

ЭЛЕКТРОННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$

С.В.Зайцев, А.А.Максимов¹⁾, И.И.Тартаковский

*Институт физики твердого тела РАН,
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 28 октября 1996 г.

По положению 2Δ -пика в спектрах электронного рассеяния света определено, что в образце с высокой $T_c \approx 90K$ отношение $2\Delta/T_c \approx 6$ и 7 для различных поляризаций, а в передопированных образцах с $T_c \approx 40$ и $35K$ 2Δ -пик наблюдается только в поляризации $x'y'$ при существенно меньшем значении $2\Delta/T_c \approx 3.2$. В кристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ с понижением T_c происходит переход от режима сильной к режиму слабой связи, при этом сверхпроводящая щель остается анизотропной при различных уровнях допирования.

PACS: 74.25.-q, 74.72.Fq, 78.30.Er

К настоящему времени выполнены многочисленные и подробные исследования электронного комбинационного рассеяния (КР) света на различных иттриевых, висмутовых и таллиевых высокотемпературных сверхпроводниках. В подавляющем числе работ исследуемые образцы имели оптимальный уровень допирования и температуру сверхпроводящего перехода, близкую к максимальной для соответствующего соединения. Основные характеристики электронного КР света во всех исследованных системах оказались очень похожими: в кристаллах высокого совершенства, с узкой шириной перехода, в обеих основных поляризациях²⁾ $x'y'$ и $x'x'$ отчетливо наблюдается 2Δ -пик при $T < T_c$, спектральное положение ω_{max} которого различно в различных поляризациях. Так, например, для $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ $\omega_{max} \approx 350\text{см}^{-1}$ и $\approx 450\text{см}^{-1}$ в $x'x'$ и $x'y'$ поляризациях, соответственно [1, 2]. Значения $2\Delta/T_c$ меняются в пределах 5–8 для различных сверхпроводников и поляризаций [3–6]. Отличие в величине $2\Delta/T_c$ для различных поляризаций указывает на значительную анизотропию сверхпроводящей щели, а сама величина – на сильный характер связи в оптимально допированных ВТСП соединениях.

Для теоретического описания наблюдаемой в эксперименте анизотропии сверхпроводящей щели привлекаются различные механизмы спаривания носителей тока в ВТСП (см., например, обзор [7]). Несомненный интерес для построения адекватной теории ВТСП представляют детальные экспериментальные данные о симметрии параметра порядка при различном уровне допирования. В нестехиометрических ВТСП оксидах, таких, например, как $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с пониженным уровнем допирования (недопированная система) и $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ с избыточным уровнем допирования (передопированная система) [8], в зависимости от содержания кислорода в кристаллах температура сверхпроводящего перехода изменяется в широких пределах от максимальной $T_c \approx 90 - 100K$ до нулевой. Исследования электронного КР в $YBa_2Cu_3O_{6.5}$

¹⁾ e-mail: maksimov@issp.ac.ru

²⁾ x' и y' – оси, повернутые на 45° по отношению к кристаллографическим осям a и b и параллельные векторам поляризации падающего и рассеянного света, соответственно.

($T_c \approx 50$ K), проведенные в работе [9], позволили установить, что в отличие от оптимально допированных образцов, сверхпроводящая щель становится изотропной, но сохраняется сильный характер связи. Интересно было изучить, каким образом изменяются характеристики сверхпроводящей щели в случае передоированной системы.

В настоящей работе мы детально исследовали спектры электронного КР в монокристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ с $T_c \approx 90, 40$ и 35 K с достаточно резкими переходами $\Delta T_c \leq 2-3$ K. Образцы имели зеркальную поверхность и характерные размеры $1 \times 1 \times 0.2$ мм. Наличие узкого сверхпроводящего перехода позволяет сделать вывод о высокой однородности содержания кислорода в исследованных образцах, так как в $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ T_c резко зависит от содержания кислорода [10].

