

# Inelastische Lichtstreuung

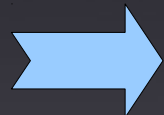
Ramanspektroskopie

# Geschichte / Historisches

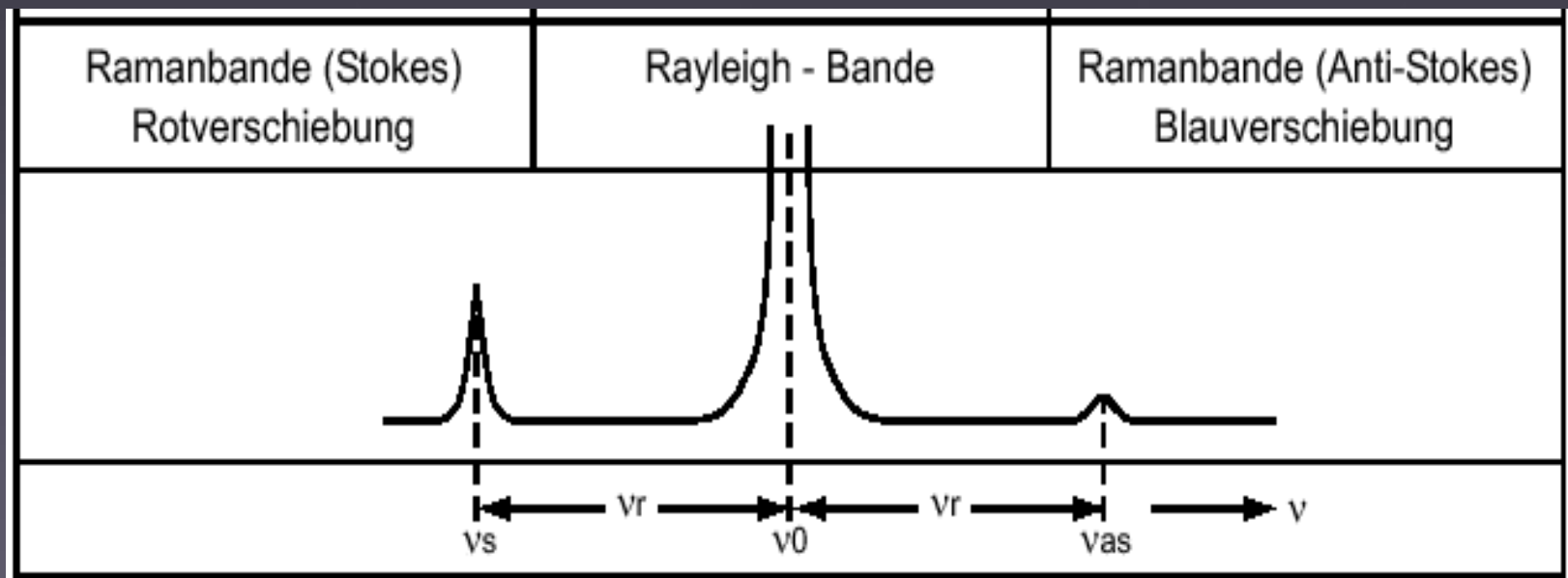
- 1920er Forschung von Wechselwirkung der Materie mit Elektromagnetischer-Strahlung
- 1923 Compton Effekt (Röntgen Photonen)
  - Hypothese → Ähnlicher Effekt für sichtbares Licht (Behauptung u. a. von Heisenberg 1925)
- 1928 Nachweis von Raman, Landsberg und Mandelstam (Nobelpreis 1930, Raman)  
→ **Seither: Raman-Streuung als Begriff**

# Raman-Streuung

- Laser trifft auf eine Probe → eingestrahltes Licht wird gestreut



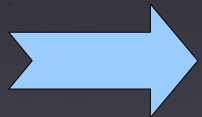
Beobachtung: Geringer Teil des Streulichtes ist gegenüber dem einfallendem Licht in der Frequenz verschoben = **Raman-Effekt**



# Klassische Erklärung I

- Elektrisches Feld des einfallenden Lichtes

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot \cos(2\pi\nu_0 t)$$



Induziert Dipolmoment in Material

$$\vec{\mu}_{ind} = \hat{\alpha} \cdot \vec{E}$$

$$\mu_{ind} = \alpha \cdot E_0 \cdot \cos(2\pi\nu_0 t)$$

→ Gleiche Frequenz wie die Anregung → elastische Lichtstreuung (Rayleighstreuung,  $I \sim \nu^4$ )

