УДК 538.913

ВЛИЯНИЕ АНИЗОТРОПИИ НА СПЕКТР ТРИФОНОНОВ НОВОГО ТИПА

О. А. Дубовский, А. В. Орлов

Исследован спектр связанных трехфононных колебаний в ангармонических кристаллах типа гидридов металлов. Показано, что в реальных кристаллах со сложным законом дисперсии анизотропных однофононных колебаний существуют связанные трехфононные колебания нового типа. Спектр этих колебаний включает дополнительные ветви относительно того набора трифононов нового типа, который был найден авторами ранее в более простых кристаллических системах. Термы соответствующих трифононных колебаний расположены вблизи обеих границ полосы бифонон+свободный фонон и вместе с полосой полностью диссоциированных трехфононных состояний и термом основного состояния трифонона образуют сложную мультиплетную структуру в области частот трехфононных колебаний. Найдена дисперсионная зависимость трифононных колебательных состояний, что позволяет определить тонкую структуру общей плотности трехфононных состояний, уже исследуемой экспериментально на нейтронных спектрометрах.

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 и т. д. фононов (бифононов, трифононов и т. д.) [1, 2]. В последнее время на нейтронных спектрометрах высокого разрешения развернулись экспериментальные исследования тонкой структуры спектров многофононных колебаний в гидридах металлов и других материалов во всей области 50—1500 мэВ [3-7] (в [5] — до 14-го обертона). Наряду с трехмерными кристаллами изучаются квазиодномерные [7] и двумерные [8] кристаллические системы. В [9] было показано, что в спектре трехфононных колебаний наряду с известными ранее полосами диссоциированных состояний и термом основного связанного трехфононного колебания [10] могут присутствовать термы возбужденных трифононов нового типа. В [9] рассматривались одномерные кристаллические цепочки, двумерные кристаллы с квадратной решеткой и трехмерные кубические кристаллы, при этом было показано, что в первом случае существуют две ветви трифононов нового типа, а в двух других — одна ветвь. Поскольку в нейтронных экспериментах проявляется вся плотность многофононных состояний с полным волновым набором колебательных, в том числе и связанных, состояний, для последующего сравнения с экспериментальными данными необходимо определить дисперсию таких связанных колебаний. Для простых кристаллических систем типа рассмотренных в [9] дисперсия трифононов нового типа изучалась в [11]. Однако в нейтронных экспериментах [6] уже изучают детальную тонкую структуру спектров в области трехфононных колебаний в более сложных реальных кристаллах, и поэтому представляется необходимым изучение дисперсии связанных трехфононных колебаний в таких кристаллах.

В настоящей работе показано, что в кристаллических системах, более сложных, чем рассмотренные в [9, 11], могут существовать дополнительные ветви колебаний, отвечающие высоковозбужденным трифононам. Найден закон дисперсии высоковозбужденных трифононных колебательных состояний, положение соответствующих термов в спектре. Подробно рассмотрена двумерная кристаллическая система, результаты же анализа спектра трифононов в трехмерных кристаллах, дающие те же общие выводы о наличии новых ветвей, но, естественно, со своим характерным законом дисперсии, предполагается опубликовать в дальнейшем.

При учете внутримолекулярного ангармонизма 3-го и 4-го порядков по смещениям соответствующих осцилляторов [1, 2] в представлении вторичного квантования модельный гамильтониан $\hat{H}$ молекулярного или квазимолекулярного, типа гидрида металла, кристалла имеет вид

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{n}} E_0 \hat{B}^{+}_{\mathbf{n}} \hat{B}_{\mathbf{n}} + \sum_{\mathbf{n}\neq\mathbf{m}} V_{\mathbf{nm}} \hat{B}^{+}_{\mathbf{n}} \hat{B}_{\mathbf{m}} - A \sum_{\mathbf{n}} (\hat{B}^{+}_{\mathbf{n}})^2 (\hat{B}_{\mathbf{n}})^2, \qquad (1)$$

