

ОСОБЕННОСТИ АНГАРМОНИЧЕСКИХ ЭФФЕКТОВ В ДИНАМИКЕ РЕШЕТКИ ГЦК МЕТАЛЛОВ

М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов⁺, К.Ю.Хромов⁺

Институт физики металлов Уральского отделения РАН, 620219 Екатеринбург, Россия

+ Российский научный центр "Курчатовский Институт", 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 марта 1999 г.

На основе проведенных микроскопических расчетов исследована дисперсия во всей зоне Бриллюэна и температурная зависимость (вплоть до температуры плавления) ангармонического сдвига частоты и затухания фононов ряда ГЦК металлов. Обнаружена резкая зависимость ангармонических эффектов от волнового вектора в направлениях $\Gamma - X$, $X - W$ и $\Gamma - L$, причем, в отличие от ОЦК металлов, их величина не связана с мягкостью затравочного фононного спектра. Показано, что относительные сдвиги частот и затухание фононов вблизи плавления не превышают 10–20%. Обсуждается относительная роль различных ангармонических процессов, а также связь полученных результатов с имеющимися экспериментальными данными.

PACS: 63.20.-e

Исследование ангармонических эффектов (АЭ) в динамике решетки является классической задачей физики твердого тела и имеет большое значение, в частности, из-за той роли, которую они могут играть в явлениях, связанных со структурными фазовыми переходами и плавлением в кристаллах (см., например, [1-3]). В то же время, получение любой информации о величине и масштабе АЭ как из эксперимента, так и из теории является сложной проблемой. Экспериментальное изучение таких "базовых" АЭ как сдвиг частоты и затухание фононов является очень трудоемким и приводит к большой неопределенности полученных результатов (см., например, данные, приведенные в [4, 5] для ОЦК и ГЦК металлов, соответственно). К настоящему времени микроскопические расчеты АЭ из первых принципов выполнены для одной точки зоны Бриллюэна (N) в ОЦК фазе Zr и четырех точек (N, P, ω, G) в Mo [6]. Детальная информация об АЭ во всей зоне Бриллюэна и их температурной зависимости была получена в [4, 7] в рамках теории псевдопотенциала для ОЦК фаз щелочных и щелочноземельных металлов. Для этих металлов наиболее яркие проявления АЭ связаны с "мягкомодовым поведением" (аномальная температурная зависимость фононных частот) ветви Σ_4 . Представляет интерес расчет АЭ в случае "общего положения", то есть для кристаллов, в которых отсутствуют мягкие моды колебаний. К числу таких кристаллов относится большинство металлов с плотноупакованными структурами, например, ГЦК. Информация об АЭ в таких металлах почти отсутствует, если не считать работы [5], в которой вычислялось затухание фононов в благородных металлах и Al. При этом, однако, вычисления проводились лишь для отдельных точек зоны Бриллюэна и для комнатной температуры (что существенно ниже температуры плавления T_m). К тому же точность используемой в [5] модели межатомных взаимодействий неясна, с чем, по-видимому, связано качественное расхождение теоретических и экспериментальных зависимостей затухания от волнового вектора. В настоящей работе на основе последовательной ангармонической теории возмущений проведено детальное исследование АЭ в динамике решетки ГЦК металлов.

Расчеты были выполнены для Ir, ГЦК фаз Ca и Sr и гипотетической ГЦК фазы K. Выбор объектов определялся существованием надежных и вместе с тем простых микроскопических моделей, которые позволяют описать широкий круг решеточных свойств этих металлов [4, 7–9]. При этом Ir является примером ГЦК кристалла с "жестким" потенциалом межатомного взаимодействия, подобным потенциалу Ленард–Джонса [8], а K, Ca, Sr характеризуются потенциалами с более мягкой "сердцевиной". Для того чтобы продемонстрировать особенности АЭ, связанные со спецификой потенциала при одной и той же геометрии решетки, мы приводим здесь результаты для "пределных" случаев — Ir и K. Результаты для Ca и Sr качественно подобны результатам для K и будут приведены в другой работе.