# Klassische Erklärung II

- Zentrale Größe: Polarisierbarkeit  $\alpha \rightarrow$  Veränderlich durch mechanische Eigenschwingungen der Moleküle (Frequenz  $\nu_r$ ):

$$q = q_0 \cdot \cos(2\pi\nu_r t)$$

Auslenkung  $q$  wird als klein angenommen

Taylorentwicklung für Polarisierbarkeit:

$$\alpha(q) = \alpha_0 + \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q_0} \right) q + O\left( \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q_0} \right)^2 \right)$$

Einfluss der mechanischen Eigenschwingungen auf die Polarisierbarkeit

# Klassische Erklärung III

$$\mu_{ind} = \left[ \alpha_0 + \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q_0} \right) q_0 \cos(2\pi \nu_r t) \right] \cdot E_0 \cdot \cos(2\pi \nu_0 t)$$

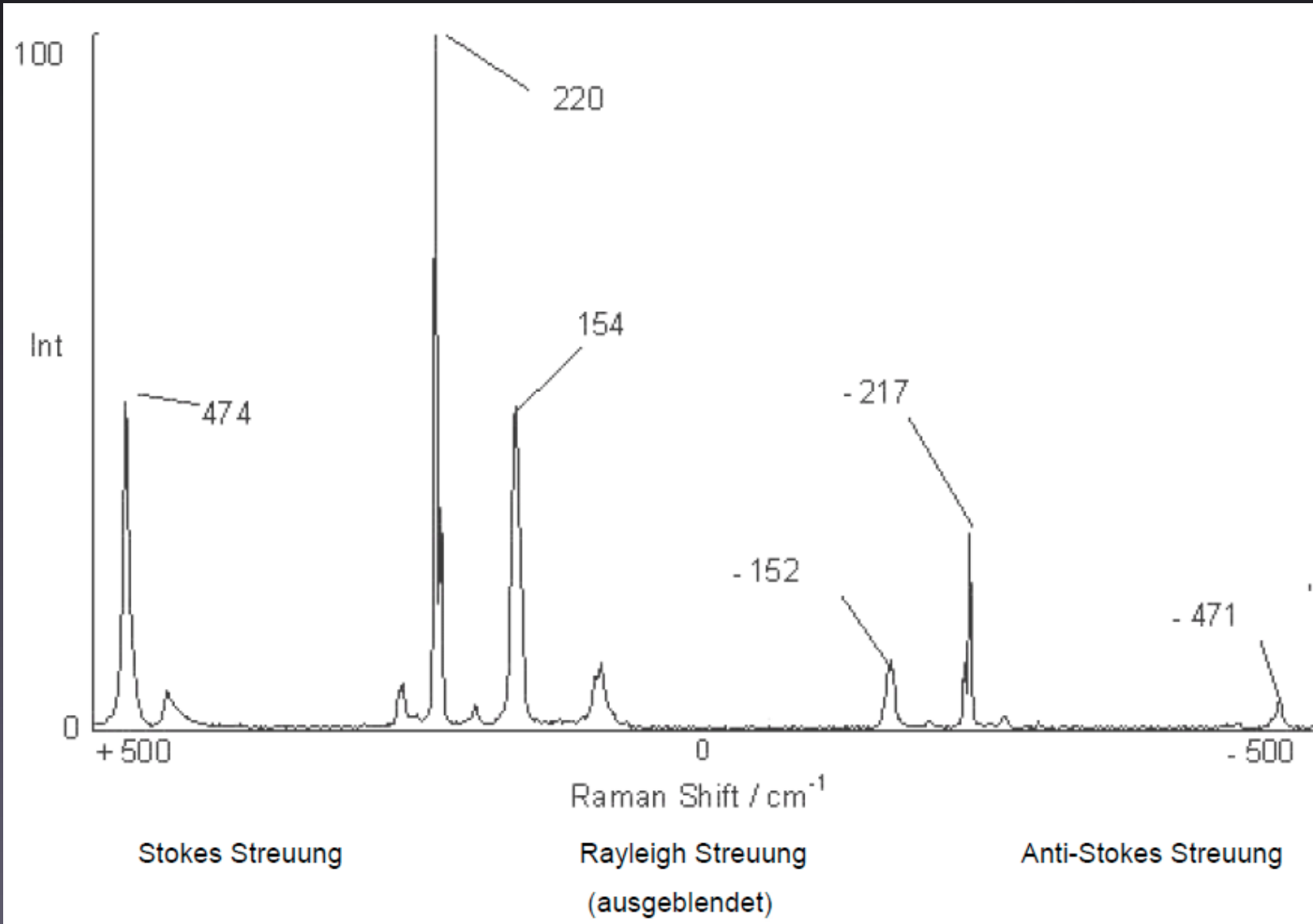


Additionstheorem

