

## НОВЫЙ МЕХАНИЗМ СПИНОВОЙ РЕЛАКСАЦИИ ПРИ РАССЕЯНИИ СВЕТА

*В.А.Войтенко*

*Санкт-Петербургский государственный технический университет  
195251 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 9 ноября 1994 г.

Построена теория универсальной релаксационной формы линии при электронном квазиупругом рассеянии света флуктуациями спиновой плотности в многокомпонентных спиновых системах, содержащихся в интерметаллических актинидах с тяжелыми фермионами, в ВТСП кристаллах, в сильнолегированных полупроводниках. Предложен новый механизм спиновой релаксации, позволивший дать физическую интерпретацию не зависящей от волнового вектора света ширине линии квазиупругого рассеяния, а также его большой интенсивности. Обсуждаются возможности оценок по спектрам некоторых микроструктурных параметров интерметаллических актинидов: энергий спин-орбитальных расщеплений и оптических фононов.

### 1. Введение

В последнее время в связи с поисками высокотемпературных сверхпроводников накоплен значительный экспериментальный материал по рассеянию света свободными электронами интерметаллических соединений  $UPt_3$  [1],  $UBe_{13}$  [2,3],  $URu_2Si_2$  [4]. Перечисленные интерметаллические актиниды, объединенные наличием тяжелых фермионов, различаются по многим микроскопическим параметрам – по структуре, составу, степени локализации  $5f$ -электронов, наличию магнитного упорядочения- и имеют совершенно несхожие поверхности Ферми. Тем не менее, во всех исследованных актинидах наблюдалось рассеяние света флуктуациями спиновой плотности, несмотря на известную малость магнитного рассеяния [5] и трудности в регистрации рассеяния в непрозрачных средах.

Существует много неясностей в поведении тяжелых фермионов [6]. Так, имеется противоречие между их конечным вкладом в проводимость, даже наличием сверхпроводящего спаривания и локальной природой их магнитных моментов. Электронное рассеяние света, которое согласно [7] до сих пор не удавалось наблюдать в нормальных металлах, неожиданно оказалось удобным инструментом исследования интерметаллических актинидов. Так, например, согласно [8] наблюдение скалярного рассеяния флуктуациями электронной плотности в  $UPt_3$  [9] и его отсутствие в  $UBe_{13}$  [8] позволило сделать вывод о большой степени локализации  $5f$ -электронов во втором из этих соединений [8]. В противоположность скалярному рассеянию, антисимметричное рассеяние флуктуациями спиновой плотности зарегистрировано во всех исследованных актинидах [8]. Всюду наблюдается лоренцевская форма линии с не зависящей от волнового вектора света шириной  $\Gamma_S$ , свидетельствующей о наличии интенсивной спиновой релаксации. В [8] сделан на этом основании вывод о полной локализации магнитных моментов  $5f$ -электронов, однако ее природа остается неясной. Считается, что частота спиновой релаксации определяется в основном коллективными эффектами типа Корринги и Кондо, см., например, [10]. Между тем значение коэффициента Корринги  $\alpha$ , полученное в [3] по

углу наклона линейного участка температурной зависимости  $\Gamma_S(T)$ , оказалось на порядок больше расчетных значений.

В настоящей работе предложен особый, не связанный с коллективными эффектами, механизм спиновой релаксации, для существования которого достаточно обычных примесей в кристалле. В сильнолегированных полупроводниках для его проявления требуется, чтобы несколько (не менее двух) неэквивалентных долин были заполнены электронами. В Ge такое электронное распределение было достигнуто высокой степенью легирования [11], а в GaAs – гидростатическим давлением [12]. Исследуемые в настоящее время интерметаллические актиниды, а также высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП) содержат несколько частично заполненных электронных подзон: зоны тяжелых и легких фермионов в актинидах [6], проводящие цепочки и плоскости в ВТСП. Эти соединения представляют собой кристаллы не очень хорошего качества или поликристаллы. Поэтому предложенный механизм спиновой релаксации следует учитывать и в актинидах.

