

# Оптические свидетельства совместимости антиферромагнетизма и сверхпроводимости в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

В. В. Еременко, В. Н. Самоваров, В. Л. Вакула, М. Ю. Либин,  
С. А. Уютнов

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,  
Украина, 61164, г. Харьков, пр. Ленина, 47  
E-mail: eremenko@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 18 апреля 2000 г.

Проведены измерения эволюции спектрального состава поглощения в области (1,25–2,6) эВ металлических пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  с температурами сверхпроводящих переходов  $T_c = 51$  и 74 К при их охлаждении от 180 до 20 К. Особое внимание уделено температурным изменениям двух полос поглощения: А-полосы ( $\approx 1,8$  эВ), отражающей появление дырок, одетых в «шубу» антиферромагнитных (АФ) флуктуаций и (А + J)-полосы ( $\approx 2,15$  эВ), отражающей дополнительное (магнонное) возбуждение ближнего АФ порядка. Обнаружено, что изменения этих полос начинаются в нормальной фазе при  $T < T^*$  в температурной области открытия псевдощелевого состояния, причем магнонная полоса (А + J) возникает в псевдощелевом состоянии даже в случае ее отсутствия при комнатных температурах. При сверхпроводящем переходе параметры полос перестают изменяться, и магнонная (А + J)-полоса в сверхпроводящей фазе сохраняется. Полученные результаты трактуются как свидетельство магнитной природы псевдощелевого состояния и совместимости АФ ближнего порядка со сверхпроводимостью.

Проведено вимірювання еволюції спектрального складу поглинання в області (1,25–2,6) еВ металевих плівок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  з температурами надпровідних переходів  $T_c = 51$  та 74 К при їх охолодженні від 180 до 20 К. Особливу увагу приділено температурним змінам двох смуг поглинання: А-смуги ( $\approx 1,8$  еВ), яка свідчить про появу дірок, вдягнених в «шубу» антиферромагнітних (АФ) флуктуацій, та (А + J)-смуги ( $\approx 2,15$  еВ), яка свідчить про додаткове (магнонне) збудження ближнього АФ упорядкування. Установлено, що зміни цих смуг починаються в нормальній фазі при  $T < T^*$  в температурній області відкриття псевдоцилінрного стану, до того ж магнонна смуга (А + J) виникає в псевдоцилінрному стані навіть у випадку її відсутності при кімнатних температурах. При надпровідному переході параметри смуг припиняють змінюватися, і магнонна (А + J)-смуга в надпровідній фазі зберігається. Одержані результати трактуються як свідчення магнітної природи псевдоцилінрного стану та сумісності АФ близького порядку з надпровідністю.

PACS: 74.72.Bk, 74.72.Dn

## Введение

В настоящее время установлено, что в купратных ВТСП при их охлаждении сначала реализуется переход в состояние с псевдощелью в спектре электронных возбуждений, а затем переход в сверхпроводящее (СП) состояние. Псевдощелевое состояние, будучи прекурсорным к сверхпроводимости, привлекает повышенное внимание и широко исследуется, например, методами спин-эха, ядерной релаксации, фотоэмиссионной спек-

троскопии углового разрешения (см. обзоры [1–3]). В частности, эти эксперименты показывают, что максимальному значению псевдощели отвечает окрестность точки  $(\pi, 0)$  в 2D зоне Бриллюэна. В направлении диагонали зоны псевдощель отсутствует. Влияние псевдощели регистрируется при температуре ниже  $T^*$ , которая в зависимости от уровня допирования купратных ВТСП близка или заметно превышает критическую  $T_c$ . Вблизи оптимального уровня допирования максимальные

значения СП щели  $\Delta_s$  и псевдощели  $\Delta^*$  примерно равны,  $\Delta \approx 40$  мэВ [1], причем обе щелевые особенности, по-видимому, имеют пространственную симметрию  $d$ -типа [1–3].

В итоге можно считать, что в купратных ВТСП образование СП фазы «стартует» при  $T = T^*$  и в самой критической точке СП щель, в отличие от классических сверхпроводников, не обращается в нуль. В теоретических исследованиях псевдощелевого состояния можно выделить два альтернативных подхода: на основе формирования выше  $T_c$  куперовских пар [4] и решающей роли флуктуаций ближнего антиферромагнитного (АФ) порядка [5] (псевдощель в спектре спиновых возбуждений). В любом случае экспериментальное и теоретическое изучение проблемы высокотемпературной сверхпроводимости в купратных ВТСП должно включать совместное рассмотрение псевдощелевых аномалий при  $T_c < T \leq T^*$  и собственно СП состояния при  $T \leq T_c$ .

Целью настоящей работы было исследование в видимом диапазоне частот 1,25–2,6 эВ поведения спектров поглощения пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при температурном прохождении как псевдощелевого, так и СП состояний. Такая постановка эксперимента является, вообще говоря, весьма необычной, поскольку энергия квантов света в используемой нами рабочей области частот значительно превышает величины обеих щелевых особенностей ( $\hbar\omega \gg \Delta_s, \Delta^*$ ). В классических сверхпроводниках информативный для изучения сверхпроводимости диапазон оптического поглощения (отражения) лежит, как известно, вблизи энергии СП щели  $\hbar\omega \approx \Delta_s$ . Если в электронном спектре нормальной фазы при понижении температуры образуется энергетическая щель иной природы, например для магнитных возбуждений, величиной  $\Delta_{\text{mag}}$ , то оптический отклик на эти изменения также появляется на частотах близких к  $\Delta_{\text{mag}}$ . Так, в  $\text{U}_2\text{RuSi}_2$  ( $T_c \approx 1,5$  К) при  $T < T^* \approx 20$  К значения оптической проводимости из-за открытия магнитной щели уменьшаются в низкочастотной области спектра  $\hbar\omega \approx \Delta_{\text{mag}} \approx 10$  мэВ, но выше по энергии уровень оптической проводимости (отражения) не изменяется [6]. Подобная картина «подавления» оптической проводимости наблюдается в купратных ВТСП ( $\text{YBCO}$ ,  $\text{Bi2212}$ ,  $\text{LSCO}$ ) в низкочастотной области  $\hbar\omega < 2\Delta^* \approx 100$  мэВ [1], когда при  $T < T^*$  в этих соединениях возникает псевдощель в плотности состояний.

При разработке спектроскопической задачи изучения псевдощелевого и СП состояний в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  с помощью высокоэнергетических квантов света  $\hbar\omega \gg \Delta_s, \Delta^*$  мы опирались на два

важных результата предыдущих оптических исследований. Во-первых, уже сравнительно давно показано, что при фиксированных частотах видимого и инфракрасного диапазонов имеются резкие изломы сигнала поглощения на СП переходе при охлаждении пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [7,8]. Аномалии в температурном ходе интенсивности поглощения для  $\hbar\omega = 2$  эВ в пленках  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при различном допировании были также отмечены вблизи  $T^* \approx 110$  К (при  $T_c \approx 90$  К) и  $T^* \approx 160$  К (при  $T_c \approx 50$  К) [9]. Однако детальные исследования температурной эволюции спектрального состава многокомпонентного контура поглощения  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  в области энергий  $\hbar\omega \geq 1,25$  эВ не проводились. Во-вторых, мы руководствовались результатами нашей предыдущей работы [10] по изучению и анализу спектров поглощения пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  в зависимости от уровня допирования при 300 К. В [10] было показано, что в области  $\hbar\omega = 1,25$ –3 эВ спектр поглощения, являясь многокомпонентным, содержит особенности (оптические «метки»), которые «отслеживают» при допировании степень  $pd$ -гибридизации (ковалентности) и взаимодействие тяжелых носителей заряда с магнитной подсистемой. Так, степень  $pd$ -гибридизации влияет на параметры полосы поглощения  $B_d^1$  ( $\approx 1,5$  эВ), обязанной  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$ -переходу в спектре иона  $\text{Cu}^{2+}$ . В то же время полосы поглощения  $A$  ( $\approx 1,8$  эВ) и  $(A + J)$  ( $\approx 2,1$  эВ) чувствительны к АФ упорядочению (АФ флуктуациям). В частности,  $(A + J)$ -полоса отражает вероятность двухмагнетонного возбуждения при межзонных переходах с переносом заряда. С увеличением допирования при 300 К в металлической фазе ковалентный и магнитный (корреляционный) вклады в спектр носителей заряда конкурируют между собой:  $A$ - и  $(A + J)$ -полосы уменьшаются по интенсивности и уширяются, но  $B_d^1$ -полоса при металлизации усиливается.

При охлаждении от 300 К поведение этих полос необязательно должно следовать тому же сценарию, что и при допировании. Можно ожидать нескольких вариантов взаимных изменений  $A$ -,  $(A + J)$ - и  $B_d^1$ -полос поглощения в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при прохождении псевдощелевого, а затем СП состояний. Например, температурные изменения для какой-либо из указанных полос поглощения могут вообще отсутствовать. За каждым из этих сценариев стоят определенные механизмы возникновения псевдощелевого состояния, а также альтернативные возможности конкуренции (сосуществования) АФ магнитного упорядочения и сверхпроводимости. Экспериментальные данные,

полученные в настоящей работе, показывают, что спектральный состав поглощения света при охлаждении  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  развивается таким образом, что можно утверждать о совместности антиферромагнетизма и сверхпроводимости в этом материале. Так,  $A$ -полоса поглощения, связанная с АФ флуктуациями, и  $(A + J)$ -полоса поглощения, отражающая возбуждение магнонов в металле, усиливаются в псевдощелевом состоянии и сохраняются в сверхпроводящей фазе. В целом анализ имеющихся данных свидетельствует в пользу спин-волновой природы высокотемпературной сверхпроводимости.

