

Температурные особенности в спектрах отражения сверхпроводящих пленок YBaCuO в инфракрасной области частот

И. Я. Фуголь, В. Н. Свищев, М. Ю. Либин

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

Статья поступила в редакцию 18 марта 1997 г., после переработки 8 сентября 1997 г.

Измерены спектры отражения сверхпроводящих пленок YBaCuO с умеренным и оптимальным допированием в ИК области ($2500\text{--}10\,000\text{ см}^{-1}$) при варьировании температуры в интервале 5–200 К. Экспериментальные результаты убедительно подтверждают возникновение оптического отклика на сверхпроводящий переход в точке T_c и чувствительность ИК спектров к температуре фазового упорядочения при $T^* > T_c$. Установлено, что выше T_c в образцах с оптимальным допированием наблюдаются воспроизводимые температурные изменения. Показано, что для описания всей совокупности оптических данных наиболее адекватной является двухкомпонентная модель носителей, включающая легкие фермионы и тяжелые бозоны. На основе оптических данных воспроизведена диаграмма фазовых состояний для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в координатах T – x .

Виміряно спектри відбивання надпровідних плівок YBaCuO з помірним та оптимальним допуванням в ІЧ області ($2500\text{--}10\,000\text{ см}^{-1}$) при варіюванні температури в інтервалі 5–200 К. Експериментальні результати переконливо підтверджують виникнення оптичного відгуку на надпровідний перехід в точці T_c та чутливості ІЧ спектрів до температури фазового упорядкування при $T^* > T_c$. Встановлено, що вище T_c в зразках з оптимальним допуванням спостерігаються відтворюванні температурні зміни. Показано, що для опису усієї сукупності оптичних даних найбільш адекватною є двохкомпонентна модель носіїв, яка включає легкі ферміони та важкі бозони. На основі оптичних даних відновлено діаграму фазових станів для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в координатах T – x .

PACS: 78.30.–j

Оптические свойства высокотемпературных сверхпроводников типа медных оксидов до сих пор не имеют однозначной интерпретации в ближней и средней инфракрасной области частот. В полной мере это относится и к ИК спектру $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, образцы которого исследуются в данной работе. Многие экспериментальные данные свидетельствуют, что классическая модель Друде не может быть согласована со спектральными кривыми отражения и оптической проводимости ни для режима оптимального допирования, ни, тем более, для режима умеренного допирования. Для описания ИК оптических характеристик развиваются различные расширенные модели Друде в контексте нестинговой или маргинальной фермижидкостной теории [1–5]. Величины двух основных параметров модели Друде —

неэкранированной плазменной частоты ω_p и оптического затухания Γ — сильно варьируются в различных моделях; нет согласия и по третьему параметру — высокочастотной диэлектрической константе ϵ_∞ для YBaCuO. Обычно при феноменологическом описании с помощью расширенной модели Друде предполагается частотно-зависимое затухание $\Gamma = \Gamma(\omega)$ и иногда частотно-зависимая плазменная частота $\omega_p = \omega_p(\omega)$. В этих моделях коэффициент отражения $R(\omega)$ при возрастании частоты обычно уменьшается не столь резко, как в классической модели Друде, и изменяется почти по линейному закону при подходе к минимуму отражения вблизи экранированной плазменной частоты $\omega_{pl} = \omega_p / \sqrt{\epsilon_\infty}$ [6]. Необходимость использования $\Gamma = \Gamma(\omega)$ и особенно $\omega_p = \omega_p(\omega)$ не имеют до сих пор достаточно ясного физического обоснования.

Другим дискуссионным вопросом оптической ИК спектроскопии является происхождение широкой полосы поглощения с максимумом в области 0,6 эВ, которая возникает в образцах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ с $x > 0,2$, при дальнейшем допировании возрастает, одновременно смещаясь в сторону низких частот, а в режиме оптимального допирования практически «растворяется» в дурде-компоненте. Вносит ли эта полоса заметный вклад в отражение от ab -плоскости YBaCuO , до сих пор неясно [1–5].

Наряду с этими широко обсуждаемыми в литературе особенностями ИК спектров ВТСП представляется важным объяснение необычного температурного поведения ИК спектров и их чувствительности к температуре T_c сверхпроводящего перехода, отмеченных в ряде работ [5–9]. Напомним, что эффект чувствительности оптических спектров пропускания сверхпроводящих пленок YBaCuO и BiCaCuO к возникновению сверхпроводящего конденсата для области частот видимого диапазона (ВИД) надежно установлен в [10,11]. Для ИК области частот до сих пор остаются сомнения в самом факте ИК отклика на T_c , открытым остается вопрос и о существовании температурной зависимости коэффициента отражения при $T > T_c$.

В предыдущих работах авторов [8,9] в основном были исследованы спектры ИК пропускания тонких пленок YBaCuO и установлено, что в ИК, так же как и в видимом диапазоне, наблюдается отклик на сверхпроводящий переход (СП). Была также отмечена необычная линейная зависимость пропускания от температуры. Оказалось, что температурные зависимости в ИК и ВИД диапазонах имеют противоположные направленности: прозрачность в ИК спектре уменьшается, а в видимом увеличивается при охлаждении образцов. Наряду с этим в [11,12] было обнаружено, что амплитуда и характер оптического отклика на СП может изменяться в зависимости от степени термодинамической неравновесности электронной и спин-решеточной подсистем. В ряде ситуаций излом оптических характеристик в точке T_c может маскироваться вкладом релаксационных изменений электронно-структурного состояния образца. Это является причиной того, что при измерениях в разных условиях (разные скорости охлаждения или нагрева образцов) оптический отклик в T_c , а также температурные зависимости оптических характеристик могут быть невоспроизводимыми.

Релаксация электронно-структурного состояния YBaCuO после резкого изменения температуры особенно ярко проявляется в оптических спектрах для режимов умеренного и слабого допирования ($0,3 < x < 0,8$). Если учесть, что величины относительного изменения оптического сигнала пропускания в точке T_c порядка 0,5–1%, а температурные изменения от 200 до 90 К порядка нескольких единиц процентов, то понятна необходимость многократного воспроизведения данных о температурных аномалиях в оптических спектрах.

