

自由载流子及超导状态下反射 光谱中声子的异常敏感性*

曾文生 张贵忠 李增发 张光寅

(南开大学物理系, 天津, 300071)

闫 杰 杨小明

(南开大学化学系, 天津, 300071)

摘要——运用经典 Drude 模型及 Lorentz 振子理论, 借助 $n-K$ 关系图及 $n-K$ 反射率半圆图解方法, 指出位于等离子体振荡频率 ω_p 附近的声子异常敏感性, 并给出形状和特征. 利用它可分析超导样品的反射光谱.

关键词—— $n-K$ 关系图, $n-K$ 反射率半圆图, Drude 模型, 异常敏感性, 超导反射光谱.

1. 引 言

张光寅^[1]等人利用描述声子的 Lorentz 模型的 $n-K$ 椭圆图及反射率半圆图图解方法, 成功地解释了晶体剩余反射带短波边弱振动反射光谱的异常敏感性及其形状特征. 高温超导体出现之后, 反射光谱很自然地用于研究这类新材料^[2~5]. 本文作者之一对 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 的远红外反射光谱图进行了较深入的研究^[6], 发现声子在这类光谱图中同样存在异常敏感性问题. 我们认为, 如果对声子的这种异常敏感性认识不清, 会导致识谱得出错误结论, 这将另文讨论. 本文系统地讨论了自由载流子中声子的异常敏感性, 并类推到高温超导的反射光谱, 这无疑有助于对反射光谱的研究.

2. Drude 载流子的反射光谱性质

在研究超导样品的反射光谱中, Drude 反射本底是一个重要的概念, 它关系到整个反射谱的性质. 因此, 我们有必要先系统地描述 Drude 载流子在反射光谱中的特征. Drude 模型基于认为自由载流子与光的相互作用是一种运输过程^[7], 这时样品的介电函数为

本文 1989 年 6 月 6 日收到, 修改稿 1989 年 9 月 2 日收到.

* 本工作得到国家自然科学基金部分资助.

$$\epsilon_D = \epsilon_r + i\epsilon_i = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \right), \quad (1)$$

式中

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi Nq^2}{m^*} \right)^{1/2}$$

为等离子频率, N 、 q 、 m^* 分别为载流子的密度、电荷及有效质量, ϵ_∞ 为 $\omega \gg \omega_p$ 时样品高频背景介电常数, Γ 是自由载流子之间的碰撞频率, ϵ_r 、 ϵ_i 分别为复介电函数的实部与虚部.

根据经典振子理论^[8], 样品的折射率 n 、消光系数 K 对频率的依赖关系为

$$n^2 - K^2 = \epsilon_r = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \Gamma^2} \right), \quad (2)$$

$$2nK = \epsilon_i = \epsilon_\infty \frac{\omega_p^2 \Gamma}{\omega^3 + \Gamma^2 \omega}. \quad (3)$$

一般的反射测量都近似正入射, 正入射的反射率 R 与 n 、 K 关系为

$$R = \frac{(n-1)^2 + K^2}{(n+1)^2 + K^2}. \quad (4)$$

根据我们的经验^[9], 对 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 的常温反射谱取 $\epsilon_\infty = 4$ 、 $\omega_p = 500 \text{ cm}^{-1}$ 、 $\Gamma = 100 \text{ cm}^{-1}$, 可以计算出以 ω 为参量的 Drude 载流子的 n - K 关系图(参见图 1).

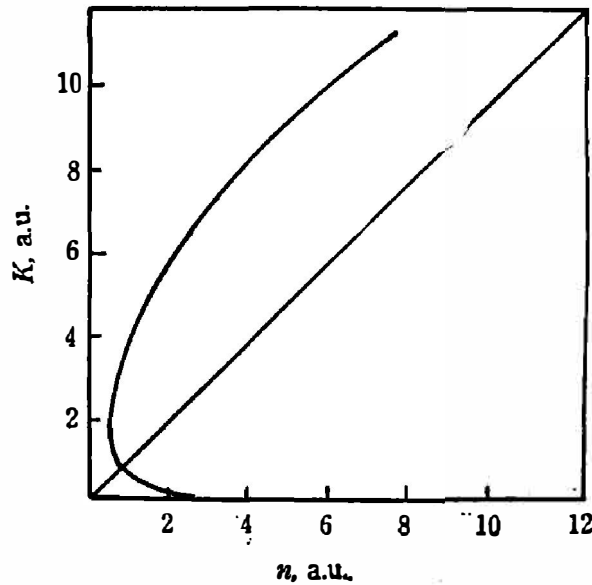


图 1 纯 Drude 自由载流子(取 $\epsilon_\infty = 4$ 、 $\omega_p = 500 \text{ cm}^{-1}$ 、 $\Gamma = 100 \text{ cm}^{-1}$) 的 n - K 半圆图及 $n=K$ 对角直线

