Письма в ЖЭТФ, том 15, вып. 12, стр. 738 – 741 *20 июня 1972 г.*

ЛОКАЛЬНЫЕ КОЛЕБАНИЯ В АНГАРМОНИЧЕСКОМ КРИСТАЛЛЕ

Г. С. Завт, С. П. Рейфман

В проблеме локальных колебаний ангармонизм рассматривается обычно как причина затухания и малого сдвига локальных частот. Однако, его влияние может приводить и к другим эффектам, в частности, к появлению новых локальных частот [1, 2].

Естественно ожидать, что влияние ангармонизма на свойства локальных колебаний проявляется наиболее значительно в кристаллах с большой амплитудой нулевых колебаний (квантовые кристаллы), когда обычный метод разложения потенциальной энергии по смещениям ядер неприменим. В таких системах поведение даже изотопического дефекта может быть существенно иным, чем в гармонической решетке, так как из-за ангармонизма колебаний изменение массы влечет за собой изменение эффективных силовых констант. Ниже мы покажем, что в определенных предположениях свойства изотопического дефекта в ангармоническом кристалле изменяются коренным образом.

Рассмотрим одномерный кристалл, содержащий $2N + 1$ атомов, из которых $2N$ имеют массу m и один, расположенный в нулевом узле, – массу $m' = Qm$. Будем учитывать лишь взаимодействие ближайших соседей, которое описывается потенциалом Морзе

$$\phi(r) = D[e^{-(r-r_0)/\rho} - 1]. \qquad (1)$$

Здесь D и ρ – константы, r_0 – расстояние между узлами, r – мгновенное расстояние между атомами. Считаем также, что на систему не действуют внешние силы.

Для описания динамики этой системы будем использовать метод [3 - 6], не связанный с предположением о малости ангармонизма и позволяющий учесть все порядки теории возмущений. Хотя в цитированных работах этот метод применялся только к идеальным кристаллам, нетрудно найти такую его формулировку, в которую не входило бы предположение об идеальности решетки. Без учета процессов затухания (псевдогармоническое приближение) указанный метод применительно к потенциалу (1) приводит к следующей самосогласованной системе уравнений [1].

$$\omega^2 G_{nn'}(\omega) = \delta_{nn'} + \sum_{n''} D_{nn''} G_{n''n'}(\omega), \quad D_{nn'} = \frac{K_{nn'}}{\sqrt{m_n m_{n'}}}; \tag{2а}$$

$$K_{n,n-1} = -f\exp\{-<(u_n - u_{n-1})^2>/\rho^2\}, \quad \sum_{n'=n-1}^{n+1} K_{nn'} = 0; \tag{2б}$$

$$<u_n u_{n'}> = \frac{\hbar}{\pi}\int_0^\infty d\omega \operatorname{cth}\frac{\hbar\omega}{2kT} \operatorname{Im} G_{nn'}(\omega - i0+). \tag{2в}$$

Здесь $G_{nn'}(\omega)$ – фурье-образ двухвременнóй функции Грина, определенной на смещениях u_n атомов из статистических положений равновесия, $f = D/\rho^2$ – гармоническая силовая постоянная.

Решение системы (2) можно найти с помощью итерационного метода. В качестве первого шага примем гармоническое приближение. Тогда задача сводится к решению уравнения (2а), описывающего динамику изотопического дефекта в гармоническом приближении. Функции Грина в этом случае имеют простое аналитическое представление (см., например, [7]). Для перехода к следующей итерации нужно найти корреляторы (2в), определяющие эффективные силовые постоянные $K_{nn'}$. При $T = 0°$К выражение для коррелятора $<(u_n - u_{n-1})^2>$ имеет вид ($n \geqslant 1$):

$$\frac{2\hbar}{\pi m\omega_M}\left\{2 + \frac{Q-1}{2-Q}\sum_{k=0}^{\infty}\left(\frac{Q}{Q-2}\right)^k \prod_{j=1}^{3}\left(k - 2n + \frac{2j-1}{2}\right)^{-1} + 2\pi\frac{1-Q}{(2-Q)^3}\left(\frac{Q}{2-Q}\right)^{2n-5/2}\right\}, \quad Q < 1, \tag{3}$$

$$\frac{2\hbar}{\pi m\omega_M}\left\{2 + \frac{1-Q}{Q}\sum_{k=0}^{\infty}\left(\frac{Q-2}{Q}\right)^k \prod_{j=1}^{3}\left(k + 2n + \frac{2j-5}{2}\right)^{-1}\right\}, \quad Q \geqslant 1,$$

где $\omega_M = \sqrt{4f/m}$ – максимальная частота гармонической решетки. Сопоставляя (3) с (2б), мы видим, что вследствие ангармонизма изотопический дефект меняет эффективные силовые постоянные для любой пары атомов цепочки. Силовые постоянные уменьшаются, если $Q < 1$, и увеличиваются, если $Q > 1$, причем их изменение является

[1] Мы следуем здесь работам [4, 5], в которых специально рассматривался потенциал Морзе.

