ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

Р4-6066

Н.М.Плакида

РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В СИЛЬНО АНГАРМОНИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ

ЛАБОРАТОРИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

1971

Р4-6066

Н.М.Плакида

РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В СИЛЬНО АНГАРМОНИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ

*Направлено в **physica status solidi***

1. Введение

Обсуждению рассеяния нейтронов в ангармонических кристаллах посвящено много работ (см., например[1-6]), в которых рассматривалось влияние ангармонизма колебаний атомов решетки на сечение однофононного рассеяния. Учёт ангармонизма приводит в основном к двум эффектам: уширению и сдвигу однофононной линии рассеяния, имеющей вид дельта-функции в гармоническом приближении, и к асимметрии однофононного пика, обусловленной интерференцией одно- и многофононного рассеяния[5,6]. Как показали расчёты, основанные на обычной теории возмущения для слабого ангармонизма[1-6], оба эффекта оказываются достаточно малыми и экспериментальное наблюдение их требует высокоточных измерений.

Однако для квантовых кристаллов с большой энергией нулевых колебаний[7] или для обычных кристаллов при температурах, больших примерно половины температуры плавления, ангармонизм колебаний атомов становится весьма существенным и указанные эффекты могут быть значительными[8]. Помимо этого, применение обычной теории возмущений, использующей в качестве нулевого гармоническое приближение, становится невозможным, и необходимо пользоваться теорией, учитывающей ангармонизмы всех порядков самосогласованным образом /7/. В настоящей работе получено явное выражение для сечения рассеяния с учётом членов всех порядков по импульсу рассеяния нейтрона Q и всех порядков ренормированного ангармонического взаимодействия на основе метода двухвременных функций Грина /9/, развитого нами ранее для описания сильно ангармонических кристаллов /10–12/.

В разделе 2 приводится кумулянтное разложение для сечения рассеяния по неприводимым функциям Грина, которые вычисляются в разделе 3. В разделе 4 рассмотрено однофононное рассеяние.

2. Сечение рассеяния и неприводимые функции Грина

Согласно хорошо известной формуле Ван Хова дифференциальное сечение рассеяния нейтронов имеет вид

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\epsilon} = \frac{q_1}{q_0} S(\vec{Q}, \omega),$$

$$S(\vec{Q}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \sum_{ss'} a_k a_{k'} e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s - \vec{x}_{s'})} \langle e^{-i\vec{Q}\vec{u}_s(t)} e^{i\vec{Q}\vec{u}_{s'}} \rangle, \tag{1}$$

где $\vec{Q} = \vec{q}_0 - \vec{q}_1$, $\omega = (q_0^2 - q_1^2)/2m$ – изменение импульса и энергии нейтрона при рассеянии $(\hbar = 1)$, a_k – длина рассеяния для атома сорта k. Мгновенные координаты атомов решетки записаны в (1) в виде

$$\vec{R}_s(t) = \langle \vec{R}_s \rangle + \vec{u}_s(t) = \vec{x}_s + \vec{u}_s(t), \tag{2}$$

где $\vec{u}_s(t) = exp(iHt)\,\vec{u}_s\,exp(-iHt)$ – оператор смещения атома из равновесного положения $\vec{x}_s = \vec{x}_{\ell k} = \vec{\ell} + \vec{x}_k$, где $\vec{\ell}$ – координата элементарной ячейки $(\vec{\ell} = \vec{\ell}_1 \ldots \vec{\ell}_N)$ и $\vec{x}_k$ – координата атома сорта $k\ (k = 1 \ldots r)$ с массой M_k в элементарной ячейке. Среднее $<\ldots>$ в (1), (2) и далее вычисляется по каноническому ансамблю Гиббса. Гамильтониан ангармонического кристалла запишем в виде

$$H = \sum_s \frac{P_s^2}{2M_k} + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \sum_{1 \ldots n} \Phi_{1 \ldots n}\, u_1 \ldots u_n\,, \tag{3}$$

предполагая, что потенциальную энергию кристалла можно вычислить в адиабатическом приближении и полученную функцию $U(\{\vec{R}_s\})$ разложить в ряд Тейлора по смещениям атомов $u_i\ (i = \{\ell_i\ k_i\ a_i\}, a = x, y, z)$ с коэффициентами разложения

$$\Phi_{1 \ldots n} = \nabla_1 \ldots \nabla_n\, U_0(x_i) = \frac{\partial}{\partial x_1} \ldots \frac{\partial}{\partial x_n} U_0(x_i)\,. \tag{4}$$

Следуя обычной процедуре, выделим в (1) упругую $(e\ell)$ и неупругую (in) части рассеяния

$$S_{e\ell}(\vec{Q}, \omega) = \delta(\omega) \sum_{ss'} a_k a_{k'}\, e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s - \vec{x}_{s'})}\, e^{-W_k(Q)}\, e^{-W_{k'}(Q)}\,, \tag{5}$$

$$\begin{aligned} S_{in}(\vec{Q}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \sum_{ss'} a_k a_{k'}\, e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s - \vec{x}_{s'})} \times \\ \times \sum_{n,n'=1}^{\infty} \frac{(-i)^n\, i^{n'}}{n!\,n'!} <\{(\vec{Q}\vec{u}_s(t))^n - <(\vec{Q}\vec{u}_s)^n>\}\{(\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'} - <(\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'}>\}>, \end{aligned} \tag{6}$$