$$\begin{aligned} \mu_{ind} &= \alpha_0 E_0 \cos(2\pi \nu_0 t) && \text{Rayleigh Streuung} \\ &+ \frac{1}{2} E_0 q_0 \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q_0} \right) \cos(2\pi (\nu_0 - \nu_r) t) && \text{Stokes-Raman Streuung} \\ &+ \frac{1}{2} E_0 q_0 \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q_0} \right) \cos(2\pi (\nu_0 + \nu_r) t) && \text{Anti-Stokes-Raman Streuung} \end{aligned}$$

Modulation der Schwingung des induzierten Dipolmoments → zwei neue Frequenzbeiträge (**Raman-Effekt**)

# Klassische Sichtweise IV



# Quantenmechanische Sichtweise

Erwartung: Wenn  $T \rightarrow 0$ , Eigenschwingungen der Moleküle stoppen  $\rightarrow$  keine Raman-Peaks

ABER

Experiment zeigt: Peaks dennoch vorhanden

Boltzmannverteilung: Anzahl der angeregten Atome bei einer gegebenen Temperatur  $T$

$$N_i = N_0 \cdot e^{-\frac{E_n}{k_B \cdot T}}$$

$$E = h \cdot \nu$$

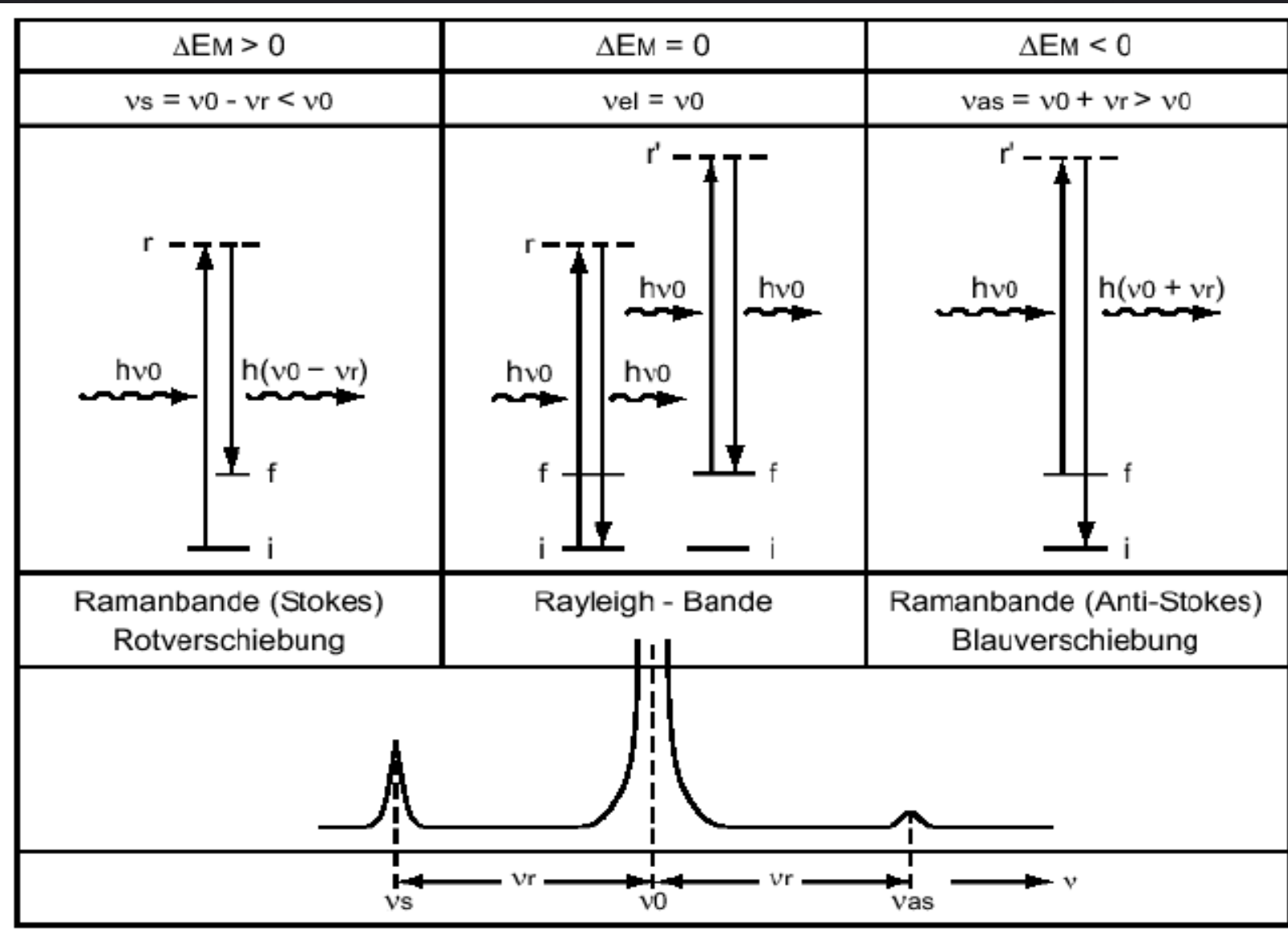
Betrachtung des Lichts als Teilchen mit Energie  $E$



