Физика низких температур, 1995, т. 21, № 8, с. 878–881 УДК 538.945

Оптический отклик на сверхпроводящий переход: альтернативные критерии для инфракрасного и видимого диапазонов частот

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

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47

Статья поступила в редакцию 9 февраля 1995 г., после переработки 21 марта 1995 г.

Проведены сравнительные оптические измерения температурного поведения пропускания сверхпроводящих пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ для видимых и инфракрасных световых полей. Экспериментально выделены два различных электронно-структурных орто-состояния (высокотемпературная и низкотемпературна фазы), которые определяют альтернативное температурное поведение пропускания в видимой и инфракрасной областях и его чувствительность к T_c. Экспериментальные факты свидетельствуют о существовании двух различных механизмов спаривания в этих фазах, ответственных за образование двухкомпонентного сверхпроводящего конденсата в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$.

Проведено порівняльні оптичні вимірювання температурної поведінки пропускання надпровідних плівок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ в видимих та інфрачервоних полях. Експериментально виділено два різних електронно-структурних орто-стана (високотемпературна і низькотемпературна фази), котрі визначають альтернативну температурну поведінку пропускання у видимій та інфрачервоній областях і його чутливість до T_c. Експериментальні факти свідчать про наявність двох різних механізмів спарювання в цих фазах, відповідальних за утворення двокомпонентного надпровідного конденсату в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$.

В традиционных БКШ-сверхпроводниках в области частот, превосходящих энергию сверхпроводящей щели ($\hbar\omega >> \Delta$), оптический отклик спектров поглощения и отражения на сверхпроводящий переход не обнаруживается. Поэтому неожиданным было появление особенности вблизи T_c в спектрах медно-оксидных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) в области высоких частот. Впервые оптический отклик медных оксидов на появление сверхпроводимости (СП) был обнаружен в спектрах видимого диапазона частот 1,5–3,0 эВ в [1,2], а для ближней инфракрасной области 0,5–1,0 эВ в [3,4]. Последующие экспериментальные работы этих авторов подтвердили существование этого необычного эффекта в образцах ВТСП разного состава в широком интервале допирования и показали, что отклик возникает на оптических переходах, принадлежащих проводящей плоскости CuO_2 [5–7]. Механизм оптического отклика на СП фазу обсуждался с разных точек зрения в [8–10] и до сих пор остается дискуссионным. Существует также ряд неясных моментов в температурном поведении спектров поглощения и отражения выше T_c. В данной работе мы концентрируем внимание на условиях возникновения чувствительности к СП фазе, не касаясь других вопросов температурного поведения спектров. Нами обнаружено, что существование оптического отклика в диапазоне видимых и инфракрасных частот непосредственно связано с высокотемпературным фазовым переходом вблизи 160 K. Оказалось, что более высокотемпературная фаза, существующая при $T > 160$ K, главным образом ответственна за чувствительность к T_c в инфракрасной области спектра и, наоборот, — низкотемпературная фаза при $T < 160$ K ответственна за чувствительность в видимых спектрах. Полученный результат свидетельствует в пользу существования двух типов носителей в сверхпроводящем конденсате $YBa_2Cu_3O_{6+x}$.

В экспериментах использовался набор c-ориентированных монокристаллических пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с пониженным кислородным содержанием (underdoping), так что температуры СП перехода лежали в области 55–65 K. Спектры пропускания тонких пленок (l = 2 300 Å) измерялись в области частот межзонных переходов, 1,5–3,0 эВ > $> E_g$, и в области внутризонных переходов, 0,3–0,8 эВ < E_g, где $E_g \approx 1{,}5$ эВ — энергия оптической щели с переносом заряда между гибридизированной валентной зоной и верхней зоной Хаббарда. Температурное сканирование интенсивности пропускания проводилось в интервале 220–10 K для ряда частот внутри межзонной и внутризонной по-

