

УДК 537.311.3:539.216:539.23

АНОМАЛИИ ФОТОЭМИССИОННЫХ СПЕКТРОВ КВАНТОВОРАЗМЕРНЫХ ОБЪЕКТОВ И МОДЕЛЬ СВЕРХСИЛЬНОГО ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

А. И. Головашкин, А. Н. Жерихин¹, Л. Н. Жерихина,
Г. В. Кулешова¹, А. М. Цховребов

Измерены фотоэмиссионные спектры висмутовых пленок квантующих толщин. Наблюдаемые аномалии фотоэффекта объясняются с привлечением зонной модели сильной связи. На основе полученных результатов построена модель сильного электрон-фононного взаимодействия. Рассмотрены особенности проявления изотопического эффекта в сверхпроводниках с подобным механизмом сверхсильного взаимодействия.

В работах [1, 2] нами было исследовано изменение работы выхода внешнего фотоэффекта по мере уменьшения толщин пленок висмута, из которых эмиттировались электроны. Пленки находились в области квантовых толщин, когда длина волны де Бройля λ_F электронов с энергией Ферми металла становится соизмеримой с толщиной L . При этом граничные условия для волновой функции, определяющие внутреннее отражение электронов от поверхностей пленки, приводят к тому, что поперечное движение носителей заряда оказывается заквантованным.

Уровни размерного квантования поперечного движения зависят от толщины пленки подобно дискретным уровням в потенциальной яме с бесконечными стенками:

$$E_n(L) = \frac{\pi^2 \hbar^2 n^2}{2m_z L^2} \sim \frac{1}{L^2},$$

¹Московский инженерно-физический институт (Государственный университет).

где m_z – эффективная масса в поперечном направлении, $E_n(L)$ – собственное значение энергии n -го уровня для пленки толщины L , n – целое число, \hbar – постоянная Планка. Параболоиды, описывающие закон дисперсии для движения в плоскости пленки, будут отсчитываться от указанных уровней размерного квантования. Из приведенной формулы видно, что с уменьшением толщины все параболоиды поднимаются вверх по энергии. Это должно привести к снижению работы выхода при уменьшении толщины пленки.

Такое снижение работы выхода действительно было зарегистрировано при исследовании висмутовых пленок по сдвигу их фотоэмиссионных спектров (ФЭС). Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. В висмуте толщине $L_{thin} = 7 \text{ нм}$ ($7 \text{ нм} \ll \lambda_F$) отвечает существенно ультраквантовая (НҚ) область и уменьшение работы выхода электрона из пленки в этой области по отношению к работе выхода электрона, покидающего “толстую” ($L_{fat} > 40 \text{ нм} \approx \lambda_F$) пленку, должно составлять значение $E_F \lambda_F^2 / L_{thin}^2 \approx 1 \text{ эВ}$. Однако, реально измеренные в наших экспериментах сдвиги ФЭС в ультратонких пленках ($L_{thin} = 7 \text{ нм}$) дали величину всего лишь 300 мэВ (рис. 2, область 1).

Такое несоответствие формально показывает, что эффективная масса электрона m_z в исследовавшихся образцах оказывается существенно (примерно втрое – $1 \text{ эВ} / 300 \text{ мэВ}$) больше своего значения для массивного висмута. При этом, наряду с достаточно резким, но небольшим по величине (300 мэВ) сдвигом ФЭС в НҚ области (рис. 2, область 1), наблюдается значительный сдвиг спектров пленок, когда их толщина лежит в заведомо не квантовой области ($L_{fat} > 40 \text{ нм}$ (рис. 2, область 2)). Уменьшение работы выхода, отвечающее слабо зависящему от L сдвигу (“медленное уменьшение”) спектров в сумме достигает величины более чем в 1 эВ (рис. 2, область 2) в “толстых” пленках. Это изменение отсчитывается по отношению к работе выхода из массивного материала, от которой отсчитывается энергетическая шкала на рис. 2. Подъем уровня Ферми на 1 эВ – эффект заметный, сильный и трудно объяснимый в рамках известных механизмов квантоворазмерных явлений.

