

食塩型アルカリハライドのフォノンの分散関係と共有結合性

北大・理 持 田 潔

(1984年7月10日 受理)

要 約

仮説, Szigeti 実効電荷がイオン間のクーロン相互作用の実効電荷に等しい, と Hardy の polarization dipole モデルとに基づく格子力学モデルが食塩型アルカリハライドに適用される。フォノンの振動数が巨視的物理量を入力データに用いて, Δ と Σ 線上の k_x (k_y) ≤ 0.4 ($2\pi/a$) と Δ 線上の全ての波数領域に対して得られた。結果は基本的に実験とよく合うが, 特に Δ 線上の LO モードの一致が全結晶でよいことが強調される。このモードに対しては対応する純イオン結晶モデルに基づく格子力学モデルの結果ではいくつかの結晶で実験との不一致が著しいことが知られている。

§ 1. はじめに

食塩型アルカリハライドは純粋なイオン結晶と考えられてきたが最近これに対する疑問がいくつかの側面から提起され始めた。Harrison は非金属化合物の価電子を記述する簡単化された LCAO 型式を提案し, その中に現れる行列要素を半経験的に決定した¹⁾。彼はこの方式を食塩型アルカリハライドに適用すると, この化合物の共有結合が著しいことを示した。著者も, 遷移金属不純物の超微細構造定数と母結晶の Szigeti 実効電荷の相関の考察から同じ結論に達した²⁻⁴⁾。さらにイオン間のクーロン相互作用の実効電荷が Szigeti 実効電荷に等しいという仮説を提案し, 弾性率の分析に仮説を適用した^{5,6)}。現研究は, このような研究の流れの中で, フォノンの分散関係をこの仮説に基づいて検討する。

イオン間のクーロン相互作用の実効電荷を Szigeti 実効電荷 e_s^* にとって, 分散関係を検討することは以前に Namjoshi らによってなされている⁷⁾。彼らのモデルは NaF と NaCl の分散曲線をよく説明できた。しかし彼らは変位したイオンからのクーロン場によるイオンの分極の効果を取り入れなかった。この効果が格子力学において大きな働きをすることは Hardy に

*) MOTIDA, Kiyoshi

よって示されている⁸⁾。さらに彼らのモデルはクーロン相互作用の実効電荷を e から e_s^* に減少させただけなので、格子エネルギーを再現できないものになっている。前者の不備は Hardy の polarization dipole モデルを採ることで解消できよう⁹⁾。後者の問題を改善するためには共有結合による引力ポテンシャルを導入することが必要である。これは前論文において、実測の格子エネルギーを大変よく再現できるボルンモデルの格子エネルギー E_1 の式

$$E_1 = -\frac{\alpha e^2}{r} + 6v(r) \quad (1.1)$$

を現象論的に正しい公式とみなし、これと仮説が調和するように引力ポテンシャル $a(r)$ とし

$$a(r) = -\frac{\alpha}{6r}(e^2 - e_s^{*2}) \quad (1.2)$$

を導入することによりなされた、但し、 $a(r)$ は最近接イオン間にのみ働くと仮定した^{5,6)}。ここで $v(r)$ は反発ポテンシャル、 α : マーデルング定数、 r : 最近接イオン間距離である。

§2. モデル

フォノンの振動数 ω は永年方程式

$$[M - \omega^2 I] Q = 0 \quad (2.1)$$

から求まる、ここで M , Q , I はそれぞれダイナミカルマトリックス、固有ベクトル、単位マトリックスである。現モデルでは Szigeti 実効電荷をイオン間のクーロン相互作用の実効電荷と解釈するので、結晶の電子分極は変位イオンからのクーロン場によってのみ誘起される。^{10,11)} このような系のダイナミカルマトリックスは Hardy の polarization dipole モデルの M のイオン電荷 e を e_s^* に変えることによって得られる：

$$M = -X \left[R + \left(\frac{e_s^*}{e} \right)^2 \{ H + HU(1 - \alpha UH)^{-1} \alpha UH \} \right] X, \quad (2.2)$$

