

УДК 539.2
© 1990

О ХАРАКТЕРЕ ФОНОННЫХ СПЕКТРОВ КРИСТАЛЛОВ С НИЗКОЧАСТОТНЫМИ ПРИМЕСНЫМИ СОСТОЯНИЯМИ

М. А. Иванов, Ю. В. Скрипник

Рассмотрена обусловленная примесями перестройка фононного спектра кристалла в случае, когда размерность кристалла меньше, чем показатель степени в разложении квадрата частоты по волновому вектору. Показано, что такая перестройка может быть двух типов — нормального и аномального, — и найдены параметры, характеризующие оба этих типа перестройки.

В ряде работ [1-3] рассматривалась перестройка спектров элементарных возбуждений кристаллов с повышением концентрации примесных состояний большого радиуса. Показано также [4, 5], что существенные особенности в характере перестройки фононного спектра появляются в случае изгибных и неизгибных колебаний цепочечного кристалла. При этом оказывается, что имеются два основных типа перестройки: нормальная, когда присутствует хорошо определенный примесный уровень, и аномальная, когда такой уровень отсутствует вследствие большого уширения. В настоящей работе будут исследованы общие закономерности перестройки фононных спектров в маломерных системах, а именно таких, где размерность пространства меньше показателя степени в главном члене разложения квадрата частоты по волновому вектору. Собственно говоря, такие системы являются неустойчивыми. Предполагается, однако, что в области достаточно малых частот (которые здесь не рассматриваются) закон дисперсии является линейным в трех измерениях, т. е. имеет тот же вид, как и для обычного кристалла, и система остается устойчивой.

Исследование характера возникающего спектра ведется, как и в [1-3], с использованием перенормированного разложения функции Грина в ряд по комплексам взаимодействующих примесных центров. Анализ сходимости указанных рядов позволяет разделить состояния на слабозатухающие (фононоподобные) и сильно затухающие, которые всегда являются локализованными, причем полученные критерии разделения находятся в соответствии с критерием Иоффе—Регеля—Мотта [6, 7]. Показано, что для всех рассматриваемых систем сохраняется разделение типов перестройки на нормальную и аномальную. Найдены характерные концентрации, предельные значения волновых векторов, ширины областей расходимости и другие параметры, описывающие фононный спектр сильно возмущенной системы.

1. Перенормированное представление функции Грина и условие его сходимости

Пусть в кристалле размерности d присутствуют примеси внедрения. Считая, что можно независимо рассматривать колебания различной поляризации (как в цепочечных или слоистых кристаллах [4, 8]), запишем перенормированное представление для усредненной одночастичной функции Грина при малой концентрации примесей в следующем виде:

$$G(\mathbf{k}) = 1/[\omega^2 - \omega^2(\mathbf{k}) - \Sigma(\mathbf{k})], \quad (1)$$

$$\Sigma(\mathbf{k}) = c\tau\varphi(\mathbf{k}) \left\{ 1 - cA_{00} - cA_{00}^2 + c \sum_{i \neq 0} \frac{A_{0i}^3 e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_{0i}} + A_{0i}^4}{1 - A_{0i}^2} + \dots \right\}, \quad (2)$$

$$\tau = \frac{v}{1 - v\tilde{G}_{00}}, \quad A_{0i} = \tau\tilde{G}_{0i}, \quad \tilde{G}_{0i} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\varphi(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_{0i}}}{\omega^2 - \omega^2(\mathbf{k}) - \Sigma(\mathbf{k})}, \quad (3)$$

$$v = \frac{\gamma\omega^2}{\omega^2 - \gamma\delta}, \quad \delta = \frac{m}{M}, \quad \gamma = z \frac{\Phi}{m}, \quad \varphi(\mathbf{k}) = \left| \frac{1}{z} \sum_{\Delta} e^{i\mathbf{k}\Delta} \right|^2, \quad \varphi(\mathbf{k} = 0) = 1, \quad (4)$$

где $\omega(\mathbf{k})$ — закон дисперсии исходного кристалла; $\Sigma(\mathbf{k})$ — оператор собственной энергии; c — концентрация примесей; τ — одноузловая t -матрица, в которой оставлена лишь полносимметричная часть возмущения; m, M — массы атомов матрицы и примеси ($\delta < 1$ отвечает тяжелым примесным атомам); Φ — параметр силового взаимодействия примеси с матрицей, отвечающий рассматриваемой поляризации; сумма по l ведется по всем узлам решетки (предполагается для простоты, что в элементарной ячейке имеется лишь одно положение, которое может занимать примесь); векторы Δ связывают примесь с z ближайшими соседями в матрице. Первое слагаемое в фигурных скобках в (2) описывает вклад изолированных примесных центров, остальные — вклад пар примесей, находящихся на всевозможных расстояниях. Вклады, вносимые группами из трех и более примесных центров, опущены.

