Письма в ЖЭТФ, том 69, вып.7, стр.510 - 514

ВЫСОКОЧАСТОТНАЯ АСИМПТОТИКА T-НЕЧЕТНЫХ ОПТИЧЕСКИХ ЭФФЕКТОВ

В.Н.Гриднев

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе РАН
194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 25 февраля 1999 г.

Показано, что вклад низкочастотных возбуждений с характерной энергией $\hbar\omega_l$ в Т-нечетные (невзаимные) оптические эффекты, включая эффекты пространственной дисперсии, на оптических частотах $\omega \gg \omega_l$ можно рассчитывать в нулевом по параметру ω_l/ω приближении, что существенно упрощает их анализ. Некоторые из этих эффектов оказываются независящими от частоты в спектральных областях, где показатель преломления $n(\omega) \approx \text{const}$. Показано, что независящее от частоты фарадеевское вращение может наблюдаться в средах с равной нулю намагниченностью, в том числе и в средах с равной нулю микроскопической плотностью магнитного момента.

PACS: 75.50.Ee, 78.20.Ls

Хорошо известно, что линейный отклик твердого тела, как и любой системы заряженных частиц, в поле электромагнитной волны частоты ω определяется главным образом возбуждениями с энергиями $E_n - E_m = \hbar\omega_{nm} \sim \hbar\omega$, где n и m нумеруют состояния системы. Поэтому в твердых телах эксперименты на оптических частотах несут информацию о возбуждениях с энергиями ~ 1 эВ. Тем не менее, в некоторых случаях может оказаться целесообразным использовать такие эксперименты для исследования свойств низкочастотных возбуждений $\omega_{nm} \ll \omega$. Основанием для этого служит тот факт, что в силу соотношения $\omega_{nm} \ll \omega$ при анализе ряда оптических эффектов динамику низкочастотных возбуждений можно исключить из высокочастотного отклика, то есть положить $\omega_{nm} = 0$. В этих случаях анализ высокочастотного отклика оказывается существенно более простым по сравнению с соответствующим анализом низкочастотной восприимчивости. Так, например, в работе [1] предлагалось использовать измерения фарадеевского вращения в металлах с сильными электронными корреляциями ($La_2Sr_xCu_{2-x}O_4$, $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$) на оптических частотах для определения концентрации и знака носителей, так как получение этой информации из измерений эффекта Холла затруднено из-за сложной поверхности Ферми.

В настоящей работе мы покажем, что использование нулевого приближения по параметру ω_{nm}/ω возможно не только в случае эффекта Фарадея, но и других Т-нечетных (невзаимных) оптических эффектов, существование которых обусловлено отличием от нуля волнового вектора света $\mathbf{k}$, то есть эффектов пространственной дисперсии. Мы также покажем, что некоторые из этих эффектов оказываются независящими от частоты в спектральных областях, где показатель преломления $n(\omega) \approx \text{const}$, и могут наблюдаться в средах с нетривиальными типами магнитного упорядочения.

В соответствии с условием $\omega \gg \omega_{nm}$ мы будем рассматривать дисперсионные оптические эффекты, описываемые эрмитовой частью тензора диэлектрической проницаемости

$$\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{4\pi}{\hbar\omega^2 V}\sum_{m,n}\rho_m\Big[\frac{J^i_{mn}(\mathbf{k})J^k_{nm}(-\mathbf{k})}{\omega_{nm}-\omega} + \frac{J^k_{mn}(-\mathbf{k})J^i_{nm}(\mathbf{k})}{\omega_{nm}+\omega} - \frac{J^i_{mn}J^k_{nm}+J^k_{mn}J^i_{nm}}{\omega_{nm}}\Big], \tag{1}$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{k}) = \sum_\alpha \mathbf{J}^\alpha(\mathbf{k}),$$

