

О природе оптической проводимости ВТСП в инфракрасной области спектра

В. Н. Самоваров

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: samovarov@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 29 января 1999 г., после переработки 15 марта 1999 г.

Получено выражение для частотной зависимости аномальной компоненты оптической проводимости купратных сверхпроводников $\sigma_{MIR}(\omega)$ для всей области существования недрудевских внутризонных возбуждений $0 < \hbar\omega < \hbar\omega_g \approx 1,5-2$ эВ. За основу принято предположение о конечной вероятности проникновения электрона (дырки) из дырочной зоны в верхнюю зону проводимости через оптическую щель $\hbar\omega_g$, что обеспечивает корреляционную взаимосвязь внутризонных и межзонных возбуждений. Показано хорошее согласие с опубликованными экспериментальными данными в рамках двухкомпонентной модели, учитывающей суммарный вклад в проводимость металлической фазы как аномальной σ_{MIR} , так и обычной друдевской компоненты σ_D .

Отримано вираз для частотної залежності аномальної компоненти оптичної провідності купратних надпровідників $\sigma_{MIR}(\omega)$ у всій області існування недрудевських внутрішньозонних збуджень $0 < \hbar\omega < \hbar\omega_g \approx 1,5-2$ еВ. За основу прийнято припущення про кінцеву імовірність проникнення електрона (дірки) із діркової зони в верхню зону провідності крізь оптичну щілину $\hbar\omega_g$, що забезпечує кореляційну взаємодію внутрішньозонних і міжзонних збуджень. Показано добре узгодження з опублікованими експериментальними даними в межах двокомпонентної моделі, котра враховує сумарний внесок в провідність металевої фази як аномальної σ_{MIR} , так і звичайної друдевської компоненти σ_D .

PACS: 74.72.Bk, 74.72.Dn

Оптическая проводимость ВТСП материалов, в отличие от традиционных БКШ-сверхпроводников, имеет значительный вклад недрудевской компоненты проводимости $\sigma_{MIR}(\omega)$, не подчиняющейся классическому друдевскому закону $\sigma_D(\omega) \propto \omega^{-2}$ [1]. Эта аномальная компонента $\sigma_{MIR}(\omega)$ наблюдается в спектральной области от нуля частот и вплоть до граничной энергии $\hbar\omega_g = 1,5-2$ эВ, равной оптической щели между уровнем Ферми, расположенным в глубине валентной зоны, и верхней (свободной) зоной проводимости. В металлической фазе при малом числе свободных носителей зависимость $\sigma_{MIR}(\omega)$ демонстрирует выраженный максимум в средней ИК области частот $\approx 0,3-0,5$ эВ, что позволяет называть ее MIR-компонентой спектра. В итоге проводимость активной CuO_2 плоскости в области энергий $< \hbar\omega_g$ может быть представлена двухкомпонентной моделью:

$$\sigma(\omega) = \sigma_D(\omega) + \sigma_{MIR}(\omega) = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_p^2 \Gamma_D}{\omega^2 + \Gamma_D^2} + \sigma_{MIR}(\omega), \quad (1)$$

где ω_p — плазменная частота, а Γ_D — затухание для друдевских носителей. Суммарная проводимость $\sigma(\omega)$ дает спектр внутризонных дырочных возбуждений. На частотах, превышающих оптическую щель $\hbar\omega \geq \hbar\omega_g$, возникает межзонная компонента проводимости $\sigma_{CT}(\omega)$, обязанная фотопереносу электрона от кислорода к меди ($\text{Cu}^{2+}\text{O}^{2-} \rightarrow \text{Cu}^+\text{O}^-$). Эта составляющая спектра возбуждений с переносом заряда (СТ-компонента) определяет появление дополнительных дырок в валентной зоне.

В настоящее время существует несколько объяснений происхождения MIR-компоненты проводимости: модель маргинальной ферми жидкости [2], жидкости Латтинжера [3], поляронная [4] и биполяронная [5] модели, а также ряд других.

Сравнительный анализ с экспериментальными данными не позволяет отдать предпочтение ни одной из моделей (см., например, [6]), в равной степени пригодных для всех купратных ВТСП при вариациях температуры и допирования. В этой связи отметим, что имеющиеся модели не базируются на общем для купратных ВТСП экспериментальном результате — существовании корреляционной взаимосвязи между внутризонными и межзональными переходами. Однако для ВТСП принципиальным моментом является не столько появление аномальной $\sigma_{MIR}(\omega)$ компоненты, сколько существование взаимосвязи сил осцилляторов MIR- и СТ-переходов.

