

УДК 538.913

©1994

СВЯЗАННЫЕ БИФОНОННЫЕ СОСТОЯНИЯ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ

О.А. Дубовский, А.В. Орлов

Показано, что ангармонизм акустических колебаний атомов в кристаллической решетке может привести к отщеплению от высококачественной границы полосы диссоциированных акустических двухфоновых состояний изолированного терма связанного акустического бифонаона. Получено дисперсионное уравнение для зависимости энергии акустического бифонаона от волнового вектора и константы ангармонизма. Решение этого уравнения показало, что дисперсионная кривая акустического бифонаона в центре зоны Бриллюэна имеет в отличие от акустических фононов зависимость от волнового вектора, отвечающую отрицательной эффективной массе. На границе зоны Бриллюэна, наоборот, дисперсионная зависимость бифонаона линейна, так же как у акустического фонона в центре зоны. Исследованный бифонon как квантовое состояние соответствует классическому квазисолитону, частота которого бифуркационным образом отщепляется от границы зоны акустических колебаний.

В настоящее время ведутся интенсивные экспериментальные и теоретические исследования тонкой структуры спектров колебаний кристаллической решетки твердых тел в области узких резонансов, отвечающих связанным многофоновым состояниям — бифонаонам, трифонаонам и т.д. Обзоры этих исследований даны в [1,2], некоторые последние результаты в этой области представлены в [3,5]. Бифонonные и трифонonные колебательные состояния гидридов металлов исследовались методом рассеяния медленных нейтронов, колебательные состояния ионных и молекулярных кристаллов — методом ИК-спектроскопии. При этом энергии наблюдавшихся резонансов связанных колебаний находятся в областях двукратных и трехкратных энергий относительно энергии высокочастотных оптических однофоновых колебаний $E_0 \simeq 150$ meV, т.е. в области 300 meV для бифонonов и 450 meV для трифонonов. По-видимому, в дальнейшем будут экспериментально изучаться квартафононы и пентафононы с тонкой структурой спектров, исследованной теоретически в [6,7]. При этом, естественно, возникает вопрос о переходе к мультифононным комплексам высокой кратности L . Отметим, что энергия возбуждения низшего основного состояния таких комплексов $E_{op}(L) = LE_0 - A_{op}[L(L-1)]$, т.е. квадратична по L (A_{op} — соответствующая константа ангармонизма оптических фононов [1,2]). После исключения квантовых флуктуаций в теории мультифононные комплексы должны соответствовать солитонным решениям классической теории нелинейных колебаний. Как пример такого

соответствия для интерфейсных поверхностных колебаний в сверхрешетке с Ферми-резонансом одно- и двухфононных колебаний [5] квантовая теория бифононов ($L = 2$) дает при сильном ангармонизме тот же спектр колебаний, что и классическая теория солитонов при соответствующей интенсивности J , определяемой числом заполнения $\langle B^+ B \rangle$, $J = \langle B^+ B \rangle = L = 2$ [8]. Отметим работу [9], в которой температурный сдвиг в поглощении ультразвука в кристаллах со структурными фазовыми переходами объясняется генерированием бифононов, образованных из двух связанных мягких мод с энергиями ≈ 10 meV, т.е. уже в акустической области малых по сравнению с E_0 энергий. При этом, однако, поскольку мягкая мода имеет щель в спектре, в принципиальном отношении образование такого мягкого бифонона вполне аналогично образованию оптических бифононов с высокими энергиями $\approx 2E_0$.

Современное развитие классической теории нелинейных акустических колебаний связано с исследованиями солитонов, в частности, в решетке Тоды и в последнее время с исследованиями так называемых intrinsic modes [10,11] — самолокализованных колебаний [12]. Отметим, что если с помощью адиабатического инварианта формально ввести число фононов в солитоне L , то энергия солитона $E_{\text{sol}}(L)$ в используемых нами ниже обозначениях равна $E_{\text{sol}}(L) = \hbar\omega_D + (2/3)\hbar\omega_D A^2 L^3$, где ω_D — дебаевская частота, A — безразмерная константа ангармонизма. В соответствующей классической теории [12] дополнительные термы самолокализованных колебаний в четырехатомной системе при увеличении амплитуды отщепляются от высокочастотной границы области двухфононных колебаний.

