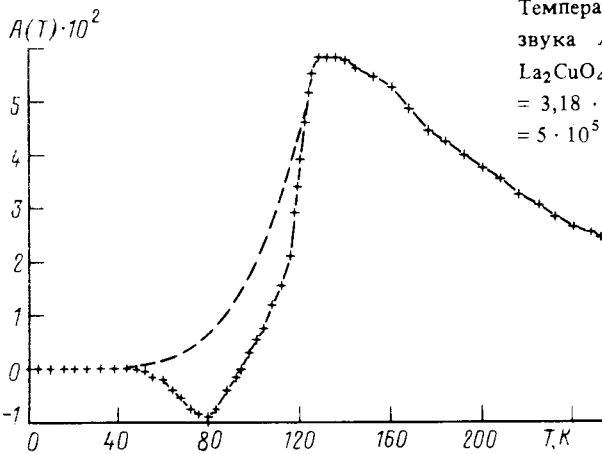


О НОВЫХ ВОЗМОЖНОСТЯХ ИЗУЧЕНИЯ ФОНОННОГО СПЕКТРА КРИСТАЛЛОВ СО СТРУКТУРОЙ ТИПА ПЕРОВСКИТА

В.И.Макаров, Г.М.Верешков, Ю.М.Гуфан, В.С.Клочко

Показано, что, изучив анизотропию температурных зависимостей скорости звука $c_{\mathbf{n}}$ в базисной плоскости кристаллов с тетрагональной симметрией, можно однозначно определить энергию и тип оптической фононной моды (мягкой моды), взаимодействующей со звуком.

В настоящем сообщении на примере изучения анизотропии температурных зависимостей скорости продольного звука $c_{\mathbf{n}}(T)$ в монокристалле La_2CuO_4 ¹ продемонстрированы новые спектроскопические возможности изучения особенностей фононного спектра кристаллов с мягкой модой акустическим методом (\mathbf{n} — направление распространения звука в кристалле). В полученных результатах¹ неожиданным является существенно различный ход зависимостей $c_{\mathbf{n}}(T)$ в базисной плоскости кристалла вдоль направлений $\mathbf{n} = [100]$ и $\mathbf{n} = [110]$. Отметим, что экспериментальные данные¹ противоречат традиционным представлениям, в которых рассматривалось взаимодействие звука с фононами для кристаллов со структурой типа перовскита².



Покажем, что обнаруженная анизотропия $c_{\mathbf{n}}(T)$ (рисунок) в базисной плоскости обусловлена взаимодействием звуковой волны с определенным типом фононной моды. В рамках теории распространения звука в кристаллах, основы которой сформулированы в³, мы вычислим фононные вклады во все компоненты тензоров упругости λ_{ikem} и вязкости η_{ikem} кристалла La_2CuO_4 , находящегося в тетрагональной фазе. Учет малой величины орторомбичности кристалла La_2CuO_4 не существенен для физических причин, вызывающих анизотропию акустических свойств в базисной плоскости. Эти тензоры получены в виде функционалов от параметров энергетических спектров фононных мод, что позволило из сопоставления теории с экспериментом установить тип и свойства фононной моды, ответственной на наблюдаемые эффекты.

Количественный анализ показал, что вклад акустических мод масштаба $(c_{110} - c_{100})/c_{100}$ и составляет не более 10% от измеренных значений (рисунок). Поэтому обсуждаемые эффекты анизотропии следует связывать со взаимодействиями звуковых волн с оптическими фононами. Оптические моды кристалла La_2CuO_4 образуют 6 одномерных ($2A_{1g} + 3_{2u} + B_{2u}$) и 6 двукратно вырожденных (при $K = 0$) E ($2E_g + 4E_u$) представлений группы D_{2h} . Энергетичес-

кие спектры фононов при малых $K \neq 0$:

$$\text{одномерные: } \omega^2(k) = \omega_0^2 + c\gamma_{ik}k_i k_k$$

$$E: \omega^2(k, \mu) = \omega_{0E}^2 + c_E^2 \gamma_{ik}^E(\mathbf{n}, \mu) k_i k_k; \mathbf{n} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|; \mu = \pm 1$$

содержат тензоры γ_{ik} , γ_{ik}^E , задающие геометрические свойства изонергетических поверхностей $\gamma_{ik} k_i k_k = \text{const}$. Первые из них изотропны в базисной плоскости из-за тетрагональной симметрии кристалла, поэтому взаимодействия звуковых волн с $(2A_{1g} + 3A_{2g} + B_{2u})$ оптическими фононами не вносят вклад в фононную часть параметра анизотропии модулей упругости $\Delta\lambda = \lambda_{1111} - 2\lambda_{1212} - \lambda_{1122}$.