### Общий подход к анализу спектров и эксперимент

Прежде чем привести экспериментальные результаты и обсудить их, изложим наш подход к идентификации спектров поглощения.

В области энергий  $\hbar\omega = 1-3$  эВ спектр поглощения  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при поляризации света  $\mathbf{E} \parallel ab$  является многокомпонентным. В этот спектральный интервал попадают оптические переходы разной природы: внутризонные, межзонные и локальные  $dd$ -переходы в ионах  $\text{Cu}^{2+}$ . Для идентификации переходов рассмотрим структуру плотности состояний  $N(E)$ , которая является

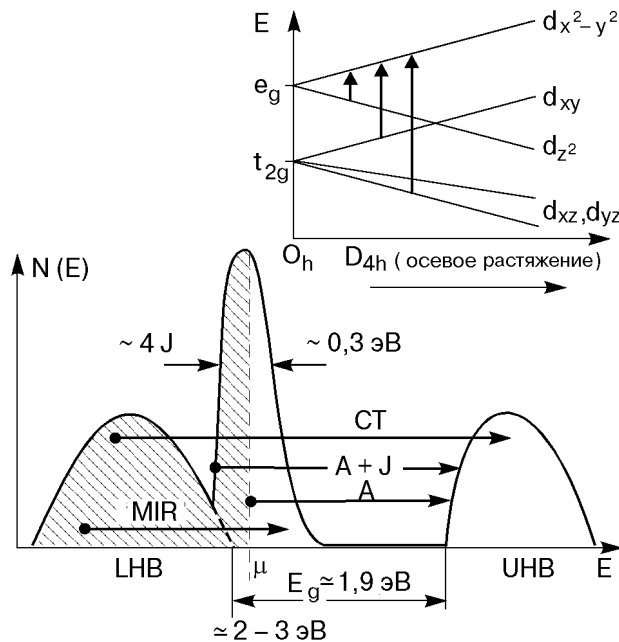


Рис. 1. Схематическое изображение расщепления  $d$ -уровней иона  $\text{Cu}^{2+}$  в кристаллическом поле тетрагональной симметрии  $D_{4h}$  и распределение плотности состояний  $N(E)$  в медно-оксидных ВТСП с дырочным типом допирования. Стрелками указаны оптические переходы, рассматриваемые при анализе измеренных спектров поглощения. Уровни энергии указаны без соблюдения масштаба.

общей для медно-оксидных ВТСП. Она показана на рис. 1 вместе со схемой расщепления уровней  $\text{Cu}^{2+}$  в тетрагональном поле кислородных  $p$ -лигандов. Стрелками отмечены возможные переходы в металлической фазе.

Картина распределения плотности состояний определяется в купратных ВТСП электронными (хаббардовскими) корреляциями и особенностями медь-кислородных взаимодействий. Нижняя  $pd$ -гибридизованная хаббардовская зона (ЛНВ) отделена от верхней хаббардовской зоны (УНВ), образованной преимущественно  $d$ -орбиталями меди, оптической щелью величиной  $E_g$ . Природа щели обусловлена переносом заряда от ионов кислорода к меди. Для диэлектрика  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  с уровнем допирования  $x \approx 0,3$  величина  $E_g \approx 1,7$  эВ [11]. На вершине нижней хаббардовской зоны в металлической фазе возникает квазичастичный пик плотности состояний, в котором расположен химический потенциал. Для модели взаимодействия дырочных носителей заряда с антиферромагнитными флуктуациями квазичастичный пик характеризует тяжелые носители, одетые в «шубу» АФ флуктуаций [3,12,13]. В 2D зоне Бриллюэна наиболее сильное взаимодействие носителей заряда с АФ флуктуациями реализуется вдоль  $\Gamma$ - $M$ -направления, но вдоль других направлений квазиимпульса это взаимодействие ослаблено. Характерная ширина квазичастичного (когерентного)  $A$ -пика составляет приблизительно  $(3-4)J$ , где  $J \approx 10^3$  К — энергия обменного взаимодействия в плоскости  $\text{CuO}_2$  для  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [2]. Полная ширина валентной нижней хаббардовской зоны  $\approx 2$  эВ.

Следующие четыре типа оптических переходов в металлической фазе естественным образом возникают в рамках представленной  $N(E)$ . В области выше порога поглощения  $\hbar\omega \geq E_g$  появляется континуальная компонента межзонных переходов с переносом заряда, в дальнейшем ПЗ-переходы (charge transfer (CT) transitions). Вблизи порога  $E_g$  возможны электронные переходы двух типов, связанные с квазичастичным  $A$ -пиком в плотности состояний (см. рис. 1). Во-первых, это переходы через оптическую щель без возбуждения магнитных степеней свободы (в дальнейшем  $A$ -переход) и, во-вторых, более высокочастотные с одновременным переносом заряда и возбуждением магнитной подсистемы (в дальнейшем  $(A + J)$ -переход). Все эти переходы должны проявляться в спектрах в виде сравнительно узкополосных спектральных контуров с ширинами масштаба энергии  $J$ . Наконец, возможны внутризонные переходы из глубины валентной зоны в откры-

вающуюся с допированием область дырочных состояний. Их спектральный вес в основном сосредоточен в средней инфракрасной области, СИК (MIR)-переходы. Красная граница СИК-переходов должна иметь значение, близкое к ширине  $A$ -пика, т. е.  $\approx 0,3-0,4$  эВ, но коротковолновое крыло может простираться по энергии на всю ширину валентной зоны и захватывать даже видимый диапазон. В экспериментах с металлизированными пленками  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x > 0,4$ ) асимметричный СИК-контур поглощения имеет максимум вблизи 0,6 эВ и медленно спадающее вплоть до 3 эВ коротковолновое крыло [8,10].

Что касается  $dd$ -переходов в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , то для поляризации  $\mathbf{E} \parallel ab$  наибольший вклад в поглощение дают переходы  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  и  $d_{yz,xz} \rightarrow d_{x^2-y^2}$ . При слабой  $pd$ -гибридизации (степени ковалентности)  $dd$ -переходы в силу симметричного правила запрета приводят к слабоинтенсивным полосам с коэффициентами поглощения в диэлектрической фазе  $\alpha \approx 10^4 \text{ см}^{-1}$  [10,14]. В этом случае  $dd$ -переходы хорошо проявляются в спектрах комбинационного рассеяния (КР). Например, в спектрах КР переход  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  отчетливо выражен в диэлектрической фазе  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \leq 0,4$ ) в виде полосы, центрированной вблизи 1,5 эВ [15]. С усилением  $pd$ -гибридизации в металле коэффициент поглощения для  $dd$ -переходов возрастает до значений, сравнимых с коэффициентами для ПЗ-переходов,  $\alpha \approx 10^5 \text{ см}^{-1}$  [10], но в спектрах КР эти переходы при металлизации сильно ослабляются [15].

Изложенные положения были ранее использованы при анализе эволюции спектрального состава поглощения тонких пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $\mathbf{E} \parallel ab$ ) при их допировании [10]. Было показано, что указанные шесть переходов (ПЗ,  $A$ ,  $A+J$ ,  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$ ,  $d_{yz,xz} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  и СИК) с точностью не хуже 5% описывают многокомпонентный спектр поглощения пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  как в диэлектрической ( $x \approx 0,35$ ), так и в металлической фазе в области  $x = 0,5-0,9$ .

Наиболее простым при 300 К является спектр поглощения  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  в диэлектрической фазе. Так, на границе перехода к металлу при  $x \approx 0,35$  в спектральной области 1,25–3 эВ доминируют только гауссовы контуры от  $A$ -перехода,  $(A+J)$ -перехода и континуальная ПЗ компонента. Полоса  $A$  центрирована при  $\approx 1,8$  эВ, а  $(A+J)$ -полоса при  $\approx 2,1$  эВ отстоит от нее на величину энергии двухмагнного возбуждения  $\hbar\omega_{2\text{mag}}$ . Для  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \leq 0,6$ ) двухмагнный максимум в спектрах КР имеет энергию  $\hbar\omega_{2\text{mag}} \approx 3J \approx 0,33$  эВ [16]. При температурном переходе

диэлектрической пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \approx 0,35$ ) в АФ фазу как  $A$ -полоса, так и  $(A+J)$ -полоса заметно сужаются [10]. Сужение полос обусловлено тем, что при уменьшении температуры ниже неелевской ( $T_N \approx 170$  К) появляется спиновая щель, величина которой в слабометаллизированной фазе  $\text{YBCO}$  составляет 3–5 мэВ [17]. Было также показано [10], что ослабление поглощения на крыльях  $A$ -контра возникает вследствие эффекта сужения, который, в свою очередь, диктуется уменьшением с понижением температуры в области  $T < T_N$  числа магнонов в соответствии с температурным фактором Бозе–Эйнштейна.