Fig. 1 The n - K half-circle graph and the $n=K$ line of pure Drude free carriers (Chosen $\epsilon_\infty = 4$, $\omega_p = 500 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 100 \text{ cm}^{-1}$).

对声子而言, n - K 曲线表现为典型的蛋圆曲线^[9], 在 n - K 坐标系中, 蛋圆曲线的波数参量沿逆时针方向增加. 对于 Drude 载流子, 情况则有所不同, 首先是 n - K 曲线绝对不封闭, 可以看成是 n - K 半蛋圆曲线, 其次, 虽然半蛋圆曲线的波数也是沿逆时针增加, 但从方程(2)、(3)中可知在 $\omega \rightarrow \infty$ 时, 曲线将收敛到 $n = \sqrt{\epsilon_\infty}$ 、 $K = 0$ 点, 这使得在 ω 很大时, 对于相同的波数变化 $\Delta\omega$, n 和 K 的变化将越来越小, 即 n - K 曲线密度越来越大. 另外, 在 $\omega < \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 时, 曲线单调下降, 即 n 减小时, K 也减小; 而当 $\omega > \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 时, n 开始增加, K 仍在减小, 最后到达 $(\sqrt{\epsilon_\infty}, 0)$ 点. 一般选择 Γ 较小于 ω_p , 因此 $\sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 近似为 ω_p ,

这对 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 样品是十分有利的。我们发现 $\omega = \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 点正好是 n 、 K 对角线与半圆曲线在左下角的交点, 在这个交点附近, 光谱分析应特别谨慎。实际上, 弄清了波数的变化趋势后, n - K 曲线也隐含了 n 、 K 随波数的变化关系, 即所谓的色散关系。

利用式(4)可在 n - K 坐标上作等反射率 R 曲线, 式(4)可改写为

$$\left(n - \frac{1+R}{1-R}\right)^2 + K^2 = \left(\frac{2\sqrt{R}}{1-R}\right)^2. \quad (5)$$

这表明在 n - K 坐标中等 R 曲线是以 $\left(\frac{1+R}{1-R}, 0\right)$ 为圆心、 $\frac{2\sqrt{R}}{1-R}$ 为半径的圆。由于 R 的取值范围是 $[0, 1]$, 故而可以作出半圆簇 ($n, K > 0$)。图 2 示出 $R=10\% \sim 90\%$ 的半圆簇, 可以看出, 曲线簇的左下角最密集。在这个区域, n 、 K 的任何小的变化都将引起反射率的极大变化, 也就是该区对 n 、 K 的变化最敏感。在第一象限内作一对角线, 进一步发现左下角处对角线以上的部分较以下部分的变化敏感, 而右上角的情况却正好相反。这种在 n - K 坐标中左下角变化最为敏感的性质是普遍的规律, 任何一种正入射反射谱都是如此。

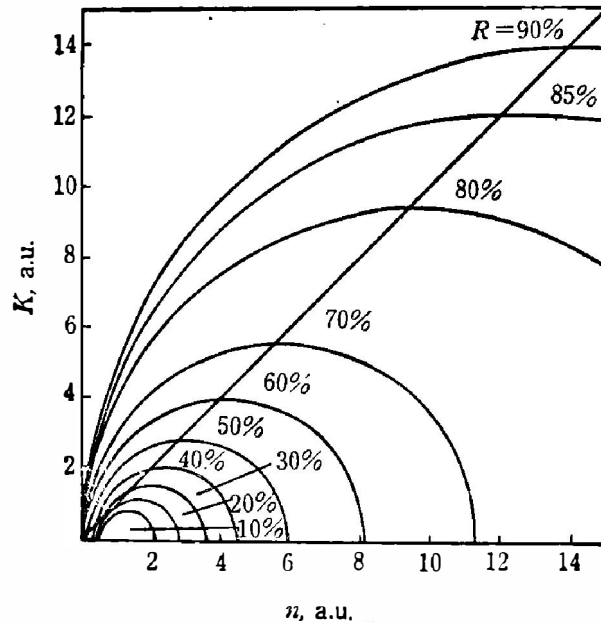


图 2 n - K 反射率半圆图

Fig. 2 n - K half-circle reflectivity graphs.