Предполагая наличие общей природы у обоих эффектов (1 – “резкий” сдвиг на 300 мэВ при возможном 3-кратном росте эффективной массы; 2 – значительный, более 1 эВ , но “медленный” сдвиг работы выхода в неквантовой области толщин), мы воспользовались для их объяснения простейшей формулировкой модели сильной связи в задаче формирования зонной картины. Удобство и безальтернативность этой модели определяется простотой и возможностью в ее рамках задания зонной массы носителя не

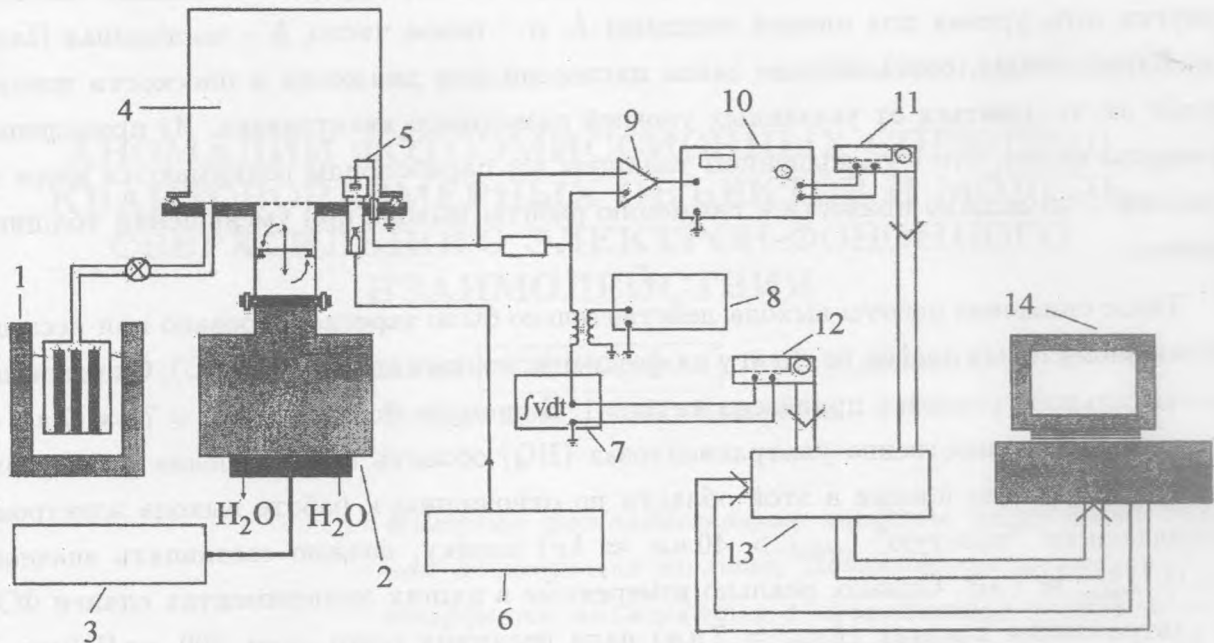


Рис. 1. Схема установки для записи фотоэмиссионных спектров. 1 – угольный сорбционный насос предварительной безмасляной откачки, 2 – магниторазрядный насос НОРД-250 с водяным охлаждением, 3 – блок питания магниторазрядного насоса БП-100, 4 – колпак вакуумной камеры, 5 – источник вакуумного ультрафиолета – ксеноновая лампа низкого давления, 6 – блок запуска и питания лампы, 7 – интегратор блока линейной развертки тормозящего напряжения, 8 – генератор НЧ модуляции ГЗ-122, 9 – малошумящий предусилитель п-236, 10 – селективный нановольтметр Упипап-233, 11 – вольтметр Щ300 для оцифровки амплитуды фототока, 12 – Щ300 для регистрации тормозящего напряжения, 13 – мультиплексор сопряжения с компьютером, 14 – компьютер АТ-386.

через затравочную массу свободного электрона, а через степень перекрытия электронных состояний на соседних узлах.