В настоящей работе тщательно исследовались температурные изменения в спектрах ИК отражения для наиболее стабильных образцов с уровнем допирования вблизи оптимального. Для измерений использовались эпитаксиальные сверхпроводящие пленки YBaCuO . Одним из преимуществ использования таких пленок в экспериментах по отражению является высокое качество их поверхности. Температурные измерения $R(\omega)$ подтверждают: 1) существование заметной температурной зависимости коэффициента отражения при $T > T_c$; 2) появление отклика в спектре ИК отражения на возникновение СП; 3) наличие особой критической точки T^* при $T > T_c$. Относительно критической точки T^* высказывается предположение, что она разделяет температурные области с разной степенью локализации и упорядочения носителей. Используя оптические данные настоящей работы и дополнив их данными предшествующих работ авторов, предпринимается попытка воспроизвести диаграмму фазовых состояний в координатах $T-x$, на которой построены кривые $T_c = T_c(x)$ и $T^* = T^*(x)$. На основе анализа температурной зависимости $R_\omega(T)$ в области $T > T_c$ показано, что оптические данные могут быть непротиворечиво объяснены в рамках двухзонной модели оптической проводимости при доминирующем вкладе бозонной компоненты в ИК области частот.

Эксперимент

Для измерения $R(\omega, T)$ использовалась оптическая схема почти нормального падения монохроматического излучения на исследуемый образец ($\sim 10^\circ$ по отношению к нормали к поверхности пленки). Спектральное распределение исследуемого излучения анализировалось с помощью монохроматора МДР-23 с комплектом принадлежностей для инфракрасной области. Источником излучения

служил глобар (SiC), в качестве приемника использовался сверхпроводниковый гелиевый болометр с низким уровнем шумов. Окна болометра и гелиевого оптического криостата выполнены из селенида цинка (ZnSe). Криостат позволял осуществлять плавную регулировку температуры в интервале от 300 до 5 К и поддерживать заданную температуру с точностью до 0,3 К. Измерения проводились по двухлучевой оптической схеме в модуляционном режиме. Коэффициент отражения $R(\omega, T)$ определялся из отношения интенсивности отраженного образца светового потока к интенсивности отраженного потока от контрольного серебряного зеркала. Случайная ошибка в измерении $R(T)$ составляла $\sim 0,005$.

Эксперименты проводились на тонких пленках YBaCuO с разным уровнем допирования по кислороду. Образцы изготовлены докт. М. Липпертом в Физическом институте Университета г. Эрланген (Германия) в отделе проф. Г. Займанн-Ищенко специально для нашей оптической установки. Пленки были приготовлены при магнетронном распылении мишени из расплава YBaCuO на эпитаксиальную подложку SrTiO₃ при высоком давлении. Образцы имели ориентацию *ab*-плоскости (001). Условия распыления оптимизированы для приготовления пленок в режиме допирования с максимальными T_c (88,2–89,2 К). Варьирование содержания кислорода в пленках достигалось последующей их длительной выдержкой при соответствующем парциальном давлении кислорода (при $T = 550^\circ\text{C}$) и их быстрой закалкой (5 мин) до 300 °С с использованием жидкого азота. Так были

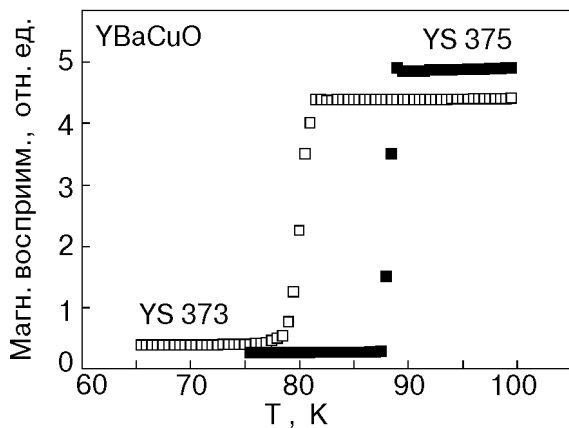


Рис. 1. Характеристика сверхпроводящего перехода для образцов YS 373 и YS 375.

приготовлены пленки YBaCuO с $T_c = 81,5; 61,5$ К и др.

На рис. 1 приведены две кривые, демонстрирующие сверхпроводящий переход в YBaCuO-пленках YS 375 ($T_c = 88,2$ К) и YS 373 ($T_c = 81,5$ К) с использованием индуктивного *ас*-метода. Длина *c*-оси определялась по рентгеновской дифракции с использованием шести (001) рефлексов и составляла $c = 11,680$ Å для YS 375 и $c = 11,725$ Å для YS 373. Согласно нормировочным таблицам, параметры оси *c* соответствуют кислородному индексу $x = 0,9$ для YS 375 и $x = 0,75$ для YS 373. Толщины пленок контролировались по изменению частоты кварцевого эталонного генератора с точностью до 10%: $d = 1\,800$ Å для YS 375 и $d = 2\,100$ Å для YS 373. Поскольку толщина этих пленок d превышает глубину проникновения $l(\omega)$ ИК излучения в образец ($l(\omega) \approx 1\,000$ Å для диапазона частот 0,3–1,2 эВ [3]), вклад отражения от подложки оказывается пренебрежимо малым, хотя величина пропускания \tilde{t} отлична от нуля.

