

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ПАРАМЕТРОВ АКТИВНЫХ В КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЯНИИ ФОНОНОВ В ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНКАХ Y-Ba-Cu-O

Ю. А. Алещенко, Л. К. Водопьянов, С. П. Козырев,
И. В. Кучеренко, Д. Н. Токарчук

Методом спектроскопии комбинационного рассеяния света исследованы температурные зависимости частот и затухания КР-активных фононов, относящихся к плоскостям CuO_2 в эпитаксиальных пленках Y-Ba-Cu-O. Результаты хорошо согласуются с теоретическими расчетами, проведенными в рамках модели сильной связи. Определена величина сверхпроводящей энергетической щели ($2\Delta/kT_c = 6,1$).

Несмотря на большое число выполненных работ, механизм высокотемпературной сверхпроводимости остается до сих пор неясен. Было предложено много различных моделей образования куперовских пар. Однако возможные механизмы с участием фононов не получили достаточного внимания из-за малости наблюдаемого изотопического эффекта. Между тем эксперимент свидетельствует о том, что фононы играют если не определяющую, то вполне заметную роль в механизме высокотемпературной сверхпроводимости. Так, в работе /1/ было показано, что в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ фонон с частотой $\sim 340 \text{ см}^{-1}$, относящийся к "сверхпроводящей" плоскости CuO_2 , при понижении температуры ниже T_c испытывает размягчение. Аналогичный результат был получен для фонона 435 см^{-1} /2/. О том, что наблюдаемое размягчение фонона связано с возникновением сверхпроводимости, свидетельствует тот факт, что оно не наблюдается в несверхпроводящих аналогах тех же соединений ($\delta = 0$) и в случае разрушения сверхпроводимости магнитным полем /3/.

Эффект размягчения длинноволновых оптических фононов использовали для определения параметра сверхпроводящей энергетической щели 2Δ . В работах Кардоны с сотрудниками /4, 5/ для этой цели использовался метод комбинационного рассеяния (КР) света. Исследовали спектры КР в поликристаллических образцах редкоземельных оксидных соединений $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ ($\text{R} = \text{Eu}, \text{Y}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Dy}$). Используя материалы с различными редкоземельными элементами, можно было менять частоты фононов, относящихся к плоскостям CuO_2 , приближая их к энергии щели. Существенно при этом, что при изменении R величина щели остается неизменной. Она должна находиться между энергией фонона, не испытывающего сдвига частоты и уширения при переходе через T_c , и

фонона, который такие изменения испытывает (т.е. имеет достаточно высокую энергию, чтобы разрушить куперовские пары). Анализ полученных в /4, 5/ результатов позволил получить оценку $2\Delta/kT_c \approx 4,9$. Однако недостаток этих работ состоит в том, что они были выполнены на поликристаллах, для которых интерпретация спектров КР не всегда однозначна.

В теоретической работе /6/ на основе модели сильной связи было рассчитано изменение собственной части энергии фононов при переходе в сверхпроводящее состояние. Сравнение экспериментальных результатов /4, 5/ с теоретическими расчетами /6/ приводит к хорошему согласию.

В настоящей работе предпринята попытка изучения положения и ширины фононов ~ 340 и 500 см^{-1} при переходе в сверхпроводящее состояние в эпитаксиальных пленках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$. Для этой цели использовался метод лазерной спектроскопии комбинационного рассеяния света. Более высокое совершенство эпитаксиальных пленок по сравнению с поликристаллами позволяло надеяться на получение более точного значения величины энергетической щели.

Исследуемые эпитаксиальные пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ получали ВЧ магнетронным распылением оксидных мишеней на монокристаллические подложки SrTiO_3 (100). После нанесения пленки отжигались в кислороде при температуре 950°C в течение 30 мин. Снятые дифрактограммы показали, что полученные таким образом эпитаксиальные пленки были однофазны и имели с-ориентацию. Переход в сверхпроводящее состояние происходил при $T_c = 86 \text{ K}$, $\Delta T_c = 3 \text{ K}$.

