произвольным значением волнового вектора  $K$  в первой зоне Бриллюэна. Определена дисперсия СТФК этого типа, т. е. найдена зависимость энергии и волновых функций таких колебаний от волнового вектора. Проведены теоретический анализ и соответствующие численные расчеты на ЭВМ ЕС-1060. При этом основное внимание уделяется изучению дисперсионной зависимости энергии СТФК от волнового вектора в одномерных и двумерных кристаллах, так как для этих кристаллов величины отщепления соответствующих термов от границ  $BP+P$  зоны наибольшие, и эти величины в экспериментах с одномерными и двумерными структурами [4, 6, 7] могут быть определены. Показано, что для одномерных и двумерных кристаллов в дисперсионной зависимости СТФК могут наблюдаться существенные различия, что в свою очередь может влиять на условия образования локальных СТФК этого типа в кристаллах с дефектами.

Развитая теория может быть использована для изучения спектров многофононных колебаний как в молекулярных и квазимолекулярных (например, ионных) кристаллах, так и при исследовании многофононных колебаний водорода (дейтерия) в гидридах металлов, растворах других атомов (O, N) в металлах [13]. В последнее время экспериментальные исследования многофононных колебаний H и D в гидридах металлов проводились методами нейтронной [4-6] и оптической [7] спектроскопии. Значительный ангармонический сдвиг для 2-й гармоники в 7 и 15 мэВ наблюдался в [4] при изучении рассеяния медленных нейтронов на монокристаллах иттрия с водородом и дейтерием. В этих кристаллах, как показано в [6], пары атомов D (или H), колебания которых связывались в [4] с соответствующими особенностями спектров, образуют квазиодномерные цепочки. В [7] методами поверхностной оптической спектроскопии изучались бифононные колебания хемосорбированных H и D на поверхности вольфрама, т. е. двумерный случай. Для широкого набора гидридов металлов ( $TaH_{0.1}$ ,  $TiH_2$ ,  $NbH_{0.31}$ ,  $VH_{0.33}$ ) в [6] изучались спектры рассеяния медленных нейтронов на высокоразрешающем нейтронном спектрометре. Экспериментально наблюдались ангармонические сдвиги во 2-й, 3-й, 4-й и 5-й гармониках в интервале 0.05—1 эВ с оцениваемой энергией ангармонического сдвига до 22 мэВ. При этом в области 3-й гармоники наблюдалась достаточно сложная структура спектра, детальный анализ которой, несомненно, представляет интерес.<sup>1</sup>

1. При учете внутримолекулярного ангармонизма 3-го и 4-го порядков по смещениям соответствующих осцилляторов [14] в представлении вторичного квантования модельный гамильтониан  $\hat{H}$  молекулярного (или квазимолекулярного) кристалла может быть представлен в следующем виде

$$\hat{H} = \sum_n E_0 \hat{B}_n^+ \hat{B}_n + \sum_{n \neq m} V_{nm} \hat{B}_n^+ \hat{B}_m - A \sum_n (\hat{B}_n^+)^2 (\hat{B}_n)^2, \quad (1)$$

где  $E_0$  — энергия собственных колебаний;  $\hat{B}_n^+$ ,  $B_n$  — Бозе-операторы рождения, уничтожения колебательных возбуждений в узле  $n$ ;  $V_{nm}$  — энергия взаимодействия, определяющая перенос возбуждения;  $A > 0$  — константа ангармонизма, определяющая двухчастичное взаимодействие (учет трехчастичного взаимодействия см. в [3, 15]).

Решение уравнения Шредингера  $\hat{H} |3\rangle = E |3\rangle$  для трехфононных колебательных состояний  $|3\rangle$  с энергией  $E$  ищется в виде

$$|3\rangle = \sum_{nmp} \Psi_{nmp} \hat{B}_n^+ \hat{B}_m^+ \hat{B}_p^+ |0\rangle. \quad (2)$$

<sup>1</sup> В гидриде  $\beta = V_2H$  обертоны до 14 порядка наблюдались в [16]. Спектр СТФК, типа исследованных в [11], экспериментально наблюдался в кристалле  $NH_4Br$  [20].

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  $\Psi_{nmp}$  и  $E$

$$[E - 3E_0 + 2A(\delta_{nm} + \delta_{mp} + \delta_{np})] \Psi_{nmp} = \sum_r (V_{nr} \Psi_{rmp} + V_{mr} \Psi_{npr} + V_{pr} \Psi_{nmr}). \quad (3)$$

Перейдем в (3) к соответствующему Фурье-представлению для  $\Psi_{nmp}$

$$\Psi_{nmp} = \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} \tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} \exp [i(\mathbf{k}_1 \mathbf{n} + \mathbf{k}_2 \mathbf{m} + \mathbf{k}_3 \mathbf{p})]. \quad (4)$$

В результате получаем следующую систему уравнений для функций  $\tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}$  и энергии  $E$

$$\tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} + 2AG_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}(E) N^{-1} \sum_q (\tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1+q, \mathbf{k}_2-q, \mathbf{k}_3} + \tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1+q, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3-q} + \tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2+q, \mathbf{k}_3-q}) = 0, \quad (5)$$

где функция Грина  $G_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}(E)$  связана с энергией однофоновых колебаний  $E_k$  соотношением

$$G_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}(E) = (E - E_{\mathbf{k}_1} - E_{\mathbf{k}_2} - E_{\mathbf{k}_3})^{-1}, \quad E_k = E_0 + \sum_{\mathbf{m}(\neq \mathbf{n})} V_{\mathbf{nm}} \exp [i\mathbf{k}(\mathbf{n} - \mathbf{m})] \quad (6)$$

( $N$  — число молекул в основном объеме).

