

ВІДТВОРЕННЯ ГУСТИНИ ФОНОННИХ СТАНІВ З ТЕПЛОВИХ ЕКСПЕРИМЕНТІВ: РОЗРАХУНКОВІ МОЖЛИВОСТІ

1 В.М.Різак, 1 І.М.Різак, 2 О.І.Лендел, 1 І.П.Коссей, 1 В.В.Маслюк

¹Ужгородський державний університет, 294000, вул. Волошина, 54

²Інститут електронної фізики НАН України,

294016, вул. Університетська, 21

Показано можливість відтворення функції густини фононних станів $g(\omega)$ реальних кристалів з температурної залежності теплоємності. Обговорюється модель спектральних каналів при аналізі дисперсійних залежностей фононних віток. Розрахунок проведено на прикладі кристалів $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ та $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{Se}_6$.

Відомо, що функція густини фононних станів (ГФС) є важливою фізичною характеристикою твердих тіл, що визначає їх теплові та механічні властивості, а також особливості, наприклад, структурних фазових переходів. ГФС містить інформацію про особливості дисперсійних віток фононного спектру кристалу. Оскільки прямі експерименти по встановленню ГФС потребують унікальних ядерно-фізичних методик, привабливою є спроба реконструювати її з температурної залежності теплоємності $C(T)$, враховуючи, що:

$$C(T) = \int_0^{\infty} g(\omega) F(\omega/T) d\omega, \quad (1)$$

тут $g(\omega)$ - ГФС, а $F(x) = x^2 \exp(x)/(1 - \exp(x))^2$. В роботах [1,2] показано, що розв'язок рівняння (1), що представляє собою рівняння Фредгольма 1-го роду не є простими навіть для моделей кристалів в наближеннях Дебая та Ейнштейна і для збіжності ітераційних рівнянь потрібно ввести ряд неформальних обмежень та підгоночних параметрів для ядра правої частини. Проблема полягає як в багатозначності рішень (1), особливо, при врахуванні [3] експериментальної похибки при визначенні $C(T)$, а також у

наявності ефектів ангармонізму та вкладу електронної підсистеми.

В даній роботі приведено дані числового розрахунку ГФС реальних кристалів з перших принципів, використовуючи лише температурну залежність $C(T)$. Як приклад, нами вибрано кристали $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{X}_6$, де $X = \text{S}, \text{Se}$, для яких є достовірні дані розрахунку та експериментів по визначенню фононних дисперсійних віток та ГФС, див.[4-6]. Це дозволяє оцінити можливості запропонованого методу для інших кристалів.

Відомо, що прямий метод розв'язку (1) полягає у представленні його у вигляді M матричних рівнянь. Однак, така система рівнянь не може бути розв'язана стандартними алгебраїчними методами уже при $M > 30$. Кращі результати можна отримати, представляючи (1) як квадратичну функцією M змінних, нулі якої відповідають розв'язкам (1). Така задача розв'язувалася методами спірального координатного спуску, методами 2-х градієнтів з використанням апроксимації по методу найменших квадратів [7]. Хорошу збіжність та можливість врахувати похибку при визначенні $C(T)$ дає програма "Fumili" [8], модифікована для випадку багатьох

($N \sim 100-200$) змінних. Зокрема, нами запропоновано алгоритм розв'язку (1) як послідовне нарощування числа апроксимуючих функцій $g(\omega_j)$, що задовільняють (1), починаючи з 10-20, при незмінному числі рівнянь M , $M \sim 200-500$. Причому, кожний попередній набір $\{g(\omega_j)\}$ служить першим наближенням для послідовного і більшого числа функцій $g(\omega_j)$ аж до значень $N \sim M$. Недоліком такого підходу є проявлення високочастотної (ефект «пилки») складової $g(\omega)$ при збільшенні числа рівнянь M , що характерно для розв'язків некоректних задач.

