

УДК 536.631; 544.223.22

В. Н. Наумов, А. Б. Тагаев, А. Е. Мусихин

Институт неорганической химии им. А. В. Николаева СО РАН
пр. Акад. Лаврентьева, 3, Новосибирск, 630090, Россия

E-mail: vn@niic.nsc.ru, anatoliy.musikhin@gmail.com

ПЛОТНОСТЬ ФОНОННЫХ СОСТОЯНИЙ ТВЕРДЫХ ТЕЛ ИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ТЕПЛОЕМКОСТИ

Предлагается новый метод вычисления спектральной плотности фоновых состояний $g(\omega)$ из экспериментальных данных по теплоемкости $C(T)$, полученных в широком интервале температур. На начальном этапе вычислений $g(\omega)$ описывается на асимптотиках (вблизи нулевых и граничных частот). Параметры могут быть определены из кривой $C(T)$. Полученное таким образом нулевое приближение для плотности фоновых состояний $g(\omega)$ затем уточняется посредством итерационного процесса, при котором осуществляется перераспределение по частотам колебательных мод нулевого приближения. Итерационный процесс связан с уменьшением разницы между расчетной и экспериментальной теплоемкостью и управляется перераспределением колебательных мод. Метод рассмотрен для ряда модельных спектров, имеющих разную степень сложности. Полученные результаты указывают на возможность выделения до трех пиков в $g(\omega)$ с правильным описанием их формы. Вычислена плотность состояний для алюминия и сделано сравнение с результатами исследований, представленными в литературе.

Ключевые слова: теплоемкость, плотность фоновых состояний, спектр возбуждения основного состояния кристалла.

Введение

Плотность фоновых состояний $g(\omega)$ – одна из важнейших характеристик твердых тел. Получение информации о $g(\omega)$ занимает важное место при исследовании различных явлений в твердых телах.

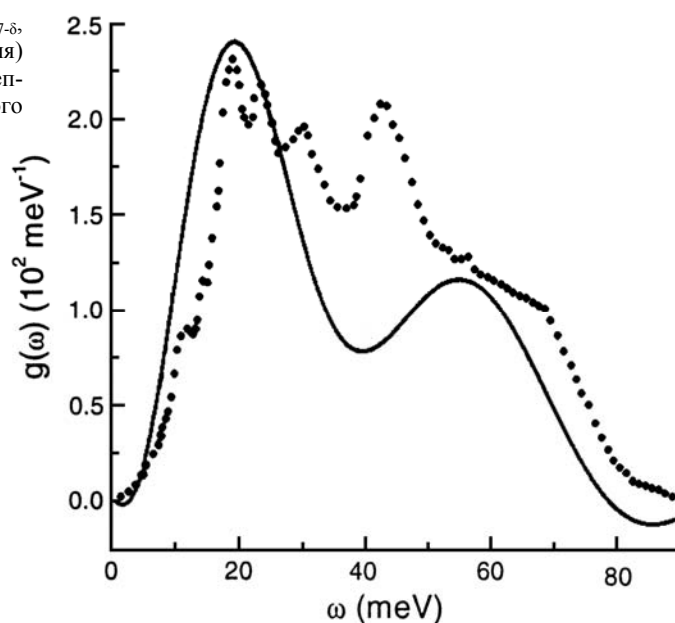
Плотность фоновых состояний может быть определена при использовании различных спектральных методов. Среди них главным является метод неупругого рассеяния нейтронов. Теоретические исследования также позволяют получать информацию о $g(\omega)$. Здесь базовым подходом является метод динамики решетки. Существуют также различные подходы для получения информации о $g(\omega)$, которые включают как теоретические, так и экспериментальные методы исследования.

В 1954 г. Лифшицем [1] был предложен подход, связанный с определением плотности фоновых состояний бозе-системы исходя из экспериментальных данных о ее

теплоемкости в широком интервале температур, который основывается на возможности существования устойчивых решений обратных задач [2]. С тех пор появляются различные модели для решения этой задачи [3–10], общим свойством которых является использование быстро затухающих функций [6–8] или регуляризирующих операторов Тихонова [3–5; 9; 10].

Многообразие подходов к восстановлению спектра $g(\omega)$ из теплоемкости $C(T)$ показывает, что поиск простых методов решения продолжается (рис. 1). Это связано с тем, что пока не найден способ, позволяющий практически восстанавливать $g(\omega)$ из $C(T)$ для широкого круга веществ. В данной работе предложен новый подход к определению спектральной плотности фоновых состояний из данных по низкотемпературной теплоемкости. Отличительной особенностью предлагаемого подхода является учет на первом этапе расчета поведения $g(\omega)$ при малых и граничных частотах.

Рис. 1. Фононный спектр $g(\omega)$ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, полученный в работах [9; 10] (сплошная линия) на основе экспериментальных данных по теплоемкости [11], и $g(\omega)$ по данным неупругого рассеяния нейтронов [12] (точки)



Описание метода расчета плотности фононных состояний $g(\omega)$ из экспериментальных данных по теплоемкости $C(T)$

При вычислении плотности фононных состояний предлагаемым методом можно выделить три этапа. На первом находятся асимптотические характеристики плотности фононных состояний $g(\omega)$ (при $\omega \rightarrow 0$ и $\omega \rightarrow \omega_c$, где ω_c – граничная частота спектра) – выбор так называемого нулевого приближения $g_0(\omega)$. Выбор нулевого приближения $g_0(\omega)$ и соответственно $C_0(T)$ осуществляется таким образом, чтобы оно хорошо описывало поведение теплоемкости на асимптотиках (при $T \rightarrow 0$ и $T \rightarrow \infty$). На втором этапе неточное описание $g(\omega)$ с помощью нулевого приближения $g_0(\omega)$ уточняется определенным перераспределением числа колебательных мод по частотам. Такое перераспределение осуществляется итерационным путем, который, дискретно изменяя форму плотности состояний нулевого приближения, приводит в итоге к уменьшению разницы между расчетной и экспериментальной теплоемкостью. Следует отметить, что учет асимптотического поведения $C(T)$ при высоких температурах на начальном этапе расчета спектральной плотности $g(\omega)$ является существенным моментом, так как это значительно понижает степень некорректности решаемой задачи и позволяет организовать сходящийся итерационный про-

цесс. Для выяснения степени однозначности получаемого решения вычисление $g(\omega)$ производится для различных выбранных нулевых приближений. На третьем этапе осуществляется усреднение найденных плотностей состояний, полученных при различных нулевых приближениях.

