Письма в ЖЭТФ, том 94, вып. 6, с. 472 – 476

Рассеяние света электронами и перенормировка электронного спектра в осмии

Ю. С. Поносов[1]*, С. В. Стрельцов*

Институт физики металлов Уральского отд. РАН, 620990 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 20 июля 2011 г.

Выполнены температурные исследования неупругого рассеяния света электронами в осмии для различных величин и направлений волнового вектора. Частотные зависимости спектров электронного рассеяния света смоделированы на основе рассчитанной зонной структуры с включением эффектов неупругого рассеяния. Сравнение измеренных и рассчитанных спектров свидетельствует о том, что в исследованной области энергий электрон-фононное рассеяние является доминирующим и позволяет оценить частотно- и температурно-зависимую перенормировку электронной скорости и затухания.

Введение. Нерезонансное электронное рассеяние света (ЭРС) в металлах способно дать информацию о структуре поверхности Ферми (ПФ) [1, 2] при условии, что частоты рассеяния $\omega > \Gamma$, где Γ – частота релаксации электронов. Поскольку рассеивающий объем ограничен глубиной проникновения света, частотное поведение сечения ЭРС, определяемое всеми электронами на ПФ, в значительной степени зависит от распределения зондируемых волновых векторов $\mathbf{q}$. Например, оптические свойства высокотемпературных сверхпроводников обусловливают довольно малые значения $q \leq 5 \cdot 10^5\,\text{см}^{-1}$, что, наряду с низкими электронными скоростями v_f, определяет малые значения максимальных частот $\omega \approx qv_f \leq 100\,\text{см}^{-1}$ в спектре. Это в свою очередь позволяет пренебречь членом с qv_f и использовать в пределе $q \to 0$ друдеподобное выражение для электронного отклика: $\chi'' \propto \omega\Gamma/(\omega^2+\Gamma^2)$ [3], что дает возможность получать информацию о процессах электронной релаксации в нормальном состоянии [4, 5]. В элементных металлах при возбуждении спектров в видимой области значения исследуемых волновых векторов могут быть в несколько раз больше, что вместе с увеличенными скоростям v_f не позволяет пренебречь вкладом члена с qv_f. При этом изменение величины зондируемого волнового вектора (а следовательно, энергетического расстояния от уровня Ферми E_f) в эксперименте дает возможность исследовать влияние различных процессов рассеяния (электрон-фононного, электрон-электронного) на частотно-зависимую перенормировку электронного спектра вблизи E_f.

Ранее мы сообщали о наблюдениях пространственной дисперсии ЭРС при низких температурах в 5d переходном ГПУ-металле осмии [6]. Для прояснения наблюдаемого нелинейного поведения максимумов ЭРС в зависимости от зондируемого вектора $\mathbf{q}$ в данной работе представлены детальные результаты исследований температурного поведения спектров ЭРС. Их сравнение с частотными зависимостями сечения рассеяния ЭРС, полученными на основе рассчитанной зонной структуры осмия с учетом эффектов электрон-фононного рассеяния, позволило получить оценки перенормировки массы и затухания электронных состояний вблизи E_f.

Эксперимент. Измерения были выполнены на электрополированных плоскостях (0001), $(10\bar{1}0)$ и $(\bar{1}2\bar{1}0)$ высокочистого ($\rho_{300\,\text{K}}/\rho_{4.2\,\text{K}} > 1000$) монокристалла осмия. Для возбуждения спектров использовались линии аргонового, криптонового, гелий-неонового и титан-сапфирового лазеров (1.6–2.5 эВ). Спектры рассеянного излучения в диапазоне температур 10–600 К регистрировались в квазиобратной геометрии с помощью спектрометров Dilor XY и Renishaw RM1000, снабженных охлаждаемыми многоканальными приемниками на основе ПЗС. Представленные спектры были измерены в поляризационных геометриях $A_{1g}+E_{2g}$ (XX, YY) и E_{2g} (XY) и исправлены на зависимость интенсивности рассеяния от спектрального пропускания каждого из приборов и оптических свойств осмия на частотах рассеянного света.

