

ЗАТУХАНИЕ ФОНОН-ПЛАЗМОННЫХ МОД

Л. А. Фальковский*

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук
117337, Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 октября 2002 г.

Рассчитаны сдвиг частоты и затухание фонон-плазмонных мод в зависимости от концентрации носителей заряда. Вычисления проделаны в длинноволновом приближении с учетом электронного затухания и собственного времени жизни оптических фононов.

PACS: 63.20.Kr, 71.38.-k, 72.30.+q

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время вновь проявился интерес к фононным перенормировкам в металлах и легированных полупроводниках вследствие взаимодействия с носителями заряда. Этот вопрос имеет давнюю историю. С помощью методов теории поля он был поставлен в пионерской работе Мигдала [1], где было показано, что перенормировка является весьма существенной. Оказалось, что скорость звука, например, меняется в меру безразмерной константы λ электрон-фононного взаимодействия, которая имеет порядок единицы. После этого появилось много работ о фононной неустойчивости, вызванной взаимодействием с электронами, и о так называемой мягкой фононной моде. Все полученные результаты противоречат концепции Борна–Опшенгеймера [2], согласно которой легкие электроны адиабатически следят за медленными колебаниями кристаллической решетки и, таким образом, перенормировка должна содержать малый параметр неадиабатичности $\sqrt{m/M}$, где m и M — массы соответственно электрона и атома решетки. Вопрос был прояснен в работе Бровмана и Кагана [3], показавших, что причина противоречия лежит в ограниченности методов, использующих гамильтониан Фрелиха, и правильные результаты должны соответствовать концепции адиабатичности.

Несмотря на это, вопрос о перенормировках продолжает обсуждаться и в последнее время. Недавно Александров и Шриффер вновь получили [4] с помо-

щью диаграммной техники огромную дисперсию оптических фононов, определяемую скоростью Ферми (см. также [5]). Райзер [6] несколько исправил положение, рассмотрев экранировку дальнедействующего электрического поля, возникающего при продольных оптических колебаниях. Большая дисперсия исчезла, но константа электрон-фононного взаимодействия λ вошла в результат нефизическим образом. Заметим, что, по-видимому, впервые влияние кулоновской экранировки на частоту оптических фононов рассматривалось в работе Гуревича, Ларкина и Фирсова [7].

В работах [4, 6, 7] не учитывались столкновения электронов друг с другом, дефектами и фононами (частота столкновений γ), а также полностью игнорировалось затухание оптических фононов, Γ^{nat} , обусловленное ангармонизмом, а именно, процессами распада фононов. Эти эффекты определяют проводимость и диэлектрическую проницаемость, т. е. электродинамику системы. Частоты столкновений в оптической области, $\gamma, \Gamma^{nat} \sim \sqrt{m/M} \omega_0$, малы по сравнению с характерными фононными частотами ω_0 и описывают ширину фононных и плазмонных резонансов. Экспериментальное исследование ширины резонансов в рамановском и рентгеновском рассеянии является удобным способом изучения качества, а также изотопного и полиморфного состава металлических и полупроводниковых образцов.

В работе [8] с помощью кинетического уравнения для электронов и уравнения движения для фононов мы вычислили сдвиг частоты и затухание оптических фононов, принимая во внимание все отмеченные особенности (электрон-фононное взаимо-

*E-mail: falk@itp.ac.ru

действие явно, кулоновскую экранировку, затухание электронов и собственную ширину фононов) и ограничиваясь случаем типичного металла, когда энергия Ферми и плазменная частота электронов, ω_{pe} , велики по сравнению с частотами поперечных и продольных фононов, ω_{TO}, ω_{LO} . Оказалось, что различные механизмы электрон-фононного взаимодействия (деформационный или поляризационный) не меняют по сути качественную картину, возникающую при учете лишь кулоновской экранировки и частот столкновений γ и Γ^{nat} .

Отметим, что в квазиклассическом приближении, когда переданный импульс (импульс фонона) является малым по сравнению с характерным импульсом электронов, метод кинетического уравнения полностью эквивалентен диаграммной технике и соответствующие уравнения могут быть сформулированы как уравнения для собственных энергий электронов и фононов. Необходимо лишь правильно учитывать кулоновскую экранировку и адиабатичность электрон-фононной системы.