Для купратных ВТСП, оптическая щель которых образована состояниями с переносом заряда, при увеличении допирования до оптимального величина щели практически не меняется, но межзональная проводимость интегрально уменьшается, при этом внутризонная проводимость интегрально растет (например, Y- и La-образцы [7,8]). Такая эволюция спектра проводимости в наиболее чистом виде отражает взаимосвязь сил осцилляторов переходов. (Для $Ba_{1-x}K_xBiO_3$ и подобных ему соединений, в которых оптическая щель обязана возбуждению волн зарядовой плотности, щель при допировании уменьшается и межзональная компонента перемещается в ИК область, сохраняя свою спектральную площадь [9].)

Для Bi-, Y- и La-образцов корреляционная взаимосвязь MIR- и СТ-возбуждений наблюдалась не только при изменении уровня химического допирования, но также при понижении температуры (при фотодопировании и структурном упорядочении YBCO [10,11]). Так, с понижением температуры оптическое поглощение YBCO, BSCCO, LaCO образцов на СТ-переходах ослабляется во всей спектральной области, а на MIR-переходах интегрально усиливается [4,5,11]. При этом в полосе частот MIR- и СТ-возбуждений наблюдается отклик поглощения на сверхпроводящий переход [4,5,10,11], первоначально обнаруженный в поглощении YBCO пленок на частотах видимого диапазона [12]. На MIR- и СТ-частотах отклик имеет противоположные знаки [4,11], подобно тому, как наблюдаются противоположные знаки изменений MIR- и СТ-спектров в зависимости от температуры или допирования.

Количественно наиболее точно взаимосвязь возбуждений при изменении уровня допирования [13] можно проследить по данным оптических экспериментов с монокристаллами $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ [7], содержащими только одну плоскость CuO_2 в элементарной ячейке:

$$\Delta_x \int \sigma_{MIR}(\omega) d\omega = - \Delta_x \int \sigma_{CT}(\omega) d\omega. \quad (2)$$

Равенство (2) означает, что при допировании (увеличении числа дырок $n \propto x$) СТ-проводимость полностью «перекачивается» в MIR-проводимость. Эта взаимосвязь сохраняется от начала металлизации ($x \approx 0,05$) и вплоть до оптимального уровня $x \approx 0,15$, выше которого сильно возрастает относительный вклад друдевской компоненты спектра и образцы начинают терять свехпроводящие свойства. В итоге изменение проводимости означает перекачку энергии возбуждений, поскольку, согласно строгому правилу сумм [1], $\int \sigma(\omega) d\omega \propto \langle T \rangle$, где $\langle T \rangle$ — кинетическая энергия системы.

Вышеизложенное дает основания привлечь для анализа внутризонной MIR-проводимости модель двух связанных осцилляторов с модами колебаний на частотах ω_1 и ω_2 . С квантовомеханической точки зрения взаимосвязь осцилляторов происходит за счет конечных вероятностей нахождения электрона (дырки) в двух состояниях в момент времени t :

$$|\Psi_{1,2}^2| = \frac{1}{2} [1 \pm \cos(\omega_1 - \omega_2)t]. \quad (3)$$

Для ВТСП разность частот колебаний естественно принять равной величине оптической щели $\hbar\omega_g = \hbar(\omega_1 - \omega_2)$, что предполагает возможность межзонального «туннелирования» электрона через оптическую щель по связи кислород–медь с образованием дырки в валентной зоне. Поэтому для нахождения частотной зависимости проводимости будем исходить из следующего уравнения:

$$\frac{d(|\Psi^2 v|)}{dt} + (|\Psi^2 v|)\gamma = - \frac{e}{m_0} E(\omega)|\Psi^2|, \quad (4)$$

где v , e , m_0 — скорость, заряд и масса, например, электрона; $E(\omega)$ — поле световой волны; а величина γ характеризует затухание, которое зависит от энергетического размытия уровней. Вообще говоря, размытие уровней можно включить в (3) для плотности вероятности [14], но в дальнейшем мы учтем его в затухании. На основании (4) получаем следующее выражение для реальной части проводимости:

$$\sigma(\omega) = \frac{2A\gamma}{2(\omega + \omega_g)^2 + 2\omega_g(\omega + \omega_g) + \omega_g^2 + 2\gamma^2}, \quad (5)$$