Асимптотические характеристики $g(\omega)$ и выбор нулевого приближения

Фундаментальное соотношение, которое связывает теплоемкость твердого тела $C(T)$ с его спектральной плотностью фононных состояний $g(\omega)$, имеет вид

$$C(T) = 3Nk_B \int_0^{\omega_c} g(\omega) \Psi(x) d\omega, \tag{1}$$

где $\Psi(x) = \frac{x^2 e^{-x}}{(1 - e^{-x})^2}$ есть функция Эйн-

штейна, $x = \frac{\hbar\omega}{k_B T}$; N – число атомов; k_B и \hbar – соответственно константы Больцмана и Планка. Функция $g(\omega)$ в выражении (1) нормирована на единицу:

$$\int_0^{\omega_c} g(\omega) d\omega = 1. \tag{2}$$

Поскольку колебательные характеристики кристалла связаны лишь с решеточной компонентой теплоемкости, которая в подавляющем большинстве случаев составляет 95 % и более от полной теплоемкости

твердого тела, необходимо иметь точную информацию о температурной зависимости этой компоненты. Таким образом, при восстановлении плотности фоновых состояний из данных о теплоемкости должны быть корректно учтены и отняты все другие ее компоненты (электронная, ангармоническая, магнитная, если она есть, и др.).

Функциональная зависимость теплоемкости $C(T)$ твердых тел вблизи нуля и в области высоких температур определяется асимптотическими характеристиками плотности фоновых состояний $g(\omega)$, которые могут быть определены из данных по теплоемкости соответственно при низких и высоких температурах.

Известно, что теплоемкость решетки любого твердого тела, начиная с некоторой достаточно низкой температуры T_0 , подчиняется закону Дебая:

$$C(T) = \frac{12\pi^4}{5} Nk_B \left(\frac{T}{\Theta_D(0)} \right)^3,$$

$$\Theta_D(0) = \frac{\hbar\omega_0}{k_B}.$$

При этом фоновая плотность состояний в низкочастотной области пропорциональна

квадрату частоты $g(\omega) \sim \omega^2$. Таким образом, из экспериментов по теплоемкости ниже T_0 можно определить параметр ω_0 , связанный с температурой Дебая при нуле $\Theta_D(0)$ и тем самым получить зависимость $g(\omega)$.

При высоких температурах, где справедливо высокотемпературное разложение функции (1) по четным моментам $g(\omega)$ [13], теплоемкость определяется граничной частотой фонового спектра $g(\omega)$. Она по величине близка к предельному моменту $g(\omega)$ и может быть определена с использованием техники, описанной в работах [13–15]. Граничная частота также может быть определена из зависимости температуры Дебая $\Theta_D(T)$ при $T \rightarrow \infty$. Таким образом, функциональное поведение $C(T)$ при высоких температурах может быть использовано для вычисления граничной частоты фонового спектра.

С учетом сказанного для аппроксимации экспериментальной кривой $C(T)$ с правильным ее описанием на асимптотиках (при $T \rightarrow 0$ и $T \rightarrow \infty$), может быть использована функция $g_0(\omega)$ [16], представленная на рис. 2. Функция $g_0(\omega)$ получается трансформацией дебаевского спектра (пунктирная линия) с характеристической частотой ω_0 , определенной из условия правильного опи-

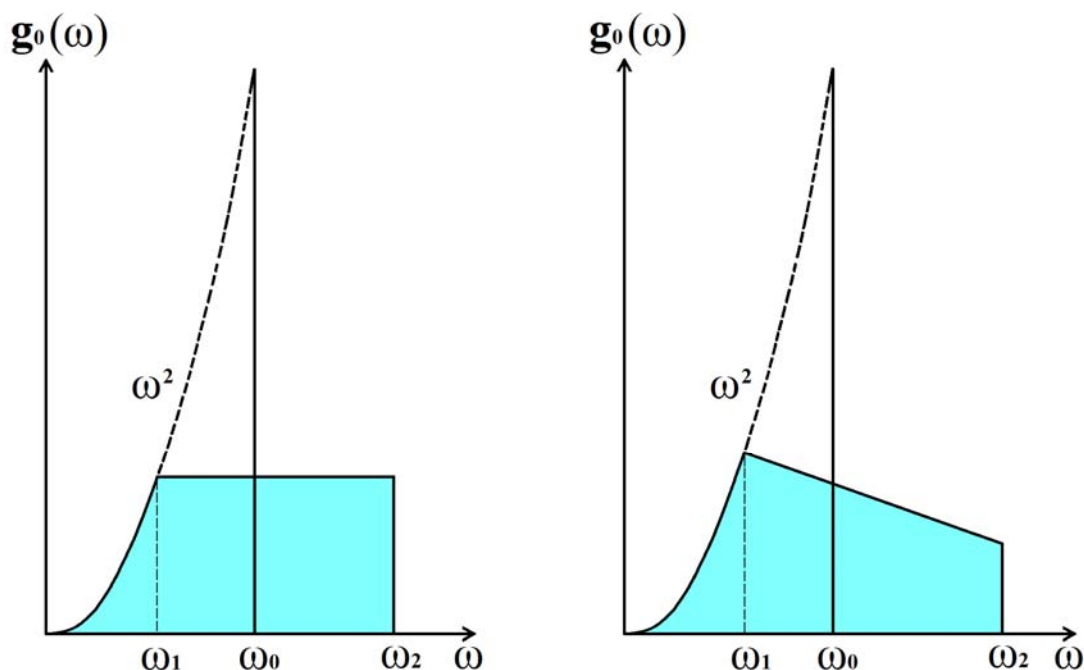


Рис. 2. Функция $g_0(\omega)$ (окрашенная область) с параметром $\alpha = 1$ (слева) и $\alpha = 1/2$ (справа)

сания зависимости $C(T)$ вблизи нуля. Параметр ω_2 , имеющий смысл новой граничной частоты фононов, определяется из условия правильного асимптотического описания зависимости $C(T)$ при высоких температурах. Величина ω_1 ограничивает частотную область сверху, в которой функция $g_0(\omega)$ описывается моделью Дебая, и однозначно связана с величинами ω_0 и ω_2 уравнением

$$(1 - \beta)\omega_1^3 - \omega_2\omega_1^2 + \beta\omega_0^3 = 0, \quad (3)$$

где

$$\beta = \frac{2}{3(\alpha + 1)}, \quad \alpha = \frac{g_0(\omega_2)}{g_0(\omega_1)}.$$

Выражение (3), связывающее все параметры $g_0(\omega)$, получено из условия сохранения числа колебательных мод в кристалле, т. е. для $g_0(\omega)$ выполняется условие (2). Величина α характеризует отношение плотностей фононных состояний на границе спектра и на частоте ω_1 . При фиксированном значении этой величины функция $g_0(\omega)$ имеет два параметра – ω_0 и ω_2 , каждый из которых независимо может правильно описывать поведение $C(T)$ на асимптотиках.

