

## АНАЛІЗ ДИНАМІЧНИХ МАТРИЦЬ СКЛАДНИХ КРИСТАЛІВ ТИПУ $\text{AuCu}_3$

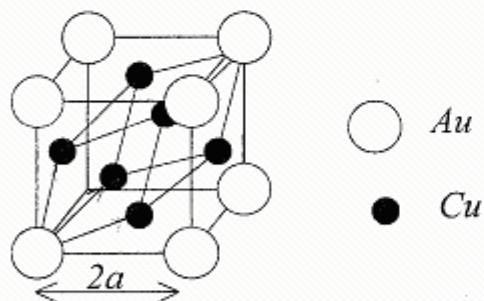
Е.П. Булеца, М.В. Довка, О.Ф. Іваняс, І.І. Небола

Інститут фізики і хімії твердого тіла, Ужгород, 88000, вул. Волошина, 54

Ужгородський університет, Ужгород, 88000, вул. Волошина, 54

Динамічна матриця складних кристалів визначається симетрією, композиційною будовою елементарної комірки та характером моделей силових постійних. В роботі проаналізовані структури динамічних матриць кристалів типу  $\text{AuCu}_3$  у традиційному і в надпросторовому підходах. Проведені модельні розрахунки закону дисперсії для даного кристалу. Знайдені аналітичні розв'язки повздовжніх мод коливань для деяких високосиметричних напрямків.

Кристали типу  $\text{AuCu}_3$  характеризуються структурою з простою кубічною ґраткою елементарна комірка якої містить чотири атоми. Характерною особливістю будови елементарної комірки є наявність сукупності еквідистантно розташованих атомів різного сорту. Ця особливість кристалічної будови робить такий клас кристалів зручними модельними об'єктами для дослідження спектрів одночастинкових збуджень в надпросторовому підході [1,2].



Мал.1. Елементарна комірка  $\text{AuCu}_3$  та елементарна комірка основної ГЦК-ґратки одноатомної структури з параметром  $a$ .

Кристалічна структура  $\text{AuCu}_3$  реалізується, як одне із стабільних кристалічних утворень в ряді твердих розчинів металів Au та Cu [3]. Збереження кубічної сингонії дозволяє розглядати її як  $2a \times 2a \times 2a$  природну

надґратку. В якості базової структури виберемо одноатомну ГЦК-ґратку з чотирьохкратною мультиплікацією об'єму елементарною комірки.

Надпросторовий (3+d)- вимірний опис розглядуваних кристалів реалізується, виходячи з такого базису в прямому та оберненому просторах:

$$\begin{aligned} a_1 &= \left( 0, a, a, 0, -\frac{b}{2}, -\frac{b}{2} \right); \\ a_2 &= \left( a, 0, a, -\frac{b}{2}, 0, -\frac{b}{2} \right); \\ a_3 &= \left( a, a, 0, -\frac{b}{2}, -\frac{b}{2}, 0 \right); \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} a_4 &= (0, 0, 0, b, 0, 0); \\ a_5 &= (0, 0, 0, 0, b, 0); \\ a_6 &= (0, 0, 0, 0, 0, b); \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} a_1^* &= \left( -\frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a}, 0, 0, 0 \right); \\ a_2^* &= \left( \frac{\pi}{a}, -\frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a}, 0, 0, 0 \right); \\ a_3^* &= \left( \frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a}, -\frac{\pi}{a}, 0, 0, 0 \right); \end{aligned} \quad (2)$$

$$a_4^* = \left( \frac{\pi}{a}, 0, 0, \frac{2\pi}{b}, 0, 0 \right);$$

$$a_5^* = \left( 0, \frac{\pi}{a}, 0, 0, \frac{2\pi}{b}, 0 \right);$$

$$a_6^* = \left( 0, 0, \frac{\pi}{a}, 0, 0, \frac{2\pi}{b} \right).$$

Трьохвимірні компоненти останніх трьох векторів оберненого базису (2) визначають набір векторів модуляції:

$$\begin{aligned} q_1 &= (0 \ 0 \ 0), \\ q_2 &= (\pi/a \ 0 \ 0), \quad q_3 = (0 \ \pi/a \ 0), \quad q_4 = (0 \ 0 \ \pi/a), \end{aligned} \quad (3)$$

що утворюють повну сукупність модуляційних векторів, які розпадаються на дві зірки: одновекторну  $\{q_1\}$  та трьохвекторну  $\{q_i\}$ , де  $i=2,3,4$ .

