

УДК 538.945

ОБ ИЗОТОПИЧЕСКОМ ЭФФЕКТЕ ДЛЯ T_c В КЕРАМИКЕ $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$

А. П. Жернов, А. Е. Тренин

Для модели кристалла с двухатомной решеткой анализируется зависимость изотопических факторов для легкого и тяжелого атомов β_l и β_h от отношения величин соответствующих факторов Хопфильда. Рассматриваются случаи изотропного и анизотропного электрон-фононного взаимодействия.

Повышенный интерес сейчас вызывает вопрос об изотопическом эффекте в высокотемпературных сверхпроводящих керамиках [1]. Для установления природы механизма спаривания электронов решение этого вопроса является принципиальным. Высказано предположение о том, что в керамиках $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ и $\text{La}_{1.85}\text{Ba}_{0.15}\text{CuO}_4$ электрон-фононный механизм играет существенную роль [1]. В первом из названных соединений при замене O_{16} на O_{18} характеризующий изотопический эффект фактор $\beta_0 = M_0/T_c \cdot dT_c/dM_0$ (M_0 — масса атома кислорода) оказался равным ≈ 0.2 [2, 3]. Однако никаких теоретических оценок величины β_0 до сих пор не выполнено.

Как известно, для электрон-фононного механизма спаривания изотопический эффект проанализирован для одноатомных сверхпроводников. При этом показано, что при стандартных значениях параметров электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ) λ и кулоновского псевдопотенциала μ_* ($\lambda \gg \mu_*$) анизотропия влияет на величину β сравнительно слабо [4, 5]. Для сверхпроводящих кристаллов с несколькими атомами в элементарной ячейке ($p \geq 2$) зависимость β_x от массы x -атома в ячейке детально не исследовалась. Рассмотрены только отдельные конкретные системы. В частности, в серии работ изучен аномальный изотопический эффект для системы типа $\text{PdH}(D)$ [6]. Соединения Pd с H и D представляют собой сверхпроводники с промежуточной связью. Они отличаются рядом специфических свойств. Однако нам не известны работы, в которых определена величина β для модели с параметрами, отвечающими керамикам $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$. Имеются в виду сверхпроводники с сильной связью и спектром ЭФВ таким, что в равной степени существенной является роль акустических и оптических мод, причем характерные фононные частоты отличаются не слишком сильно. Поэтому ниже выполнены соответствующие оценки β на примере некоторой предельно упрощенной модели. Отметим сразу, что расчеты выполнены для изотропного сверхпроводника. Иными словами, в рассматриваемой ниже модели по предположению анизотропия не играет решающей роли.

Для сверхпроводящих керамик уже достаточно детально исследованы структурные свойства, а также электронные и фононные спектры. Их отличительной чертой является то, что атомы Cu и O располагаются в плоскостях, которые отстоят друг от друга на заметное расстояние. Совокупность позиций, занимаемых атомами Cu и O в плоскостях, приблизительно можно рассмотреть как $2D$ -кубическую решетку с двумя атомами в элементарной ячейке. Затем в рамках теории формализма многократного рассеяния с использованием метода ККР рассчитаны электронные спек-