В настоящей работе обращается внимание на возможность развития исследований того же направления, что и для оптических мультифононных комплексов [1-7], но в области низких энергий акустических колебаний. Как первый шаг показана возможность образования принципиально нового квантового состояния — акустического бифонона (АБФ) — связанного состояния двух акустических фононов. Этот акустический бифонон является квантовым состоянием, отвечающим классическому квазисолитонному решению, бифуркационным образом отщепляющимся от границы зоны двухфононных колебаний. В рамках модели ангармонических акустических колебаний, использованной в [10-12], для АБФ определена соответствующая волновая функция, получено дисперсионное уравнение, найдено решение этого уравнения для зависимости энергии бифонона $E(K)$ от волнового вектора бифонона K . Показано, что бифононная зона отщеплена от зоны двухфононных несвязанных состояний в высококачественную область. Дисперсионная зависимость АБФ существенно отличается в противоположность оптическим бифононам [1,2] от дисперсионной зависимости акустических фононов, имея максимум, а не минимум при нулевом волновом векторе и отрицательную эффективную массу. Кроме того, на границе зоны Бриллюэна дисперсионная кривая АБФ имеет линейную зависимость и минимум, а не квадратичную зависимость и максимум, как акустические фононы. Групповые скорости АБФ и акустических фононов имеют различные знаки. Следует отметить, что в ряде случаев экспериментально исследовались кристаллы с узкими резонансными

ми линиями не ниже, как обычно, а выше зон оптических двухфононных несвязанных колебаний — алмаз [1,2], гидрид ванадия [13]. Возможно, резонансные линии такого же типа будут наблюдаться и в области акустических колебаний. При этом, естественно, встает вопрос о ширине этих линий, т.е. об устойчивости таких колебаний, возможных каналах распада и т.д. Эти вопросы предполагается рассмотреть в дальнейшем.

Следуя [10-12], рассмотрим одномерную замкнутую кристаллическую цепочку из N осцилляторов с массой M . Взаимодействие между ближайшими соседями включает в себя наряду с обычными упругими силами также ангармонизм 4-го порядка. Ангармонизм 3-го порядка в этой симметричной модели не рассматривается [10-12], однако очевидно, что учет соответствующих поправок в дальнейшем необходим. В этом случае гамильтониан кристалла имеет следующий вид

$$H = H_2 = H_4,$$

$$H_2 = \sum_n \frac{P_n^2}{2M} + V \sum_n (x_n - x_{n-1})^2, \quad H_4 = A_0 \sum_n (x_n - x_{n-1})^4, \quad (1)$$

где P_n — оператор импульса n -го осциллятора; x_n — оператор смещения этого осциллятора; V — константа, определяющая упругую составляющую; $A_0 > 0$ — константа ангармонизма.

Обычная процедура диагонализации квадратичной части гамильтониана H_2 сводится к введению Бозе-операторов рождения и уничтожения акустических фононов B_q^+ , B_q с волновыми векторами q

$$P_n = -i \sqrt{\frac{\hbar M}{2N}} \sum_q \sqrt{\omega_q} (B_q e^{iqn} - B_q^+ e^{-iqn}),$$

$$x_n = \sqrt{\frac{\hbar}{2MN}} \sum_q \frac{1}{\sqrt{\omega_q}} (B_q e^{iqn} + B_q^+ e^{-iqn}), \quad -\pi < q < \pi, \quad (2)$$

где ω_q — частота акустических фононных колебаний с волновым вектором q в единицах $1/a$ (a — постоянная решетки).