eine kleine Animation...

<http://www.youtube.com/watch?v=IJPkROErsI0>

# Quantenmechanische Sichtweise



# Polarisation

- Aus Wechselwirkung mit polarisiertem Licht ergibt sich:
  - Isotropische Molekülschwingungen → **keine Depolarisation** des einfallenden Lichtes
  - Anisotropisch Molekülschwingungen → **Depolarisation** des einfallenden Lichtes

$$P = I_{\perp} / I_{\parallel}$$

$I_{\parallel}$ : Parallel zur Polarisationsrichtung der Erregerstrahlung gemessene Intensität der Streustrahlung.

$I_{\perp}$ : senkrecht auf  $I_{\parallel}$  stehende Komponente der Raman-Strahlung

# Anwendung

- Untersuchung von Materialeigenschaften
- Untersuchung von wässrigen Lösungen
- Anwendung in: Pharmazie, Archäologie, Lebensmittelchemie, Pigmentherstellung, Halbleiter- und Sprengstoffuntersuchungen

**UND**

**Untersuchung von korrelierten Elektronen**

# Korrelation der Elektronen

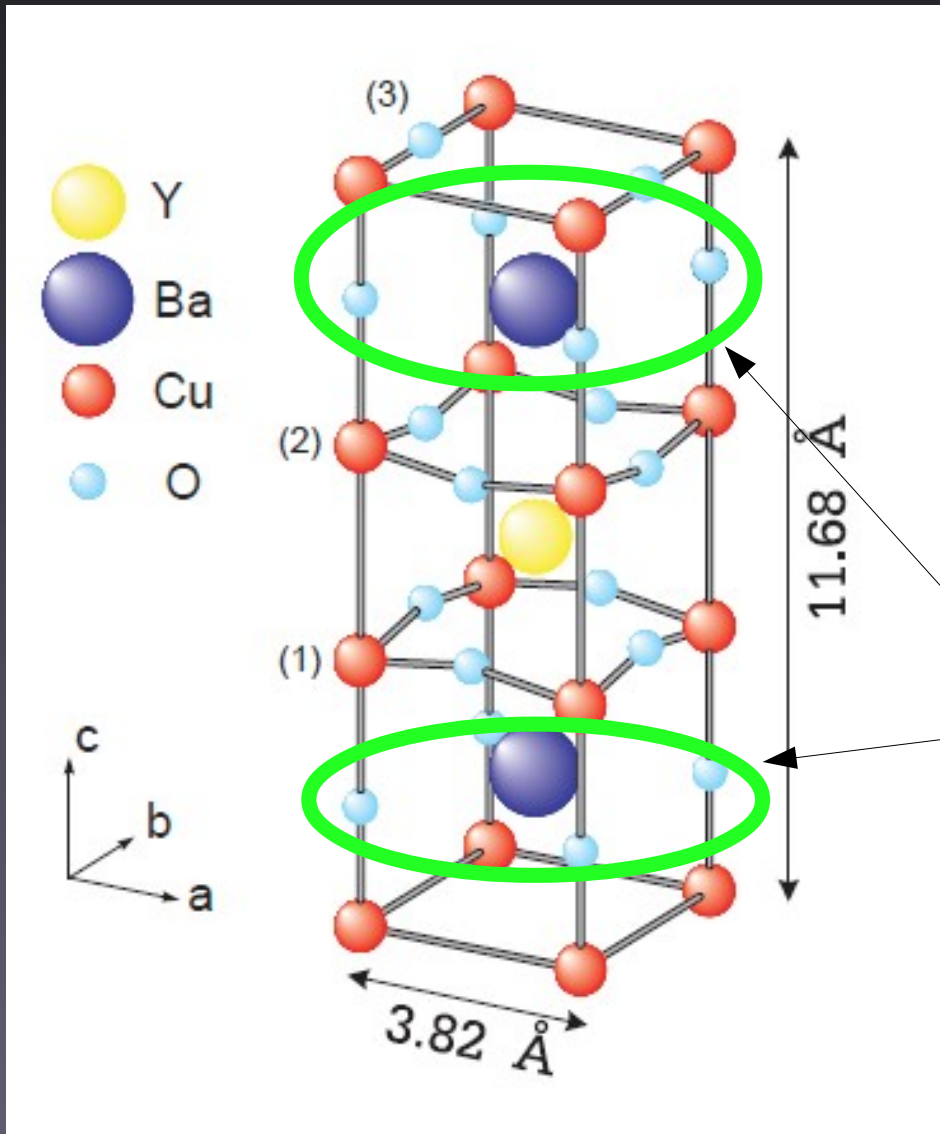
- Bisherige Annahme: ideales Elektronengas  
→ Punktförmige Teilchen, keine Wechselwirkung

