

АНОМАЛИИ ФОНОННЫХ СПЕКТРОВ, ОБУСЛОВЛЕННЫЕ ФЛУКТУАЦИЯМИ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ

М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов

Показано, что в системах с узкими пиками плотности состояний вблизи уровня Ферми (в частности, соединения со структурой A15, системы с тяжелыми фермионами СТФ) имеют место аномалии фоновых спектров и решеточных свойств, обусловленные флуктуациями зарядовой плотности. Рассмотренные аномалии должны приводить к усилению ангармонических эффектов. Экспериментальное изучение рассматриваемых особенностей могло бы прояснить вопрос о природе пиков плотности состояний в СТФ.

В последнее время интенсивно исследуются соединения, для которых характерно наличие очень узких пиков плотности электронных состояний $N(E)$ вблизи уровня Ферми E_F . К ним относятся, в частности, высокотемпературные сверхпроводники со структурой A15^{1,2}, а также системы с тяжелыми фермионами (СТФ)^{3,4}. Эти системы демонстрируют необычное поведение многих физических величин. Для них характерны аномально большие значения электронного вклада в теплоемкость C , парамагнитной восприимчивости χ , существенные немонотонности в температурных зависимостях C и χ , теплового расширения, сопротивления и т.п. Для объяснения этих аномалий привлекались различные механизмы: для соединений со структурой A15 — особенности их одноэлектронного спектра, связанные с симметрией решетки⁵, поляронный эффект⁶, сильное электрон-фононное взаимодействие⁷, для СТФ — модель "решетки Кондо" (см., например³). В⁸ было показано, что при наличии узких пиков $N(E)$ вблизи E_F возникают аномальные вклады в электронные и решеточные свойства металла, обусловленные флуктуациями зарядовой плотности, ФЗП, т.е. сильной частотной дисперсией диэлектрической проницаемости. Этот эффект весьма универсален и должен, по-видимому, проявляться (наряду с перечисленными выше механизмами) во всех системах с узкими пиками $N(E)$ вблизи E_F , хотя и в разной степени. Подчеркнем, что характерные для многих представителей указанных классов веществ немонотонные температурные зависимости $\chi(T)$, $C(T)/T$ (с максимумом⁴), упругих модулей (с минимумом, см., например, данные для CeSn_3 ³) могут быть объяснены аномальными вкладами ФЗП⁸. В настоящей работе показано, что электрон-фононное взаимодействие с учетом ФЗП приводит к значительному усилению аномалий в фоновых спектрах и решеточных свойствах.

Особенностью высокотемпературных сверхпроводников со структурой A15 и СТФ является существование пиков $N(E)$, для которых расстояние до E_F , Δ , и ширина Γ сравнимы с характерными фоновыми частотами. В этой ситуации возникает вопрос о применимости адиабатического приближения. "Опасный" вклад в фононную собственно-энергетическую часть

$\Sigma_{ph}(q\omega)$ (определяющую сдвиг частоты и затухание фононов) равен $-\lambda^2 \Pi(q\omega)$, где $\Pi(q\omega)$ — вклад переходов с узкого пика $N(E)$ на E_F в поляризационный оператор электронов, равный в приближении хаотических фаз

$$\Pi(q\omega) \approx B(q) \ln(E_F^2 / \Delta^2 - \omega^2 - i0), \quad (1)$$

$$B(q) = \sum_{\mu} \langle \nu | \exp i q r | \mu \rangle^2 \delta(\epsilon_{\mu} - E_F),$$

(см. ⁹), $|\nu\rangle$ — состояния электронов, формирующих пик шириной $\Gamma \ll \Delta$, λ — константа электрон-фононного взаимодействия, соответствующего процессам испускания (поглощения) фонона с одновременным переходом электрона с пика на E_F ($\nu \rightleftharpoons \mu$). Как показано в ¹⁰, именно такое электрон-фононное взаимодействие наиболее существенно в близкой ситуации промежуточной валентности.

Хотя (1) нельзя рассматривать в адиабатическом приближении ($\Pi(q\omega) \rightarrow \Pi(q0)$ ¹¹), весь этот вклад мал по сравнению с полным $\Sigma_{ph}(q0)$ из-за малости перекрытия волновых функций $|\nu\rangle$ и $|\mu\rangle$, т.е. в рассматриваемом случае адиабатическое приближение выполняется не в меру малости обычного адиабатического параметра ¹¹, а в меру малости этого перекрытия. Вклад "опасных" переходов в Σ_{ph} приводит, в силу (1), к смягчению фононного спектра $\delta\omega \sim \ln \Delta$. Так как $\Pi(q\omega) \sim q^2$ при $q \rightarrow 0$, соответствующий вклад в упругие модули B_{ik} отсутствует. Таким образом, в акустической области ($\omega \sim q$) смягчение фононных спектров за счет ФЗП $\delta\omega \sim \ln \Delta$ обусловлено обменно-корреляционным вкладом ⁸, который при больших q становится менее сингулярным ($\delta\omega \sim \Delta \ln \Delta$ ⁸), но одновременно возникает вклад $\delta\omega \sim \ln \Delta$, рассмотренный выше. В результате, в меру величины обсуждаемых эффектов, в спектрах фононов при малых q должны наблюдаться "изломы", а при q порядка вектора обратной решетки — провалы. Такое поведение фононных спектров характерно для систем со структурой A15 ¹². Подчеркнем, что еще более резкие аномалии должны наблюдаться в параметрах

$$\text{Грюнрайзена } \tilde{\gamma}_q \approx - \frac{d \ln \omega_q}{d \ln V} \sim \Delta^{-1} (V - \text{объем}).$$