Как это следует из (5), все СТФК вследствие трансляционной инвариантности классифицируются по полному волновому вектору  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ , который в дальнейшем считается фиксированным и в отличие от [3, 11] не равным нулю,  $\mathbf{K} \neq 0$ . Из (5) следует также, что значения  $\tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}$  и  $E$  определяются линейными суперпозициями функций  $\tilde{\Psi}_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3}$ ,

$$S_{\mathbf{k}}(\mathbf{K}) = N^{-1} \sum_q \tilde{\Psi}_{\mathbf{k}, \mathbf{q}, \mathbf{K}-\mathbf{k}-\mathbf{q}}. \quad (7)$$

После некоторых вычислений из (5) для функций  $S_{\mathbf{k}}(\mathbf{K})$  получаем следующее сложное интегральное уравнение, одна из форм которого и анализировалась в [3, 8, 11] (при  $\mathbf{K}=0$ ),

$$S_{\mathbf{k}_1}(\mathbf{K}) \left[ \frac{1}{2A} + \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}_2} G_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{K}-\mathbf{k}_1-\mathbf{k}_2}(E) \right] + \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}_2} S_{\mathbf{k}_2}(\mathbf{K}) G_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{K}-\mathbf{k}_1-\mathbf{k}_2}(E) = 0. \quad (8)$$

Из (8) следует ([11]), что в спектре колебаний наряду с полосой  $P+P+P$  (полюса  $G$ ) и термом основного состояния ( $E \approx 3E_0 - 6A$ ,  $V \rightarrow 0$ ) присутствует полоса  $BP+P$  с энергией колебаний  $E = \tilde{E}(\mathbf{k}) = E^{bp}(\mathbf{K}-\mathbf{k}) + E_{\mathbf{k}}$  ( $E^{bp}(\mathbf{K}-\mathbf{k})$  — энергия бифона с волновым вектором  $\mathbf{K}-\mathbf{k}$ ), определяемой из условия

$$1 + 2AN^{-1} \sum_q G_{\mathbf{k}, \mathbf{q}, \mathbf{K}-\mathbf{k}-\mathbf{q}}(E) = 0. \quad (9)$$

Решения уравнения (8), которые отвечают СТФК нового типа, ищутся в виде инвертированной зависимости величины  $1/2A \equiv \tilde{A}(\varepsilon)$  при фиксированной энергии связи  $\varepsilon \equiv |E - 3E_0|$  СТФК. Далее, как и в [3, 8, 11], учитывается взаимодействие ближайших атомов в решетке, т. е. полагается  $V_{\mathbf{nm}} = -V\delta_{\mathbf{n}, \mathbf{m}+1}$ ,  $V > 0$ . Решения уравнения (8), близкие по энергии к краям зоны  $BP+P$  при  $A > V$  ( $\varepsilon > V$ ), ищутся в общем виде

$$A_i(\varepsilon, \mathbf{K}) = \tilde{A}_i^{(0)}(\varepsilon) + \tilde{A}_i^{(1)} + \tilde{A}_i^{(2)}(\varepsilon) + \frac{2V}{\varepsilon^2} \alpha_i(\mathbf{K}) + \frac{(2V)^2}{\varepsilon^3} \beta_i(\mathbf{K}), \quad i=1, 2, \quad (10)$$

где  $\tilde{A}_i^{(0)}$ ,  $\tilde{A}_i^{(1)}$ ,  $\tilde{A}_i^{(2)}$  —  $i$ -е границы зоны  $BP+P$ , определяемые из условия (9) в нулевом, первом и втором по  $V/\varepsilon$  приближении. В (10)  $\alpha_i(\mathbf{K})$  и  $\beta_i(\mathbf{K})$  — безразмерные функции  $\mathbf{K}$ , определяющие величины отщепления  $i$ -х термов

СТФК от границ  $BP+P$  зоны. Волновые функции  $S_{k,i}(K)$  ищутся соответственно в виде

$$S_{k,i}(K) = S_{k,i}^{(0)}(K) + \mu S_{k,i}^{(1)}(K) + \mu^2 S_{k,i}^{(2)}(K), \quad \mu \equiv \frac{2V}{\varepsilon}. \quad (11)$$

Отметим, что сочетание развиваемого подхода, использующего разложение (10), (11), и численного счета на ЭВМ большой мощности во всей области параметров (и в том числе при  $A \simeq V$ ), позволяют [3, 11] выявить характерные особенности спектра СТФК при решении сложной проблемы трех тел, в нашем случае трех взаимодействующих элементарных возмущений в кристалле.

2. В одномерных кристаллах, как известно, энергия однофононных колебаний  $E_k = E_0 - 2V \cos(ka)$ , где  $a$  — постоянная решетки. Из (9) определяется зависимость  $A = A(\varepsilon, k)$  внутри всей  $BP+P$  зоны

$$A(\varepsilon, k) = \frac{1}{2} \sqrt{[\varepsilon - 2V \cos(ka)]^2 - [2V \cos\left(\frac{K-k}{2}a\right)]^2}. \quad (12)$$

Соответственно для низкочастотной ( $i=1$ ) и высокочастотной ( $i=2$ ) границ  $BP+P$  зоны имеем

$$A_i^{(0)}(\varepsilon) = \varepsilon^{-1}, \quad A_i^{(1)} = \mu \gamma_i / \varepsilon, \quad A_i^{(2)} = [2 + \gamma_i \cos(Ka)] \mu^2 / \varepsilon, \quad \gamma_i = \pm 1, \quad i = 1, 2. \quad (12a)$$