В традиційному підході [4] квадрати частот фононів є розв'язками задачі на власні значення:

$$|D^{cl} - \omega^2 M| = 0, \quad (4)$$

де  $M$ -діагональна матриця, діагональні елементи якої - маси відповідних атомів, а елементи динамічної матриці складного кристала визначаються рівнянням [4]:

$$D_{\alpha\beta}^{cl}(k, k' | k) = - \sum_{l'} K_{\alpha\beta}(lk, l'k') \exp\{ik[x(l') - x(l)]\}, \quad (5)$$

де  $lk$ - індекс  $k$ -вого атома у  $l$ -тій комірці,  $\chi(l)$ - вектор початку  $l$ -тової комірки,  $k$ - хвильовий вектор.

Для  $k = k'$  формула (5) записується у вигляді:

$$\begin{aligned} D_{\alpha\beta}^{cl}(k, k | k) &= \sum_{k' \neq k} \sum_{l'} K_{\alpha\beta}(lk, l'k') + \\ &+ \sum_{l' \neq l} K_{\alpha\beta}(lk, l'k') [1 - \exp\{ik[x(l') - x(l)]\}] \end{aligned}$$

В наближенні центральносиметричних сил із врахуванням взаємодії двох найближчих координаційних груп, розрахунок закону дисперсії для кристалів типу  $AuCu_3$  приводить до задачі на власні значення динамічної матриці (4) 12-го порядку, що залежить від чотирьох силових констант ( $a12_{Au-Cu}$ ,  $a23_{Cu-Cu}$ ,  $a11_{Au-Au}$ ,  $a22_{Cu-Cu}$ ).

Розглянемо наближення еквідистантного силового поля ( $a12_{Au-Cu} = a23_{Cu-Cu} = a_1$ ;  $a11_{Au-Au} = a22_{Cu-Cu} = a_2$ ). Тоді структуру динамічної матриці у довільній точці ЗБ можна записати через блочну матрицю 4-го порядку, елементи якої є матриці 3x3:

$D_0$	$A_1$	$A_2$	$A_3$
$A_1^*$	$D_0$	$B_3$	$B_2$
$A_2^*$	$B_3^*$	$D_0$	$B_1$
$A_3^*$	$B_2^*$	$B_1^*$	$D_0$

(6)

По діагоналі розташовані однакові блоки  $D_0$ , які у загальному випадку є діагональними матрицями виду:

$$D_0 = \begin{bmatrix} 4a_1 + 2a_2 - 2a_2 \cos(kx) & 0 & 0 \\ 0 & 4a_1 + 2a_2 - 2a_2 \cos(ky) & 0 \\ 0 & 0 & 4a_1 + 2a_2 - 2a_2 \cos(kz) \end{bmatrix}. \quad (7)$$

Блоки  $A$  та відповідні їм блоки  $B$  мають подібну структуру з одним нульовим рядком та стовпчиком, симетрично розташованим відносно власної діагоналі матриці. Наприклад:

$$A_3 = \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}a_1(1+e^{-i(kx+ky)}) - \frac{1}{2}a_1(e^{-ikx} + e^{-iky}) & -\frac{1}{2}a_1(1+e^{-i(kx+ky)}) + \frac{1}{2}a_1(e^{-ikx} + e^{-iky}) & 0 \\ -\frac{1}{2}a_1(1+e^{-i(kx+ky)}) + \frac{1}{2}a_1(e^{-ikx} + e^{-iky}) & -\frac{1}{2}a_1(1+e^{-i(kx+ky)}) - \frac{1}{2}a_1(e^{-ikx} + e^{-iky}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$B_3 = \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} a_1 (1 + e^{-i(kx-ky)}) - \frac{1}{2} a_1 (e^{-ikx} + e^{iky}) & -\frac{1}{2} a_1 (1 + e^{-i(kx-ky)}) + \frac{1}{2} a_1 (e^{-ikx} + e^{iky}) & 0 \\ -\frac{1}{2} a_1 (1 + e^{-i(kx-ky)}) + \frac{1}{2} a_1 (e^{-ikx} + e^{iky}) & -\frac{1}{2} a_1 (1 + e^{-i(kx-ky)}) - \frac{1}{2} a_1 (e^{-ikx} + e^{iky}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Видно, що блок  $A_3$  комплексно спряжений до блоку  $B_3$  відносно  $ky$ . Аналогічно,  $A_1$  та  $A_2$  комплексно спряжений до блоків  $B_1$  та  $B_2$ , відносно  $kz$ ,  $kx$ , відповідно. Індеси 1, 2, 3 вказують на циклічну перестановку по  $kx$ ,  $ky$ ,  $kz$ .

