

©1995

ЗАТУХАНИЕ СИГНАЛОВ СПИНОВЫХ РЕЗОНАНСОВ В СРЕДАХ С МНОГОКОМПОНЕНТНОЙ СИСТЕМОЙ КОЛЛЕКТИВИЗИРОВАННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ

В.А.Войтенко

Санкт-Петербургский государственный технический университет,
195251, Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 15 февраля 1995 г.)

Построена универсальная релаксационная теория формы спектральной линии при электронном рассеянии света с переворотом спина, при рассеянии нейтронов и электронном парамагнитном резонансе. Показано, что в многокомпонентных спиновых системах, содержащихся в интерметаллических актинидах с тяжелыми фермионами, в ВТСП-кристаллах, в «непрямых» сильно легированных полупроводниках, твердых растворах и сверхрешетках, сигналы спиновых резонансов подвержены сильному затуханию, обусловленному взаимными превращениями носителей тока разного сорта. Обсуждаются физические причины наблюдения интенсивного рассеяния света с переворотом спина в интерметаллических актинидах с полуприродой, не зависящей от волнового вектора.

В последнее время в связи с поиском стабильных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [1], исследованием интерметаллических актинидов [2,3], созданием полупроводниковых материалов с различного рода сверхрешетками и нитями [4] появилась возможность исследовать многокомпонентные спиновые системы коллективизированных электронов. Спектры низкочастотных возбуждений таких систем являются чрезвычайно сложными. Существует несколько различных методов регистрации спиновых возбуждений в твердых телах: по электронному парамагнитному резонансу (ЭПР) [5], неупругому рассеянию нейтронов [1,2], рассеянию света с переворотом спина [2,6,7], а также по углу фарадеевского вращения [8]. Целью настоящей работы является показать, что во всех перечисленных случаях сигналы спиновых резонансов многокомпонентных электронных систем подвержены сильному затуханию, обусловленному взаимными превращениями носителей тока разного сорта.

1. Электронный парамагнитный резонанс

Теоретически все четыре вышеуказанных типа экспериментальных спектров описываются высокочастотной магнитной восприимчивостью $\chi_{\mp}(\mathbf{k}, \omega)$, поперечной по отношению к постоянному внешнему магнитному полю напряженности H_0 . В связи с этим рассмотрим спиновые возбуждения над основным состоянием многокомпонентной

электронной жидкости, находящейся в прецессирующем магнитном поле $\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{b}_0 \exp(\pm i\omega t)$, где $\mathbf{b}_0 \mathbf{H}_0 = 0$ и знаки \pm различают направления прецессии. Для описания таких возбуждений удобно воспользоваться уравнением для вектора спиновой плотности частиц в фазовом пространстве

$$\delta\sigma_\alpha = \text{Sp}_s \hat{s} \hat{n}_\alpha, \quad (1)$$

где n_α — матрица плотности электронов сорта α , \hat{s} — вектор, составленный из матриц Паули, Sp_s — шпур по спиновым состояниям. Для расчета магнитной восприимчивости $\chi_{\mp}(\mathbf{k}, \omega)$ достаточно ограничиться колебаниями, для которых $\delta\sigma_\alpha$ перпендикулярно H_0 . В этом случае кинетическое уравнение для вектора спиновой плотности в фазовом пространстве (1) приобретает следующий вид [5]

$$\frac{\partial \delta\sigma_\alpha}{\partial t} + \mathbf{v}_\alpha \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \left(\delta\sigma_\alpha - \frac{\partial f_{0\alpha}}{\partial \varepsilon} \delta\varepsilon_\alpha \right) + \frac{e}{c} \left([\mathbf{v}_\alpha \otimes \mathbf{H}_0] \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \right) \left(\delta\sigma_\alpha - \frac{\partial f_{0\alpha}}{\partial \varepsilon} \delta\varepsilon_\alpha \right) + \mu_B g_\alpha \left[\mathbf{H}_0 \otimes \left(\delta\sigma_\alpha - \frac{\partial f_{0\alpha}}{\partial \varepsilon} \delta\varepsilon_\alpha \right) \right] = \delta I_\alpha \left\{ \delta\sigma_\alpha - \frac{\partial f_{0\alpha}}{\partial \varepsilon} \delta\varepsilon_\alpha \right\}, \quad (2)$$