## 2. Релаксационная теория формы линии спектра рассеяния

Для вычисления сечения рассеяния флуктуациями спиновой плотности необходимо найти антисимметричную часть тензора диэлектрической восприимчивости [5,13]. Если, для определенности, говорить об интерметаллических актинидах, то последнюю следует связывать с флуктуациями аксиального вектора намагниченности [1,5]. При этом сечение рассеяния можно представить в виде [1]

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \omega_S \partial \Omega} = V \tau_0^2 [e_I e_S]^2 \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i(\omega_I - \omega_S)t} \langle M_z(t) M_z(0) \rangle. \quad (1)$$

Здесь  $\langle \dots \rangle$  означают статистическое усреднение по начальным состояниям;  $\tau_0 = e^2 / mc^2$  – классический радиус электрона;  $\Omega$  – телесный угол;  $V$  – объем рассеивающей области кристалла;  $e_I, \omega_I$  – вектор поляризации и частота падающего света;  $e_S, \omega_S$  – те же параметры рассеянного света;  $M$  – безразмерная намагниченность, проекция  $M_z$  которой равна [10]

$$M_z = \sum_{\alpha} R_{\alpha} (\delta n_{\uparrow}^{(\alpha)} - \delta n_{\downarrow}^{(\alpha)}), \quad (2)$$

где  $\delta n_{\uparrow(\downarrow)}^{(\alpha)}$  – флуктуация концентрации фермионов сорта  $\alpha$  со спином вверх (вниз),  $R_{\alpha}$  – резонансный множитель, зависящий от электронной зонной структуры. Вследствие столкновения с фононом или примесью тяжелый фермион может за характерное время  $\tau$ , сохраняя свой спин, перейти в другую зону, став обычным электроном проводимости. Выравнивание концентраций различных фермионов, происходящее под действием процессов такого рода, описывается обычными релаксационными уравнениями. Соответствующая релаксационная форма линии хорошо известна для случая рассеяния флуктуациями спиновой плотности многодолинных полупроводников [14]. Пренебрегая в соответствии с экспериментом [1-4,8,9] процессами диффузии фермионов, запишем для относительной заселенности спиновых состояний уравнения релаксации в форме

$$\frac{\partial (\delta n_{\uparrow}^{(\alpha)} - \delta n_{\downarrow}^{(\alpha)})}{\partial t} = \frac{1}{\tau} \sum_{\beta} I_{\alpha\beta} (\delta n_{\uparrow}^{(\beta)} - \delta n_{\downarrow}^{(\beta)}). \quad (3)$$

Здесь симметричная матрица столкновений  $I_{\alpha\beta}$  сводится к разности "уходных" и "приходных" членов, пропорциональных плотностям конечных состояний в соответствии с [15]:

$$I_{\alpha\beta} = \left( \frac{\partial n_\alpha}{\partial \zeta} \right)_T \left[ \delta_{\alpha\beta} - \frac{(\partial n_\beta / \partial \zeta)_T}{(\partial n / \partial \zeta)_T} \right], \quad (4)$$

где  $n_\alpha$  – равновесная концентрация фермионов сорта  $\alpha$ ,

$$n = \sum_\alpha n_\alpha \quad (5)$$

– полная их концентрация,  $\zeta$  – химический потенциал. Заметим, что простые релаксационные уравнения (3), (4) справедливы вне зависимости от степени локализации частиц того или иного сорта. В модели чередующихся сверхпроводящих и несверхпроводящих слоев, предложенной Абрикосовым для ВТСП [16], система (3) содержит бесконечное число уравнений, связанных через  $I_{\alpha\beta}$ . В этом случае роль  $\tau$  играет время перехода между соседними проводящими слоями, например,  $\text{CuO}$ -цепочками и  $\text{CuO}_2$ -плоскостями. В [17] показано, что определяющая, согласно (1) и (2), среднеквадратичную флуктуацию намагниченности и сечение рассеяния спектральная корреляционная функция

$$\psi_\alpha(\omega) = \left( \frac{\partial \zeta}{\partial n_\alpha} \right)_T \sum_\beta R_\beta \int_0^\infty dt e^{i(\omega_I - \omega_S)t} \langle (\delta n_\uparrow^{(\alpha)}(t) - \delta n_\downarrow^{(\alpha)}(t)) (\delta n_\uparrow^{(\beta)}(0) - \delta n_\downarrow^{(\beta)}(0)) \rangle \quad (6)$$

удовлетворяет тем же уравнениям, что и сама флуктуирующая величина  $\delta n_\uparrow^{(\alpha)} - \delta n_\downarrow^{(\alpha)}$ . Система уравнений для функций (6) получается из (3) и (4) после применения одностороннего преобразования Фурье по времени с учетом начальных условий, см., например, [15]:

$$\langle (\delta n_\uparrow^{(\alpha)} - \delta n_\downarrow^{(\alpha)}) (\delta n_\uparrow^{(\beta)} - \delta n_\downarrow^{(\beta)}) \rangle = T \left( \frac{\partial n_\alpha}{\partial \zeta} \right)_T \delta_{\alpha\beta}. \quad (7)$$