**Эксперимент.** В настоящей работе измерения абсолютных спектров поглощения и температурных изменений коэффициента поглощения были выполнены на двух металлизированных пленках  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , которые в дальнейшем обозначаются ВН604 и ВН608. Они относятся к серии монокристаллических ВН-пленок, выращенных в Физическом институте университета г. Эрланген (Германия) в отделе проф. Г. Займанна-Ищенко (G. Saemann-Ischenko). Пленки этой серии использовались ранее при исследовании спектров поглощения при 300 К в зависимости от допирования [10]. Пленки готовились на подложках  $\text{SrTiO}_3$  методом лазерного распыления мишеней. Они являются  $c$ -ориентированными с толщиной  $l = 2300$  Å. Параметр  $c$  пленки ВН604 равен 11,722 Å и начало перехода  $T_c^{\text{on}} = 51$  К, для пленки ВН608  $c = 11,705$  Å и  $T_c^{\text{on}} = 74$  К. Полные ширины СП переходов по результатам магнитных измерений составляют около 1,5 К. По калибровочным данным [18], для пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  этим значениям  $T_c^{\text{on}}$ -параметра соответствуют индексы допирования  $x \approx 0,45$  (ВН604) и  $x \approx 0,7$  (ВН608). Измерения проводились в неполяризованном свете для вектора световой волны  $\mathbf{E}$  в  $\text{CuO}_2$ -плоскости,  $\mathbf{E} \parallel ab$ .

Экспериментальная процедура измерений спектров поглощения (коэффициентов поглощения  $\alpha(\omega)$ ) достаточно подробно изложена в [10]. Отметим сейчас только главные моменты. Для 300 К мы представим абсолютные спектры поглощения в безразмерных единицах оптической плотности  $\alpha l$ . Эти данные получены путем сравнительных измерений спектров пропускания пленок и чистых подложек. Данные при охлаждении пленок представлены для каждой температуры в виде зависимости разностного спектра  $\Delta(\alpha l) = [\alpha(T) - \alpha(T_0)] l$  от энергии квантов, где  $T_0$  — верхняя граница температурного интервала измерений. Величина  $\Delta(\alpha l)$  определялась по соотношению  $\Delta(\alpha l) = \ln [t_{T_0}(\hbar\omega)/t_T(\hbar\omega)]$ , где  $t(\hbar\omega)$  — измерен-

ный спектр пропускания пленки при заданной температуре. Данное соотношение хорошо выполняется в пренебрежении температурными изменениями коэффициента отражения  $R(\omega)$ . В области энергий  $\hbar\omega \geq 1,25$  эВ при охлаждении металлической фазы  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  температурные изменения  $R$  в расчете на один градус малы,  $\delta R/\delta T \approx 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  [19] (абсолютный уровень отражения также небольшой,  $R \approx 10\%$ ). Рост пропускания оказывается при этом существенно больше (не менее чем на порядок),  $\delta t/\delta T \gg \delta R/\delta T$ . Поэтому использование в нашей рабочей области частот приведенного выше соотношения для определения  $\Delta(\alpha l)$  вполне оправданно. (Учет температурных изменений  $R$  для нахождения  $\alpha(T)$  необходим в области энергий  $\hbar\omega \approx 0,5$  эВ, где  $R \approx 60\%$  и  $\delta t/\delta T \approx \delta R/\delta T$  [20].)

### Экспериментальные результаты и их обсуждение

1. Рассмотрим данные для пленки ВН604 с  $T_c^{on} \approx 51$  К. На рис. 2,а представлен спектр поглощения  $(\alpha l)_{exp}$  этой пленки при 300 К в спектральной области 1,25–2,8 эВ. Здесь же сплошной линией показана модельная зависимость  $(\alpha l)_{fit}$ , являющаяся суммой пяти компонент, на которые был разложен измеренный спектр. Отдельно эти компоненты показаны на рис. 2,б. Они описываются гауссовыми контурами, центрированными при  $E_0$  с дисперсией  $\sigma$  и амплитудным коэффициентом  $\mu_0$ :

$$(\alpha l)_n = \frac{\mu_0}{\sigma\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(E - E_0)^2}{2\sigma^2}\right],$$

а также непрерывными частотными зависимостями  $\alpha l(E)$ . В соответствии с общим подходом к анализу спектров поглощения, о котором мы говорили выше, спектральный состав определяется следующими компонентами:

1) гауссов контур  $(\alpha l)_A$  для электронного перехода из корреляционного максимума плотности состояний —  $A$ -полоса;

2) гауссов контур  $(\alpha l)_{A+J}$  для перехода из корреляционного максимума с одновременным возбуждением магнитной подсистемы —  $(A+J)$ -полоса;

3) гауссов контур  $(\alpha l)_{2B}$  для перехода  $d_{xz,yz} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  в ионе  $Cu^{2+}$  —  $B_d^2$ -полоса;

4) непрерывная составляющая межзонных переходов  $(\alpha l)_{CT}$  с переносом заряда от кислорода к меди — ПЗ-компонента. Этой составляющей спектра лучше всего, как показывает анализ данных,

отвечает зависимость  $(\alpha l)_{CT} = \mu_0^{CT} (E - E_g)^2/E$ . Такая зависимость типична для прямых разрешенных переходов, когда в оптической щели имеются хвосты от плотностей состояний нижней и верхней зон [21], а также при сильном легировании, когда значительны эффекты рассеяния электронов [22]. В случае существования хвостов плотностей состояний эта зависимость для YBCO была верифицирована, например, в оптических экспериментах [23];

5) непрерывная составляющая от коротковолнового крыла СИК полосы поглощения,  $(\alpha l)_{MIR}$ . Мы полагаем уровень этого поглощения (рис. 2,б MIR) постоянным в области  $\hbar\omega > 1,2$  эВ. Выбор частотной зависимости этой компоненты в

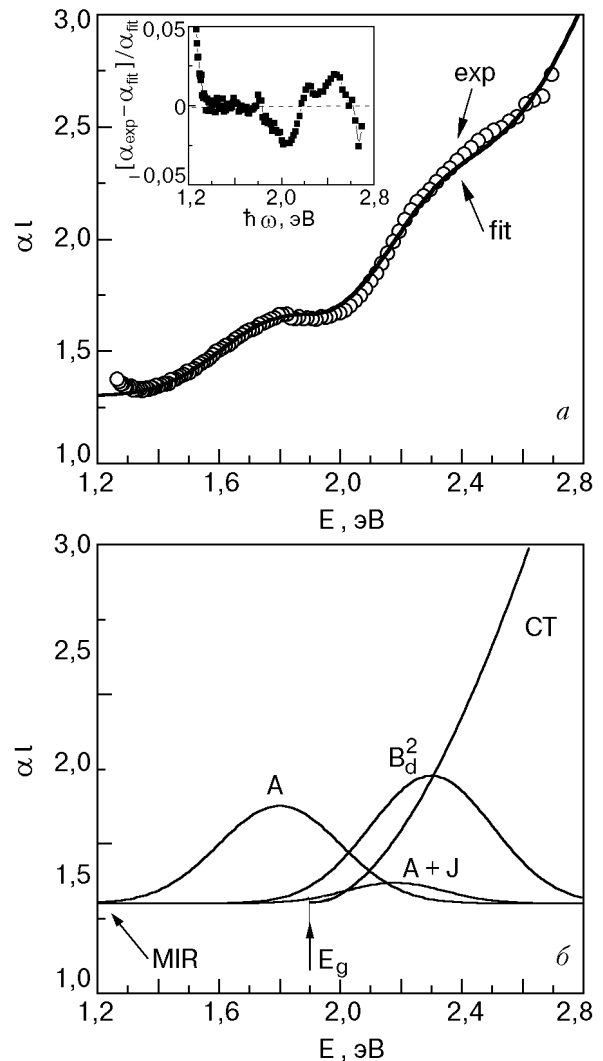


Рис. 2. Спектр поглощения  $\alpha l(E)$ , измеренный при 300 К для пленки ВН604 с  $T_c^{on} = 51$  К ( $\circ$ ), его сравнение с модельным спектром (—) (а). Вставка — относительное отличие этих спектров  $(\alpha_{exp} - \alpha_{fit})/\alpha_{fit}$ . Разложение модельного спектра на составляющие (б). За нулевой уровень для компонент  $A$ ,  $B_d^1$ ,  $B_d^2$  и ПЗ принят постоянный СИК-уровень поглощения  $(\alpha l)_{MIR} = 2,3$ .

виде, например,  $(\alpha l)_{MIR} \propto 1/\omega$  слабо влияет на параметры остальных компонент.

Таким образом, суммарный многокомпонентный контур поглощения записывается в виде

$$(\alpha l)_{fit} = \sum_{n=1}^3 \frac{\mu_{0n}}{\sigma_n \sqrt{\pi}} \exp \left[ -\frac{(E - E_{0n})^2}{2\sigma_n^2} \right] + \frac{\mu_0^{CT} (E - E_g)^2}{E} + (\alpha l)_{MIR}.$$

Приведем теперь количественные характеристики этого разложения, которые позволяют представить экспериментальный спектр  $(\alpha l)_{exp}$  суммой  $(\alpha l)_{fit} = (\alpha l)_A + (\alpha l)_{A+J} + (\alpha l)_{2B} + (\alpha l)_{CT} + (\alpha l)_{MIR}$  с точностью не хуже 4% по всему энергетическому диапазону. Относительное отличие  $(\alpha l)_{exp}$  от модельного  $(\alpha l)_{fit}$  показано на вставке на рис. 2, б. Итак, модельные параметры следующие:

гауссова А-полоса:  $E_0^A = 1,8$  эВ,  $\sigma_A = 0,19$  эВ,  $\mu_0^A = 0,11$  эВ;

гауссова (А+J)-полоса:  $E_0^{A+J} = 2,18$  эВ,  $\sigma_{A+J} = 0,19$  эВ,  $\mu_0^{A+J} = 0,02$  эВ;

гауссова  $B_d^2$ -полоса:  $E_0^{2B} = 2,3$  эВ,  $\sigma_{2B} = 0,2$  эВ,  $\mu_0^{2B} = 0,15$  эВ;

континуальная ПЗ-компонента:  $E_g = 1,9$  эВ,  $\mu_0^{CT} = 6$  эВ<sup>-1</sup>;

уровень поглощения СИК-полосы:  $(\alpha l)_{MIR} = 1,3$ .