где μ_B — магнетон Бора, \mathbf{v}_α и g_α — скорость и g -фактор для электрона сорта α , $\delta I_\alpha \{f\}$ — интеграл столкновений, учитывающий ферми-жидкостные эффекты, существенные для металлов [5]. Кинетическое уравнение (2) описывает релаксацию многокомпонентной спиновой системы к локальному равновесию [6], при котором $\delta\sigma_\alpha$ перестает меняться и принимает локально-равновесное значение

$$\delta\sigma_\alpha = \frac{\partial f_{0\alpha}}{\partial \varepsilon} \delta\varepsilon_\alpha. \quad (3)$$

Здесь $f_0(\varepsilon)$ — фермиевская функция распределения электронной системы, $\delta\varepsilon$ — добавка к энергии спинов, обусловленная переменным внешним полем $\mathbf{b} = \mathbf{b}_0 \exp(\mp i\omega t)$.

$$\delta\varepsilon_\alpha = \mu_B g_\alpha \mathbf{b}. \quad (4)$$

Исследуемые в настоящее время интерметаллические актиниды [2,3], ВТСП [1], полупроводниковые твердые растворы и сверхрешетки [4], а также полуметаллы содержат несколько частично заполненных электронных подзон или долин. Поскольку результирующая поверхность Ферми охватывает большую область зоны Бриллюэна, то соответствующие g -факторы g_α зависят от точки α на поверхности Ферми, т.е. оказываются разными для различных подзон или долин. Отметим в этой связи, что отклонения Δg_α от g -фактора свободного электрона резко возрастают при переходе от объемных полупроводников к сверхрешеткам [7].

Решение кинетического уравнения (2) для поляризованных по спину частиц при взаимном увлечении электронных и спиновых потоков рассмотрено в [9]. Квазигидродинамическая модель поляризованных спиновых потоков использует малое значение параметра

$$\frac{kv}{|\omega + i/\tau|} \ll 1, \quad (5)$$

где k — волновой вектор возмущения (4). Для электронов во внешнем магнитном поле H_0 имеем $\omega = \omega_s = \mu_B g H_0$. при этом условие (5) означает, что длина волны спиновых возбуждений λ велика по сравнению с ларморовским радиусом электрона R , $R/\lambda \ll 1$. Первый этап основанного на малом параметре (5) решения кинетического уравнения (2) состоит в его суммировании по всем электронным импульсам. При этом в однокомпонентных спиновых системах, т.е., например, в щелочных металлах, импульсное время релаксации выпадает из рассмотрения. В результате решение содержит непосредственно только большое время переброса спина τ_s [5]. В многокомпонентной спиновой системе нахождение полного магнитного момента не сводится к суммированию кинетического уравнения по импульсам, а требует более сложного линейного преобразования

$$\mathbf{M} = \mu_B \sum_{\alpha} g_{\alpha} \mathbf{m}_{\alpha}, \quad (6)$$

где

$$\mathbf{m}_{\alpha} = \int d^3 p \delta \sigma_{\alpha}(p) \quad (7)$$

есть полная спиновая плотность в пределах одной подзоны. При наличии нескольких долин, участков поверхности Ферми, различающихся значениями электронного g -фактора, междолинное время релаксации не выпадает из интеграла столкновений после преобразования (6) кинетического уравнения (2). Интегрирование кинетического уравнения (2) по всем импульсам и суммирование по подзонам приводит к уравнению непрерывности, которое с учетом параметра (5) принимает для случая двух подзон следующий вид:

$$\begin{aligned} (-i\omega \mp i\omega_{s1} + k^2 D_{\pm}^{(1)}) \mathbf{m}_{\mp}^{(1)} + (-i\omega \mp i\omega_{s2} + k^2 D_{\pm}^{(2)}) \mathbf{m}_{\mp}^{(2)} = \\ = i\omega \left(g_1 \frac{\partial n^{(1)}}{\partial \zeta} + g_2 \frac{\partial n^{(2)}}{\partial \zeta} \right) \mu_B \mathbf{b}_{\mp}. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь ω — частота исследуемого спинового возбуждения, $\omega_{s1,2}$ — частоты спиновых резонансов отдельных подзон, $n^{(1,2)}$ — частотно-зависимые коэффициенты спиновой диффузии, явные выражения для которых можно найти в [5], $n^{(1,2)}$ — полные концентрации электронов в подзонах, ζ — их общий химический потенциал. Разность проинтегрированных уравнений (2) совпадает с разностью двух уравнений Блоха [10]

$$\begin{aligned} \left(-i\omega \mp i\omega_{s1} + k^2 D_{\pm}^{(1)} + \frac{1}{\tau_i} \right) \varphi_{\mp}^{(1)} - \left(-i\omega \mp i\omega_{s2} + k^2 D_{\pm}^{(2)} + \frac{1}{\tau_i} \right) \varphi_{\mp}^{(2)} = \\ = i\omega (g_1 - g_2) \mu_{PB} \mathbf{b}_{\mp}, \end{aligned} \quad (9)$$

где

$$\varphi_{\mp}^{(1,2)} = \mathbf{m}_{\mp}^{(1,2)} \frac{\partial \zeta}{\partial n^{(1,2)}},$$

τ_i — время электронного перехода между подзонами или долинами. Решая систему уравнений (8), (9) относительно суммарного магнитно-

$$\chi_{\mp}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\mathbf{M}_{\mathbf{k}}^{\mp}}{b_{\mp}}$$

в виде

$$\chi_{\mp}(\mathbf{k}, \omega) = \chi_0 - \omega \left\{ \frac{g_1 g_2 (\chi_1 + \chi_2) [(\chi_1 + \chi_2)(\omega + i/\tau_i) - \chi_1 \Omega_{s_2}^{\pm} - \chi_2 \Omega_{s_1}^{\pm}]}{(\omega - \Omega_{s_1}^{\pm})(\omega - \Omega_{s_2}^{\pm} + i/\tau_i) g_1 \chi_2 + (\omega - \Omega_{s_2}^{\pm})(\omega - \Omega_{s_1}^{\pm} + i/\tau_i) g_2 \chi_1} + \frac{(g_2 - g_1) \chi_1 \chi_2 [(\omega(g_2 - g_1) - \Omega_{s_1}^{\pm} g_2 + \Omega_{s_2}^{\pm} g_1)]}{(\omega - \Omega_{s_1}^{\pm})(\omega - \Omega_{s_2}^{\pm} + i/\tau_i) g_1 \chi_2 + (\omega - \Omega_{s_2}^{\pm})(\omega - \Omega_{s_1}^{\pm} + i/\tau_i) g_2 \chi_1} \right\}, \quad (10)$$

где $\chi_{1,2} = \mu_B^2 g_{1,2} \partial n^{(1,2)} / \partial \zeta$ — относящиеся к одной подзоне спиновые восприимчивости, $\chi_0 = g_1 \chi_1 + g_2 \chi_2$ — полная магнитная восприимчивость,

$$\Omega_{s_{1,2}}^{\pm} = \mp \omega_{s_{1,2}} - ik^2 D_{\pm}^{(1,2)} \quad (11)$$

— комплексные частоты спиновых резонансов. Учет спиновой диффузии в (10), (11) необходим для описания особенностей спектров, отражающих спиновые волны [5]. Из (10) видно, что высокочастотная магнитная восприимчивость $\chi_{\pm}(\mathbf{k}, \omega)$ не содержит времени переброса спина τ_s . Таким образом, ширина линии ЭПР определяется на несколько порядков меньшим τ_s временем междолинной релаксации τ_i и в связи с этим оказывается аномально большой.