ここで $U \equiv \delta_{\alpha\beta} \delta_{\kappa\kappa'} / e_\kappa$, $\alpha \equiv \alpha_\kappa \delta_{\alpha\beta} \delta_{\kappa\kappa'}$, $X \equiv \delta_{\alpha\beta} \delta_{\kappa\kappa'} / (m_\kappa)^{1/2}$; e_κ , α_κ , m_κ はタイプ κ (今の場合陽イオン(c)あるいは陰イオン(a))のイオンの電荷, 分極率, 質量である; H は Kellermann の結合マトリックスであり, R は短距離力マトリックスである; 添字 α (β) はデカルト座標として選ばれた3つの〔100〕方向のひとつを表わす。

マトリックス R をきめるために短距離力を限定する：①最近接イオン間ポテンシャルの1階と2階の微分係数 dV/dr と d^2V/dr^2 はそれぞれ $d(a(r) + v(r))/dr$ と $d^2(a(r) + v(r))/dr^2$

とに等しいとみなす。ここで $a(r)$ と $v(r)$ はそれぞれ式 (1.2) と (1.1) で定義されている；②第2近接イオン間には陰イオン間のみポテンシャル $w(r)$ がある；③最近接イオン間には非中心力が働く。すなわち $d^2V/dr_{\perp}^2 = (1/r) dV/dr$ を仮定しない，ここで $dr_{\perp}$ は結合軸に垂直な方向の微分を表わす。このように近距離力を限定すると $\mathbf{R}$ はそれによって表される¹²⁻¹⁴⁾。しかし $\mathbf{R}$ の非中心力依存性のとり入れ方には2通りある：ひとつは Woods らの方式¹³⁾；もうひとつは Maradudin によって導かれ Jaswal と Hardy によって展開された方式である¹⁵⁾。この論文では後者のやり方を採った*。この場合の短距離力パラメータ： $A' = (4/rC_0)(d^2V/dr^2)$ ， $B' = (4/r^2C_0)(dV/dr)$ ， $C = (1/rC_0)\{(d^2V/dr_{\perp}^2) - (1/r)(dV/dr)\}$ ， $A'' = (2/rC_0)(d^2w/dr^2)$ ， $B'' = (2/r^2C_0)(dw/dr)$ ，ここで $C_0 = e^2/r^4$ ；の関数としての $\mathbf{R}$ は Hardy と Karo のテキストに与えられている¹⁴⁾。

一方，この短距離力パラメータは巨視的物理量：圧縮率 K ，Szigeti 圧縮率 K^* ，¹⁶⁾ 弾性率 C_{ij} ；を同時にきめているから，短距離力パラメータはこれらの巨視的物理量を使って表わすことができる：

$$A' = \frac{(8K^{-1} + 4K^{*-1})}{C_0} + \frac{4\Delta(C_{11})}{C_0} - \frac{8\Delta(C_{44})}{3C_0} + \frac{4\alpha}{3} \left(\frac{e_S^*}{e}\right)^2, \quad (2.3)$$

$$B' = \frac{4(K^{*-1} - K^{-1})}{C_0} - \frac{4\Delta(C_{11})}{C_0} - \frac{8\Delta(C_{44})}{3C_0} - \frac{2\alpha}{3} \left(\frac{e_S^*}{e}\right)^2, \quad (2.4)$$

$$C = \frac{\Delta(C_{44})}{C_0} + \frac{\Delta(C_{11})}{2C_0}, \quad (2.5)$$

$$A'' = \frac{2(K^{-1} - K^{*-1})}{C_0} - \frac{2\Delta(C_{11})}{C_0} + \frac{4\Delta(C_{44})}{3C_0} \quad (2.6)$$

$$B'' = \frac{2(K^{-1} - K^{*-1})}{C_0} + \frac{2\Delta(C_{11})}{C_0} + \frac{4\Delta(C_{44})}{3C_0} \quad (2.7)$$

ここで $\Delta(C_{ii})$ は C_{ii} の実測値から，次近接力と非中心力を無視して計算された弾性率 C_{ii}^{EBM} を引いたものである。それらは具体的には