- Elektronen wechselwirken über Coulombkraft

$$\sim \frac{1}{r^2}$$

- Verantwortlich für das Auftreten verschiedener Phänomene (Kuprat-Supraleiter)  
→ Notwendigkeit die Korrelation über Raman-Spektroskopie zu untersuchen

# Kuprat-Supraleiter



(1), (2) Kupferoxid Ebenen  
→ nichtleitend wegen Korrelation  
der Elektronen (Quelle: Hubbard  
Modell)

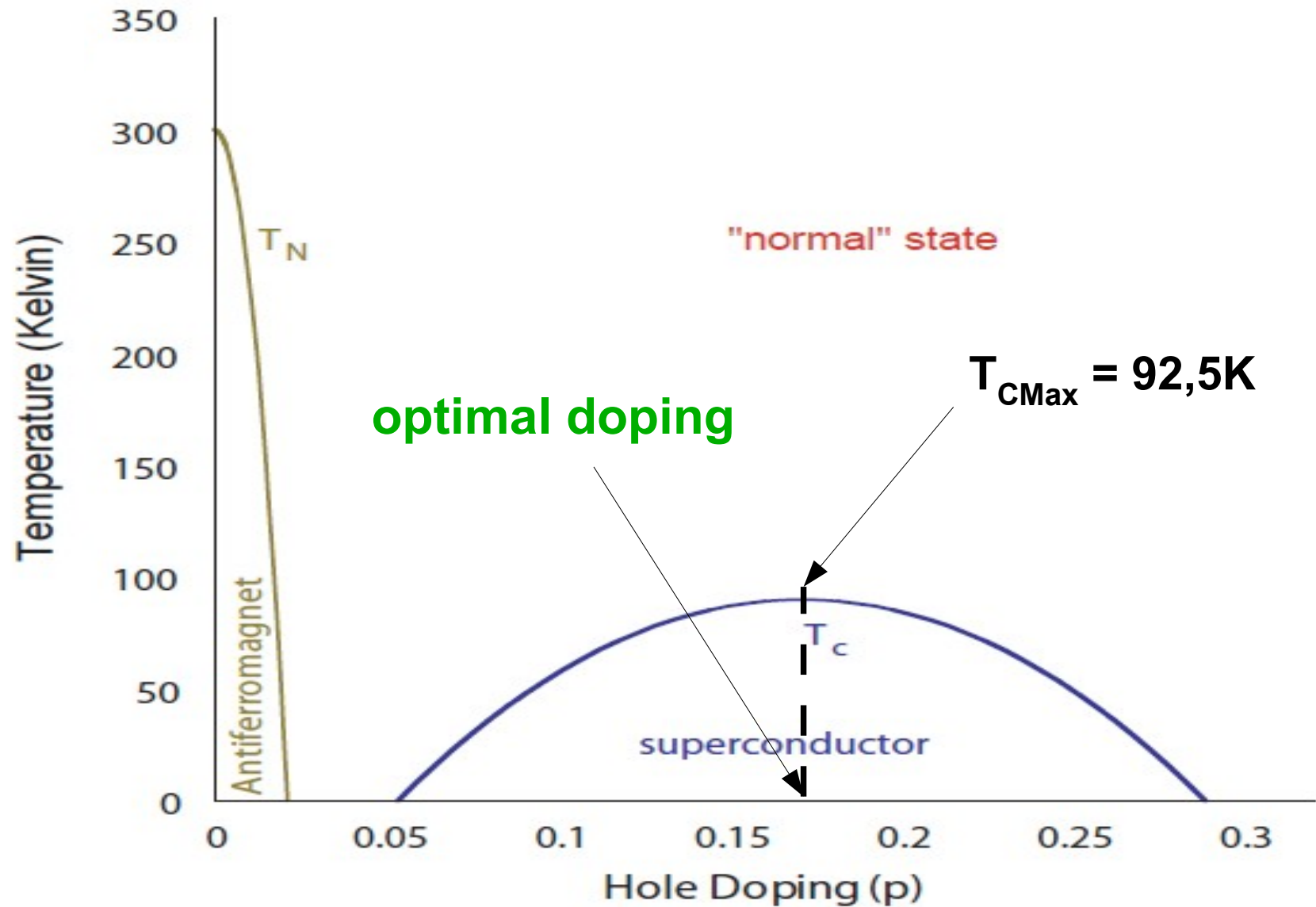
(3) Dotierung durch Einbringen  
von Sauerstoffatomen  
→ entzieht Elektronen, Löcher  
entstehen