Результаты

Спектры отражения $R(\omega)$ для *ab*-плоскости пленок YS 373 и YS 375 приведены на рис. 2 для

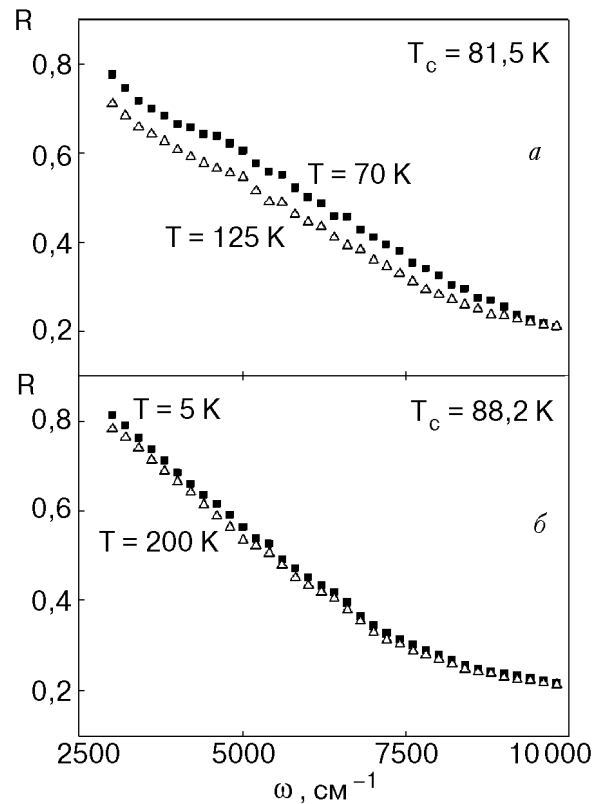


Рис. 2. Спектры отражения $R(\omega)$ для образца YS 373 с $T_c = 81,5$ К при $T = 70$ и 125 К (а) и для образца YS 375 с $T_c = 88,2$ К при $T = 5$ и 200 К (б).

двух температур в области от 2 500 до 10 000 см^{-1} (0,3–1,2 эВ). Именно в этой области ИК частот коэффициент отражения изменяется от почти металлического ($R(\omega) = 0,8$ при $\hbar\omega = 2\,500\ \text{см}^{-1}$) до почти диэлектрического значения ($R(\omega) = 0,2$ при $\hbar\omega = 10\,000\ \text{см}^{-1}$). Существенное уменьшение $R(\omega)$ в исследуемом диапазоне с выходом на низкие значения отражения при $\omega > 1,2$ эВ свидетельствует о переходе от спектральной области с доминирующим вкладом квазидриведских свободных носителей к спектру с преобладающим вкладом локализованных электронных возбуждений. Обратим внимание, что уменьшение $R(\omega)$ с частотой заметно отличается от линейного, что не противоречит модели Друде для YS 375. На рис. 2 видно, что температурная зависимость спектра для образца YS 375 с оптимальной степенью допирования выражена слабее, чем для образца с умеренной степенью допирования. В спектрах обоих образцов максимальные температурные изменения наблюдаются в области частот 5 000 см^{-1} (вблизи максимума возможной ИК полосы поглощения) и существенно уменьшаются вблизи 10 000 см^{-1} . Если приведенные кривые сравнить с кривыми $R(\omega)$ в [9], то можно заметить, что все кривые отражения сходятся в точке кроссовера вблизи 1,2 эВ, почти совпадающей с положением плазменной частоты ω_{pl} .

Следует отметить, что температурная зависимость $R(\omega)$ весьма чувствительна к степени термодинамической неравновесности в электронной и решеточной подсистемах, так что требуются длительные выдержки образца при каждой данной температуре, особенно при низких температурах, чтобы наблюдать температурный эффект в чистом виде. Относительно быстро (~30 мин) процессы релаксации происходят для

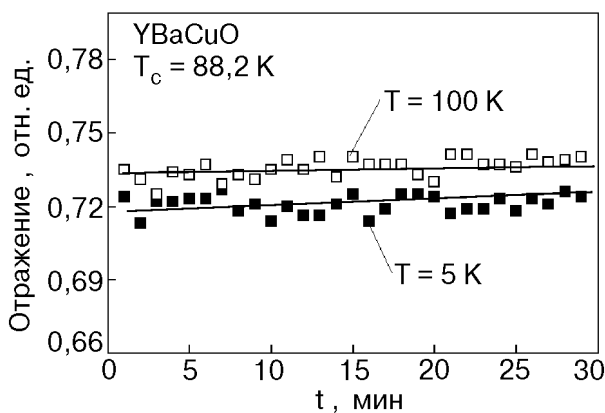


Рис. 3. Временная стабильность отражения при энергии $\hbar\omega = 0,68$ эВ ($\omega = 5\,500\ \text{см}^{-1}$) для пленки с оптимальным допированием.

оптимального режима допирования. Все измерения эффекта температурного сканирования проводились при фиксированной частоте $\omega = 5\,500\ \text{см}^{-1}$. Обычно эксперименты начинались после предварительной выдержки оптического криостата с образцом при $T = 200\ \text{K}$ в течение одного часа. После этого измеряли $R_{\omega}(T)$ при медленном охлаждении от 200 до 5 К, затем образец выдерживался при $T = 5\ \text{K}$ (30–40 мин) и вновь проводились измерения $R_{\omega}(T)$ при нагреве. Подобный цикл повторялся еще один раз в том же эксперименте. Длительность сканирования от 200 до 5 К составляла 30–40 мин. Одну и ту же пленку многократно исследовали в течение нескольких дней.

На рис. 3 приведены результаты исследования временной стабильности отражения $R_{\omega}(T)$ образца YS 375 при $T = 100\ \text{K}$ после охлаждения от $T = 200\ \text{K}$ и при $T = 5\ \text{K}$ после охлаждения от 100 К. Как видно, термодинамическое равновесие в пленке $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,9}$ при охлаждении от 200 до 5 К устанавливается за ~30 мин, а максимальное относительное изменение $\Delta R_{\omega}(t)/R_{\omega}$ в релаксационном процессе возрастания $R_{\omega}(t)$ достигает