где A — константа, которая будет найдена ниже. Сначала определим γ на основании следующих соображений. Гармонический характер (3) может

прерываться за счет случайных переходов электрона (дырки) через оптическую щель, приводящих к рекомбинации носителей. В результате затухание внутризонного тока должно быть пропорционально вероятности перехода между двумя состояниями: $\gamma = \gamma_0(1 - e^{-(\epsilon/h)t})$, где параметр $\epsilon = \Phi(\text{const} - \epsilon_F)$ характеризует энергетическое размытие уровней и поэтому является функцией ширины дырочной зоны ϵ_F , пропорциональной числу дырочных носителей n ($\epsilon_F \approx 10^{-1}$ эВ). В выражение (5) значение γ следует подставить для интервала времени, равного периоду внешнего поля. Тогда на нулевой частоте, исходя из соотношения неопределенности, затухание можно положить равным $\gamma_0 = 2\omega_g \lambda(n)$, где безразмерный параметр $\lambda(n) \approx 1$ также зависит от числа носителей. В итоге имеем

$$\gamma = 2\omega_g \lambda(n) [1 - \exp(-\epsilon(n)/\hbar\omega)].$$

Для определения константы A можно воспользоваться стандартным подходом, приняв ее равной квадрату некоторой эффективной плазменной частоты $\Omega_{\text{eff}}(m^*)$, зависящей от эффективной массы m^* . Мы, однако, применим другой под-

ход [13], не требующий введения дополнительного параметра m^* для описания частотной зависимости проводимости в случае корреляционного взаимодействия внутризонных и межзонных возбуждений в ВТСП. Пусть в системе возникает подвижная дырка только в нижней зоне. Будем считать, что в этом случае в нижайшем энергетическом состоянии при $\hbar\omega = 0$ проводимость $\sigma(0)$ равна минимальной проводимости, реализуемой за счет переноса заряда по связи кислород-медь длиной a_0 : $\sigma(0) \equiv \sigma_{\text{min}} = e^2/ha_0$, где h/e^2 – квант сопротивления ($\sigma_{\text{min}} = 2 \cdot 100 \text{ Ом}^{-1}\cdot\text{см}^{-1}$ для $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$). Тогда $A = \sigma(0)\omega_g(5 + 8\lambda^2)/4\lambda$. Если в системе имеется n подвижных дырок в нижней зоне и соответственно n электронов в верхней зоне, то A надо умножить на $2n$ (при этом можно считать, что эффективное число носителей, участвующих в создании внутризонного тока, равно $N_{\text{eff}} = 2n$). Для примитивных ячеек Y- и La-соединений $n = x$, где x – уровень допирования образца кислородом или стронцием. В итоге конечное выражение для внутризонной проводимости, возникающей как результат межзонного «туннелирования» носителей, имеет вид

$$\sigma_{\text{MIR}}(\omega) = \frac{2x\sigma(0)\omega_g^2(5 + 8\lambda^2) [1 - \exp(-\epsilon/\hbar\omega)]}{2(\omega + \omega_g)^2 + 2\omega_g(\omega + \omega_g) + \omega_g^2 [1 + 8\lambda^2(1 - \exp(-\epsilon/\hbar\omega))^2]}. \quad (6)$$

Обратим внимание, что в (6) появляются нелогарифмические слагаемые $(\omega + \omega_g)^2$ и $(\omega + \omega_g)$, определяющие поведение высокочастотной ветви (6). В работе [13] на основании анализа интегральной проводимости ВТСП было показано, что внутризонная проводимость Y- и La-образцов содержит значительный вклад $\sigma_{\text{MIR}} \propto (\omega + \omega_g)^{-2}$, однако причины появления такой необычной частотной зависимости не были указаны.

Сравнение рассчитанных по (6) и экспериментальных данных было сделано для целого ряда опубликованных результатов по оптической проводимости Y- и La-соединений в широком интервале допирования. Для примера на рис. 1, а, б приведены результаты сравнения для $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($\hbar\omega_g = 1,7$ эВ) при $x = 0,06$ и $0,1$, когда вклад друдевской составляющей слабо маскирует частотное поведение MIR-компоненты спектра. Как видно, наблюдается хорошее согласие с экспериментом, причем для $x = 0,06$ значение $\lambda = 2,2$, а $\epsilon = 0,18$ эВ; для $x = 0,1$ $\lambda = 2$, $\epsilon = 0,13$ эВ. Небольшое различие в низкочастотной области спектра при $\hbar\omega < 0,2$ эВ легко уstra-