В кристалле согласно модели сильной связи волновую функцию электрона можно построить в виде линейной комбинации амплитуд вероятности его пребывания на соседних узлах. При малой амплитуде туннелирования рассматриваются только ближайшие соседи, чему отвечает обычный косинусоидальный закон дисперсии $E(p) = E_0 - H_T \cos(pa/\hbar)$, в котором туннельный гамильтониан представляется в виде $H_T = E_1 \exp(-a/L_T)$, где a – период решетки, L_T – туннельная длина, $\exp(-a/L_T)$ характеризует перекрытие волновых функций электронов на соседях. Пусть $E_1 = E_0$, что при бесконечной туннельной длине (т.е. по существу в случае свободных электро-

нов) отвечает квадратичному закону дисперсии без нулевой энергии. Тогда в качестве эффективной массы электрона получим $m^* = \left(\frac{\partial^2 E}{\partial p^2}\right)^{-1} = (\hbar/a)^2 \frac{\exp(a/L_T)}{E_0 \cos(pa/\hbar)}$. Выражая в косинусоидальном законе дисперсии E_0 через m^* , определим неявную зависимость $E(p)$ от L , рассматривая толщину L как физический размер, ограничивающий длину туннелирования: $L_T \leq L$,

$$E(p) = E_0 - E_0 \exp\left(\frac{-a}{L_T}\right) \cos\left(\frac{pa}{\hbar}\right) = \frac{(\hbar/a)^2}{m^*} \left(\frac{\exp(a/L_T)}{\cos(pa/\hbar)} - 1\right),$$

(m_f^* – эффективная масса электрона в пленке) или, ограничиваясь квадратичным разложением

$$E(p) \approx \frac{(\hbar/a)^2}{m^*} \left(\left(1 + \frac{(pa)^2}{2\hbar^2}\right) \exp\left(\frac{a}{L_T}\right) - 1 \right).$$

Если предположить, что L_T монотонно зависит от длины свободного пробега L_C , а последняя ограничивается толщиной L (в простейшем случае $L_T \sim L_C < L$), то уменьшению толщины в неквантовой области согласно последней формуле отвечает общий рост $E(p)$ (т.е. уменьшение работы выхода при фиксированном импульсе p). Действительно, считая $L_T < L$, $m^* = \text{const}$, следует ожидать роста $E(p) = E(p, L_T)$ по мере уменьшения L . Это делает возможным объяснение существенного (“медленного”) роста $E(p)$ в заведомо неквантоворазмерной области и отвечающего ему значительного снижения работы выхода (на 1 эВ), наблюдавшегося нами при фотоэмиссионных измерениях “толстых” пленок висмута. Ощутимое (1 эВ и более) изменение $E(p)$ согласно приведенной формуле следует ожидать именно для металлов с малой m^* (т.к. $E(p) \sim 1/m^*$), что и является специфическим свойством Bi , а рассмотрение аномально большой L_T в трехмерном пределе оправдывается тем, что длина свободного пробега электронов в висмуте при комнатной температуре может достигать 1 мкм.

Однако рост $E(p)$ по мере уменьшения L даже согласно последней формуле не может быть беспредельным ибо, ограничивая L_T реальным физическим размером (толщиной пленки L), мы выводим систему из соответствующего безграничному кристаллу состояния с минимальной энергией. При этом энергия системы растет, а энергия связи уменьшается, и, чтобы объяснить сохранение устойчивости достаточно тонкой пленки, по-видимому, следует отказаться от предположения о постоянстве эффективной массы. Тогда роль ответной реакции, ограничивающей “чрезмерный” рост энергии, может сыграть увеличение эффективной массы, которое косвенно было зарегистрировано в эксперименте в ультраквантовом пределе толщин. Таким образом, возвращаясь

к поведению ФЭС спектров в НQ области (рис. 2, область 1), где полученные данные указывают на рост эффективной массы примерно втрое, для объяснения этой аномалии можно также пользоваться “соображениями туннельной длины”.