Расчеты. Сечение электронного рассеяния света внутризонными возбуждениями определяется интегралом по распределению возбуждаемых волновых векторов от электронной восприимчивости $W(q,\omega)$ [1, 2]:

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} \propto \frac{1}{1-\exp^{-\hbar\omega}/kT}\int_0^\infty dqU^2(q)W(q,\omega). \quad (1)$$

[1])e-mail: ponosov@imp.uran.ru

Функция $U^2(q)$, определяющая распределение возбуждаемых волновых векторов в металле, была взята в форме [7]

$$U^2(q) \propto \frac{4q^2}{\left|\xi^2 - q^2\right|^2}, \tag{2}$$

где $\xi = \xi_i + \xi_s$ и $\xi_{i,s} = 2\pi\sqrt{n^2+k^2}/\lambda_{i,s}$, $\lambda_{i,s}$ – длины волн возбуждающего (i) и рассеянного (s) излучения. В расчетах $U^2(q)$ использовались измеренные на исследованных образцах осмия оптические константы n и k [8]. Восприимчивость $W(q,\omega)$ при учете взаимодействия электронов может быть записана в виде интеграла по ПФ от мнимой части q-зависимого поляризационного оператора [1, 2, 9, 10]:

$$W(q,\omega) = \oint \frac{ds_f}{v_f}\bar{\gamma}^2(k_f,q,\omega)\int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon[f(\epsilon)-f(\epsilon+\omega)]\times \\ \times \Im \frac{1}{\omega - qv_z - \Sigma(\epsilon) + \Sigma(\epsilon+\omega)}. \tag{3}$$

Ранее подобный формализм был использован для расчетов неадиабатических эффектов в собственных энергиях фононов [9] и спектров ЭРС в пределе $q \to 0$ [10, 11]. Здесь $\bar{\gamma}_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega) = \gamma_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega) - \langle\gamma_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega)\rangle$ – матричный элемент электрон-фотонного взаимодействия с учетом кулоновского взаимодействия, треугольные скобки означают усреднение по ПФ, $f(\epsilon)$ – Ферми-функции, z – направление нормали к поверхности образца, $\Sigma(\epsilon)$ и $\Sigma(\epsilon+\omega)$ – электронные собственные энергии, определяющие перенормировку электронного спектра вследствие различных взаимодействий. Так, в случае электрон-фононного взаимодействия реальная и мнимая части квазичастичной $\Sigma(\epsilon)$ равны [12]

$$\Sigma'(\epsilon) = \int d\Omega\alpha^2F(\Omega)\times \\ \times \Re\left[\psi\left(\frac{1}{2}+i\frac{\omega+\Omega}{2T}\right) - \psi\left(\frac{1}{2}+i\frac{\omega-\Omega}{2T}\right)\right], \tag{4}$$

$$\Sigma''(\epsilon) = 2\pi\int d\Omega\alpha^2F(\Omega)\times \\ \times[2n_{\rm B}(\omega) - f(\epsilon+\omega) + f(\epsilon-\omega) + \nu]. \tag{5}$$

Здесь ν – примесная частота релаксации, ψ – дигамма-функция, Ω – фононная энергия, $\alpha^2F(\Omega)$ – функция Элиашберга, $n_{\rm B}$ – функция распределения Бозе. Плотность фононных состояний $F(\Omega)$ была определена из экспериментального рамановского спектра второго порядка, A_{1g}-компонента которого обычно неплохо представляет $F(\Omega)$ в удвоенном масштабе частот. Эксперимент свидетельствует о резонансе ЭРС в области энергий возбуждения $E_i \sim 2.2-2.3$ эВ [6]. В этом случае для расчета матричных элементов $\gamma_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega)$ необходимо суммирование по всем межзонным переходам, включающим E_f, с учетом матричных элементов оператора импульса [13]. В данной работе мы использовали константу для $\bar{\gamma}_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega)$. Такое упрощение оправдано тем, что интенсивности и формы линий измеренных спектров ЭРС для различных направлений $\mathbf{q}$ (зондирующих существенно различные области фазового пространства k_f) весьма близки. Кроме того, формы A_{1g}- и E_{2g}-спектров практически одинаковы, что указывает на малую величину $\langle\gamma_{\alpha\beta}(k_f,q,\omega)\rangle$ и, следовательно, незначительные эффекты экранирования. Скорости электронов на ПФ были получены в рамках зонных расчетов методом линеаризованных маффин-тин орбиталей (ЛМТО) в приближении локальной электронной плотности (ЛЭП). Рассчитанная ПФ Os состоит из двух электронных листов, Г9e и Г10e, малой дырочной поверхности U7h на направлении LM и сложной анизотропной поверхности KM8h, что согласуется с ранними расчетами [14–16]. Вычисление интегралов по ПФ проводилось путем прямого численного суммирования по сетке, состоящей из 125 000 точек в полной зоне Брюллюэна.