Подстановка (2) в (1) дает определение ω_q как функции V и q

$$\omega_q = \sqrt{\frac{8V}{M}} \sin\left(\frac{q}{2}\right), \quad V > 0, \quad (3)$$

гамильтониан H_2 принимает вид

$$H_2 = \varepsilon_0 + \sum_q \hbar \omega_q B_q^+ B_q; \quad \varepsilon_0 = \sum_q \frac{\hbar \omega_q}{2}. \quad (4)$$

Дисперсионная зависимость (3) имеет вид обычной акустической ветви с дебаевской частотой $\omega_D = \sqrt{8V/M}$.

Подстановка (2) в H_4 в (1) с последующим использованием соответствующих коммутационных соотношений для Бозе-операторов B_q^+ , B_q дает представление H_4 в следующем виде:

$$H_4 = H_4^{(0)} + H_4^{(2)} + h_2 + h_4^{(3)} + h_4^{(4)} + H_4^{(4)}. \quad (5)$$

В (5) $H_4^{(0)}$ — постоянная составляющая, дающая аддитивный сдвиг в энергию нулевых колебаний, имеет вид

$$H_4^{(0)} = \frac{3A_0\hbar^2}{16NV^2} \left(\sum_q \omega_q \right)^2. \quad (6)$$

Оператор $H_4^{(2)}$ в (5) равен

$$H_4^{(2)} = \frac{4A}{\pi} \sum_q \hbar\omega_q B_q^+ B_q, \quad (7)$$

где введена безразмерная константа ангармонизма A

$$A = \frac{3\hbar}{V^{3/2}(8M)^{1/2}} A_0.$$

Таким образом, ангармонизм 4-го порядка, сохраняя общий вид дисперсионной зависимости (3) для фононов, переопределяет, однако, дебаевскую частоту, которая теперь зависит от константы ангармонизма и равна $\Omega_D = \omega_D[1 + (4A/\pi)]$. Оператор h_2 2-го порядка и операторы $h_4^{(3)}$, $h_4^{(4)}$ 4-го порядка по B^+ , B имеют вид

$$h_2 = -\frac{2A}{\pi} \hbar\omega_D \sum_q (f_q^2 B_q B_{-q} + \text{h.c.}), \quad (8)$$

$$h_4^{(3)} = \frac{2}{3} \hbar\omega_D A \frac{1}{N} \sum_{q_1 q_2 q_3} f_{q_1+q_2+q_3} f_{q_1} f_{q_2} f_{q_3} B_{q_1+q_2+q_3}^+ B_{q_1} B_{q_2} B_{q_3} + \text{h.c.},$$

$$h_4^{(4)} = \frac{1}{6} \hbar\omega_D A \frac{1}{N} \sum_{q_1 q_2 q_3} f_{-q_1-q_2-q_3} f_{q_1} f_{q_2} f_{q_3} B_{-q_1-q_2-q_3}^+ B_{q_1} B_{q_2} B_{q_3} + \text{h.c.},$$

$$f_q = \text{sign}(q) \sqrt{|\sin(q/2)|}. \quad (9)$$

Операторы h_2 , $h_4^{(3)}$, $h_4^{(4)}$, определяющие процессы, идущие с изменением числа фононов, смешивают состояния одинаковой четности, т.е. приводят к изменению энергии найденных в гармоническом приближении однофононных состояний вследствие влияния 3-, 5-, 7-фононных состояний и к изменению двухфононных состояний вследствие влияния 4-, 6-, 8-фононных состояний. Мы в дальнейшем не будем учитывать 3-, 4-, 5-фононные состояния, действуя в приближении, аналогичном приближениям Тамма-Данкова, Гайтлера-Лондона, RPA, и поэтому в (5)

пренебрегаем $h_2, h_4^{(3)}, h_4^{(4)}$. Как показывают более детальные расчеты, вносимая при этом погрешность в энергии составляет величину $A^2 \hbar \omega_D$, что при рассматриваемых ниже малых значениях A не дает существенных поправок в энергию акустических бифононов $\simeq 2.5 \hbar \omega_D [1 + (4A/\pi)]$ (при нулевом волновом векторе). К тому же противоположны знаки дополнительных вкладов в энергию АБФ, связанных с составляющими $h_2, h_4^{(3)}$ в (5), и соответственно эти вклады частично компенсируются.

