Письма в ЖЭТФ, том 73, вып. 2, стр. 84 – 86 © 2001 г. 25 января

Неадиабатические эффекты в фононном спектре металлических соединений

А. И. Морозов[1)]

Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (технический университет)
117454 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 декабря 2000 г.

Показано, что неадиабатические поправки к закону дисперсии оптических фононов в области малых волновых векторов в случае ветвей, у которых колебание с нулевым волновым вектором не сопровождается возникновением дипольного момента ионной решетки, существенны для всех возможных направлений волнового вектора. Если же дипольный момент возникает, то неадиабатические поправки достигают заметной величины только для направлений волнового вектора, практически перпендикулярных направлению дипольного момента.

PACS: 63.20.-e

Для расчета фононных спектров обычно используют адиабатическое приближение, предполагающее, что распределение электронной плотности отвечает мгновенной конфигурации ионной решетки. В случае отсутствия нестинга в электронной системе кристалла неадиабатические поправки, как показано в работе [1], могут стать существенными при $\omega_p(\mathbf{q}) \gtrsim qv_F$ ($\mathbf{q}$ – волновой вектор, $\omega_p(\mathbf{q})$ – адиабатический закон дисперсии p-й фононной ветви, а v_F – фермиевская скорость электронов), то есть для оптических фононных ветвей в области малых волновых векторов. Для $q \approx q_B$, где q_B – бриллюэновский волновой вектор, неадиабатические поправки малы в меру отношения $(m/M)^{1/2}$ (m – масса электрона, а M – масса иона).

Именно в области волновых векторов $q \lesssim \omega_p(\mathbf{q})/v_F \ll q_B$ становятся существенными поправки к затравочной неэкранированной вершине электрон-фононного взаимодействия [2].

В работах [3, 4] был произведен учет таких поправок в предположении, что эффекты электронного экранирования не играют заметной роли. Вместе с тем в работе [5] было продемонстрировано, что эффекты экранирования могут приводить к практически полной компенсации неадиабатических поправок.

Данная статья посвящена рассмотрению процесса экранирования и нахождению тех фононных мод, для которых компенсации неадиабатических поправок не происходит.

Гамильтониан электрон-фононного взаимодействия имеет вид

$$H_{e-ph} = \sum_{n,n',\mathbf{k},\mathbf{k}'} \Gamma_{n,n',\mathbf{k},\mathbf{k}'} \hat{a}^+_{n'\mathbf{k}'} \hat{a}_{n,\mathbf{k}} [(\hat{b}(\mathbf{k}'-\mathbf{k}) + \hat{b}^+(\mathbf{k}-\mathbf{k}')], \quad (1)$$

где $\hat{a}^+_{n,\mathbf{k}}$, $\hat{a}_{n,\mathbf{k}}$ – операторы вторичного квантования электронов, принадлежащих к n-й зоне, $\mathbf{k}$ – волновой вектор, $\hat{b}^+(\mathbf{q})$, $\hat{b}(\mathbf{q})$ – операторы вторичного квантования фононов. Для простоты мы ограничимся одной оптической фононной ветвью с адиабатическим законом дисперсии $\omega_0(\mathbf{q})$. Неэкранированный матричный элемент электрон-фононного взаимодействия имеет вид

$$\Gamma_{n,n',\mathbf{k},\mathbf{k}'} = -\sum_{s=1}^{r} \left(\frac{\hbar N}{2M_s\omega_0(\mathbf{k}'-\mathbf{k})}\right)^{1/2} \times$$

$$\times \int \psi^*_{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{r})(\nabla W_s(\mathbf{r}), \mathbf{e}_s(\mathbf{k}'-\mathbf{k}))\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r}, \quad (2)$$

где суммирование ведется по всем ионам в элементарной ячейке, N – число элементарных ячеек в кристалле, $\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ – блоховская функция электрона n-й зоны, $W_s(\mathbf{r})$ – потенциальная энергия взаимодействия электрона с s-м ионом массы M_s, находящимся в положении равновесия, $\mathbf{e}_s(\mathbf{q})$ – вектор поляризации соответствующего иона при колебаниях на заданной моде.