Подобную форму возмущение, вносимое дефектами, имеет и в том случае, когда примеси обладают собственной (например, ротационной) частотой, величина которой близка к дну акустической зоны. Тогда в (4) $\gamma\delta$ есть квадрат собственной частоты примеси, а γ определяет связь собственных колебаний примеси с колебаниями затравочного кристалла, $\varphi(\mathbf{k}) \equiv 1$. Если же в кристалле имеются изотопические примеси замещения, то

$$v = -\varepsilon\omega^2, \quad \varepsilon = (M - m)/m, \quad \varphi(\mathbf{k}) \equiv 1. \quad (5)$$

Слабая зависимость структурного фактора $\varphi(\mathbf{k})$ от волнового вектора качественно не сказывается на характере полученных ниже результатов, поэтому будем считать, что $\varphi(\mathbf{k}) \equiv 1$.

В области сходимости ряда (2) обычно достаточно ограничиться только первым слагаемым в разложении собственной энергии по группам примесных центров, которое при $\varphi(\mathbf{k}) \equiv 1$ не зависит от волнового вектора, поэтому связь искомой функции Грина с затравочной имеет вид

$$\tilde{G}_{0i} \approx g_{0i}(\omega^2 - c\tau), \quad g_{0i} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_{0i}}}{\omega^2 - \omega^2(\mathbf{k})}. \quad (6)$$

В области низких частот закон дисперсии исходного кристалла представим в следующем виде:

$$\omega^2(\mathbf{k}) = \omega_0^2 (ka/2)^m, \quad k = |\mathbf{k}|, \quad \omega^2(\mathbf{k}) \ll \omega_0^2, \quad m < d, \quad (7)$$

где a — постоянная решетки (например, для обычных колебаний $m=2$, для изгибных $m=4$). В результате

$$g_0(\omega^2) = g_{00} = \frac{1}{\beta\omega_0^2} \left\{ \text{ctg}(\alpha\pi) + i \right\} \left(\frac{\omega_0^2}{\omega^2} \right)^{1-\alpha} + \frac{1}{\pi(1-\alpha)}, \quad (8)$$

$$\beta = m\Gamma(d/2) \pi^{d/2} / 2\pi, \quad \alpha = d/m, \quad 0 < \alpha \leq 1, \quad \omega^2 \ll \omega_0^2.$$

В дальнейшем все частоты будем считать безразмерными, нормированными на $\beta^{1/\alpha} \omega_0$, так что $\omega^2 \ll 1$.

Если параметр α не слишком близок к единице, то мнимая часть $g_0(\omega^2)$ оказывается больше или порядка действительной. Учитывая также, что g_{0i} падает с ростом вектора \mathbf{r}_{0i} , можно убедиться, что в областях сходи-

мости ряда (2) величины $|A_{0l}| < 1$ при любом l . Следовательно, при оценке вклада пар примесных центров в (2) можно опустить A_{0l}^2 в знаменателе дроби и подобным же образом упростить знаменатели в слагаемых, соответствующих кластерам из большего числа примесных центров. Сравнивая по порядку величины вклады групп примесей, получим следующий критерий сходимости ряда для собственно-энергетической части Σ в (2):

$$c \left| \sum_l A_{0l}^2 \right| \ll 1. \quad (9)$$

Независимо от того, являются ли состояния локализованными или делокализованными, существуют частотные интервалы, на которых решения в виде плоских волн слабо затухают. В областях сходимости перенормированного представления (1)–(4) для таких состояний, которые в дальнейшем будем называть фононоподобными, достаточно ограничиться первым слагаемым ряда (2). В результате закон дисперсии фононоподобных состояний определяется решением следующего уравнения:

$$\bar{\omega}^2 = \omega^2(\mathbf{k}), \quad \bar{\omega}^2 = \omega^2 - \text{Re}(c\tau), \quad \frac{\pi}{\gamma} \quad (10)$$