няется добавлением друдевского слагаемого с типичными параметрами: $\omega_p = 5 \cdot 300 \text{ см}^{-1}$ и $\Gamma_D = 100 \text{ см}^{-1}$ для $x = 0,06$; $\omega_p = 6 \cdot 800 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma_D = 200 \text{ см}^{-1}$ для $x = 0,1$. Отметим, что данным значениям $\omega_p^2 = 4\pi ne^2/Vm^*$, где $V = 95 \cdot 10^{-24} \text{ см}^3$ – объем на одну формульную единицу, соответствуют величины $n = x$ и $m^* = 2m_0$. Пунктирными кривыми показан суммарный спектр внутризонной проводимости в рамках этой двухкомпонентной модели. Значения λ и ϵ изменяются незначительно. Согласие с экспериментом прослеживается вплоть до энергии $8 \cdot 000 \text{ см}^{-1}$ (≈ 1 эВ) с погрешностью менее 2% (поэтому при $\hbar\omega > 1 \cdot 500 \text{ см}^{-1}$ экспериментальная и теоретическая кривые практически совпадают). Как видно, выражение для компоненты проводимости (6) моделирует не только появление асимметричного MIR-максимума, но также его сдвиг по мере допирования в низкочастотную область ($\approx 2 \cdot 500 \text{ см}^{-1}$ при $x = 0,06$ и $\approx 1 \cdot 500 \text{ см}^{-1}$ при $x = 0,1$), что наблюдается в экспериментах с ВТСП [15]. Для YBCO, как показывает сравнение с экспериментами [8], значения параметров

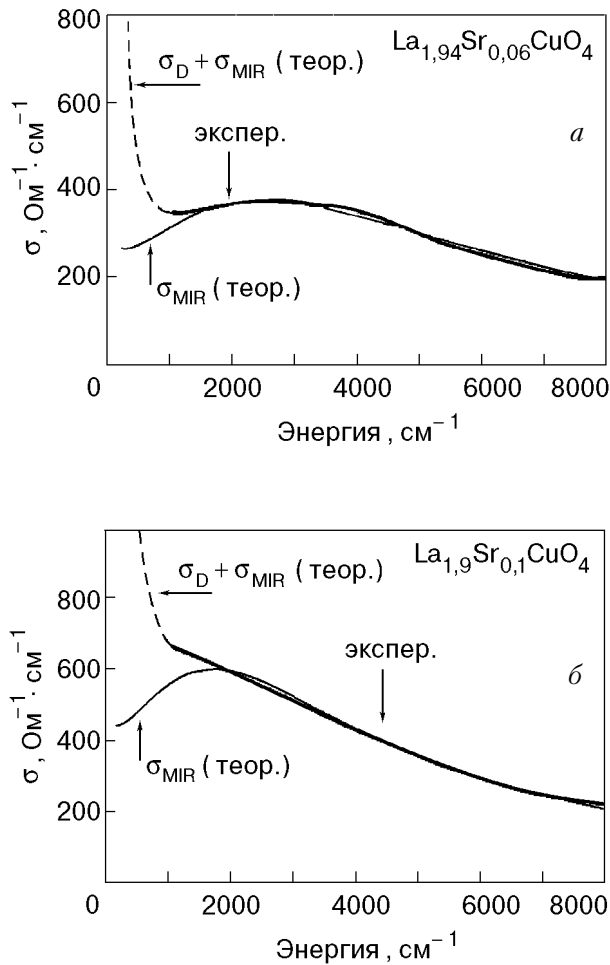


Рис. 1. Спектр оптической проводимости плоскости CuO_2 для монокристалла $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$: $x = 0,06$ (а); $x = 0,1$ (б). Экспериментальные данные при 300 К [7] (—); поведение MIR-полосы проводимости, рассчитанное по (6) (—); совместные вклады друдевской и MIR-компонент проводимости по результатам настоящей работы (---).

при изменении допирования лежат вблизи $\lambda = 1$, $\varepsilon = 0,3$ эВ.