Спектры комбинационного рассеяния света снимались при возбуждении наиболее интенсивными линиями Ag^+ лазера в геометрии обратного рассеяния в интервале температур 6 — 300 К. Рассеянный свет анализировался тройным монохроматором, включенным по схеме "вычитания дисперсии" и регистрировался оптическим многоканальным анализатором. Температурные измерения проводились с использованием гелиевого криостата "Displex".

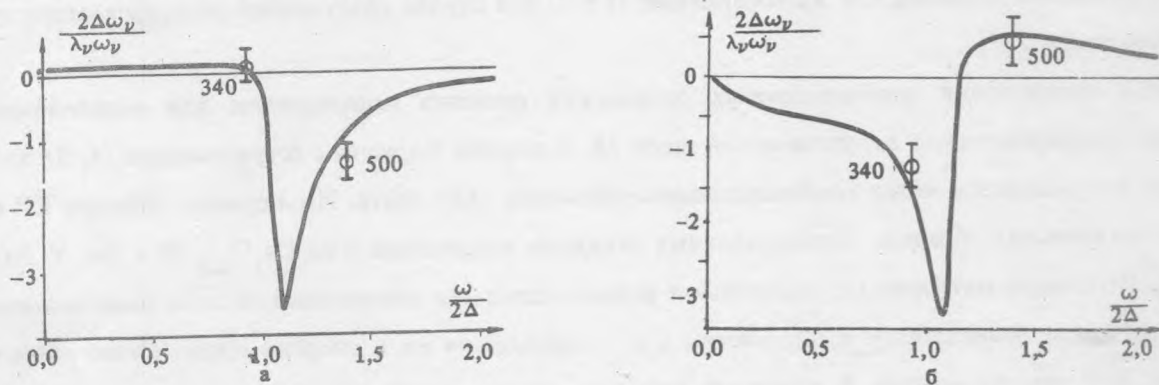


Рис. 1. Спектры КР эпитаксиальной пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ снятые в поляризационной конфигурации $z(x, x)z$ при температуре 300 К (а) и 15 К (б).

Типичные спектры, снятые в поляризационной конфигурации $z(x, x)\bar{z}$ при $T = 15$ и 300 К, представлены на рис. 1. Те же спектры, но снятые при скрещенных поляризациях $z(x, y)\bar{z}$, обнаруживают только однородный фон, без какой-либо заметной структуры. Следует отметить, что форма пленки (тонкий слой) позволяет реализовать поляризацию только в плоскости, параллельной подложке (плоскость a-b).

Все проявляющиеся в спектрах рис. 1 полосы КР были отнесены, исходя из теоретико-группового анализа /7/, к определенным колебательным возбуждениям. Полосы 120 , 145 , 435 и 502 см^{-1} ($T = 300$ К) имеют симметрию A_{1g} , а полоса 343 см^{-1} — симметрию B_{1g} . Наибольший интерес для нас представляли моды 343 и 435 см^{-1} , связанные с внеплоскостными колебаниями атомов кислорода 02 и 03, лежащих в сверхпроводящих плоскостях CuO_2 , а также мода 502 см^{-1} , отражающая колебания мостикового кислорода 04. Однако полоса 435 см^{-1} имеет слабую интенсивность. Это связано с тем, что для строго ориентированного кристалла эта полоса в поляризации $z(x, x)\bar{z}$ не должна проявляться, так как соответствующая компонента тензора рассеяния $\alpha_{xx} = 0$. Ее появление в спектре пленки свидетельствует о некотором отклонении оси с пленки от нормали к подложке. Исходя из этих соображений мы анализировали температурную зависимость положения и ширины только интенсивных полос 343 и 500 см^{-1} .