где мы ввели факторы Дебая-Валлера:

$$e^{-W_k(Q)} = \langle e^{i\vec{Q}\vec{u}_k} \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \langle (i\vec{Q}\vec{u}_k)^n \rangle . \tag{7}$$

Определим далее временные корреляционные функции и двухвременные термодинамические функции Грина согласно /9/:

$$F_{BA}(t-t') = \langle B(t')A(t) \rangle = \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega(t-t')} J_{BA}(\omega), \tag{8а}$$

$$G_{AB}(t-t') = \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega(t-t')} G_{AB}(\omega), \tag{8б}$$

фурье-компоненты которых связаны соотношением /9/

$$J_{BA}(\omega) = -n(\omega) 2\, Im\, G_{AB}(\omega + i\epsilon) = J_{AB}(-\omega) e^{-\frac{\omega}{\theta}}, \tag{9}$$

где $n(\omega) = (e^{\omega/\theta} - 1)^{-1}$. Выбирая $A, B = \{ u_1 \ldots u_n - \langle u_1 \ldots u_n \rangle \}$, неупругую часть (6) перепишем в виде

$$S_{in}(\vec{Q}, \omega) = -\frac{1+n(\omega)}{\pi} \sum_{ss'} a_k a_{k'} e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s - \vec{x}_{s'})} \sum_{n,n'=1}^{\infty} \frac{(-i)^n \, i^{n'}}{n!\,n'!} \times \tag{6а}$$

$$\times \left[Im \langle\langle \{ (\vec{Q}\vec{u}_s)^n - \langle (\vec{Q}\vec{u}_s)^n \rangle \} \mid \{ (\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'} - \langle (\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'} \rangle \} \rangle\rangle_{\omega + i\epsilon} \right].$$

Чтобы выделить в (6а) реальные неупругие процессы многофононного рассеяния, введем неприводимые (ir) функции Грина согласно определению /11/

$$\ll u_1 \dots u_n | u_{1'} \dots u_{n'} \gg^{Ir} =$$

$$= \ll \{ u_1 \dots u_n - \langle u_1 \dots u_n \rangle \} | \{ u_{1'} \dots u_{n'} - \langle u_{1'} \dots u_{n'} \rangle \} \gg - \tag{10}$$

$$- \sum_{m=1}^{n-1} C_n^m \sum_{m'=1}^{n'} C_{n'}^{m'} \langle u_{m+1} \dots u_n \rangle \langle u_{m'+1} \dots u_{n'} \rangle \ll u_1 \dots u_m | u_{1'} \dots u_{m'} \gg^{Ir} -$$

$$- \sum_{m'=1}^{n'-1} C_{n'}^{m'} \langle u_{m'+1} \dots u_{n'} \rangle \ll u_1 \dots u_n | u_{1'} \dots u_{m'} \gg^{Ir},$$

где $C_n^m = n!/m!(n-m)!$. Неприводимая функция Грина (10) не может быть сведена к функциям Грина более низкого порядка по числу фононных операторов произвольным расцеплением операторов, относящихся к одному моменту времени. Подставляя из (10) разложение для полной функции Грина в (6а) и суммируя по n и n' для каждого члена (m, m') /11/, запишем неупругую часть рассеяния в виде

$$S_{In}(\vec{Q},\omega) = -\frac{1+n(\omega)}{\pi} \sum_{ss'} a_k a_{k'} e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s - \vec{x}_{s'})} e^{-W_k(Q)} e^{-W_{k'}(Q)} \times$$

$$\times \sum_{n,n'=1}^{\infty} \frac{(-i)^n i^{n'}}{n!\,n'!} [Im \ll (\vec{Q}\vec{u}_s)^n | (\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'} \gg^{Ir}_{\omega+i\epsilon}], \tag{11}$$

где индексы суммирования m,m' в (10) мы заменили снова на n,n' .

Разложение (10) позволяет также получить определение неприводимой корреляционной функции. Выбирая $n'=1$ в (10) и интегрируя по частотам соответствующие спектральные интенсивности (9), получаем

$$\langle u_1 \dots u_n \rangle = \sum_{m=1}^{n-1} C_{n-1}^m \langle u_{m+2} \dots u_n \rangle \langle u_1 \dots u_{m+1} \rangle^{Ir}, \tag{12}$$

где

$$\langle u_1 \dots u_n \rangle^{Ir} = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, n(\omega) [-Im \ll u_2 \dots u_n | u_1 \gg^{Ir}_{\omega+i\epsilon}]. \tag{13}$$

Выражение для фактора Дебая-Валлера (7) может быть также представлено с помощью (12) в виде разложения по неприводимым корреляционным функциям. Действительно, решая уравнение /12/

$$\frac{\partial}{\partial\lambda} < e^{\lambda\vec{Q}\vec{u}_k} > = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\lambda^{n-1}}{(n-1)!} < (\vec{Q}\vec{u}_k)^n > = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\lambda^{n-1}}{(n-1)!} (< (\vec{Q}\vec{u}_k)^n >^{ir}) < e^{\lambda\vec{Q}\vec{u}_k} >,$$

непосредственно находим

$$W_k(Q) = \frac{1}{2} < (\vec{Q}\vec{u}_k)^n > - \sum_{n=3}^{\infty} \frac{i^n}{n!} (< (\vec{Q}\vec{u}_k)^n >^{ir}). \tag{14}$$

Таким образом, введение неприводимых функций Грина (10) позволяет достаточно просто получить кумулянтные разложения /2/ для неупругой части рассеяния (11) и фактора Дебая-Валлера (14).