Если сравнить это модельное разложение для металлизированной пленки с разложением спектра поглощения при 300 К для диэлектрической пленки  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  ( $x \approx 0,35$ ) [10], то можно сделать следующие выводы. При металлизации А- и (А+J)-полосы поглощения ведут себя одинаковым образом, демонстрируя расширение своих гауссовых контуров и уменьшение их амплитудных коэффициентов. Наиболее сильно в металле ослабляется (А+J)-полоса, площадь которой для пленки ВН604 уменьшается более чем в 20 раз (во столько же раз уменьшается коэффициент  $\mu_0^{A+J}$ ). Существенное снижение вклада этой полосы свидетельствует о сильном затухании в металле магнонов, появляющихся при возбуждении (А+J)-перехода одновременно с рождением тяжелого дырочного носителя заряда. Как будет видно несколько ниже, для еще более металлизированной пленки ВН608 (А+J)-полоса поглощения при 300 К уже полностью отсутствует, хотя А-полоса, пусть даже ослабленная, тем не менее сохраняется. Рассмотренные изменения А- и (А+J)-полос поглощения происходят при 300 К после перехода в металлическую фазу, где сохраняются АФ корреляции ближнего порядка. Для купратных ВТСП корреляционная длина АФ флуктуаций в

металлической фазе  $\xi \approx 10$  Å [2], что примерно на порядок меньше, чем в диэлектрической фазе.

В отношении локальных  $dd$ -переходов необходимо отметить следующее. В спектрах диэлектрической фазы при  $x \approx 0,35$  и 300 К вклад от  $dd$ -переходов не превышает нескольких процентов [10]. В тоже время в пленке ВН604 в спектральной области 1,2–2,8 эВ из двух возможных переходов  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  и  $d_{xz,yz} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  в поглощении хорошо проявляется только второй из них в виде полосы  $B_d^2$ . Появление в слабометаллизированной пленке ВН604 максимума  $B_d^2$  можно связать с тем, что смешивание кислородных и медных орбиталей происходит, главным образом, для состояний  $d_{xz,yz}$ , т. е. ковалентные связи усиливаются в поперечном относительно плоскости  $CuO_2$  направлении. Отметим, что при переходе диэлектрик–металл в  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  в орто-II фазе расстояние между плоскостью  $CuO_2$  и апексным кислородом O(4) резко уменьшается (примерно на 0,1 Å), обеспечивая перетекание электронов в цепочечную плоскость  $CuO_x$  и, как следствие, дырочную металлизацию  $CuO_2$ . Появление  $B_d^1$ -полосы при 1,5 эВ от перехода  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$ , т. е. усиление ковалентности уже непосредственно в активной плоскости  $CuO_2$ , будет отчетливо видно при 300 К для пленки ВН608 с большей металлизацией.

Рассмотрим теперь поведение спектров поглощения при охлаждении пленки ВН604 с  $T_c^{on} = 51$  К. На рис. 3 показаны разностные спектры  $\Delta(\alpha l) = \alpha l(T) - \alpha l(T_0)$ , измеренные в области 1,2–2,6 эВ относительно  $T_0 = 184$  К. Как видно на рис. 3, для интервала 168–184 К наблюдается только континуальное ослабление поглощения ( $\Delta(\alpha l) < 0$ ). Частотное поведение этой фоновой составляющей для наглядности качественно выделено пунктирной линией. Такое широкополосное изменение спектра поглощения обязано прежде всего температурному ослаблению при  $T \geq 168$  К интенсивности коротковолнового крыла СИК-компоненты в видимом диапазоне частот. При охлаждении пленок  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  коэффициент поглощения для частот  $\hbar\omega < 1$  эВ в области самого максимума СИК-полосы поглощения возрастает [8,10,20]. Поэтому вблизи  $\hbar\omega \approx 1$  эВ, где  $\Delta(\alpha l)_{exp} \approx 0$ , изменяется знак температурного хода континуального поглощения для СИК-компоненты. Мы не будем останавливаться на этом эффекте температурного перераспределения интенсивностей внутри самого СИК-контур поглощения [24], сосредоточив внимание на температурном поведении узкополосных особенностей, связанных с А- и (А+J)-полосами. Для области

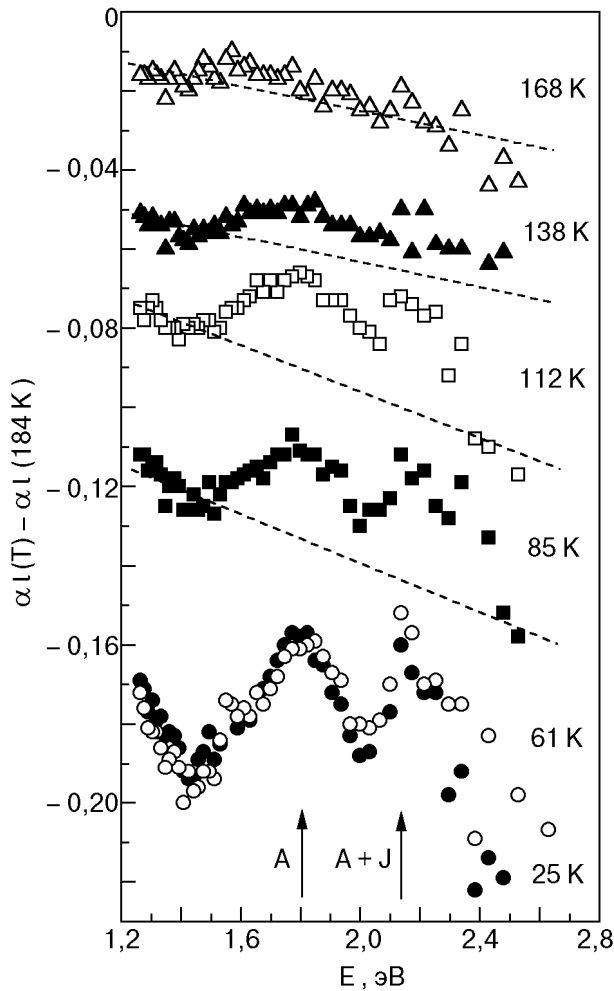


Рис. 3. Разностные спектры поглощения  $[\alpha l(T) - \alpha l(T_0)]$ , измеренные относительно начальной температуры  $T_0 = 184$  К в пленке ВН604 с  $T_c^{\text{он}} = 51$  К при температурах пленки  $T, \text{K}$ : 168 ( $\Delta$ ), 138 ( $\blacktriangle$ ), 112 ( $\square$ ), 85 ( $\blacksquare$ ), 61 ( $\circ$ ), 25 ( $\bullet$ ). Для удобства восприятия данные при 112 К смещены вниз по оси ординат на  $-0,01$ ; при 85 К – на  $-0,03$ ; при 61 К и 25 К – на одинаковую величину  $-0,06$ .

температур  $T \geq 168$  К можно утверждать, что  $A$ - и  $(A+J)$ -контуры поглощения являются температурно независимыми. Однако при 138 К на континуальном фоне уже заметны спектральные особенности, связанные с температурной трансформацией  $A$ - и  $(A+J)$ -полос. При дальнейшем понижении температуры от 138 до 59 К эти спектральные особенности становятся все более отчетливыми, приобретая вид отдельных полос, центрированных в максимуме  $A$ -полосы (1,8 эВ) и  $(A+J)$ -полосы (2,15 эВ). На сверхпроводящем переходе с  $T_c^{\text{он}} = 51$  К и в самой сверхпроводящей фазе при 25 К как континуальные, так и узкополосные спектральные изменения практически прекращаются. В этой связи укажем, что, согласно данным уже упоминавшейся работы [9], ин-

тенсивность сигнала поглощения на частоте 2 эВ перестает зависеть от температуры в СП фазе.