Форма полосы 343 см^{-1} свидетельствует о сильном электрон-фононном взаимодействии. Действительно, несимметричный вид этой полосы предполагает наличие механизма Фано, т.е. взаимодействия дискретного элементарного возбуждения (фонона) с непрерывным континуумом электронных переходов, связанных с межзонными возбуждениями носителей в нормальном состоянии и с распадом куперовских пар при энергиях возбуждающего излучения, больших ширины сверхпроводящей энергетической щели 2Δ — в сверхпроводящем состоянии. Полоса 502 см^{-1} имеет более симметричную форму и хорошо описывается контуром Лоренца. Для определения истинной частоты фонона и его ширины из анализа формы полосы 343 см^{-1} последняя аппроксимировалась с использованием аналитического выражения для профиля Фано /7/:

$$J = A \frac{(\epsilon + q)^2}{1 + \epsilon^2} + B,$$

где $\epsilon = (\omega - \omega_0)/\Gamma$, $\omega_0 = 2\pi\nu_0$ — истинная частота фонона, Γ — полуширина линии на полувысоте, q — параметр асимметрии линии, A и B — константы, c — скорость света в вакууме.

Определение параметров ω_0 и Γ производилось подгонкой на ЭВМ к экспериментальной форме полос КР. Зависимость частоты фонона ω_0 и затухания Γ для моды 340 см^{-1} от температуры представлена на рис. 2а, б. Видно, что при понижении температуры ниже T_c этот фотон заметно размягчается. Но величина этого размягчения ($\sim 3 \text{ см}^{-1}$) существенно меньше, чем сообщалось в работах /1, 4/ ($\sim 8 \text{ см}^{-1}$). Что касается температурной зависимости ширины изучаемой полосы (рис. 2б), то она резко отличается от зависимости, полученной в /4/, где при $T \geq T_c$ наблюдалось уширение $\sim 10 \text{ см}^{-1}$. Пунктирной линией на рис. 2б изображено ожидаемое изменение ширины моды 340 см^{-1} за счет ангармонического распада данного фонона. Видно, что при понижении температуры ниже T_c дополнительного уширения не наблюдается.