Подстановка (10), (11) в (8) приводит в низжайших по  $\mu$  порядках к следующим интегральным уравнениям для функций  $S_{k,i}^{(0)}(K)$ ,  $S_{k,i}^{(1)}(K)$  и величины  $\alpha_i(K)$

$$\left. \begin{aligned} \sum_k S_{k,i}^{(0)}(K) &= 0, \\ S_{k_1,i}^{(0)}(K) [\alpha_i(K) + \gamma_i - \cos(k_1 a)] - 2 \frac{1}{N} \sum_{k_2} S_{k_2,i}^{(0)}(K) \times \\ &\times [\cos(k_2 a) + \cos((K - k_1 - k_2) a)] - 2 \frac{1}{N} \sum_{k_2} S_{k_2,i}^{(1)}(K) = 0. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

После некоторых вычислений при соответствующей нормировке получаем следующие решения (13)

$$\left. \begin{aligned} \alpha_i &= \frac{1}{4} \gamma_i, \quad S_{k,i}^{(0)}(K) = [\gamma_i - 2 \cos(ka) - 2t_i(K) \sin(ka)] [1 + \alpha_i - \cos(ka)]^{-1}, \\ t_1(K) &= \text{tg}(Ka/2), \quad t_2(K) = \text{ctg}(Ka/2). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Таким образом, при произвольном  $K \neq 0$ , как и при  $K=0$  в [3, 11], существует постоянное, не зависящее от  $K$ , линейное по  $V$  отщепление термов СТФК этого типа от границ  $BP+P$  зоны, при  $i=1$  — в низкочастотную сторону, при  $i=2$  — в высокочастотную. При  $K=0$  соотношения (14) точно переходят в полученные в [3, 11] при этом же условии. Отметим, что симметрия, отмеченная в [11] ( $i=1$  — симметричные,  $i=2$  — антисимметричные состояния), в (14) не сохраняется. Из (14) следует, однако, что дисперсия СТФК этого типа в рассмотренном приближении отсутствует, так что эта дисперсия должна быть определена в последующих приближениях. Соответствующая система интегральных уравнений для функций  $S_{k,i}^{(1)}(K)$ ,  $S_{k,i}^{(2)}(K)$  и величин  $\beta_i(K)$ , полученная с учетом (14), имеет вид

$$N^{-1} \sum_k S_{k,i}^{(1)}(K) = 3/2, \quad (15a)$$

$$\begin{aligned} &[\alpha_i + \gamma_i - \cos(k_1 a)] S_{k_1,i}^{(1)}(K) + [1 + \beta_i(K) + \gamma_i \cos(Ka) - \cos^2(k_1 a) - \\ &\quad - \cos((K - k_1) a)] S_{k_1,i}^{(0)}(K) = \\ &= 2 \frac{1}{N} \sum_{k_2} [S_{k_2,i}^{(2)}(K) + S_{k_2,i}^{(1)}(K) \varphi_{k_1 k_2}(K) + S_{k_2,i}^{(0)}(K) \varphi_{k_1 k_2}^2(K)], \end{aligned} \quad (15b)$$

$$\varphi_{k_1 k_2}(K) = \cos(k_1 a) + \cos(k_2 a) + \cos((K - k_1 - k_2) a). \quad (15b)$$

Решение системы уравнений (15) дает в явном виде функциональную зависимость  $S_{k,i}^{(1)}(K)$ , значение величины  $N^{-1} \sum_k S_{k,i}^{(2)}(K)$ , т. е. одно из уравнений системы уравнений, определяющей  $S_k(K)$  и  $A$  в следующем по  $V/\varepsilon$  приближении, и функциональную зависимость  $\beta_i(K)$ . Поскольку именно  $\beta_i(K)$  определяет дисперсию СТФК исследуемого типа, а функциональная зависимость  $S_{k,i}^{(1)}(K)$  в общем следует из (15б) и величина  $N^{-1} \sum_k S_{k,i}^{(2)}(K)$  необходима только в последующем приближении, ограничимся определением  $\beta_i(K)$ . После некоторых вычислений находим функциональную зависимость  $\beta_i(K)$

$$\beta_i(K) = \frac{1}{16} \left[ \frac{9}{2} - \gamma_i \cos(Ka) \right]. \quad (16)$$

Соответственно для величины  $A = A_i(\varepsilon, K)$  как функции энергии связи находим функциональную зависимость

$$A_i(\varepsilon, K) = A_{rp}^{(i)}(\varepsilon, K) - \frac{1}{4} \gamma_i V + \frac{V^2}{8\varepsilon} \left[ \frac{9}{2} + \gamma_i \cos(Ka) \right], \quad (17a)$$

где граничные зависимости  $A_{rp}^{(i)}(\varepsilon, K)$  определяются из (12) при  $k=0$  ( $i=1$ ),  $k=\pi/a$  ( $i=2$ ). В полном виде

$$A_i(\varepsilon, K) = \frac{\varepsilon}{2} - \frac{5}{4} \gamma_i V - \frac{V^2}{8\varepsilon} \left( \frac{23}{2} + \gamma_i \cos(Ka) \right). \quad (17b)$$

В результате дисперсионная зависимость энергии трехфононных колебаний исследуемого типа  $E = E_i(K, A)$  для высокочастотной ( $i=2$ ) и низкочастотной ( $i=1$ ) ветвей, полученная инвертированием зависимости (17), имеет следующий вид

$$\left. \begin{aligned} E_1(K, A) = \tilde{E}_1(A) - \frac{11V^2}{4A} \cos^2 \frac{Ka}{2}, \quad E_2(K, A) = \tilde{E}_2(A) - \frac{11V^2}{4A} \sin^2 \frac{Ka}{2}, \\ \tilde{E}_i(A) = 3E_0 - \frac{5}{2} \gamma_i V - \frac{V^2}{16A}. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

Из (18) следует, что ширины высокочастотной и низкочастотной зон СТФК нового типа одинаковы и равны  $11V^2/4A$ . Эффективные массы высокочастотной и низкочастотной ветвей различны. При  $K=0$  у низкочастотной ветви она положительна, а у высокочастотной отрицательна (при  $K=\pi/a$ , наоборот). По абсолютной величине эффективные массы этих колебательных состояний совпадают. То обстоятельство, что ширина зон СТФК нового типа в одномерном кристалле  $\sim V^2/A$ , существенно с точки зрения условий образования локальных колебаний этого типа в кристаллах с дефектами. Найденные функциональные зависимости (16) для зонных составляющих  $\beta_i(K)$  непосредственно определяют с помощью (15) и соответствующую волновую функцию  $S_{k,i}^{(1)}(K)$ .