Несложно заключить, что появление на разностных спектрах поглощения узкополосных особенностей происходит из-за сужения  $A$ - и  $(A+J)$ -полос и увеличения их амплитуд. Для иллюстрации сказанного на рис. 4 представлены экспериментальные данные  $\Delta(\alpha l)_{\text{exp}} = \alpha l(25 \text{ K}) - \alpha l(184 \text{ K})$  и модельная зависимость  $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}}$  (сплошная линия), позволяющая получить количественные характеристики спектральных компонент при низких температурах. С учетом температурных изменений СИК-компоненты и  $A$ - и  $(A+J)$ -полос модельная зависимость имеет вид  $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}} = \Delta(\alpha l)_{\text{fit}}(25 \text{ K}) - \Delta(\alpha l)_{\text{fit}}(184 \text{ K}) = \Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^A + \Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^{A+J} + \Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^{\text{MIR}}$ . Поскольку при  $T > 184$  К температурные изменения незначительны, параметры модельного разложения спектра при 184 К были приняты такими же, как и при 300 К:  $(\alpha l)_{\text{fit}}(184 \text{ K}) = (\alpha l)_{\text{fit}}(300 \text{ K})$  (см. выше). Модельная кривая на рис. 4, хорошо описывающая эксперимент, получена для следующих параметров спектра при низких температурах:

для СИК-компоненты  $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^{\text{MIR}} = -0,148 + 0,13/E^4$ , т. е. в области  $E \leq 1$  эВ интенсивность СИК-компоненты с понижением температуры возрастает ( $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^{\text{MIR}} > 0$ ), о чем мы уже говорили выше, но в нашей рабочей области частот эта компонента температурно ослабляется ( $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}}^{\text{MIR}} < 0$ ),

для  $A$ - и  $(A+J)$ -полос поглощения параметры гауссовых контуров  $(\alpha l)_{A, A+J}$  при охлаждении до 25 К изменяются: дисперсия  $A$ -контура уменьшается от  $\sigma_A = 0,19$  эВ (300 К) до 0,165 эВ (25 К), т. е. на 10%; амплитудный коэффициент сохраняется ( $\mu_0^A = 0,11$  эВ (300 К),  $\mu_0^A = 0,11$  эВ (25 К)); дисперсия  $(A+J)$ -контура уменьшается от  $\sigma_{A+J} = 0,19$  эВ (300 К) до 0,13 эВ (25 К), т. е. на 30%; столь же существенно (на 35%) возрос амплитудный коэффициент  $\mu_0^{A+J}$  (от 0,02 эВ (300 К) до 0,027 эВ (25 К)).

Таким образом, температурные изменения  $A$ - и  $(A+J)$ -полос происходят между 184 и 168 К. Полосы сужаются, и их площадь увеличивается, главным образом для  $(A+J)$ -полосы. При сверхпроводящем переходе спектральный состав и параметры полос поглощения прекращают изменяться, и для сверхпроводящей фазы можно говорить о том, что спектр поглощения «замораживается».

Несложно сопоставить начало этих температурных изменений в области 138–168 К с температурой  $T^*$  образования псевдощелевого состояния. Так, температурная зависимость времени спин-решеточной релаксации ядер меди  $1/T_1 T \propto$

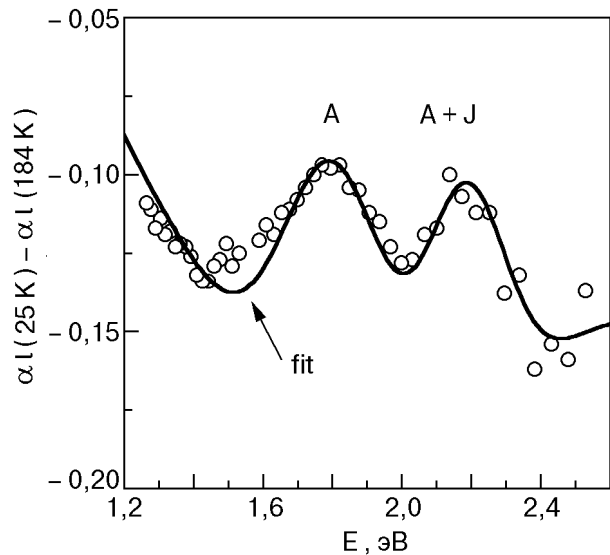


Рис. 4. Разностный спектр поглощения  $[\alpha l(25\text{ K}) - \alpha l(184\text{ K})]$  пленки ВН604, измеренный для сверхпроводящего состояния при 25 К относительно начальной температуры  $T_0 = 184\text{ K}$  (○). Сплошная линия – модельный разностный спектр, учитывающий температурные изменения СИК-, А-, (А+J)-компонент (см. текст).

$\propto \text{Im} \chi(\mathbf{q}, \omega)/\omega|_{\omega \rightarrow 0}$  ( $\text{Im} \chi(\mathbf{q}, \omega)$  – мнимая часть магнитной восприимчивости для волнового вектора  $\mathbf{q}$ ) характеризуется псевдощелевым поведением ниже  $T^* = 150\text{ K}$  в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  с  $T_c \approx 60\text{ K}$  [2]. При температурах ниже  $T^*$  значения  $1/T_1 T$  достаточно резко уменьшаются с понижением температуры, демонстрируя снижение спектрального веса низкочастотных магнитных возбуждений. Данные по нейтронному рассеянию в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  с  $T_c = 59\text{ K}$  также свидетельствуют о сильном уменьшении  $\text{Im} \chi(\mathbf{q}, \omega)$  ниже  $T^* = 150\text{ K}$  в низкочастотном интервале  $\hbar\omega < < 16\text{ мэВ}$  [25]. Прежде чем обсуждать микроскопическую природу поведения А- и (А+J)-полос при образовании псевдощелевого и сверхпроводящего состояний, рассмотрим температурную эволюцию спектров для более металлизированной пленки ВН608.

2. На рис. 5,а изображен спектр поглощения  $(\alpha l)_{\text{exp}}$  пленки ВН608 ( $T_c^{\text{он}} = 74\text{ K}$ ), измеренный при 300 К, сплошная кривая – суммарный модельный спектр  $(\alpha l)_{\text{fit}}$ , а рис. 5,б – модельное разложение этого спектра на составляющие.

Это разложение позволяет описать экспериментальную кривую  $(\alpha l)_{\text{exp}}$  с точностью не хуже 4% по всему спектральному интервалу 1,2–2,7 эВ (рис. 5,а, вставка). Спектр содержит пять компонент.

1. Гауссова компонента поглощения  $B_d^1$  для перехода  $d_{xy} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  с параметрами  $E_0^{1B} = 1,5\text{ эВ}$ ,  $\sigma_{1B} = 0,36\text{ эВ}$ ,  $\mu_0^{1B} = 0,09\text{ эВ}$ .

2. Гауссова компонента поглощения А для переходов из корреляционного максимума плотности состояний с параметрами  $E_0^A = 1,8\text{ эВ}$ ,  $\sigma_A = 0,2\text{ эВ}$ ,  $\mu_0^A = 0,045\text{ эВ}$ .

3. Гауссова компонента поглощения  $B_d^2$  для перехода  $d_{xz,yz} \rightarrow d_{x^2-y^2}$  с параметрами  $E_0^{2B} = 2,3\text{ эВ}$ ,  $\sigma_{2B} = 0,2\text{ эВ}$ ,  $\mu_0^{2B} = 0,15\text{ эВ}$ . Эта полоса поглощения сохранилась такой же, как для пленки ВН604.

4. Компонента межзонных переходов с переносом заряда – ПЗ-составляющая спектра. Ее частотная зависимость не изменилась (см. выше), но величина оптической щели несколько увеличи-

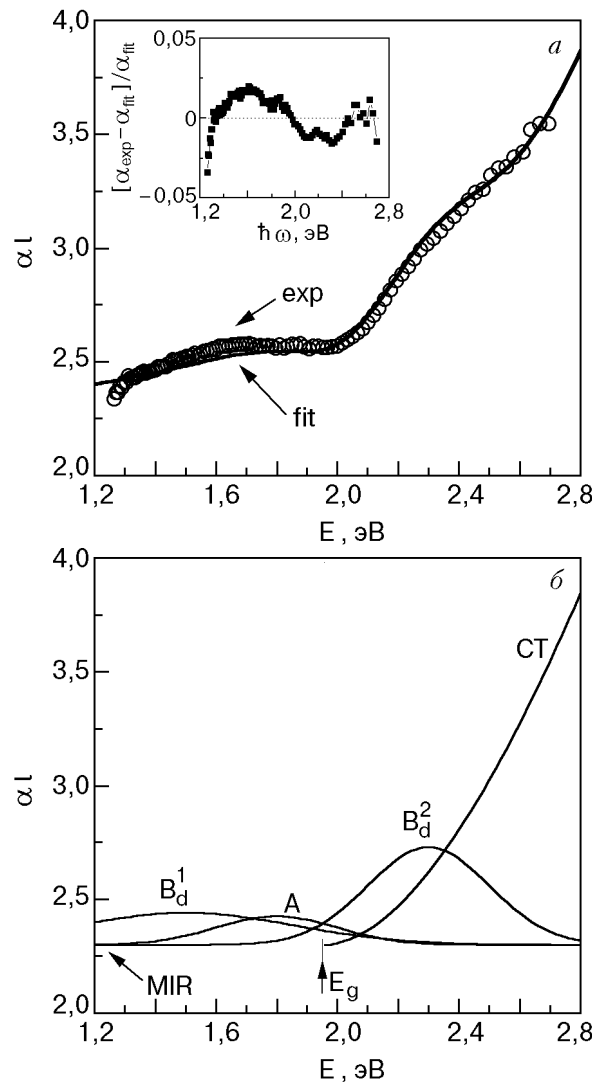


Рис. 5. Спектр поглощения  $\alpha l(E)$  пленки ВН608 с  $T_c^{\text{он}} = 74\text{ K}$  (○), измеренный при 300 К, и его сравнение с модельным спектром (—)(а). Вставка – относительное отличие этих спектров  $(\alpha_{\text{exp}} - \alpha_{\text{fit}})/\alpha_{\text{fit}}$ . Разложение модельного спектра на составляющие (б). За нулевой уровень для компонент  $B_d^1$ , А,  $B_d^2$  и ПЗ принят постоянный СИК-уровень поглощения  $(\alpha l)_{\text{MIR}} = 2,3$ .