тры, включая факторы ЭФВ Хопфильда [7]. Согласно расчетам, за сверхпроводящие свойства керамик ответственны практически только электроны атомов Cu и O. Для $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$ при $x \approx 0.15$ соответствующие величины факторов η равны: $\eta_{\text{Cu}} = 0.74$, $\eta_{\text{O}} = 2.2$ эВ/Å². Фононные спектры изучены экспериментально методом нейтронной спектроскопии. В [8] было принято, что значения фононных частот $\omega_j(\mathbf{q})$ (j — поляризационный индекс) для атомов Cu и O составляют приблизительно 200 и 400 К в температурной шкале. Эксперимент [2] дает основания считать, что значения оптических фононных частот для O больше приблизительно в 1.5 раза. Отметим, что динамическое межатомное взаимодействие имеет ковалентный характер. Оно должно распространяться на несколько координационных сфер. Принимая во внимание все сказанное, мы оценили изотопический фактор $\beta_x = M_x/T_c \cdot dT_c/dM_x$ в рамках следующей модели сверхпроводящего металла. Считалось, что решетка является простой кубической с двумя атомами в элементарной ячейке с массами M_l и M_h ($M_h = 4M_l$). Межатомное взаимодействие описывалось в модели Борна—Кармана, причем учитывалось только взаимодействие между ближайшими соседями. В такой модели для акустических и оптических мод частоты $\omega_j(\mathbf{q})$ и векторы поляризации $\mathbf{e}_j(\mathbf{q})$ для всех значений квазиимпульса \mathbf{q} в зоне Бриллюэна выражаются посредством сравнительно простых аналитических формул [9]. Обычно при рассмотрении параметров сверхпроводников для двухкомпонентных решеток с существенно различающимися массами предполагают, что тяжелый атом колеблется только в акустической части фононного спектра, а легкий — только в оптической. Реально это не так. При любом соотношении масс каждый из атомов колеблется в принципе во всей непрерывной части спектра. Роль весов играют квадраты модулей векторов поляризации. Используемая в данной работе модель [9] позволила рассмотреть последовательно парциальные спектры атомов. Для расчета T_c (и β_x), помимо фононных мод, необходимо еще определить параметры электронного спектра и амплитуды электрон-ионного взаимодействия. Мы ограничились приближением свободных электронов и выбрали амплитуды в форме экранированного кулоновского потенциала. В этом случае отношение квадратов эффективных зарядов приблизительно должно равняться отношению факторов Хопфильда. В принятой модели можно рассмотреть случаи анизотропного и изотропного ЭФВ. В качестве соответствующего параметра в ней фигурирует отношение радиуса Ферми k_F к минимальному вектору обратной решетки B_0 . Полагалось, что $2k_F/B_0 = 0.75, 0.95$ и 1.45 (см. подробности в [10], где анализировалось влияние анизотропии ЭФВ на низкотемпературное сопротивление металлов). Выражение для спектральной функции ЭФВ Элиашберга—Мак-Миллана в случае двухатомного кристалла имеет вид

$$\alpha^2 F(\omega) = N(\epsilon_F) \iint_{S_F} \frac{dS_{\mathbf{k}}}{v_{\mathbf{k}}} \frac{dS_{\mathbf{k}'}}{v_{\mathbf{k}'}} \sum_j |M_{\mathbf{k}\mathbf{k}',j}|^2 \delta(\omega - \omega_j(\mathbf{q})) \left(\int_{S_F} \frac{dS_{\mathbf{k}}}{v_{\mathbf{k}}} \right)^2, \quad (1)$$

где $N(\epsilon_F)$ — плотность электронов на уровне Ферми, $dS_{\mathbf{k}}$ и $V_{\mathbf{k}}$ — элемент поверхности Ферми и скорость электрона, $|M|^2$ — квадрат матричного элемента неупругого перехода электрона из состояния \mathbf{k} в состояние \mathbf{k}' . По определению

$$M_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}, j} = \frac{1}{p} \sum_{\mathbf{B}_1, \mathbf{B}_2} \sum_x \left(\frac{\hbar}{2N} \right)^{1/2} \frac{\langle \mathbf{k} + \mathbf{B}_1 | V_x | \mathbf{k} + \mathbf{q} + \mathbf{B}_2 \rangle}{(M_x \omega_j(\mathbf{k} - \mathbf{k}'))^{1/2}} \times \\ (\mathbf{q} + \mathbf{B}_1 + \mathbf{B}_2, \mathbf{e}_j(\mathbf{q} + \mathbf{B}_1 + \mathbf{B}_2)). \quad (2)$$

Здесь V_x — амплитуда взаимодействия электрона с атомом x , p — число атомов в ячейке, B_i — i -й вектор обратной решетки. Из (1) и (2) непосредственно видно, что имеет место интерференция процессов рассеяния электрона на разных атомах в ячейке, которая влияет на структуру спектров ЭФВ.

Для определения возможных значений фактора $\beta_x = M_x/T_c \cdot dT_c/dM_x$ при расчетах T_c можно воспользоваться интерполяционной формулой Аллена—Дайнса [11]. В этой формуле фигурируют параметры ЭФВ λ и μ_* , ω_{1n} и моменты $\langle \omega^n \rangle$, которые выражаются через $\alpha^2 F(\omega)$. Поскольку при $M_h/M_l = 4$ отношение взвешенных с $\alpha^2 F(\omega)$ логарифмических частот ω_{1n} для акустической и оптической частей спектра отличаются не более чем в 3 раза, то формула Аллена—Дайнса вполне применима. Известно, что λ не зависит от M_l и M_h . От M_h и M_l зависит ω_{1n} и моменты $\langle \omega^n \rangle$, и, вообще говоря, кулоновский псевдопотенциал μ_* . В расчетах величина λ изменялась от 1.5 до 6.5, а максимальная частота акустической части спектра от 200 до 600 К. Отношение амплитуд легкого и тяжелого атомов в ячейке $z_h/z_l = \sqrt{\gamma_h/\gamma_l}$ принималось равным: 0, 0.25, 0.5, ..., 5. Гистограммы строились для 400 интервалов и было взято всего $\approx 10^7$ точек.