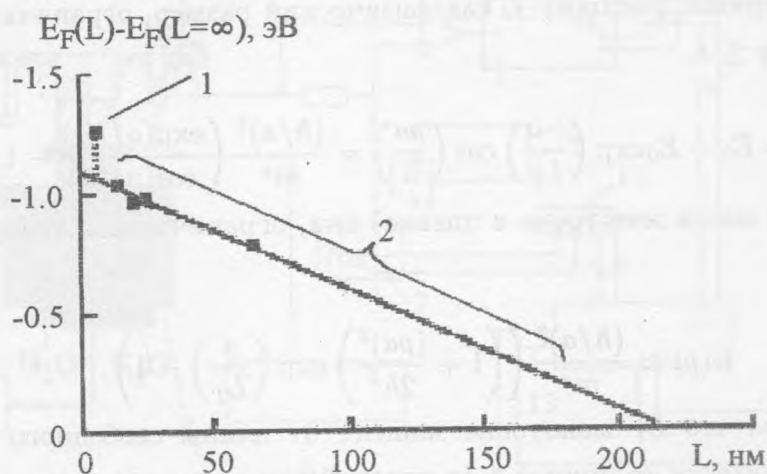


Рис. 2. Сдвиги $E_F(L)$, отвечающие экспериментальной зависимости работы выхода A от толщины висмутовых пленок L (росту E_F соответствует уменьшение A). Сдвиги энергии Ферми пленок отсчитываются от E_F массивного Bi . 1 – “резкое изменение” работы выхода в НQ области, 2 – “медленное изменение” в неквантовой области.

Качественное объяснение экспериментальной зависимости фотоэлектрического сдвига от L : “резкой” в 1-НQ-области и “медленной” в 2-“не квантовой” области в рамках последней формулы, не может претендовать на строгое совпадение. Формула лишь демонстрирует механизмы возникновения такой необычной зависимости, причем в соответствии с этими механизмами параметры, входящие в строгое выражение $E = E(p, L)$, сами должны зависеть от толщины пленки. С учетом этого формулу следует “уточнить”: $E(p) \approx \frac{(\hbar/a)^2}{m^*(L)} \left(\left(1 + \frac{(pa)^2}{2\hbar^2} \right) \exp\left(\frac{a}{L_T(L)}\right) - 1 \right)$, причем возможность строгого количественного совпадения формулы с экспериментом “содержится” в незадаанных точно зависимостях $m^* = m^*(L)$, $L = L_T(L)$.

Рациональное объяснение аномалий внешнего фотоэффекта в Bi пленках, основанное на представлениях модели сильной связи, демонстрирует на конкретном примере ее применимость не только к полупроводникам, но и к системам с металлической проводимостью, что делает актуальным исследование скрытых возможностей этой простейшей модели для физики металлов и сверхпроводимости.

Обратимся теперь к противоположному случаю – пусть туннельная длина неизменна, а E_0 и E_1 в косинусоидальном законе дисперсии являются константами, не зависящими от a , и будем при этом варьировать постоянную решетки a :

$$\delta E = (\partial E / \partial a) \delta a = ((E_0 / L_T) \exp(-a / L_T) \cos(ap / \hbar) + (pE_0 / \hbar) \exp(-a / L_T) \sin(ap / \hbar)) \delta a.$$

Если под δa подразумевать вторично квантованное фононное поле

$$\delta E_{p \rightarrow 0} = \left(\frac{\hat{H}_T}{L_T} \right) \delta a = \left(\frac{\hat{H}_T}{L_T} \right) \left(-i \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho V \omega_k}} \sum_k (\hat{a}_k^+ - \hat{a}_{-k}) e^{-i(kr + \omega_k t)} \right),$$

то получается, что энергия свободного носителя связана с процессом рождения и уничтожения фонона и это по смыслу аналогично известной модели электрон-фононного взаимодействия Фрѐлиха [3], используемой в классических БКШ теориях. Роль деформационного потенциала здесь выполняет отношение \hat{H}_T / L_T . Причем величина \hat{H}_T одновременно является и шириной зоны в модели сильной связи, а следовательно имеется веское основание ожидать, что такое взаимодействие окажется сильным. В отличие от обычного электрон-фононного взаимодействия, когда энергия электрона меняется за счет небольшой вариации решеточного потенциала, здесь имеет место квантовый эффект: изменение условий туннелирования под действием поля фононной волны. Квантовый эффект может оказаться сильнее классического, т.к. он не подвержен плазменной экранировке. Кроме того, обычный деформационный потенциал может быть дополнительно ослаблен как первая вариация решеточного потенциала вблизи состояния равновесия и может вообще оказаться порядка нуля в силу требований устойчивости. Найдем условие, отвечающее максимуму такого электрон-фононного взаимодействия, т.е. максимуму “квантового деформационного потенциала” $\hat{H}_T / L_T = E_0 / L_T \exp(-a / L_T)$:

$$\partial \{E_0 / L_T \exp(-a / L_T)\} / \partial L = -E_0 / L_T^2 \exp(-a / L_T) + a E_0 / L_T^3 \exp(-a / L_T) = 0.$$

Решение этого уравнения показывает, что взаимодействие наиболее сильно, когда $a = L_T$. Для этого в системе носители должны легко туннелировать со “своего” узла на соседний. В отличие от “привычной” модели Хаббарда [4 – 6] здесь подразумевается существенно не узкозонное приближение, благодаря чему, в частности, рассматриваемая модель становится значительно проще.

Подобный подход может быть реализован и в ВТСП системах. Но в условиях “сверхсильного” взаимодействия, требующего самосогласованного учета обратного воздействия электронной системы на решетку, могут также реализовываться неравновесные состояния кристалла, которым возможно отвечают трудно воспроизводимые факты обнаружения критических температур, очень больших [7 – 14] даже по меркам ВТСП. В таком случае “сверхсильное” электрон-фононное взаимодействие настолько деформирует решетку, что такая “сверхвысокотемпературная” сверхпроводимость проявляется уже не в качестве равновесного состояния единого кристалла, а в виде неравновесных сильно деформированных локальных включений и дефектов. Этим возможно хотя бы отчасти объясняется невозможность подобных эффектов при наблюдениях.

Рассмотрим некоторые особенности сверхпроводящего состояния, которые могут проявиться в случае сверхсильного электрон-фононного взаимодействия. При наиболее общем подходе к такому случаю, следовало бы проанализировать соответствующую систему интегральных уравнений Элиашберга [15], позволяющую в максимально согласованной степени исследовать поведение электронной и фононной частей системы, что и требуется при рассмотрении сильного электрон-фононного взаимодействия. Однако практически и при таком рассмотрении полного самосогласования достичь не удается. С другой стороны, можно было бы поискать подходы к асимптотике сильного электрон-фононного взаимодействия в рамках простейшей “доБКШ-овской” модели Купера [16]. Будучи очень простой, эта модель, тем не менее, является непертурбативной теорией и до определенного момента допускает наличие сильного электрон-фононного взаимодействия в рассматриваемой системе. Согласно Куперу, сначала записывается уравнение Шредингера, отвечающее квантово-механической задаче двух тел в системе общего центра масс, причем для отдельно взятой пары электронов роль электрон-фононного притяжения сводится к введению δ -образной потенциальной ямы глубины U . После элементарных преобразований возникает обычное интегральное уравнение, позволяющее определить сверхпроводящую щель Δ при нулевой температуре:

$$1 = -U \sum_{\epsilon_0 = \epsilon_F}^{\epsilon_m = \epsilon_F + \hbar\omega_D} \frac{N(k, \epsilon_k) d\epsilon_k}{E - E_k - \epsilon_k},$$

где $\hbar\omega_D$ – энергия Дебаевских фононов, E_k – энергия центра масс куперовской пары, k и ϵ_k – волновой вектор и энергия относительного движения электронов в паре, $N(k, \epsilon_k)$ плотность состояний двухэлектронных состояний, ϵ_F – энергия Ферми, E – собственное значение энергии двухчастичной задачи. Предположим, что в асимптотическом пределе сильной связи (“сверхсильная связь”) реализуется соотношение $\Delta \gg \hbar\omega_D \Rightarrow |\delta(E - E_k - \epsilon_k)| \approx \hbar\omega_D \ll \Delta$, которое означает, что интервал изменения энергетического знаменателя $\delta(E - E_k - \epsilon_k)$ намного меньше его