монотонной функцией параметра ($Q - 1$). На больших расстояниях от примеси поправка к $K_{nn'}$ ведет себя как n^{-3}, т. е. потенциал возмущения является короткодействующим и, следовательно, число связанных состояний конечно [8].

Вычислив с помощью (3) и (2б) эффективные силовые постоянные, мы возвращаемся к уравнению (2а), которое включает теперь и изменение силовых постоянных. В силу короткодействующего характера потенциала возмущения для решения (2а) можно применить метод Лифшица [9], для чего (2а) следует переписать в форме уравнения Дайсона и учесть изменение силовых постоянных в конечной, хотя и достаточно большой, области. В результате мы приходим к детерминантному уравнению $(2p + 1)$-го порядка (p – число соседей примеси, для которых учитывается изменение $K_{nn'}$), решения которого при $\omega > \omega_M$ определяют локальные частоты в псевдогармоническом приближении. Полученное таким образом уравнение исследовалось численными методами на ЭВМ. При этом полагалось: $p = 10$ (дальнейшее расширение дефектной области не меняет результатов); $r_0 = 4 \times 10^{-8}$ *см*, $m = 4$ АЕМ $D = 10{,}2$°K (эти параметры соответствуют He^4 [10]); $\rho = r_0/6$ (см. [5]).

Результаты расчета оказались довольно неожиданными. При $Q < 1$ уменьшение силовых постоянных полностью компенсирует изменение массы, и локальных колебаний не возникает. Наоборот, для тяжелой примеси за счет возрастания силовых постоянных возникают локальные колебания, но только с малыми частотами. Всего может существовать два локальных колебания, первое из которых (нечетное) возникает при $Q \gtrsim 1{,}3$, второе (четное) – при $Q \gtrsim 9$. При $Q \to \infty$ локальные частоты приближаются снизу к общему пределу, равному $\sim 1{,}0059\ \omega_M$ (при конечных Q четное колебание имеет меньшую частоту). Таким образом, в рассматриваемой модели могут существовать только мелкие локальные колебания, причем условие их возникновения противоположно случаю гармонического кристалла [7].

Полученные результаты определяются, естественно, выбранным значением параметра ρ, характеризующего степень ангармонизма. Принятое значение ρ соответствует сильному ангармонизму. С ростом этого параметра при фиксированном значении ω_M степень ангармонизма уменьшается, и локальные колебания приобретают те же свойства, что в гармонической решетке.

Таким образом, несмотря на упрощенный характер изученной модели, можно утверждать, что динамические свойства дефектов могут претерпевать существенные изменения в сильно ангармонических кристаллах, и экспериментальное изучение этих свойств представило бы определенный интерес.

Авторы благодарны В.В.Хижнякову и Н.Н.Кристофелю за полезные обсуждения.

Институт физики и астрономии
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
10 мая 1972 г.

Литература

[1] И.М. Лифшиц, А.М.Косевич. Препринт ФТИ АН УССР №170/Т-025, Харьков, 1965.

[2] В.В.Брыксин, Ю.А.Фирсов. Сб. "Физика примесных центров в кристаллах" Таллин. АН ЭССР, 1972, стр. 135.

[3] P.Choquard. The Anharmonic Crystal (W.A.Benjamin Inc., New York, .1967).

[4] N.M.Plakida, T. Siklós. Physica status solidi, 33, 103, 1969.

[5] T.Siklós. Acta Phys. Acad. Hung., 30, 181, 1971.

[6] S.Takeno. Progr. Theor. Phys., Suppl. 45, 137, 1970.

[7] А.Марадудин, Э.Монтролл, Дж. Вейсс. Динамическая теория кристаллических решеток в гармоническом приближении, М., изд. Мир, 1965.

[8] T.Kato. Progr. Theor. Phys., Suppl. 40, 3, 1967.

[9] И.М.Лифшиц. ЖЭТФ, 17, 1017, 1076, 1947.

[10] R.A.Guyer. Solid State Physics, 23, Academic Press, N.Y. 1969, p. 413.