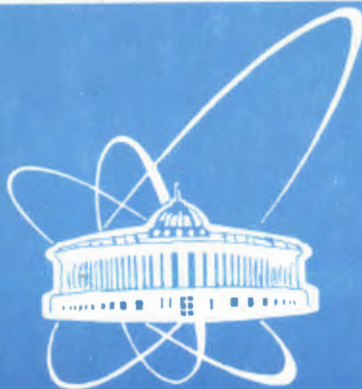


97-299



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P14-97-299

С.И.Тютюнников, В.Н.Шаляпин, С.Н.Шашков,
Н.Скынтее

ОПТИЧЕСКИЕ ПОСТОЯННЫЕ
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО СВЕРХПРОВОДНИКА
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ В ШИРОКОМ СПЕКТРАЛЬНОМ
ИНТЕРВАЛЕ

1997

Введение

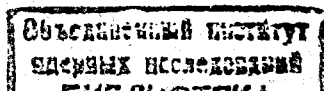
Исследование оптических свойств высокотемпературных оксидных сверхпроводников позволяет выявить основные каналы отклика материала на широкий спектр падающего излучения и тем самым приблизиться к выяснению механизмов возникновения сверхпроводимости. Одно из основных взаимодействий длинноволнового инфракрасного излучения с сверхпроводником проявляется в изменении поглощения [1] при энергиях квантов падающего излучения $E_{\lambda} < 2\Delta$, где 2Δ - величина энергетической щели, отделяющей 1-е возбужденное состояние от основного. На пучке СИ были выполнены работы по измерению величины энергетической щели [2], которые дали значения $2\Delta/kT_c \approx 3.2$, близкие к теории БКШ. Этот факт однозначно свидетельствует о классическом (БКШ) механизме спаривания электронов в куперовские пары. Помимо этого важно также выявить фоновый спектр сверхпроводящих оксидных пленок и влияние на него появления свободных носителей в сверхпроводящей фазе. В работе Каппиззи и Лупи [3] были представлены результаты по наблюдению поляронного эффекта при переходе от диэлектрической фазы к металлической, который появляется в экранировании основных фоновых мод свободными зарядами. Однако другие авторы не подтверждают подобные результаты [4].

В нашей работе [5] обнаружено, что в сверхпроводящей керамике $YBa_2Cu_3O_{6.90}$ появляются слабые линии поглощения на частотах, соответствующих комбинации основных фоновых мод: $\nu_1 = 152 \text{ см}^{-1}$, $\nu_2 = 350 \text{ см}^{-1}$, $\nu_3 = 575 \text{ см}^{-1}$. Одним из недостатков в исследовании оптических свойств ВТСП пленок является сравнительно узкий исследуемый диапазон: либо исследовались фоновые моды $\nu = 200 - 600 \text{ см}^{-1}$ [6,7], либо электронная структура $5000 - 30000 \text{ см}^{-1}$, но не было измерено во всем спектральном диапазоне.

Цель данной работы - проведение оптических измерений на пленках YBCO в диапазоне $10 - 30000 \text{ см}^{-1}$. Особенностью объектов исследований является то, что, помимо пленок $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ на подложках из монокристалла окиси магния, были использованы пленки $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ на кремнии с буферной (YSZ) пленкой, технология получения приведена в работе [8]. Толщина пленок $\sim 2000 - 3000 \text{ \AA}$; пленка ориентирована по направлению оси Z.

Методика измерений

Измерения оптических характеристик ВТСП пленок и керамики проводились в диапазоне $10 - 400 \text{ см}^{-1}$ на фурье-спектрометре ЛАФС-1000, основные спектроскопические характеристики которых приведены в работе

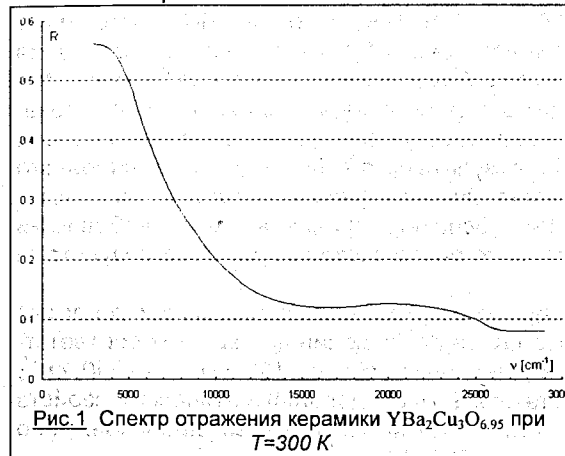


[9]; в промежуточной области $400 \div 15000 \text{ см}^{-1}$ на Specord-75IR, Specord M40 и монохроматоре МДР-2.