Параметры, определяющие потенциал межатомного взаимодействия, приведены в [8] для Ir и в [4] для K. Расчеты проводились в рамках ангармонической теории возмущений с учетом эффектов теплового расширения (квазигармонические вклады, $q\hbar$), трех- и четырехфононных процессов взаимодействия с точностью до \varkappa^2 , где $\varkappa = (m/M)^{1/4}$ — адиабатический параметр малости; m , M — массы электрона и иона. Строгие формулы, реально используемые в расчетах, приведены в [4]. Для качественного обсуждения полученных результатов здесь мы приводим их высокотемпературную асимптотику при $T > \Theta_D$ (Θ_D — температура Дебая):

$$\Delta_{\lambda k} = \Delta_{\lambda k}^{q\hbar} + \Delta_{\lambda k}^3 + \Delta_{\lambda k}^4, \quad (1)$$

$$\Delta_{\lambda k}^{q\hbar} = -\gamma_{\lambda k} \omega_{\lambda k} \frac{\Delta\Omega}{\Omega}, \quad (2)$$

$$\Delta_{\lambda k}^3 = -\frac{T}{4M^3\omega_{\lambda k}} \sum_{\mu\nu q} \left| V_{\lambda\mu\nu}^{\mathbf{k},\mathbf{q},\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right|^2 \frac{1}{\omega_1^2\omega_2^2} \frac{(\omega_1^2 - \omega_2^2)^2 - \omega_{\lambda k}^2(\omega_1^2 + \omega_2^2)}{(\omega_1^2 + \omega_2^2 - \omega_{\lambda k}^2)^2 - 4\omega_1^2\omega_2^2}, \quad (3)$$

$$\Delta_{\lambda k}^4 = \frac{T}{4M^3\omega_{\lambda k}} \sum_{\mu q} W_{\lambda\lambda\mu\mu}^{\mathbf{k},\mathbf{q},\mathbf{q},\mathbf{q}} \frac{1}{\omega_{\mu q}^2}, \quad (4)$$

$$\Gamma_{\lambda k} = T \frac{\pi}{8M^3} \sum_{\mu\nu q} \left| V_{\lambda\mu\nu}^{\mathbf{k},\mathbf{q},\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right|^2 \frac{1}{\omega_1^2\omega_2^2} [\delta(\omega_{\lambda k} - \omega_1 - \omega_2) + 2\delta(\omega_{\lambda k} + \omega_1 - \omega_2)]. \quad (5)$$

Здесь λ , μ , ν — индексы фононных ветвей, \mathbf{k} и \mathbf{q} — квазимпульсы; $\omega_{\lambda k}$, $\Delta_{\lambda k}$, $\Gamma_{\lambda k}$ — затравочная фононная частота, ее сдвиг и затухание фонона, соответственно; \widehat{V} и \widehat{W} — амплитуды трех- и четырехфононных процессов (см. [4]), $\gamma_{\lambda k} = -\partial \ln \omega_{\lambda k} / \partial \ln \Omega$ — параметр Грюнайзена, $\Delta\Omega$ — изменение объема на атом Ω за счет теплового расширения и использованы сокращения $1 \equiv (\mu, \mathbf{q})$, $2 \equiv (\nu, \mathbf{k} + \mathbf{q})$.

Основные результаты расчетов представлены на рис. 1–5. Из рис. 1, 2 прежде всего видно, что выход на высокотемпературную асимптотику (3)–(5) достигается очень рано (при $T \gtrsim \Theta_D/3$). Из сравнения с аналогичными результатами для ОЦК металлов [4] можно сделать вывод, что это свойство, по-видимому, является достаточно общим. Из рис. 1–4 следует, что наиболее сильные АЭ в Ir имеют место для продольных фононов в окрестности точки X . В частности, именно для этих фононов падение частоты и рост затухания с температурой являются наибольшими. В этом отношении ситуация резко отличается от ОЦК щелочных и щелочноземельных металлов [4, 7], где максимальное затухание достигается для "мягких" фононов, для которых характерно противоположное поведение частоты с ростом T — ужесточение вместо смягчения. Из рис. 5 видно, что это отличие обусловлено доминирующей ролью в Ir трехфононных процессов по сравнению с четырехфононными.