где $\mathbf{J}(\mathbf{k})$ – Фурье-компонента оператора тока, $\mathbf{J}^\alpha(\mathbf{k}) = (e_\alpha/2m_\alpha)(\boldsymbol{\pi}^\alpha e^{-i\mathbf{kr}_\alpha}+e^{-i\mathbf{kr}_\alpha}\boldsymbol{\pi}^\alpha)$ – вклад α-й частицы в ток, $J^k_{nm} = J^k_{nm}(0)$, $\hbar\omega_{mn}$ – энергия перехода, ρ_m – функция распределения. Оператор $\boldsymbol{\pi}$ с учетом спин-орбитального взаимодействия и постоянного вектор-потенциала $\mathbf{A}$ имеет вид $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{p}-e\mathbf{A}/c+(2mc^2)^{-1}\mathbf{s}\times\nabla V(\mathbf{r})-i\mathbf{s}\times\mathbf{k}$, где $\mathbf{s}$ – оператор спина. Обычно последним членом в операторе $\boldsymbol{\pi}$ пренебрегают, однако он существенен при рассмотрении Т-нечетных оптических эффектов пространственной дисперсии.

Рассмотрим вклад $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$ низкочастотных возбуждений в тензор диэлектрической проницаемости $\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$. В нулевом приближении по ω_{nm}/ω при $\mathbf{k}\neq 0$ получаем из (1)

$$\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{4\pi}{\hbar\omega^3 V} < [J^i(-\mathbf{k}), J^k(\mathbf{k})] > . \tag{2}$$

Это выражение справедливо также и при $\mathbf{k}=0$ для антисимметричной части тензора ϵ_{ik}. Помимо обычных соотношений симметрии Онзагера $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k},\eta) = \Delta\epsilon_{ki}(\omega,-\mathbf{k},-\eta)$, выражение (2) обладает дополнительной симметрией $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k},\eta) = -\Delta\epsilon_{ki}(\omega,-\mathbf{k},\eta)$. Символ η обозначает здесь Т-нечетную величину, характеризующую состояние среды и являющуюся по отношению к пространственным преобразованиям некоторым тензором. Эти два соотношения симметрии совместимы только, если $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k},\eta)$ является нечетной функцией параметра η, то есть описывает Т-нечетные оптические эффекты. Отсюда следует важный и совершенно общий результат: в оптической области частот низкочастотные возбуждения вносят максимальный по параметру ω_{nm}/ω вклад именно в Т-нечетные оптические эффекты. Важно также, что приближение $\omega_{nm}/\omega = 0$ существенно упрощает расчет $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$, сводя его к вычислению коммутатора токов. Подчеркнем, что этот вывод относится также и к эффектам пространственной дисперсии, то есть к эффектам при $\mathbf{k}\neq 0$.

Вычисление коммутатора в (2) может быть выполнено только в рамках конкретной модели. В этой работе мы рассмотрим только общие, независящие от модели свойства высокочастотного отклика (2) и прежде всего частотную зависимость соответствующих оптических эффектов. Для этого выпишем, используя выражение (2), первые члены разложения $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$ по степеням $\mathbf{k}$ вплоть до кубических по $\mathbf{k}$ членов включительно, выделяя явно зависимость от $\mathbf{k}$ и ω

$$\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{1}{\omega^3}e_{iks}g_s + \frac{k}{\omega^3}\gamma_{ikl}m_l + \frac{k^2}{\omega^3}e_{iks}\chi_{sln}m_l m_n + \frac{k^3}{\omega^3}\beta_{ikln s}m_l m_n m_s \tag{3}$$

Здесь $\mathbf{m}$ – единичный вектор, направленный вдоль $\mathbf{k}$. Как следует из сказанного выше, вектор $\mathbf{g}$ и тензоры $\hat\gamma$, $\hat\chi$ и $\hat\beta$ являются Т-нечетными и не зависят от $\mathbf{k}$ и ω. Согласно принципу Онзагера, четные по $\mathbf{k}$ члены антисимметричны по i и k, а нечетные – симметричны. Поэтому первые из них описывают фарадеевское вращение, а вторые – невзаимное двупреломление. Отметим, что в центросимметричных средах $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$ является либо четной, либо нечетной функцией $\mathbf{k}$ в зависимости от симметрии кристалла и параметра η. Мы будем считать параметр η макроскопическим, поскольку только в этом случае $\Delta\epsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$ может линейно зависеть от η.