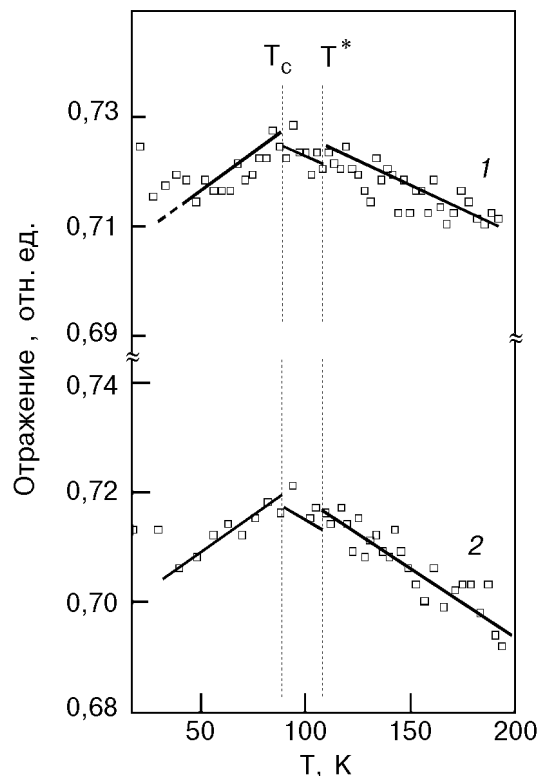


Рис. 4. Температурные зависимости отражения при энергии $\hbar\omega = 0,68$ эВ ($\omega = 5\,500\ \text{см}^{-1}$) для пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,9}$ с $T_c = 88,2\ \text{K}$ в режиме охлаждения. Кривые 1 и 2 соответствуют измерениям в разные дни.

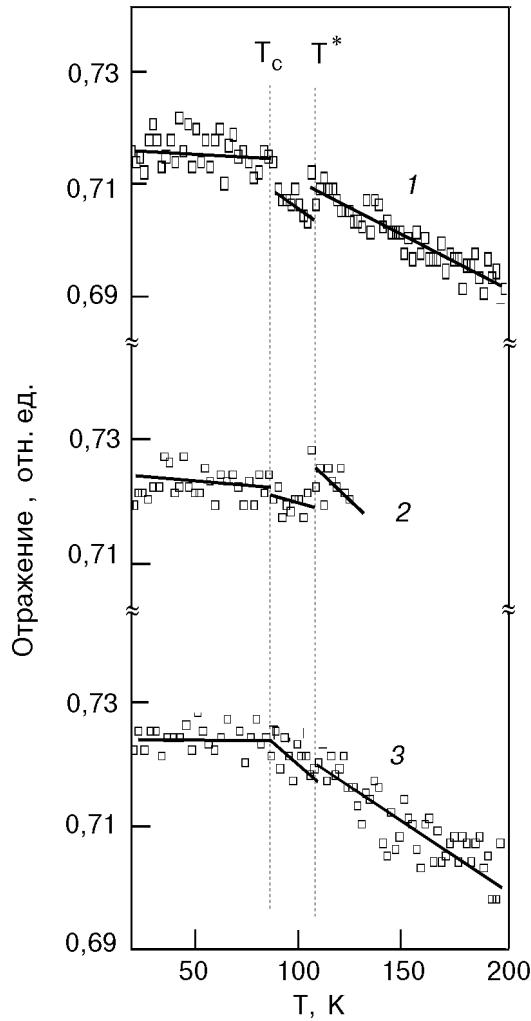


Рис. 5. Температурные зависимости отражения при энергии $\hbar\omega = 0,68$ эВ ($\omega = 5\,500\text{ см}^{-1}$) для пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,9}$ с $T_c = 88,2$ К в режиме нагрева. Кривые 1 и 2 измерены в разные дни, 2 и 3 – в один день.

$$\frac{R_\omega(5\text{ К}, 30\text{ мин}) - R_\omega(100\text{ К}, 0)}{R_\omega(5\text{ К}, 30\text{ мин})} \sim 1,5 \cdot 10^{-2}.$$

При охлаждении от 200 до 100 К максимальное $\Delta R_\omega(t)/R_\omega \sim 3 \cdot 10^{-3}$ за 30 мин. Сравнение с результатами работы [12], в которой приведены параметры релаксационного процесса для пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,7}$, показывает, что пленка с оптимальным допированием менее лабильна. Относительные изменения оптического сигнала для пленки с $x = 0,7$ составляли до 7% при охлаждении ниже T_c .

На рис. 4 представлены данные двух независимых измерений отражения R_ω для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,9}$ при сканировании температуры в режиме охлаждения (ниже 200 К). Несмотря на существующий разброс экспериментальных точек, удается описать зависимость $R_\omega(T)$ в

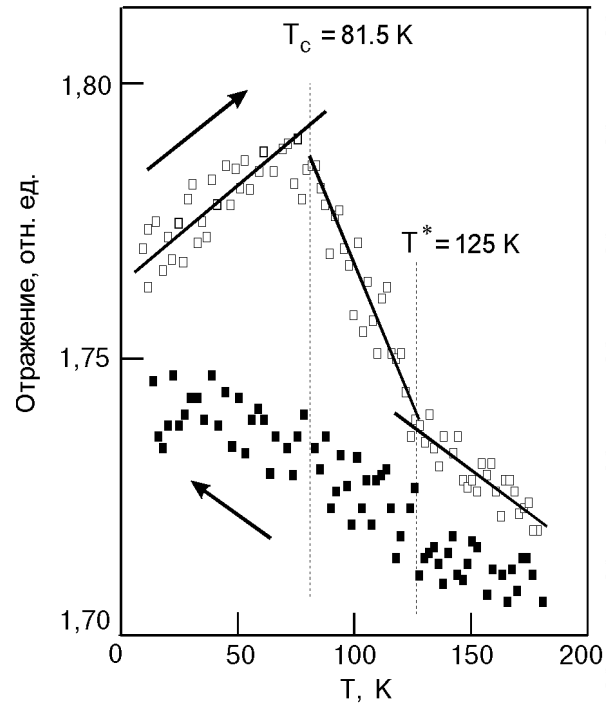


Рис. 6. Температурные изменения отражения при $\hbar\omega = 0,68$ эВ для пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,75}$ (с умеренным допированием) в режимах охлаждения (■) и нагрева (□).

предположении о существовании трех различных температурных областей (I, II, III) и наличия двух критических температур T_c и T^* : I для $T < T_c$; II для $T_c < T < T^*$ и III для $T > T^*$. В областях II и III $R_\omega(T)$ линейно зависит от температуры, а в области I (состояние СП) – зависимость более сложная с кажущимся выходом на не зависящую от T прямую. При T -сканировании в точке $T = T_c$ четко выделяется максимум величины R_ω . Точка $T = T^*$ в режиме охлаждения выделяется менее отчетливо, но может быть замечена по излому прямых $R_\omega(T)$ с изменением величины наклона. Как в точке T_c , так и в точке T^* иногда заметен скачок величины $R_\omega(T)$.