Интересно провести сравнение с экспериментом для случая стандартного выбора константы A в выражении (5): $2A = \Omega_{\text{eff}}^2 = e^2 2x / V m^*$, которое для двумерного случая представим в виде $e^2 (2x)_s / m^* d$, где $(2x)_s \approx (1-2) \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ — «поверхностная» плотность носителей в проводящем слое CuO_2 при $x \leq 0,1$, а d — некоторая эффективная толщина проводящего слоя. Для $m^* = m_0$ согласно с экспериментом достигается при значениях d атомного масштаба $\approx 1 \text{ \AA}$, что сравнимо и даже меньше длины кислородно-медной связи $a_0 = 1,9 \text{ \AA}$. Такое качественное рассмотрение показывает, что предложенный механизм формирования внутризонной компоненты проводимости

реализуется в системе с сильно выраженной двумерностью. В области допирования выше оптимального усиливается трехмерность (проводимость поперек слоев CuO_2 приобретает металлический характер [16]), значительно увеличивается вклад в проводимость изотропных друдевских носителей, плазменная частота которых отвечает условию $d \gg a_0$. В результате с потерей сверхпроводимости при сильном допировании действие «туннельного» механизма существенно ослабляется ($\varepsilon \rightarrow 0$). По-видимому, в этом механизме задействована узкая $2D$ -дырочная зона (узкий пик плотности состояний), тяжелые носители которой подвержены сильным $\text{Cu}^{2+}\text{O}^{2-}-\text{Cu}^+\text{O}^-$ флуктуациям. Легкие носители определяют в основном друдевскую проводимость. По мере допирования пик плотности состояний размывается, флуктуации подавляются и, как следствие, резко снижается вероятность межзонного переброса носителей через оптическую щель.

Автор благодарит И. Я Фуголь за плодотворные дискуссии, а также В. Л. Вакулу за помощь в проведении сравнительного анализа экспериментальных и теоретических данных.

1. E. Dagotto, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 763 (1994).
2. C. M. Varma, P. B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams, and A. E. Ruckenstein, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1996 (1989).
3. P. W. Anderson, *Physica* **C185-189**, 11 (1991).
4. C. H. Rüscher and M. Götze, *Solid State Commun.* **85**, 393 (1993).
5. H. I. Kanfmann, E. K. H. Salie, Y. Yagil, and O. V. Dolgov, *J. Supercond.* **10**, 299 (1997).
6. C. Baraduc, A. Azrak, and N. Bontemps, *J. Supercond.* **9**, 3 (1996).
7. S. Uchida, T. Ido, H. Takagi, T. Arima, Y. Tokura, and S. Tajima, *Phys. Rev.* **B43**, 7942 (1991).
8. S. L. Cooper, D. Reznik, A. Kots, M. A. Karlov, R. Liu, M. V. Klein, W. C. Lee, J. Giapintzakis, D. M. Ginsberg, B. W. Veal, and A. P. Paulikas, *Phys. Rev.* **B47**, 8233 (1993).
9. S. H. Blanton, R. T. Collins, K. H. Kelleher, L. D. Rotter, Z. Schlesinger, D. G. Hinks, and Y. Zheng, *Phys. Rev.* **47**, 996 (1993).
10. И. Я. Фуголь, В. Н. Самоваров, *ФНТ* **22**, 1241 (1996).
11. I. Ya. Fugol, V. N. Samovarov, and M. Yu. Libin, *Fiz. Nizk. Temp.* **25**, 459 (1999).
12. И. Я. Фуголь, В. Н. Самоваров, Ю. И. Рыбалко, В. М. Журавлев, П. Берберих, *СФХТ* **4**, 109 (1991).
13. В. Н. Самоваров, *ФНТ* **24**, 1043 (1998).
14. А. С. Давыдов, *Квантовая механика*, Наука, Москва (1973).
15. P. Calvani and S. Lupi, *Solid State Commun.* **85**, 665 (1993).
16. J. Schützmann, S. Tajima, S. Miyamoto, and S. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 174 (1994).

On the nature of optical conductivity of high- T_c
superconductors in IR region spectra

V. N. Samovarov

An expression is derived for the frequency dependence of an anomalous component of the optical conductivity for cuprate superconductors, $\sigma_{MIR}(\omega)$, within the whole region of existence of non Drude intraband excitations $0 < \hbar\omega < \hbar\omega_g \approx 1.5-2$ eV. An

assumption is made of the finite probability of electron (hole) penetration from the hole band into an upper conduction one through the optical gap $\hbar\omega_g$, providing the correlation between intra- and interband excitations. The data are in good agreement with the published experimental results within the framework of a two-component model which considers the total contribution of the anomalous, σ_{MIR} , and the Drude, σ_D , components to the metal phase conductivity.