*) Woods らの方式での計算も行った。結果はゾーンの境界周辺でのみ数%以下の相異が認められるだけであつた。したがって以下の現研究の計算の結果は非中心力のとり入れ方には依存しない。

$$C_{11}^{\text{EBM}} = \frac{(\alpha - \chi) e_S^{*2}}{2r^4} + \frac{3}{K}, \quad (2.8)$$

$$C_{44}^{\text{EBM}} = \frac{(\chi - \alpha) e_S^{*2}}{4r^4}, \quad (2.9)$$

で与えられる, ここで $\alpha \simeq 1.7476$ and $\chi \simeq 3.1386$.^{5)*, **}

ダイナミカル マトリックス $\mathbf{M}$ の計算に必要なことで残った問題はイオンの分極率 α_k の決定である。純イオン結晶モデルに立つ場合には, ひとつのイオンに固有の分極率があると仮定することはもっともらしい。その場合 α_k として Tessman らの方法^{17, 18)} による分極率 α_k^{TKS} をとることは妥当と思われる。しかし現論文の立場では結晶にかなりの共有結合をみとめている。この場合には, Harrison が示したように結晶の光学分極の起源はイオン内励起だけでなくイオン間励起の寄与が重要になってくる¹⁹⁾。我々はもはや結晶に独立なイオンの分極率を期待できず, 各結晶に固有の実効的なイオンの分極率が存在することを期待できるだけである。この実効的なイオンの分極率がフォノンの振動数 ω を得るのに必要なのだけれども, 残念ながら現時点ではこの知識に欠けている。しかし幸いなことに, 個々の α_k の知識がなくともブリルアン領域の一定の範囲内では近似的に ω を求めることが可能である。よく知られているように, Γ 点では α_k が次の式を満たしさえすれば ω がきまる:

$$\alpha_c + \alpha_a = \frac{3v_a(\epsilon_\infty - 1)}{4\pi(\epsilon_\infty + 2)}, \quad (2.10)$$

ここで v_a は単位格子の体積, ϵ_∞ は光学的誘電率である。そこで, この Γ 点の性質を近似的にもつ波数の領域を探してみた。計算結果によると Δ と Σ 線上の k_α ($\alpha = x, y$) $\leq 0.4(2\pi/a)$ と Δ 線上の全ての波数領域では, α_k の可能な全ての値 (例として NaI の場合 $0.1 \leq \alpha_c \leq 3.2$)

*) 前論文⁵⁾において $\Delta(C_{44})$ の起源を共有結合の効果にのみ帰した。しかし一般的には現論文のように第2近接相互作用にも帰せねばならない。したがって前論文でみいだした $\Delta(C_{44})/C_0$ と $\Delta(dC_{44}/dP)$ の間の相関は共有結合と第2近接イオン間相互作用の性質と再解釈される。

**) 式 (2.3) - (2.7) は式 (2.3), (2.4), (2.8), (2.9) において e_S^* を e にかえると Hardy と Karo の DD3N モデルの対応式 (文献 14 の式 (7.16a, b) と (7.17a, b, c)) に一致する。但し $\Delta(C_{44}) + \Delta(C_{11})/2 = C_{44} - C_{12}$ に注意。

$\times 10^{-24} \text{cm}^3$ であり対応する α_a は (2.10) 式よりきまる)* に対して振動数の変化は数パーセント以下に収まった。したがって上記の波数領域では、とりうる範囲内の任意の α_k を使った ω の計算値は真の α_k を使った計算値のよい近似値になっていると期待できる。以下においては、とりうる α_k の範囲内にある次の2組の α_k について計算した結果について検討する：ひとつは α_k^{TKS} ；もうひとつは $\alpha_c = \alpha_a$ と式 (2.10) を同時にみたす α_k 。

§ 3. 検 討

以上で M の計算に必要なことについて述べたので、式 (2.1) から角振動数 ω を計算できる。計算の際に、短距離力定数は式 (2.3)–(2.7) から、0K ないしはそれに近い温度の測定値 $e_s^*, K^*, {}^{20)} K, C_{ij}, {}^{21)} r^{22)}$ を用いてきめられた。さらに Kellermann 結合マトリックスは Hardy と Karo の再計算値¹⁴⁾ を使った。これらの値とイオンの分極率として α_k^{TKS} を用いて計算した3つの対称的方向の ω が13結晶に対し図1–13に実験値^{13, 23–33)} と共にそれぞれ与えられている。イオンの分極率として $\alpha_c = \alpha_a$ と式 (2.10) を同時に満たすものを使った計算値は図の繁雑さをさけるために LiF と NaI に対してのみ与えられている。これらの結晶では特に2組のイオンの分極率を使った計算値の相異が著しい。