Выделение трех различных температурных областей в режиме охлаждения не является случайным, о чем свидетельствуют результаты независимых измерений для $R_\omega(T)$, полученные при сканировании в режиме нагрева. На рис. 5 представлены данные трех независимых экспериментов для той же пленки с $T_c = 88,2$ К при медленном повышении температуры от $T = 5$ К. Из сравнения трех зависимостей (кривые 1–3) видны общие тенденции в изменении R_ω от T и можно выделить те же три температурные области, которые отмечены на рис. 4. В области I ($T < T_c$) R_ω практически не зависит от T . В точке $T = T_c$ заметен скачок

величины R_ω и одновременно излом на зависимости $R(T)$. В области II ($T_c < T < T^*$) появляется линейная температурная зависимость, а при подходе к точке $T = T^*$ вновь происходит небольшой скачок величины $R_\omega(T^*)$ и далее при $T > T^*$ наблюдается линейная зависимость с другим наклоном. Кривые 1 и 2 на рис. 5 соответствуют режиму нагрева в разных экспериментах, а кривые 2 и 3 — при термоциклировании в один и тот же день в разных циклах нагрева. Анализ данных позволяет выделить точки $T_c \sim 88$ К и $T^* \sim 107$ К для YBaCuO с $x = 0,9$. Отметим, что точка T^* видна в режиме нагрева более ясно, чем в режиме охлаждения.

Для сравнения на рис. 6 показаны кривые температурного сканирования отражения для образца с умеренным допированием YS 373 при охлаждении от 200 до 5 К и последующем нагреве. Критические точки при $T_c = 81,5$ К и $T^* = 125$ К хорошо видны в цикле нагрева и практически размыты в режиме охлаждения. Заметный гистерезис наблюдается для всей области температур, даже при $T > T_c$, и связан с более высокой неравновесностью для образца YS 373 при температурных вариациях по сравнению с образцом YS 375. При изменении температуры от 125 до 70 К величина $\delta R = [R_2(T_1) - R_2(T_2)]/R(\bar{T})$ для этого образца составляет $-0,07$ или соответственно относительный температурный коэффициент отражения $\delta R/\Delta T \sim 10^{-3}$ град $^{-1}$ (рис. 2,а).

Обсуждение результатов

Приведенные выше данные о температурном поведении коэффициента отражения сверхпроводящих пленок касаются ряда принципиальных моментов: 1) наблюдения температурной зависимости $R(\omega, T)$ при $T > T_c, T^*$; 2) существования оптического отклика в ИК спектре на появление сверхпроводимости в точке $T = T_c$ и изменения зависимости $R_\omega(T)$ при $T < T_c$ в СП фазе; 3) обнаружения температурной особенности $R_\omega(T)$ вблизи критической точки $T^* > T_c$. Проанализируем эти особенности для образца с оптимальным допированием YS 375.

1. Температурная зависимость коэффициента отражения при $T > T_c$ наблюдалась в многократно повторенных экспериментах как при сканировании $R(\omega)$ по частоте для различных фиксированных температур, так и при селективных измерениях отражения для фиксированной частоты $\omega_0 = 5\,500$ см $^{-1}$ при

сканировании по температуре. В режиме умеренного допирования температурные эффекты проявляются более отчетливо, чем в образцах с оптимальным допированием. Истинный характер температурной зависимости и исключение возможных вкладов вследствие температурных изменений параметров решетки и/или термодинамической неравновесности электронных и структурных состояний подтверждается измерениями при разных направлениях сканирования: охлаждение и нагрев в области $T > T_c$ дают практически одинаковые температурные зависимости отражения для образца с оптимальным допированием (рис. 4 и 5).

Согласно данным, приведенным на рис. 4, относительный температурный коэффициент отражения для образца с оптимальным допированием ($x = 0,9$) составляет $|\delta R/\Delta T| \sim 4 \cdot 10^{-4}$ град $^{-1}$ и имеет отрицательный знак. Практически такая же величина была получена для относительного температурного коэффициента пропускания \tilde{t} в наших экспериментах [9,12] в согласии с данными [5]: $\delta \tilde{t}/\Delta T \sim (3-5) \cdot 10^{-4}$ град $^{-1}$, причем с положительным знаком. Отсюда следует, что относительный температурный коэффициент поглощения в измеряемом диапазоне должен быть близким к нулю:

$$\frac{\delta A}{\Delta T} = -\left(\frac{\delta R}{\Delta T} + \frac{\delta \tilde{t}}{\Delta T}\right) \approx 10^{-4} \text{ град}^{-1}, \quad (1)$$

где $A = 1 - (\tilde{t} + R)$ — величина полного поглощения. Полезно было бы оценить масштаб температурных изменений оптической проводимости в ближней ИК области. Величина $\delta \sigma_\omega/\Delta T$ должна быть представлена двумя

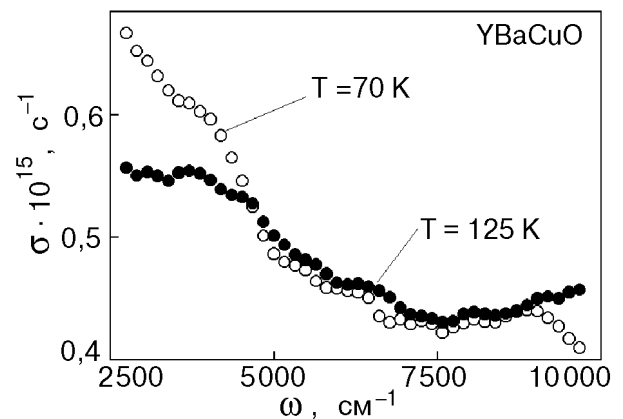


Рис. 7. Оптическая проводимость $\sigma(\omega)$ при $T = 70$ и 125 К для образца YS 373, полученная из расчетов по соотношениям Крамерса — Кронига.