Такое описание приводит к разнице между $C(T)$ и $C_0(T)$ только в области средних температур. Было замечено, что вариация величины α при аппроксимации функцией $g_0(\omega)$ некоторой модельной кривой $g(\omega)$ позволяет уменьшить расхождение между $C(T)$ и $C_0(T)$, при этом значение граничной частоты ω_2 изменяется не существенно. Тенденция величины $\Delta C(T)$ к уменьшению при соответствующем изменении α , уже на этом этапе вычисления $g(\omega)$ дает количественную информацию о соотношении величины плотности фононных состояний вблизи границы спектра (ω_2) и в области средних частот (ω_1). С другой стороны, изменение величины α в небольших пределах эквивалентно переброске некоторого количества мод из одной частотной области в другую. Очевидно, что при $\theta_D(0) = \theta_D(\infty)$, когда ($\omega_0 = \omega_1 = \omega_2$) $g_0(\omega) \sim \omega^2$ во всем интервале частот, обе асимптотики удовлетворяются обычной моделью Дебая, и этот вариант может быть использован в качестве нулевого приближения для веществ, которые неплохо описываются моделью Дебая.

Итерационный процесс вычисления $g(\omega)$

Функции $g_i(\omega)$ для отдельного шага итерационного процесса. Функция $g_0(\omega)$ хоро-

шо описывает поведение $C(T)$ на асимптотиках, как уже было сказано. Однако при средних температурах $\Delta C(T) = C(T) - C_0(T)$ может достигать здесь 10 % и более. Значительные величины $\Delta C(T)$ при средних температурах обусловлены неправильным распределением числа частот в $g_0(\omega)$. Поэтому, если осуществить определенное перераспределение колебательных мод по частотам, с учетом уменьшения разницы $\Delta C(T)$ до нуля¹, то полученный спектр, вообще говоря, должен соответствовать истинному спектру с той точностью, которая определяет однозначность его вычисления. Формально такое перераспределение можно задать функцией $\tilde{g}(\omega)$, которая, будучи наложенной на $g_0(\omega)$, давала бы точное описание плотности состояний:

$$g(\omega) = g_0(\omega) + \tilde{g}(\omega). \quad (4)$$

В таком представлении задача определения $g(\omega)$ сводится к нахождению вида $\tilde{g}(\omega)$. В работе Лифшица [1] об определении спектральной плотности фононных состояний бозе-системы по ее теплоемкости, было показано существование устойчивого решения этой задачи в виде огибающей (сглаженной) кривой $g(\omega)$. Использование этого результата в данном случае означает замену функции $\tilde{g}(\omega)$ ее сглаженной $g^*(\omega)$:

$$\tilde{g}(\omega) = g^*(\omega). \quad (5)$$

Ясно, что функция $g^*(\omega)$ не описывает детали поведения $g(\omega)$, особенно это относится к локализованным по частоте пикам. Существующие способы определения $g(\omega)$ также не позволяют надежно описывать локальное (по частоте) поведение $g(\omega)$, так как в большинстве случаев рассматривается усредненная на некотором частотном интервале плотность. Следует отметить, что для описания теплоемкости твердого тела и в равной степени других средних (по спектру) характеристик, получаемых из $g(\omega)$, знания формы спектральной плотности фононных состояний с точностью трех-четырех пиков на уровне огибающей (сглаженной) $g(\omega)$ вполне достаточно для описания указанных величин с ошибкой, не превышающей точности эксперимента.

¹ Практически, конечно, ноль должен определяться с относительной точностью порядка $10^{-3}-10^{-4}$, что соответствует современному уровню экспериментальной погрешности измерения теплоемкости.

Подставляя в общее выражение для теплоемкости (1) в функцию (4) с учетом равенства (5) получим

$$C(T) = 3Nk_B \int g_0(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega + 3Nk_B \int g^*(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega.$$

Затем учитывая, что

$$C_0(T) = 3Nk_B \int g_0(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega,$$

будем иметь соотношение

$$C(T) - C_0(T) = 3Nk_B \int g^*(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega = \Delta C_0(T), \quad (6)$$

которое связывает $\Delta C(T)$ с $g^*(\omega)$. Отсюда видно, что функция $g^*(\omega)$ должна удовлетворять условиям

$$\int_0^{\infty} g^*(\omega) d\omega = 0, \quad (7)$$

$$g_0(\omega) + g^*(\omega) \geq 0. \quad (8)$$

Первое условие (7) соответствует тому, что функция $g_0(\omega)$ уже включает все колебательные моды, поэтому суммарное количество мод функции $g^*(\omega)$ должно быть равно нулю. Второе условие (8) связано с тем, что плотность состояний $g(\omega)$ при всех значениях частот не может принимать отрицательные значения.

Для нахождения функции $g^*(\omega)$ удобно представить ее в виде суммы конечного числа простых функций $g_i(\omega)$ известного типа

$$g^*(\omega) = \sum_{i=1}^n g_i(\omega), \quad (9)$$

где n – число членов ряда, необходимых для аппроксимации $g^*(\omega)$ в пределах заданной точности.