где E_0 — энергия собственных колебаний; $\hat{B}^{+}_{\mathbf{n}}$, $\hat{B}_{\mathbf{n}}$ — Бозе-операторы рождения, уничтожения колебательного возбуждения в узле $\mathbf{n}$; $V_{\mathbf{nm}}$ — матричный элемент оператора взаимодействия; $A > 0$ — константа ангармонизма. Рассмотрим двумерную кристаллическую решетку, в которой для простейшего однопараметрического учета анизотропии выберем направления взаимно ортогональных осей x, y таким образом, что взаимодействие $V_{\mathbf{n},\,\mathbf{n+p}} \equiv V_{\mathbf{p}}$ ближайших соседей ($\mathbf{p} = (\pm a_x, 0), (0, \pm a_y)$, $a_{x,\,y}$ — постоянные решетки) в x направлении $V_{(\pm a_x,\,0)} = V$, $V > 0$, а в y направлении $V_{(0,\,\pm a_y)} = \beta V$ и $0 < \beta < 1$ [5]. Процедура решения уравнения Шредингера для волновой функции $|3\rangle$ трехфононных состояний приводится в [11]. Основное уравнение для соответствующей суперпозиции волновых функций $S_{\mathbf{k}}(\mathbf{K})$ [11], отвечающей состояниям с волновым вектором $\mathbf{K}$ и энергией $E = E(\mathbf{K})$, имеет вид

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

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

Решение этого интегрального уравнения в сложной задаче трех тел проводилось, как и в [9, 11], комбинированно-аналитически при $A > V$ и численно на ЭВМ при произвольном A, в том числе и при $A \sim V$ с использованием процедуры решения обратной задачи определения из (2) «спектра» значений величины $1/2A$ при фиксированной энергии связи. Это решение показывает, что при учете указанного выше вида $V_{\mathbf{nm}}$ в спектре трехфононных колебаний наряду с изолированными полосами полностью диссоциированных трехфононных состояний, диссоциированных состояний связанный бифонон+свободный фонон (BP+P) и термом основного связанного трехфононного состояния вблизи обеих границ BP+P полосы существуют два терма трифононов нового типа. Зависимость энергии этих состояний от полного волнового вектора $\mathbf{K}$ (K_x, K_y) связанного комплекса определяется из дисперсионного уравнения

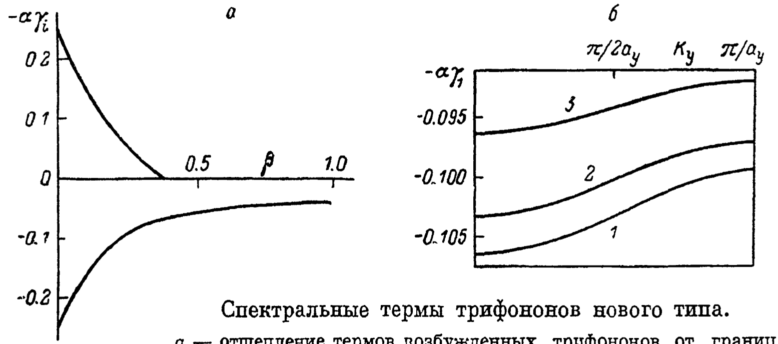
$$f_1(\alpha) + f_2(\alpha)\cos(K_x a_x) + f_3(\alpha)\cos(K_y a_y) + f_4(\alpha)\cos(K_x a_x)\cos(K_y a_y) = 0,$$
$$f_1 = C + T(Q^2 - CR) + \beta^2 L\{T[Z(CR - Q^2) - P^2 R + D] + P^2 - ZC\},$$
$$f_2 = Q^2 + C(T - R) + \beta^2 L\{(T - R)(P^2 - CZ) - Q^2 Z + D\},$$
$$f_3 = \beta\{(L - Z)[C + T(Q^2 - CR)] + P^2(1 - RT) + TD\},$$
$$f_4 = \beta\{C(T - R)(L - Z) + Q^2(L - Z) + P^2(T - R) + D\}, \qquad (3)$$

где функции $C(\alpha)$, $Q(\alpha)$, . . . зависят от величины α, определяющей отщепление $\Delta E = 2\alpha V$ терма трифононов нового типа от границ BP+P полосы

$$C = \gamma_i q F(k), \quad Q = q[(1+\alpha)F - \alpha\Pi(n, k)], \quad P = \beta^{-1}(\gamma_i t C - Q - 2),$$
$$T = \gamma_i q\{\alpha t\Pi - (\beta + \alpha/2)[\alpha F + (\alpha + 2)E(k)]\}, \quad R = C - T, \quad J = \beta^{-1}(\gamma_i t Q - R),$$
$$Z = \beta^{-1}(\gamma_i t P - J), \quad L = C - Z, \quad D = J(2QP - JC), \quad t \equiv 1 + \beta + \alpha. \qquad (4)$$