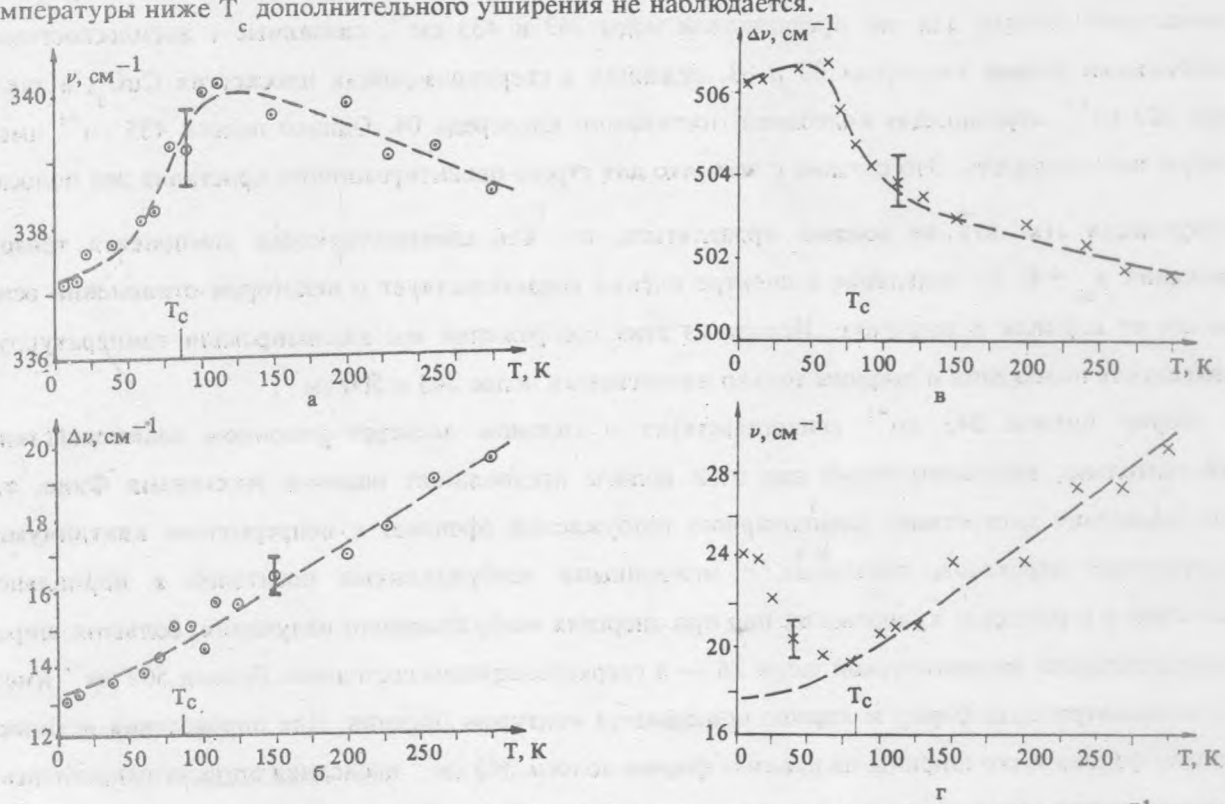


Рис. 2. Температурные зависимости частоты (а, в) и ширины линии (б, г) фононов с частотой $\sim 340 \text{ см}^{-1}$ (а, б) и $\sim 500 \text{ см}^{-1}$ (в, г).

Аналогичные зависимости для моды $\sim 500 \text{ см}^{-1}$ представлены на рис. 2в, г. Их сравнение с кривыми рис. 2а,б показывает, что они существенно различаются. При понижении температуры от 100 до 15 К частота моды заметно возрастает. В том же температурном интервале наблюдается увеличение ширины фотонной линии примерно на 8 см^{-1} . Такой характер температурной зависимости частоты и затухания моды 500 см^{-1} качественно совпадает с аналогичными зависимостями, обнаруженными в /4/ для фонона 435 см^{-1} . Что касается измерений

непосредственно параметров фонона 500 см^{-1} , то такие данные, насколько нам известно, в литературе отсутствуют. Такое невнимание к данному фонону объясняется, по-видимому, тем, что он, отражая колебания мостикового кислорода O_4 , связывающего плоскости CuO_2 с цепочками CuO , непосредственно не связан со "сверхпроводящими" плоскостями Cu-O . Однако расчеты, проведенные в самое последнее время /8, 9/, показали наличие заметной гибридизации между колебаниями 340 и 435 см^{-1} , непосредственно относящимися к плоскостям CuO_2 , и модой 500 см^{-1} . Наблюдаемое в настоящей работе изменение в районе T_c частоты и затухания этого фонона служит экспериментальным доказательством вышеуказанных теоретических моделей.

Полученные нами экспериментальные данные мы сравнивали с теоретическими расчетами, проведенными в /6/ на основе модели сильной связи электронов с фононами. В результате этих расчетов была определена температурная зависимость комплексной величины: собственной части энергии фононной подсистемы с учетом формирования энергетической щели при переходе в сверхпроводящее состояние. Причем действительная часть собственной части энергии определяет частоту фонона, а мнимая — его затухание. Для сравнения теории с экспериментом необходимо было знать величину постоянной электрон-фононного взаимодействия λ_ν . Эта величина была рассчитана для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ в работе /8/. В качестве параметра в теоретических расчетах /8/ учтена также ширина сверхпроводящей щели 2Δ . При сравнении в широком интервале температур наших экспериментальных результатов с теорией /6/ наилучшее согласие получалось при значении $2\Delta/kT_c = 6,1$.