計算結果を検討する際に、現モデルの結果をそれとは対照的な純イオン結合モデルに基づく格子力学モデルの結果と比較検討すると現モデルの結果の特徴が明瞭となるであろう。そのようなモデルの代表的なものは殻モデル¹³⁾と Deformation dipole モデル (DDM)^{8, 9, 14)} である。我々の計算と同様な限定を短距離力になし、ほぼ同一の入力データを使った計算は、殻モデルでは NaBr に対し Reid ら²⁶⁾ が行っており、DDM においては分散曲線が測定されている全ての結晶に対し Hardy と Karo¹⁴⁾ が行っている。両モデルによる計算が得られている

) α_k のとりうる範囲は式 (2.10) だけでなく以下の考察からも制限される。Harrison のメカニズム¹⁹⁾ によるイオンの分極率 α_k^{cov} を仮説：ひとつの陽イオンの空軌道へそれを取りまく陰イオンから遷移される電子数が $1 - e_s^/e$ によってきまる；²⁾ を使って計算すると

$$\alpha_c^{\text{cov}} + \alpha_a^{\text{cov}} = \frac{v_a e^2 (1 - e_s^*/e)}{3 E_g r}, \quad (\text{F. 1})$$

を得る。ここで E_g は純イオン結晶モデルにおいて陰イオンの最高被占 p 軌道から電子を陽イオンの最低非占 s 軌道へ遷移させるのに要するエネルギーである。計算された各結晶の $\alpha_c^{\text{cov}} + \alpha_a^{\text{cov}}$ の値は (2.10) 式できまる $\alpha_a + \alpha_c$ の 20–60% の間のひとつの値をとる。残りはイオン内励起によるイオンの分極率 α_k^{ion} と考えられる。 α_k^{ion} の個々の値は、それを α_k^{TKS} に比例すると仮定するときめることができる。一方、 $\alpha_c^{\text{cov}} + \alpha_a^{\text{cov}}$ を個々の値に分離することは現時点ではできない。しかし、 α_k^{cov} のとりうる範囲は 0 と (F. 1) 式の右辺の値の間にあるとしてきまる。以上の考察から α_k のとりうる範囲がきまる。こうしてきめられた α_k の範囲内に α_k^{TKS} と、 $\alpha_c = \alpha_a$ と式 (2.10) を同時に満たすイオンの分極率が含まれている。一例とし NaI の場合には $0.1 \leq \alpha_c \leq 3.2 \times 10^{-24} \text{cm}^3$ となる。この範囲は考えている結晶の中では広いほうのひとつである。

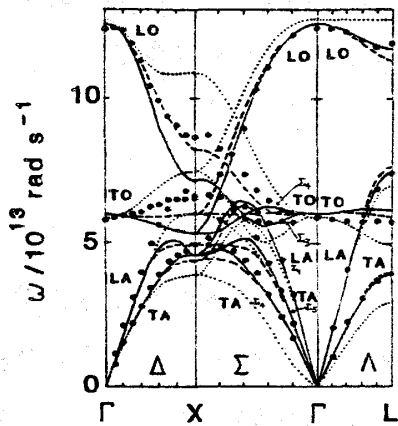


図 1. LiF の現モデルと DDM により計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_e^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。破線はイオンの分極率として $\alpha_e = \alpha_a$ と式 (2.10) を同時にみたすものを使って計算された現モデルの角振動数。点線は文献 14 からとった DDM の角振動数。黒丸は文献 23 からとった 298 K の実測値である。

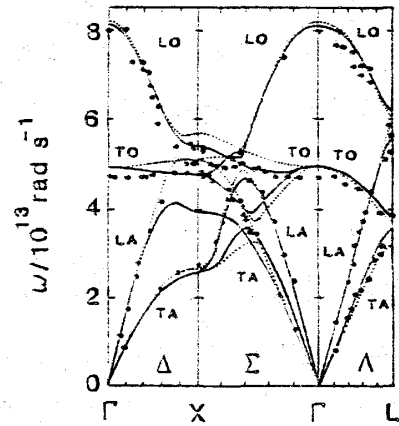


図 2. NaF の現モデルと DDM により計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_e^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとった DDM の角振動数。黒丸は文献 24 からとった 295 K の実測値である。