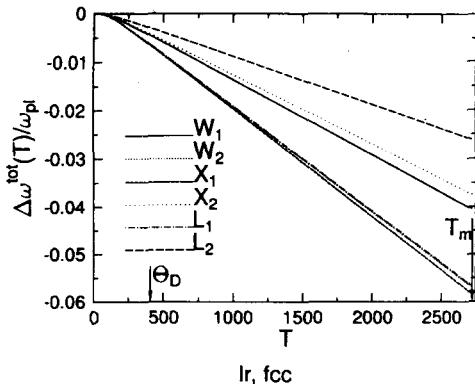


Рис.1. Температурная зависимость сдвига частоты в Ir в симметричных точках зоны Бриллюэна; T_m — температура плавления, Θ_D — температура Дебая. Индексы 1, 2 означают продольные и поперечные фононы; ω_{pl} — ионная плазменная частота ($\omega_{pl}^{Ir} = 871$ К, см. [8])

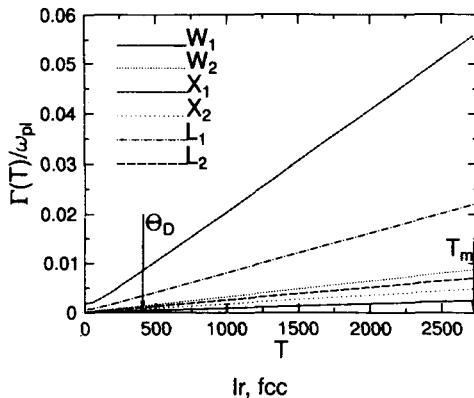


Рис.2. Температурная зависимость затухания фононов в Ir; все обозначения как на рис.1

С целью понять роль особенностей межатомных взаимодействий при одной и той же геометрии решетки на рис. 3, 4 приведены результаты расчетов для гипотетической ГЦК фазы К. Явное доминирование трехфононных процессов над четырехфононными, приводящее к отрицательности сдвига частот по всей зоне Бриллюэна, видно также и в этом случае и, по-видимому, характерно для всех металлов с ГЦК

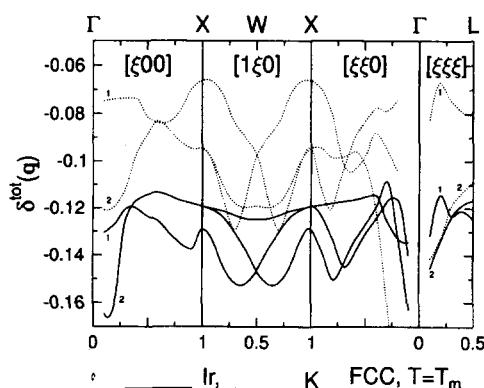


Рис.3. Дисперсия относительного сдвига частоты $\delta = \Delta/\omega$ при $T = T_m$. Сплошная линия — Ir, пунктир — ГЦК К. 1, 2 означают продольные и поперечные ветви

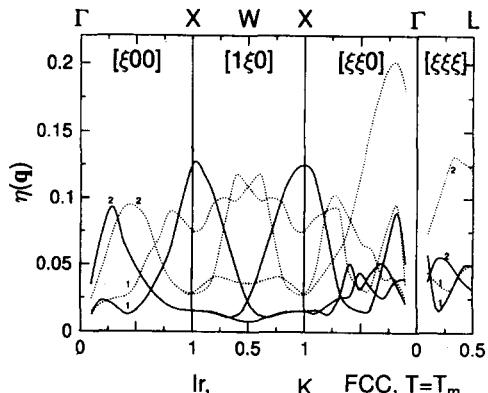


Рис.4. Дисперсия относительного затухания фононов $\eta = \Gamma/\omega$ при $T = T_m$. Сплошная линия — Ir, пунктир — ГЦК К. 1, 2 означают продольные и поперечные ветви

