

ВОССТАНОВЛЕНИЕ ПЛОТНОСТИ СОСТОЯНИЙ ИЗ ОДНОФОННОГО СПЕКТРА СМЕШАННОГО КРИСТАЛЛА

М.В.Белоусов, Е.А.Иванова, Д.Е.Полярев,
С.В.Полярев

Предложен метод определения плотности однофоновых состояний, основанный на изучении формы колебательного спектра изотопосмешанного кристалла. Его корректность экспериментально проверена на примере исследования спектров комбинационного рассеяния света (КРС) кристаллов $\text{Na}^{15}\text{N}_x^{14}\text{N}_{1-x}\text{O}_3$.

Спектры кристаллов, содержащих примеси, а также двухфоновые спектры совершенных кристаллов являются важным источником информации о плотности однофоновых состояний. Их роль особенно велика в случае высокочастотных, внутримолекулярных фононов, исследование которых методом рассеяния нейтронов затруднено. В этом случае для получения количественной информации о дисперсии и плотности состояний обычно используется следующий подход. На первом этапе производится расчет в модели гармонического совершенного кристалла. Затем учитывается возмущение, вызываемое примесью (либо ангармонизмом, если вычисляется двухфоновый спектр). Вычисленный спектр сравнивается с экспериментальным, что служит критерием точности моделей, используемых на обоих этапах расчета. Более эффективный подход был предложен в [1], где на примере вибронных спектров была показана принципиальная возможность восстановления плотности экситонных состояний непосредственно из эксперимента. Эта возможность была успешно использована [2 - 4] для восстановления плотности состояний из двухфоновых спектров. Получение количественной информации о плотности состояний из спектра смешанного кристалла является существенно более трудной задачей. В данной работе впервые показано, что исследование контура однофоновой полосы в смешанных кристаллах в ряде случаев позволяет восстановить плотность состояний.

Однофоновая функция Грина изотопически смешанного кристалла $A_{1-x}B_xC$ в одноместном приближении может быть записана в следующем виде [5]:

$$G_n(\mathbf{k}, \omega, x) = [\bar{\omega} - \omega_{n\mathbf{k}} - x \Delta_n + i\delta - \Sigma(\omega, x)]^{-1}, \quad (1)$$

где $\omega_{n\mathbf{k}}$ - частота фонона с волновым вектором \mathbf{k} в кристалле AC , Δ_n - сдвиг частоты при замене изотопов A на B , δ - ангармоническое затухание, $\Sigma(\omega, x)$ - массовый оператор, мнимая часть которого описывает затухание фонона из-за рассеяния на примесях. В рамках одноместного приближения средней T -матрицы (СТМ) $\Sigma(\omega, x)$ и полная функция Грина $G_n(\omega)$ чистого кристалла AC связаны простым соотношением [5]:

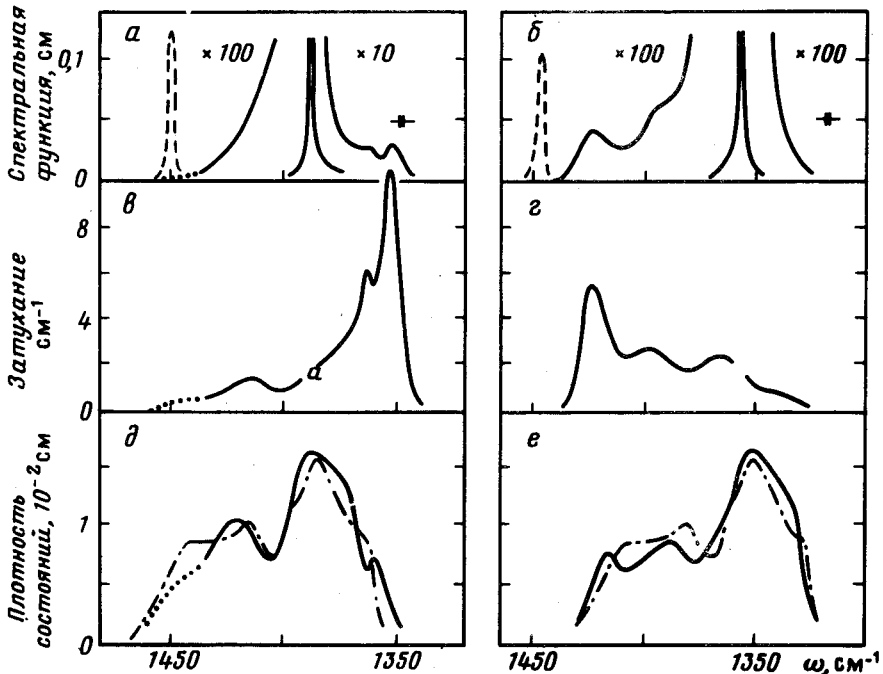
$$\Sigma(\omega, x) = x(1-x)\Delta_n^2 [G_n^{-1}(\omega - x\Delta_n) + (1-2x)\Delta_n]^{-1} \quad (2)$$

Таким образом спектральная функция смешанного кристалла $g_n(\mathbf{k}, \omega, x) = -\pi^{-1} \text{Im} G_n(\mathbf{k}, \omega, x)$ может быть вычислена если известна плотность состояний чистого кристалла $g_n(\omega) = -\pi^{-1} \text{Im} G_n(\omega)$.