© И. Я. Фуголь, В. Н. Самоваров, В. Н. Свищев, М. Ю. Либин, 1995

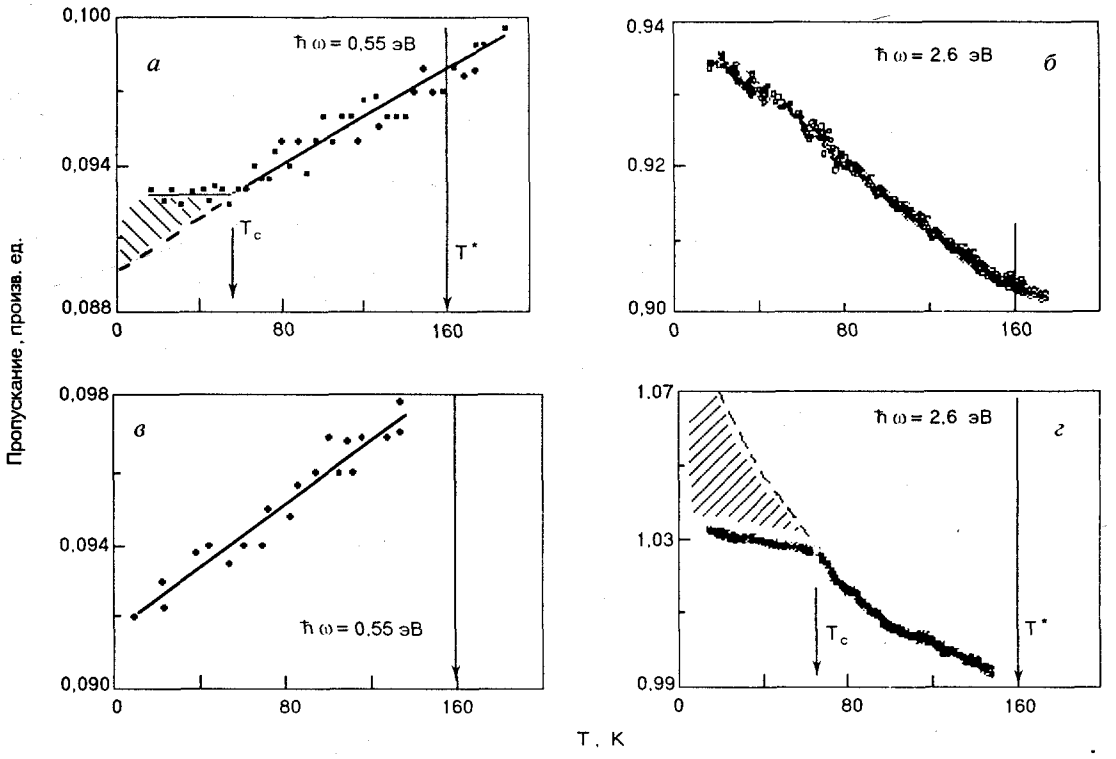

Рис. 1. Температурное поведение интенсивности оптического пропускания $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($x \approx 0{,}6$) для ближней инфракрасной области спектра (*а,в*) и для видимой области (*б,г*) при охлаждении от различных начальных температур.

лос, имеющих максимумы вблизи 2,6 и 0,6 эВ соответственно. В настоящем сообщении мы приводим данные только для режима охлаждения. (Возникновение гистерезисного хода пропускания при нагреве и влияние на него термоциклирования будут рассмотрены отдельно.)

В процессе спектральных измерений была выделена область температур вблизи 160 K, критическим образом влияющая на чувствительность сигнала пропускания к T_c. На рис. 1 представлены серии кривых пропускания от температуры для видимого ($\hbar\omega$ = 2,6 эВ) и инфракрасного (0,55 эВ) диапазонов частот при разных начальных условиях охлаждения пленок. Для измерений использовались пленки одной и той же методики приготовления с близкими T_c. Рисунок 1,*а,б* соответствует начальным условиям охлаждения от $T > 160$ K, а рис. 1,*в,г* — охлаждению от $T < 160$ K. Чтобы продемонстрировать два предельных случая, мы каждый раз перед началом температурного сканирования выдерживали образец в начальной точке охлаждения более одного часа. Время охлаждения образца до T_c было заметно меньше (< 8мин).