Спектры КР регистрировались на тройном монохроматоре Dilor XY-500 с многоканальным оптическим детектором. Образцы помещались в оптический гелиевый термостат с регулируемой температурой $T = 1.5-300$ K. Возбуждение КР осуществлялось с помощью линии $\lambda = 4880$ Å аргонового лазера, плотность мощности в пятне возбуждения составляла $P \approx 20$ Вт/см² при экспериментах в парах гелия и $P < 4$ Вт/см² в сверхтекучем гелии. По спектрам КР в стоксовой и антистоксовой областях проводилась оценка перегрева образца в области возбуждения (обычно в наших экспериментах в парах гелия $\Delta T \approx 30 \pm 5$ K) [11]. Температура на приводимых ниже графиках указана уже с учетом перегрева. При проведении измерений в сверхтекучем гелии при пониженной мощности лазерного возбуждения температура в области возбуждения заведомо не превышала $T \leq 4$ K.

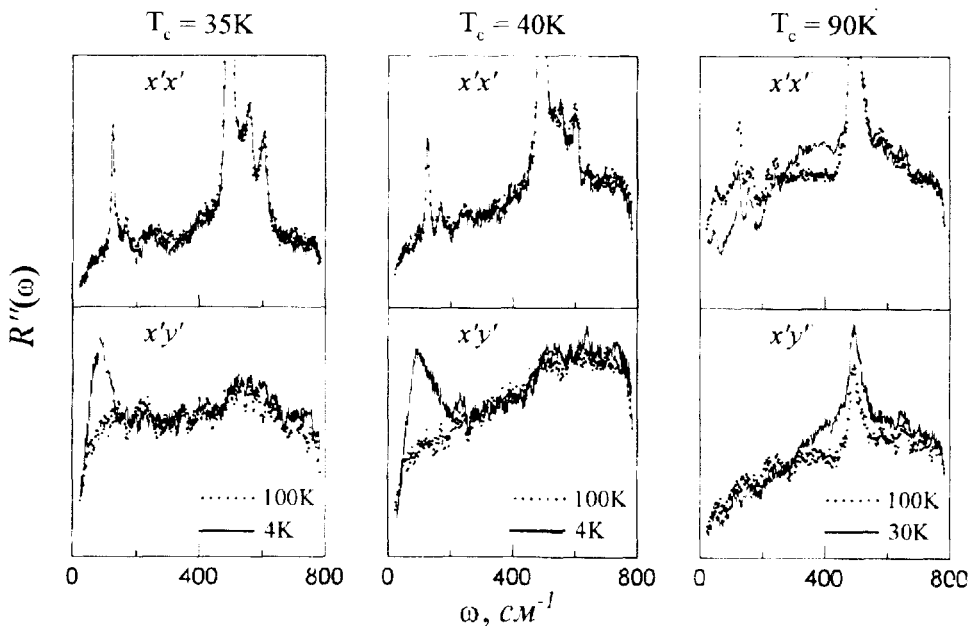


Рис.1. Мнимая часть функции электронного отклика $R''(\omega)$ в кристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ с различными T_c в поляризациях $x'x'$ и $x'y'$ при двух температурах: $T < T_c$ и $T \approx 100$ K

На рис.1 приведены спектры мнимой части функции электронного отклика $R''(\omega, T)$ в кристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ при двух температурах – выше и значительно ниже T_c и разных поляризациях. Функция $R''(\omega, T)$ связана с экспериментальным спектром КР $S(\omega, T)$ соотношением

$$S(\omega, T) = [1 + n(\omega, T)] R''(\omega, T), \quad (1)$$

где $1 + n(\omega, T) = [1 - \exp(-\omega/T)]^{-1}$ – фактор Бозе. Помимо узких линий, отвечающих оптическим фононам, в спектре наблюдается широкий электронный континуум. Видно, что при температуре ниже T_c происходит перераспределение интенсивности континуума в спектрах КР.

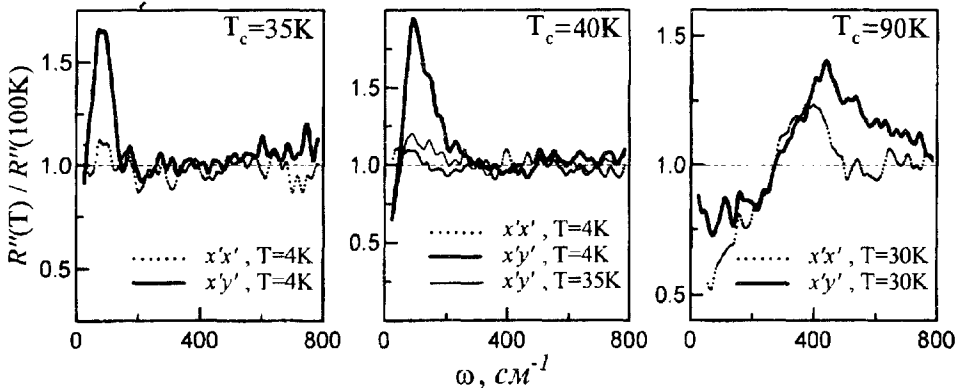


Рис.2. Отношения $R''(\omega, T)/R''(\omega, 100K)$ в кристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ при различных поляризациях и температурах