Поскольку нас интересует распространение собственных волн в среде, то при анализе зависимости $\Delta\epsilon_{ik}(\omega, \mathbf{k})$ от частоты следует считать волновой вектор $\mathbf{k}$ функцией частоты, определяемой из решения дисперсионного уравнения, так что $ck(\omega)/\omega = n(\omega)$ – показатель преломления. Наиболее простой характер частотной зависимости $\Delta\epsilon_{ik}(\omega, \mathbf{k})$ имеет место в тех областях частот, где показатель преломления $n(\omega) \approx \text{const}$. Как правило, в твердых телах такие области предшествуют частотам атомных (межзонных) переходов.

Рассмотрим сначала частотную зависимость невзаимного двупреломления. Такое двупреломление обусловлено членами в (3), содержащими нечетные степени $\mathbf{k}$. Поскольку мы приняли условие $ck(\omega)/\omega = n(\omega) \approx \text{const}$, то, как видно из (3), вклад в двупреломление линейного по $\mathbf{k}$ члена уменьшается с ростом частоты как $1/\omega^2$. Аналогичную частотную зависимость имеет вклад низкочастотных возбуждений в обычное ($\mathbf{k} = 0$) двупреломление, которое является Т-четным эффектом. В связи с этим отметим существенное методическое преимущество, которым обладают измерения Т-нечетных оптических эффектов. Так как параметр η является макроскопическим, то всегда имеется принципиальная возможность с помощью внешних воздействий осуществлять в эксперименте преобразование $\eta \to -\eta$, что существенно повышает точность и надежность измерений.

Кубический по $\mathbf{k}$ вклад в двупреломление имеет совсем иную частотную зависимость, чем линейный: в области $n(\omega) \approx \text{const}$ он вообще не зависит от частоты. Такое поведение оптического эффекта при частотах, значительно превышающих резонансные частоты, довольно необычно и является специфической особенностью оптических эффектов пространственной дисперсии. Отметим, что уменьшение с ростом частоты, линейного и независимость от ω кубического по $\mathbf{k}$ членов конечно же не следует истолковывать как большую величину последнего по сравнению с первым, поскольку такое частотное поведение имеет место лишь в сравнительно узких спектральных областях. Разложение по $\mathbf{k}$ в (3) фактически является разложением по малому параметру a/λ, где a – межатомное расстояние, а λ – длина волны. Поэтому кубический по $\mathbf{k}$ эффект в большинстве случаев достаточно мал и может наблюдаться лишь благодаря специфическим особенностям магнитной и электронной структур среды.

Существенно более интересным эффектом, также проявляющим свойство независимости от частоты, является фарадеевское вращение плоскости поляризации, связанное с квадратичными по $\mathbf{k}$ членами в (3). Для того чтобы получить частотную зависимость этого эффекта, необходимо принять во внимание, что угол поворота плоскости поляризации света $\theta \propto \omega\epsilon_{xy}$, $(\mathbf{k}\|z)$, то есть содержит лишний частотный множитель по сравнению с соответствующими членами в (3). Отсюда получаем хорошо известное поведение обычного фарадеевского вращения ($\mathbf{k} = 0$): $\theta \propto 1/\omega^2$. Квадратичный по $\mathbf{k}$ член, как это видно из (3), дает независящий от частоты вклад в фарадеевское вращение.

Независящее от частоты фарадеевское вращение было обнаружено в области прозрачности железо-иттриевого феррита-граната в работах [2, 3]. В этих же работах было показано, что наблюдаемый эффект объясняется прецессией намагниченности в поле электромагнитной волны и феноменологически может быть описан введением недиагональных компонент тензора магнитной проницаемости на оптических частотах. Если исходить из общей формулы (2), то этот механизм соответствует оператору тока $\mathbf{J}(\mathbf{k}) = (ie/m)\, \mathbf{s} \times \mathbf{k}$.