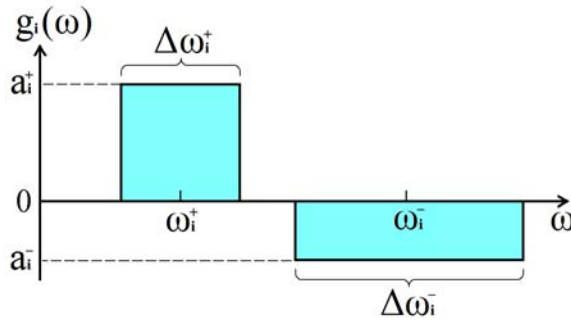


Рис. 3. Функции $g_i(\omega)$, использованные в итерационном процессе

В качестве функции $g_i(\omega)$ в данной работе использовалась функция

$$g_i(\omega) = \begin{cases} a_i^+ > 0, & \omega_i^- - \frac{\Delta\omega_i^+}{2} < \omega < \omega_i^+ + \frac{\Delta\omega_i^+}{2}; \\ a_i^- < 0, & \omega_i^- - \frac{\Delta\omega_i^-}{2} < \omega < \omega_i^- + \frac{\Delta\omega_i^-}{2}; \\ 0 & \text{для других } \omega, \end{cases} \quad (10)$$

которая удовлетворяет условиям (7), (8) (рис. 3).

Соотношение (7) для $g_i(\omega)$ имеет вид

$$a_i^+ \Delta\omega_i^+ + a_i^- \Delta\omega_i^- = 0$$

и с учетом этого уменьшает число параметров функции (10) на единицу.

Итерационный процесс вычисления плотности состояния $g(\omega)$. Восстановление вида $g^*(\omega)$ (9) осуществляется последовательным нахождением параметров функций $g_1(\omega)$, $g_2(\omega)$ и т. д. При этом параметры функции $g_i(\omega)$ определяются таким образом, чтобы зависимость $C_i(T)$ максимально хорошо описывала поведение соответствующей разницы (для первого шага это (6) $C(T) - C_0(T)$) в низкотемпературной области, которая характеризуется значительными, по сравнению с экспериментальной погрешностью, величинами отклонений теплоемкости. Последовательность вычислений, обуславливающая такой итерационный процесс, может быть записана следующим образом:

$$\begin{aligned} \Delta C_0 - 3Nk_B \int g_1(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega &= \\ &= 3Nk_B \sum_{i=2}^n \int g_i(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Delta C_1 - 3Nk_B \int g_2(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega &= \\ &= 3Nk_B \sum_{i=3}^n \int g_i(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega; \end{aligned}$$

$$\dots$$

$$\Delta C_{n-2} - 3Nk_B \int g_{n-1}(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega =$$

$$= 3Nk_B \int g_n(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega;$$

$$\Delta C_{n-1} - 3Nk_B \int g_n(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega =$$

$$= \delta(T) \cong 0,$$

где

$$\Delta C_0 = C(T) - C_0(T),$$

$$\Delta C_K = \Delta C_{K-1} - 3Nk_B \int g_K(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega$$

при $1 \leq K \leq n - 1$.

Итерационный процесс продолжается до n -го шага, когда описание $\Delta C_{n-1}(T)$ с помощью функции

$$C_n(T) = 3Nk_B \int g_n(\omega) \Psi(\omega, T) d\omega$$

не станет в пределах заданной точности $\delta(T)$. После последовательного выполнения указанных операций параметры всех функций $g_i(\omega)$ для $i < n$ будут определены. Можно показать, что после n -й итерации среднее отклонение

$$\overline{\Delta C_0 - \sum_{i=1}^{n-1} C_i} \geq \overline{\Delta C_0 - \sum_{i=1}^n C_i},$$

при этом

$$g^*(\omega) - \sum_{i=1}^{n-1} g_i(\omega) \geq g^*(\omega) - \sum_{i=1}^n g_i(\omega).$$

Это означает, что чем лучше $C(T)$ описывается выражением

$$C(T) = C_0(T) + \sum_{i=1}^n C_i(T),$$

тем лучше функция $g(\omega)$ аппроксимируется с помощью суммы

$$g(\omega) = g_0(\omega) + \sum_{i=1}^n g_i(\omega).$$

Усредненные плотности состояний $g(\omega)$

Описанные этапы расчета плотности фононных состояний из данных по теплоемкости позволяют получить функцию $g(\omega)$. Следует отметить, что конкретный вид полученной функции $g(\omega)$, можно полагать, будет зависеть от выбора начального приближения. Поскольку нулевое приближение, очевидно, может быть выбрано различными способами, которые удовлетворяют только описанию $g(\omega)$ на асимптотиках, то естественно ожидать, что при использовании разных нулевых приближений детали функции $g(\omega)$, полученные в результате таких расчетов, будут отличаться. Отметим, что значительное уменьшение неопределенности за счет «случайного» выбора нулевого приближения может быть получено путем усреднения результатов нескольких расчетов.

Проверка метода для модельных объектов

Двухпиковый модельный спектр

На рис. 4 изображена двухпиковая модельная кривая $g(\omega)$ (пунктирная линия).

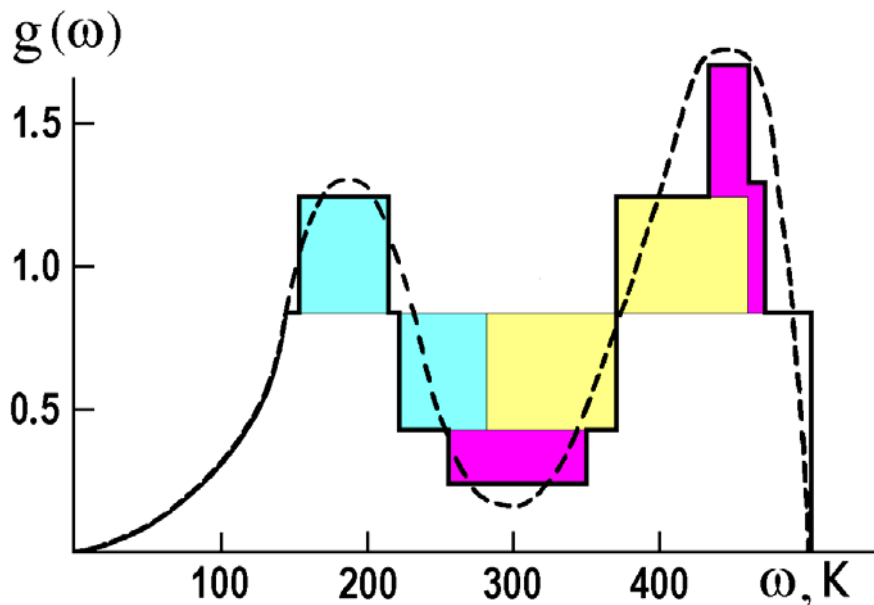


Рис. 4. Двухпиковая модельная функция (пунктирная линия), восстановленная зависимость $g(\omega)$ (сплошная линия). Области, отмеченные цветом, указывают три шага переборки мод в нулевом приближении