Измерения в длинноволновом ИК-диапазоне показывают слабую зависимость от температуры, поэтому были выполнены при $T=300 \text{ К}$. Измерения в видимом и ближнем ИК-диапазоне были выполнены в температурной области $5 \div 300 \text{ К}$.

Результаты измерений и их обработка

На рис.1 представлен измеренный спектр отражений для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.90}$ в широкой области спектра, полученный сшиванием разных частей спектра.



Для исследования оптических характеристик выбирали пленки с заданной орторомбической структурой, определяемой рентгеноструктурным анализом, с содержанием кислорода, близким к 6,9.

Хорошо известно использование соотношений Крамерса-Кронига (КК) для анализа отраженных спектров при углах падения, близких к нормальному [10]. Из подобных соотношений могут

быть получены действительная и мнимая части n и k рефракционного показателя, а также действительная и мнимая части ϵ_1 и ϵ_2 диэлектрической функции соответственно. Эти константы связаны между собой равенствами

$$\epsilon_1(\omega) = n^2(\omega) - k^2(\omega),$$

$$\epsilon_2(\omega) = 2n(\omega) \cdot k(\omega).$$

Две части ϵ_1 и ϵ_2 не являются независимыми. Они взаимосвязаны посредством соотношений КК:

$$\epsilon_1(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} p \int_0^{\infty} \frac{\omega' \epsilon_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega',$$

$$\epsilon_2(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} p \int_0^{\infty} \frac{\epsilon_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'.$$

Величины $n(\omega)$ и $k(\omega)$ могут быть найдены из измерения отраженного спектра $R(\omega)$ и вычисленному фазовому сдвигу $\theta(\omega)$, т.е.

$$n(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega')} \cos \theta},$$

$$k(\omega) = \frac{2\sqrt{R(\omega')} \sin \theta}{1 + R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega')} \cos \theta};$$

$$\theta = \arctan \frac{-2k}{n^2 + k^2 - 1},$$

$$\begin{aligned} -\pi \geq \theta \geq -\pi/2 & \text{ для } n^2 + k^2 > 1, \\ -\pi/2 \geq \theta \geq 0 & \text{ для } n^2 + k^2 < 1, \\ \pi \geq \theta \geq 0 & \text{ невозможно, так как } k \geq 0. \end{aligned}$$

Коэффициент отражения $R(\omega)$ и сдвиг фаз $\theta(\omega)$ также взаимосвязаны посредством соотношений КК:

$$\ln R(\omega) = \frac{1}{\pi} p \int_0^{\infty} \frac{\omega' \cdot \theta(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega',$$

$$\theta(\omega) = -\frac{\omega}{\pi} p \int_0^{\infty} \frac{\ln R(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'.$$

Важно отметить, что коэффициент отражения обычно измеряется в ограниченной области частот (ω_a, ω_b). Вне этой области необходима экстраполяция экспериментальных данных на интервалы $(0, \omega_a)$ и (ω_b, ∞) , чтобы можно было вычислить интеграл для $\theta(\omega)$.

В направлении высоких частот ($\omega' > \omega_b$) мы воспользовались способом, предложенным Еллисом и Стивенсоном [11]:

$$R(\omega') = R(\omega_b) \cdot \left[\frac{\omega_b}{\omega'} \right]^{(\rho_0 - 4) \frac{\omega_b}{\omega' + 4}},$$

где ρ_0 определялась из условия непрерывности для производной при $\omega' = \omega_b$. Эта экстраполяция сохраняет структуру вблизи ω_b и согласуется с формулой Друде при высоких энергиях.

В низкочастотном интервале частот ($\omega' < \omega_b$) мы воспользовались экспоненциальной функцией

$$R(\omega') = R(\omega_a) \cdot e^{B(\omega'^2 - \omega_a^2)}.$$

Эта формула согласуется с фактом, что $R(0) \approx 1$ для металлов и спадает очень быстро в малом интервале энергий. Константа B определяется из $R(0) \approx 1$.