У надпросторовому підході фононний спектр визначатимуть розв'язки узагальненої задачі на власні значення [4]:

$$|D^{sp} - \omega^2 M| = 0. \quad (8)$$

Структура матриці  $D^{sp}$  у довільній точці ЗБ має вигляд:

$$D^{sp} = \begin{bmatrix} D(k+q_1) & O & O & O \\ O & D(k+q_2) & O & O \\ O & O & D(k+q_3) & O \\ O & O & O & D(k+q_4) \end{bmatrix}$$

Тут  $D(k+q_i)$  – динамічні матриці одноатомної базової структури протокристалу з ГЦК ґраткою, визначені в точках  $k+q_i$  ЗБ. Матриця оператора дефекту маси  $M$  для кристалів  $AuCu_3$  має вигляд:

$$M = \begin{bmatrix} 3m_{Cu} + m_{Au} & m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} \\ m_{Au} - m_{Cu} & 3m_{Cu} + m_{Au} & m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} \\ m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} & 3m_{Cu} + m_{Au} & m_{Au} - m_{Cu} \\ m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} & m_{Au} - m_{Cu} & 3m_{Cu} + m_{Au} \end{bmatrix} \otimes \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Для порівняння запису динамічних матриць (4) та (8) приведемо матрицю  $M$  до діагонального вигляду. Для цього подіємо унітарним перетворенням [5]:

$$\sqrt{\frac{V_{AuCu}}{V_{ГЦК}}} F_{\alpha\beta} = \exp(iq_\alpha n_\beta)$$

де  $n_\beta$  та  $q_\alpha$  – сукупність позиційних та модуляційних векторів в межах елементарної комірки та ЗБ відповідно, ( $\alpha, \beta = 1, 2, 3, 4$ ).

У нашому випадку маємо:

$$F = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & -1 & -1 & 1 \\ 1 & -1 & 1 & -1 \\ 1 & 1 & -1 & 1 \end{bmatrix}$$

При такому перетворенні матриця  $M$  переходить у  $M$ , а  $D^{sp}$  набуває вигляду:

$D_0$	$A_1$	$A_2$	$A_3$
$A_1$	$D_0$	$A_3$	$A_2$
$A_2$	$A_3$	$D_0$	$A_1$
$A_3$	$A_2$	$A_1$	$D_0$

(9)

Порівняння матриць показало, що діагональні (сірі) блоки матриць (6) і (9) тотожні, а їх характеристичні рівняння співпадають. Так, для напрямку  $\Gamma$ -Х всі матричні блоки діагональні, а для напрямку  $\Gamma$ -М матриця  $D(k+q_i)$  діагональні, а матриці  $D(k+q_i)$   $i=2,3,4$  мають вигляд:

$$\begin{matrix} a & d & 0 \\ d & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{matrix}$$