а условие того, что затухание мало по сравнению с длиной волны, т. е. критерий Иоффе—Регеля—Мотта, принимает вид

$$\bar{\omega}^2 \gg \text{Im}(c\tau), \quad (11)$$

или, используя вид одноузельной t -матрицы,

$$\bar{\omega}^2 \gg cv^2 \text{Im} g_0(\bar{\omega}^2) / |1 - v g_0(\bar{\omega}^2)|^2. \quad (12)$$

Покажем, что границы областей фононоподобных состояний совпадают с границами областей расходимости. Для этого перепишем условие (9) следующим образом:

$$\begin{aligned} c \left| \sum_l A_{0l}^2 \right| &\leq c |\tau|^2 \left| \left(-\frac{\partial}{\partial(\bar{\omega}^2)} \right) g_0(\bar{\omega}^2) \right| = \\ &= \frac{cv^2}{|1 - v g_0(\bar{\omega}^2)|^2} \left| \left(-\frac{\partial}{\partial(\bar{\omega}^2)} \right) g_0(\bar{\omega}^2) \right| \ll 1. \end{aligned} \quad (13)$$

Поскольку, как следует из (8), имеет место оценка

$$\left| -\frac{\partial}{\partial(\bar{\omega}^2)} g_0(\bar{\omega}^2) \right| \sim \frac{1}{\bar{\omega}^2} \text{Im} g_0(\bar{\omega}^2), \quad (14)$$

то критерии (12), (13) действительно совпадают.

2. Нормальная перестройка низкочастотного спектра

Рассмотрим вначале перестройку спектра в случае, когда имеет место хорошо определенный резонансный уровень в низкочастотной области спектра ($\omega^2 \ll 1$). Из вида одноузельной t -матрицы для примесей внедрения (3)

$$\tau = \gamma \omega^2 / [\omega^2 - \gamma \delta - \gamma \omega^2 g_0(\bar{\omega}^2)] \quad (15)$$

и выражения для $g_0(\omega^2)$ следует, что условие существования такого уровня (малость его затухания Γ_r по сравнению с квадратом частоты ω^2) может выполняться лишь для слабосвязанных примесей $\gamma \ll 1$. Параметры резонансного уровня оказываются следующими:

$$\omega_r^2 = \gamma \delta + \gamma \omega_r^2 \text{Re} g_0(\omega_r^2) \approx \gamma \delta, \quad \Gamma_r = \gamma \omega_r^2 \text{Im} g_0(\omega_r^2), \quad (16)$$

а условие $\Gamma_r \ll \omega_r^2$ приводит к следующему соотношению между величинами δ и γ :

$$\delta > c_{\text{пр}}, \quad c_{\text{пр}} = \gamma^{\alpha/(1-\alpha)}. \quad (17)$$

Ряд (2) в этом случае оказывается сходящимся во всей области частот $\omega^2 < 1$, если концентрация примесей удовлетворяет условию $\Delta = c\gamma \leq \Gamma_r$ или $c \leq c_n = (\gamma\delta)^\alpha = \omega_r^{2\alpha}$. При этом $\omega^2 > |\operatorname{Re}(c\tau)|$, т. е. сдвиг частот мал по абсолютной величине, но в той области концентраций, когда $\Gamma_r > \Delta > \Gamma_r$ (Γ_r/ω_r^2), на дисперсионной кривой вблизи примесного уровня появляется изгиб, аналогичный рассмотренному в [1].

Если же концентрация превышает характерное значение c_n , отвечающее началу перестройки спектра, то вблизи примесного уровня возникает область шириной Δ , где условие (11) не выполняется и состояния перестают быть фононоподобными. В результате область фононоподобных состояний разбивается на две области: ниже ω_r^2 и выше ω_{np}^2 , где $\omega_{np}^2 = \omega_r^2 + \Delta$, которые описываются следующими дисперсионными кривыми (см. рисунок):

$$\omega_{\pm}^2(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} [\omega^2(\mathbf{k}) + \omega_{np}^2 \pm \sqrt{(\omega^2(\mathbf{k}) - \omega_{np}^2)^2 + 4\omega^2(\mathbf{k})\Delta}]. \quad (18)$$