На рисунке представлена дисперсионная зависимость энергии колебаний исследуемого типа от волнового вектора  $K$  при выборе параметров  $A/V=5$ . Кривые 1, 2 отвечают соответственно низкочастотной и высокочастотной ветвям колебаний. Границы зоны  $BP+P$  определены соотношением (12). Фактическое отщепление термов исследуемых СТФК от границ  $BP+P$  зоны может быть определено непосредственно из (12) и (18). Из (12) и (18) и непосредственно из рисунка, а видно, что с увеличением величины  $K$  отщепление термов СТФК от границ  $BP+P$  зоны монотонно возрастает.

3. Перейдем к определению дисперсии трифононных колебаний нового типа в плоских двумерных кристаллах. При учете взаимодействия ближайших соседей зависимость энергии однофононных колебаний  $E_k$  от двумерного волнового вектора  $k(k^{(1)}, k^{(2)})$  с декартовыми координатами  $k^{(1)}, k^{(2)}$  имеет следующий вид

$$E_k = E_0 - 2V [\cos(k^{(1)}a) + \cos(k^{(2)}a)]. \quad (19)$$

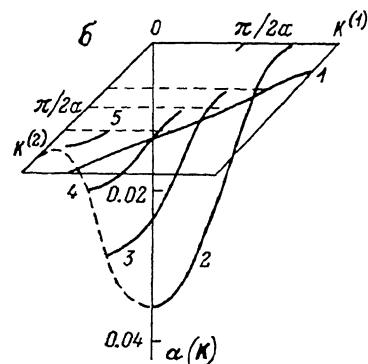
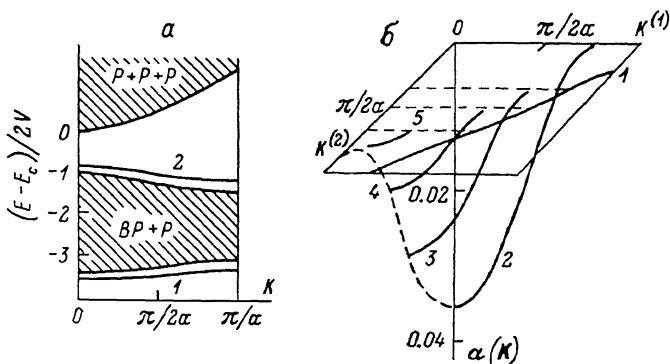
Низкочастотная граница  $BP+P$  зоны определяется из условия (9) при учете (19). При отличном от нуля волновом векторе  $\mathbf{K}$  представление, аналогичное (12), (12a), имеет следующий вид [13] (индекс  $i=1$  в дальнейшем опускается)

$$A = A(\mathbf{K}, \bar{E}) = 2\pi V [\Phi(\bar{E}, \mathbf{K}) F(\Phi)]^{-1} \sqrt{\cos \frac{\bar{K}^{(1)} a}{2} \cos \frac{\bar{K}^{(2)} a}{2}},$$

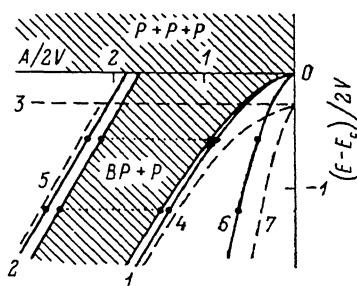
$$\Phi(\bar{E}, \mathbf{K}) = \sqrt{\cos \frac{\bar{K}^{(1)} a}{2} \cos \frac{\bar{K}^{(2)} a}{2} \left[ (\bar{E}/8V)^2 - \left( \cos \frac{\bar{K}^{(1)} a}{2} - \cos \frac{K^{(2)} a}{2} \right)^2 / 4 \right]^{-1}},$$

$$A^{(0)}(\varepsilon) = \varepsilon^{-1}, \quad A^{(1)} = 2\mu\varepsilon^{-1}, \quad A^{(2)} = \mu^2 [6 + \cos(K^{(1)} a) + \cos(K^{(2)} a)],$$

где  $F$  — полный эллиптический интеграл 1-го рода,  $\bar{E} \equiv E - 2E_0 - E_{k_1}$ ,  $\bar{\mathbf{K}} \equiv \mathbf{K} - \mathbf{k}_1$ . Так же как и ранее, решение уравнения (8) для функции  $\bar{A}(\varepsilon, \mathbf{K})$



б



Спектры связанных трехфононных колебаний (СТФК) нового типа.

$a$  — зависимость энергии СТФК от волнового вектора в одномерном кристалле ( $E_c = 3E_0 - 6V$ ,  $(E - E_c)/2V \equiv 3 - \varepsilon/2V$ ).  $b$  — зависимость от волнового вектора отщепления термов СТФК от границы  $BP+P$  зоны в двумерном кристалле.  $\varepsilon$  — численный расчет зависимости спектра СТФК от константы ангармонизма в одномерном кристалле (с графопостроителя ЭВМ ЕС-1060).

