Письма в ЖЭТФ, том 62, вып.9, стр.733 - 738 © 1995г. 10 ноября

ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА РАМАНОВСКИЙ СПЕКТР В МЕТАЛЛЕ

Е.Ж.Мищенко

Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН

117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 12 октября 1995 г.

Неупругое рассеяние света в магнитном поле рассмотрено теоретически с точки зрения выяснения природы рамановских спектров высокотемпературных сверхпроводников. Использован квазиклассический подход на основе уравнения Больцмана. Подробно проанализированы оба предельных случая чистого и грязного металлов. В чистом кристалле должны наблюдаться логарифмические пики, отвечающие циклотронным резонансам. В "грязном" случае широкий релаксационный континуум, определяемый обратным временем электронной релаксации, расщепляется на меньшие континуумы, максимумы которых располагаются вблизи переданных частот, кратных циклотронной. Учтено наличие скин-эффекта и кулоновского взаимодействия носителей. Проанализированно рамановское рассеяние с возбуждением оптического фонона. Показано уширение фононного пика в магнитном поле, связанное с ростом затухания фонона в случае, если его частота попадает в область циклоторнного резонанса.

1. Рамановское рассеяние света широко применяется для исследования спектров различных квазичастиц в кристаллах. Для диэлектриков теория рамановского рассеяния хорошо развита и находится в согласии с экспериментальными данными (см. обзор [1]). Однако недавние эксперименты по рассеянию света в высокотемпературных сверхпроводниках [2–7] не укладываются в рамки имеющихся теорий. Наиболее удивительным является поведение сечения рассеяния при больших переданных частотах. Оно оказывается почти постоянным вплоть до очень больших переданных частот ~ 1 эВ. Более того, высказывается предположение [7], что происхождение этого континуума связано не с электронами проводимости, ввиду его нечувствительности к плотности носителей. В то же время, явно видимые антирезонансы Фано в спектральных линиях, отвечающих рождению фонона, свидетельствуют о процессе с участием электронов проводимости. Существующие же теории, в основном, описывают электронное рамановское рассеяние. Поэтому особый интерес представляет нахождение методов, которые могли бы прояснить вопрос о происхождении рамановских спектров высокотемпературных сверхпроводников. Одним из них могло бы стать рассеяние света в магнитном поле. Настоящий расчет предпринят с целью получить общую картину явления и сделать предсказания о виде сечения. Механизм рассеяния будет предполагаться электронным.

2. Электронное неупругое рассеяние света удобно рассматривать [8, 9] как процесс рассеяния в эффективном внешнем поле $U(\mathbf{r},t)$, билинейном по векторным потенциалам падающей (i) и рассеяной (s) волн:

$$A^{(i)}(\mathbf{r},t)A^{(s)}(\mathbf{r},t) \simeq U(\mathbf{r},t) = U(z)\exp[i(\mathbf{k}_s\mathbf{s} - \omega t)], \qquad (1)$$

где введены переданная частота $\omega = \omega^{(i)} - \omega^{(s)}$ и переданный волновой векторы вдоль поверхности $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_s^{(i)} - \mathbf{k}_s^{(s)}$. Здесь $\mathbf{s}$ обозначает координату вдоль поверхности, $\omega^{(i)}, \omega^{(s)}$ и $\mathbf{k}_s^{(i)}, \mathbf{k}_s^{(s)}$ - соответственно частоты и волновые векторы

падающей и рассеяной волн. Поверхность находится при $z = 0$, кристалл занимает полупространство $z > 0$. Фактор $U(z)$ описывает распространение поля внутри кристалла и в случае нормального скин-эффекта имеет вид

$$U(z) = \exp(i\zeta z) = \exp(i\zeta_1 z - \zeta_2 z), \tag{2}$$

где ζ представляет собой сумму z-компонент волновых векторов падающей и рассеяной волн в среде. Взаимодействие поля (2) с электронами описывается гамильтонианом

$$H_{eff} = \frac{e^2}{mc^2} \int \frac{d^3p}{(2\pi)^3} \gamma(\mathrm{p}) U(\mathrm{r}, t) f_p(\mathrm{r}, t) \ , \tag{3}$$

где $f_p(\mathrm{r}, t)$ – функция распределения электронов. Вершинная функция $\gamma(\mathrm{p})$ учитывает поляризацию света и виртуальные межзонные переходы. Ее микроскопическое выражение для дальнейшего несущественно [см. 10]. В формуле (3) явным образом подразумевается квазиклассичность процесса рассеяния света, что справедливо, если переданные частота и волновой вектор света малы по сравнению с энергией и импульсом Ферми.