Кроме указанных выше оптических констант ϵ_1 , ϵ_2 , n , k , можно охарактеризовать образцы и другими оптическими функциями:

-коэффициент поглощения

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda};$$

-функция энергетических потерь

$$\Phi(\omega) = -\text{Im}[\varepsilon(\omega)]^{-1} = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2};$$

-эффективное число валентных электронов на атом

$$n_{ef}(\omega_0) = c \int_0^{\omega_0} \omega \cdot \varepsilon_2(\omega) d\omega;$$

-эффективная диэлектрическая проницаемость

$$\varepsilon_{ef}(\omega_0) = 1 + \frac{2}{\pi} \int_0^{\omega_0} \frac{\varepsilon_2(\omega)}{\omega} d\omega;$$

-парциальные коэффициенты для анализа данных модуляционной спектроскопии отражения

$$\left. \begin{aligned} \alpha(\omega) &= \frac{\partial(\ln R)}{\partial \varepsilon_1} = C_1 \left[(\varepsilon_1 - 1) A_+ + \varepsilon_2 A_- \right] \\ \beta(\omega) &= \frac{\partial(\ln R)}{\partial \varepsilon_2} = C_2 \left(\frac{\varepsilon_1 - 1}{A_+} - \frac{\varepsilon_2}{A_-} \right) \end{aligned} \right\}$$

где

$$\left. \begin{aligned} A_{\pm} &= \pm \sqrt{2} \cdot \left[(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^2 \pm \varepsilon_1 \right]^{1/2} \cdot (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{-1/2} \\ C_1 &= \left[(\varepsilon_1 - 1)^2 + \varepsilon_2^2 \right]^{-1} \\ C_2 &= 2\varepsilon_2 \left[(\varepsilon_1 - 1)^2 + \varepsilon_2^2 \right]^{-1} (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{-1} \end{aligned} \right\}$$

парциальные коэффициенты $\tilde{\alpha}(\omega)$ и $\tilde{\beta}(\omega)$ введены для описания спектров электроотражения. Они устанавливают связь между оптическими константами материала и спектроскопическими измеряемыми величинами в экспериментах модуляционной спектроскопии отражения

$$\frac{\Delta R}{R}(\omega) = \tilde{\alpha}(\omega) \cdot \Delta \varepsilon_1 + \tilde{\beta}(\omega) \cdot \Delta \varepsilon_2,$$

где $\Delta \varepsilon(\eta, \omega) = \varepsilon(\eta, \omega) - \varepsilon(0, \omega)$, η - параметр, характеризующий внешнее модулирующее поле (электрическое, магнитное, тепловое, механическое и т.д.).

Часто используют при обсуждении низкочастотного отклика сверхпроводника функцию σ_2 комплексной проводимости:

$$\sigma = \sigma_1 + i\sigma_2 \left\{ \begin{aligned} \sigma_1 &= \frac{1}{4\pi} \cdot \varepsilon_2 \cdot \omega \\ \sigma_2 &= \frac{\omega \cdot (1 - \varepsilon_1)}{4\pi} \end{aligned} \right.$$

А в случае решеточного отражения максимумы зависимостей учитывают,

что $\frac{\omega \cdot 2\pi k}{(n^2 + k^2)} = \omega \cdot \text{Im}(-\varepsilon^{-1}) = f'(\omega)$ и $\omega \cdot \varepsilon_2 = f''(\omega)$

определяют частоты LO и TO - фононов, а полуширины кривых - параметры их затухания. На рисунках даны вычисленные результаты.

Отражательный спектр $\text{YBa}_2\text{Ca}_3\text{O}_7$, измеренный в интервале волновых чисел $10 \div 30000 \text{ см}^{-1}$, показан на рис.1. Используя этот спектр, получены спектральные зависимости для ε_1 и ε_2 (рис.2 и 3).

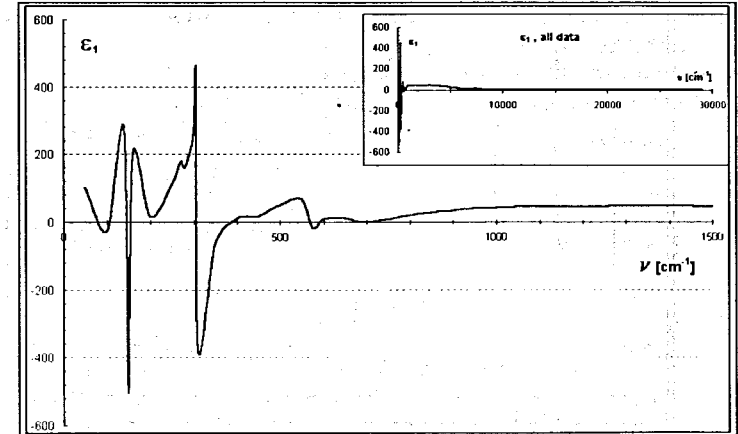


Рис.2 Реальная часть диэлектрической проницаемости ε_1 в зависимости от частоты.