В некоторой окрестности частот ω_r и ω_{np} условие (11) не выполняется и ряд (2) оказывается расходящимся. Вблизи ω_r ширина этой области (концентрационное уширение примесного уровня) имеет порядок

$$\Delta_r \sim \Delta (c_n/c)^{1/2} \ll \Delta, \quad (19)$$

а вблизи ω_{np}

$$\Delta_{np} \sim \Delta (c_n/c)^{1/(2-\alpha)} (1 + c/b)^{\alpha/(2-\alpha)}. \quad (20)$$

Предельное значение волнового вектора для нижней и верхней ветви соответственно

$$k_{\max} \sim \frac{2}{a} (\beta c)^{1/d}, \quad k_{\min} \sim \frac{2}{a} \beta^{1/d} \left(\frac{\omega_r^4}{c}\right)^{1/(2m-d)} \left(1 + \frac{c}{b}\right)^{2/(2m-d)}. \quad (21)$$

Рассмотренная в настоящем разделе перестройка спектра низкочастотных возбуждений в окрестности примесного уровня оказывается во многом похожей на перестройку спектра трехмерного кристалла с линейным законом дисперсии [1, 2], причем выражения (19)–(21) переходят в соответствующие выражения, полученные в этих работах, если положить $d=3$, $m=2$. Поэтому данный тип перестройки может считаться нормальным. Следует, однако, отметить, что в рассматриваемом здесь случае ($d < m$) концентрационное уширение Δ_r падает с повышением концентрации, а Δ_{np} всегда растет. Такое отличие обусловлено падением плотности состояний исходного кристалла (см. (8)) с ростом частоты. Внутри же запрещенной области Δ , где $\tilde{\omega}^2 < 0$, состояния являются локализованными, но в отличие от [1, 2] связаны с флуктуационными скоплениями большого числа атомов одного сорта (так что результирующая плотность состояний экспоненциально мала [9, 10]), а не с парами, тройками и т. д. примесных атомов, что обусловлено тем, что в данном случае в областях сходимости (2) всегда $|A_{0i}| < 1$ и знаменатели типа $1 - A_{0i}^2$ в (2) не обращаются в нуль.

3. Аномальная перестройка спектра

Рассмотрим также перестройку спектра в случае, когда примесь не приводит к появлению хорошо определенного резонансного уровня. Такая ситуация возникает, например, при наличии тяжелых изотопических примесей замещения ($\epsilon > 0$), поскольку, как уже отмечалось, $\operatorname{Im} g_0(\omega^2) \geq \operatorname{Re} g_0(\omega^2)$. Для таких примесей критерий (12) имеет вид

$$c\epsilon \frac{\omega^2}{\tilde{\omega}^2} \frac{\epsilon\omega^2 \operatorname{Im} g_0(\tilde{\omega}^2)}{|1 + \epsilon\omega^2 g_0(\tilde{\omega}^2)|^2} \ll 1, \quad (22)$$

Нетрудно видеть, что в низкочастотной области спектра расходимости не возникает и все состояния являются фононоподобными, пока $c\epsilon \ll 1$ (при этом $\tilde{\omega}^2 \approx \omega^2$).

Если же $\epsilon \gg 1$ (что возможно, когда примеси достаточно тяжелые), то, поскольку $\omega \epsilon^2 \text{Im } g_0(\bar{\omega}^2) \rightarrow 0$ при $\omega \rightarrow 0$, критерий (11) по-прежнему выполняется в низкочастотной области спектра, где он принимает вид

$$1 > \epsilon \omega^2 \text{Im } g_0(\bar{\omega}^2). \quad (23)$$

При этом $\text{Re}(c\tau) \gg \omega^2$, $\bar{\omega}^2 \approx \epsilon \omega^2$, так что закон дисперсии оказывается сильно перенормированным по сравнению с исходным $\omega^2 \approx \omega^2(\mathbf{k})/(\epsilon \epsilon)$. Условие (23) ограничивает сверху нижнюю ветвь фононоподобных состояний, которая существует в области частот $0 < \omega^2 \leq \omega_{b1}^2$, где

$$\omega_{b1}^2 = (1/\epsilon) c^{(1-\alpha)/\alpha}. \quad (24)$$

С ростом частоты величина $|\epsilon \omega^2 g_0(\bar{\omega}^2)|$ возрастает и критерий (23) перестает выполняться. В результате ряд (2) становится расходящимся, а состояния уже нельзя описывать плоскими волнами. Однако с дальнейшим ростом частоты, когда начинает выполняться условие $|\epsilon \omega^2 g_0(\bar{\omega}^2)| > \epsilon \epsilon$, критерий (22) снова выполняется и состояния опять являются фононоподобными. Таким образом, появляется верхняя ветвь фононоподобных состояний, ограниченная снизу частотой

$$\omega_{b2}^2 = c^{1/\alpha} = \omega_{b1}^2(\epsilon \epsilon) \gg \omega_{b1}^2, \quad (25)$$