3. Самосогласованное определение функций Грина

В дальнейшем более подробно будет рассмотрено неупругое однофононное рассеяние, определяемое функцией Грина

$$G_{ll'}(t-t') = \langle\langle u_l(t); u_{l'}(t') \rangle\rangle.$$

Учитывая явный вид гамильтониана (3), для ее фурье-компоненты получаем следующее уравнение движения:

$$\sum_l (\omega^2 M_l \delta_{ij} - \tilde{\Phi}_{ll}) G_{ll'}(\omega) = \delta_{ll'} + \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} \sum_{1\ldots n} \tilde{\Phi}_{l1\ldots n} G^{ir}_{1\ldots n,l'}(\omega), \tag{15}$$

где в правой части введены согласно (10) неприводимые функции Грина и перенормированные в среднем фононном поле вершины. Подобно (14) выражение для них может быть записано в виде /12/

$$\tilde{\Phi}_{1\ldots n} = \nabla_1 \ldots \nabla_n < U(x_l + u_l) > = \nabla_1 \ldots \nabla_n < \exp(\sum_l u_l \nabla_l) > U_0(x_l) = \tag{16}$$

$$= \nabla_1 \ldots \nabla_n \exp\left(\sum_{n=3}^{\infty} \frac{1}{n'!} \sum_{1'\ldots n'} < u_{1'} \ldots u_{n'} >^{ir} \nabla_{1'} \ldots \nabla_{n'}\right) \tilde{U}(x_l),$$

где потенциальная энергия в самосогласованном гармоническом приближении имеет вид

$$\tilde{U}(x_l) = \exp\left(\frac{1}{2} \sum_{12} \langle u_1 u_2 \rangle \nabla_1 \nabla_2 \right) U_0(x_l). \tag{16a}$$

Дифференцируя теперь неприводимую функцию Грина в (15)

$$G^{lr}_{1\ldots n,\, l'}(t-t') = \langle\langle u_1(t) \ldots u_n(t);\; u_{l'}(t') \rangle\rangle^{lr}$$

по времени t', получаем для нее уравнение

$$\sum_{l'} (\omega^2 M_{l'} \delta_{l'l'} - \tilde{\Phi}_{l'l'})\, G^{lr}_{1\ldots n l'}(\omega) = \sum_{n'=2}^{\infty} \frac{1}{n'!} \sum_{1'\ldots n'} \tilde{\Phi}_{l'1'\ldots n'}\, G^{lr}_{1\ldots n, 1'\ldots n'}(\omega), \tag{17}$$

где мы учли, что неоднородный член согласно (10) равен нулю:

$$\langle [u_1 \ldots u_n, \dot{P}_l] \rangle^{lr} = 0, \quad (n \geq 2).$$

Систему уравнений (15) (17) решаем, вводя "нулевую" функцию Грина, описывающую распространение незатухающих фононов в среднем фононном поле[10,11]:

$$\sum_{l} (\omega^2 M_l \delta_{ll} - \tilde{\Phi}_{ll})\, G^0_{ll'}(\omega) = \delta_{ll'}\,. \tag{18}$$

Умножая (15) и (17) слева на G^0, получаем

$$G_{ll'}(\omega) = G^0_{ll'}(\omega) + \sum_{ll'} G^0_{ll}(\omega)\, P_{ll'}(\omega)\, G^0_{l'l'}(\omega), \tag{19}$$

$$G^{lr}_{1\ldots n, l'}(\omega) \quad \sum_{n'=2}^{\infty} \frac{1}{n'!} \sum_{l'1'\ldots n'} \tilde{\Phi}_{1'\ldots n' l'}\, G^0_{l'l'}(\omega)\, G^{lr}_{1\ldots n, 1'\ldots n'}(\omega), \tag{20}$$

где

$$P_{ll'}(\omega)=\sum_{n,n'=2}^{\infty}\frac{1}{n!\,n'!}\sum_{n,n'}\tilde{\Phi}_{l1\ldots n}\tilde{\Phi}_{1'\ldots n'l'}\,G^{lr}_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega). \qquad (21)$$

Уравнения (19) - (21) можно записать в более удобном виде, если ввести связанную часть $(c)\ K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)$ многофононной неприводимой функции Грина $G^{lr}_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)$ согласно уравнению

$$G^{lr}_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)=K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)+\sum_{\bar{n},\bar{n}'=2}^{\infty}\frac{1}{\bar{n}!\,\bar{n}'!}\times \qquad (22)$$

$$\times\sum_{ll'(\bar{n},\bar{n}')}K_{1\ldots n,\bar{1}\ldots\bar{n}}(\omega)\,\tilde{\Phi}_{\bar{1}\ldots\bar{n}l}\,G^{0}_{ll'}(\omega)\,\tilde{\Phi}_{l'\bar{1}'\ldots\bar{n}'}\,G^{lr}_{\bar{1}'\ldots\bar{n}',1'\ldots n'}(\omega).$$