При $\omega \rightarrow \Delta \gg \Gamma$ задача об определении сингулярного вклада в $\Pi(q\omega)$ формально эквивалентна проблеме "краевой сингулярности" в рентгеновских спектрах, где, как известно, необходим учет высших порядков теории возмущений по межэлектронному взаимодействию ⁹. Тогда, согласно ⁹, вместо (1) имеем

$$\Pi(q\omega) = \sum_l A_l(q) \frac{1}{\alpha_l} \left[\left(\frac{E_F}{\Delta - \omega} \right)^{\alpha_l} + \left(\frac{E_F}{\Delta + \omega} \right)^{\alpha_l} - 2 \right],$$

$$\alpha_l = \frac{2}{\pi} \delta_l - 2 \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \left(\frac{\delta_l}{\pi} \right)^2. \quad (2)$$

Здесь δ_l — фаза рассеяния на потенциале дырки, образующейся при уходе электрона с пика $N(E)$ на уровень Ферми, $A_l(q)$ — коэффициенты, связанные с экранирующим действием электронов на E_F с орбитальным моментом l . В d - или f -резонансной модели, когда учитывается только рассеяние с одним $l=2, 3$, из правила сумм Фриделя $(2/\pi) \sum (2l+1) \delta_l = 1$ следует, что $\alpha = [2(2l+1)]^{-1}$, т.е. $\alpha > 0$, но мало. В случае сильного s -рассеяния ¹ (малый радиус иона) α может быть существенно больше: $\alpha \approx 1/2$. Вклад (2) в затухание фононов γ_q определяется величиной

$$\text{Im} \Pi(q\omega_q) \sim |\omega_q - \Delta|^{\alpha} \theta(\omega_q - \Delta). \quad (3)$$

Из (2), (3) следует, что при $\alpha > 0$ γ_q , а также плотность фононных состояний $g(\omega)$, возрастает при $\omega \rightarrow \Delta$. Сингулярный вклад в $g(\omega) \sim |\omega - \Delta|^{-\alpha}$, $\omega \rightarrow \Delta$. Экспериментальное ис-

следование затухания фононов, а также $g(\omega)$, на наш взгляд, представляет особый интерес для СТФ, так как могло бы дать ответ на вопрос, сохраняется ли пик $N(E)$ вплоть до высоких температур или он является низкотемпературным, как следует из предположения о его чисто концевской природе³. Из проведенного рассмотрения ясно, что вывод о сильном затухании при $\omega > \Delta$, $\omega \rightarrow \Delta$ относится не только к фононам, но и к другим возбуждениям в соответствующем частотном интервале, в том числе, например, к локальным возбуждениям, связанным с расщеплением f -уровня в кристаллическом поле. В связи с этим отметим экспериментальный факт, что локальные возбуждения в CeAl_3 (представитель СТФ) сильно затухают при температурах вплоть до комнатных, в отличие от PrAl_3 и NdAl_3 ¹³. Это можно было бы объяснить на основе (3), предположив, что один из подуровней f -уровня в CeAl_3 находится вблизи E_F , так что энергия локального возбуждения совпадает с Δ (расстоянием от другого подуровня до E_F). Такое предположение кажется довольно естественным для СТФ.

Учет электрон-фононного взаимодействия и ФЗП дает вклад в Ω -потенциал

$$\delta\Omega = -\frac{1}{2}\lambda^2 T \sum_{\mathbf{q}} \Pi(\mathbf{q}, i\omega) \frac{\omega_{\mathbf{q}}^2}{\omega^2 + \omega_{\mathbf{q}}^2}, \quad \omega = 2\pi nT, \quad n = 0, \pm 1. \quad (4)$$

Тогда, с учетом (1), имеем

$$\delta\Omega = -\frac{1}{2}\lambda^2 \sum_{\mathbf{q}} B(\mathbf{q}) \omega_{\mathbf{q}}^2 \left(\frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}} \operatorname{cth} \frac{\omega_{\mathbf{q}}}{2T} \ln \left| \frac{E_F^2}{\Delta^2 - \omega_{\mathbf{q}}^2} \right| + \int_{\Delta}^{\infty} \frac{dx}{\omega_{\mathbf{q}}^2 - x^2} \operatorname{cth} \frac{x}{2T} \right) \approx$$

$$\approx \begin{cases} \frac{\lambda^2}{2} \sum_{\mathbf{q}} B(\mathbf{q}) \omega_{\mathbf{q}} \ln(E_F/\Delta + \omega_{\mathbf{q}}), & T=0 \\ -\lambda^2 T \sum_{\mathbf{q}} B(\mathbf{q}) \ln(E_F/\Delta), & T \gg \Delta, \Theta_D \end{cases} \quad (5)$$

Θ_D — температура Дебая. Из (5) следует, что ангармонические эффекты, в том числе ангармонизмы потенциала, велики при малых Δ , так как каждое дополнительное варьирование $\delta\Omega$ по смещениям приводит к усилению особенности. Вывод о сильных ангармонических эффектах в соединениях со структурой A15 был сделан в 7 из других соображений. В отличие от 7, здесь не предполагается очень большая величина электрон-фононного взаимодействия.