Наше рассмотрение показывает, что частотнонезависимое фарадеевское вращение является довольно общим свойством сред с макроскопически нарушенной Тинвариантностью. Так, помимо сред со спиновым ферромагнетизмом, оно может наблюдаться и в средах со спонтанным орбитальным ферромагнетизмом, что соответствует оператору тока $\mathbf{J}(\mathbf{k}) = (ie/2m)\, \mathbf{l} \times \mathbf{k}$, где $\mathbf{l}$ – орбитальный момент. Отметим, что как в случае спинового, так и чисто орбитального ферромагнетизма для существования квадратичного по $\mathbf{k}$ эффекта не требуется участия спин-орбитального взаимодействия, в то время как вклад во вращение члена с $\mathbf{k} = 0$ в средах со спонтанным ферромагнетизмом отличен от нуля лишь при учете спин-орбитального взаимодействия.

Более интересной является возможность существования данного эффекта в средах с равной нулю макроскопической плотностью магнитного момента. Легко получить необходимое для этого условие, накладываемое симметрией. Для этого заметим, что угол поворота плоскости поляризации θ при распространении волны вдоль $\mathbf{m}$ имеет зависимость $\theta \propto \omega\ \mathbf{G} \cdot \mathbf{m}$ [4], где $\mathbf{G}$ – вектор гирации, дуальный антисимметричной части $\epsilon^{-1}_{[ik]}(\omega, \mathbf{k})$ обратного тензора диэлектрической проницаемости. Поскольку разложение по $\mathbf{k}$ тензора $\epsilon^{-1}_{ik}(\omega, \mathbf{k})$ имеет такой же вид, как (3), то для угла поворота, связанного с квадратичным по $\mathbf{k}$ членом, получаем зависимость

$$\theta \propto (k(\omega)/\omega)^2 \beta_{ikl} m_i m_k m_l, \tag{4}$$

где β_{ikl} – Т-нечетный псевдотензор, аналогичный тензору α_{ikl} в (3). Поскольку, согласно (4), только полностью симметричная часть тензора β_{ikl} дает вклад во вращение, то можно заключить, что частотнонезависимое фарадеевское вращение возможно в средах, симметрия которых допускает существование такого тензора.

Помимо уже упоминавшихся ферромагнетиков, тензор с такими свойствами допускают и некоторые антиферромагнитные классы магнитной симметрии. Так, во всех кубических классах магнитной симметрии, в которых разрешен пьезомагнитный эффект, например, в магнитном классе T, тензор β_{ikl} полностью симметричен и имеет одну независимую компоненту β_{xyz}. Эффект Фарадея в таких средах должен обладать сильной анизотропией.

В заключение укажем на еще один, существенно более сложный тип магнитного упорядочения, при котором возможно частотнонезависимое фарадеевское вращение. С чисто симметрийной точки зрения отличный от нуля тензор β_{ikl} в (4) может существовать в магнитных структурах, параметр порядка которых связан не со средним значением микроскопической спиновой плотности $< \mathbf{S}(\mathbf{r}) >$, а с тройным коррелятором спиновой плотности $< S_i(\mathbf{r}_1) S_k(\mathbf{r}_2) S_l(\mathbf{r}_3) >$ [5, 6]. При этом $< \mathbf{S}(\mathbf{r}) >$ может быть равно нулю (в обменном приближении [5]). Если такой коррелятор содержит часть, симметричную по индексам i, k, l, то в такой среде также возможно частотнонезависимое фарадеевское вращение. Отметим, однако, что одновременный коммутатор токов в соотношении (2) не выражается непосредственно через корреляционные функции спиновой плотности, поэтому вопрос о фактическом существовании и величине этого эффекта может быть решен лишь на основе модельного рассмотрения.

Работа поддержана РФФИ и программой "Фундаментальная спектроскопия".

---

1. B.S.Shastry, B.I.Shraiman, and R.R.P.Singh, Phys. Rev. Lett. **70**, 2004 (1993).
2. Г.С.Кринчик, М.В.Четкин, ЖЭТФ **36**, 1924 (1959).
3. Г.С.Кринчик, М.В.Четкин, ЖЭТФ **41**, 673 (1961).
4. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1992.
5. В.И.Марченко, Письма в ЖЭТФ **48**, 387 (1988).
6. V.Barzykin and L.P.Gor'kov, Phys. Rev. Lett. **70**, 2479 (1993).