структурой. В то же время, выделенность окрестности точки X , по-видимому, имеет место лишь для кристаллов с "жестким" потенциалом межатомного взаимодействия типа Ir. Как известно [8], "жесткость" потенциала в металлах возрастает с увеличением эффективной валентности Z ($Z = 1$ для К и $Z = 4.5$ для Ir). В любом случае Ir представляет собой яркий пример кристалла, в котором АЭ максимальны для колебаний с большой частотой, в отличие от кристаллов с мягкими модами,

где АЭ максимальны для фононов с малой частотой. Последнее легко объясняется высокими степенями частоты в знаменателях формул (3)–(5), однако пример Ir показывает, что в общем случае вопрос не решается из столь простых соображений.

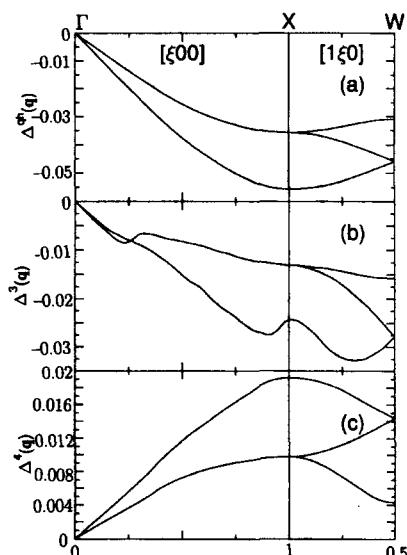


Рис.5. Изменение ангармонических вкладов Δ^{qh} (а), Δ^3 (б), Δ^4 (с) в направлениях $\Gamma - X - W$ в Ir при $T = T_m$

Важной особенностью затухания фононов, согласно рис.4, является его немонотонная зависимость от волнового вектора в направлениях $\Gamma - L$ и $\Gamma - X$. Согласно экспериментальным данным, приведенным в [5], такая немонотонность наблюдается в Al, Cu, Ag и Au. Можно думать поэтому, что она типична для всех металлов с ГЦК структурой.

В заключение отметим, что, как следует из рис. 3–5, АЭ имеют сильную зависимость по зоне Бриллюэна. Поэтому представляются опасными приближения, которые учитывают их "в среднем" (типа использованных в недавней работе [10]). Наконец, из обнаруженного в настоящей работе доминирования трехфононных процессов по сравнению с четырехфононными следует неприменимость к металлам с плотноупакованными структурами общезвестных подходов типа приближения самосогласованных фононов [11].

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, проект 98-02-16219.

-
1. В.Г.Вакс, *Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков*, М.: Наука, 1973.
 2. V.G.Vaks, S.P.Kravchuk, and A.V.Trefilov, J. Phys. **F10**, 2325 (1980).
 3. М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов, ФММ **64**, 629 (1987).
 4. V.G.Vaks, S.P.Kravchuk, and A.V.Trefilov, J. Phys. **F10**, 2105 (1980).
 5. M.Zoli, G.Santoro, V.Bortolani et al., Phys. Rev. **B41**, 7507 (1990).
 6. Y.Y.Ye, Y.Chen, K.M.Ho et al., Phys. Rev. Lett. **58**, 1769 (1987); J. Phys.: Cond. Matter **3**, 9629 (1991).
 7. V.G.Vaks, G.D.Samolyuk, and F.V.Trefilov, Phys. Lett. **A127**, 37 (1988).
 8. A.S.Ivanov, M.I.Katsnelson, A.G.Mikhin et al., Phil. Mag. **B69**, 1183 (1994).
 9. M.I.Katsnelson, I.I.Naumov, A.V.Trefilov et al., Phil. Mag. **B75**, 389 (1997).
 10. R.C.Shukla and E.R.Cowley, Phys. Rev. **B58**, 2596 (1998).
 11. Х.Бетгер, *Принципы динамической теории решетки*, М.: Мир, 1986.