Вытекающее из (10) отличие резонансной кривой от чисто лоренцевской в сочетании с большой шириной спектра затрудняет определение времен спиновой релаксации и резонансных частот по спектрам. Еще более проблематично наблюдение спиновых волн. Возможно, поэтому в спектрах ЭПР интерметаллических актинидов не удается обнаружить ни повышенной плотности состояний на уровне Ферми, ни других аномалий, характерных для тяжелых фермионов [11].

2. Электронное рассеяние света и рассеяние нейтронов

Несмотря на известную малость магнитного рассеяния [12], а также трудности исследования непрозрачных материалов [2], именно рассеяние света оказалось удобным методом исследования интерметаллических актинидов с тяжелыми фермионами [2, 13–15], других многокомпонентных систем [6]. Дифференциальное сечение рассеяния из состояния с частотой ω^L и волновым вектором k^L в состояние ω^S , k^S в дипольном приближении определяется формулой [12]

$$\frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \omega \partial \Omega} = \frac{\omega^L (\omega^S)^3}{c^4} \frac{n_S}{n_L} \frac{\langle \mathbf{e}^S \mathbf{P}^{S*} (k^S) \mathbf{e}^{S*} \mathbf{P}^S (k^S) \rangle_{\omega^S}}{|E^L|^2}. \quad (12)$$

Здесь \mathbf{e}^S — единичный вектор поляризации рассеянного излучения, $n_S \approx n_L$ — показатели преломления, $\mathbf{P}^S(k^S)$ — индуцированный в единице объема электрический дипольный момент, а угловые скобки

$\langle \dots \rangle_{\omega^S}$ означают компоненту Фурье на частоте ω^S от времени коррелятора заключенных в них величин. Вследствии спин-орбитального взаимодействия магнитный момент (6) вносит вклад в $P^S(k^S)$ вида [12]

$$P^S(k^S) = \frac{ce^2}{(\omega^L)^2} M(k^S) \otimes E^L. \quad (13)$$

При подстановке (6) в (13) следует учесть, что из-за резонансного усиления коэффициенты $g_\alpha(\omega^L)$ перестают совпадать с g -факторами, определяющими частоты ЭПР по формуле (11). Конкретные представления для этих коэффициентов имеются в [6]. Подставляя (13) в (12), находим для сечения рассеяния с переворотом спина

$$\frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \omega \partial \Omega} = \left(\frac{e}{\mu_B c} \right)^2 S_+(\mathbf{k}, \omega), \quad (14)$$

где

$$S_+(\mathbf{k}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} \langle M_{\mathbf{k}}^- M_{-\mathbf{k}}^+ \rangle \frac{dt}{2\pi}. \quad (15)$$

Здесь $\omega = \omega^L - \omega^S$, $M^\pm = M_x \pm iM_y$. Спиновая корреляционная функция $S_+(\mathbf{k}, \omega)$, описывающая также и рассеяние нейтронов [1], связана с мнимой частью поперечной магнитной восприимчивости $\chi_+(\mathbf{k}, \omega)$ из (10) посредством флуктуационно-диссипационной теоремы [12]

$$S_+(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\hbar}{1 - e^{-\hbar\omega/T}} \text{Im} \chi_+(\mathbf{k}, \omega), \quad (16)$$