Інший підхід розв'язку (1) полягає у використанні пробної модельної функції для ГФС. При цьому в порівнянні з методом матричних рівнянь значно зменшується число параметрів n по яких провадиться підгонка пробної та реальної функцій ГФС, а також є можливість врахувати особливості Ван-Хова у випадку реальних кристалів. Так, хороших результатів по відтворенню $g(\omega)$ можна досягти вже при $n \sim 15-20$. Однак і в цьому разі хороша збіжність методу досягається лише при вдалому виборі функціональної залежності пробної

функції ГФС. Зокрема, такий підхід був опробований при апроксимації ГФС поліномом до 20-ї степені, членами ряду Фур'є, а також з використанням ряду пікоподібних функцій. Розрахунок показав, що використовуючи обмежене число функцій Гауса, можна з достатньою точністю відтворити не лише енергетичне положення, але й особливості Ван-Хова ГФС реального кристалу. А пов'язуючи з кожним з таких гаусіанів дисперсійну вітку фононного спектру, чи сукупності близьких віток можна зробити заключення як про їх енергетичне розташування, так і характер дисперсійної залежності, - чи є зони плоскими чи параболічними, тощо. Суть запропонованого підходу або методу спектральних каналів полягає у можливості дослідити вклад фононних віток у формування $g(\omega)$. На рис.1 представлений результат такої апроксимації для кристалу $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{Se}_6$. Як видно, розрахунок свідчить про значний вклад фононних віток в околі енергій 10, 26 та 36 меВ, див. , тоді як менш виражений вклад в ГФС коливних віток, наприклад, в околі 12, 16, 20 та 22 меВ.

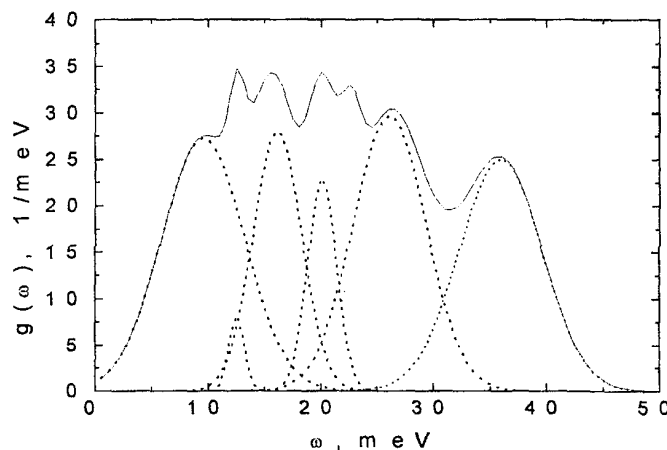


Рис. 1 Відтворення ГФС кристалу $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{Se}_6$ з допомогою функцій Гауса, параметри яких приведено в табл. 1.

Таблиця 1. Параметри пробних функцій Гауса $\Gamma(x)=A_i \exp(-(x-x_{ci})^2/2w_i)$, $i=1,7$, що використовувалися для побудови ГФС кристалів $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$.

X_{ci}	9,66	12,53	16,23	20,13	22,63	25,93	35,60
w_i	8,24	1,30	4,24	2,64	2,07	5,51	9,05
A_i	305,68	13,016	144,33	87,39	39,69	200,60	313,73

На рис.2 приведено результат відтворення функції ГФС кристалу $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ по експериментальній залежності $C(T)$, вибираючи пробну функцію для $g(w)$ у вигляді як однієї параболи, так і декількох функцій Гауса. В останньому разі, як видно з малюнка, вдається відтворити тонку структуру $g(w)$ в околі енергій 25 та 35 меВ. Інтеграл в (1)

вираховувався методом Сімпсона при розбитті інтервалу інтегрування на 100 - 200 точок, наближення проводилося по 200 значеннях $C(T)$ в інтервалі температур 5 - 500 К. Розрахунок припинявся при досягненні для кожної точки функціоналу, що мінімізувався, значень χ^2 порядку 0,1 - 1.