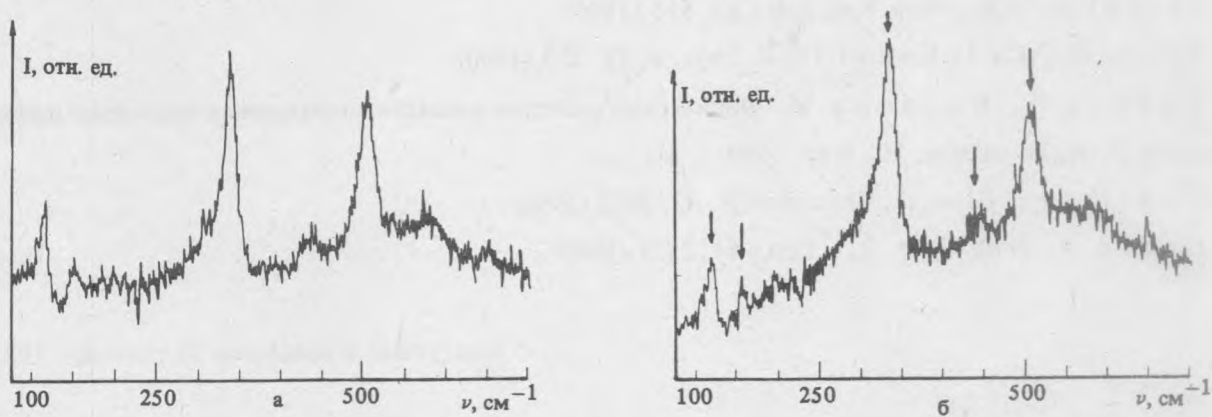


Рис. 3. Расчетная энергетическая зависимость ($T = 15 \text{ K}$) нормализованного сдвига частоты фонона $2\Delta\omega_\nu/\omega_\nu\Gamma_\nu$ (а) и его ширины $2\Delta\Gamma_\nu/\lambda_\nu\omega_\nu$ (б) и экспериментальные данные для фононов 340 и 500 см^{-1} .

Для примера на рис. 3 приведены теоретические зависимости для $T = 15 \text{ K}$ действительной и мнимой частей собственной части энергии. Для удобства сравнения с экспериментом рассчитывался

нормализованный сдвиг частоты $2\Delta\omega_\nu/\lambda_\nu\omega_\nu$ и изменение затухания $2\Delta\Gamma_\nu/\lambda_\nu\omega_\nu$, где $\Delta\omega_\nu$ и $\Delta\Gamma_\nu$ — изменение соответственно частоты и затухания ν -го фонона при охлаждении образца от 100 до 15 К. Открытыми кружками на рис. 3а и б изображены полученные нами экспериментальные точки, отражающие сдвиги частот и ширин фононов 340 и 500 см^{-1} . Видно хорошее согласие между теорией и экспериментом.

Таким образом, полученные нами экспериментальные данные, хотя и отличаются (для фонона 340 см^{-1}) от результатов опубликованных ранее работ, хорошо согласуются с теоретическими расчетами, выполненными на основе модели сильной связи. Из анализа полученных данных определена величина энергетической щели $2\Delta/kT_c = 6,1$. Обнаруженное расхождение с работами других авторов, возможно, объясняется тем, что энергия фонона $\sim 340 \text{ см}^{-1}$ сравнима с величиной 2Δ и поэтому небольшие изменения химического состава образца могут приводить к существенным изменениям электрон-фононного взаимодействия.

ЛИТЕРАТУРА

1. Macfarlane R. M. et al., Solid State Commun., **63**, 831 (1987).
2. McCarty K. et al., Phys. Rev. B., **42**, 2728 (1990).
3. Ruf T. Phys. Rev. B, **38**, 11985 (1988).
4. Thomsen C. et al., Solid State Commun., **75**, 219 (1990).
5. Friedl B. et al., Phys. Rev. Lett., **65**, 915 (1990).
6. Zeiger R., Zwicknagl G. Z. Phys. B, **78**, 175 (1990).
7. Томсен К., Кардона М. Физические свойства высокотемпературных сверхпроводников, под ред. Д.М. Гинзберга, М., Мир, 1990, с. 411.
8. Rodriguez C. et al., Phys. Rev. B, **42**, 2692 (1990).
9. Cohen R. et al. Phys. Rev. Lett., **64**, 2575 (1990).

Поступила в редакцию 23 сентября 1991 г.