Более детально за температурными изменениями в спектрах КР можно проследить на рис.2, где приведены отношения $\tau(\omega, T) = R''(\omega, T)/R''(\omega, 100K)$ спектров, полученных при температуре $T < T_c$ и $T = 100K$. Видно, что при уменьшении температуры ниже T_c происходят перераспределения интенсивности в спектрах электронного КР, характерные для возникновения сверхпроводящей щели: уменьшение интенсивности в области низких частот ($\tau < 1$), образование 2Δ -пика ($\tau > 1$) и очень незначительные изменения ($\tau \approx 1$) в более высокочастотной области. При приближении температуры образца к T_c 2Δ -пик уменьшается по величине и сдвигается в область более низких частот, а при температурах выше T_c 2Δ -пик полностью отсутствует в спектрах КР.

Изменения спектров в образце с высокой $T_c \approx 90K$ типичны для изменений в ВТСП с близким к оптимальному уровню допирования, обсуждавшихся выше. Из рис.2 видно, что 2Δ -пик появляется в обеих поляризациях с максимумом $\omega_{max} \approx 380\text{см}^{-1}$ в $x'x'$ -поляризации и $\omega_{max} \approx 450\text{см}^{-1}$ в $x'y'$ -поляризации, откуда получаем значения $2\Delta/T_c \approx 6$ и 7 , соответственно. Эти данные указывают как на значительную анизотропию сверхпроводящей щели, так и на сильный характер связи в этом кристалле.

При уменьшении T_c (40 и 35 К) в кристаллах $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ происходит прямо противоположное по сравнению с недодопированной $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -системой [9] изменение спектров электронного КР. Даже при температурах, значительно меньших T_c , 2Δ -пик полностью отсутствует в $x'x'$ -поляризации

и, наоборот, в $x'y'$ -поляризации 2Δ -пик отчетливо виден и сдвинут в область существенно меньших частот со значениями $\omega_{\max} \approx 90$ и 80 см^{-1} для кристаллов с $T_c = 40$ и 35 К , соответственно. Отношение $2\Delta/T_c \approx 3.2$, что близко к значению 3.5 в БКШ-пределе слабой связи.

Сильная анизотропия сверхпроводящей щели, наблюдаемая в наших исследованиях, указывает на возможность реализации необычных механизмов спаривания в ВТСП соединениях, например, d -типа. Этот вопрос широко обсуждается сейчас именно в связи с результатами исследований электронного КР [12]. Для выяснения влияния различных факторов на КР в сверхпроводящем состоянии мы провели модельные расчеты, используя теоретические результаты, полученные в [13] (формула 30).