Сечение рассеяния, вычисленное по гамильтониану (3), имеет вид [11]

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega do} \simeq \frac{e^4}{m^2c^4} \frac{\Sigma(\mathrm{k}_s, \omega)}{1 - \exp(-\omega/T)} \ , \tag{4}$$

где коррелятор $\Sigma(\mathrm{k}_s, \omega)$ при помощи флуктуационно-диссипационной теоремы выражается через мнимую часть обобщенной восприимчивости электронной системы в поле $U(z)$ [8]:

$$\Sigma(\mathrm{k}_s, \omega) = -2 \ \mathrm{Im} \int_0^\infty dz \ U^*(z) \int \frac{2d^3p}{(2\pi)^3} \gamma^*(\mathrm{p}) f_p(\mathrm{k}_s, z, \omega), \tag{5}$$

здесь под $f_p(\mathrm{k}_s, z, \omega)$ понимается фурье-образ функции распределения по времени и координатам в плоскости поверхности.

Таким образом, чтобы найти сечение необходимо решить уравнение Больцмана для электронной функции распределения в магнитном поле. Мы будем рассматривать случай нормального падения и рассеяния ($\mathrm{k_S} = 0$) и предположим для простоты, что магнитное поле приложено перпендикулярно поверхности (вдоль оси z). В качестве переменных, вместо p_x, p_y будем использовать энергию электрона ε и угол ϕ, обозначающий его положение на квазиклассической траектории $\gamma(\mathrm{p}) \to \gamma(p_z, \phi, \varepsilon)$, $d^3p \to m^*(p_z) \ dp_z \ d\phi \ d\varepsilon$, $m^*(p_z)$ - циклотронная масса. Функцию распределения ищем в виде

$$f_p(z, \omega) = f_0[\varepsilon_0 + \gamma(p_z, \phi) U(z) - \mu] + \frac{df_0}{d\varepsilon} \chi_p(z, \omega). \tag{6}$$

Первый член этого выражения дает нуль после подстановки в интеграл столкновений. В качестве граничного условия выберем условие зеркального отражения электронов от поверхности. Другой выбор граничного условия качественно не изменяет результат. Для возможности использования преобразования Фурье во всем пространстве продолжим $\chi_p(z, \omega)$, $U(z)$ четным образом в область $z < 0$. Кинетическое уравнение в τ-приближении принимает тогда обычный вид. Его решение напишем в форме

$$\chi_p(k, \omega) = -\sum_n e^{in\phi} \ \frac{\omega \gamma^{(n)}(p_z) U(k)}{\omega - n\omega_H(p_z) - v_z(p_z)k + i\tau_p^{-1}}, \tag{7}$$

где $\omega_H(p_z) = eH/cm^*(p_z)$ – циклотронная частота и введено обозначение для гармоник вершинной функции:

$$\gamma^{(n)}(p_z) = \int_0^{2\pi} \frac{d\phi}{2\pi} \gamma(p_z, \phi) e^{-in\phi}. \tag{8}$$

В решении (7) v_z предполагается не зависящим от ϕ (в ВТСП это ограничение несущественно, ввиду $vk << \tau^{-1}$). Легко видеть, что ввиду четности $U(k)$ полученное решение (7) удовлетворяет выбранному граничному условию.

Для рассмотрения эффектов электромагнитного поля в (7) должен быть учтен член $\mathbf{vE}$. Эти эффекты будут кратко обсуждены в п. 4.

Подставляя (7) в (6) и затем в (5), получаем сечение электронного рамановского рассеяния в магнитном поле:

$$\Sigma(\omega) = -\mathrm{Im} \int \frac{dk}{2\pi} |U(k)|^2 \sum_n \left\langle \frac{\omega \ |\gamma^{(n)}(p_z)|^2}{\omega - n\omega_H(p_z) - v_z(p_z)k + i\tau_p^{-1}} \right\rangle, \tag{9}$$

где скобки обозначают интеграл по ферми-поверхности

$$\langle ... \rangle = \frac{2}{(2\pi)^2} \int dp_z \ m^*(p_z) \ (...).$$

Рассмотрим полученный результат в двух предельных случаях - чистого и грязного металлов. Это может быть проделано подобно тому, как вычислялась проводимость в магнитном поле [12].