Оператор $H_4^{(4)}$ 4-го порядка по B^+, B имеет вид

$$H_4^{(4)} = \frac{A \hbar \omega_D}{N} \sum_{q_1 q_2 K} f_{q_1} f_{K-q_1} f_{q_2} f_{K-q_2} B_{q_1}^+ B_{K-q_1}^+ B_{q_2} B_{K-q_2}. \quad (10)$$

Отметим, что в случае «контактного» взаимодействия оптических фононов, рассматриваемого в [1-5], в гамильтониане взаимодействия отсутствует зависимость константы взаимодействия от волновых векторов. В данном случае акустических фононов эта зависимость присутствует и имеет мультипликативный характер, как это следует из (9), (10). Используя (3) и стандартный переход от суммирования по q к интегрированию, из (4) после некоторых вычислений находим энергию основного состояния

$$E_0 = \varepsilon_0 + H_4^{(0)} = N \frac{\hbar \omega_D}{\pi} \left(1 + \frac{2A}{\pi} \right). \quad (11)$$

Таким образом, используемый в дальнейшем гамильтониан кристалла имеет следующий вид:

$$H = E_0 + \left(1 + \frac{4A}{\pi} \right) \sum_q \hbar \omega_q B_q^+ B_q + \frac{A \hbar \omega_D}{N} \sum_{K q_1 q_2} f_{q_1} f_{K-q_1} f_{q_2} f_{K-q_2} B_{q_1}^+ B_{K-q_1}^+ B_{q_2} B_{K-q_2}. \quad (12)$$

Решение уравнения Шредингера

$$H|2\rangle = E|2\rangle$$

для волновой функции связанного состояния $|2\rangle$ с энергией E и волновым вектором K ищется в виде

$$|2\rangle = \sum_q \Psi_q(K) B_q^+ B_{K-q}^+ |0\rangle. \quad (14)$$

Подстановка (14) в (13) после некоторых вычислений приводит к следующему уравнению для функций Ψ и E :

$$(E - E_0) \Psi_q(K) = \left(1 + \frac{4A}{\pi} \right) (\hbar \omega_q + \hbar \omega_{K-q}) \Psi_q(K) + 2A \hbar \omega_D f_q f_{K-q} \frac{1}{N} \sum_{q_1} \Psi_{q_1}(K) f_{q_1} f_{K-q_1}. \quad (15)$$

Представим это уравнение в виде, непосредственно определяющем волновую функцию акустического бифона $\Psi_q(K)$

$$\Psi_q(K) = \frac{1}{N} \frac{2A\hbar\omega_q f_q f_{K-q}}{[E - E_0 - (1 + \frac{4A}{\pi})(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{K-q})]} \sum_q \Psi_q(K) f_q f_{K-q}. \quad (16)$$

После умножения (16) на $f_q f_{K-q}$ и суммирования по q получаем дисперсионное уравнение для $E = E(K, A)$

$$1 = \frac{2A}{N} \sum_q \frac{f_q^2 f_{K-q}^2}{E - E_0 - (1 + \frac{4A}{\pi})(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{K-q})}. \quad (17)$$

Подстановка (3), (9) в (17) с последующим переходом от суммирования по q к интегрированию приводит после некоторых вычислений к дисперсионному уравнению для энергии АБФ

$$\frac{1}{2A} = [\xi(K, \varepsilon) + \xi(2\pi - K, \varepsilon)], \quad (18a)$$

$$\xi(K, \varepsilon) = \frac{1}{\pi} \left[\frac{\varepsilon^2 - \sin^2(K/2)}{\sin^2(K/4) \sqrt{\varepsilon^2 - 4 \sin^2(K/4)}} \times \right. \\ \left. \times \arctg \left(\sqrt{\frac{\varepsilon + 2 \sin(K/4)}{\varepsilon - 2 \sin(K/4)}} \operatorname{tg} \frac{K}{8} \right) - \frac{\varepsilon K}{8 \sin^2(K/4)} - 1 \right]. \quad (18b)$$

$$\varepsilon = \varepsilon(E, A) = \frac{E - E_0}{[1 + (4A/\pi)]\hbar\omega_D}. \quad (18c)$$