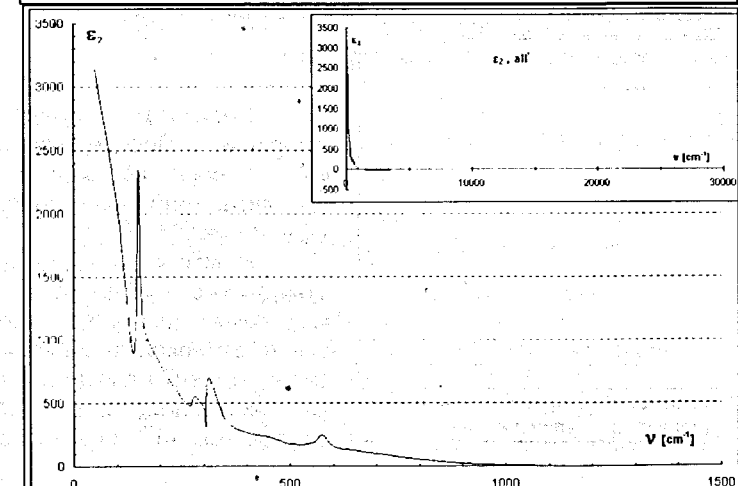


Рис.3 Мнимая часть диэлектрической проницаемости ε_2 в зависимости от частоты.

Значение $\varepsilon_1(\omega)$ в диапазоне частот $\nu > 700 \text{ см}^{-1}$ является положительной при 300 K и является малым по модулю. Наблюдается резкий подъем $\varepsilon_1(\omega)$ в сторону нуля при увеличении частоты от $\sim 310 \text{ см}^{-1}$.

В области низких частот наиболее характерным для кривых ε_1 и ε_2 является наличие особенностей у $150, 310, 575 \text{ см}^{-1}$. Значения ε_1 отрицательны, откуда следует, что эти особенности вызваны резонансными явлениями. Колебания $150, 310, 575 \text{ см}^{-1}$ обуславливают обычную резо-

нансную дисперсию. На рис.4 представлена зависимость оптической проводимости от частоты.

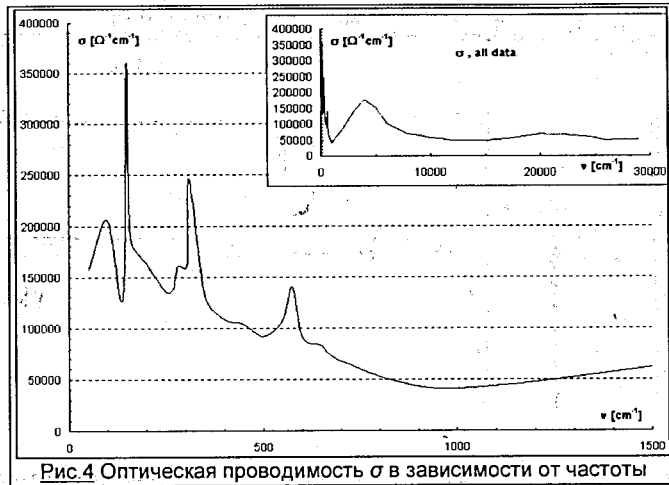


Рис.4 Оптическая проводимость σ в зависимости от частоты

Можно обработать спектр $k(\omega)$ по стандартной формуле [12] для прямого межзонного поглощения с оптической щелью E_g

$$k \sim \frac{(E - E_g)^{1/2}}{E}$$

Результаты представлены на рис.5. Пересечение прямой $(kE)^2$ с осью абсцисс позволяет выделить край межзонного поглощения $E_g \approx 2.05$ эВ.

В итоге именно на краю межзонного поглощения лежит максимум ~ 2.1 эВ, отмеченный выше "стрелкой" в спектре. Полоса генетически связана с межзонным поглощением при переносе заряда $d^9L \rightarrow d^{10}$ от кислорода на

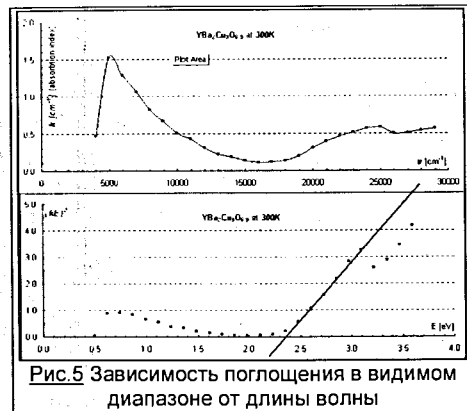


Рис.5 Зависимость поглощения в видимом диапазоне от длины волны

медь [13].