Функция $K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)$ не содержит частей, соединенных одной линией G^0, т.е. она не "разрезаема" по линии G^0. Умножая (22) на $\tilde{\Phi}_{1\ldots,nl}$, $\tilde{\Phi}_{1'\ldots n'l'}$ и суммируя по $(1\ldots n),(1'\ldots n')\equiv(n,n')$, с учётом (21) получаем уравнение

$$P_{ll'}(\omega)=\Pi_{ll'}(\omega)+\sum_{ll'}\Pi_{ll'}(\omega)G^{0}_{l'l}(\omega)P_{ll'}(\omega), \qquad (23)$$

где

$$\Pi_{ll'}(\omega)=\sum_{n,n'=2}^{\infty}\frac{1}{n!\,n'!}\sum_{(n,n')}\tilde{\Phi}_{l1\ldots n}\,K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega)\,\tilde{\Phi}_{1'\ldots n'l'}\,. \qquad (24)$$

Решая совместно (19), (20) и (23), получаем, учитывая (18), следующие выражения для функций Грина:

$$G_{ll'}(\omega) = \{\omega^2 M_l \delta_{ll'} - \tilde{\Phi}_{ll'} - \Pi_{ll'}(\omega)\}^{-1}, \qquad (25)$$

$$G^{lr}_{1\ldots n,l'}(\omega) = \sum_{n'=2}^{\infty} \frac{1}{n'!} \sum_{l_1'\ldots l_n'} \tilde{\Phi}_{1'\ldots n' l_1} G_{l_1 l'}(\omega) K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega). \qquad (26)$$

Как видно из уравнения Дайсона (25), функция $\Pi_{ll'}$ является массовым оператором однофононной функции Грина, что соответствует ее определению (24) через связанную часть многофононной функции Грина. Уравнение (22) с помощью (25) мы можем также переписать в виде

$$G^{lr}_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega) = K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega) + \sum_{\bar{n},\bar{n}'=2}^{\infty} \frac{1}{\bar{n}!\bar{n}'!} \sum_{ll'(\bar{n},\bar{n}')} \times$$

$$\times K_{1\ldots n,\bar{1}\ldots\bar{n}}(\omega)\tilde{\Phi}_{\bar{1}\ldots\bar{n}l} G_{ll'}(\omega)\tilde{\Phi}_{l'\bar{1}'\ldots\bar{n}'} K_{\bar{1}'\ldots\bar{n}',1'\ldots n'}(\omega). \qquad (27)$$

Отметим, что полученная система уравнений является самосогласованной, поскольку ренормированные вершины (16) согласно (13) также определяются функцией Грина (26). Следовательно, для нахождения приближенных решений системы уравнений достаточно получить приближенное выражение для функции K в (24), (26). Простейшим приближением является парное приближение для неприводимой многофононной функции Грина, которое описывает независимое распространение "одетых" фононов:

$$K_{1\ldots n,1'\ldots n'}(\omega) \equiv \langle\langle u_1 \ldots u_n | u_{1'} \ldots u_{n'} \rangle\rangle^{lr,c}_{\omega} =$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\omega-\omega'} \left(e^{\frac{\omega'}{\theta}} - 1\right) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{-i\omega' t} \langle u_1(t) \ldots u_n(t) | u_{1'}, \ldots u_{n'} \rangle^{ir,c} \approx$$

$$\approx \delta_{n,n'} n! \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\omega-\omega'} \left(e^{\frac{\omega'}{\theta}} - 1\right) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{-i\omega' t} \prod_{l=1}^{n} \langle u_l(t) u_{l'} \rangle, \qquad (28)$$

где мы воспользовались спектральным представлением двухвременной функции Грина [9] и учли симметрию ее по индексам $(1 \ldots n)$, $(1' \ldots n')$. Временные корреляционные функции $\langle u_l(t) u_{l'} \rangle$ в (28) определяются согласно (8), (9) по функции Грина (25). Таким образом, самосогласованная система уравнений (16), (24)-(26), (28) становится замкнутой.

Приближение (28) соответствует вычислению массового оператора (24) во втором порядке самосогласованной теории возмущений [7,12]:

$$\Pi^{(2)}_{ll'}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\omega-\omega'} \left(e^{\frac{\omega'}{\theta}} - 1\right) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{-i\omega' t} \times$$

$$\times \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(\sum_{ll'} \langle u_l(t) u_{l'} \rangle \nabla_l \nabla_{l'} \right)^n \nabla_l \tilde{U}(x_l) \nabla_{l'} \tilde{U}(x_{l'} \quad), \qquad (29)$$

где операторы ∇_l и $\nabla_{l'}$ действуют соответственно на функции $\tilde{U}(x_l)$ и $\tilde{U}(x_{l'})$ (см. (16а)). Матрица силовых постоянных в (25) в этом же приближении второго порядка самосогласованной теории имеет вид

$$\tilde{\Phi}^{(2)}_{ll} = \nabla_l \nabla_l \left(\tilde{U}(x_l) + \Delta U_2(x_l) \right), \qquad (30)$$

где поправка второго порядка ΔU_2 к потенциальной энергии (16а) определяется первым членом разложения экспоненты в (16) по степеням неприводимых корреляционных функций [12]:

$$\Delta U_2(x_l) = \sum_{n=3}^{\infty} \frac{1}{n!} \sum_{1\ldots n} \langle u_1 \ldots u_n \rangle^{ir} \nabla_1 \ldots \nabla_n \tilde{U}(x_l) =$$

$$=2\,Re\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{\omega}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{dt}{2\pi}\,e^{-i\omega t}\sum_{n=3}^{\infty}\frac{1}{n!}\Big(\sum_{ll'}<u_l(t)u_{l'}>\nabla_l\nabla_{l'}\Big)^n\,\tilde{U}(x_l)\tilde{U}(x_{l'}). \qquad (31)$$

При выводе (31) были использованы уравнения (13), (26), (28).