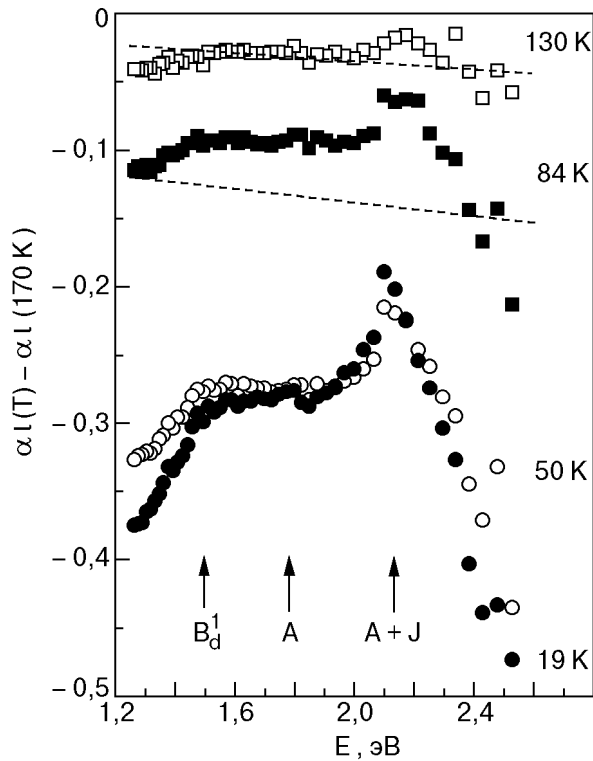


Рис. 6. Разностные спектры поглощения  $[\alpha l(T) - \alpha l(T_0)]$ , измеренные для пленки VN608 с  $T_c^{\text{ан}} = 74$  К относительно начальной температуры  $T_0 = 170$  К. Температуры пленки:  $T = 130$  К ( $\square$ ), 84 К ( $\blacksquare$ ), 50 К ( $\circ$ ), 19 К ( $\bullet$ ). Для удобства восприятия данные для  $T = 84$  К сдвинуты вниз по оси ординат на величину  $(-0.03)$ ; а для  $T = 50$  К и  $T = 19$  К – на одинаковую величину  $(-0.20)$ .

лась до  $E_g = 1,95$  эВ из-за сдвига уровня Ферми при металлизации;  $\mu_0^{CT} = 6$  эВ $^{-1}$ .

5. Уровень СИК-поглощения:  $(\alpha l)_{MIR} = 2,3$ . Вклад коротковолнового крыла возрос из-за увеличения с уровнем допированием всей СИК-полосы поглощения.

При выборе разложения мы стремились минимизировать число варьируемых параметров спектрального разложения по сравнению с параметрами пленки VN604. Как несложно заметить, в разложении спектра VN608 появилась  $B_d^1$ -полоса, отражающая усиление ковалентности в плоскости  $\text{CuO}_2$ ; уменьшилась площадь  $A$ -полосы, что свидетельствует об уменьшении числа тяжелых дырочных носителей; полностью исчезла «магنونная» полоса поглощения  $A+J$ .

Разностные спектры поглощения этой пленки  $\Delta(\alpha l) = \alpha l(T) - \alpha l(T_0)$  относительно температуры  $T_0 = 170$  К представлены на рис. 6. Как видно, для области температур 130–170 К наблюдается только континуальное ослабление поглощения с понижением температуры, связанное с уменьшением интенсивности коротковолнового крыла СИК-компоненты (картина полностью аналогич-

на температурным изменениям при охлаждении пленки VN604 в интервале 168–184 К). Появление узкополосных спектральных особенностей происходит в интервале температур 84–130 К, т.е. при меньших температурах, чем в пленке VN604. В этой связи сразу укажем, что с увеличением допирования  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  температура образования псевдощелевого состояния  $T^*$  уменьшается, приближаясь к  $T_c$  [1].

Даже в качественном приближении на разностных спектрах можно выделить три узкополосные особенности, соответствующие  $B_d^1$ -,  $A$ - и  $(A+J)$ -полосам поглощения. Особый интерес, конечно, представляет факт появления при охлаждении ниже  $T^*$  полосы поглощения  $(A+J)$ , которая отсутствовала при комнатных температурах. В сверхпроводящей фазе при 50 и 19 К (см. рис. 6) температурные изменения спектров, также как в пленке VN604, практически отсутствуют. Впрочем, сравнивая данные при 50 и 19 К, можно все же заключить, что в СП фазе происходит некоторое спектральное перераспределение в пользу усиления  $(A+J)$ -максимума, а также сужение  $B_d^1$ -компоненты.

Для количественного описания разностного спектра VN608 на рис. 7,а сравниваются экспериментальные данные при 19 К и модельная зависимость  $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}}$  (сплошная линия). Модельная кривая получена с учетом изменения следующих компонент:  $\Delta(\alpha l)_{\text{fit}} = (\alpha l)_{\text{fit}}(19 \text{ К}) - (\alpha l)_{\text{fit}}(170 \text{ К}) = \Delta(\alpha l)_{1B}^{\text{fit}} + \Delta(\alpha l)_A^{\text{fit}} + \Delta(\alpha l)_{A+J}^{\text{fit}} + \Delta(\alpha l)_{MIR}^{\text{fit}}$ . Параметры модельного разложения при 170 К принимались равными параметрам при 300 К, поскольку в интервале 170–300 К температурные изменения спектра поглощения незначительны. Обратим внимание на то, что в этом модельном разложении можно полагать  $(\alpha l)_{A+J}^{\text{fit}}(170 \text{ К}) = 0$ , так как на абсолютных спектрах  $(A+J)$ -полоса отсутствует. Четыре компоненты модельного разностного спектра  $\Delta(\alpha l)_i^{\text{fit}}$  ( $i \equiv 1B, A, A+J, MIR$ ) показаны на рис. 7,б. Следует заметить, что  $B_d^1$ -,  $A$ - и  $(A+J)$ -компоненты построены таким образом, чтобы для них нулевым уровнем являлась СИК-компонента (рис. 7, MIR).

Следующие количественные изменения достаточно точно характеризуют экспериментальный разностный спектр при 19 К.

Для СИК-компоненты:  $\Delta(\alpha l)_{MIR}^{\text{fit}} = -0,28 + 0,17/E^4$  (рис. 7,б, MIR) и, следовательно, изменение направления температурного хода для компоненты происходит вблизи 0,9 эВ.

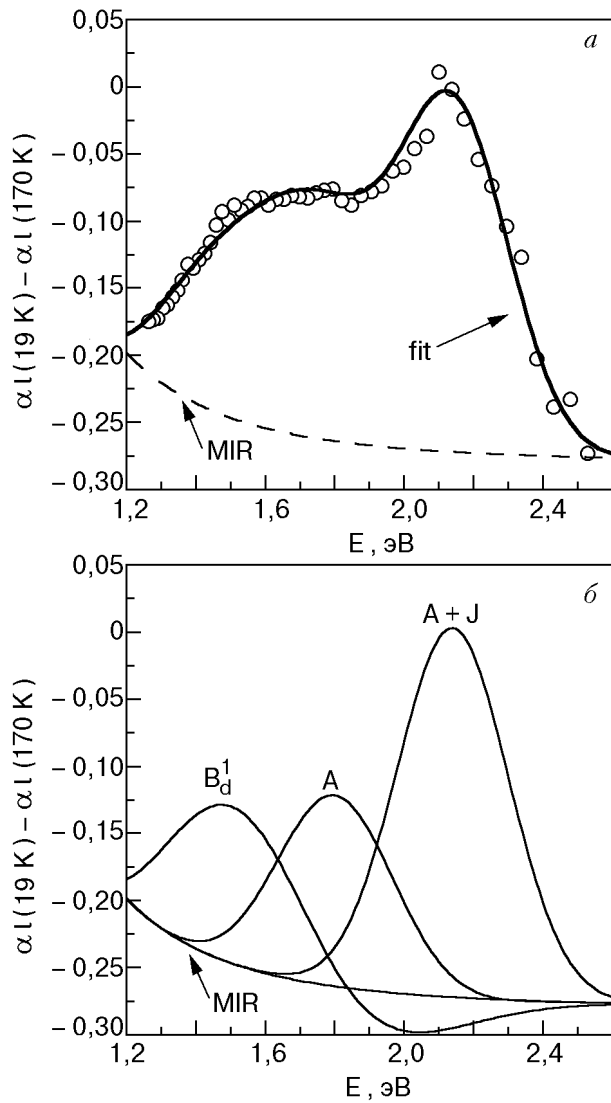


Рис. 7. Разностный спектр поглощения  $[\alpha_l(19\text{ K}) - \alpha_l(170\text{ K})]$ , измеренный в сверхпроводящем состоянии пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}$  при  $T = 19\text{ K}$  относительно начальной температуры  $T_0 = 170\text{ K}$  ( $\circ$ ). Сплошная линия (fit) показывает модельный разностный спектр (a). Спектральные составляющие модельного разностного спектра (б). Нулевым уровнем для спектральных компонент служит частотная зависимость  $\Delta(\alpha)_{\text{MIR}} = [(\alpha)_{\text{MIR}}(19\text{ K}) - (\alpha)_{\text{MIR}}(170\text{ K})]$ , обозначенная на рисунке MIR (см. текст).