В эксперименте, по-видимому, более удобно исследовать влияние электрон-фононного взаимодействия, меняя электронную концентрацию, т. е. на допированных полупроводниках (см., например, недавнюю работу [9], выполненную на высокотемпературном сверхпроводнике $Nd_{1.86}Ce_{0.14}CuO_{4+\delta}$ с использованием рентгеновского неупругого рассеяния). Поэтому в данной работе мы распространили результаты работы [8] на случай произвольного соотношения между плазменной частотой электронов и частотой фононов, когда возможны связанные фонон-плазмонные колебания. Мы максимально упростили ситуацию, пренебрегая слагаемыми с λ (прямое электрон-фононное взаимодействие) и сохраняя лишь влияние столкновений, γ и Γ^{nat} , а, кроме того, предполагая, что система электронов является вырожденной.

2. ПРЕДЕЛЬНЫЕ ВЫРАЖЕНИЯ ДЛЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ

Для наших целей достаточно проанализировать продольную компоненту диэлектрической проницаемости электрон-фононной системы:

$$\varepsilon(k, \omega) = \varepsilon_{\infty} \frac{\omega^2 - \omega_{LO}^2 + i\Gamma^{nat}}{\omega^2 - \omega_{TO}^2 + i\Gamma^{nat}} - \frac{4\pi e^2 \nu_0 \langle v_z / \Delta_p(k) \rangle}{k(1 - i\langle \gamma / \Delta_p(k) \rangle)}. \quad (1)$$

Здесь первое слагаемое — ионный вклад — записано на малых волновых векторах (по сравнению с обратным периодом решетки) в бездисперсионном виде с учетом того, что диэлектрическая проницаемость должна иметь полюс и нуль соответственно на частоте поперечных и продольных фононов. Высоко-частотная проницаемость обозначена ε_{∞} . Тот факт, что у оптических фононов всегда имеется малое затухание, $\Gamma^{nat} \sim \sqrt{m/M} \omega_0$, определяемое ангармонизмами и не имеющее особенностей (как функция ω), мы учли, добавив $i\Gamma^{nat}/2$ к ω .

Электронный вклад в диэлектрическую проницаемость (второе слагаемое в (1)) для волновых векторов, меньших фермиевского импульса, получен [8] с помощью кинетического уравнения в приближении частоты столкновений γ ; здесь введено обозначение

$$\Delta_p(k) = \omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} + i\gamma.$$

Угловые скобки означают усреднение по ферми-поверхности с плотностью состояний ν_0 :

$$\langle \dots \rangle = \frac{1}{\nu_0} \int (\dots) \frac{2dS_F}{v(2\pi)^3}.$$

Для изотропного случая $\nu_0 = m^* p_F / \pi^2$ — плотность электронных состояний на ферми-поверхности, m^* — эффективная масса электронов.

Перепишем электронный вклад в виде

$$\varepsilon_e(k, \omega) = \varepsilon_{\infty} \frac{k_0^2}{k^2} \left[1 - \frac{\langle \omega / \Delta_p(k) \rangle}{1 - i\langle \gamma / \Delta_p(k) \rangle} \right], \quad (2)$$

где параметр экранировки $k_0^2 = 4\pi e^2 \nu_0 / \varepsilon_{\infty}$.

Интеграл по ферми-поверхности берется в случае изотропного электронного спектра:

$$\left\langle \frac{1}{\Delta_p(k)} \right\rangle = \frac{1}{2kv_F} \ln \frac{\omega + i\gamma + kv_F}{\omega + i\gamma - kv_F}.$$

Запишем это выражение, явно разделяя вещественную и мнимую части:

$$\left\langle \frac{1}{\Delta_p(k)} \right\rangle = \frac{1}{2kv_F} \left[\frac{1}{2} \ln \frac{(\omega + kv_F)^2 + \gamma^2}{(\omega - kv_F)^2 + \gamma^2} + i \arctg \frac{\omega - kv_F}{\gamma} - i \arctg \frac{\omega + kv_F}{\gamma} \right]. \quad (3)$$

Мнимая часть здесь представляет затухание Ландау, вызванное рождением электронных возбуждений. Оно существенно при $kv_F > |\omega + i\gamma|$:

$$\varepsilon_e(k, \omega) = \varepsilon_{\infty} \left(\frac{k_0}{k} \right)^2 \left(1 + i \frac{\pi \omega}{2kv_F} \right), \quad (4)$$