对于 Drude 载流子, n - K 半圆曲线与对角线的交点在 $\omega = \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$, 根据上面的普遍规律, 我们得到结论: 在 $\omega = \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 附近, n 、 K 变化对 R 的变化最为敏感; 而在 $\omega > \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 区域, 这种敏感性在对角线以下部分有所减弱。因此, $\sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 附近的光谱分析须特别谨慎。

3. Drude 载流子加一个声子模情况

我们取 Lorentz 模型声子模, 这样载流子与声子耦合的介电函数可写成

$$\epsilon = \epsilon_r + i\epsilon_i = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \right) + \frac{s_1\omega_1^2}{\omega^2 - \omega_1^2 + i\Gamma_1\omega}, \quad (6)$$

其中 s_1 为声子强度, Γ_1, ω_1 为阻尼及声子模横频率. 式(6)可改写为

$$\epsilon = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_\infty \omega_p^2 (\omega^2 - \omega_p^2)}{(\omega^2 - \omega_p^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} + \frac{s_1 \omega_1^2 (\omega_1^2 - \omega^2)}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma_1^2} + i \left(\frac{\omega \Gamma \epsilon_\infty \omega_p^2}{(\omega^2 - \omega_p^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} + \frac{\omega \Gamma_1 s_1 \omega_1^2}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma_1^2} \right).$$

可见 Drude 类自由载流子相当于一个横频率 $\omega_T=0$ 的声子, 而其等离子体振荡频率 ω_p 相当于该声子的纵频率. 因此声子与 Drude 载流子的相互作用相当于一个普通 Lorentz 声子和一个 $\omega_T=0$ 的特殊声子的相互作用, 但必须注意两个声子均较强, 因而微扰理论不能成立, 而且横频率为零的声子的光谱行为毕竟不同于横频率不为零的声子.

图 3(a) 示出 Drude 模型的反射谱图, 其中虚线表示同一振子强度 ($s_1=0.1, \Gamma_1=20 \text{ cm}^{-1}$)、但不同共振频率 ω_1 的声子迭加在 Drude 本底的情况. 我们可以看出, 不同的共振频率表现出不同行为. 当 $\omega_1 < \omega_p$ 时, 声子表现出一个凹谷 (dip-point); 当 ω_1 向 ω_p 增加时, 该谷越来越明显, 宽度也在增加. 这个谷的表观凹陷频率 ω_d 与声子频率 ω_1 不同; 而且当 ω_1 越接近 ω_p 时, 差别就越大^[20]. 当 $\omega_1 > \omega_p$ 时, 声子表现为一个峰 (up-point), ω_1 进一步增加时, 这个声子受到载流子的影响变小, 表征单一振子的 Lorentz 形状更为明显. 从式(6)可以看出, 当 $\omega_1 > \omega_p$ 时, 在 ω_1 附近的声子项将成为主项, 远大于 Drude 项, 而 $\omega > \omega_p$ 区域是不敏感区, 声子项可以直接在 Drude 反射本底上迭加, 并且声子的表观强度变化不大, 参见图 3(b). 所以, 由于相同振子的声子在 $\omega < \omega_p$ 及 $\omega > \omega_p$ 区域表观强度的变化, 表明载流子的存在有效地抑制了声子的表观强度 (在 $\omega < \omega_p$ 区域), 但当 $\omega > \omega_p$ 时, 声子与载流子的相互作用减小, 这种抑制开始解除, 表观强度恢复.