Для ковалентной полосы  $B_d^1$  при 1,5 эВ дисперсия контура уменьшилась от  $\sigma_{1B} = 0,36\text{ эВ}$  (300 К) до 0,23 эВ (19 К), т.е. на 35%, но амплитудный коэффициент почти не изменился ( $\mu_0^{1B} = 0,09\text{ эВ}$  (300 К) и 0,107 эВ (19 К)). Сохранение величины  $\mu_0^{1B}$  свидетельствует о том, что степень  $pd$ -смешивания, достигнутая при 300 К уровнем допирования, при охлаждении практически не меняется.

Для  $A$ -контура, центрированного при 1,8 эВ, дисперсия уменьшилась от  $\sigma_A = 0,2\text{ эВ}$  (300 К) до 0,18 эВ (19 К), т.е. на 10%, а амплитудный коэф-

фициент возрос почти в два раза от  $\mu_0^A = 0,045\text{ эВ}$  (300 К) до 0,086 эВ (19 К). По сравнению с пленкой  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}$  амплитудный коэффициент (площадь полосы) значительно возрос при сохранении того же масштаба уменьшения величины дисперсии.

Для контура ( $A+J$ ), поскольку он отсутствовал при 300 К, разностный спектр  $\Delta(\alpha)_{A+J}^{\text{fit}}$  при 19 К представляет собой чистый гауссиан с параметрами  $\sigma_{A+J} = 0,16\text{ эВ}$  и  $\mu_0^{A+J} = 0,07\text{ эВ}$ . Дисперсия этого контура при 19 К имеет практически то же значение, что и в диэлектрической фазе при  $x \approx 0,35$ , где  $\sigma_{A+J} = 0,17\text{ эВ}$  [10]. При этом амплитудный коэффициент ( $A+J$ )-контура в пленке  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}$  превышает более чем в три раза его значение при низких температурах в пленке  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.4}$  с меньшей  $T_c$ .

3. Сравнивая температурные изменения спектров для двух сверхпроводящих пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.4}$  и  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}$ , можно выделить несколько общих принципиальных моментов:

температурные изменения параметров ковалентной полосы  $B_d^1$ , корреляционной полосы  $A$  и «магнитной» полосы ( $A+J$ ) при охлаждении  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  от комнатных температур начинаются ниже  $T^*$  в области существования псевдощелевого состояния и происходят в интервале температур  $T_c \leq T \leq T^*$ ;

наибольшую чувствительность к образованию псевдощелевого состояния проявляет «магнитная» полоса ( $A+J$ ), которая появляется или усиливается в спектрах этого состояния. Все полосы поглощения при охлаждении пленок в область псевдощелевого состояния сужаются;

в сверхпроводящей фазе скорость температурной эволюции всех спектральных параметров этих полос резко уменьшается. Особо отметим, что в области существования сверхпроводящей фазы «магнитная» полоса поглощения ( $A+J$ ) сохраняется.

Анализируя микроскопические причины температурной эволюции спектрального состава поглощения  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , необходимо прежде всего остановиться на поведении полос поглощения  $A$  и ( $A+J$ ), связанных с магнитными степенями свободы. Примечательно, что при  $T < T^*$  происходит температурное сужение  $A$ - и ( $A+J$ )-контуров поглощения (после усиления этих полос при  $T = T^*$ ). Такая картина полностью аналогична поведению этих полос поглощения в диэлектрической фазе  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при  $x \approx 0,35$ , где они, будучи температурно независимыми выше  $T_N$ , начинают сужаться в АФ фазе при  $T < T_N \approx 170\text{ K}$  [10]. Эффект сужения в псевдощелевом

состоянии пленок наблюдается и в ковалентной полосе  $B_d^1$ : амплитудный коэффициент поглощения для этого  $dd$ -перехода с понижением температуры практически не меняется ( $\mu_0^{1B} \approx \text{const}$ ), что свидетельствует о сохранении уровня  $pd$ -смешивания при низких температурах, но сам  $B_d^1$ -контур сильно сужается. Как известно, в АФ кристаллах  $dd$ -полосы поглощения для ионов с незаполненной  $d$ -орбиталью, например для  $\text{Mn}^{2+}$  в трехмерных, двумерных и квазиодномерных магнитных структурах, с понижением температуры демонстрируют заметное сужение при  $T \leq T_N$  [26,27]. Температурное сужение  $dd$ -полос поглощения при  $T < T_N$  диктуется уменьшением числа магнонов в соответствии с фактором Бозе–Эйнштейна. В области температур  $T < \Delta_N/k_B$  ширина  $dd$ -полос поглощения уже слабо зависит от температуры. Чувствительность  $dd$ -полос к образованию АФ состояния особенно хорошо выражена при наличии энергетической щели  $\Delta_N$  в спин-волновом спектре [27].

Развивая аналогию поведения этих полос поглощения в диэлектрической АФ фазе и в металлизированной фазе  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , мы должны признать, что образование квазищели при  $T \leq T^*$  происходит именно в спектре магнитных возбуждений. В таком случае природа псевдощелевого состояния связана с решающей ролью АФ флуктуаций ближнего порядка. Величина спиновой щели для корреляционной длины АФ флуктуаций  $\xi$  равна  $\Delta^* = c/\xi$  [13,28], где  $c \approx 0,5$  эВ·Å — характерная скорость спиновых волн в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [25]. Тогда для  $\xi \approx 10$  Å щель  $\Delta^* \approx 50$  мэВ. Для волновых векторов  $q > \xi^{-1}$  спиновые волны остаются такими же, как и при наличии дальнего магнитного порядка, и не чувствительны к отсутствию АФ корреляций на расстояниях больше  $\xi$  [28,29]. При  $q < \xi^{-1}$  спиновые волны являются сильно затухающими [28,29]. Согласно [28,29], спиновые волны в металлизированном состоянии ВТСП переносят спин  $S = 1$  и являются беззарядовыми.

Внимания заслуживает эффект сохранения в сверхпроводящем состоянии  $(A+J)$ -полосы, а также всего спектрального состава поглощения, сформированного в псевдощелевом состоянии. Этот экспериментальный результат является нетривиальным. Вполне могла бы реализоваться ситуация, когда в СП фазе  $(A+J)$ -полоса исчезала, а параметры  $B_d^1$ - и  $A$ -контуров изменялись в противоположную сторону по сравнению со своими значениями для АФ псевдощелевого состояния. Сохранение спектрального состава поглощения в СП фазе достаточно убедительно, с нашей точки

зрения, свидетельствует о совместимости в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ближнего антиферромагнитного упорядочения и сверхпроводимости.

В связи с обсуждением этого вопроса обратим внимание на следующий результат. Мы видели, что увеличению  $T_c$  в пленке ВН 608 сопутствует усиление степени  $pd$ -смешивания, т. е. усиление с допированием интенсивности ковалентной  $B_d^1$ -полосы поглощения. Одновременное наблюдение в спектрах поглощения  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  полосы  $B_d^1$  и корреляционной  $A$ -полосы рассматривалось в [10] как доказательство существования в металлической фазе корреляционного полярона. Корреляционный полярон представляет собой подвижный дырочный носитель заряда, вокруг которого образуется область преимущественно ковалентных связей с ослабленными хаббардовскими корреляциями (область сильной металлизации), а вне этой области сохраняется матрица сильных хаббардовских корреляций [30]. Одновременное наблюдение в наших экспериментах  $A$ - и  $B_d^1$ -максимумов поглощения при низких температурах может служить свидетельством того, что области АФ упорядочения сосуществуют с более металлизированными областями, которые, собственно говоря, и становятся сверхпроводящими. Другими словами, в плоскости  $\text{CuO}_2$  эффект совместимости антиферромагнетизма и сверхпроводимости реализуется между пространственно разделенными областями (доменами), отличающимися концентрацией допированных дырок. Возможность пространственно разделенной картины сосуществования АФ упорядочения и сверхпроводимости в ВТСП экспериментально исследовалась в ряде работ (см., например, [1, 3, 16]).

Интересно также непосредственно сравнить температурное поведение  $A$ - и  $(A+J)$ -полос поглощения и температурный ход однородной части магнитной восприимчивости  $\chi_0(T)$ . Согласно спин-волновой модели [28,29], в купратных ВТСП восприимчивость  $\chi_0(T)$ , будучи слабо зависящей от температуры при  $T > T^*$ , начинает резко уменьшаться с открытием спиновой щели при  $T < T^*$ , а в СП фазе при  $T < T_c$  опять становится не зависящей от температуры. Несложно заметить, что такой ход  $\chi_0(T)$  совпадает с температурным поведением  $A$ - и  $(A+J)$ -полос поглощения. Поэтому с учетом уже сказанного выше можно полагать, что полученные в настоящей работе результаты не противоречат спин-волновому механизму высокотемпературной сверхпроводимости.