$kv_F \gg |\omega + i\gamma|.$

В области $\gamma < \omega - kv_F \ll kv_F$ имеем

$$\varepsilon_e(k, \omega) = \varepsilon_\infty \frac{k_0^2}{k^2} \times \left\{ 1 - \frac{\omega}{2kv_F} \left[\frac{1}{2} \ln \frac{4k^2 v_F^2}{(\omega - kv_F)^2 + \gamma^2} - i \frac{\gamma}{\omega - kv_F} \right] \right\}. \quad (5)$$

Наконец, при малых $kv_F \ll |\omega + i\gamma|$ получаем

$$\varepsilon_e(k, \omega) = \varepsilon_\infty \left\{ 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \left[1 + \frac{3}{5} \left(\frac{kv_F}{\omega + i\gamma} \right)^2 \right] \right\}. \quad (6)$$

Здесь не зависящее от волнового вектора слагаемое непосредственно связано с друдевской проводимостью, а плазменная частота электронов дается интегралом по ферми-поверхности:

$$\omega_{pe}^2 = \frac{e^2}{3\pi^2 \varepsilon_\infty} \int v dS_F.$$

Предельные выражения (4)–(6) справедливы для любой формы электронного спектра — лишь константа v_F имеет различные значения: в (4) это средняя фермиевская скорость на пояске $\mathbf{v} \perp \mathbf{k}$, в (5) — скорость в опорной точке $\mathbf{v} \parallel \mathbf{k}$, в (6) — некая средняя скорость на всей ферми-поверхности. Мы не останавливаемся на случаях, когда у ферми-поверхности имеются существенно плоские или цилиндрические участки.

3. ЧАСТОТА И ЗАТУХАНИЕ ФОНОН-ПЛАЗМОННЫХ МОД

Частота продольных фонов-плазмонных мод определяется уравнением $\varepsilon(k, \omega) = 0$. В отсутствие всякого затухания ($\gamma = \Gamma^{nat} = 0$) и при $k = 0$ с помощью (1) и (6) получаем биквадратное уравнение, решение которого дает частоты связанных фонов-плазмонных мод:

$$\omega_\pm^2 = \frac{1}{2}(\omega_{pe}^2 + \omega_{LO}^2) \pm \frac{1}{2} [(\omega_{pe}^2 + \omega_{LO}^2)^2 - 4\omega_{pe}^2 \omega_{TO}^2]^{1/2}. \quad (7)$$

Эти частоты (отнесенные к ω_{TO}) как функции электронной концентрации (а именно, ω_{pe}/ω_{TO}) показаны на рис. 1а. Верхняя ветвь (штрихпунктирная кривая) начинается с частоты продольных фононов ω_{LO} и выходит на плазменную частоту электронов ω_{pe} . Нижняя ветвь (сплошная кривая) ведет себя вначале как $\omega_{pe}\omega_{TO}/\omega_{LO}$, а затем выходит на частоту поперечных фононов ω_{TO} . Другими словами, наблюдая в оптической области фоновную моду и «добавляя» электроны, мы перешли бы от частоты ω_{LO}

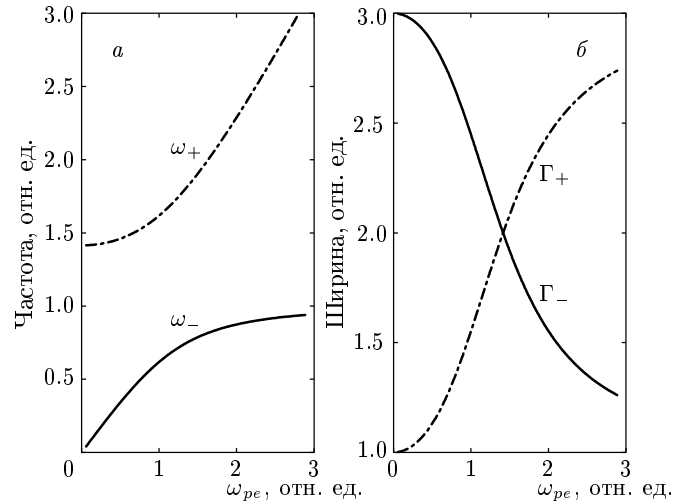


Рис. 1. Зависимость при $k = 0$ частоты (а, в единицах ω_{TO}) и затухания (б, в единицах Γ^{nat}) фонов-плазмонных мод от плазменной частоты электронов (в единицах ω_{TO}), т.е. от концентрации свободных электронов. Выбраны типичные отношения частот, $\omega_{LO}/\omega_{TO} = \sqrt{2}$, и электронного затухания к фоновному, $\gamma/\Gamma^{nat} = 3$