вкладами: температурным изменением показателя поглощения $\delta k/\Delta T \sim \delta A/\Delta T$ и температурным изменением показателя преломления $\delta n/\Delta T$. Величина $\delta n/\Delta T$ имеет тот же масштаб, что и $\delta k/\Delta T$, но с противоположным знаком. Поэтому можно сделать вывод, что оптическая проводимость в ближней ИК области практически не должна зависеть от температуры, т.е. $\delta\sigma/\Delta T \sim 0$. Приведенные выше качественные соображения подтверждаются расчетами оптической проводимости $\sigma(\omega)$ по соотношениям Крамерса—Кронига. Результаты расчетов приведены на рис. 7 для двух температур (ниже и выше T_c). Этот вывод, как будет показано в следующей работе авторов, согласуется также с расчетами мнимой части диэлектрической проницаемости $\epsilon_2(\omega) = 2nk$ в зависимости от T , которые свидетельствуют о практической независимости $\epsilon_2(\omega)$ от T в диапазоне частот 4 500–9 000 см^{-1} .

Можно ли согласовать полученный результат $\delta\sigma^{IR}/\Delta T \sim 0$ с данными о знаках и величинах $\delta\sigma/\Delta T$ для других частотных областей в рамках однозонной модели? Выпишем характеристики $\delta\sigma/\Delta T$ для случая статической проводимости $\sigma^0(\omega = 0)$, для ИК области ($\omega < \omega_{pl}$) и ВИД ($\omega > \omega_{pl}$) при $T > T_c$, определенные экспериментально:

$$\begin{aligned} \omega = 0, \quad \frac{\delta\sigma^0}{\Delta T} < 0, \quad \left| \frac{\delta\sigma^0}{\Delta T} \right| &\approx 7 \cdot 10^{-2} \text{ град}^{-1}, \\ \omega < \frac{\omega_p}{\sqrt{\epsilon_\infty}}, \quad \frac{\delta\sigma}{\Delta T} \approx 0, \quad \frac{\delta\sigma}{\Delta T} &\leq 10^{-4} \text{ град}^{-1}, \\ \omega > \frac{\omega_p}{\sqrt{\epsilon_\infty}}, \quad \frac{\delta\sigma}{\Delta T} > 0, \quad \frac{\delta\sigma}{\Delta T} &\approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ град}^{-1}. \end{aligned} \quad (2)$$

Данные по статической проводимости определены из резистивных характеристик пленок YBaCuO оптимального допирования, а данные для видимой области взяты из [12]. Как известно, в однозонной модели используются два основных параметра спектроскопии: плазменная частота ω_p и затухание Γ . Статическая проводимость определяется выражением

$$\sigma^0(T) = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_p^2(T)}{\Gamma(T)}, \quad (3)$$

а оптическая проводимость на частоте ω при условии $\omega \gg \Gamma$ имеет вид

$$\sigma_\omega(T) = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_p^2(T)}{\omega^2} \Gamma(T). \quad (4)$$

Заметим, что условие $\omega \gg \Gamma$ выполняется для частот $\omega > 2\,500 \text{ см}^{-1}$. Из (3), (4) видно, что величина затухания $\Gamma(T)$ входит в знаменатель выражения для $\sigma^0(T)$ и в числитель для $\sigma_\omega(T)$. Зависимость затухания $\Gamma(T)$ для статической проводимости YBaCuO была экспериментально определена в работе [14], в которой показано, что в случае оптимального допирования $\Gamma(T) \sim T$. Если предположить, что проводимость ВТСП определяется одним типом носителей с затуханием $\Gamma(T)$, то из (3) и (4) следует, что знаки производных по температуре для σ^0 и σ_ω^{IR} должны быть противоположными, а сама температурная зависимость столь же сильная, как и в случае $\sigma^0(T)$. Это не соответствует выражению (2) и показывает невозможность объяснения температурного поведения статической и оптической проводимости с помощью однозонной схемы.

Условиям (2), наряду с соотношениями (3),(4), можно легко удовлетворить, если обратиться к двухзонной схеме, включающей два типа сильно отличающихся по массам носителей, — легкие и тяжелые дырки, которые можно сопоставить фермионам и бозонам (биполяронам). Необходимость учета двух типов носителей была отмечена нами ранее при интерпретации спектров ИК и ВИД диапазона [8,12]. Экспериментальные свидетельства в пользу бозон-фермионной модели приведены в работах [5,15,16], а ее теоретическое обоснование — в [17,18]. В этой модели полное число дырочных носителей n_h и соответствующие плазменные частоты удовлетворяют соотношениям

$$\begin{aligned} n_h = n_F + 2n_B, \quad n_F \gg n_B, \quad n_F \leftrightarrow n_B, \\ \omega_{PF}^2 \approx 4\pi e^2 \frac{n_F}{m_F}; \quad \omega_{PB}^2 \approx 4\pi e^2 \frac{n_B}{m_B}. \end{aligned} \quad (5)$$

Между фермионами n_F и бозонами n_B существует возможность конверсии, так как предполагается, что зона бозонов попадает внутрь зоны фермионов.

В оптическую проводимость в ближней и средней ИК области должны давать вклад обе зонные ветви с соответствующими статистическими весами g_F и g_B :

$$\begin{aligned} \sigma_\omega = g_F \sigma_{\omega,F} + g_B \sigma_{\omega,B} = \\ = \frac{1}{4\pi\omega^2} \left[g_F \omega_{PF}^2(T) \Gamma_F(T) + g_B \omega_{PB}^2(T) \Gamma_B(T) \right]. \end{aligned} \quad (6)$$

С учетом двух слагаемых в (6) нетрудно представить компенсацию температурной зависимости

σ_{ω}^{IR} за счет взаимной конверсии двух типов носителей (зависящей от T). Можно полагать, что именно локализация фермионов и увеличение числа биполяронов (бозонов) при понижении температуры являются реальными эффектами, компенсирующими температурное уменьшение затухания Γ_B во втором слагаемом и приводящими к температурному балансу между вкладом двух слагаемых в (6). В то же время в ВИД области частот ($\omega > \omega_p / \sqrt{\epsilon_{\infty}}$) роль бозоновской компоненты зарядовых носителей становится малой и энергетический спектр определяется $d-d$ -электронными переходами и межзонными переходами с переносом заряда, сильно коррелированными с фермионной подсистемой. Наблюдение слабой зависимости $\sigma_{\omega}(T)$ в ВИД диапазоне со знаком температурного коэффициента, противоположным случаю статической проводимости (в соответствии с (2)), может быть описано с учетом доминирующего вклада фермиевских носителей в $\sigma_{\omega}(T)$.