Решение $E = E(K, A)$ уравнения (18) для фиксированного K легко получить с помощью следующей рекурсивной процедуры. Полагая ε фиксированным, после подстановки этого ε в (18b) находим ξ и затем после подстановки этих ξ в (18a) находим величину A из левой части (18a). Подставляя найденное значение A и фиксированное ранее значение ε в соотношение (18c), находим значение энергии E . Таким образом получаем A и $E = E(K, A)$, удовлетворяющие дисперсионному уравнению (18). Зависимость энергии АБФ $E(K, A)$ от константы ангармонизма A при фиксированных волновых векторах $K = 0, 1, 2, 2.5, \pi$ представлена на рис. 1 кривыми 1, 2, 3, 4, 5 соответственно.

Штриховые линии, касательные к кривым 1-5 на рис. 1, при $A = 0$ представляют собой верхние границы зон диссоциированных двухфононных состояний $E_d(K, q, A) = [1 + (4A/\pi)](\hbar\omega_q + \hbar\omega_{K-q})$. Таким образом, из этого рисунка видно, что от высокочастотной границы зоны двухфононных диссоциированных состояний отщепляются термы АБФ. Отметим, что низкочастотная граница спектра АБФ находится вблизи границы зоны несвязанных двухфононных колебаний $E_d(K) = 2 \cos(K/4)$ при $K = \pi$, т.е. при $E \simeq 2^{1/2} \hbar\omega_D$. Именно при этой энергии происходит бифуркационное отщепление терма квазисолитонов в высокочастотную область в рамках классической теории [12]. Из