среднего значения, примерно равного Δ (т.е. ширине щели в спектре квазичастичных возбуждений). Тогда в результате замены знаменателя подынтегрального выражения его средним значением Δ , получим:

$$1 = -U \int_{\epsilon_0=\epsilon_F}^{\epsilon_m=\epsilon_F+\hbar\omega_D} \frac{N(k, \epsilon_k) d\epsilon_k}{E - E_k - \epsilon_k} \approx -U \int_{\epsilon_F}^{\epsilon_F+\hbar\omega_D} \frac{N_F \epsilon_k}{-\Delta} = \frac{UN_F}{\Delta} \hbar\omega_D,$$

$\Delta \approx \hbar\omega_D UN_F$. В приближении слабой связи, как известно, получается $\Delta \approx \hbar\omega_D \exp\left(-\frac{1}{UN_F}\right)$. Обе формулы демонстрируют пропорциональную зависимость Δ от энергии дебаевских фононов и обеспечивают монотонный рост сверхпроводящей щели при увеличении фактора $\lambda = UN_F$. Разница определяется насыщением этого роста в случае слабой связи $\Delta < \hbar\omega_D$ при $\lambda \rightarrow \infty$ (хотя, строго говоря, последняя формула при $\lambda \rightarrow \infty$ вообще неприменима). При подобном получении “сверхсильной асимптотики”, под энергией $\hbar\omega_D$ необязательно подразумевать именно энергию Дебаевских фононов. Обмен любыми бозонами, обеспечивающими достаточно сильное электрон-электронное взаимодействие, может определить масштаб энергии, соответствующий при электрон-фононном взаимодействии величине $\hbar\omega_D$.

Что же в случае сверхсильного электрон-фононного взаимодействия обеспечивает ненасыщаемый рост Δ , явно не ограниченный энергией Дебаевских фононов? Отсутствие таких ограничений интерпретируется как переход к классическому пределу для фононных полей, чему в квантовой механике соответствует рассмотрение многофононных процессов. Простой и популярной в теории сверхпроводимости моделью электрон-фононного взаимодействия, отвечающей переходу к классическому пределу фононной системы, является известная модель “желе” [17]. Квантово-механическому рассмотрению многофононных процессов соответствует учет вклада многофононных виртуальных состояний при расчете параметров электрон-фононного взаимодействия (эффект выходит за рамки уравнений Элиашберга), эффект индуцированного испускания фононов, учет энергетических поправок электрон-фононного взаимодействия высших порядков. Очевидно здесь только то, что вклад всех этих эффектов становится существенным именно в случае сильного электрон-фононного взаимодействия.

Рост $\hbar\omega_D$ таким образом должен приводить к увеличению Δ и соответственно к росту критической температуры. Гипотетически увеличить $\hbar\omega_D = \frac{\hbar}{a} \sqrt{E/\rho}$ можно, повысив жесткость кристаллической решетки (модуль Юнга E). Однако, практически, рост $\hbar\omega_D$ реализуется только в условиях изотопического эффекта, т.е. при изменении плотности ρ за счет введения в кристаллическую решетку более легких изотопов ис-

ходного химического элемента ($M_i < M_{i0}$). В случае слабой связи это отразится на T_K в виде обычного изотопического эффекта $T_K \sim 1/\sqrt{M_i}$, на основе которого базируется экспериментальное доказательство доминирующей роли электрон-фононного взаимодействия в классической БКШ сверхпроводимости [18, 19]. Однако в случае сильного электрон-фононного взаимодействия следует учесть фононный, т.е. решетчатый вклад и в эффективную массу носителя $m^* = m_0^* + \alpha m_0^* F(M_i)$. В пределе “сверхсильного” взаимодействия с решеткой, $\alpha F(M_i)$ может оказаться настолько большим, что затравочной массой носителя m_0^* в этой формуле станет возможно пренебречь ($F(M_i)$ – монотонно возрастающая функция массы иона). Но массе носителя пропорциональна плотность состояний, в силу этого при введении более легкого изотопа в пределе “сверхсильного взаимодействия” Δ должна уменьшиться. Суммарный изотоп-эффект от действия обоих факторов дает для ширины щели:

$$\Delta(M_i) = \hbar \omega_D \sqrt{\frac{M_{i0}}{M_i}} N_{F0} \frac{m_0^* + \alpha m_0^* F(M_i)}{m_0^*}$$