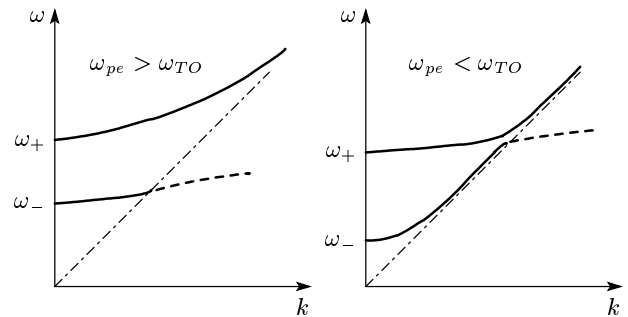


Рис. 2. Дисперсия фонов-плазмонных мод для «металлической», $\omega_{pe} > \omega_{TO}$ (а), и полупроводниковой, $\omega_{pe} < \omega_{TO}$ (б), концентраций носителей. Штрихпунктирные прямые отделяют область $kv_F > \omega$, где существует затухание Ландау, и штриховые кривые в этой области изображают затухающие решения

к ω_{TO} — таков результат электронной экранировки продольного фонона.

Поскольку в оптической области величины γ и Γ^{nat} малы по сравнению с ω_O , частоты фонов-плазмонных мод при наличии затухания можно записать в виде $\omega = \omega_\pm - i\Gamma_\pm/2$. Для соответствующих ширин Γ_\pm с помощью (1), (7) при $k = 0$ находим

$$\Gamma_+ = [\gamma(\omega_+^2 - \omega_{LO}^2) + \Gamma^{nat}(\omega_+^2 - \omega_{pe}^2)]/(\omega_+^2 - \omega_-^2),$$

$$\Gamma_- = [\gamma(\omega_-^2 - \omega_{LO}^2) + \Gamma^{nat}(\omega_-^2 - \omega_{pe}^2)]/(\omega_-^2 - \omega_+^2).$$