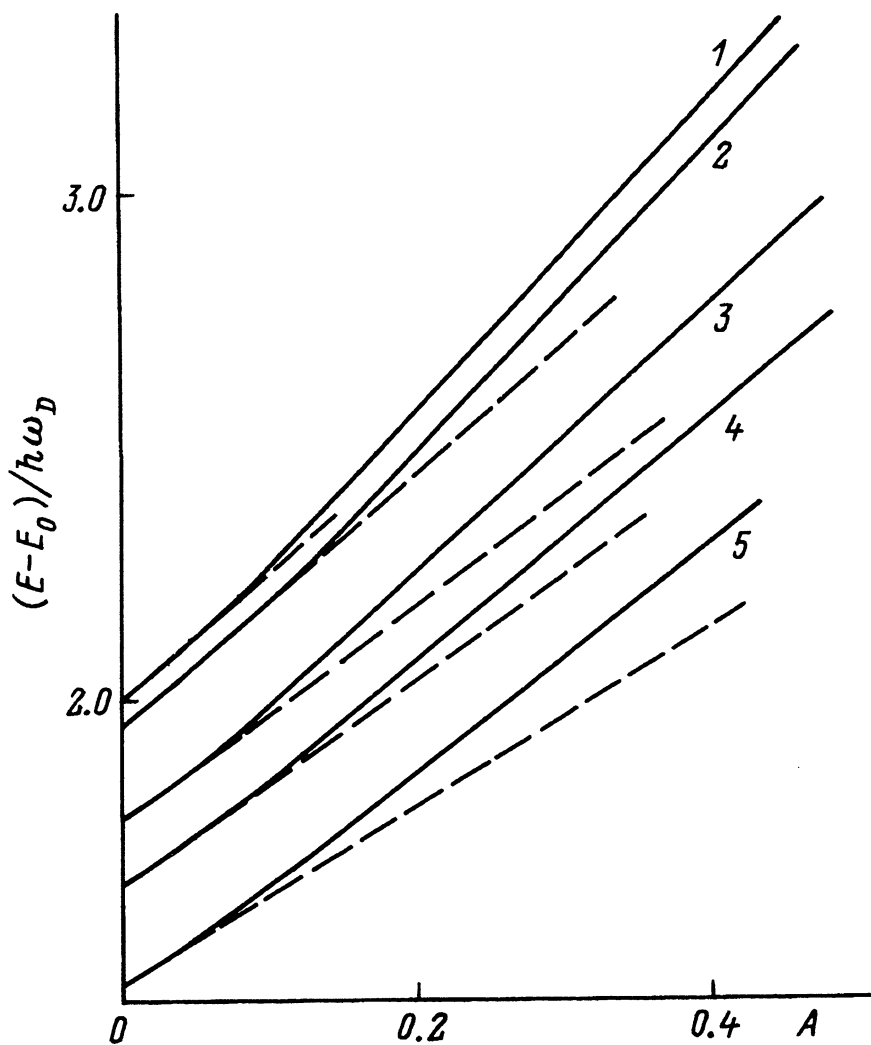


Рис. 1. Зависимость энергии АБФ от константы ангармонизма при различных значениях волнового вектора K .

анализа уравнений (18) также следует, что при предельно сильном ангармонизме зависимость энергии бифонаона от A асимптотически приближается к линейной зависимости следующего вида:

$$E_a(K, A) = E_0 + \frac{4}{\pi} \varepsilon_0(K) A \hbar \omega_D. \quad (19)$$

При этом коэффициент $\varepsilon_0(K)$ является решением уравнения для ξ

$$\xi(K, \varepsilon_0) + \xi(2\pi - K, \varepsilon_0) = 0, \quad \varepsilon_0(K=0) = 2.5 > \varepsilon_0 > \varepsilon_0(K=\pi) = 1.8. \quad (20)$$

Отметим, что, например, при $A \simeq 0.4$ отщепление терма АБФ от зоны диссоциированных состояний на рис. 1 составляет величину

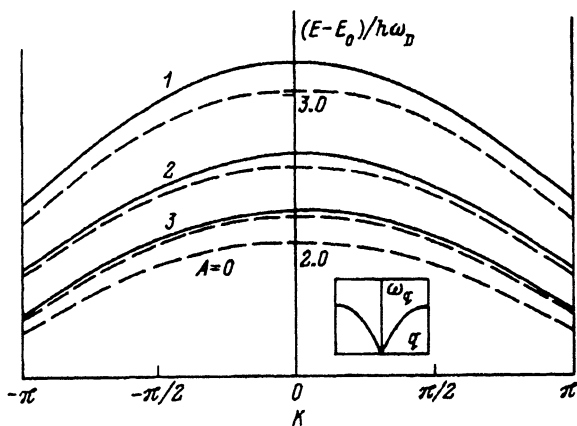


Рис. 2. Дисперсионные зависимости энергии АБФ от волнового вектора при различных значениях константы ангармонизма A .

≈ 0.8 meV, что согласуется с оценкой этой величины из приведенной выше формулы для энергии $E_{\text{sol}}(L)$ солитона из L фононов, полученной с использованием адиабатического инварианта.

Волновая функция Ψ бифонаона в волновом представлении находится при найденной E из уравнения (16). Интересен вид волновой функции АБФ в координатном представлении. Для определения соответствующей координатной зависимости необходимо, как и для квантового гармонического осциллятора, найти в координатном представлении волновую функцию основного состояния в виде суперпозиции полиномов Эрмита как решение соответствующего дифференциального уравнения, следующего из условия $B|0\rangle = 0$ после инвертирования (2) от операторов B^+ , B к операторам x , $P = -i\hbar(d/dx)$. Предполагая проведение этих расчетов в дальнейшем, заметим, однако, что вид аналитической зависимости волновой функции (16) в волновом представлении позволяет сделать вывод, что в координатном представлении волновая функция Ψ_{nm} будет иметь те же основные особенности координатной зависимости, что и исследованные ранее оптические бифононы [1,2], т.е. $\Psi_{nm} \approx \exp\{i[K(n+m)/2] - k|n-m|\}$, где $k > 0$ — соответствующий параметр пространственного затухания.