Для интерпретации экспериментальных данных возникла необходимость классифицировать E -моды, имеющих два взаимноперпендикулярных вектора поляризации, лежащих в базисной плоскости, по типам снятия вырождения, т.е. по структуре анизотропных тензоров $\gamma_{ik}^E(\mathbf{n}, \mu)$. Эту классификацию удобно проводить в терминах геометрических свойств сечений изонергетических поверхностей в базисной плоскости. Сечения представляют собой фигуры с симметриями либо C_{2v} ($E(C_{2v})$ -моды), либо D_{2h} ($E(D_{2h})$ -моды). Оси симметрии фигур для разных $\mu = \pm 1$ взаимно перпендикулярны; для $E(C_{2v})$ -мод они направлены по диагоналям основания элементарной ячейки; для $E(D_{2h})$ -мод — по сторонам основания. Исходная симметрия кристалла проявляется в том, что при наложении каждой из двух фигур, образующих неприводимую пару, друг на друга получается фигура с тетрагональной симметрией. Последнее, в частности, обеспечивает тетрагональную симметрию суммарных (по $\mu = \pm 1$) вкладов E -мод в тензоры модулей упругости и вязкости.

Для экспериментально измеряемой величины (рисунок) теория приводит к следующему выражению

$$A(T) = \frac{c_{100}(T) - c_{100}(0)}{c_{100}(0)} - \frac{c_{110}(T) - c_{110}(0)}{c_{110}(0)} = A_1(T) + A_2(T),$$

$$A_1(T) = \frac{c_{110}^2(0) - c_{100}^2(0)}{2\rho c_{110}^2(0) c_{100}^2(0)} [\lambda_{1111}^{(1)}(T) + \lambda_{1111}^{(2)}(T)],$$

$$A_2(T) = \frac{1}{4\rho c_{110}^2(0)} [\lambda_{1111}^{(2)}(T) - 2\lambda_{212}^{(2)}(T) - \lambda_{122}^{(2)}(T)]$$

где ρ — плотность кристалла; $\lambda_{ikem}^{(1)}(T)$ — акустические и оптические фононные вклады, слабо влияющие на анизотропию в плоскости симметрии; $\lambda_{ikem}^{(2)}(T)$ — вклады E -мод, ответственные за эту анизотропию. Первый член в (2) количественно мал по параметру $(c_{110} - c_{100})/c_{110}$, что позволяет из сравнения теории с экспериментом однозначно установить как тип E -моды, ответственной за наблюдаемую макроскопическую анизотропию, так и температурную зависимость параметров ее энергетического спектра. Действительно, преимущественная ориентация волновых векторов $E(C_{2v})$ -мод приводит к дополнительному размягчению кристалла вдоль диагоналей основания элементарной ячейки. Поэтому при $c_{110} \approx c_{100}$ и $T > \hbar\omega_{0E}$ величина анизотропии $A(T) > 0$. В случае же, когда анизотропия возникает в результате взаимодействий звуковых волн с $E(D_{2h})$ -фононами, $A(T) < 0$.

Таким образом, при $c_{110} \approx c_{100}$ знак $A(T)$ является надежным индикатором, указывающим тип волн, порождающих магкую моду. Собственная частота этой моды оценивается по положению на температурной оси участка крутого роста функции $A(T)$.

Эксперимент выделяет $E(C_{2v})$ -моду. При вычислении $A(T)$ сечения ее изонергетических поверхностей в базисной плоскости достаточно аппроксимировать эффективными эллипса-

ми. Большие оси которых ориентированы вдоль диагоналей основания ячейки. В этом случае тензор $\gamma_{ik}(E, \mathbf{p}, \mu)$, фигурирующий в фоновых спектрах (1), имеет простой вид

$$\gamma_{11}(\mu) = \gamma_{22}(\mu) = \sqrt{1 + \sigma^2(T)}; \quad \gamma_{12}(\mu) = \gamma_{21}(\mu) = \mu\sigma(T); \quad \mu = \pm 1, \quad (3)$$