Isolierende Schichten

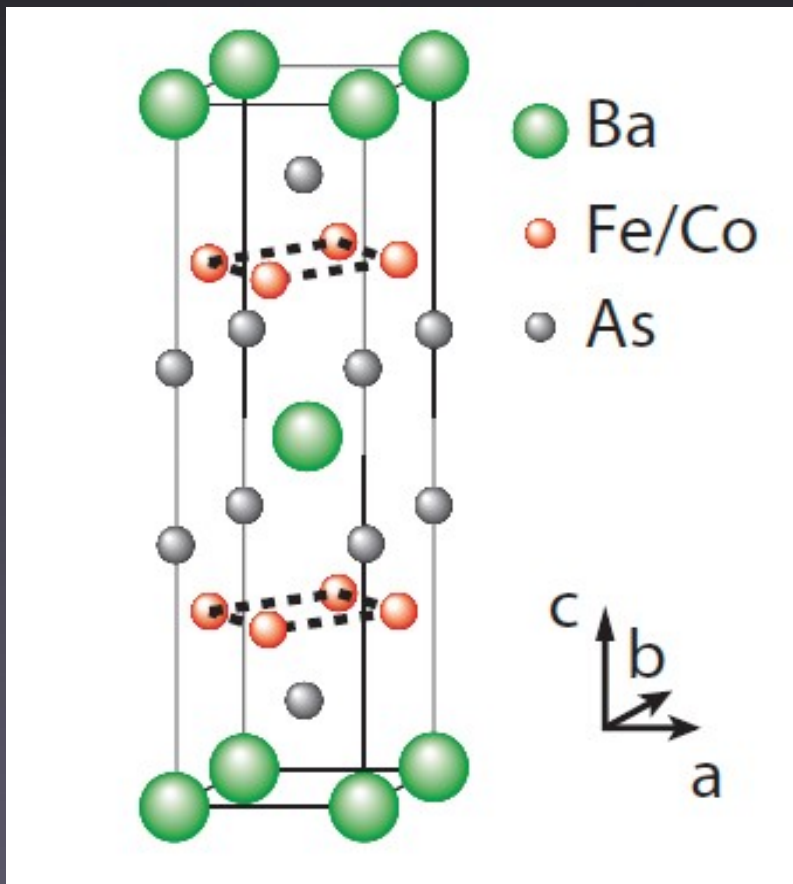
Z.B.:  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