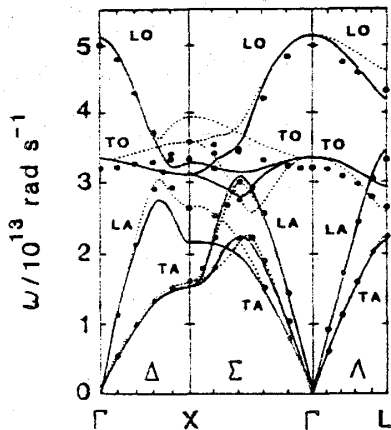


図 3. NaCl の現モデルと DDM により計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_e^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとった DDM の角振動数。黒丸は文献 25 からとった 80 K の実測値である。

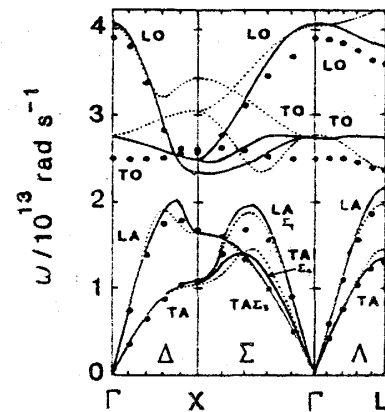


図 4. NaBr の現モデルと DDM により計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_e^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとった DDM の角振動数。黒丸は文献 26 からとった 295 K の実験値である。

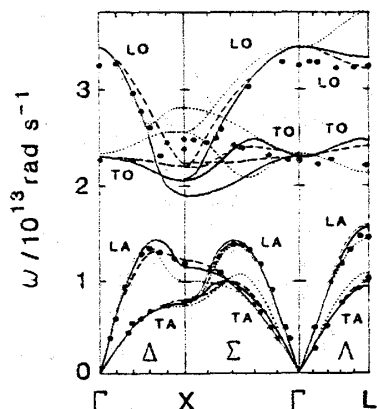


図5. NaIの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。破線はイオンの分極率として $\alpha_c = \alpha_a$ と式(2.10)を同時にみたすものを使って計算された現モデルの角振動数。点線は文献14からとったDDMの角振動数。黒丸は文献27からとった100Kの実測値である。

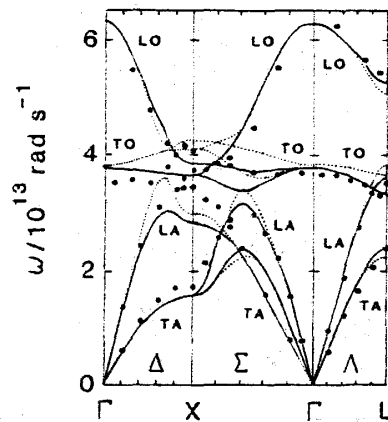


図6. KFの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献14からとったDDMの角振動数。黒丸は文献28からとった室温の実測値である。

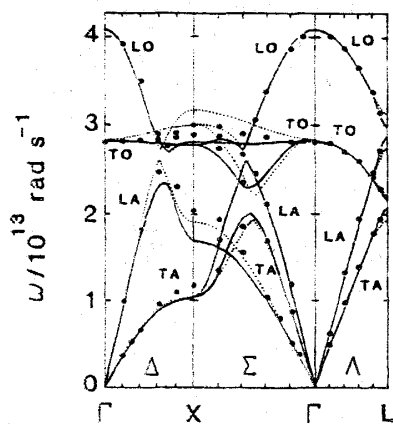


図7. KClの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献14からとったDDMの角振動数。黒丸は文献29からとった80Kの実測値である。

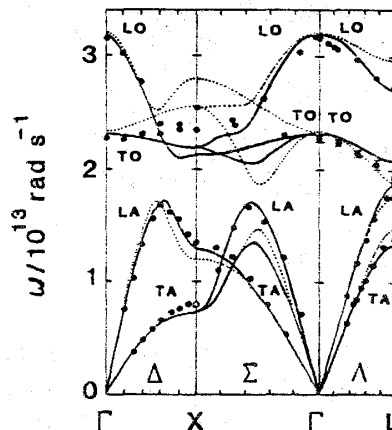


図8. KBrの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献14からとったDDMの角振動数。黒丸は文献27からとった90Kの実測値である。