Результаты и обсуждение. На рис. 1 и 2 показаны деленные на фактор Бозе рамановские спектры для нескольких энергий возбуждения и температур. Наряду с узкими особенностями на частотах одно- и двухфононных возбуждений ($\sim 170\,\text{см}^{-1}$ и 250–450$\,\text{см}^{-1}$), в спектрах наблюдаются широкие максимумы ЭРС. При низких температурах их энергии зависят как от направления волнового вектора, так и от его величины, что свидетельствует о сохранении волнового вектора в процессе рассеяния. На рис. 3 показана зависимость энергий пиков ЭРС, измеренных при 10 K для направления $\mathbf{q}$ вдоль кристаллической оси, от величины возбуждаемого волнового вектора. Эта зависимость меняет наклон в области $200\,\text{см}^{-1}$. Такое поведение вместе с сильной зависимостью спектров от температуры свидетельствует о перенормировке энергий двухчастичных электронных возбуждений, которые зондируются в ЭРС. Аналогичная зависимость спектров ЭРС для невзаимодействующих электронов, рассчитанная по формулам (1)–(5) с константой электрон-фононного взаимодействия $\lambda = 2\int d\Omega/\Omega\alpha^2F(\Omega) \approx 0$ и $\nu = 10\,\text{см}^{-1}$, также представлена на рис. 3. Тот факт, что дисперсия, определенная из рассчитанной зависимости, близка к опубликованным значениям средней электронной скорости в осмии [17], позволяет считать,

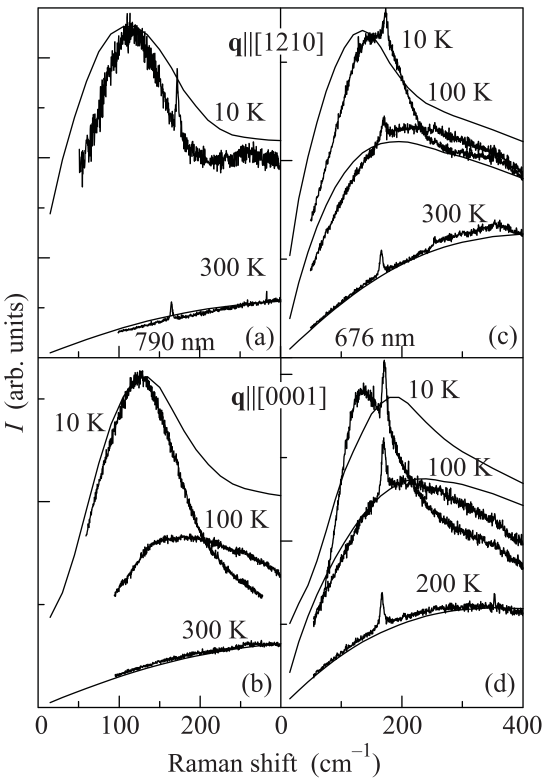

Рис. 1. Рамановские спектры, измеренные с энергиями возбуждения 1.6 эВ (790 нм) (a), (b) и 1.83 эВ (676 нм) (c), (d) на плоскостях (0001) и ($\bar{1}2\bar{1}0$) монокристалла осмия при различных температурах. Линии – спектры, рассчитанные по (1)–(5)

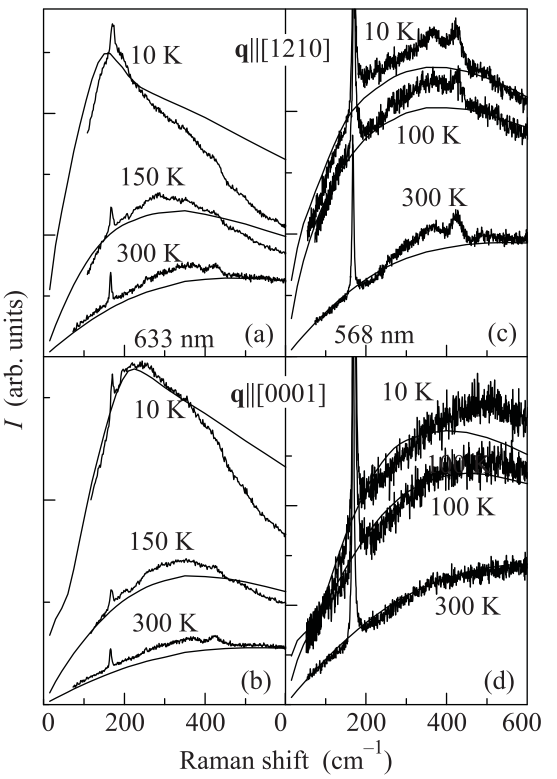

Рис. 2. Рамановские спектры, измеренные с энергиями возбуждения 1.96 эВ (633 нм) (a), (b) и 2.18 эВ (568 нм) (c), (d) на плоскостях (0001) и ($\bar{1}2\bar{1}0$) монокристалла осмия при различных температурах. Линии – спектры, рассчитанные по (1)–(5)