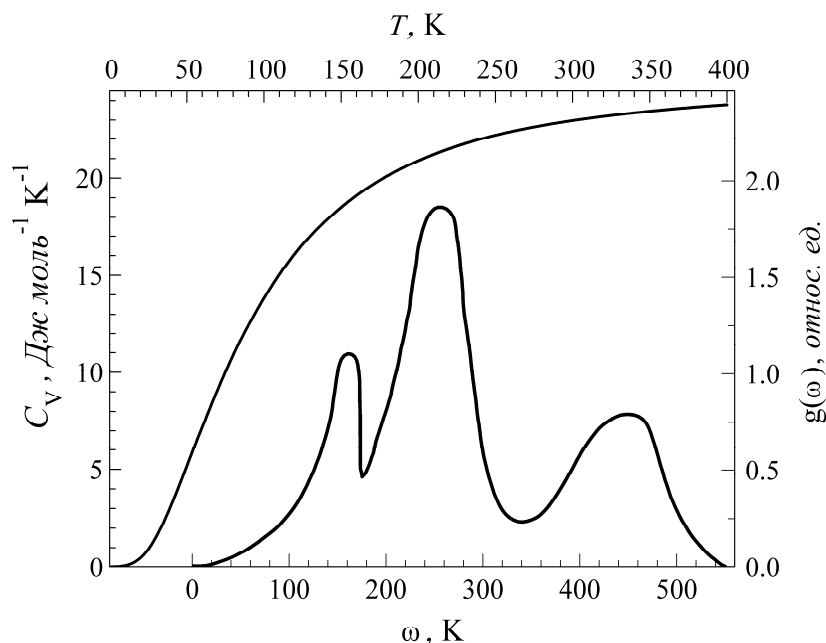


Рис. 5. Плотность фоновых состояний (внизу) и теплоемкость (вверху) трехпикового модельного спектра

Соответствующая этой модельной функции $g(\omega)$ теплоемкость $C(T)$ рассчитана по формуле (1). Из зависимости $C(T)$, согласно предложенному методу, определены параметры функций $g_0(\omega)$, $g_i(\omega)$ и вычислена плотность состояний $g(\omega)$. В качестве нулевого приближения использовалась функция $g_0(\omega)$, приведенная на рис. 2 для $\alpha = 1$. При этом были проделаны три итерации. Точность описания $C(T)$ во всем интервале температур (5-300 К) составляла $\sim 0,5\%$. Рассчитанная по $C(T)$ зависимость $g(\omega)$ приведена на рис. 4. Нетрудно заметить, что даже при такой невысокой точности описания $C(T)$ метод позволяет выявлять характерные особенности плотности фоновых состояний.

Трехпиковый модельный спектр

Модельная функция $g(\omega)$ с тремя пиками изображена на рис. 5 (внизу). Используя эту модельную плотность соотношения $g(\omega)$ по формуле (1) была рассчитана зависимость $C(T)$ (рис. 5, вверху), из которой определены параметры $g_0(\omega)$, $g_i(\omega)$ и вычислена функция $g(\omega)$.

В данном случае такой расчет был сделан для трех различных нулевых приближений $g_0(\omega)$, которые отличались значениями параметра α , связанного с другими параметрами этой функции уравнением (3). При этом точность описания $C(T)$ составляла $\sim 0,05\%$. Результаты такого расчета показаны на рис. 6. Проведенное трехкратное вычисление $g(\omega)$ при различных начальных условиях показывает степень однозначности получаемого решения. Важно отметить, что во всех случаях (см. рис. 6) решение выявляет все три пика с достаточно правильным отражением их характерной формы и правильным соотношением площадей пиков. Учитывая это, было естественно исходя из трех полученных функций вычислить усредненную зависимость $g(\omega)$ (рис. 7). Видно, что полученная таким образом функция очень хорошо описывает исходную зависимость $g(\omega)$ (см. рис. 5).

Вычисления показывают, что для выявления двух пиков в $g(\omega)$ предложенным методом достаточно аппроксимировать зависимость $C(T)$ с точностью $\sim 1\%$, а для выявления трех пиков необходима точность $\sim 0,1\%$. В работе [1], отмечается, что для выявления трех пиков в $g(\omega)$ необходимо знать теплоемкость с точностью $0,1\%$.