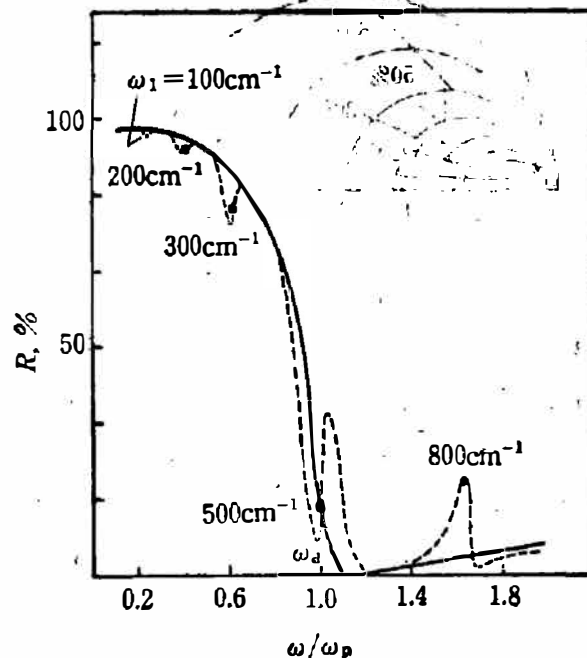


图 3(a) Drude 类自由载流子 ($\epsilon_\infty=4, \omega_p=500 \text{ cm}^{-1}, \Gamma=100 \text{ cm}^{-1}$)

的反射带光谱 (实线) 及附加一个声子 ($s_1=0.1, \Gamma_1=20 \text{ cm}^{-1}$) 时的可能变化

Fig. 3(a) Drude free carriers' reflectivity spectrum (solid line, $\epsilon_\infty=4, \omega_p=500 \text{ cm}^{-1}, \Gamma=100 \text{ cm}^{-1}$) and the possible change when adding a phonon ($s_1=0.1, \Gamma_1=20 \text{ cm}^{-1}$).

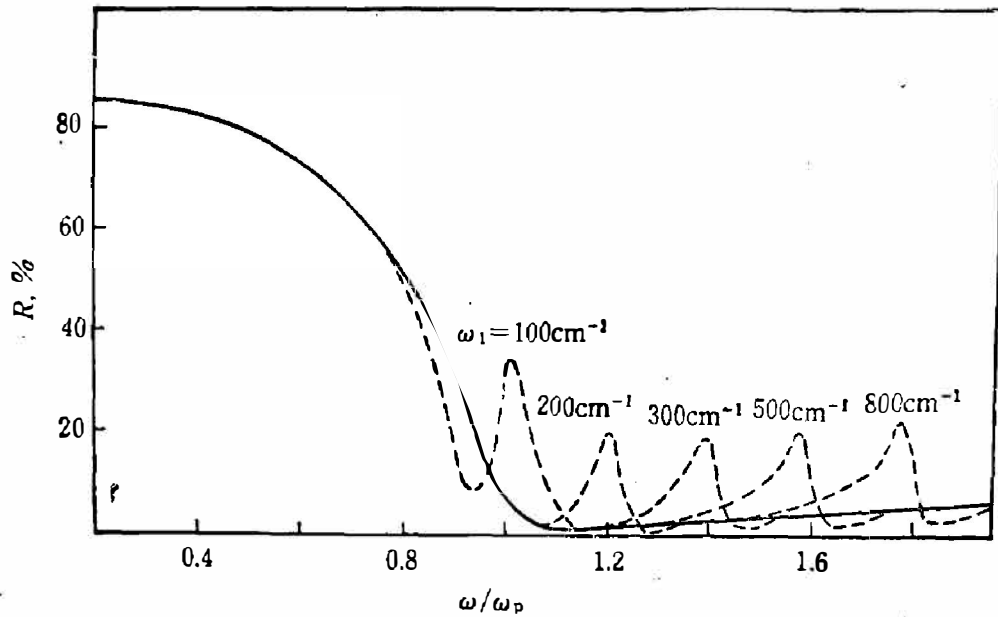


图 3(b) 声子频率 $\omega_1 > \omega_p$ 时在 Drude 反射本底上引起的可能变化

Fig.3(b) The possible change of Drude free carriers' reflectivity spectrum (solid line) for frequency of the added phonon $\omega_1 > \omega_p$.

图 4 是根据介电函数 $\epsilon = \epsilon_r + i\epsilon_i$ 与 n, K 关系计算出的 $n \sim \omega$ 及 $K \sim \omega$ 的变化曲线, 虚线是声子引起的可能变化.