Приведенные выше соображения дают возможность выбора оптимальной модели для количественного описания диэлектрического отклика в $YBaCuO$ и детального анализа основных спектральных характеристик, что предполагается выполнить в следующей работе.

2. Доказательство чувствительности ИК спектров отражения к переходу в сверхпроводящее состояние является одним из наиболее ярких результатов данной работы. Как видно на рис. 4 и 5, температурная зависимость отражения имеет особенность типа излома в точке $T = T_c$, однако вид особенности различается в режимах охлаждения и нагрева. Отличие возникает, главным образом, из-за неоднозначного поведения $R_{\omega}(T)$ в СП фазе. Если в области $T > T_c$ в образце с оптимальным допированием удастся избежать гистерезисных неоднозначностей, то в области $T < T_c$ их не удастся полностью исключить, даже используя времена выдержки $t \sim 40$ мин при $T = 5$ К. Обычно кривые охлаждения характеризуются заметным уменьшением величины $R_{\omega}(T)$, а кривые нагрева, наоборот, некоторым возрастанием вблизи СП при $T < T_c$. Какие из кривых $R_{\omega}(T)$ — нагрева или охлаждения — несут истинную информацию о температурной зависимости $R_{\omega}(T)$ (без вклада релаксационных явлений в сверхпроводящем конденсате) без дополнительных измерений сказать трудно. Вне связи с этим можно видеть, что оптический отклик на возникновение СП конденсата в точке T_c отчетливо проявляется в обоих режимах

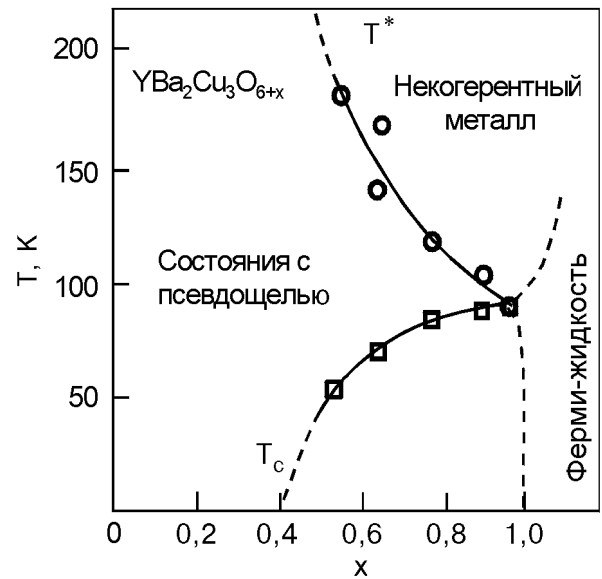


Рис. 8. Температура сверхпроводящего перехода T_c (\square) и критическая температура T^* (\circ) из оптических спектров отражения и пропускания в ИК и ВИД областях для эпитаксиальных пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$.

температурного сканирования. В режиме нагрева иногда удается наблюдать скачок $R(T_c)$ с возрастанием R_{ω} при СП переходе, что соответствует положительному скачку числа носителей n_h при переходе от нормальной к СП фазе. Величина скачка отражения, по нашим данным, составляет $\delta R = \Delta R(T_c)/R \sim 4 \cdot 10^{-3}$.

Для сравнения укажем, что аналогичные скачки с увеличением числа свободных носителей при T_c наблюдались и для области более высоких частот ($1,5 \text{ эВ} < \hbar\omega < 3 \text{ эВ}$) по спектрам поглощения [12]. Существование оптического отклика на СП переход в области друдевского отражения при частотах, существенно превышающих энергетическую ширину СП щели и температуру ($\hbar\omega \gg \Delta_0, T$), не может быть адекватно объяснено в рамках традиционного спаривания электронов за счет фононного механизма. Представляется необходимым привлечение дополнительных механизмов спаривания при образовании СП конденсата.

3. Еще одна замечательная особенность на $R_{\omega}(T)$ возникает в точке $T^* > T_c$, особенно отчетливо заметная в режиме нагрева. Для образца с $T_c = 88,2$ К ($x = 0,9$) эта особенность расположена при $T^* = (107 \pm 5)$ К. Для образца с $T_c = 81,5$ К точке T^* соответствует температура ~ 130 К. В точке T^* не только изменяются наклоны прямых, но часто можно выделить скачок отражения $R(T^*)/R \sim 10^{-2}$. Знак скачка соответствует уменьшению числа свободных

носителей (эффект локализации), если спускаться от более высоких температурах к низким, т.е. знак скачка при T^* противоположен знаку скачка в T_c .

Существование особенности в точке $T^* > T_c$ отмечалось ранее в ИК спектрах умеренно допированных образцов YBaCuO [8,9] и по аналогии с особенностями на кривых резистивности и обратной подвижности [17] эта точка может быть идентифицирована как разделяющая две фазовые области с разной степенью диэлектризации. В образцах с $T_c = 81$ К ($x = 0,75-0,8$) особенность проявляется при $T^* \sim 125$ К, а для $T_c = 55$ К ($x = 0,55$) она поднимается до $T^* \sim 180$ К [12]. Результаты по ИК спектрам, а также приведенные в [11,12] данные по спектрам в видимой области для образцов с $T_c = 90$ К ($x = 0,95$) и $T_c = 75$ К ($x = 0,65$) показаны на рис. 8 в виде диаграммы фазовых состояний YBaCuO. Эта диаграмма для YBaCuO достаточно хорошо согласуется с общей диаграммой фазовых состояний купратных сверхпроводников [19]. Как показано в [19], ниже T^* в ВТСП открывается псевдощель и возникает некогерентное спаривание носителей. Таким образом, наши данные подтверждают, что сверхпроводящий конденсат в режиме оптимального и, тем более, умеренного допирования образуется из состояний, близких к диэлектрическому типу, как и предполагалось в пионерских работах Беднорца и Мюллера.