при фиксированной энергии связи  $\varepsilon$  ищется в виде (10). Волновая функция  $S_{\mathbf{k}}(\mathbf{K})$  при  $\mathbf{K} \neq 0$  по-прежнему ищется в виде соответствующего разложения (11). Подстановка (10), (11) в (8) при учете (19), (20) в нулевом по  $\mu$  приближении дает следующее интегральное соотношение для функции  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$

$$\sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K}) = 0. \quad (21)$$

Напомним, что именно это соотношение приводит к условию для волновой функции в координатном пространстве  $\psi_{\text{нпн}} = 0$ . Последнее и определяет одну из особенностей физического смысла трифононов этого типа, состоящую в том, что фононы связанного комплекса при сильном ангармонизме не локализируются на одном и том же узле.

Функциональные зависимости  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$ ,  $\alpha(\mathbf{K})$  и соответствующее интегральное соотношение для  $S_{\mathbf{k}}^{(1)}(\mathbf{K})$ , являющееся «входным» в следующее по  $\mu$  приближение, могут быть найдены из следующего интегрального

уравнения, непосредственно получающегося из (8) сравнением членов первого порядка по  $\mu$

$$S_{\mathbf{k}_1}^{(0)}(\mathbf{K}) \left[ 2 + \alpha(\mathbf{K}) - \sum_i \cos(k_1^{(i)} a) \right] = \\ = 2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}_2} \left\{ S_{\mathbf{k}_2}^{(0)}(\mathbf{K}) \sum_i [\cos(k_2^{(i)} a) + \cos((K^{(i)} - k_1^{(i)} - k_2^{(i)}) a)] + S_{\mathbf{k}_2}^{(1)}(\mathbf{K}) \right\}. \quad (22)$$

В правую часть (22) входят следующие четыре суперпозиции волновых функций  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$

$$M^{(i)}(\mathbf{K}) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K}) \cos(k^{(i)} a), \\ R^{(i)}(\mathbf{K}) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K}) \sin(k^{(i)} a), \quad i = 1, 2. \quad (23)$$

Из уравнения (22) непосредственно следует функциональная зависимость следующего вида

$$S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K}) = \left\{ 1 + \sum_i [M^{(i)}(\mathbf{K}) \cos((K^{(i)} - k^{(i)}) a) + \right. \\ \left. + R^{(i)}(\mathbf{K}) \sin((K^{(i)} - k^{(i)}) a)] \right\} Z^{-1}(\mathbf{k}, a), \quad (24a)$$

$$Z(\mathbf{k}, a) = 2 + \alpha(\mathbf{K}) - \sum_i \cos(k^{(i)} a). \quad (24b)$$

При этом для простоты произвольное условие нормировки абсолютного значения  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$  выбрано таким образом, что свободный, не зависящий от  $\mathbf{k}$  член в числителе правой части (24a) равен единице, так что

$$2iN^{-1} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}}^{(1)}(\mathbf{K}) + M^{(1)}(\mathbf{K}) + M^{(2)}(\mathbf{K}) = 1, \quad (25)$$

т. е. «входное» в последующее приближение интегральное соотношение для  $S_{\mathbf{k}}^{(1)}(\mathbf{K})$  при определенных ниже  $M^{(i)}(\mathbf{K})$  дается условием (25). Отметим, что при отличном от нуля волновом векторе  $\mathbf{K} \neq 0$  волновая функция  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$  уже не имеет полной симметрии относительно замены  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$ , как это имеет место при  $\mathbf{K} = 0$  [3, 11].

Подстановка (24) в (23) дает соответствующую систему уравнений для величин  $M^{(i)}$ ,  $R^{(i)}$ . При этом величины  $R^{(i)}(\mathbf{K})$  связаны с  $M^{(i)}(\mathbf{K})$  простыми соотношениями

$$R^{(i)}(\mathbf{K}) = W^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) M^{(i)}(\mathbf{K}), \quad W^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) = \frac{I_2(\alpha)}{1 + I_2(\alpha) \cos(K^{(i)} a)}, \quad (26)$$

где  $I_2(\alpha)$  — интеграл следующего вида

$$I_2(\alpha) = 2N^{-1} \sum_{\mathbf{k}} \sin^2(k^{(1)} a) Z^{-1}(\mathbf{k}, a). \quad (27)$$

С учетом (26) соответствующая система уравнений для величин  $M^{(i)}(\mathbf{K})$  может быть приведена к виду

$$\sum_j D_i^{(j)}(\alpha, \mathbf{K}) M^{(j)}(\mathbf{K}) = I_1(\alpha), \quad (28a)$$

где соответствующие коэффициенты  $D_i^{(j)}(\alpha, \mathbf{K})$  имеют следующее представление

$$\left. \begin{aligned} D_i^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) &= 1 - I_2(\alpha) Q^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}), \quad Q^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) = \cos(K^{(i)} a) + \\ &\quad + W^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) \sin(K^{(i)} a), \\ D_j^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}) &= -\mathcal{J}_2(\alpha) Q^{(i)}(\alpha, \mathbf{K}), \quad i \neq j. \end{aligned} \right\} \quad (28b)$$

Входящие в (28) величины  $\mathcal{J}_2, I_2, I_1$  являются функционально зависящими от  $\alpha$  ( $\mathbf{K}$ ) интегралами следующего вида

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{J}_2(\alpha) &= 2N^{-1} \sum_{\mathbf{k}} \cos(k^{(1)}a) \cos(k^{(2)}a) Z^{-1}(\mathbf{k}, \alpha), \\ I_2(\alpha) &= I_0(\alpha) - \mathcal{I}_2(\alpha), \quad I_0(\alpha) = 2N^{-1} \sum_{\mathbf{k}} Z^{-1}(\mathbf{k}, \alpha), \\ I_1(\alpha) &= -1 + \left[1 + \frac{1}{2} \alpha(\mathbf{K})\right] I_0(\alpha). \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