Для дальнейшего обсуждения нам будет удобно перейти в функциях Грина к разложению по плоским волнам согласно обычному представлению для вектора смещения

$$u^{a}_{\ell k}=\frac{1}{\sqrt{NM_k}}\sum_{\vec{q}l}e^{a}_{\vec{q}l}(k)e^{i\vec{q}\vec{x}_s}\frac{1}{\sqrt{2\omega_{\vec{q}l}}}A_{\vec{q}l}\,, \qquad (32)$$

где вектора поляризации $\vec{e}_q=\vec{e}^{\,*}_{-q}(q=\vec{q}j\,,\;-q=-\vec{q}j)$ образуют полный и ортонормированный базис:

$$\sum_{a}\sum_{k=1}^{r}e^{*a}_{\vec{q}l}(k)e^{a}_{\vec{q}l'}(k)=\delta_{ll'}\,;\quad \sum_{l=1}^{3r}e^{*a}_{\vec{q}l}(k)e^{\beta}_{\vec{q}l}(k')=\delta_{a\beta}\delta_{kk'}\,. \qquad (33)$$

Выбор частот ω_q и векторов $\vec{e}_q$ в разложении (32) произволен. Нам будет удобно выбрать частоты ω_q в приближении самосогласованного фононного поля, которое является хорошим нулевым приближением в теории сильно ангармонических кристаллов /7/, согласно уравнению

$$e^{a}_{\vec{q}l}(k)\omega^{2}_{\vec{q}l}=\sum_{\beta s'}e^{\beta}_{\vec{q}l}(k')\frac{1}{\sqrt{M_kM_{k'}}}\tilde{\Phi}^{a\beta}_{ss'}e^{-i\vec{q}(\vec{x}_s-\vec{x}_{s'})}\,, \qquad (34)$$

где матрица силовых постоянных определяется уравнением (16), в приближении второго порядка – (30). При таком выборе частот ω_q фурье-компонента нулевой функции Грина (18) оказывается диагональной по индексу поляризации:

$$G^{0}_{qq'}(\omega)=\ll A_{\vec{q}l}\,|\,A^{+}_{\vec{q}l'}\gg^{(0)}_{\omega}=\delta_{ll'}\frac{2\omega_q}{\omega^2-\omega_q^2}\,, \qquad (35)$$

а уравнение для фурье-компоненты полной функции Грина (25) принимает вид

$$(\omega^2-\omega_q^2)G_{qq'}(\omega)=2\omega_q\delta_{qq'}+2\omega_q\sum_{q_1}\Pi_{qq_1}(\omega)G_{q_1q'}(\omega), \qquad (36)$$

где массовый оператор согласно (24) имеет вид

$$\Pi_{qq'}(\omega)=\frac{\Delta(\vec{q}-\vec{q}\,')}{2N}\sum_{ss'}\frac{e_q^{*\alpha}(k)e_{q'}^{\beta}(k')}{(M_kM_{k'}\omega_q\omega_{q'})^{1/2}}e^{-i\vec{q}(\vec{x}_s-\vec{x}_{s'})}\Pi_{ss'}^{\alpha\beta}(\omega)= \qquad (37)$$

$$=\sum_{n,n'=2}^{\infty}\frac{1}{n!n'!}\sum_{nn'}\tilde{V}_{n+1}(-q1\ldots n)\tilde{V}_{n'+1}(q'1'\ldots n')\langle\langle A_1\ldots A_n)A_{1'}\ldots A_{n'}\rangle\rangle_{\omega}^{ir},$$

где введены ренормированные вершины фонон-фононного взаимодействия:

$$\tilde{V}_n(1\ldots n)=\frac{\Delta(\vec{q}_1+\ldots+\vec{q}_n)}{(2N)^{n/2}}\sum_{(\alpha s)}\tilde{\Phi}^{\alpha_1\ldots\alpha_n}_{s_1\ldots s_n}\prod_{l=1}^{n}\left(\frac{e_{q_l}^{\alpha_l}(k_l)}{\sqrt{M_{k_l}}\,\omega_l}e^{i\vec{q}_l\vec{x}_l}\right), \qquad (38)$$

$\Delta(\vec{q})=\sum_{\vec{r}}\delta_{\vec{q},\vec{r}}$, $\vec{r}$ – вектора обратной решетки, $1=q_1=\vec{q}_1\,j_1,\ldots$.
Однофононную функцию Грина в (36), пренебрегая перемешиванием поляризаций $\Pi_{qq'}\approx\delta_{jj'}\Pi_q$, запишем в виде

$$G_q(\omega+i\epsilon)=\frac{2\omega_q}{\omega^2-[\omega_q^2+2\omega_q\Delta_q(\omega)]+i2\omega_q\Gamma_q(\omega)}, \qquad (39)$$