Заключение

Изучены температурные особенности спектров отражения сверхпроводящих пленок YBa₂Cu₃O_{6+x} с умеренным и оптимальным допированием в ближней и средней ИК области частот. Наибольшие температурные изменения наблюдаются в образцах с умеренным допированием ($x = 0,75$). Тем не менее многократно повторенные эксперименты на образце с оптимальным допированием ($x = 0,9$) свидетельствуют, что и в этих образцах (с более высокой степенью упорядоченности) проявляются температурные эффекты с теми же особенностями.

Проведен анализ знака температурного коэффициента оптической проводимости в ИК ($\omega < \omega_{pl}$) и ВИД ($\omega > \omega_{pl}$) диапазонах и для статической проводимости ($\omega = 0$) при $T > T_c$. Результаты показывают целесообразность применения двухжидкостной модели носителей — легких фермионов и тяжелых бозонов. Именно зависящий от температуры вклад бозонной

компоненты компенсирует температурный эффект фермионной компоненты, так что оптическая проводимость в ближней ИК области оказывается практически температурно независимой.

Измерение отражения R_ω при $\hbar\omega = 0,68$ эВ в процессе температурного сканирования (как при охлаждении, так и при нагревании) позволило выделить две особые температурные точки: T_c — температура перехода в сверхпроводящее состояние и $T^* > T_c$ — температура фазового упорядочения в нормальном состоянии.

Точка T^* , по аналогии с измерениями резистивности, обратной подвижности и оптической проводимости в дальней ИК области [14,19], может быть интерпретирована как точка открытия псевдощели в бозонной подсистеме. На основе оптических измерений отражения и поглощения в ИК и ВИД областях спектра построена диаграмма фазовых состояний в координатах $T-x$ для образцов YBa₂Cu₃O_{6+x}.

Данные работы подтверждают существование оптического отклика на сверхпроводящий переход в ИК области частот и чувствительности оптических спектров к фазовому упорядочению в точке T^* .

В заключение авторы выражают благодарность профессору Г. Займанн-Ищенко и его коллегам за предоставленные образцы тонких пленок ВТСП, В. Н. Самоварову за полезные дискуссии, А. И. Галузе за помощь при расчетах по методу Крамерса—Кронига и М. Блудову за помощь в проведении экспериментов.

1. D. B. Tanner and T. Timusk, in: *Physical Properties of HTC III*, D. M. Ginsberg (ed.), World Scientific, Singapore (1992).
2. T. Arima, K. Kikuchi, M. Kasuya, S. Koshihara, Y. Tokura, T. Ido, and S. Uchida, *Phys. Rev.* **B44**, 917 (1991).
3. I. Bozovic, *Phys. Rev.* **B42**, 1969 (1990).
4. S. L. Cooper, D. Reznik, A. Kotz, M. A. Karlow, R. Liu, M. V. Klein, W. C. Lee, J. Giapintzakis, and D. M. Ginsberg, *Phys. Rev.* **B47**, 8233 (1993).
5. Y. Yagil, F. Baudenbacher, M. Zhang, J. Birch, H. Kiader, and E. K. H. Salje, *Phys. Rev.* **B52**, 15582 (1995).
6. M. J. Holcomb, L. L. Perry, J. P. Collman, and W. A. Little, *Phys. Rev.* **B53**, 6734 (1996).
7. H. L. Dewing and K. Scott, *J. Supercond.* **7**, 481 (1994).
8. И. Я. Фуголь, В. Н. Самоваров, В. Н. Свищев, М. Ю. Либин, *ФНТ* **21**, 878 (1995).
9. В. Н. Свищев, И. Я. Фуголь, *ФНТ* **22**, 1257 (1996).
10. I. Fugol, G. Saemann-Ischenko, V. Samovarov, Yu. Rybalko, V. Zhuravlev, Y. Strobel, B. Holzapfel, and P. Berberich, *Solid State Commun.* **80**, 201 (1991).
11. I. Ya. Fugol, V. N. Samovarov, Yu. I. Rybalko, V. M. Zhuravlev, in: *Series Research Rep. of Physics «High-T_c Superconductivity»*, A. S. Davydov and V. M. Loctev (eds.), Springer-Verlag (1992), p. 115.

12. I. Fugol and V. Samovarov, in: *Studies of HTS*, V. 22, Narlikar (ed.), Nova Science Pub., Commack, New York (1997).
13. В. Н. Самоваров, М. Ю. Либин, И. Я. Фуголь, *ФНТ* **22**, 1245 (1996).
14. B. Beschoten, S. Sadewasser, and Guntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1837 (1996).
15. A. S. Alexandrov, A. M. Bratkovsky, N. F. Mott, and E. K. H. Salje, *Physica* **C215**, 359 (1993).
16. Н. В. Аншукова, А. Н. Головашкин, Л. И. Иванова, О. Т. Малючков, А. П. Русаков, *ФНТ* **22**, 485 (1996).
17. Ю. Б. Гайдидей, В. М. Локтев, *ФНТ* **18**, 135 (1992).
18. J. Ranninger and J. M. Robin, *Physica* **C253**, 279 (1995).
19. A. V. Puchkov, D. N. Basov, and T. Timusk, submitted to *J. Phys. Condens. Matter* (1996).

Temperature peculiarities in IR reflection spectra of superconducting YBaCuO films

I. Ya. Fugol, V. N. Svishchev, and M. Yu. Libin

We have measured the reflection spectra of YBaCuO superconducting films with moderate and optimal doping in IR region 2500–10 000 cm^{-1} at temperatures varied from 5 to 200 K. The experimental results strongly support the onset of optical response to the superconducting transition at the point $T = T_c$ and the sensitivity of the IR spectra to the phase ordering temperature $T^* > T_c$. Above T_c the samples of optimal doping exhibit reproducible temperature changes. It is shown, that the two component model of carriers, including light fermions and heavy bosons, is most adequate for the description of all the optical data. The optical data made it possible to restore the phase state diagram in T - x coordinates for $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$.