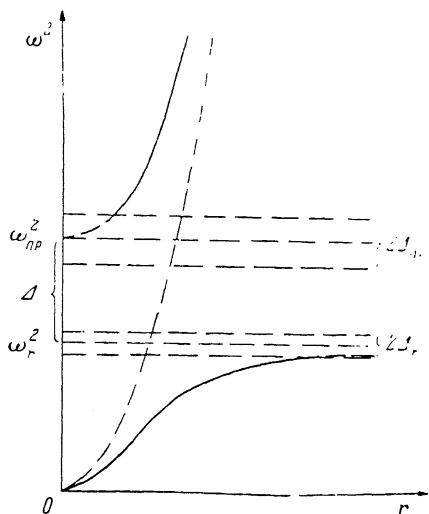
для которой $\bar{\omega}^2 \approx \omega^2$ и закон дисперсии оказывается слабо возмущенным по сравнению с исходным $\omega^2 \approx \omega^2(\mathbf{k})$. Предельные значения волновых векторов k_{\max} и k_{\min} , соответствующие частотам ω_{b1} и ω_{b2} , оказываются одинаковыми по порядку величины $k_{\min} \sim k_{\max} \sim (2/a)(\beta c)^{1/d}$.

Описанная в данном разделе перестройка может быть названа аномальной. Для примесей внедрения такая ситуация может реализоваться, когда выполняется условие, противоположное (17), т. е. $\delta < c_{\text{кр}}$, и концентрация примесей удовлетворяет условию $\delta \ll c < \min\{1, c_{\text{кр}}\}$ (при этом, как и раньше, примеси должны быть достаточно тяжелыми $\delta \ll 1$). Соответствующие параметры перестройки определяются выражениями (24), (25), если заменить величину ϵ на $1/\delta$. При $c \sim c_{\text{кр}}$ значение ω_{b1}^2 становится порядка $\gamma \delta$, а ω_{b2}^2 — порядка γc . В результате если $\gamma \delta < 1$, то при концентрациях $c_{\text{кр}} \ll c \ll 1$ перестройка спектра принимает тот же вид, что и описанный в разделе 2, т. е. имеет нормальный характер.

Полученные оценки параметров перестройки оказываются качественно справедливыми и в других случаях: при $d=m$ (в частности, для двумерных кристаллов с линейным законом дисперсии), если $(1/\pi) \ln(\bar{\omega}^2)$ оказывается порядка единицы, а также для электронного, магннного и других типов спектров, если примесный уровень попадает в разрешенную область невозмущенного спектра.

Список литературы

- [1] Иванов М. А. // ФТТ. 1970. Т. 12. № 7. С. 1985—1905.
- [2] Иванов М. А., Погорелов Ю. Г. // ФНТ. 1979. Т. 5. № 8. С. 910—923.
- [3] Ivanov M. A., Loctev V. M., Pogorelov Yu. G. // Phys. Rep. 1987. V. 153. N 485. P. 209—330.
- [4] Берча Д. М., Ботвинко М. Н., Германская Л. Ю., Иванов М. А. // ФНТ. 1986. Т. 12. № 3. С. 287—296.



Закон дисперсии делокализованных состояний при нормальной перестройке спектра.

- [5] Иванов М. А., Скрипник Ю. В. // Препринт ИМФ АН УССР. Киев, 1990. № 9-90. 30 с.
- [6] Мотт Н., Дэвис Э. Электронные процессы в некристаллических веществах. М., 1982. 664 с.
- [7] Mott N. F. // Adv. Phys. 1967. V. 16. N 61. P. 49—144.
- [8] Косевич А. М. Физическая механика реальных кристаллов. Киев, 1981. 327 с.
- [9] Лифшиц И. М., Гредескул С. А., Пастур Л. А. Введение в теорию неупорядоченных систем. М., 1982. 360 с.
- [10] Ботвинко М. Н., Иванов М. А. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 12. С. 3558—3566.

Институт металлофизики АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
15 марта 1990 г.