где введены зависящие от частоты сдвиг и ширина однофононного возбуждения:

$$\Delta_{\vec{q}j}(\omega)=\mathrm{Re}\,\Pi_{\vec{q}j}(\omega), \quad \Gamma_{\vec{q}j}(\omega)=-\mathrm{Im}\,\Pi_{\vec{q}j}(\omega+i\epsilon).$$

Рассмотрим парное приближение (28) для неприводимой многофононной функции Грина:

$$\langle\langle A_1 \dots A_n \mid A_1' \dots A_n' \rangle\rangle_\omega^{ir,c} \approx \delta_{n,n'} n!\, \delta_{-q_1 q_1'} \dots \delta_{-q_n q_n'} \, F(q_1 \dots q_n ;\omega), \tag{40}$$

$$F(q_1 \dots q_n ;\omega) = \int \dots \int \frac{d\omega_1 \dots d\omega_n}{\omega - (\omega_1 + \dots + \omega_n)} \, \frac{n(\omega_1) \dots n(\omega_n)}{n(\omega_1 + \dots + \omega_n)} \, g(q_1,\omega_1) \dots g(q_n,\omega_n),$$

где спектральная плотность частот моды $(\vec{q}\, j)$ определяется мнимой частью функции Грина (39):

$$g(\vec{q}\, j,\omega) = -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} G_{\vec{q} j}(\omega + i\epsilon) = \frac{2\omega_q}{\pi} \frac{2\omega_q \Gamma_q(\omega)}{[\omega^2 - (\omega_q^2 + 2\omega_q \Delta_q(\omega))]^2 + [2\omega_q \Gamma_q(\omega)]^2} . \tag{41}$$

В этом приближении массовый оператор (37) принимает вид

$$\Pi_{\vec{q} j}(\omega) = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} \sum_{q_1 \dots q_n} |\tilde{V}_{n+1}(-q q_1 \dots q_n)|^2 \, F(q_1 \dots q_n ;\omega), \tag{29a}$$

а поправка второго порядка (31) к динамической матрице (30) равна:

$$\Delta U_2(x_l) = -\sum_{n=3}^{\infty} \frac{1}{n!} \sum_{q_1 \dots q_n} |\tilde{V}_n(q_1 \dots q_n)|^2 \operatorname{Re} F(q_1 \dots q_n ;\omega = 0). \tag{30a}$$

При выполнении численных расчетов решение самосогласованной системы уравнений с учетом всех порядков ангармонизма в (29а), (30а) представляется затруднительным, и обычно учитывают лишь первые члены, описывающие эффекты ренормированного кубического ангармонизма. Кроме того, при интеграции по частотам в (40) спектральную плотность

(41) приближенно вычисляют по нулевой функции Грина (35), как, например,

$$F^0(q_1 q_2, \omega) = \int \frac{d\omega' d\omega''}{\omega - (\omega' + \omega'')}[1 + n(\omega') + n(\omega'')] g^0(q_1, \omega') g^0(q_2, \omega'') =$$

$$= \frac{2(\omega_1 + \omega_2)(1 + n_1 + n_2)}{\omega^2 - (\omega_1 + \omega_2)^2} - \frac{2(\omega_1 - \omega_2)(n_1 - n_2)}{\omega^2 - (\omega_1 - \omega_2)^2}, \tag{42}$$

где $n_1 = n(\omega_1)$, $\omega_1 = \omega_{q_1}$ и т.д. (ср. с /10/).

Отметим, что парное приближение для массового оператора (29) (29а) может быть использовано лишь в области бесстолкновительного режима (нулевого звука), когда частота $\omega \gg 1/\tau$ (τ – характерное время жизни тепловых фононов). В области гидродинамического режима (первого звука) $\omega \ll 1/\tau$ и предположение о независимом распространении фононов (28) (40) теряет смысл. В этом случае необходимо рассмотреть уравнения движения для многофононных функций Грина. Например, пользуясь уравнениями движения, нетрудно получить систему трех уравнений для двухфононных функций Грина, как это описано в /10/, решение которой для связанной части можно представить в виде уравнения

$$K_{12,1'2'}(\omega) \equiv \langle\langle A_1 A_2 | A^+_{1'} A^+_{2'} \rangle\rangle^{ir,c}_\omega =$$

$$= F^0(1,2,\omega)\{(\delta_{11'}\delta_{22'} + \delta_{12'}\delta_{21'}) + \frac{1}{2}\sum_{34}\tilde{V}_4(-1,-2,3,4) K_{34,1'2'}(\omega)\}.$$

Формальное решение этого уравнения имеет вид

$$K_{12,1'2'}(\omega)=[1-C(\omega)]^{-1}_{12,1'2'}\ 2F^0(1',2',\omega), \tag{43}$$

где матрица

$$[1-C(\omega)]_{12,34}=\delta_{13}\,\delta_{34}-F^0(1,2,\omega)\,\frac{1}{2}\,\tilde{V}_4(-1,-2,3,4)$$

и $F^0(1,2,\omega)$ определено в (42). Полученное на основании этого решения выражение для массового оператора (37) при $n=n'=2$ позволяет найти изотермические модули упругости в первом порядке самосогласованной теории в пределе длинных волн $q\to 0$, $\omega=0$, как было показано в /13/.