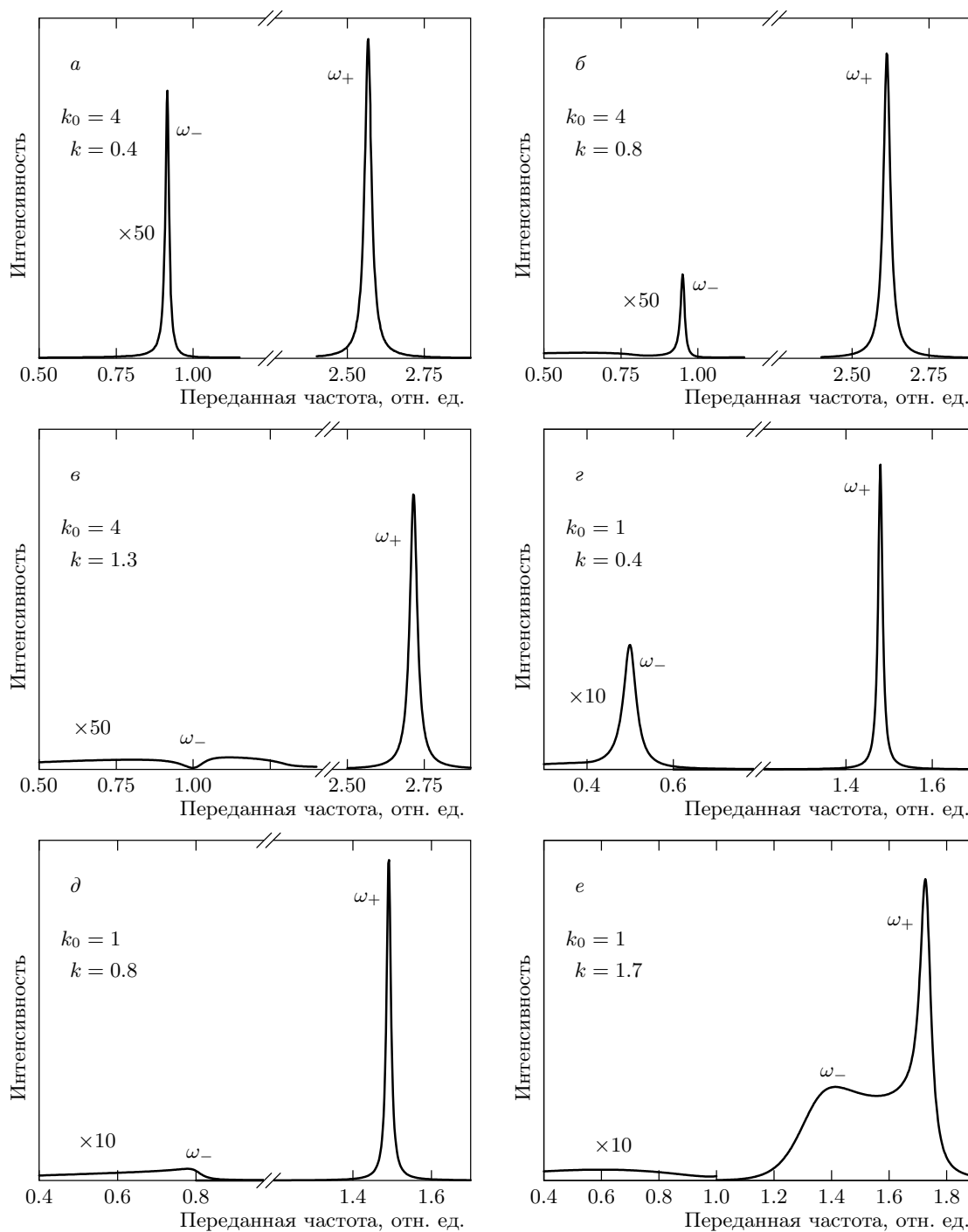


Рис. 3. Интенсивность неупругого рассеяния света, $-\text{Im}[1/\varepsilon(k, \omega)]$, как функция ω при фиксированных, указанных на рисунках значениях волнового вектора k и обратного радиуса экранировки k_0 (в единицах ω_{TO}/v_F). Выбраны значения параметров $\omega_{LO}/\omega_{TO} = \sqrt{2}, \Gamma^{nat}/\omega_{TO} = 10^{-2}, \gamma/\Gamma^{nat} = 3$

Эти зависимости показаны на рис. 1б, причем выбрано соотношение между частотами столкновений $\gamma/\Gamma^{nat} = 3$. Понятно, что концентрационные зависимости ширины отражают тот факт, что при низкой

электронной концентрации нижняя мода (сплошная кривая) является в основном плазменным электронным колебанием, а верхняя (штрихпунктир) — продольным фононным. При высокой концентрации ха-

рактер колебаний меняется на обратный.

С ростом волнового вектора k верхняя фонон-плазменная мода (см. рис. 2 и выражение (5)) выходит асимптотически на прямую $\omega = kv_F$:

$$\omega_+ = kv_F \left\{ 1 + 2 \exp \left[-2 - \frac{k^2(k^2 v_F^2 - \omega_{LO}^2)}{k_0^2(k^2 v_F^2 - \omega_{TO}^2)} \right] \right\} - i\gamma.$$

Условием применимости этого выражения является малость стоящей здесь экспоненты. Нижняя мода попадает в область электронных возбуждений, $kv_F > \omega$, благодаря чему возникает затухание Ландау (4):

$$\omega_-^2 = \frac{k^2 \omega_{LO}^2 + k_0^2 \omega_{TO}^2}{k^2 + k_0^2} - i \frac{\pi \omega k k_0^2 \omega_{pi}^2}{2v_F(k^2 + k_0^2)^2}, \quad (8)$$

где плазменная частота ионов $\omega_{pi}^2 = \omega_{LO}^2 - \omega_{TO}^2$. В мнимую часть выражения (8) следует подставить вместо ω значение ω_- , определяемое вещественной частью. Эти участки спектра показаны на рис. 2 штриховыми кривыми. Обращаем внимание на то, что при условиях $k_0 v_F > \omega$ и $k_0 < p_F$ возникает достаточно большая дисперсия оптического фонона: с ростом волнового вектора при $k \approx k_0$ частота меняется от значения ω_{TO} до ω_{LO} . Это опять-таки эффект электронной экранировки фононных колебаний. Для его наблюдения необходимо, чтобы затухание Ландау было достаточно малым, т. е. требуется выполнение сильного условия $k_0 v_F \gg \omega$.