## Заключение

Основным результатом работы является экспериментальное доказательство того, что псевдощелевое состояние обязано АФ упорядочению ближнего порядка с сохранением его в СП фазе. Многие нестандартные свойства медно-оксидных ВТСП в нормальной и СП фазах являются, по-видимому, проявлением фундаментальной особенности низкоразмерных систем, в которых хорошо развиты скалярные (зарядовые) и векторные (магнитные) корреляции [2]. В конечном счете эти корреляции определяют в купратных ВТСП оптические свойства, которые не встречаются в классических металлах и легированных полупроводниках. Упомянем, например, чувствительность поглощения высокоэнергетичных квантов света к СП переходу, о чем шла речь в настоящей работе; значительное перераспределение сил осцилляторов межзонных переходов в пользу внутризонных под действием очень малых уровней допирования  $\approx 1\%$  [2]; различного рода неравновесные оптические явления в нормальном и СП состояниях [24]. Полученные нами оптические результаты можно рассматривать как проявление температурно-зависящего вклада хаббардовских корреляций в электронный спектр.

Вполне логично также полагать, что результаты экспериментов с  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  имеют весьма общий характер и справедливы для других купратных ВТСП с активной плоскостью  $\text{CuO}_2$ . Принципиальные особенности электронного строения купратных ВТСП (распределение плотности состояний с корреляционным  $A$ -максимумом, сохранение в металлической фазе АФ флуктуаций ближнего порядка, образование псевдощелевого состояния) можно получить в рамках общей однозонной  $2D$  модели Хаббарда (или ее модификаций) для  $\text{CuO}_2$ -плоскости.

Первый и важный итог работы состоит, по нашему мнению, в том, что измерение температурной эволюции спектрального состава поглощения в области 1–3 эВ, где расположены оптические особенности  $\text{CuO}_2$ -плоскости, является информативным способом диагностики нормального и СП состояний. Исследования, выполненные в этой области, показали следующее:

при охлаждении от комнатных температур металлизированных пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  происходят не только количественные, но и качественные изменения спектрального состава поглощения пленок. Этим изменениям подвергаются  $dd$ -полоса поглощения ( $d_{x,y} \rightarrow d_{x^2-y^2}$ ,  $\hbar\omega \approx 1,5$  эВ); корреляционная полоса поглощения с переносом заряда, отражающая существование когерентного

максимума плотности состояний ( $A$ -полоса,  $\hbar\omega \approx 1,8$  эВ); «магنونная» полоса поглощения ( $(A+J)$ -полоса,  $\hbar\omega \approx 2,1$  эВ), связанная с дополнительным возбуждением магнитных степеней свободы;

все температурные изменения этих узкополосных спектральных особенностей происходят при  $T \leq T^*$  в области существования в нормальном состоянии  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  псевдощели в плотности электронных возбуждений;

в температурной области  $T_c \leq T \leq T^*$  псевдощелевого состояния  $A$ -,  $(A+J)$ - и  $dd$ -полосы поглощения сужаются, а «магنونная» полоса  $(A+J)$  возникает даже при ее отсутствии в спектральном составе поглощения в области температур  $T > T^*$ ;

характер температурного поведения  $A$ -,  $(A+J)$ - и  $dd$ -полос поглощения в псевдощелевом состоянии аналогичен случаю АФ диэлектрика, что, несомненно, указывает на магнитную природу образования псевдощелевого состояния в системе АФ флуктуаций ближнего порядка;

в сверхпроводящей фазе количественные и качественные изменения спектрального состава поглощения, «накопленные» к моменту перехода в СП фазу, практически прекращаются, и в сверхпроводящей фазе спектральный состав поглощения, в том числе «магنونная» полоса  $(A+J)$ , сохраняется;

полученные данные и их анализ доказывают совместимость антиферромагнетизма ближнего порядка и сверхпроводимости и свидетельствуют в пользу спин-волновой природы высокотемпературной сверхпроводимости в купратных ВТСП.

Авторы выражают благодарность В. И. Фоминой за полезное обсуждение полученных результатов, а также С. В. Шевцовой за помощь при оформлении работы.

1. T. Timusk and B. Statt, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
2. M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
3. Г. Г. Сергеева, Ю. П. Степановский, А. В. Чечкин, *ФНТ* **24**, 1029 (1998).
4. V. Emery, S. A. Kivelson, and O. Zachar, *Phys. Rev.* **B56**, 6120 (1997).
5. D. Pines, *Turk. J. Phys.* **20**, 535 (1996).
6. D. A. Bonn, J. D. Garrett, and T. Timusk, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1305 (1988).
7. I. Fugol, G. Saemann-Ischenko, V. Samovarov, Yu. Rybalko, V. Zhuravlev, Y. Ströbel, B. Holzapfel, and P. Berberich, *Solid State Commun.* **80**, 201 (1991).
8. H. L. Dewing and E. K. H. Salje, *Supercond. Sci. Technol.* **5**, 50 (1992).
9. I. Fugol, A. Ratner, V. Samovarov, M. Libin, B. Holzapfel, and G. Saemann-Ischenko, *Physica C* **235–240**, 1081 (1994).

10. В. В. Еременко, В. Н. Самоваров, В. Н. Свищев, В. Л. Вакула, М. Ю. Либин, С. А. Уютнов, *ФДТ* **26**, 739 (2000).
11. G. Yu, C. H. Lee, D. Mihailovic, A. J. Heeger, C. Fincher, N. Herron, and E. M. McCarron, *Phys. Rev.* **B48**, 7545 (1993).
12. N. Bulut, *Turk. J. Phys.* **20**, 548 (1996).
13. V. Barzykin and D. Pines, *Phys. Rev.* **B52**, 13585 (1995).
14. J. D. Perkins, R. J. Birgeneau, J. M. Graybeal, M. A. Kastner, and D. S. Kleinberg, *Phys. Rev.* **B58**, 9390 (1998).
15. D. Salamon, P. Abbamonte, Ran Liu, M. V. Klein, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, I. I. Tartakovskii, and B. W. Veal, *Phys. Rev.* **B53**, 886 (1996).
16. А. А. Максимов, Д. А. Пронин, С. В. Зайцев, И. И. Тартаковский, М. В. Клейн, Б. У. Вил, *ЖЭТФ* **116**, 684 (1999).
17. V. L. Aksenov and V. V. Kabanov, *Phys. Rev.* **B49**, 3524 (1994).
18. J. Ye and K. Nakamura, *Phys. Rev.* **B48**, 7554 (1993).
19. M. J. Holcomb, C. L. Perry, J. P. Collman, and W. A. Little, *Phys. Rev.* **B53**, 6734 (1996).
20. Y. Yagil, F. Baudenbacher, M. Zhang, J. R. Birch, H. Kinder, and E. K. H. Salje, *Phys. Rev.* **B52**, 15582 (1995).
21. В. В. Соболев, В. В. Немошкаленко, *Электронная структура твердых тел в области фундаментального края поглощения*, Наукова думка, Киев (1992).
22. *Оптические свойства полупроводников*, Е. Ф. Гросс (ред.), Мир, Москва (1970).
23. В. Д. Окунев, З. А. Самойленко, *ФТТ* **33**, 2811 (1991).
24. I. Ya. Fugol, V. N. Samovarov, and M. Yu. Libin, *Fiz. Nizk. Temp.* **25**, 459 (1999) [*Low. Temp. Phys.* **25**, 335 (1999)].
25. J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, C. Vettier, P. Bourge, P. Burlet, J. Bossy, J. Y. Henry, and G. Lapertot, *Physica* **C185-189**, 86 (1991).
26. V. V. Eremenko, N. F. Kharchenko, Yu. G. Litvinenko, and V. M. Naumenko, *Magneto-Optics and Spectroscopy of Antiferromagnets*, Springer Verlag, Berlin (1992).
27. А. В. Еременко, V. V. Slavin, I. S. Kachur, and V. G. Piryatinskaya, *Fiz. Nizk. Temp.* **18**, Supplement, No. **S1**, 137 (1992).
28. A. Sokol, *J. Phys. Chem. Solids* **56**, 1679 (1995).
29. S. Sachdev, A. V. Chubukov, and A. Sokol, *Phys. Rev.* **B51**, 14874 (1995).
30. J. B. Goodenough and J. C. Zhou, *Phys. Rev.* **B42**, 4276 (1990), *ibid.* **B49**, 4251 (1994).

Optical evidence for compatibility of  
antiferromagnetism and superconductivity in  
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

V. V. Eremenko, V. N. Samovarov, V. L. Vakula,  
M. Yu. Libin, and S. A. Uytunov

The evolution of absorption spectral composition was measured for the metallic  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  films with the superconducting transition temperatures  $T_c = 51$  K and  $T_c = 74$  K upon their cooling from 180 to 20 K. Particular attention is given to thermal changes in the two absorption bands: in the  $A$  band ( $\approx 1.8$  eV) which reflects the emergence of holes dressed by AF fluctuations, and in the  $(A + J)$  band ( $\approx 2.15$  eV) reflecting additional (magnetic) excitation of the short-range AF order. The changes in the bands have been found to start in the normal phase at  $T < T^*$  in the temperature range corresponding to the opening of the pseudogap state. It should be noted that the magnon  $(A + J)$  band emerges in the pseudogap state even if it is absent at room temperature. The band parameters stop changing at the superconducting transition, and the magnon  $(A + J)$  band is preserved in the superconducting phase. The results obtained are interpreted as evidence for both the magnetic nature of the pseudogap state and the coexistence of the short-range AF order with superconductivity.