В простейшем случае, когда кроме тяжелых фермионов ( $\alpha = h$ ) учитываются электроны только одной зоны, играющие роль легких частиц ( $\alpha = l$ ), система уравнений для функций (6) принимает вид

$$-i\omega\psi_l + \frac{1}{\tau} \frac{(\partial n_h / \partial \zeta)_T}{(\partial n / \partial \zeta)_T} (\psi_l - \psi_h) = TR_l, \quad (8)$$

$$-i\omega\psi_h + \frac{1}{\tau} \frac{(\partial n_l / \partial \zeta)_T}{(\partial n / \partial \zeta)_T} (\psi_h - \psi_l) = TR_h, \quad (9)$$

где  $\omega = \omega_I - \omega_S$ . Подставляя решение этой системы ( $\psi_l$ ,  $\psi_h$ ) в (1) и (2) с учетом определения (6), получим для сечения

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \omega_S \partial \Omega} = TV \tau_0^2 \frac{(\partial n_l / \partial \zeta)_T (\partial n_h / \partial \zeta)_T}{(\partial n / \partial \zeta)_T} [e_\uparrow e_S]^2 \frac{\tau}{1 + (\omega\tau)^2} (R_h - R_l)^2. \quad (10)$$

Из (10) следует, что сечение имеет релаксационную лоренцевскую форму спектра, одинаковую для всех интерметаллических актинидов, кристаллов ВТСП

и многодолинных полупроводников. Соответствующее эксперименту постоянное значение  $\Gamma_S = 1/\tau$  является следствием релаксационных уравнений (8) и (9), которые справедливы вне зависимости от степени локализации магнитных моментов тяжелых фермионов. Таким образом, сделанное в [8] утверждение о том, что регистрация постоянного значения  $\Gamma_S$ , не зависящего от волнового вектора света, свидетельствует о полной локализации магнитных моментов тяжелых фермионов, лишено оснований. Многочисленные примеры наблюдения релаксационной формы линии с постоянной шириной  $\Gamma_S = 1/\tau$  в идеальной плазме твердого тела и ферми-жидкости [15] свидетельствуют об обратном.

### 3. Абсолютная интенсивность рассеяния

Из (10) следует, что для наблюдения релаксационного вклада в рассеяние флуктуациями спиновой плотности требуется значительная плотность состояний в обеих участвующих подзонах. Кроме того, абсолютная интенсивность рассеяния определяется разностью коэффициентов резонансного усиления для различных подзон:  $\Delta R = R_h - R_l$ . Явные выражения для этих коэффициентов известны в настоящее время только в случае изолированных атомов [10], а также полупроводников [12]. Для случая полупроводников  $n$ -типа (Ge, GaAs, InSb) коэффициенты  $R_\alpha$  имеют вид [12]

$$R_\alpha = \hbar\omega_I \frac{2(P_{cv}^{(\alpha)})^2}{3m} \frac{\Delta_\alpha(\Delta_\alpha + 2E_{g\alpha})}{[E_{g\alpha}^2 - (\hbar\omega_I)^2][(E_{g\alpha} + \Delta_\alpha)^2 - (\hbar\omega_I)^2]}, \quad (11)$$

где  $E_{g\alpha}$  и  $P_{cv}^{(\alpha)}$  – параметры зонной структуры полупроводника, см., например, [18],  $\Delta_\alpha$  – энергия спин-орбитального расщепления его валентной зоны в соответствующей области зоны Бриллюэна. Из (11) видно, что различие в коэффициентах резонансного усиления  $R_l \neq R_h$  для различных подзон возникает главным образом из-за неравенства энергий спин-орбитальных расщеплений  $\Delta_l \neq \Delta_h$ . В полупроводниках  $n\text{Ge}$ ,  $n\text{GaAs}$  с относительно слабой спин-орбитальной связью для всех долин  $\Delta_\alpha \ll E_g$ , поэтому

$$\Delta R \approx \frac{(\Delta_\Gamma - \Delta_L)\hbar\omega_I}{E_g^2 - (\hbar\omega_I)^2} \ll R_\alpha. \quad (12)$$