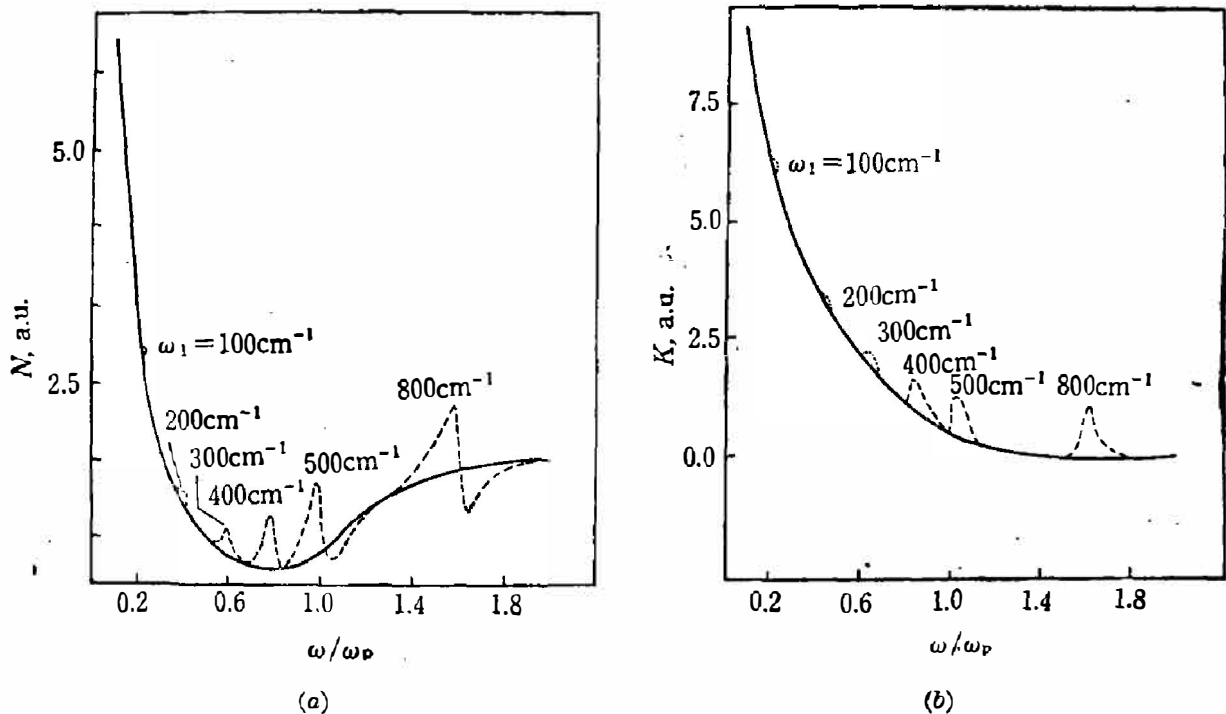


图 4 纯 Drude 类自由载流子的 n 和 K 随 ω 的变化曲线(实线)及附加一个振动时的可能变化(虚线)($\omega_p = 500 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 100 \text{ cm}^{-1}$, $s_1 = 0.1$, $\Gamma_1 = 20 \text{ cm}^{-1}$)

Fig. 4 Drude free carriers' spectra of refractive index n and extinction coefficient K (solid lines) and the possible change when adding vibration (dashed line). ($\omega_p = 500 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 100 \text{ cm}^{-1}$, $s_1 = 0.1$; $\Gamma_1 = 20 \text{ cm}^{-1}$).

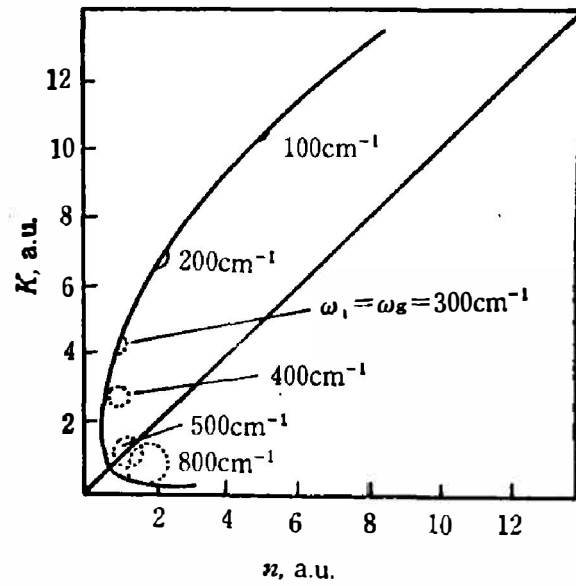


图 5 纯 Drude 类自由载流子的 $n-K$ 圆(实线)及附加一个声子于不同频率位置的变化(虚线)(各种参数与图 4 相同)

Fig. 5 $n-K$ relation of Drude free carriers (solid line) and the possible change (dashed line) when adding a phonon at different frequency (all parameters are the same as in Fig. 4).