Рассмотрим диагональный матричный элемент ($n = n'$). Основной вклад в интеграл в правой части (2) вносят расстояния $r \approx |\mathbf{k}' - \mathbf{k}|^{-1}$, большие по сравнению с межатомным расстоянием d. При этом можно считать, что

$$\psi_{n,\mathbf{k}'}(\mathbf{r}) \equiv u_{n,\mathbf{k}'}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}'\mathbf{r}) \approx u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}'\mathbf{r}), \quad (3)$$

[1)]e-mail: morosov@eot.mirea.ru

и заменить блоховские функции плоскими волнами. Тогда в приближении жестких ионов величина $\Gamma_{n,n,\mathbf{k},\mathbf{k}'} = \Gamma(\mathbf{k}' - \mathbf{k})$, то есть зависит только от разности $\mathbf{k}' - \mathbf{k}$ и равна

$$\Gamma(\mathbf{q}) = -i\left(\frac{\hbar N}{2\omega_0(\mathbf{q})}\right)^{1/2}\frac{4\pi e^2}{q^2}(\mathbf{q}, \mathbf{A}), \tag{4}$$

где

$$\mathbf{A} = \sum_{s=1}^{r}\frac{Z_s}{M_s^{1/2}}\mathbf{e}_s(0). \tag{5}$$

В области $q \ll q_B$ возможны два случая:

a) если $\mathbf{A} \neq 0$ и угол между $\mathbf{q}$ и $\mathbf{A}$ не слишком мал, $\Gamma(\mathbf{q}) \propto q^{-1}$;

b) Если же $\mathbf{A} = 0$ или косинус угла φ между $\mathbf{q}$ и $\mathbf{A}$ мал ($\cos\varphi \lesssim q/q_B$), то необходимо учесть следующие по q члены разложения величины $u_{n,\mathbf{k}'}(\mathbf{r})$ вблизи $\mathbf{k}' = \mathbf{k}$. При этом функция $\Gamma_{n,n,\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ уже не имеет особенности при $\mathbf{k}' \to \mathbf{k}$, зависит от $\mathbf{k}'$, $\mathbf{k}$ по отдельности, а ее значение по порядку величины такое же, как и у недиагональных ($n \neq n'$) матричных элементов, основной вклад в которые дают при вычислении интеграла в (2) расстояния $r \approx d$.

Аналогичным образом можно рассмотреть кулоновский матричный элемент электрон-электронного взаимодействия. В силу скалярного характера кулоновской вершины расходимость при малых переданных импульсах имеет место всегда, когда оба взаимодействующих электрона (из зон n и n', соответственно) остаются в первоначальных зонах:

$$V_{n,n'}(\mathbf{q}) = 4\pi e^2/q^2. \tag{6}$$

Поэтому в области малых $\mathbf{q}$ можно пренебречь остальными неособенными вкладами в экранирование и ограничиться приближением хаотических фаз.

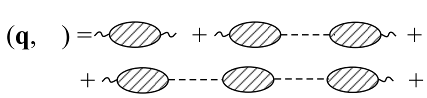
Рассмотрим перенормировку фононной функции Грина $D(\mathbf{q}, \omega)$ за счет неадиабатических поправок:

$$D^{-1}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\omega^2 - \omega_0^2(\mathbf{q})}{2\omega_0(\mathbf{q})} - \Delta\Pi(\mathbf{q}, \omega), \tag{7}$$

где

$$\Delta\Pi(\mathbf{q}, \omega) = \Pi(\mathbf{q}, \omega) - \Pi(\mathbf{q}, 0), \tag{8}$$

а поляризационный оператор $\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ с учетом эффекта экранирования, аналогично [5], задается следующим рядом:

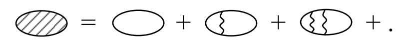


(9)

где вершина с волнистой линией соответствует $\Gamma_{n,n',\mathbf{k},\mathbf{k}'}$, штриховая линия – кулоновскому взаимодействию, а заштрихованная петля образована двумя электронными функциями Грина:

$$G_n(\mathbf{k}, \varepsilon) = [\varepsilon - \varepsilon_n(\mathbf{k}) + \mu - \Sigma_n(\mathbf{k}, \varepsilon)]^{-1}, \tag{10}$$

где $\varepsilon_n(\mathbf{k})$ – закон дисперсии электронов в n-й зоне, μ – их химический потенциал, $\Sigma_n(\mathbf{k}, \varepsilon)$ – собственно энергетическая часть. Петля содержит все поправки лестничного типа к вершине, обусловленные электрон-фононным взаимодействием:



(11)

По всем индексам зон n в (9) проводится суммирование.

В случае a) вклад в $\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ диагональных по n слагаемых, относящихся к частично заполненным зонам, после учета эффекта экранирования приобретает вид

$$\Pi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{|\Gamma(\mathbf{q})|^2 P(\mathbf{q}, \omega)}{1 + 4\pi e^2 P(\mathbf{q}, \omega)/q^2}, \tag{12}$$

где $P(\mathbf{q}, \omega)$ задается рядом (11).