Anstatt Sauerstoff: Yttrium  
durch Calcium ersetzen

# Kuprat-Supraleiter



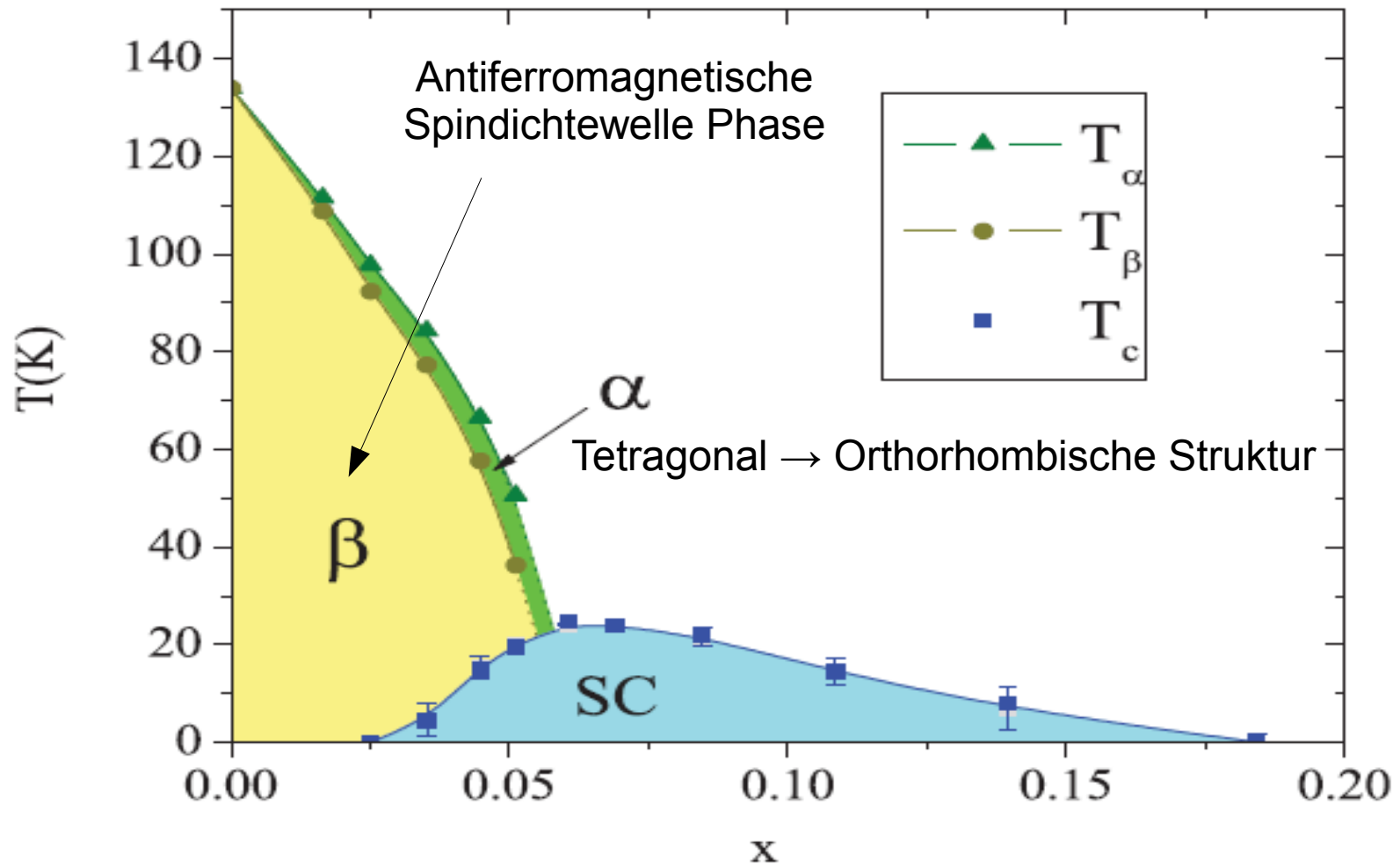
# Eisenarsenid-Supraleiter



- $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  (mit  $x > 0$ )
- (quasi) 2D-Eisen-Arsen Ebene
- Supraleitung durch Dotierung (mit Cobalt) oder externem Druck  $\rightarrow$  Elektronenübersch.
- Lochdot.:  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$
- Phasenübergang durch Gitterverzerrung oder Ladungsträger?