Отметим, что точка $T^* \approx 160$ K в умеренно допированных образцах $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ выделялась в различных экспериментах по электрическим, магнитным и структурным данным. Вблизи T^* происходит увеличение проводимости, уменьшение коэффициента Холла, образование спиновой щели, структурное упорядочение [11,12]. В работе [12] показано, что прохождение этой точки при термоциклировании образца влияет на его критическую температуру, причем отличия в T_c могут достигать $\Delta T = 7$ K. В [13] показано, что температурам $T_c < T < T^*$ соответствует область делокализованных бозонов. Таким образом, влияние температуры T^* на результаты оптических измерений представляется не случайным, и можно говорить, что T^* разделяет две ортофазы с разным параметром порядка.

Из приведенных рисунков видно, что наблюдается принципиальное отличие температурного хода спектров в зависимости от начальной точки охлаждения: 1) при длительной выдержке образца выше 160 K, когда замораживается высокотемпературная фаза, кривая интенсивности пропускания для внутризонных переходов демонстрирует чувствительность к T_c, в то время как в спектре межзонных переходов особенность в T_c отсутствует; 2) при длительной выдержке образца ниже 160 K, когда остается главным образом низкотемпературная фаза, ситуация становится инверсной — внут-

ризонные переходы не дают отклик при T_c, а межзонные переходы демонстрируют ярко выраженную особенность при T_c. Подобная закономерность наблюдалась нами для нескольких разных частот внутри межзонной и внутризонной полос поглощения и для нескольких разных пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $0{,}5 < x < 0{,}9$.

Обратим также внимание на то, что температурная производная пропускания выше T_c всегда имеет разный знак для видимого и инфракрасного диапазонов, независимо от начальных условий охлаждения. Это отражает более общий результат, наблюдаемый нами для всех частот в интервале 0,5–3 эВ, — температурное перераспределение спектрального веса между межзонным и внутризонным поглощением при $T > T_c$. Оказалось, что при уменьшении температуры до T_c происходит просветление образца в видимой области и увеличение поглощения в инфракрасной области спектра.

При температурах $T < T_c$ характер интегрального перераспределения, вообще говоря, изменяется. На рис. 1,*а*,*г* заштрихована площадь пропускания (поглощения), характеризующая интегральное температурное изменение за счет образования сверхпроводящего конденсата. В инфракрасной области пропускание увеличивается (поглощение и оптическая проводимость уменьшаются), а в видимой области пропускание уменьшается (поглощение и оптическая проводимость возрастают). Заштрихованная площадь на рис. 1,*а* показывает меру уменьшения площади внутризонной полосы поглощения при образовании СП конденсата для высокотемпературной фазы; а на рис. 1,*г* заштрихованная площадь показывает меру увеличения площади межзонной полосы поглощения при СП конденсации для низкотемпературной фазы. Именно эти исчезающие в инфракрасной области или появляющиеся в видимой области площади под кривыми поглощения определяют степень оптической чувствительности к T_c, и их можно связать с энергетическими характеристиками конденсата, в частности, со средней кинетической энергией частиц: поглощение пропорционально кинетической энергии конденсата [8,10]. В случае куперовского спаривания кинетическая энергия частиц при образовании конденсата увеличивается (появляется добавочная площадь в поглощении), в то время как для ситуации бозе-конденсации кинетическая энергия частиц уменьшается (исчезает площадь в поглощении). Результаты наших оптических экспериментов, по-видимому, свидетельствуют о возможной реализации для высокотемпературной фазы существования локальных пар (например, биполяронов), а для низкотемпературной фазы — ситуации более похожей на куперовское спаривание. Инфракрасная полоса 0,6 эВ, которой приписывают поляронную/биполяронную природу [3,4], дает отклик на сверхпроводимость при доминирующей роли локальных пар, а межзонная полоса, сформированная при сильном вкладе кислородно-медной гибридизации и корреляционных эффектов [14], чувствует более делокализованные куперовские пары. Идея о сосуществовании двух типов носителей (куперовских и локальных пар в ВТСП материалах) использовалась авторами работы [13] для теоретической интерпретации ряда экспериментальных данных на основе феноменологических соображений. Возможность же такого сосуществования в многослойных купратах (в том числе в двухслойном соединении Y–Ba–Cu–O) недавно доказана в работе [15] при рассмотрении двумерного металла с несколькими зонами проводимости, уровень Ферми которого расположен существенно неодинаково относительно дна каждой из этих зон. О наблюдении двух СП щелей в Y–Ba–Cu–O сообщалось уже в первых работах по туннельным экспериментам [16].