С ростом температуры пики $N(E)$ должны уширяться⁹, что приводит к росту эффективных значений Δ : $d\Delta/dT > 0$. Тогда смягчение фононных спектров должно усиливаться при понижении температуры, т.е. должны "прорасти" пики в $g(\omega)$ при $\omega \sim \Delta$ (при больших T эти особенности, скорее всего, будут заматы за счет уширения пиков $N(E)$). Интересно отметить, что ангармонический вклад в решеточную теплоемкость, согласно (5), оказывается отрицательным (если $\left| \frac{d\ln\Delta}{d\ln T} \right| \lesssim 1$), что согласуется с экспериментальными данными по соединениям со структурой A15¹⁴.

Расчет среднеквадратичного смещения $\langle x^2(T) \rangle$, который может быть выполнен аналогично расчету $\delta\Omega$, приводит к результату:

$$\delta \langle x^2(T) \rangle \approx \begin{cases} \frac{\lambda^2}{2} \sum_{\mathbf{q}} \frac{B(\mathbf{q})}{\omega_{\mathbf{q}} + \Delta}, & T=0 \\ 2\lambda^2 T \sum_{\mathbf{q}} \frac{B(\mathbf{q})}{\omega_{\mathbf{q}}^2} \ln \left(\frac{E_F}{\Delta} \right), & T \gg \Delta, \Theta_D. \end{cases} \quad (6)$$

Из (6) следует, что при $\Delta \ll E_F \langle x^2 \rangle$ аномально велико, что по критерию Линдемана должно приводить к уменьшению температуры плавления T_m . Такой эффект может вызывать, например, добавление примесей с узкими квазилокальными уровнями вблизи E_F матрицы. Возможно, что полученные результаты относительно роста $\langle x^2 \rangle$ и усиления ангармонических эффектов при малых Δ (в силу чего аномальные вклады в $\langle x^4 \rangle$ гораздо больше, чем в $\langle x^2 \rangle^2$) объясняют наблюдавшиеся в V_3Si очень большие значения смещений атомов V^{15} . В соответствии с 15 такое поведение на языке межатомного потенциала соответствует его двухминимумности.

Из приведенного рассмотрения следует, что экспериментальное исследование решеточных свойств (затухание фононов, $g(\omega)$, фактор Дебая – Валлера, T_m) соединений с узкими пиками $N(E)$ вблизи E_F , в частности, СТФ, представляет значительный интерес, особенно при изменении внешних параметров меняющих Δ (давление, одноосная деформация, концентрация примесей).

Авторы благодарны П.А.Алексееву, А.В.Мирмельштейну, А.Ю.Румянцеву за обсуждение экспериментальной ситуации, С.В.Вонсовскому за интерес к работе, В.Г.Ваксу и Н.Е.Зейну за ценные критические замечания.

Литература

1. Сверхпроводимость соединений со структурой β -вольфрама, М.: Мир, 1977.
2. Вонсовский С.В., Изюмов Ю.А., Курмаев Э.З. Сверхпроводимость переходных металлов, их сплавов и соединений. М.: Наука, 1977.
3. Lawrence J.M., Riseborough P.S., Parks R.D. Rep. Prog. Phys., 1981, 44, 1.
4. Ott H.R. Physica B, 1984, 126, 100.
5. Горьков Л.П. Письма в ЖЭТФ, 1974, 20, 571.
6. Александров А.С., Елесин В.Ф. ФТТ, 1983, 25, 456.
7. Yu C.C., Anderson P.W. Phys. Rev. B, 1984, 29, 6165.
8. Кацнельсон М.И., Трефилов А.В. Письма в ЖЭТФ, 1984, 40, 303; Phys. Lett., 1985, 109A, 109.
9. Mahan G. Many-particle physics. Plenum Press, 1981.
10. Grewe N., Entel P. Z. Phys. B, 1979, 33, 331.
11. Бровман Е.Г., Каган Ю.М. УФН, 1974, 112, 369.
12. Weber W. In: Electronic structure of complex systems, Plenum Press, 1984.
13. Алексеев П.А. и др. ФТТ, 1976, 18, 1466.
14. Knapp G.S. et al. Phys. Rev. B, 1975, 11, 4331.
15. Staudenmann J.-L., Testardi L.R. Phys. Rev. Lett., 1979, 43, 40.