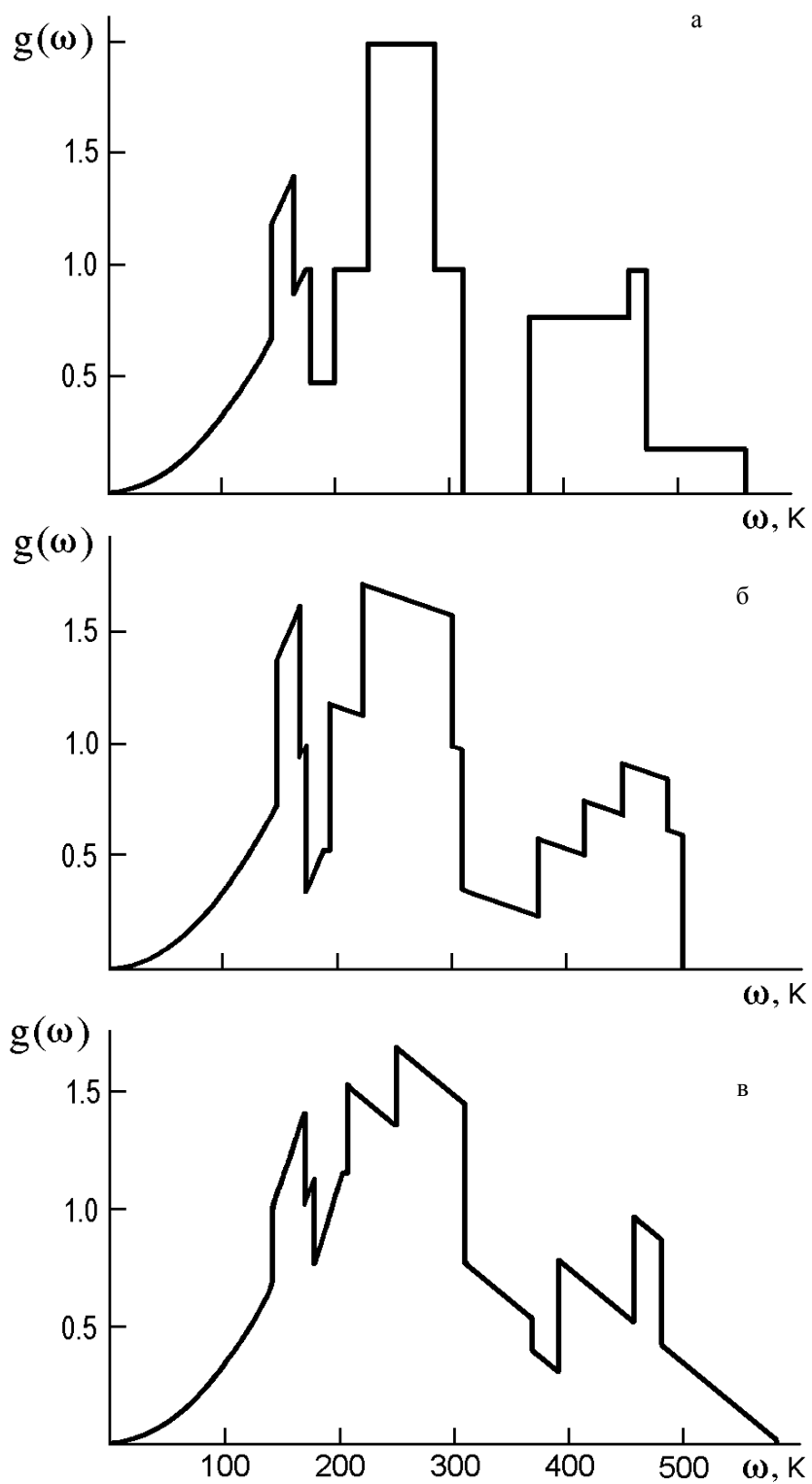


Рис. 6. Рассчитанные функции $g(\omega)$ с различными нулевыми приближениями:
 $a - \alpha = 1$; $б - \alpha = 1/2$; $в - \alpha = 0$

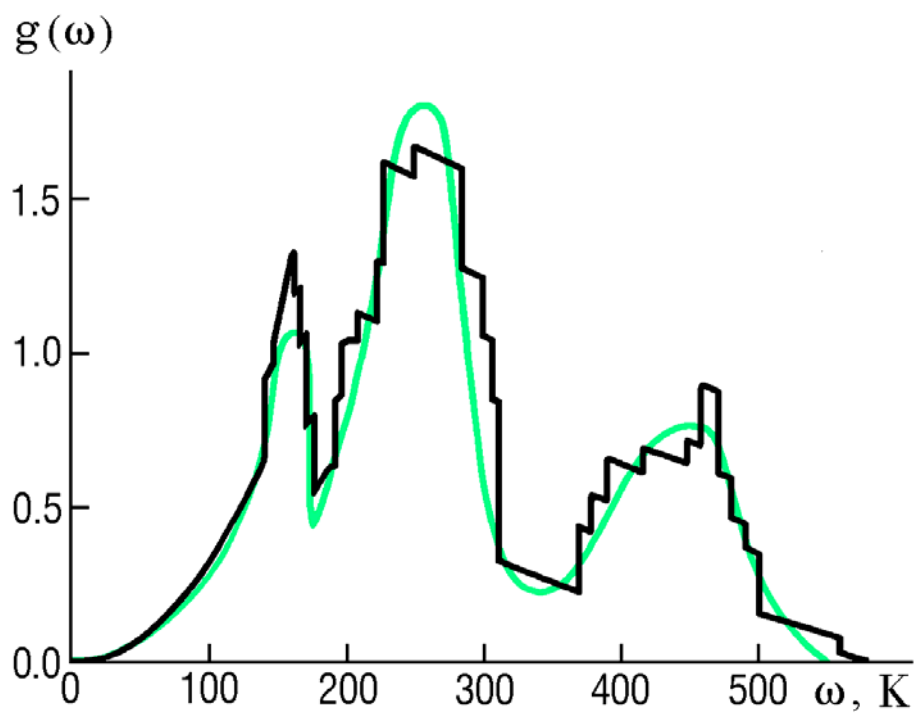


Рис. 7. Функция $g(\omega)$, полученная в результате усреднения трех результатов, показанных на рис. 6

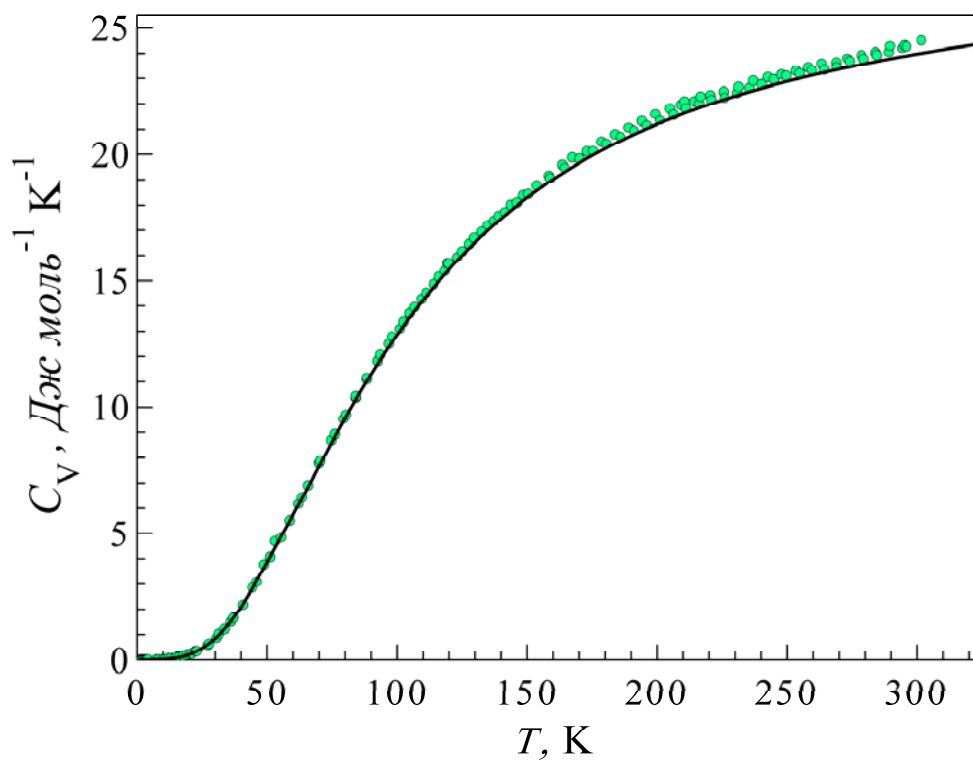


Рис. 8. Экспериментальные данные по теплоемкости алюминия [17–19] (кружки) и теплоемкость при постоянном объеме (линия), используемая для расчета $g(\omega)$