что интеграл (1) достаточно адекватно представляет усредненную по всем 4 листам ПФ "дисперсионную кривую" осмия. Полагая, что измеренные энергии пиков ЭРС определяются перенормированной скоростью (массой) вблизи E_f, на рис. 4 мы построили зависимость от ω разности между измеренными и рассчитанными значениями энергий пиков ЭРС, т.е. $\Sigma'(\omega)$ от измеренных энергий, для обоих направлений волнового вектора. Перенормировка скорости максимальна вблизи энергий 20–25 мэВ, т.е. вблизи величины средней энергии фононного спектра осмия. На этом же рисунке показана зависимость квазичастичной $\Sigma'(\omega)$ от энергии, рассчитанная по формуле (4) с $\lambda = 0.64$. Согласие между экспериментом и теорией весьма неплохое, что предполагает электрон-фононное рассеяние основным каналом взаимодействия. Полученное значение λ близко к существующим оценкам константы электрон-фононного взаимодействия в осмии [17]: $\lambda = 0.66$ из теплоемкости, $\lambda = 0.54$ из транспортных измерений и McMillan's $\lambda = 0.39$.

Увеличение энергии наблюдаемых электронных возбуждений и рост их ширины при повышении температуры обусловлены как уменьшением реальной части, так и ростом мнимой части $\Sigma(\epsilon)$, определяющей затухание электронных состояний вблизи E_f. Последняя может быть более точно оценена из экспериментов при высоких температурах, когда можно пренебречь $\Sigma'(\epsilon)$ и приближенно представить электронный отклик в виде

$$\chi''(\omega) \propto N_f \frac{\omega\Gamma(\omega)}{(\omega - qv_z)^2 + \Gamma^2}, \qquad (6)$$

где N_f – плотность состояний на уровне Ферми. При высоких температурах частота релаксации электронов, $\Gamma(\omega) \approx 2\Sigma''(\omega)$, слабо зависит от частоты, а максимум должен наблюдаться на частотах $\omega \sim \sim \sqrt{qv_z{}^2 + \Gamma^2}$, что дает возможность оценить Г. Частота релаксации Г оказывается $\sim 360\,\text{см}^{-1}$ при комнатной температуре. Отсюда, пользуясь уравнением (5), можно снова оценить константу λ. Такие оценки дают гораздо меньшую величину, $\lambda \sim 0.3$, чем ранее полученная из реальной части $\Sigma(\omega)$. Дополнительные эксперименты при повышенных температурах (до 650 К) демонстрируют дальнейшее увеличение частоты и ширины пика ЭРС (рис. 5). Это

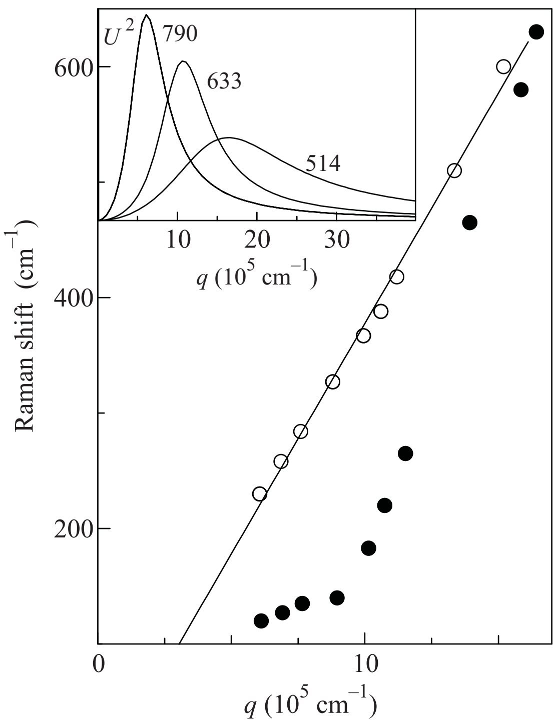

Рис. 3. Зависимости от $\mathbf{q}$ энергий максимумов в спектрах ЭРС осмия, измеренных при 10 К для направления $\mathbf{q}\|[0001]$ (черные кружки) и рассчитанных по (1)–(5) (линия и белые кружки). На вставке – функция $U^2(q)$ для нескольких длин волн возбуждения (нм)