где подразумевается стоксов процесс рассеяния $\omega > 0$. Поставленные к настоящему времени эксперименты по рассеянию света в интерметаллических активидах проводились в отсутствие внешнего магнитного поля, т.е. при $\omega_{s1} = \omega_{s2} = 0$. В большинстве интерметаллических активидов при низких температурах наступает антиферромагнитное упорядочение магнитных моментов. При этом роль H_0 в (17) может играть индукция внутреннего магнитного поля. Такие поля исследовались недавно [16] с помощью спинового вращения мюонов по анизотропии найтовских сдвигов в кристаллах UPd₂Al₃. Подобные исследования показали, что в таких соединениях, как UPt₃ [17] и URu₂Si₂ [18], степень локализации магнитного момента составляет от 10^{-3} до $10^{-2} \mu_B$ на атом урана, т.е. является крайне незначительной. Поэтому для описания спектров квазиупругого рассеяния света можно воспользоваться магнитной восприимчивостью (10), полученной для нелокализованных частиц из кинетического уравнения (2). В связи с неудачами в попытках обнаружить вклад тяжелых фермионов в ЭПР [11] их эффективный g -фактор неизвестен. Для оценки влияния взаимных превращений различных носителей тока на спектры будем считать входящие в (10) спиновые частоты примерно равными $\omega_{s1} \approx \omega_{s2}$, и различие в коэффициентах $g_2(\omega^L)$ целиком отнесем за счет разной степени резонансного усиления вкладов подзон в индуцированный дипольный момент (13).

Пренебрегая в (11) спиновой диффузией, получим

$$\frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \omega \partial \Omega} = V \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \frac{\hbar \omega}{1 - e^{-\hbar \omega / T}} [g_1(\omega^L) - g_2(\omega^L)]^2 \times \\ \times \frac{(\partial n^{(1)} / \partial \zeta)(\partial n^{(2)} / \partial \zeta)}{\partial n / \partial \zeta} \frac{\tau_i}{1 + [(\omega - \omega_s) \tau_i]^2}. \quad (17)$$

С учетом внутренних магнитных полей из (17) следует, что спектр рассеяния должен представляться как суперпозиция квазиупругого лоренцевского крыла, отвечающего $\omega_s = 0$, и широкого бесструктурного неупругого «фона», возникающего из-за пространственных флуктуаций ω_s . Именно такой вид спектра рассеяния зафиксирован в кристаллах URu₂Si₂ [2,15]. Замечательно, что ширина квазиупругого лоренцевского спектра

$$\Gamma_s = \frac{1}{\tau_i} \quad (18)$$

оказывается не зависящей от волнового вектора k , что не соответствует обычной теории ферми-жидкости, дающей

$$\Gamma_s = kv_F - \frac{v_F}{p_F} \frac{k^2}{2}, \quad (19)$$

где v_F и p_F — скорость и импульс Ферми. О зависимости Γ_s от k можно судить, сравнивая спектры рассеяния света со спектрами рассеяния нейтронов. Такое сравнение, выполненное в [2] для UPt₃ [13], UBe₁₃ [14] и URu₂Si₂ [15], показало справедливость формулы (18), а не (19). Таким образом, отсутствие зависимости Γ_s от k объясняется просто сложностью рассеивающей системы тяжелых фермионов в интерметаллических актинидах. Сделанное в [2] утверждение о том, что регистрация постоянного значения Γ_s свидетельствует о полной локализации магнитных моментов $5f$ -электронов в интерметаллических актинидах в действительности лишено оснований. Об этом свидетельствуют также результаты работ [17,18].

Для частного случая $\omega_s = 0$, когда рассеяние происходит в отсутствие магнитного поля, формула (17) была получена ранее [19] другим методом. Прделанный в настоящей работе вывод имеет то преимущество, что позволяет проследить связь спектров рассеяния со спектрами ЭПР в тех случаях, когда за них ответственны одни и те же спиновые возбуждения.