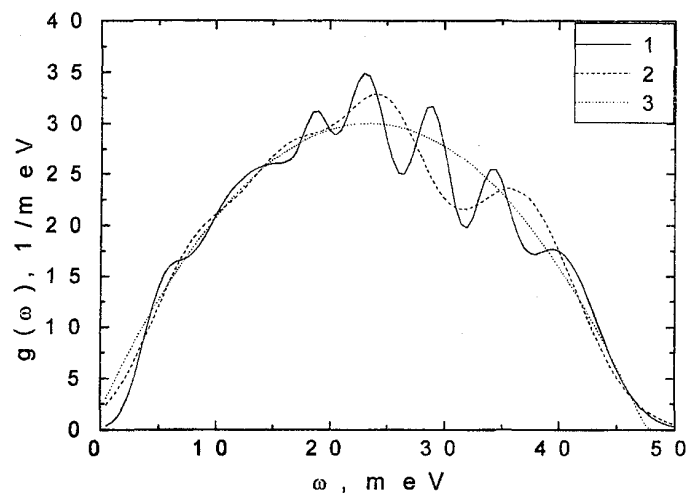


Рис.2. Відтворення функції ГФС кристалу $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ з експериментальної залежності $C(T)$ при використанні однієї параболи, крива 2 та 5 функцій Гауса, крива 3. Крива 1 ілюструє значення $g(w)$ для кристалу $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$, встановлене при некогерентному розсіюванні надповільних нейтронів [9].

Таким чином, теплофізичні експерименти дозволяють описати, по крайній мірі, загальну поведінку функції ГФС для реальних кристалів з інтегрального рівняння (1). Однак, роздільна здатність методики залежить від точності вимірювання теплоємності в широкому інтервалі температур. Достовірність та точність розрахунку

може бути значно покращена при врахуванні експериментальних даних по ІЧ поглинанню та КР світла, що містять інформацію про особливості фононного спектру в зоні Бріллюена.

Автори висловлюють вдячність В.Дробничу та Е.Контрошу за численні та продуктивні дискусії по темі публікації.

1. J.W. Loran J. Phys.C: Solid State Phys. **19** 6113-6117 (1986).
2. S.E. Regan, G.J. Morgan J. Phys.:Condens.Matter **4**, L195 (1992)
3. А.Н. Тихонов, В.Я. Арсенин. Методы решения некорректных задач, Наука, М., (1974)223 с.
4. V.M.Rizak, I.M.Rizak, M.I.Gurzan, K. Al'-shufi, Yu.M. Vysochansky, V.Yu. Slivka -
5. Ferroelectrics.1995. v.168. P.39-53.
6. В. М. Різак, Ю.М. Височанський, А.А. Грабар, В.Ю. Сливка-ФТТ, 1989, 31 №7, С.154-159.
7. S.Eijt, R. Currat, J.Lorazo, P. Saint-Cregoire, S. Katano, T. Janssen, B. Hennion and Yu.M. Vysochanskii, J.Phys.:Condens.Matter. **10**, 4811 (1998).
8. В.П. Дьяконов Справочник по алгоритмам и программам на языке Бейсик для персональных ЭВМ, Наука. М.:1987, 230 с.
9. И.И. Силин, Библиотека программ на ФОРТРАНЕ, Дубна, Изд-во ОИЯИ, **D-520**, 180 (1970).
10. В. М. Різак Автореферат дис. докт.фіз.-мат. Наук. Львів, 1996 р.

THE SOLIDS PHONON DENSITY OF STATES RECONSTRUCTION FROM THE HEAT-TYPE EXPERIMENTS: THE COMPUTATION RESOURCES

¹ V.M. Rizak, ¹ V.M. Rizak,, ² O.I. Lendyel, ¹ I.P. Kossey,
¹ V.V. Maslyuk

¹ Uzhgorod State University, 294000, Voloshina Str., 54

²Institute of Electron Physics Ukrainian National Academy of Sciences,
294016, Universitetska Str., 21

The possibilities of the solids phonon density of states $g(\omega)$ reconstruction from the temperature dependence of heat capacity are shown. It is proposed the spectral channels method for the phonon spectrum analysis from the measured $g(\omega)$. The calculations were carried out for the $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ та $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{Se}_6$ crystals.