Подстановка найденных из уравнений (28), (26) величин  $M^{(i)}, R^{(i)}$  в (24) полностью определяет функциональную зависимость  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$  и входное в последующее приближение условие (25). Наконец, подстановка  $S_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{K})$  из (24) при учете (28б) в уравнение (21) приводит после некоторых вычислений к следующему основному дисперсионному уравнению для определяющей зависимости энергии трифононов от волнового вектора величины  $\alpha$  ( $\mathbf{K}$ )

$$f_1(\alpha) + [\cos(K^{(1)}a) + \cos(K^{(2)}a)] f_2(\alpha) + \cos(K^{(1)}a) \cos(K^{(2)}a) f_3(\alpha) = 0, \quad (30)$$

где функции  $f_i = f_i(\alpha)$  с помощью введенных выше интегралов  $I_1, I_2, \mathcal{I}_2, \mathcal{J}_2, I_0$  представляются следующим образом

$$\left. \begin{aligned} f_1 &= [1 - \mathcal{I}_2(I_2 - \mathcal{J}_2)] \left\{ \frac{1}{2} I_0 [1 - \mathcal{I}_2(I_2 + \mathcal{J}_2)] + \mathcal{I}_2 I_1^2 \right\}, \\ f_2 &= \frac{1}{2} \{ I_0 [(I_2 - I_2)(1 - I_2 I_2) - \mathcal{I}_2 \mathcal{J}_2^2] + I_1^2 [1 + I_2^2 - 2I_2 I_2 + 2I_2 \mathcal{J}_2] \}, \\ f_3 &= [I_2 - I_2 + \mathcal{J}_2] \left\{ \frac{1}{2} I_0 [I_2 - I_2 - \mathcal{J}_2] + I_1^2 \right\}. \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

Существенное отличие от рассмотренного выше случая одномерного кристалла заключается в том, что для двумерного кристалла, как это следует из (30), (31), не равны нулю члены дисперсионного уравнения, включающие зависимость от полного волнового вектора  $\mathbf{K}$ , как это имело место в (13), (14) для одномерного кристалла. Таким образом, уже в первом по  $V$  члене в отщеплении термина трифононного колебания от низкочастотной границы  $BP + P$  зоны, а значит, и в полной энергии этих колебаний  $E(\mathbf{K})$  существует зависимость от полного волнового вектора  $\mathbf{K}$ . В двумерном пространстве величин  $\cos(K^{(1)}a), \cos(K^{(2)}a)$  решение дисперсионного уравнения (30) определяет зависимость  $\alpha = \alpha(\cos(K^{(1)}a), \cos(K^{(2)}a))$  типа «параболоида», однако, поскольку в (30), (31) величины  $\alpha, K^{(1)}, K^{(2)}$  входят существенно нелинейным образом, это представление, естественно, чисто условно (явный вид  $\alpha(\mathbf{K})$  см. на рисунке, б).

Введенные выше интегралы  $I_0(\alpha), \mathcal{I}_2(\alpha)$ , определяющие в соответствии с (29) и интегралы  $I_1, I_2, \mathcal{J}_2$ , также входящие в (30), (31), вычисляются точно и могут быть представлены с помощью известных табулированных специальных функций:  $F, E$  и  $\Pi$  — полных эллиптических интегралов соответственно 1, 2 и 3-го рода [17]. Это представление имеет следующий вид

$$\left. \begin{aligned} I_0(\alpha) &= \frac{2k}{\pi} F\left(\frac{\pi}{2}, k\right), \\ \mathcal{I}_2(\alpha) &= \frac{2}{\pi} \left\{ [4 + \alpha(\mathbf{K})] \left[ 2\Pi\left(\frac{\pi}{2}, k, k\right) - F\left(\frac{\pi}{2}, k\right) \right] - [2 + \alpha(\mathbf{K})] E\left(\frac{\pi}{2}, k\right) \right\}, \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

где  $k = 2/[2 + \alpha(\mathbf{K})]$  — соответствующий модуль полных эллиптических интегралов  $F, E$  и  $\Pi$ . Отметим, что параметр  $n$  полного эллиптического интеграла третьего рода  $\Pi(\pi/2, n, k)$  совпадает в данном случае с модулем всех трех полных эллиптических интегралов.

Анализ дисперсионной зависимости (30) может быть проведен с использованием известных свойств полных эллиптических интегралов  $F, E$  и  $\Pi$ .



Представляет интерес соответствующее рассмотрение в (30) различных предельных случаев — при  $K=0$ ,  $K^{(1)} \neq 0$ ,  $K^{(2)}=0$  (или наоборот),  $K^{(1)} = \pi/a$ ,  $K^{(2)}=0$  (или наоборот) и т. д. Для первого из этих предельных случаев, т. е. для  $K=0$ , из (30), (31) точно получается соответствующее уравнение

$$\frac{1}{1 + \alpha(0)} = \frac{1}{N} \sum_k [2 + \alpha(0) - \cos(k^{(1)}a) - \cos(k^{(2)}a)]^{-1} = \frac{k}{\pi} F\left(\frac{\pi}{2}, k\right). \quad (33)$$