3. Выражение (9) содержит циклотронные резонансы, расположенные на частотах $\omega = n\omega_H(p_z) + v_z(p_z)k$. В чистом металле $|\zeta|v >> \tau^{-1}$ мнимая часть в (9) появляется вследствие обхода полюса. В случае, когда всюду $\partial/\partial p_z(n\omega_H(p_z) + v_z(p_z)k) \neq 0$, мы имеем случай опорной точки. Главный вклад в интеграл по k при этом происходит от окресности точки $k_0 = |(\omega - n\omega_H(p_z))/v_z(p_z)|_{min}$. С логарифмической точностью сечение определяется пояском $(p_z^{(1)})$ на поверхности Ферми, на котором функция $|(\omega - n\omega_H(p_z))/v_z(p_z)|$ принимает минимальное значение

$$\Sigma^{(n)}(\omega) \simeq \frac{\pi\omega}{v} \left\langle |\gamma^{(n)}(p_z^{(1)})|^2 \right\rangle \begin{cases} \ln\left(\dfrac{|\zeta|}{\max\ (k_0, \tau^{-1}/v)}\right) / |\zeta|^2, & |\zeta| >> k_0 \\ |\zeta|^2/k_0^4, & |\zeta| << k_0. \end{cases} \tag{10}$$

В случае же, когда в некоторой точке $p_z^{(2)}$, $\partial/\partial p_z(n\omega_H(p_z) + v_z(p_z)k) = 0$, разложение по p_z вблизи этой точки до членов второго порядка и последующее распространение области интегрирования от $-\infty$ до ∞ дает форму линии несимметричного резонанса. При выполнении условий $\zeta_1 >> \zeta_2$, $\tau^{-1} >> v\zeta_2$ она имеет вид

$$\Sigma^{(n)}(\omega) \simeq \frac{\omega m^*(p_z^{(2)})|\gamma^{(n)}(p_z^{(2)})|^2}{2\pi\zeta_2|a_n|^{1/2}} \left(\frac{[(\omega - \Omega_n)^2 + \tau^{-2}]^{1/2} - (\omega - \Omega_n) \ \mathrm{sgn}\ a_n}{(\omega - \Omega_n)^2 + \tau^{-2}} \right)^{1/2}, \tag{11}$$

где введены обозначения

$$\Omega_n = n\omega_H(p_z^{(2)}) + v_z(p_z^{(2)})\zeta_1,$$

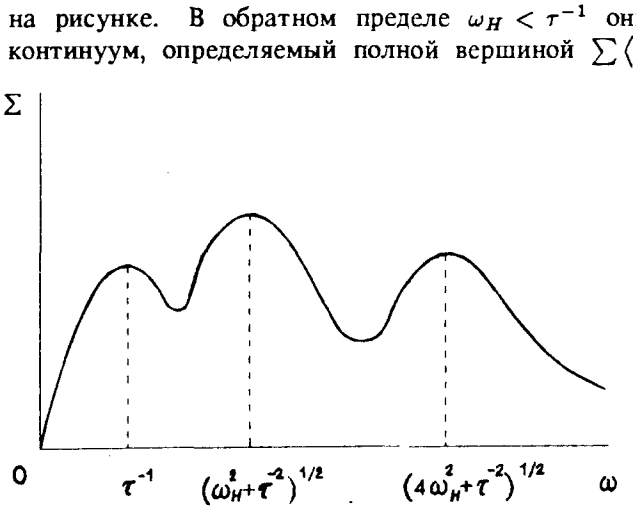
$$a_n = \frac{1}{2}\frac{d^2}{dp_z^2}\left[v_z(p_z)\zeta_1 + n\omega_H(p_z)\right]_{p_z=p_z^{(2)}} .$$

При этом ζ_1 играет роль k.