В общем случае частота и затухание фонон-плазменных мод находятся численным решением уравнения $\varepsilon(k, \omega) = 0$. Однако простой физический смысл имеет функция $-\text{Im}[1/\varepsilon(k, \omega)]$, поскольку ей пропорционально сечение неупругого рассеяния света (рамановское или рентгеновское) на электрон-фононной системе. Построенный с помощью уравнений (1)–(3) график этой функции изображен на рис. 3а–в в зависимости от переданной частоты ω (при различных значениях переданного импульса k) для случаев, близких к «металлическим» плотностям электронов ($\omega_{pe} > \omega_{TO}$). В случае квадратичного электронного спектра плазменная частота выражается через радиус экранирования соотношением $\omega_{pe} = k_0 v_F / \sqrt{3}$, а пик при $\omega/\omega_{TO} = 2.6$ – 2.7 соответствует возбуждению плазмона. При значениях ω/ω_{TO} несколько меньших единицы виден пик, соответствующий возбуждению фонона (см. рис. 1а и формулу (7)), частота которого уменьшилась по сравнению с ω_{LO} вследствие экранировки. При достаточно малых k (рис. 3а) интенсивность этого пика в 50 раз меньше интенсивности рассеяния с возбуждением плазмона. По мере роста k к фононному пику со стороны малых частот (рис. 3б)

приближается широкий континуум $kv_F > \omega$, где у $\varepsilon(k, \omega)$ имеется значительная мнимая часть (4) за счет электрон-дырочных возбуждений. Интенсивность фононного пика уменьшается, форма его становится асимметричной, приобретая вид резонанса Фано. Наконец, фононный пик размывается (рис. 3в и выражение (8)), поскольку он оказывается погруженным в электронный континуум.

Относительно малым электронным плотностям ($\omega_{pe} < \omega_{TO}$) соответствуют рис. 3г–е. Теперь возбуждению продольного фонона отвечает пик примерно при $\omega/\omega_{TO} = 1.5$, что дает $\omega = \omega_{LO}$ при нашем выборе отношения $\omega_{LO}/\omega_{TO} = \sqrt{2}$. При более низких частотах имеются более широкий (поскольку мы положили $\gamma/\Gamma^{nat} = 3$) плазменный пик (рис. 3) и широкий электронный континуум (рис. 3д, е) при $\omega < kv_F$. На рис. 3д плазменный пик оказывается сильно размытым из-за близкого электронного континуума, а рис. 3е соответствует случаю достаточно больших k (см. рис. 1б), когда правый, более острый, пик представляет собой скорее плазменное колебание, а левый, размытый, максимум — фонон, погруженный в электронный континуум.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Сформулируем основной вывод работы. При повышении концентрации носителей заряда увеличивается ширина продольных оптических фононов в основном благодаря тому, что их частота с ростом волнового вектора приближается к области $kv_F > \omega$, где возможно возбуждение электрон-дырочных пар. Детальное экспериментальное исследование сдвига и затухания продольных фононных мод под влиянием изменяющейся концентрации носителей заряда в металлических и допированных полупроводниковых материалах позволило бы ответить на вопрос, в какой мере можно ограничиваться электродинамическим анализом задачи и какую роль играет здесь прямое электрон-фононное взаимодействие.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 01-02-16211).

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Б. Мигдал, ЖЭТФ **34**, 1438 (1958).
2. М. Борн, Х. Кунь, *Динамическая теория кристаллических решеток*, Изд-во иностр. лит., Москва (1958), гл. 4.

3. Е. Г. Бровман, Ю. Каган, ЖЭТФ **52**, 557 (1967).
4. A. S. Alexandrov and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. B **56**, 13731 (1997).
5. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, Добросвет, Москва (1998), с. 277.
6. M. Reizer, Phys. Rev. B **61**, 40 (2000).
7. В. Л. Гуревич, А. И. Ларкин, Ю. А. Фирсов, ФТТ **4**, 185 (1962).
8. Л. А. Фальковский, ЖЭТФ **122**, 411 (2002).
9. M. d'Adusto, P. K. Mang, P. Giura, A. Shukla, P. Chigna, A. Mirone, M. Braden, M. Greven, M. Krish, and F. Sette, E-print archives, cond-mat/0201501.