4. Однофононное рассеяние

Рассмотрим более подробно однофононное неупругое сечение рассеяния, которое определяется обычно в экспериментах по неупругому рассеянию медленных нейтронов. Сохраняя в (11) члены с $n=1$ либо $n'=1$ и пользуясь представлением (27) для членов с $n,n'\geq 2$, однофононное рассеяние запишем в виде

$$S^{(1)}_{in}(\vec{Q},\omega)=-\frac{1+n(\omega)}{\pi}\sum_{ss'}a_k a_{k'}\,e^{-i\vec{Q}(\vec{x}_s-\vec{x}_{s'})}\,e^{-W_k(Q)}\,e^{-W_{k'}(Q)}\times$$

$$\times\{Im\ll\vec{Q}\vec{u}_s|\vec{Q}\vec{u}_{s'}\gg_E+\sum_{n=2}^{\infty}\frac{i^{n+1}}{n!}[(-1)^n Im\ll(\vec{Q}\vec{u}_s)^n|\vec{Q}\vec{u}_{s'}\gg^{ir}_E-$$

$$-Im\ll\vec{Q}\vec{u}_s|(\vec{Q}\vec{u}_{s'})^n\gg_E]+\sum_{n,n'=2}^{\infty}\frac{(-i)^n i^{n'}}{n!n'!}\sum_{\bar{n},\bar{n}'=2}^{\infty}\frac{1}{\bar{n}!\bar{n}'!}\sum_{ll'(\bar{n},\bar{n}')}\tilde{\Phi}_{l\bar{1}\ldots\bar{n}}\times$$

$$\times\tilde{\Phi}_{l'\bar{1}'\ldots\bar{n}'}Im[\ll(\vec{Q}\vec{u}_s)^n|u_{\bar{1}}\ldots u_{\bar{n}}\gg^{ir,c}_E G_{ll'}(E)\ll u_{\bar{1}'}\ldots u_{\bar{n}'}|(\vec{Q}\vec{u}_{s'})^{n'}\gg^{ir,c}_E]\}, \tag{44}$$

где $E=\omega+i\epsilon$. Первый член в фигурных скобках описывает чистое однофононное рассеяние, а остальные члены обусловлены интерференцией однофононного и многофонного рассеяния. Запишем выражение (44) в более удобной форме, переходя к импульсному представлению (32) и используя решение (26):

$$S^{(1)}_{in}(\vec{Q},\omega)=N\sum_q \frac{1+n(\omega)}{2\omega_q}\{[|F_q(\vec{Q})+H_q(\vec{Q},\omega)|^2-|J_q(\vec{Q},\omega)|^2]\times$$

$$\times[-\frac{1}{\pi}ImG_q(\omega+i\epsilon)]+2J_q(\vec{Q},\omega)[F^*_q(\vec{Q})+H^*_q(\vec{Q},\omega)][-\frac{1}{\pi}ReG_q(\omega)]\}. \qquad (45)$$

Здесь, следуя /6/ , мы ввели функции

$$F_{\vec{q}l}(\vec{Q})=\Delta(\vec{q}-\vec{Q})\sum_k \frac{a_k}{\sqrt{M_k}}(-i\vec{Q}\vec{e}_q(k))e^{-W_k(Q)}e^{-i(\vec{Q}-\vec{q})\vec{x}_k}, \qquad (46)$$

$$H_{\vec{q}l}(\vec{Q},\omega)=\Delta(\vec{q}-\vec{Q})\sum_k a_k e^{-W_k(Q)}e^{-i(\vec{Q}-\vec{q})\vec{x}_k}\sum_{n,n'=2}^{\infty}\frac{(-i)^n}{n!n'!}\frac{\sqrt{2N\omega_q}}{(2NM_k)^{n/2}}\times$$

$$\times\sum_{(n,n')}\tilde{V}_{n+1}(q,1'\ldots n')\frac{\vec{Q}\vec{e}_1(k)\ldots\vec{Q}\vec{e}_n(k)}{(\omega_1\ldots\omega_n)^{1/2}}Re\langle\langle A_1,\ldots A_{n'}|A_1\ldots A_n\rangle\rangle^{ir,c}_{\omega}\approx$$

$$\approx\Delta(\vec{q}-\vec{Q})\sum_k a_k e^{-W_k(Q)}e^{-i(\vec{Q}-\vec{q})\vec{x}_k}\times$$

$$\times \sum_{n=2}^{\infty} \frac{(-i)^n}{n!} \frac{\sqrt{2N\omega_q}}{(2NM_k)^{n/2}} \sum_{q_1 \ldots q_n} \tilde{V}_{n+1}(q, -q_1 \ldots -q_n) \times \qquad (47)$$

$$\times \frac{\vec{Q}\vec{e}_1(k) \ldots \vec{Q}\vec{e}_n(k)}{(\omega_1 \ldots \omega_n)^{1/2}} \, Re\, F(q_1 \ldots q_n; \omega),$$

где последнее выражение получено в парном приближении (40). Функция $J_{ql}(\vec{Q}, \omega)$ в (45) имеет такой же вид, что и (47), но определяется мнимой частью многофононной функции Грина, или в приближении (40), $Im\ F\ (q_1 \ldots q_n;\ \omega + i\epsilon)$.