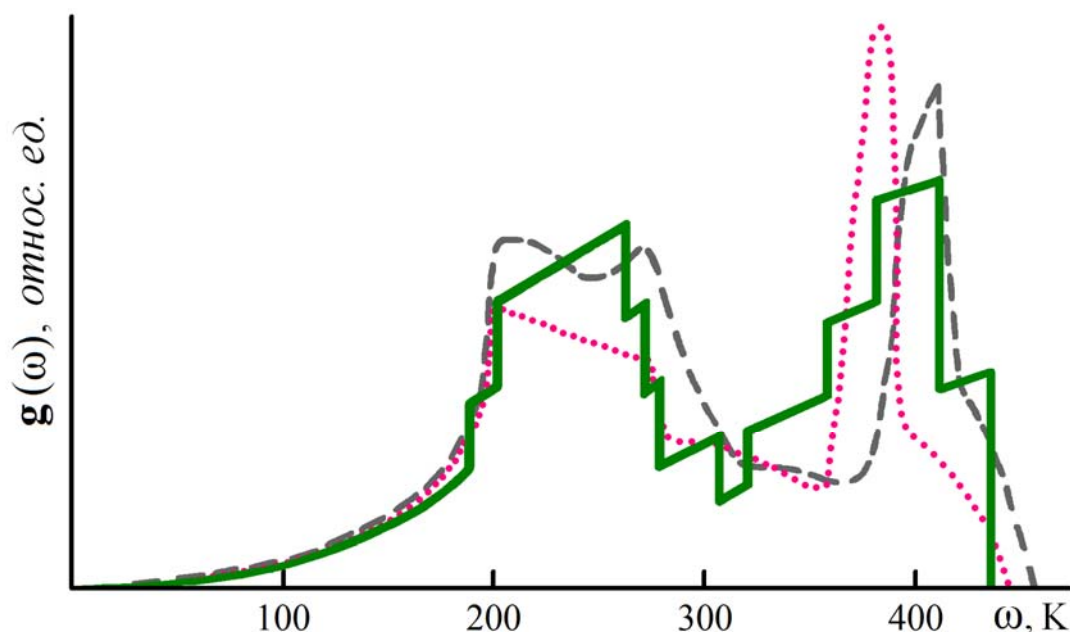


Рис. 9. Сравнение рассчитанной $g(\omega)$ с известными данными: пунктирная линия – экспериментально-расчетная $g(\omega)$, полученная в работе [21]; точечная линия – результаты, полученные на основе дисперсионных кривых из экспериментов по диффузному рассеянию рентгеновских лучей и результатов расчетов в рамках динамики решетки [22]; сплошная линия – результаты нашего вычисления на основе экспериментальной теплоемкости

Вычисление плотности состояний для алюминия

Плотность фононных состояний и теплоемкости при постоянном объеме

Как следует из формулы (1), связь $C(T)$ с $g(\omega)$ предполагает использование теплоемкости при постоянном объеме. В эксперименте, однако, получают теплоемкость при постоянном давлении. Поэтому, прежде чем вычислять $g(\omega)$, необходимо знать теплоемкость при постоянном объеме $C_V(T)$ в широком интервале температур. Существуют различные методы получения теплоемкости при постоянном объеме исходя из экспериментальных данных. Среди них наиболее подходящим способом можно считать метод, предложенный в работе [13]. Этот метод основан на описании экспериментальной теплоемкости в широком низкотемпературном интервале, где разницей $C_p - C_V$ можно пренебречь. Параметры, входящие в формулу при таком описании теплоемкости, могут быть найдены методом наименьших квадратов [14; 15] и использо-

ваны для вычисления теплоемкости при высоких температурах.

Вычисление $g(\omega)$ для алюминия

На основе экспериментальных данных по теплоемкости алюминия [17–19] проведен расчет плотности фононных состояний описанным выше методом. Предварительно, с учетом литературных данных [19; 20], были выделены электронная и ангармоническая компоненты теплоемкости алюминия. На рис. 8 представлены экспериментальные данные по теплоемкости алюминия в интервале температур от 3 до 300 К, а также вычисленная теплоемкость при постоянном объеме $C_V(T)$.

С использованием данных $C_V(T)$ для алюминия был вычислен спектр $g(\omega)$. Результат вычисления (рис. 9) показывает хорошее согласие с данными работ [21; 22].

Заключение

Предложен новый подход для определения спектральной плотности фононных состояний из данных по низкотемпературной

теплоемкости. Принципиальным отличием подхода является учет на начальном этапе расчета $g(\omega)$ асимптотического поведения плотности состояний. Это существенно уменьшает неопределенность (некорректность) задачи, так как итерационный процесс, который уточняет нулевое приближение, реализуется при средних частотах, не изменяя параметры нулевого приближения. Решение задачи для различных нулевых приближений позволяет, с одной стороны, более точно описать огибающую $g(\omega)$ с учетом усреднения, а с другой – оценить степень неоднозначности получаемого решения.

Метод проверен для модельных спектров, имеющих различную степень сложности. Показано, что $g(\omega)$ хорошо описывает форму пиков с правильным соответствием площадей пиков на разных частотных интервалах.

Вычислена спектральная плотность $g(\omega)$ для алюминия. Полученные результаты хорошо согласуются с литературными данными.