В области малых волновых векторов второе слагаемое в знаменателе выражения (12) намного превосходит первое. Поэтому при $q \lesssim \omega_0/v_F$ с точностью до поправок порядка m/M величина $P(\mathbf{q}, \omega)$ сокращается и соответствующий вклад в $\Delta\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ равен нулю. Для недиагональных по n слагаемых лестничные поправки к вершине малы, так же как и поправки на неадиабатичность (порядка $(m/M)^{1/2}$). Таким образом, в случае a) неадиабатические поправки к адиабатическому закону дисперсии оптических фононов в области малых волновых векторов имеют малость $(m/M)^{1/2}$, такую же, как и при $q \approx q_B$, и дисперсия в области $q \lesssim \omega_0/v_F$ мала. Именно этот случай был рассмотрен в работе [5].

В случае b) вклад диагональных по n слагаемых уже не приводится к выражению (12). Дело в том, что $\Gamma_{n,n,\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ зависит от угла между $\mathbf{k}$ и $\mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$. Поэтому интеграл по $\mathbf{k}$ в петле, содержащей одну кулоновскую и одну фононную вершины, дает в главном по q приближении нулевой результат [6]. В то же время в петле, содержащей две фононные вершины, подобного обнуления не происходит. Таким образом, в случае b) эффекты экранирования не важны, неадиабатические поправки в диагональных по n слагаемых существенны, а вклад недиагональных слагаемых такой же, как в случае a). В итоге, для случая b) неадиабатические поправки к адиабатическому закону дисперсии оптических фононов в области

$q \lesssim \omega_0/v_F$ составляют величину порядка ω_0 и должны быть учтены при вычислении фононных спектров. Именно к случаю b) относятся результаты расчетов [3, 4].

Поскольку смещение s-го атома в элементарной ячейке на заданной фононной моде пропорционально $\mathbf{e}_s/M_s^{1/2}$, то вектор $\mathbf{A}$ (формула (5)) пропорционален ионному дипольному моменту элементарной ячейки, возникающему при оптическом колебании с $\mathbf{q} = 0$. Если для данной оптической фононной ветви $\mathbf{A} = 0$, то есть дипольный момент у ячейки не возникает, то неадиабатические поправки существенны для всех $q \lesssim \omega_0/v_F$. Если же для данной оптической ветви $\mathbf{A} \neq 0$ (дипольный момент возникает), то неадиабатические поправки существенны лишь для направлений $\mathbf{q}$, практически перпендикулярных вектору дипольного момента, а именно, для пояска

$$(\mathbf{q}, \mathbf{A})/qA \lesssim q/q_B. \tag{13}$$

В этих случаях в области волновых векторов $q \lesssim \omega_0/v_F$ должна наблюдаться заметная дисперсия, обусловленная неадиабатическими поправками, которую можно наблюдать экспериментально. Поскольку адиабатическое приближение переоценивает эффект экранирования, поправки на неадиабатичность должны приводить к росту фононной частоты. Такое поведение фононного спектра наблюдалось в осьмии [7] методом комбинационного рассеяния света.

Если для данного значения $\mathbf{q}$ неадиабатические поправки существенны для нескольких оптических ветвей, то необходимо учитывать их перемешивание за счет недиагонального по номеру фононной ветви поляризационного оператора, вершины которого относятся к разным фононным ветвям. Гибридизация с остальными фононными ветвями, для которых адиабатическое приближение адекватно, несущественна.

Представляет интерес экспериментальное исследование угловой зависимости дисперсии в области малых волновых векторов для фононных мод с $\mathbf{A} \neq 0$. В центрально-симметричных металлических соединениях, где такие моды неактивны в спектре комбинационного рассеяния, исследование можно провести методами гиперкомбинационного рассеяния света и рассеяния нейтронов.

Автор глубоко благодарен Е. Г. Максимову за ценные обсуждения, приведшие к написанию данной работы.

1. S. Englesberg and J. R. Schriffer, Phys. Rev. **131**, 993 (1963).
2. А. Б. Мигдал, ЖЭТФ **34**,1438 (1958).
3. И. П. Ипатова, А. В. Субащиев, ЖЭТФ **66**, 722 (1974).
4. E. G. Maksimov and S. V. Shulga, Solid State Commun. **97**, 553 (1996).
5. Б. Т. Гейликман, А. И. Морозов, ФТТ **18**, 3331 (1976).
6. Л. А. Фальковский, ЖЭТФ **103**, 666 (1993).
7. Yu. S. Ponosov, G. A. Bolotin, C. Thomson, and M. Cardona, Phis. Status Solidi **b208**, 257 (1998).