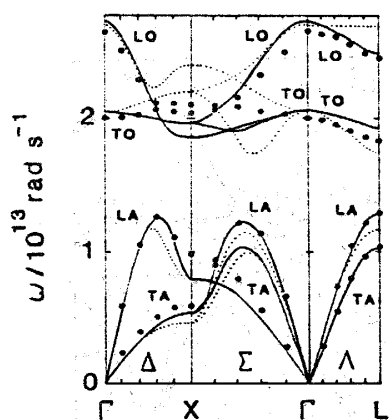


図 9. KIの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとったDDMの角振動数。黒丸は文献 30 からとった 90 K の実測値である。

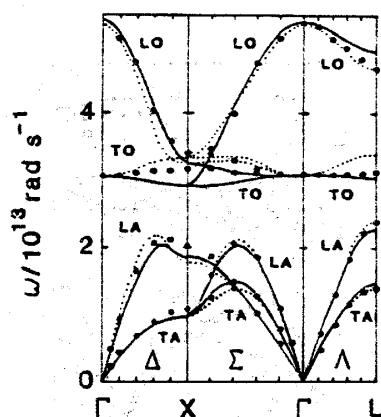


図 10. RbFの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとったDDMの角振動数。黒丸は文献 31 からとった 80 K の実測値である。

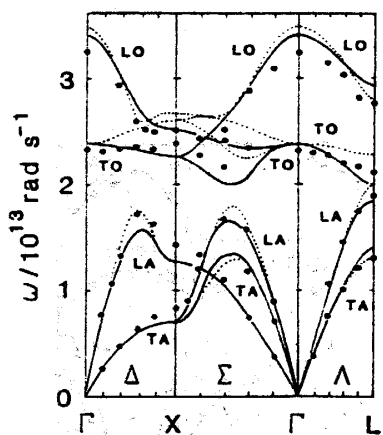


図 11. RbClの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとったDDMの角振動数。黒丸は文献 31 からとった 80 K の実測値である。

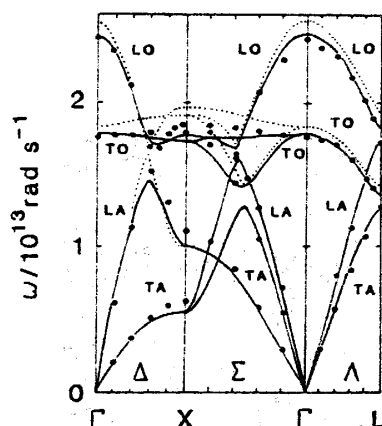


図 12. RbBrの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献 14 からとったDDMの角振動数。黒丸は文献 32 からとった 80 K の実測値である。

NaBrの結果を相互に比較するとよく似ているので、DDMを純イオン結晶モデルに基づく格子力学モデルの典型と考えてよいだろう。そこで以下ではDDMと現モデルの結果を比較する。HardyとKaroによるDDMの結果も図1-13に与えられている。

まず、比較のために Δ と Σ 線上の

$k_\alpha (\alpha = x, y) \leq 0.4(2\pi/a)$ と Δ 線上の全ての波数領域のDDMの計算値の特徴をみよう。この波数領域では、§2で述べたように、現モデルの解のよい近似値が得られている。計算値は、いくつかの結晶の Δ 線上

のLOモードとLiFのL点のTOとTA及びTA(Σ_4)モードを除けば、実験と基本的によく一致している(実験と数%以内で一致している)。LO(Δ)モードの不一致はよく知られている。この不一致は陽イオンのイオン半径が陰イオンのそれより著しく小さい結晶において著しい。すなわちNaI, NaBr, KI, KBr, LiFにおいて著しい。純イオン結晶モデルに立脚するDDM(あるいは殻モデル)の立場ではこの不一致は結局LO(Δ)モードに特有な実効イオン間ポテンシャルを導入して説明することになる。³⁶⁻³⁴⁾しかし現在まで、この解釈を裏づける事実は何もない。一方、LiFにおける計算値と実測値の不一致に対しては現在までのところ何の解釈も提案されていない。