Из решения уравнения (33) в [3, 11] определялось соответствующее отщепление термина СТФК при  $K=0$  от низкочастотного края  $BP + P$  полосы, составляющее  $\alpha(0) = 0.036$ . При  $K^{(2)}=0$  и увеличении  $K^{(1)}$  ( $0 < K^{(1)} < \pi/a$ ) величина отщепления  $\alpha(K)$ , как это следует из (30), (31), уменьшается. Асимптотические при  $k \rightarrow 1$  представления  $F$ ,  $E$  и  $\Pi$  известны [17]

$$F\left(\frac{\pi}{2}, k\right) \simeq L(k') + \frac{[L(k') - 1]}{4} (k')^2, \quad E\left(\frac{\pi}{2}, k\right) \simeq 1 + \frac{1}{2} \left[L(k') - \frac{1}{2}\right] (k')^2, \\ L(k') = \ln \frac{4}{k'}, \quad (34)$$

где  $k' = \sqrt{1 - k^2}$  — дополнительный модуль эллиптических интегралов (для эллиптического интеграла третьего рода асимптотическое представление приведено в [17], с. 116). Как это следует из асимптотических представлений (34) (см. [17]), значению  $K^{(2)}=0$ ,  $K^{(1)} = \pi/a$  (и  $K^{(1)}=0$ ,  $K^{(2)} = \pi/a$ ) отвечает хотя и чрезвычайно малая (что связано с асимптотической расходимостью  $F \sim \ln(4/k')$ ), но тем не менее конечная, отличная от нуля величина отщепления  $\alpha \sim 10^{-15}$  (аналогичные катастрофически малые отщепления должны быть для «эфимовских» состояний [12]). Таким образом, случай двумерного кристалла существенно отличается от рассмотренного выше случая одномерного кристалла, где соответствующее отщепление в линейном по  $V$  члене тождественно равно нулю и дисперсия определяется только квадратичными по  $V/\varepsilon$  членами. Это интересное для теории многофононных колебаний обстоятельство качественно может быть интерпретировано следующим образом. В одномерном кристалле СТФК данного типа, локализующийся при сильном ангармонизме на узлах  $n$ ,  $n+1$  (волновую функцию см. [11]) с постоянной «перезарядкой» одного из трех фононов между узлами спаривания  $n$  или  $n+1$ , может переместиться на соседнюю пару узлов  $n+1$ ,  $n+2$  только с помощью «прохода» в два этапа через виртуальное состояние, при котором все три фонона локализованы на различных узлах  $n$ ,  $n+1$ ,  $n+2$ . Соответственно во 2-м порядке теории возмущений, аналогичной (но не тождественной, поскольку иные волновые функции) использованной в [3, 15], ширина полосы  $\sim V^2/A$ . В то же время в двумерной решетке  $(n, m)$  СТФК с узлов  $(n, m+1)$ ,  $(n+1, m)$  однократным переходом может переместиться на узлы  $(n+1, m+1)$ ,  $(n+1, m)$  (и далее при учете «перезарядки») уже в первом по  $V$  порядке. Учет квадратичных по  $V/\varepsilon$  членов в дисперсии СТФК двумерного кристалла, естественно, представляет определенный интерес и может быть соответствующим образом выполнен, однако, как это видно из приведенного анализа, соответствующий вклад членов второго порядка в дисперсию может быть существенным только в ограниченной области двумерного пространства волновых векторов вблизи одномерной кривой

$[\cos(K^{(1)}a) + t] [\cos(K^{(2)}a) + t] = r$ ,  $t = f_1(0)/f_3(0) = 2.2$ ,  $r = t^2 - f_1(0)/f_2(0) = 1.9$  (кривая 1 на рисунке, б) в этом пространстве.

На рисунке, б представлена зависимость  $\alpha(K)$ , полученная обращением следующей из (30) зависимости

$$\cos(K^{(1)}a) = -[f_1(a) + \cos(K^{(2)}a) f_2(a)] [f_2(a) + \cos(K^{(2)}a) f_3(a)]^{-1},$$

которая при различных фиксированных значениях компоненты  $K^{(2)}$  (кривые 2, 3, 4, 5) определялась численно с использованием соответствующей

щих табличных значений эллиптических интегралов  $F$ ,  $E$  и  $\Pi$ . Из рисунка,  $b$  видно, что при  $K^{(1)}=0$ ,  $K^{(2)}=\pi/a$  (и при  $K^{(1)}=\pi/a$ ,  $K^{(2)}=0$ ) зависимость  $\alpha(K)$  имеет характерный вид. Чертой вблизи этих точек отмечено, что существует конечное, хотя и чрезвычайно малое, не изображаемое графически отщепление термов СТФК исследуемого типа от границ  $BP+P$  зоны. Нижайшая точка поверхности  $\alpha(K)$  отвечает волновому вектору  $\mathbf{K}=0$ , т. е. случаю, исследованному в [3, 11], и составляет величину  $\alpha=0.036$  (при инвертировании (10) получаем  $A \simeq (\varepsilon/2) - (2+\alpha) V$  [11]).

Результаты проведенного выше аналитического рассмотрения подтверждаются и прямым численным решением системы уравнений (8) при произвольном значении  $V/\varepsilon$  (или  $V/A$ ) на ЭВМ ЕС-1060. При этом использовался описанный в [11] алгоритм, который состоит в нахождении «спектра» собственных значений величины  $1/A$  при заданном значении энергии связи  $\varepsilon$ . Расчеты на ЭВМ проводились в широком интервале значений  $A$ ,  $\varepsilon$ ,  $V$ ,  $K$ . Один из графиков, полученных непосредственно с графопостроителя ЕС-1060, представляющий полную систему колебательных термов одномерного кристалла с  $N=512$  в плоскости  $A$ ,  $\varepsilon$  при  $K=\pi/2a$ , приведен на рисунке,  $c$  [11]. Сплошные полосы — зоны  $P+P+P$  и  $BP+P$ . Кривые 1 и 2 — низкочастотная и высокочастотная ветви СТФК исследуемого типа при  $K=\pi/2a$ , линия 3 — нижняя граница зоны  $P+P+P$  при  $K=0$ , пунктирные линии 4 и 5 — ветви СТФК данного типа при  $K=0$ , кривые 6, 7 — терм основного состояния трифона [10, 11]. Для иллюстрации на рисунке,  $c$  схематично точками представлены результаты численного расчета «спектра» собственных значений величины  $A$  при фиксированной энергии связи при малых  $N$  (в расчетах число точек и соответственно величина  $N=512$ ).