我们可以用 $n-K$ 图解进一步论证上述结论。图 5 为包括声子的 Drude 半蛋圆曲线，在频率 ω_1 较小时，声子的影响仅仅是一个不明显的扭折结构。当声子频率 ω_1 与 ω_p 接近时，在左下角形成了明显的环索结构。 ω_1 再增大时，环索结构逐渐变成了小蛋圆曲线。同单纯声子情形类似，小蛋圆曲线右上角处的波数为振子横频率 ω_T 。当 $\omega_1 = \sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 时，蛋圆较大。同时被对角线平分，左下角交点的波数是 ω_p (实际上是 $\sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ ，但考虑 ω_p 较 Γ 大许多)。与图 2 相比可看出这个声子结构的变化最明显。在 $\omega_1 > \omega_p$ 时，基于前面说明的声子将逐渐脱离载流子的影响，所以声子的小蛋圆曲线会逐渐增大，但是这种变化不甚明显，而且大部分位于对角线的下方，是反射率 R 的不敏感区，因此声子相应地表现为较为独立的 Lorentz 线反射带形状，Drude 类自由载流子反射本底 $n-K$ 曲线几乎不受声子影响。

4. 超导相的引入

在对氧化物超导体的红外反射光谱的研究中，Drude 模型起了很大作用^[11]。基于双极化子机制的唯象考虑，我们提出超导状态的介电函数为^[6]

$$\epsilon_s(\omega) = \begin{cases} \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_n^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \right) + \epsilon^{Ph} + \epsilon'_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right), & \omega < \omega_g; \\ \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \right) + \epsilon^{Ph}, & \omega > \omega_g. \end{cases} \quad (7)$$

其中 ϵ^{Ph} 为 Lorentz 声子项， ω_g 是所谓的超导能隙，显然是环境温度的函数。

超导项实际上是阻尼因子为零的 Drude 载流子项。从方程(2)、(3)可知，单独对于这种特殊的载流子，其 K 值将恒为零，在 $n-K$ 图上表现为发散的 n 轴。但当存在阻尼不为

零的载流子时,这种发散将被抑制,图6是根据方程(7)作出的 $n-K$ 半圆图. 超导项的加入使得单调下降部分更陡,并在 $\omega = \omega_g$ 处形成一个明显的扭折结构, ω_g 越大,曲线越陡. 对于声子加入的情况,由方程(7)可解出 $n-K$ 半圆曲线与 $n=K$ 对角线的交点,这个交点与图2对应,正好是最敏感区. 一般情况下认为 $\epsilon_\infty = \epsilon'_\infty$, 这时存在两组解,即 $\omega = \sqrt{2}/2\omega_g$ 和 $\omega = \sqrt{\omega_p^2 - 2\Gamma^2}$. 对于 $\omega = \sqrt{2}/2\omega_g$ 解,如果令 ω_g 很小,对于声子频率 $\omega_{1g} = \sqrt{2}/2\omega_g$, 在这个波数上出现的扭折结构将不可能与 $n=K$ 对角线相交. 由于超导项的加入仅仅是基于 Drude $\Gamma \neq 0$ 的反射本底,因此令 ω_g 很小是允许的. 而由于 ω_g 在温度 T 近似为超导转变温度 T_c 时的确可以足够小,因而是合理的. 这样我们就证明了 $\omega = \sqrt{2}/2\omega_g$ 不是与 $n=K$ 在左下角敏感区相交的真实解. 真实解只能是 $\omega = \sqrt{\omega_p^2 - 2\Gamma^2}$. 同样,在 Γ 较小时可以认为上述波数就是 ω_g ,因而超导样品的反射光谱图的敏感区也在 $\omega = \omega_g$ 附近,与纯 Drude 的情况类似,在 $\omega = \omega_g$ 附近没有异常敏感区. 关于这点可作如下解释: 对于超导项,在 $n-K$ 图上是发散的,没有异常敏感性;加入阻尼不为零的载流子之后,发散将被抑制,同时阻尼不为零的异常敏感性也被加入,因此只存在一个异常敏感区. 从精确解来看,超导项的加入使得异常敏感区域从 $\sqrt{\omega_p^2 - \Gamma^2}$ 移到 $\sqrt{\omega_p^2 - 2\Gamma^2}$ 点,即发生了某种红移. 在 $n-K$ 图上可明显看到 $\omega = \omega_g$ 点有一个扭折,但是由反射图确定 ω_g 是困难的,因为这时声子的出现会改变 ω_g 的表观值,这个问题将另文讨论.