Итак, сравнительные оптические эксперименты для видимой и инфракрасной областей показали, что два граничных электронно-структурных состояния $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ предопределяют различные условия поведения носителей в СП конденсате, приводя к двум альтернативным спектральным ситуациям. Высокотемпературная фаза способствует спариванию носителей по биполяронному механизму, а более упорядоченная низкотемпературная фаза — по механизму куперовского спаривания. Можно предположить, что СП конденсат в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ является, по меньшей мере, двухкомпонентным.

Авторы выражают благодарность профессору G. Saemann-Ischenko и его коллегам из Университета Эрланген за представленные пленки и их характеризацию, П. А. Бахтину за поддержку работы, а также В. М. Локтеву за полезные замечания при ее обсуждении.

Работа выполнялась по тематике Государственного комитета Украины по вопросам науки и технологий.

1. И. Я. Фуголь, В. Н. Самоваров, Ю. И. Рыбалко, В. М. Журавлев, П. Берберих, *СФХТ* **4**, 109 (1991).
2. I. Fugol, G. Saemann-Ischenko, V. Samovarov, Yu. Rybalko, V. Zhuravlev, Y. Ströbel, B. Holzapfel, and P. Berberich, *Solid State Commun.* **80**, 201 (1991).
3. H. L. Dewing and E. K. H. Salje, *Supercon. Sci. Technol.* **5**, 50 (1992).
4. C. H. Rüscher, M. Götte, B. Schmidt, C. Quitmann, and G. Güntherodt, *Physica* **C204**, 30 (1992).
5. C. H. Rüscher and M. Götte, *Solid State Commun.* **85**, 393 (1993).
6. I. Fugol, V. Samovarov, A. Ratner, V. Zhuravlev, G. Saemann-Ischenko, M. Lippert, and B. Holzapfel, *Physica* **C216**, 391 (1993).
7. H. L. Dewing and E. K. H. Salje, *J. Solid State Chem.* **100**, 363 (1992).
8. J. E. Hirsch, *Physica* **C199**, 305 (1992).

9. Ю. Б. Гайдидей, В. М. Локтев, *ФНТ* **18**, 135 (1992).
10. A. S. Alexandrov, A. M. Bratkovsky, N. F. Mott, and E. K. H. Salje, *Physica* **C215**, 359 (1993).
11. A. S. Alexandrov, A. M. Bratkovsky, and N. F. Mott, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1734 (1994).
12. В. М. Дмитриев, А. П. Исакина, И. Г. Корсунская, И. В. Кривошей, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, А. И. Прохватилов, *ФНТ* **20**, 12 (1994).
13. A. Kallio, V. Apaja, X. Xiong, and S. Pöykkö, *Physica* **C219**, 340 (1994).
14. H. Eskes, M. B. Meinders, and G. A. Sawatzky, *Phys. Rev. Lett.* **67** 1035 (1991).
15. Э. В. Горбар, В. М. Локтев, С. Г. Шарапов, *Препринт ИТФ*-94-14Р (1994); *ФНТ* **21**, 421 (1995).
16. И. К. Янсон, Л. Ф. Рыбальченко, В. В. Фисун, Н. Л. Бобров, М. А. Оболенский, Ю. Д. Третьяков, А. Р. Кауль, И. Э. Грабай, *ФНТ* **15**, 803 (1989).

Optical response to superconducting transition: alternative criteria for infrared and visible frequency ranges

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

Comparison optical measurements of temperature behavior of transmission of superconducting $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ films are performed in visible and infrared light fields. We manage to distinguish two electronic structural ortho-states (high- and low temperature phase) which define the alternative temperature behaviors of visible and infra-red transmission and the sensitivity to T_c. The experimental data suggest that there are two different mechanisms of pairing in the HP and LP phases which are responsible for the formation of a two-component superconductivity condensate in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$.