или

$$\Delta(M_i) \approx \alpha F(M_i) \sqrt{\frac{M_{i0}}{M_i}} \Delta(M_{i0}).$$

Отсюда следует, что если $F(M_i) = \sqrt{M_i/m_0^*}$, то изотопический эффект не вызовет вообще никакого изменения щели и никак не отразится на температуре сверхпроводящего перехода T_K . При этом если $F(M_i) = \sqrt{M_i/m_0^*}$, то масса носителя оказывается пропорциональна среднегеометрическому от своего затравочного значения и массы иона кристаллической решетки $m^* = \alpha \sqrt{m_0^* M_i}$. Такая зависимость может быть оправдана “подходящей” теорией перенормировок или учетом эффектов анизотропии в расчетах плотности состояний. Однако отсутствие проявлений изотопического эффекта в T_K не исключает иных его проявлений, свойственных случаю, когда от ионной массы определенным образом зависит эффективная масса носителя заряда. Так эффект изменения массы носителя может отразиться на поведении Лондоновской глубины проникновения поля $\lambda_L = \sqrt{\frac{m^*}{\mu_0 e^2 n}}$.

Таким образом, простейшая зонная модель сильной связи, примененная к проводящим системам, позволяет построить туннельный механизм “сверхсильного” электрон-фононного взаимодействия, в случае реализации которого может возникнуть сверхпроводимость с высокими даже по меркам ВТСП критическими температурами и довольно необычным характером проявления изотопического эффекта.

Работа выполнена при поддержке ФЦНТП “Экспериментальные и теоретические исследования ВТСП” ГК N 40.012.1.1.1357, РФФИ (проекты N 04-02-16455, N 02-02-17133) и программы П-3 ОФН РАН “Сильно коррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах”.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Жерихин А. Н. и др. Поверхность, N 6, 79 (2000).
- [2] Цховребов А. М. Тезисы 1-й международной конференции “Фундаментальные проблемы ВТСП”, Звенигород. Москва, ФИАН, 2004, с. 248.
- [3] Frohlich H. Phys. Rev., **79**, 845 (1950).
- [4] Anderson P. W. Science, **235**, 1196 (1987).
- [5] Плакида Н. М. Высокотемпературные сверхпроводники, М., “Международная программа образования”, 1996.
- [6] Tsvetlik A. M. Quantum Field Theory in Condensed Matter Physics, Cambridge University Press, 1998.
- [7] Антонович К., Розводовская К. ФНТ, **5**, 1212 (1979).
- [8] Chen J. T. et al. Superconductivity and Applications, ed. H.S.Kwok et al., Plenum, N.Y., 1990, p. 517.
- [9] Митин А. В., Кузьмичева Г. М. и др. ЖЭТФ, **107**, 1943 (1995).
- [10] Митин А. В. Тезисы 1-й международной конференции “Фундаментальные проблемы ВТСП”, Звенигород. Москва, ФИАН, 2004, с. 150.
- [11] Цебро В. И., Омеляновский О. Е., Моравский А. П. Письма в ЖЭТФ, **70**, 457 (1999).
- [12] Цебро В. И., Омеляновский О. Е. УФН, **170**, 906 (2000).
- [13] Осипов В. В., Самохвалов А. А. ФММ, **89**, 43 (2000).
- [14] Осипов В. В., Кочев И. В., Наумов С. В. ЖЭТФ, **120**, 1246 (2001).
- [15] Элиашберг Г. М. ЖЭТФ, **38**, 966 (1960).
- [16] Cooper L. N. Phys. Rev., **104**, 1189 (1956).
- [17] Де-Женн П. Сверхпроводимость металлов и сплавов, М., Мир, 1968.
- [18] Maxwell E. Phys. Rev., **78**, 477 (1950).
- [19] Reynolds C. A. et al. Phys. Rev., **78**, 487 (1950).

Поступила в редакцию 2 декабря 2004 г.