В грязном случае $|\zeta|v << \tau^{-1}$ (именно эта ситуация реализуется в ВТСП) можно пренебречь членом vk в знаменателе (9). В результате находим

$$\Sigma(\omega) = \zeta_2^{-1}\sum_n \left\langle |\gamma^{(n)}(p_z)|^2 \right\rangle \frac{\omega\tau^{-1}}{(\omega - n\omega_H)^2 + \tau^{-2}}, \tag{12}$$

здесь для простоты положено $\omega_H = \text{const}$. Первый член этого выражения (с $n = 0$) представляет релаксационный континуум, не затрагиваемый магнитным полем, с максимумом при $\omega \sim \tau^{-1}$ [13]. Видно, что в магнитном поле появляется набор дополнительных континуумов, максимумы которых располагаются при $\omega = (n^2\omega^2 + \tau^{-2})^{1/2}$. Они представляют рассеяние на осцилляторах с собственными частотами $n\omega_H$ и затуханием τ^{-1}. Все континуумы имеют одинаковую ширину τ^{-1}, не зависящую от n. Их размер определяется соответствующими гармониками вершинной функции $\langle|\gamma^{(n)}(p_z)|^2\rangle$. Максимумы континуумов разрешены по частоте в случае достаточно сильного магнитного поля $\omega_H > \tau^{-1}$. Картина, которая должна при этом наблюдаться, показана на рисунке. В обратном пределе $\omega_H < \tau^{-1}$ они "схлопываются" в обычный континуум, определяемый полной вершиной $\sum\langle|\gamma^{(n)}(p_z)|^2\rangle$.



Сечение электронного рамановского рассеяния в магнитном поле в грязном кристалле $v\zeta << \tau^{-1}$. При включении магнитного поля релаксационный континуум с максимумом в $\omega = \tau^{-1}$ и шириной τ^{-1} расщепляется на меньшие континуумы с максимумами в $\omega = (n^2\omega_H^2 + \tau^{-2})^{1/2}$ и той же шириной. Соотношение размеров этих континуумов позволяет определить симметрию эффективной электрон-фотонной вершинной функции

Из формул (10)-(12) видно, что измерение рамановских спектров в магнитном поле может не только дать величину электрон-фотонной вершинной функции $\gamma(\mathbf{p})$ (то есть ответ на вопрос о степени "электронности" рассеяния), но и определить ее симметрию – размер n-го резонанса тем больше, чем больше величина n-й гармоники.

4. Обсудим кратко роль опущенного члена с электрическим полем в кинетическом уравнении. Для его учета необходимо воспользоваться уравнением Максвелла. Полученные результаты таковы. Продольная часть электромагнитного поля дает кулоновскую экранировку нулевой вершинной гармоники согласно

$$\gamma^{(0)}(p_z) \to \gamma^{(0)}(p_z) = \gamma^{(0)}(p_z) - \left\langle \gamma^{(0)}(p_z) \right\rangle / \langle 1 \rangle .$$

Высшие же гармоники вообще не затрагиваются кулоновским взаимодействием.

Поперечная часть электромагнитного поля приводит к существованию в рамановском спектре пика, связанного с возбуждением (поглощением) геликона [14]. Геликонный пик должен хорошо наблюдаться в достаточно сильном магнитном поле $\omega_H >> \tau^{-1}$. К сожалению, поскольку по различным оценкам [15] в ВТСП частота электронных столкновений довольно высока, $\tau^{-1} \sim 10^{12} - 10^{13}\,\text{с}^{-1}$, это требует больших магнитных полей, не достижимых в настоящее время.

5. В заключение рассмотрим влияние магнитного поля на рамановское рассеяние с возбуждением оптического фонона. Для учета колебаний решетки в кинетическое уравнение должен быть добавлен член, описывающий электрон-фононное взаимодействие. При этом для самосогласования нужно писать отдельное уравнение для фононов. Не повторяя этих простых вычислений, которые вполне аналогичны ранее проделанным для случая нулевого магнитного поля [16], приведем лишь результат:

$$\Sigma(\omega) = -\mathrm{Im} \int \frac{dk}{2\pi} |U(k)|^2 \left(\Pi_{\gamma^*\gamma}(k,\omega) - \frac{\Pi_{\gamma^*\xi}(k,\omega)\Pi_{\xi^*\gamma}(k,\omega)}{\rho(\omega^2 - \omega_0^2(k)) - \Pi_{\xi^*\xi}(k,\omega)} \right), \tag{13}$$

где $\omega_0(k)$ – затравочный фононный спектр, ρ – плотность приведенной массы решетки, а $\Pi(k,\omega)$ представляет собой электронную петлю (поляризационный оператор) с индексами, обозначающими вершины, например

$$\Pi_{\xi^*\xi}(k,\omega) = \sum_n \left\langle \frac{(v_z(p_z)k - i\tau_p^{-1})\ \xi^{(n)*}(p_z)\xi^{(n)}(p_z)}{\omega - n\omega_H(p_z) - v_z(p_z)k + i\tau_p^{-1}} \right\rangle, \tag{14}$$