Список литературы

- [1] Биржено Р. Дж., Ширан Дж. / В кн.: Физические свойства высокотемпературных сверхпроводников. М. (1990). Гл. 4. (Birgeneu R.J., Shirane G. / In: Physical properties of high temperature superconductors / Ed. G.M.Ginsberg. Singapore (1989). Ch. 4. Pt 1).
- [2] Guntherodt G. Zirngelbl E. In: Light Scattering in Solids / Ed. M.Gardona, G. Genterodt. Berlin etc (1991). Pt VI.
- [3] Мория Т. Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами. М. (1988). (Moriya T. Spin fluctuations on itinerant electron magnetism. Berlin (19985)).

- [4] Андо Т., Фаулер А., Стерн Ф. Электронные свойства двумерных систем. М. (1985); Ando T., Fowler A., Stern F. Rev. Mod. Phys. **54**, 2 (1982).
- [5] Силян В.П. / В кн.: Спиновые волны. М. (1987). Дополнение.
- [6] Байрамов Б.Х., Войтенко В.А., Ипатова И.П. УФН **163**, 5, 67 (1993); Bairamov B.H., Ipatova I.P., Voitenko V.A. Phys. Rep. **229**, 5, 223 (1993).
- [7] Sapega V.F., Ruf T., Cardona M., Ploog K., Ivchenko E.L., Mirlin D.N. Phys. Rev. **B50**, 4, 2510 (1994).
- [8] Buss C., Hugonnard-Bruyere S., Frey R., Flytzanis C. Solid State Commun. **92**, 11, 929 (1994).
- [9] Voitenko V.A., Bairamov B.H., Toporov V.V., Negoduiko V.K. J. Low Temp. Phys. **99**, 1/2 (1995).
- [10] Абрагам А., Блини Б. Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов. М. (1972). Т. 1. (Abragam A., Bleaney B. Electron paramagnetic resonance of transition ions. Oxford (1970)).
- [11] Gandra F., Shultz S., Oseroff S.B., Fisk Z., Smith J.L. Phys. Rev. Lett. **55**, 4, 2719 (1985).
- [12] Гешвинд С., Роместен Р. В кн.: Рассеяние света в твердых телах. М. (1986). Вып. 4. Гл. 3. (Geshwind S., Romestain R. In: Light Scattering in Solids. Berlin etc (1984). Gh. 3. Pt IV).
- [13] Brenten H., Zirngeibl E., Wire M.S., Blumenroder S., Pofahl G., Guntherodt G. Solid State Commun. **62**, 6, 387 (1987).
- [14] Cooper S.L., Demers R.T., Klein M.V., Fisk Z., Smith J.L. Physica **B135**, 1, 49 (1985).
- [15] Cooper S.L., Klein M.V., Maple M.P., Torikachwili M.S. Phys. Rev. Lett. **36**, 10, 5743 (1987).
- [16] Feyherm A., Amato A., Gygax F.N., Schenck A., Geibel C., Steglich F., Sato N., Komatsubara T. Phys. Rev. Lett. **73**, 13, 1849 (1994).
- [17] Aeppli G., Bishop D., Broholm C., Bucher E., Siemensmeyer K., Steiner M., Stusser N. Phys. Rev. Lett. **63**, 6, 676 (1989); Keren A., Le L.P., Wu W.D., Vemura Y.J., Bonn D.A., Taillefer L., Carrett J.D., Luke G.M. Phys. Rev. Lett. **71**, 9, 1466 (1993).
- [18] Broholm C., Kjems J.K., Buyers W.J.L., Matthews P., Palstra T.T.M., Menovsky A.A., Mydosh J.A. Phys. Rev. Lett. **58**, 14, 1467 (1987); Isaaks E.D., McWhan D.B., Kleinman R.N., Bishop D.J., Ice G.E., Zghack P., Gaulin B.D., Mason T.E., Garrett J.D., Buyers W.J.L. Phys. Rev. Lett. **65**, 25, 3185 (1990).
- [19] Войтенко В.А. Письма в ЖЭТФ **61**, 2, 91 (1995).