В (4) $F(k)$, $E(k)$, $\Pi(n, k)$ — известные табулированные специальные функции — полные эллиптические интегралы 1-, 2-, 3-го рода с модулем

$k=2\ [\beta/(2+\alpha)\ (2\beta+\alpha)]^{1/2}$ и параметром $n=-2/(2+\alpha)$, $q=2k/\pi\beta^{1/2}$ и и $\gamma_i=\pm1$ для низко- и высокочастотной ветвей. Анализ (4) показывает, что высокочастотная ветвь трифононов нового типа существует только в конечном интервале значений $0<\beta<0.4$, т. е. возникновение этой ветви при уменьшении β от значения $\beta=1$ (где она не существует [9, 11]) имеет пороговый характер.[1] При $\beta=0$ двумерный кристалл фактически состоит



Спектральные термы трифононов нового типа.

а — отщепление термов возбужденных трифононов от границ ВР+Р полосы, $K=0$; *б* — дисперсия низкочастотной ветви, $K_x=0$ (*1*), $\pi/4a_x$ (*2*), $\pi/2a_x$(*3*).

из упорядоченного набора невзаимодействующих кристаллических цепочек, вытянутых вдоль оси x, и (4) (при $\mathbf{K}=0$) определяет отщепление $\alpha=1/4$, найденное в [9] для одномерного кристалла. Отщепление низкочастотной ветви остается конечным и уменьшается от значения $\alpha=1/4$ при $\beta=0$ до $\alpha=0.04$ при $\beta=1$ ($\mathbf{K}=0$ [9, 11]). На рисунке представлена определенная из (4) дисперсионная зависимость отщепления α ($\mathbf{K}$) при $\beta=0.2$. Некоторые особенности такой зависимости (при $\beta=1$) обсуждались в [11]. Из полученных данных непосредственно определяется плотность трехфононных состояний, проявляющаяся в экспериментах.

В заключение авторы выражают искреннюю признательность В. М. Аграновичу за полезные замечания.

Литература

[1] Agranovich V. M. // Spectroscopy and Excitation Dynamics of Condensed Molecular Systems. North—Holland, Amsterdam, 1983. P. 83.

[2] Agranovich V. M., Dubovsky O. A. // Optical Properties of Mixed Crystals. North—Holland, Amsterdam, 1988.

[3] Anderson I. S., Rush J. J., Uvodic T., Rowe J. M. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. N 22. P. 2822—2827.

[4] Ikeda S., Watanabe N. // KEK Preprint. 1986. N 66. 30 p.

[5] Hempelman R., Richter D., Price D. L. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. N 10. P. 1016—1019.

[6] Goyal P. S., Penfold J., Tomkinson J. // Chem. Phys. Lett. 1986. V. 127. N 5. P. 483—486.

[7] McKergow M. W., Ross D. K., Bonnet J. E., Anderson I. S. // J. Phys. C. Sol. St. Phys. 1987. V. 20. N 10. P. 1909—1923.

[8] Жижин Г. Н., Москалева М. А., Шафрановский П. А., Шуб Б. Р. // Поверхность. 1987. № 7. С. 141—143.

[9] Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V. // Phys. Lett. 1986. V. 119. N 2. P. 83—88.

[10] Dubovsky O. A. // Sol. St. Commun. 1985. V. 54. N 3. P. 261—266.

[11] Дубовский О. А., Орлов А. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1688—1698.

---

[1] Для ветви $\gamma=+1$ (см. рисунок, *а*) с волновым вектором (K_x, K_y) и ветви $\gamma=-1$ с вектором $((\pi/a_x)-K_x,\ (\pi/a_y)-K_y)$ уравнения (3) тождественно совпадают, и поэтому зависимости $\alpha=\alpha_\pm$ ($\mathbf{K}$) для обеих ветвей с указанным преобразованием векторов симметричны относительно плоскости $\alpha=0$, т. е. при $\beta<0.4$ существуют полностью отщепленные зоны трифононов с полным набором волновых векторов, а при $0.4<\beta\leqslant1$ зоны трифононов с ограниченным набором волновых векторов, примыкающие к ВР+Р зоне (при $\beta=1$ имеем $\alpha_\pm<\alpha^{(0)}$, $\alpha^{(0)}=\alpha_+(\mathbf{K}=0)=\alpha_-(K_x=\pi/a_x,\ K_y=\pi/a_y)=0.04$ [9, 11]).

Поступило в Редакцию
13 июля 1988 г.