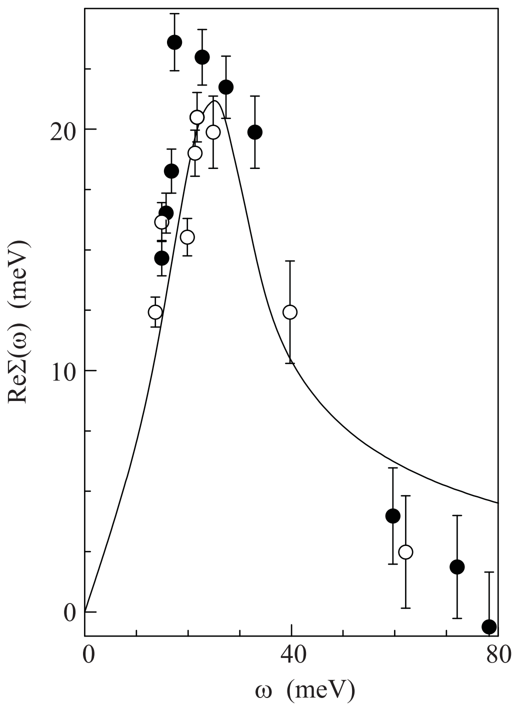

Рис. 4. Зависимость реальной части $\Sigma'(\omega)$ от энергии Черные кружки – измерения для $\mathbf{q}\|[0001]$, белые – $\mathbf{q}\|[\bar{1}2\bar{1}0]$. Сплошная линия – расчет по (4) с $\lambda = 0.64$

в основном связано с ростом частоты релаксации, поскольку в этой области температур она превосходит вклад члена с qv_z ($\sim 380\,\text{см}^{-1}$ для направления $\mathbf{q}\|[0001]$ и энергии возбуждения 1.96 эВ). Полученные при 630 К оценки, $\Gamma \approx 700\,\text{см}^{-1}$ и $\lambda \sim 0.3$, могут быть сделаны с достаточной точностью даже при неучете вклада члена с qv_z.

Расхождение между полученными оценками λ может быть уменьшено при использовании в расчетах другого распределения волновых векторов $U^2(q)$ в металле, например предложенного в [18]. Последнее дает меньшие значения эффективного q и, соответственно, рассчитанных энергий ЭРС невзаимодействующими электронами, $\omega \approx qv_z$, уменьшая оценки $\Sigma'(\epsilon)$ и λ. Однако это распределение не дает возможности описать q-зависимые эффекты расщепления энергий оптических фононов в осмии, обусловленные перенормировкой электронных скорости и затухания [6]. Возможной причиной полученного расхождения в λ может быть отличие квазичастичной и транспортной частот релаксации [19]. Именно последняя определяет затухание двухчастичных электронных возбуждений, исследуемых в рамановском рассеянии. Как показано в [19], ее частотное поведение отлично от поведения квазичастичного аналога (использованного в расчетах данной работы) в большой области энергий, особенно при низких температурах. Кроме того, выражения (4) и (5) для $\Sigma(\epsilon)$ строго могут быть использованы для однозонного спектра, в то время как в реальном случае вклад в спектр дают четыре листа ПФ осмия.

Все спектры ЭРС, показанные на рис. 1, 2 и 5 линиями, рассчитаны по уравнениям (1)–(5) с полученными значениями $\lambda = 0.64$ для реальной части $\Sigma(\epsilon)$ и $\lambda = 0.3$ для мнимой части в приближении изотропного электрон-фононного рассеяния. Возможно, поэтому они не воспроизводят изменения анизотропии частот пиков ЭРС вблизи энергии возбуждения 1.83 эВ, где энергии пиков ЭРС для $\mathbf{q}$ вдоль оси становятся меньше, чем для $\mathbf{q}$ в базисной плоскости кристалла. Тем не менее согласие рассчитанных весьма низкочастотных спектров (до 50 мэВ) с измеренными довольно неплохое.