Современный уровень точности измерения теплоемкости составляет $\sim 0,1\%$ для абсолютной погрешности и $\sim 0,01\%$ для относительной погрешности. Таким образом, предложенный метод позволяет выявлять до трех пиков с правильным описанием их формы при точности аппроксимации теплоемкости на уровне $0,1-0,05\%$.

Предложенный нами метод вычисления плотности фононных состояний $g(\omega)$ из экспериментально полученной теплоемкости может быть использован для широкого круга объектов.

Список литературы

1. *Лифшиц И. М.* Об определении энергетического спектра бозе-системы по ее теплоемкости // ЖЭТФ. 1954. Т. 26, № 5. С. 551–556.
2. *Тихонов А. Н.* Об устойчивости обратных задач // Докл. АН СССР. 1943. Т. 39, № 5. С. 195–198.
3. *Иверонова В. И., Тихонов А. Н., Заикин П. Н., Звягина А. П.* Определение фононного спектра кристалла по теплоемкости // ФТТ. 1966. Т. 8, № 12. С. 3459–3463.
4. *Иванов В. К., Кориунов В. А., Решетова Т. Н., Танана В. Н.* О возможности определения энергетического спектра бозе-системы по термодинамическим функциям // Докл. АН СССР. 1976. Т. 228, № 1. С. 19–22.
5. *Кориунов В. А., Танана В. Н.* Определение фононной плотности состояний по термодинамическим функциям кристалла // Докл. АН СССР. 1976. Т. 231, № 4. С. 845–848.
6. *Dues P., Frei V.* Estimation of Phonon Frequencies and Force Constant by Means of the Temperature Dependence of the Specific Heat // Czech. J. Phys. 1984. Vol. 34 B. No. 7. P. 680–693.
7. *Loram J. W.* On the Determination of the Phonon Density of State from Specific Heat // J. Phys. C.: Solid State Phys. 1989. Vol. 19. P. 6113–6130.
8. *Steiner F.* On the Relation between the Phonon Spectrum and the Specific Heat // Phys. Lett. A. 1991. Vol. 152. No. 7. P. 323–328.
9. *Tao Wen, JiXin Dai, Dengming Mind, William E. Evenson, Dai XianXi.* New Exact Solution Formula for Specific Heat-Phonon Spectrum Inversion and Its Application in Studies of Superconductivity // Physica. C. 2000. Vol. 341–348. P. 1919–1920.
10. *Tao Wen, GuiCun Ma, XianXi Dai, JiXin Dai, Evenson W. E.* Phonon Spectrum of YBCO Obtained by Specific Heat Inversion Method for Real Data // J. Phys.: Condens. Matter. 2003. Vol. 15. P. 225–238.
11. *Bessergenev V. G., Kovalevskaya Yu. A., Naumov V. N., Frolova G. I.* Electron and Phonon Characteristics of YBCO // Physica. C. 1995. Vol. 245. P. 36–40.
12. *Renker B., Gompf F., Gering E., Ewert D., Reitschel H., Dianoux A.* Strong Changes in the Phonon Spectra of 123 Superconductors by Varying Oxygen Concentration // Z. Phys. B. Condens. Matter. 1988. Vol. 73. No. 3. P. 309–312.
13. *Naumov V. N.* Electron Heat Capacity and Moments of the Phonon Density of States for Metals and Superconductors // Phys. Rev. B. 1994. Vol. 49. No. 18. P. 13247–13250.
14. *Naumov V. N., Frolova G. I., Atake T.* The Extraction of Phonon and Electron Properties from Experimental Heat Capacity with New Approximation Based on High Temperature Expansion // Thermochimica Acta. 1997. Vol. 299. P. 101–108.
15. *Naumov V. N., Frolova G. I., Amitin E. B.* Analysis of Experimental Heat Capacity of $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$: Electron Heat Capacity and

Phonon Spectrum Characteristics // Low Temp. Phys. 1996. Vol. 22. No. 5. P. 432–434.

16. Наумов В. Н., Тагаев А. Б. Вычисленные теплоемкости и термодинамических функций сложных кристаллов из известного асимптотического поведения спектральной плотности фононных состояний // VI Всесоюз. школа-семинар «Применение математических методов для описания и изучения физико-химических равновесий»: Тез. докл. Новосибирск, 1989. Ч. 2. С. 62–63.

17. Parkinson D. H. The Specific Heats of Metals at Low Temperature // Rep. Progr. Phys. 1958. Vol. 21. P. 226–270.

18. Giauque W. F. The Heat Capacities and Entropies of Aluminium and Copper from 15 to 300 K // J. Amer. Chem. Soc. 1941. Vol. 63. P. 1897–1901.

19. Berg W. T. Heat Capacity of Aluminium between 2.7 and 20 K // Phys. Rev. 1968. Vol. 167. No. 3. P. 583–586.

20. Кожевников И. Г., Новицкий Л. А. Теплофизические свойства материалов при низких температурах: Справочник. М.: Машиностроение, 1982.

21. Gilat G., Nicklow R. M. Normal Vibrations in Aluminium and Derived Thermodynamic Properties // Phys. Rev. 1966. Vol. 143. No. 2. P. 487–494.

22. Walker C. B. X-Ray Study of Lattice Vibration in Aluminium // Phys. Lett. 1956. Vol. 103. No. 3. P. 547.

Материал поступил в редколлегию 14.05.2012

V. N. Naumov, A. B. Tagaev, A. E. Musikhin

THE PHONON DENSITY OF STATES OF SOLIDS FROM THE EXPERIMENTAL HEAT CAPACITY

The new method of determining the spectrum phonon density of states $g(\omega)$ from the experimental data in the heat capacity $C(T)$, obtained in the wide temperature interval is suggested. At the primary stage $g(\omega)$ is described in symptomless ones (near zero and limit frequencies). The parameters can be determined from the $C(T)$ curve. So the obtained zero coming for the phonon density of states $g(\omega)$ is made by the iteration process when the redistribution in the frequencies of the vibrating modes of the zero coming is done. The iteration process is connected with the difference reduction in the made and experimental heat capacity and managed by the redistribution of the vibrating modes. The method is viewed for the number of the model spectra with different degree of complication. The obtained results show the possibility of the singling out three peaks in $g(\omega)$ with the right description of their form. The phonon density of states for aluminum is determined and the comparison with the investigation results represented in the list of literature is done.

Keywords: heat capacity, the phonon density of states, excitation spectrum of the ground state of the crystal.