Выражение для факторов Дебая-Валлера в функциях F_q, H_q и J_q в (45) может быть записано согласно (13), (14) в виде

$$W_k(Q) = \frac{1}{2NM_k} \sum_q \frac{|\vec{Q}\vec{e}_q(k)|^2}{2\omega_q} \int_0^{\infty} d\omega\, cth \frac{\omega}{2\theta}\, g\,(q, \omega) + \Delta W_k(Q), \qquad (48)$$

где поправка к фактору от высших степеней Q с учетом решения (26) в парном приближении (28) имеет вид

$$\Delta W_k(Q) = -\sum_{n=3}^{\infty} \frac{i^n}{n!} 2\, Im \int_0^{\infty} dt\ \left(\sum_s < (\vec{Q}\vec{u}_k(t))(\vec{u}_s \vec{\nabla}_s) > \right)^n < U(R_l) > =$$

$$(49)$$

$$= \sum_{n=3}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \sum_{1 \ldots n} \tilde{V}_n(-1, \ldots -n)\, e^{i(\vec{q}_1 + \ldots + \vec{q}_n)\vec{x}_k} \frac{\vec{Q}\vec{e}_1(k) \ldots \vec{Q}\vec{e}_n(k)}{(2NM_k)^{n/2} (\omega_1 \ldots \omega_n)^{1/2}} \times$$

$$\times\, Re\, F(1 \ldots n, \omega = 0).$$

5. Обсуждение

Общие выражения для однофононного неупругого сечения рассеяния (45)-(47) и фактора Дебая-Валлера (48)-(49) являются обобщением результатов, полученных ранее [1-6,8], поскольку в них приводятся в явном виде поправки всех порядков по импульсу рассеяния Q и ренормированному ангармоническому взаимодействию. Помимо этого, частоты однофононных возбуждений, определяемых максимумами функции $g(\vec{q}j,\omega)$ (41), вычисляются согласно разделу 3 с учетом ангармонизмов всех порядков на основе самосогласованной теории. Поправки высших порядков по Q могут быть существенными, когда параметр разложения в (47), (49) $Q\sqrt{\overline{u^2}}\sim 1$. Учитывая, что среднеквадратичные смещения атомов для квантового кристалла твердого гелия $\sqrt{\overline{u^2}}\sim 0{,}15a$, а для обычных кристаллов вблизи точки плавления - $\sqrt{\overline{u^2}}\sim 0{,}1a$ (a - среднее межатомное расстояние), находим, что учет высших членов по Q уже существен при $Q\simeq(1\div 2)(2\pi/a)$, то есть при обычных для эксперимента значениях Q. При этом за счет интерференционных членов в (45), определяемых функциями H_q и J_q, должна наблюдаться сильная зависимость от величины Q как высоты пика, так и его асимметрии, обусловленной вторым членом в (45) $(-\mathrm{Re}\,G_q(\omega))$ [5,6,8]. Положение центра пика, определяемого в основном максимумом функции $g(q,\omega)$ (41), является согласно разделу 3 функцией температуры.

В настоящей работе не приводятся численные оценки, поскольку, как отмечалось в разделе 3, самосогласованное решение уравнений с учетом ангармонизмов всех порядков представляет существенные трудности. Обычно удается учесть лишь первые члены разложений в (47), (49) и члены с ренормированным кубическим ангармонизмом в (37) или (29а), вычисляя функцию $F(q_1q_2,\omega)$ в нулевом приближении (42). Подобные оценки приводятся, например, в [14-16], где дается их сравнение с экспериментом.

Литература

1. В.Н.Кащеев, М.А.Кривоглаз. ФТТ, 3, 1528 (1961).
2. A.A. Maradudin, A.E. Fein. Phys.Rev., 128, 2589 (1962).
3. B.V. Thompson. Phys.Rev., 131, 1420 (1963).
4. T. Högberg. Ark.Fys. (Sweden) 34, 121 (1967).
5. V. Ambegaokar, J.M. Conway, G. Baym. Lattice Dynamics. Ed. by R.F. Wallis (Pergamon, London) 1965, p. 261; A.A. Maradudin, V. Ambegaokar. Phys.Rev., 135, A1071 (1964).
6. R.A. Cowley, W.J.L. Buyers. J.Phys. (C), 2, 2262 (1969).
7. N.R. Werthamer. Am.J.Phys., 37, 763 (1969).
8. N.R. Werthamer. Phys.Rev., A2, 2050 (1970).
9. Д.Н.Зубарев. Неравновесная статистическая термодинамика, Наука, Москва, 1971, § 16.
10. Н.М.Плакида, Т.Шиклош. phys. stat.sol., 33, 103 (1969).
11. Н.М.Плакида. ТМФ, 5, 147 (1970).
12. Н.М.Плакида. Препринт ОИЯИ, Р4-5948, Дубна, 1971.
13. W. Götze, K. Michel. Z. Phys., 217, 170 (1968).
14. T.R. Koehler. Phys.Rev.Lett., 22, 777 (1969).
15. G.K. Horton, V.V. Goldman, M.L. Klein. J.Appl.Phys., 41, 5138 (1970); Phys.Rev.Lett., 24, 1424 (1970).
16. H.R. Glyde. Canad.J.Phys., 49, 761 (1971).

Рукопись поступила в издательский отдел
5 октября 1971 года