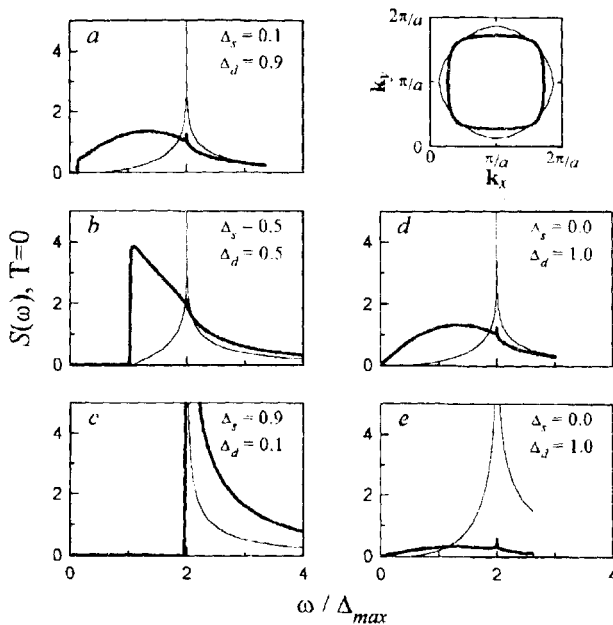


Рис.3. Расчетные спектры электронного КР $S(\omega)$ при $T = 0$ и различной анизотропии сверхпроводящей щели. Жирная линия - поляризация $x'y'$, тонкая - поляризация $x'y'$. Данные приведены в относительных по энергии единицах Δ_{\max} - максимальное значение $\Delta(\mathbf{k})$ на ПФ. Спектры $a-d$) и e) соответствуют двум разным ПФ в $t-t'$ -модели, показанным на вставке :
 $a-d$) $2t'/t = 1.3$ и $\mu/2t = -0.5$ (жирная линия),
 e) $2t'/t = 0.65$ и $\mu/2t = -0.5$ (тонкая линия)

Электронное рассеяние при $T = 0$ в сверхпроводнике имеет вид

$$S(\omega) = \frac{4N(0)}{\omega} \left\langle \frac{|\delta\gamma_{\mathbf{k}}|^2 |\Delta_{\mathbf{k}}|^2}{\sqrt{\omega^2 - 4|\Delta_{\mathbf{k}}|^2}} \right\rangle', \quad (2)$$

где $N(0)$ - плотность состояний, $\delta\gamma_{\mathbf{k}} = \gamma_{\mathbf{k}} - \langle \gamma_{\mathbf{k}} \rangle$ - отклонение от среднего по поверхности Ферми (ПФ) значения тензора обратных масс, свернутого с единичными векторами поляризации падающего и рассеянного света:

$$\gamma_{\mathbf{k}} = \sum_{\alpha, \beta} e_{\alpha}^s \gamma_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) e_{\beta}^i, \quad \gamma_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = m_0 \frac{\partial^2 \epsilon(\mathbf{k})}{\partial k_{\alpha} \partial k_{\beta}}; \quad (3)$$

угловые скобки означают усреднение по ПФ, а штрих указывает, что область интегрирования ограничена теми значениями \mathbf{k} , для которых $\omega^2 > 4|\Delta_{\mathbf{k}}|^2$.

Из этой формулы видно, что электронное рассеяние в сверхпроводящем состоянии определяется формой ПФ и отражает симметрию сверхпроводящей

щели. ПФ выбиралась в виде

$$\epsilon(\mathbf{k}) = -2t[\cos(k_x a) + \cos(k_y a)] + 4t' \cos(k_x a) \cos(k_y a) - \mu = 0, \quad (4)$$

отвечающем $t - t'$ -модели (a – постоянная решетки). Значения параметров $2t'/t = 1.3$ и $\mu/2t = -0.5$ были выбраны так, чтобы численно рассчитанная ПФ (жирная линия на вставке рис.3) хорошо совпадала с экспериментально определенной для кристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [14]. С целью проследить за изменением спектров при изменении симметрии щели, мы выбрали сверхпроводящую щель со смешанной $s + d$ -симметрией [7]:

$$\Delta(\mathbf{k}) = \Delta_s + i \cdot \Delta_d [\cos(k_x a) - \cos(k_y a)]. \quad (5)$$

На рис.3(a – d) приведены расчетные спектры в $x'x'$ - и $x'y'$ -поляризациях при следующих соотношениях пар значений Δ_s и Δ_d : 0.1 и 0.9, 0.5 и 0.5, 0.9 и 0.1, 0.0 и 1.0. В литературе имеются работы, содержащие расчет электронного КР с использованием формулы (5) в предположении d -спаривания носителей [6]. Как показывают такие расчеты (рис.3d), возможно удовлетворительное описание экспериментальных результатов для образцов с оптимальной концентрацией носителей при таком выборе параметра порядка. Спектральная позиция 2Δ -пика в расчетном спектре $x'x'$ -поляризации находится ниже по частоте, чем в $x'y'$ -поляризации, а сам пик сильно сглажен, что отражает кулоновское экранирование, а также несоответствие симметрии щели и тензора обратных масс в $x'x'$ -поляризации. Следует отметить, однако, что КР света чувствительно только к модулю щелевой функции в \mathbf{k} -пространстве и поэтому не позволяет сделать однозначного вывода о типе связи носителей.