次に問題の波数領域の現モデルの計算値を見よう。特徴的なことは、DDMの計算値と実測値の間にずれがあったいくつかの結晶のLO(Δ)モードとLiFのTO(L), TA(L)とTA(Σ_4)モードを現モデルは大変よく再現していることである。この結果は次の観点から興味がある。DDMあるいは殻モデルはSzigeti実効電荷の解釈に端を発している。Szigeti実効電荷はFröhlich¹¹⁾が指摘しているように、2通りの解釈が可能である：ひとつは我々の仮説のようにイオン間のクーロン相互作用の実効電荷とみるもの；他方はイオン核を変位させて一様な分極を生じさせたとき、近距離力のためにそれと反対方向の電子分極が誘起されると考える。その結果としてみかけ上イオンの電荷が e_s^* となるというもの。DDMと殻モデルは後者の立場で構成された格子力学モデルであり、現論文のモデルは前者の立場で作られたものである。したがって、DDMでみられた計算値と実測値の不一致が現モデルでは解消されるという結果はSzigeti実効電荷がイオン間のクーロン相互作用の実効電荷に等しいという

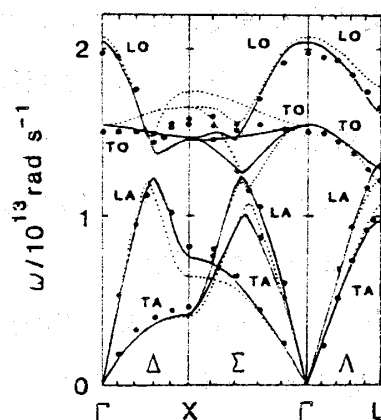


図13. RbIの現モデルとDDMにより計算された分散曲線。実線はイオンの分極率として α_k^{TKS} を使った現モデルの角振動数を表わす。点線は文献14からとったDDMの角振動数。黒丸は文献33からとった80Kの実測値である。

仮説を支持する事実とみることができる。

一方、現モデルの計算値が10%程度ずれているモードがいくつかの結晶にある。それはNaCl, NaBr, NaIのTO(L)モードと、NaBrのLA(L)と波数 $k_x = k_y = 0.4(2\pi/a)$ のLA(Σ_1)モードと、LiFの波数 $k_x = k_y = 0.4(2\pi/a)$ のTO(Σ_3)モードである。このうちNaBrとNaClの不一致は、パラメータ決定の行われた Γ 点のTOモードのずれがめだつので、入力データの改善によって解消されることが期待される。残りのNaIのTO(L)とLiFのTO(Σ_3)モードについては次のような特徴がある。イオンの分極率として $\alpha_a = \alpha_c$ と式(2.10)を満たすものを使った計算では、これらのずれがかなり減小することが図1.5からわかる。したがってこの結果は、これらの結晶では $\alpha_c^{\text{TKS}} \ll \alpha_a^{\text{TKS}}$ であることを考えると、このずれが現モデルの欠陥によるのではなく不適切なイオンの分極率の使用によることを示唆している。以上の比較から Δ と Σ 線上の $k_x(k_y) \leq 0.4(2\pi/a)$ と Δ 線上の全ての波数領域においては現モデルのほうがDDMよりもよく実測値を再現していると結論される。

以上現モデルの近似解が得られている波数領域の振動数の検討をおえたので、残された問題はX点近傍の振動数の問題である。DDMの計算値はNaF, KCl, RbBrを除けばいずれかのモードで約10%より大きくずれている。これらのモードの振動数は使ったイオンの分極率に敏感である。しかしDDMのような純イオン結晶モデルの立場ではイオンの分極率の値を α_k^{TKS} から大きくずらすことは不自然である。したがって、これらのずれは短距離力パラメータのX点近傍での変化に帰せられよう。一方我々の計算値もNaBr, RbF, RbBr, RbIを除けばいずれかのモードの振動数が約10%以上ずれている。§2で論じられたように、この波数領域の計算値は現モデルの最終的な結果ではない。現モデルの解を得るためにはイオンの分極率の正しい実効値をきめなければならない。したがって、これらのずれは一部は正しいイオンの分極率を得ることにより、一部は短距離力パラメータのX点近傍での変更により解釈されるであろう。この問題は、しかし、現論文の守備範囲を越えている。