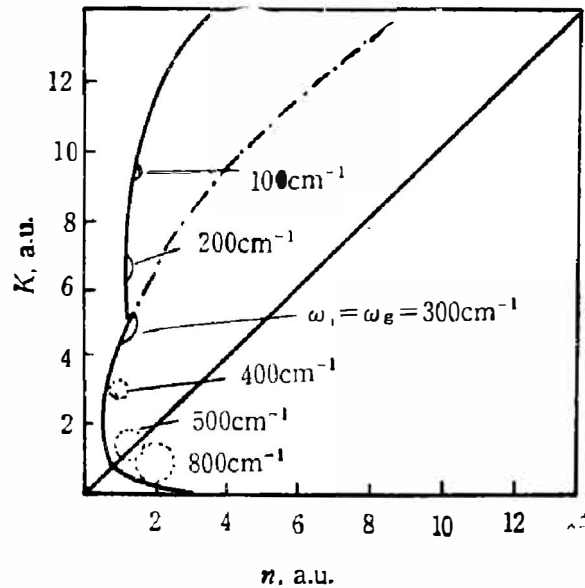


图6 加入超导项后的 $n-K$ 图(实线)及附加一个声子于不同频率位置的变化(虚线)(取 $\omega_p = 300 \text{ cm}^{-1}$, 其他参数与图4相同)

Fig. 6 $n-K$ relation after considering the superconductivity (solid line, $\omega_p = 300 \text{ cm}^{-1}$) and the possible change (dashed line) when adding a phonon at different frequency. (The parameters are the same as in Fig. 4).

总之,我们看到,无论是否存在超导相,反射光谱在 $\omega = \omega_g$ 附近将永远存在声子的异常敏感性,这个普遍规律对红外反射光谱的分析提供了一种启示,即对 $\omega = \omega_g$ 附近光谱分析要特别谨慎. 对于高温超导体,测出其反射光谱后,确定其对应的 ω_p , 利用本文的结论有利于对它的反射光谱进行分析.

参 考 文 献

- [1] 张光寅、王宝明, 物理学报, **33**(1984), 1306.
 [2] Noh T. W., Sulewski, P. E. and Sievers A. J., *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 8866.
 [3] Schlesinger Z. et al., *Phys. Rev.*, **B35** (1987), 5334.
 [4] Herr S. L. et al., *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 733.
 [5] Doll G. L. et al., *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 8884. Thomas G.A. et al., *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 736.
 [6] 曾文生、李增发、张光寅, 红外研究, **A7** (1988), 343.
 [7] Wooten F., *Optical Properties of Solids*, Academic, New York, 1972.
 [8] Born M. and Huang K., *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, Oxford, 1954.
 [9] Chian Guan-In (Zhang Guangyin), *Opt. Spectry (USSR)*, **13**(1962), 299.
 [10] 张贵忠, 博士学位论文, 南开大学物理系, 1988.
 [11] Schlesinger Z., Collins R. T. and Shafer M. W., *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 5275.

ABNORMAL SENSIBILITY OF REFLECTION STRUCTURES OF PHONONS IN FREE CARRIERS AND SUPERCONDUCTIVITY STATE*

ZENG WENSHENG, ZHANG GUIZHONG, LI ZENGFA, ZHANG GUANGYIN
(Department of Physics, Nankai University, 300071, Tianjin, China)

JIAN JIN, YANG XIAOMING
(Department of Chemistry, Nankai University, 300071, Tianjin, China)

ABSTRACT

Using the classical and the Drude model and the Lorentz vibrator, as well as $n-K$ relation and $n-K$ half-circle graph of reflectivity for vibrators, the abnormal sensibility of reflectivity structures of phonons around the frequency of plasma oscillation is explained. Also the forms and characteristics of the reflection structure are given. By this abnormal sensibility, the reflectance spectrum of superconductor can be discussed.

* Project partly supported by the Chinese National Natural Sciences Fund.