Из рис.3 видно, что по мере уменьшения анизотропии щели (роста Δ_s , относительно Δ_d) относительная интенсивность в $x'x'$ -поляризации растет, причем форма пика изменяется: из сильно размытого и сглаженного он становится четко выраженным и острым. Эти расчеты дают нам основание предположить, что анизотропная часть сверхпроводящей щели в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ относительно мала в недодопированных кристаллах [9].

Исчезновение 2Δ -пика в $x'x'$ -поляризации в наших экспериментах для пердопированного $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$ также может быть объяснено в рамках этих расчетов. Как следует, из имеющихся в литературе расчетных данных ПФ в $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$ подобна ПФ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, но имеет более скругленную форму [15]. На вставке рис.3 тонкой линией показана форма ПФ, использованная для расчетов спектров на рис.3e ($\Delta_d = 1, \Delta_s = 0$). Сравнение с рис.3d подтверждает, что, действительно, при более сферической ПФ рассеяние в $x'x'$ -поляризации сильно подавляется. Таким образом, мы можем объяснить наблюдаемое в эксперименте изменение спектров в $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$ заметным изменением ПФ, при приближении к металлическому состоянию.

В то же время нет однозначного объяснения уменьшения силы связи, характеристикой которой является отношение $2\Delta/T_c$, с ростом допирования. Такое поведение противоположно постоянству этого параметра, наблюдаемому в недодопированной системе $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в широком диапазоне концентрации кислорода [9]. Возможной причиной уменьшения силы связи, которое наблюдалось также в ЯМР-исследованиях [16], могут быть локализованные парамагнитные центры, концентрация которых растет по мере допирования кислородом [17]. При этом уменьшение $2\Delta/T_c$ при допировании может быть

связано с тем, что, как известно, величина сверхпроводящей щели подавляется магнитными примесями сильнее, чем T_c .

Таким образом, в работе установлено, что в отличие от недодопированных кристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в кристаллах $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$ сверхпроводящая щель анизотропна во всех исследованных образцах с высокими и низкими T_c и при приближении к металлическому состоянию одновременно с понижением T_c происходит переход от режима сильной к режиму слабой связи.

Данная работа была поддержана грантом Российской государственной программы по ВТСП 93193 и грантом РФФИ 95-02-0611.

-
1. А.А.Максимов, А.В.Пучков, И.И.Тартаковский и др., Письма в ЖЭТФ **56**, 587 (1992).
 2. D.Reznik, S.L.Cooper, M.V.Klein et al., Phys. Rev. **B48**, 7624 (1993).
 3. А.А.Максимов, И.И.Тартаковский, В.Б.Тимофеев, Л.А.Фальковский, ЖЭТФ **96**, 1047 (1990).
 4. M.Boekholt, M.Hoffmann, and G.Guntherodt, Physica C **175**, 127 (1991).
 5. R.Nemetschek, O.V.Misochko, B.Stadlober, and R.Hackl, Phys. Rev. **B47**, 3450 (1993).
 6. T.P.Devereaux, D.Einzel, B.Stadlober et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 396 (1994).
 7. В.М.Локтев, ФНТ **22**, 3 (1996).
 8. Y.Kubo, Y.Shimakawa, T.Manako, and H.Igarashi, Phys. Rev. **B43**, 7875 (1991).
 9. С.В.Зайцев, А.А.Максимов, И.И.Тартаковский и др., Письма в ЖЭТФ **61**, 842 (1995).
 10. N.N.Kolesnikov, M.P.Kulakov, V.N.Molchalkov, and I.F.Schegolev, Physica C **242**, 385 (1995).
 11. А.А.Максимов, А.В.Пучков, И.И.Тартаковский et al., Solid State Commun. **81**, 407 (1992).
 12. M.C.Krantz and M.Cardona, Phys. Rev. Lett. **72**, 3290 (1994).
 13. M.V.Klein and S.B.Dierker, Phys. Rev. **B29**, 4976 (1984).
 14. Rong Liu, B.W.Veal, A.P.Paulikas et al., Phys. Rev. **B45**, 5614 (1992).
 15. V.V.Tatarskii, M.Paranthaman, and A.M.Hermann, Phys. Rev. **B47**, 14489 (1993).
 16. О.М.Вяцелев, Н.Н.Колесников и И.Ф.Щеголев, Письма в ЖЭТФ **59**, 663 (1995).
 17. I.F.Schegolev, N.N.Kolesnikov, V.N.Kopylov et al. J. de Phys. I, to be published.