Заключение. Результаты исследования частотной зависимости спектров ЭРС осмия в широкой температурной области для различных направлений и величин волнового вектора показали, что этот метод дает возможность получить оценки перенормировки массы электронов и частоты релаксации в металлах вблизи уровня Ферми. По сравнению с мето-

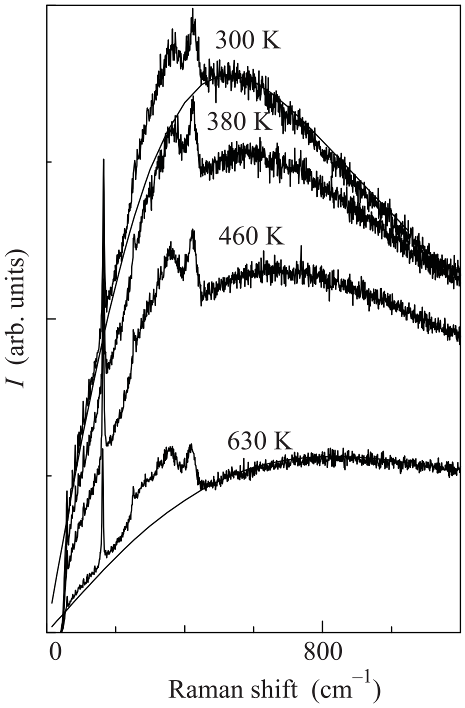

Рис. 5. Рамановские спектры, измеренные при высоких температурах на плоскости (0001) с энергией возбуждения 1.96 эВ (633 нм). Линии – спектры, рассчитанные по (1)–(5)

дом фотоэмиссии с угловым разрешением, дающим подобную информацию, рамановское рассеяние зондирует возбуждения на гораздо больших толщинах, т.е. в бо́льшей степени представляет объем образца. Полученные данные свидетельствуют о ведущей роли электрон-фононного рассеяния в перенормировке электронного спектра осмия. Наши оценки константы электрон-фононного взаимодействия согласуются с оценками, полученными с помощью других методов.

Ю.С. Поносов признателен M. Cardona за предоставленную возможность начать данный эксперимент. Авторы благодарны $\boxed{\text{Е.Г. Максимову}}$ за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант # 11-02-00306, # 10-02-96011).

1. И. П. Ипатова, М. И. Каганов, А. В. Субашиев, ЖЭТФ **84**, 1830 (1983).
2. Л. А. Фальковский, ЖЭТФ **103**, 666 (1993).
3. A. Zawadowski and M. Cardona, Phys. Rev. B **42**, 10732 (1990).
4. A. Virosztek and J. Ruvalds, Phys. Rev. B **45**, 347 (1992).
5. T. P. Devereaux and R. Hackl, Rev. Mod. Phys. **79**, 175, (2007).
6. Yu. S. Ponosov, G. A. Bolotin, C. Thomsen et al., Phys. Stat. Sol. b **208**, 257 (1998).
7. A. Dervisch and R. Loudon, J. Phys. C **9**, L669 (1976).
8. В. Немошкаленко, В. Н. Антонов и др., ЖЭТФ **90**, 201 (1986).
9. E. G. Maksimov and S. V. Shulga, Sol. State Com. **97**, 553 (1996).
10. S. N. Rashkeev and G. Wendin, Z. Phys. B **93**, 33 (1993).
11. V. N. Kostur, Z. Phys. B **89**, 149 (1992).
12. С. В. Вонсовский, Ю. А. Изюмов, Э. З. Курмаев, *Сверхпроводимость переходных металлов, их сплавов и соединений*, М.: Наука, 1977, С. 61.
13. M. V. Klein and S. B. Dierker, Phys. Rev. B **29**, 4976, (1984).
14. O. Jepsen, O. K. Andersen, and A. R. Mackintosh, Phys. Rev. B **12**, 3084 (1975).
15. Y. Ma, T. Cui, L. Zhanget et al., Phys. Rev. B **72**, 174103 (2005).
16. D. Koudela, M. Richter, A. Mobiuset et al., Phys. Rev. B **74**, 214103 (2006).
17. B. A. Sanborn, P. B. Allen, and D. A. Papaconstantopoulas, Phys. Rev. B **40**, 6037 (1989).
18. Л. А. Фальковский, ЖЭТФ **100**, 2045 (1991).
19. E. G. Maksimov and D. Y. Savrasov, O. V. Dolgov et al., Sol. Stat. Comm. **106**, 409 (1998).