где $\xi(\mathbf{p})$ представляет константу оптического деформационного потенциала. Выражение (13), наряду с описанными выше результатами (первый член в скобках), содержит резонанс на частоте фонона, сдвиг которой вследствие электрон-фононного взаимодействия определяется действительной частью поляризационного оператора (14). Как и в случае нулевого магнитного поля, он имеет несимметричную форму, характерную для антирезонанса Фано [17, 18]. Ширина соответствующего пика определяется затуханием фонона Г, даваемого мнимой частью выражения (14). В чистом металле $vk >> \tau^{-1}$ вычисление мнимой части дает затухание

$$\Gamma^{(n)} \simeq g^2 \frac{\omega_D^2}{vk} \theta(vk - |\omega - n\omega_H|);$$

здесь $\theta(x)$ – ступенчатая функция Хэвисайда, ω_D – дебаевская частота ($\omega_D \sim \omega_0$), g – безразмерная константа электрон-фононной связи ($\xi \sim g\varepsilon_F$). При малых волновых векторах $\omega_D >> vk >> \tau^{-1}$ это выражение растет вблизи циклотронного резонанса. Максимальная величина затухания при этом определяется столкновениями

$$\Gamma_{max} \simeq g^2 \omega_D^2 \tau. \tag{15}$$

Отметим, что это выражение не мало при $\tau^{-1} \leq g\omega_D$. В грязном кристалле $vk << \tau^{-1}$ затухание имеет вид

$$\Gamma = \frac{1}{\rho} \sum_n \left\langle |\xi^{(n)}(p_z)|^2 \right\rangle \frac{\omega\tau^{-1}}{(\omega - n\omega_H)^2 + \tau^{-2}}$$

с тем же максимальным значением (15). Таким образом, в спектре электронного рамановского рассеяния с возбуждением оптического фонона должно наблюдаться уширение пика (вплоть до полного его исчезновения), если частота фонона кратна циклотронной частоте магнитного поля.

Выражаю благодарность Л.А.Фальковскому за инициирование интереса к задаче и многочисленные обсуждения работы, фонду Landau Scholarship (KFA Forschungszentrum, Julich, Germany) и Российскому фонду фундаментальных исследований (грант 94-02-03029) за финансовую поддержку.

---

1. *Light Scattering in Solids*, Ed. M.Cardona, Topics of Applied Physics Vol. 8 (Springer-Verlag, Berlin, 1975).
2. S.Sugai, Y.Entomoto, and T.Murakami, Sol. St. Comm. **72**, 1193 (1989).
3. T.Staufer, R.Hackl, and P.Müller, Sol. St. Comm. **79**, 409 (1991).
4. M.Boekholt, M.Hoffman, and G.Gunterodt, Physica **C 175**, 127 (1991).
5. F.Slakey, M.V.Klein, J.P.Rice, and D.M.Ginsberg, Phys. Rev. B **43**, 3764 (1992).
6. A.A.Maksimov, A.V.Puchkov, I.I.Tartakovskii et al., Sol. St. Comm. **81**, 407 (1992).
7. D.Reznik, M.V.Klein, W.C.Lee et al., Phys. Rev. B **46**, 11725 (1992).
8. L.A.Falkovsky and S. Klama, Phys. Rev. B **50**, 5666 (1994).
9. L.A.Falkovsky and E.G.Mishchenko, Phys. Rev. B**51**, 7239 (1995).
10. M.V.Klein and S.B.Dierker, Phys. Rev. B **29**, 4976 (1984).
11. Л.А.Фальковский, ЖЭТФ **103**, 666 (1993).
12. Э.А.Канер, В.Ф.Гантмахер, УФН **94**, 193 (1968).
13. A.Zawadowsky and M.Cardona, Phys. Rev. B **42**, 10732 (1990).
14. E.G.Mishchenko, Phys. Rev. B, в печати.
15. K.Kamaras, S.L.Herr, C.D.Porter et. al, Phys. Rev. Lett. **64**, 84 (1990).
16. Е.Ж.Мищенко, Л.А.Фальковский, ЖЭТФ **107**, 936 (1995).
17. Л.А.Фальковский, Письма в ЖЭТФ **62**, 227 (1995).
18. T.P.Devereaux, A.Virosztek, and A.Zawadowsky, Phys. Rev. B **51**, 505 (1995).