Существование оптической щели с переносом заряда является важной особенностью энергетической структуры сверхпроводящего состояния ВТСП. В диэлектрической фазе $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ оптическая щель имеет значение $E_g = 1.7$ эВ, а на щели наблюдается сильный максимум поглощения (1.7 эВ) [14].

Согласно приведенным данным, оптическая щель в сверхпроводящей фазе не исчезает, а увеличивается до 2.05 эВ.

Были проведены измерения спектра пропускания для области длин волн $0.4 \div 0.7$ мкм в зависимости от температуры. На рис.6 показаны эти результаты. Видно, что при $T < 150$ К появляется полоса поглощения, ам-

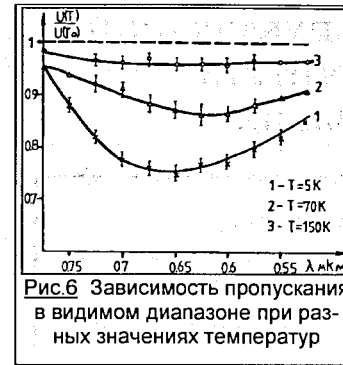


Рис.6 Зависимость пропускания в видимом диапазоне при разных значениях температур

плитуда и положение которой зависят от температуры. В пленке YBCO с температурой перехода $T < 70$ К не наблюдается подобной полосы. То обстоятельство, что измеренная полоса поглощения примыкает к границе оптической щели может свидетельствовать о появлении экситонного состояния.

Выводы

1. Проведенные исследования оптических свойств ВТСП состава (123) на разных подложках в сверхпроводящей фазе дают результаты, совпадающие по фоновым модам: $\nu_1 = 155$ cm^{-1} , $\nu_2 = 353$ cm^{-1} , $\nu_3 = 575$ cm^{-1} .
2. Для этих пленок наблюдается оптическая щель, связанная с переносом заряда. Величина ее составляет $\Delta E = 2.1$ эВ;
3. На краю щели с понижением температуры возникает полоса поглощения, которая может соответствовать пику экситонного поглощения.

Примечание: работа была поддержана грантом РФФИ №96-17206.

Литература

- 1 D.Mattis, J.Bardeen, Phys.Rev.11, p414,1958.
- 2 S.I.Tiutiunnikov, V.N.Shalyapin, NIM A359(1995), 263-265.
- 3 M.Cappizzi, S.Lupi et al, Physica C235-240, p273-276, 1994.
- 4 Физические свойства высокотемпературных сверхпроводников, под ред. Д.М.Гинзберга, М. Мир, 1990, с.344.
- 5 С.И.Тютюнников, В.Н.Шалаяпин, Сообщение ОИЯИ P14-91-208, Дубна, 1991.
- 6 W.Ose, P.Obertmayer et al, Physica C153-155, p639-640, 1988.
- 7 M.Garriga, U.Venkateswaran et al, Physica C153-155(1988), p643-644.
- 8 M.Jergel, S.Chromik et al, Supercond.Sci.Technol 5, p225-230 (1992).
- 9 Н.Н.Скынтьев, С.И.Тютюнников, В.Н.Шалаяпин, С.Н.Шашков, Сообщение ОИЯИ P14-97-150, Дубна, 1997.
- 10 F.Wooten, Optical Properties of Solids, Academic Press, New York (1972).
- 11 Y.Ellis, J.Stevenson, J.Appl.Phys., 46, 3066(1975).
- 12 Ф.Бассани, Дж.Пастори Парравичини, Электронные состояния и оптические переходы в твердых телах, М. Наука, 1982, с.390.
- 13 И.Я.Фуголь, В.Н.Самоваров и др, "Фотоиндуцированные изменения спектра поглощения сверхпроводящих пленок $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в области энергий 1.5-3 эВ", Физика низких температур, т18, N3, с296-301, 1992.
- 14 R.Zamboni, G.Ruani, J.Pal et al, Solid State Commun. 70, 813(1989).

Рукопись поступила в издательский отдел
3 октября 1997 года.