где $\sigma(T)$ — разность полуосей эффективного эллипса. Для вклада E_μ -мод в тензор модулей упругости получается выражение

$$\begin{aligned} \lambda_{ikem}^{(2)} = \sum_{E, \mu} [\gamma_{im}(E, \mu)\gamma_{ke}(E, \mu) + \gamma_{ie}(E, \mu)\gamma_{km}(E, \mu)] \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} & \left[\frac{c_E^2 \gamma_{pq}(E, \mu) k_p k_q}{3\omega_{E\mu}^2} n\left(\frac{\hbar\omega_{E\mu}}{T}\right) + \right. \\ & \left. + \frac{c_E^4 (\gamma_{pq}(E, \mu) k_p k_q)^2}{\omega_{E\mu}^4} \frac{\hbar\omega_{E\mu}}{T} n'\left(\frac{\hbar\omega_{E\mu}}{T}\right) \right], \end{aligned} \quad (4)$$

где $n\left(\frac{\hbar\omega_{E\mu}}{T}\right)$ — распределение Бозе-Эйнштейна; $n'\left(\frac{\hbar\omega_{E\mu}}{T}\right)$ — его производная по пере-

менной $\hbar\omega_{E\mu}/T$. Выражение для $\lambda_{ikem}^{(1)}$ является гораздо более громоздким, в нем, в отличие от $\lambda_{ikem}^{(2)}$, содержатся не только сами параметры спектров (1), но и их производные по температуре и плотности.

Вычислив функцию $A_2(T)$ с учетом (3), (4), получим

$$A_2(T) = \frac{\pi^2}{225} \frac{\sigma^2(T)T^4}{(\hbar c_E)^3 \rho c_{110}^2} B\left(\frac{\hbar\omega_0 E}{T}\right), \quad (5)$$

$$B\left(\frac{\hbar\omega_0 E}{T}\right) = B(x) = \frac{15}{\pi^4} \int_0^\infty \frac{z^6 dz}{(z^2 + x^2)^{3/2} [\exp(z^2 + x^2)^{1/2} - 1]}.$$

В области $T < \hbar\omega_0 E$, $\sigma(T) = \text{const}$

$$B\left(\frac{\hbar\omega_0 E}{T}\right) = \frac{225}{\pi^{7/2} \sqrt{2}} \left(\frac{\hbar\omega_0 E}{T}\right)^{1/2} \exp\left(-\frac{\hbar\omega_0 E}{T}\right). \quad (6)$$

Согласно (5)–(6), область $[0, \hbar\omega_0 E]$ представляет собой участок крутого роста функции $A(T)$. При $T > \hbar\omega_0 E$, $\sigma(T)$ — убывающая функция температуры, обеспечивающая изотропизацию энергетического спектра мягкой моды; $B(x) \rightarrow 1$. Отсюда следует, что собственная частота мягкой моды надежно определяется по положению максимума кривой $A(T)$: $\hbar\omega_0 E \approx \approx 11$ мэВ. Отметим, что существование моды с такой собственной частотой подтверждается независимыми экспериментами^{4, 5}.

Функция $A_2(T)$, рассчитанная по (5) в области $T \leq \hbar\omega_0 E$, показана на рисунке пунктиром. Отличие экспериментальной кривой $A(T)$ от $A_2(T)$ обусловлено функцией $A_1(T)$, определенной в (2). Теоретическое выражение для $A_1(T)$, которое мы здесь не приводим ввиду его громоздкости, позволяет объяснить как знак $A_1(T) < 0$, так и величину этой функции.

Работа финансируется в рамках программы по ВТСП, проект № 680 и № 174. Авторы благодарят Н.В.Заварицкого за обсуждение полученных результатов.

Литература

1. Zavaritsky N.V., Samoilov A.V., Yurgens A.A., et al. Physica C, 1989, 162–164, 562.

2. Баррет Г. Физическая акустика. М.: Мир, 1973, с. 90.
3. Ахиезер А.И. J. Phys. (USSR), 1939, 1, 277.
4. Ахе J.D. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, 59, 1329.
5. Иванов А.С., Митрофанов Н.Л., Румянцев А.Ю. и др. Сверхпроводимость, 1988, 2, 21.

Харьковский физико-технический институт
Академии наук Украинской ССР
Ростовский государственный университет

Поступила в редакцию
15 июня 1990 г.