本稿ではHardyのpolarization dipoleモデルと仮説、Szigeti実効電荷がイオン間のクーロン相互作用の実効電荷に等しい、に基づいた格子力学モデルによってフォノンの振動数が Δ と Σ 線上の $k_x(k_y) \leq 0.4(2\pi/a)$ と Δ 線上の全ての波数領域において得られた。得られた結果は実験と基本的によく一致し、特にLO(Δ)モードの振動数が全結晶でよく実験と一致することが強調された。このモードに対する純イオン結晶モデルに立脚する格子力学モデルの計算は対照的にいくつかの結晶で実験と著しく不一致であることが知られている。したがって、この結果は現研究が立脚している上記の仮説を支持するものとなっている。

文 献

- 1) W. A. Harrison: *Electronic Structure and the Properties of Solids* (Freeman, San Francisco, 1980) p. 46, 332, 463.
- 2) K. Motida: J. Phys. Soc. Jpn. **49** (1980) 213.
- 3) K. Motida: J. Phys. Soc. Jpn. **49** (1980) 218.
- 4) K. Motida: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 1247.
- 5) K. Motida: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 102.
- 6) K. Motida: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 1803.
- 7) K. V. Namjoshi, S. S. Mitra, and J. F. Vetelino: Solid State Commun. **9** (1971) 185.
- 8) J. R. Hardy and A. M. Karo: Philos. Mag. **5** (1960) 859.
- 9) J. R. Hardy: Philos. Mag. **7** (1962) 315.
- 10) B. Szigeti: Trans. Faraday Soc. **45** (1949) 155.
- 11) H. Fröhlich: *Theory of Dielectrics* (Clarendon, Oxford, 1949) p. 149.
- 12) E. W. Kellermann: Philos. Trans. R. Soc. London A **238** (1940) 513.
- 13) A. D. B. Woods, W. Cochran, and B. N. Brockhouse: Phys. Rev. **119** (1960) 980.
- 14) J. R. Hardy and A. M. Karo: *The Lattice Dynamics and Statics of Alkali Halide Crystals* (Prenum, New York, 1979).
- 15) S. S. Jaswal and J. R. Hardy: Phys. Rev. **171** (1968) 1090.
- 16) B. Szigeti: Proc. R. Soc. London A **204** (1950) 51.
- 17) J. R. Tessman, A. H. Kahn, and W. Schockley: Phys. Rev. **92** (1953) 890.
- 18) S. S. Jaswal and T. P. Sharma: J. Phys. Chem. Solids **34** (1973) 509.
- 19) Ref. 1. p. 326.
- 20) R. P. Lowndes and D. H. Martin: Proc. R. Soc. London A **308** (1969) 473.
- 21) M. J. L. Sangster and R. M. Atwood: J. Phys. C **11** (1978) 1541.
- 22) P. B. Ghate: Phys. Rev. **139A** (1965) 1666.
- 23) G. Dolling, H. G. Smith, R. M. Nicklow, P. R. Vijayaraghavan, and M. K. Wilkinson: Phys. Rev. **168** (1968) 970.
- 24) W. J. L. Buyers: Phys. Rev. **153** (1967) 923.
- 25) G. Raunio, L. Almqvist, and R. Stedman: Phys. Rev. **178** (1969) 1496.
- 26) J. S. Reid, T. Smith, and W. J. L. Buyers: Phys. Rev. B **1** (1970) 1833.
- 27) A. D. B. Woods, B. N. Brockhouse, R. A. Cowley, and W. Cochran: Phys. Rev. **131** (1963) 1025.
- 28) W. Bührer: Phys. Status Solidi **41** (1970) 789.

- 29) G. Raunio and L. Almqvist: Phys. Status Solidi **33** (1969) 209.
- 30) G. Dolling, R. A. Cowley, C. Schittenhelm, and I. M. Thorson: Phys. Rev. **147** (1966) 577.
- 31) G. Raunio and S. Rolandson: J. Phys. C **3** (1970) 1013.
- 32) S. Rolandson and G. Raunio: J. Phys. C **4** (1971) 958.
- 33) G. Raunio and S. Rolandson: Phys. Status Solidi **40** (1970) 749.
- 34) R. A. Cowley, W. Cochran, B. N. Brockhouse, and A. D. B. Woods: Phys. Rev. **131** (1963) 1030.
- 35) U. Schröder: Solid State Commun. **4** (1966) 347.
- 36) J. S. Melvin, J. D. Pirie, and T. Smith: Phys. Rev. **175** (1968) 1082.