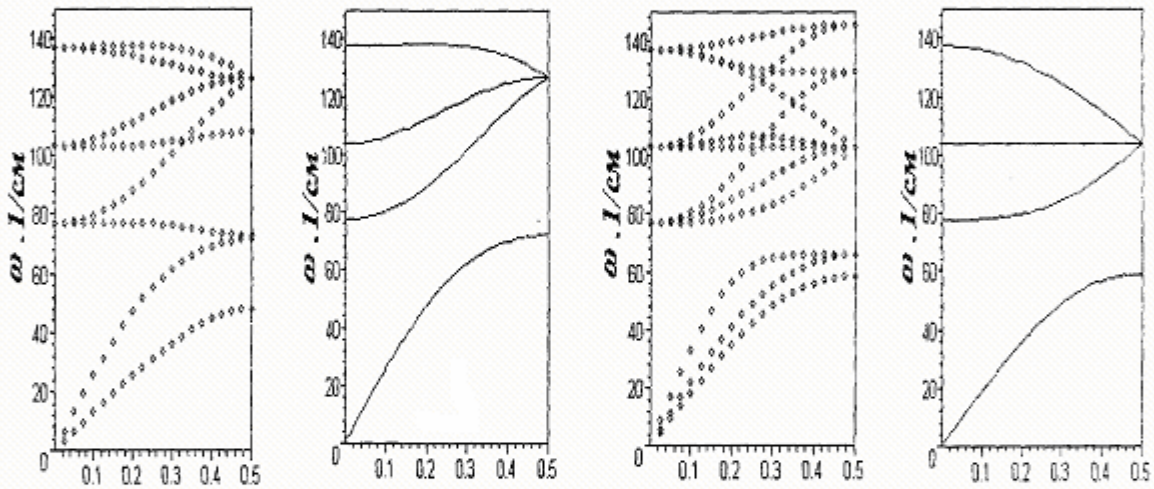
Тоді для напрямків  $\Gamma$ -Х та  $\Gamma$ -М можна виділити матриці 4-го порядку:

$$D_{\Gamma-X} = \begin{vmatrix} 4a_1 \sin\left(\frac{kx}{2}\right)^2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 4a_1 \cos\left(\frac{kx}{2}\right)^2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 4a_1 \sin\left(\frac{kx}{2}\right)^2 + 4a_1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4a_1 \cos\left(\frac{kx}{2}\right)^2 + 4a_1 \end{vmatrix} \quad \text{та}$$

$$D_{\Gamma-M} = \begin{vmatrix} 8a_1 \sin\left(\frac{kx}{2}\right)^2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 4a_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 4a_1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 8a_1 \cos\left(\frac{kx}{2}\right)^2 \end{vmatrix},$$

що визначатимуть поперечні моди коливань, аналітичні функції яких

графічно представлені на рис.2 (праві криві *a*; *b*).



*a)* Напрямок  $\Gamma$ - $X$

*b)* Напрямок  $\Gamma$ - $M$

Рис.2. Чисельні розрахунки фононів (зліва) та аналітичні розв'язки поперечних мод (справа) з модельними силовими постійними для кристалу  $\text{AuCu}_3$  ( $a_1=10$  Н/м;  $a_2=5$  Н/м)

Таким чином, частоти фононів, розраховані в традиційному підході [4] та у над просторовому в наближенні еквідистантного силового поля, еквівалентні.

Спрощення розрахунків в надпросторовому підході для дослідження

динамічних властивостей ґраток кристалів і можливість проведення очевидних розщеплень узагальнених динамічних матриць робить цей підхід більш перспективним для кристалів з великою кількістю атомів в елементарній комірі.

1. De Wolff P.M., Janssen T., Janner A. Acta Cryst., A37, 625 (1981).
2. И.И.Небола, А.Ф.Иваняс, В.Я.Киндрат, ФТТ, 35, 1852. (1993).
3. А.Г. Хачатурян. Теория фазовых превращений и структура твердых растворов. М.: Наука, 1974, 384 с.
4. J.L.Warren, Rev.Modern Phys., 40, 38, 1968.
5. Е.П.Булеца, О.Ф.Иваняс, І.І.Небола. Вісник Ужгородського Університету, Серія Фізика №4 1999, с.83.

## **ANALYSIS OF DYNAMICS MATRIXES FOR COMPLEX CRYSTALS AuCu<sub>3</sub> TYPE**

**E.P.Buletza, M.D.Dovka, I. I. Nebola, A.F.Ivanyas**

Uzhgorod State University, 8800, Uzhgorod, Voloshin, 54

Dynamics matrix of the complex crystals is determined by a crystal's symmetry, primitive cell constructions and force constants. It has been investigated the structure of dynamics matrixes for crystals AuCu<sub>3</sub> type using both the traditional and the superspace symmetry approach. The phonon branches of AuCu<sub>3</sub> type crystals are investigated.