Однако в InSb для центральной  $\Gamma$ -долины реализуется обратное неравенство,  $\Delta_\Gamma \gg E_g$ , поэтому  $\Delta R \approx R_\alpha$ . Следовательно, за счет резонансного усиления возможно достижение неравенства  $\Delta R \gg 1$ , при котором процесс с сечением (10) преобладает над всеми прочими. Электронная зонная структура интерметаллических актинидов изучена недостаточно, конкретные значения коэффициентов (11) для них неизвестны. Ввиду высоких порядковых номеров составляющих их элементов можно предположить наличие сильной спин-орбитальной связи, обеспечивающей выполнение условия  $\Delta R \gg 1$ . По интенсивности антисимметричного квазиупругого рассеяния можно судить об относительной роли спин-орбитального расщепления электронных зон. Из сказанного вытекает, что в интерметаллических соединениях эта роль значительна. Напротив, в кристаллах ВТСП рассеяние рассмотренного типа пока не наблюдалось, поэтому можно сказать, что роль спин-орбитального расщепления здесь невелика.

Ширина спектра квазиупругого рассеяния (10) позволяет измерять температурные зависимости различных процессов релаксации. Ориентируясь на

начало линейного участка в температурной зависимости  $\Gamma_S(T)$ , из [3,8] можно оценить частоту оптического фонона, ответственного за время релаксации  $\tau$  как  $\omega_{opt} \approx 5$  мЭВ. Фононный спектр интерметаллических актинидов также неизвестен. Поскольку остовы их решеток состоят из ядер достаточно тяжелых элементов и содержат много атомов в элементарной ячейке, то можно ожидать появления достаточно мягких фононов, соответствующих приведенной выше оценке.

1. H.Brenten, E.Zirngiebl, M.S.Wire et al., Sol. St. Comm. **62**, 387 (1987).
2. S.L.Cooper, R.T.Demers, M.V.Klein et al., Physica B **135**, 49, (1985).
3. S.L.Cooper, M.V.Klein, M.P.Maple, and M.S.Torikachwili, Phys. Rev. B **38**, 5743 (1988).
4. S.B.Blumenröder, E.Zirngiebl, R.Mock et al., Proc. of the 6-th Int. Conf. on Crystal-field Effects and Heavy Fermion Physics ed. by W.Assmus, P.Fulde, B.Lüthi, and F.Steglich., J. of Magn. Magn. Mater. **76-77**, 331 (1988).
5. М.Г.Коттам, Д.Дж.Локвуд. Рассеяние света в магнетиках, М.: Наука, 1991. (M.G.Cottam, D.J.Lockwood, Light Scattering in Magnetic Solids Wiley New York 1986).
6. T.M.Rice and K.Ueda, In Theory of heavy fermions, and valence fluctuations ed. by T.Kasura and T.Sas. Springer Series in Solid State Sci, 1985, p.216.
7. С.Кляма, Л.А.Фальковский, ЖЭТФ **100**, 625 (1991).
8. G.Guntherodt and E.Zirngiebl, In Light Scattering in Solids VI, ed by M.Cardona and G.Guntherodt Springer-Verlag, Berlin, 1991.
9. R.Mock and G.Guntherodt, Z.Phys. B **74**, 315 (1989).
10. Т.Мория. Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами, М.: Мир, 1988. (T.Moriya, Spin Fluctuations in itinerant electron magnetism, Springer, Berlin, 1985).
11. A.Compaan, G.Contreras, M.Cardona, and A.Axmann, J.Physique **44**, C5-197 (1983).
12. Г.Абстрејтер, М.Кардона, А.Пинчук, в кн.: Рассеяние света в твердых телах, М.: Мир, 1986, с.12. (G.Abstreiter, M.Cardona and A.Ainzuk in Light Scattering in Solids eds M.Cardona and G.Guntherodt, Springer Heidelberg, 1984, p.5.
13. В.Б.Берестецкий, Е.М.Лифшиц, Л.П.Питаевский. Квантовая электродинамика М.: Наука, 1980.
14. В.А.Войтенко, ФТТ **33**, 3064 (1991).
15. Б.Х.Байрамов, В.А.Войтенко, И.П.Ипагова, УФН **163**, N5, 63 (1994).
16. А.А.Абрикосов, Physica C **182**, 191 (1991).
17. Е.М.Лифшиц, Л.П.Питаевский, Физическая кинетика, М.: Наука, 1979.
18. Е.О.Кане, J.Phys. Chem. Solids **1**, 249 (1957).