Использование набора кривых типа приведенных на рис. 1 для различных K позволяет определить дисперсионную зависимость энергии бифонаона от волнового вектора $E = E(K, A)$ при фиксированной константе ангармонизма A . На рис. 2 представлены дисперсионные зависимости $E(K, A)$ 1, 2, 3 при $A = 0.4, 0.2, 0.07$ соответственно (сплошные линии). Штриховые линии представляют собой высокочастотные границы зон несвязанных двухфононных состояний. Видно, что дисперсионная кривая АБФ существенно отличается от дисперсионной кривой оптического фонона (3), представленной схематически на вставке. Она имеет максимум, а не минимум в центре зоны Бриллюэна, квадратичную, а не линейную зависимость при $K = 0$, отрицательную эффективную массу (см. [9]), линейную, а не квадратичную зависимость на границе зоны Бриллюэна $K = \pi$. Представляет интерес также зависимость ширины зоны АБФ от константы ангармонизма A . Известно, что в случае оптических бифононов ширина бифононной зоны при сильном ангармонизме может быть меньше, чем ширина зоны оптических фононов, и это обстоятельство определяет возможность суще-

ствования бифононов, локализованных на дефектах в условиях, когда локальных фононов не существует [1,2]. В случае АБФ непосредственно из рис. 1 можно получить ширину бифононной зоны как разность $\Delta(A) = E(K = 0, A) - E(K = \pi, A)$. Видно, что ширина зоны АБФ возрастает с увеличением константы ангармонизма A , превышая разность границ зон диссоциированных состояний $E_d(K = 0) - E_d(K = \pi)$. Эта зависимость ширины зоны АБФ от A может быть также использована при анализе спектров АБФ в кристаллах с дефектами.

В заключение отметим, что при обработке экспериментальных данных обычно отрезаются малоинтенсивные многофононные крылья соответствующих спектров с беспорядочной на первый взгляд тонкой структурой. Возможно, найденные выше бифононные колебательные состояния маскируются в этой структуре, и они могут быть обнаружены при более детальном анализе.

Авторы считают своим долгом выразить искреннюю благодарность В.М. Аграновичу и участникам его семинара за многочисленные полезные советы.

Список литературы

- [1] Agranovich V.M. // Spectroscopy and Excitation Dynamics of Condensed Molecular Systems Ed. V.M. Agranovich and R.M. Hochstrasser. North-Holland, Amsterdam, 1983. P. 83.
- [2] Agranovich V.M., Dubovsky O.A. // Optical Properties of Mixed Crystals. North-Holland, Amsterdam, 1988. P. 297-398.
- [3] Kolesnikov A.I., Prager M., Tomkinson J., Bashkin I.O., Malyshev V.Yu., Ponyatovskii E.G. // J. Phys.: Condens. Matter. 1991. V. 3. N 5. P. 5927-5936.
- [4] Дубовский А.В., Орлов А.В. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 12. С. 3734-3746.
- [5] Agranovich V.M., Dubovsky O.A. // Chem. Phys. Lett. 1993. V. 210. N 2. P. 458-462.
- [6] Agranovich V.M., Dubovsky O.A., Orlov A.V. // Sol. St. Commun. 1989. V. 72. N 5. P. 491-496.
- [7] Дубовский О.А., Орлов А.В. // ФТТ. 1991. Т. 32. № 8. С. 2407-2413.
- [8] Agranovich V.M., Dubovsky O.A., Kamchatnov A.M. // Phys. Lett. 1994 (in press).
- [9] Шедрина Н.В., Шедрин М.И. // ФТТ. 1993. Т. 35. № 10. С. 2789-2793.
- [10] Sievers A.J., Takeno S. // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 61. N 8. P. 970-974.
- [11] Page J.B. // Phys. Rev. 1990. V. B41. N 11. P. 7835-7838.
- [12] Ковалев А.С., Усатенко О.В., Чубыкало О.А. // ФТТ. 1993. Т. 35. № 3. С. 693-702.
- [13] Ikeda S., Watanabe N. // KEK Preprint. 1986. N 66. 30 p.

Физико-энергетический институт
Обнинск
Калужская область

Поступило в Редакцию
18 апреля 1994 г.