Из рисунка,  $c$  видно, что при увеличении  $K$  высокочастотная и низкочастотная ветви СТФК исследуемого типа смещаются соответственно в низкочастотную и высокочастотную стороны, как это и следует из рисунка,  $a$ , полученного при аналитическом рассмотрении. Полная система термов колебательных возбуждений, полученная с графопостроителя ЕС-1060, при  $K$  во всей зоне Бриллюэна дает всю дисперсионную зависимость СТФК исследуемого типа, по типу совпадающую с (18) и переходящую в (18) при сильном ангармонизме колебаний.

Как показано выше, в одномерных кристаллах ширина полос, отвечающих СТФК нового типа,  $T^{(1)}=c_1 T_1^2/A$ , где  $T_1=4V$  — ширина однофоновой полосы и  $c_1 \simeq 0.2$  — соответствующий численный коэффициент. В двумерных кристаллах  $T^{(2)}=c_2 T_1$  ( $T_1=8V$ ) и  $c \simeq 0.01$ . Поэтому, несмотря на то что  $c_1 > c_2$ , для ширин полос СТФК этого типа может выплывать соотношение  $T^{(2)} > T^{(1)}$ . Как известно [1-3], ширина бифоновых полос  $\sim T_1^2/A$ , и именно это обстоятельство обуславливает эффект существования бифононов, локализованных на дефектах в условиях, когда локальные фононы не образуются [18, 19]. В то же время ширина полосы СТФК основного состояния  $\sim T_1^3/A^2$  [3, 10, 15]. Полученные результаты показывают, что в кристаллах с дефектами при увеличении энергии возмущения, вносимого дефектом, последовательно могут возникать термы локализованных вблизи дефекта СТФК основного состояния, затем (в одномерном кристалле) локальные СТФК нового типа, локальные бифононы и локальные фононы. В двумерном кристалле эта последовательность может быть нарушена с инвертированием локальных бифононов и локальных СТФК рассмотренного типа.

В заключение отметим, что связанные трехчастичные возбужденные состояния типа СТФК, исследованного выше, возможно, могут существовать не только в области связанных трехфононных колебаний, но и в области многочастичных возбуждений иного типа — многоэкситонных, многомагнонных, многофермионных и т. д. Экспериментальное обнаружение таких состояний представляло бы большой интерес.

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

## Л и т е р а т у р а

- [1] *Agranovich V. M.* In: Spectroscopy and Excitation Dynamics of Condensed Molecular Systems, ed. by V. M. Agranovich, R. M. Hochstrasser, p. 83, North-Holland, Amsterdam, 1983.
- [2] *Агранович В. М., Лалов И. Й.* УФН, 1986, т. 146, № 2, с. 267—302.
- [3] *Agranovich V. M., Dubovsky O. A.* In: Optical Properties of Mixed Crystals, ed. by R. J. Elliott, I. P. Ipatova, North-Holland, Amsterdam (в печати).
- [4] *Anderson I. S., Rush J. J., Uvodic T., Rowe J. M.* Phys. Rev. Lett., 1986, vol. 57, N 22, p. 2822—2827.
- [5] *Ikeda S., Watanabe N.* KEK Preprint, 1986, N 66, 30 p.
- [6] *McKergow M. W., Ross D. K., Bonnet J. E., Anderson I. S., Schaerpf O. J.* Phys. C: Sol. St. Phys., 1987, vol. 20, N 10, p. 1909—1918.
- [7] *Жижин Г. Н., Москалева М. А., Шафрановский П. А., Шуб Б. Р.* Поверхность, 1987, № 7, с. 141—143.
- [8] *Mattis D., Rudin S.* Rev. Lett., 1984, vol. 52, N 9, p. 755—759.
- [9] *Mattis D.* Reviews of Modern Physics, 1986, vol. 58, N 2, p. 361—379.
- [10] *Dubovsky O. A.*, Sol. St. Commun., 1985, vol. 54, N 3, p. 261—266.
- [11] *Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V.* Phys. Lett., 1986, vol. 119, N 2, p. 83—88.
- [12] *Ефимов В. Н.* Ядерная физика, 1970, т. 12, № 5, с. 1080—1091.
- [13] *Дубовский О. А., Орлов А. В.* ФТТ, 1987, т. 29, № 11, с. 3501—3503.
- [14] *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Квантовая механика. М.: Наука, 1974. 752 с.
- [15] *Agranovich V. M., Dubovsky O. A.* Int. Rev. Phys. Chem., 1986, vol. 5, N 1, p. 93—101.
- [16] *Hempelman R., Richter D., Price D. L.* Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 58, N 10, p. 1016—1019.
- [17] *Янке Е., Эмде Ф., Леш Ф.* Специальные функции. М.: Наука, 1964. 344 с.
- [18] *Агранович В. М.* ФТТ, 1970, т. 12, № 2, с. 562—570.
- [19] *Белоусов М. В., Вольф Б. Е., Иванова Е. П., Погарев Д. Е.* Письма в ЖЭТФ, 1982, т. 35, № 11, с. 457—459.
- [20] *Goyal P. S., Penfold J., Tomkinson J.* Chem. Phys. Lett., 1986, vol. 127, N 5, p. 483—486.

Поступило в Редакцию  
20 января 1988 г.