Сравнение с результатами численного расчета методом Дина [5], а также с экспериментом [4, 6] показывает, что приближение СТМ правильно описывает форму спектра смешанного кристалла в случае когда преобладает дальнедействующее взаимодействие, концентрационное поведение спектра имеет одномодовый (или близкий к одномодовому) характер, а содержание примеси невелико (до 10%). В этом случае предлагается следующий путь восстановления плотности состояний. Функция Грина $G_n(\mathbf{k} = 0, \omega, x)$ может быть легко вычислена из экспериментальных данных, так как ее мнимая часть с точностью до нормировочного множителя совпадает с измеренным спектром КРС (или спектром ИК проводимости), а вещественная часть связана с мнимой соотношением Крамерса – Кронига. Зная $G_n(\mathbf{k} = 0, \omega, x)$ легко вычислить $\Sigma(\omega, x) = \omega - \omega_n \mathbf{k} = 0 - x \Delta_n + i\delta - G_n^{-1}(\mathbf{k} = 0, \omega, x)$ и спектр затухания (т.е. $\text{Im} \Sigma(\omega, x)$). В свою очередь соотношение (2) можно переписать так, чтобы выразить искомую плотность состояний через $\Sigma(\omega, x)$

$$g_n(\omega - x \Delta_n) = -\pi^{-1} \text{Im} [x(1-x) \Delta_n^2 \Sigma^{-1}(\omega, x) - (1-2x) \Delta_n]^{-1} \quad (3)$$

Для получения достоверных результатов необходимо, чтобы затухание из-за рассеяния на примесях намного превышало ангармоническое затухание, а индуцированный примесью спектр мог быть зарегистрирован во всей области однофоновных состояний.



Для экспериментальной проверки был выбран кристалл нитрата натрия (пространственная симметрия D_{3d}^6 , две формульные единицы в элементарной ячейке) изотопически замещенный по азоту $\text{Na}^{15}\text{N}_x^{14}\text{N}_{1-x}\text{O}_3$ с $x = 0,1$ и $0,9$. Этот выбор обусловлен наличием достоверных данных о плотности состояний колебания ω_3 [2, 3], которое в этом кристалле образует зону шириной 110 см^{-1} . Изотопический сдвиг при замене ^{14}N на ^{15}N равен $\Delta_3 = -32 \text{ см}^{-1}$.

Спектры КРС возбуждались аргоновым лазером ($\lambda_0 = 514,5 \text{ нм}$, мощность до $1,5 \text{ Вт}$) и регистрировались с помощью двойного монохроматора с голографическими решетками Spex - Ramalog 6 при спектральных ширинах щели от $0,25$ до $2,5 \text{ см}^{-1}$.

При $T = 80 \text{ К}$ полуширина линии ω_3 в спектре КРС естественного кристалла NaNO_3 составляет $0,5 \text{ см}^{-1}$. В спектре КРС смешанного кристалла (рис. а, б) линия уширяется до $2,8 \text{ см}^{-1}$ при $x = 0,1$ и до $3,8 \text{ см}^{-1}$ при $x = 0,9$. Возникающий на ее крыльях спектр обладает структурой, генетически связанной с локальным (для $x = 0,1$) или квазилокальным (для $x = 0,9$) колебанием, а также с особенностями плотности состояний. Эти особенности более отчетливо видны в спектре затухания (рис. в, г), вычисленном в соответствии с описанной выше процедурой. На рис. д, е приведены кривые плотности состояний, вычисленные по формуле (3) из спектра затухания. Для сравнения там же приведена плотность состояний, найденная в [2, 3]. Отметим небольшое количественное отличие кривых в области 1360 см^{-1} (для $x = 0,1$) и 1420 см^{-1} (для $x = 0,9$), т.е. в тех частотных интервалах, где можно ожидать проявления кластерных эффектов. Однако, хорошее в целом соответствие плотности состояний, восстановленной из спектра смешанного кристалла, с более точными данными [2, 3], полученными из двухфононных спектров, свидетельствует о корректности предложенного метода и возможности его практического применения.

Институт физики
Ленинградского государственного
университета им. А.А.Жданова

Поступила в редакцию
17 марта 1980 г.
3 мая 1980 г.

Литература

- [1] Н.В.Рабинькина, Э.И.Рашба, Е.Ф.Шека. ФТТ, 12, 3569, 1970.
- [2] М.В.Белоусов, Д.Е.Погарев, А.А.Шултин. ФТТ, 18, 521, 1976.
- [3] M.V.Belousov, D.E.Pogarev, A.A.Shultin. Phys. Stat. Sol. (b), 80, 417, 1977.
- [4] М.В.Белоусов, Д.Е.Погарев. ФТТ, 20, 3461, 1978.
- [5] R. J. Elliott, J. A. Krumhansl, P. L. Leath. Rev. Mod. Phys., 46, 465, 1974.
- [6] М.В.Белоусов, Д.Е.Погарев, А.А.Шултин. ФТТ, 20, 1415, 1978.