# Eisenarsenid-Supraleiter



# Eisenarsenid-Supraleiter

	$T_c^{\max}$	$p_0$
Colombier <i>et al.</i>	33 K	5,2 GPa
Alireza <i>et al.</i>	29 K	4,0 GPa
Ishikawa <i>et al.</i>	35 K	3,0 GPa

Im Vergleich:  $T_c$  von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  bei verschiedenen Drücken, experimentell bestimmt.

# Ramanstreuung an Elektronen

Wechselwirkung von N Elektronen mit elektromagnetischem Feld

$$H = \sum_i^N \frac{[\hat{\mathbf{p}}_i + \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i)]^2}{2m} + H_{\text{Coulomb}} + H_{\text{fields}},$$

$$H = H' + H_{\text{int}}$$

Wechselwirkung der Elektronen mit den Photonen

$$H_{\text{int}} = \underbrace{\frac{e}{2m} \sum_i^N [\hat{\mathbf{p}}_i \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) \cdot \hat{\mathbf{p}}_i]}_{\text{Strom-Response}} + \underbrace{\frac{e^2}{2m} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_i)}_{\text{Ladungsdichte-Response}}.$$

Strom-Response

Ladungsdichte-Response

# Ramanstreuung an Elektronen

Wirkungsquerschnitt der elektronischen Ramanstreuung

$$\dot{N} \propto \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \tilde{\Omega} \partial \omega_s} = \hbar r_0^2 \frac{\omega_s}{\omega_i} R,$$

elektronischer Thomson-Radius

$$r_0^2 = e^2 / 4\pi m c^2$$

$$R = \frac{1}{Z} \sum_{I,F} e^{-\beta E_I} |M_{F,I}|^2 \delta(E_F - E_I - \hbar\Omega),$$

Übergangsrate R durch Fermis Goldene Regel bestimmt

# Vielen Dank!

$$\chi_{\gamma,\gamma}^{\text{sc}} = \chi_{\gamma,\gamma} - \frac{\chi_{\gamma,1}\chi_{1,\gamma}}{\chi_{1,1}} + \frac{\chi_{\gamma,1}\chi_{1,\gamma}}{\chi_{1,1}^2} \chi_{\text{sc}}, \quad (29)$$

where  $\chi_{\text{sc}} = \chi_{1,1}(1 - v_q \chi_{1,1})^{-1}$ . This is an exact expression, where the subscript  $\gamma$  denotes the effective Raman density and 1 denotes the pure charge density, obtained when the momentum-dependent vertex  $\gamma$  is replaced by a constant. The respective  $\chi$ 's describe the density-density, density-Raman density, and Raman density-Raman density susceptibilities which are again each irreducible with respect to the interaction.

The first term in Eq. (29) is the bare response for a

# Quellen

- [www.wmi.badw.de/publications/theses/Rossner\\_Diplomarbeit\\_2010.pdf](http://www.wmi.badw.de/publications/theses/Rossner_Diplomarbeit_2010.pdf)
- Review of Modern Physics, Volume 79, Inelastic light scattering from correlated electrons, Thomas P. Devereaux, Rudi Hackl, 2007
- E. Colombier, S. L. Bud'ko, N. Ni, and P. C. Canfield, Phys. Rev. B 79, 224518 (2009).
- P. Alireza, Y. T. Chris Ko, J. Gillett, C. M. Petrone, J. M. Cole, G. G. Lonzarich, and S. E. Sebastian, J. Phys. Condens. Matter 21, 012208 (2009).
- F. Ishikawa, N. Eguchi, M. Kodama, K. Fujimaki, M. Einaga, A. Ohmura, A. Nakayama, A. Mitsuda, and Y. Yamada, Phys. Rev. B 79, 172506 (2009).
- B. Muschler, W. Prestel, R. Hackl, T. P. Devereaux, J. G. Analytis, J.-H. Chu, and I. R. Fisher, Phys. Rev. B **80**, 180510 (2009).
- J.-H. Chu, J. G. Analytis, C. Kucharczyk, and I. R. Fisher, Phys. Rev. B **79**, 014506 (2009).
- H. Wadati, I. Elfimov, and G. A. Sawatzky, Phys. Rev. Lett. **105**, 157004 (2010).
- M. Rotter, C. Hieke, and D. Johrendt, Phys. Rev. B **82**, 014513 (2010).
- T. P. Devereaux and R. Hackl, Rev. Mod. Phys. **79**, 175 (2007).