Гистограммы для $\alpha^2 F(\omega)$ состоят из двух асимметричных пиков, первый из которых описывает взаимодействие электронов с акустическими фононами, а второй — с оптическими фононами. Их максимумы локализованы около верхнего края акустической полосы и нижнего края оптической полосы. При этом часть спектра $\alpha^2 F(\omega)$, относящаяся только

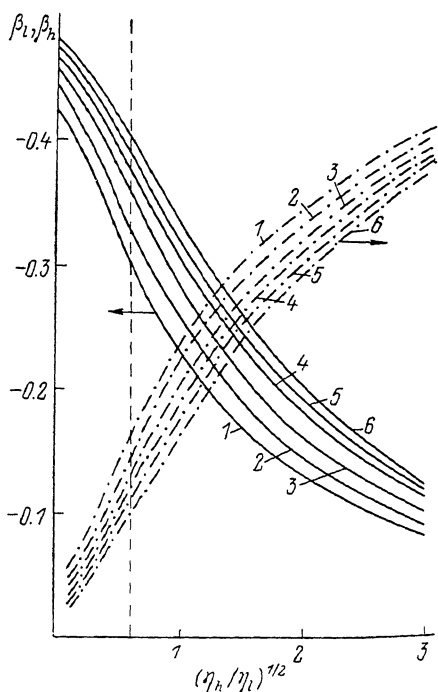


Рис. 1. Зависимость в двухатомной решетке параметров изотопического сдвига для легкого и тяжелого атомов β_l (сплошная кривая) и β_h (штрихпунктирная кривая) от отношения факторов Хопфильда $(\gamma_h/\gamma_l)^{1/2}$.

Случай слабой анизотропии ЭФВ $2k_F/b_0 = 0.75$. Кривые 1—6 соответствуют значениям $\lambda = 1.5, \dots, 6.5$ и $\mu_* = 0.13$ (отношение масс $M_l/M_h = 4$).

к тяжелому атому, т. е. пропорциональная Z_h^2 , сконцентрирована практически целиком в области акустики. В рассматриваемом случае отношение $M_h/M_l = 4$ сравнительно невелико, и часть спектра $\alpha^2 F(\omega)$, относящаяся к легкому атому и пропорциональная Z_l^2 , размазана по оптической и акустической ветвям. Наличие в выражении для $\alpha^2 F(\omega)$ интерференционного члена $Z_l Z_h$ при $Z_h/Z_l \leq 1$ влияет главным образом на интенсивность спектра в акустической полосе. При этом при увеличении параметра Z_h/Z_l интенсивность спектра в акустической полосе существенно возрастает. В то же время из-за интерференционных процессов интенсивность в оптической полосе в районе хвоста его уменьшается. Отметим еще, что при варьировании параметра $2k_F/B_0$ существенно возрастает или уменьшается роль электрон-фононных процессов рассеяния с перебором. Вследствие этого интенсивность и вид $\alpha^2 F(\omega)$ в низкочастотной области акустической полосы перенормируются. В области оптических частот структура $\alpha^2 F(\omega)$ практически не меняется.

На рис. 1 и 2 представлены графики зависимостей изотопических факторов для легкого и тяжелого атомов (β_l и β_h) от отношения $Z_h/Z_l = \sqrt{\gamma_h/\gamma_l}$ в интервале $1.5 \leq \lambda \leq 6.5$, для $\mu_* = 0.13$, $\omega_{\max}^{(A)} = 300$ К ($\omega_{\max}^{(A)}$ — граничная частота акустической полосы) и двух геометрий ЭФВ (изотропной и анизотропной). При варьировании в широких пределах $\omega_{\max}^{(A)}$ изменения β_x оказались очень незначительными. Как непосредственно

видно, если параметр Z_h/Z_l возрастает, то величина β_l (β_l — изотопический фактор для легкого атома) быстро уменьшается. Очевидным образом это связано с тем, что при возрастании Z_h/Z_l одновременно возрастает относительно роль акустической части спектра $\alpha^2 F(\omega)$. В результате чего возникающие при варьировании массы легкого атома (из-за перестройки в большей степени оптической и в меньшей степени акустических полос) различия между частотами ω_{1n} и моментами частот (ω^n), взвешенных с $\alpha^2 F(\omega)$, сглаживаются.

Из предыдущего ясно, что величина β_x должна зависеть от геометрии ЭФВ. А именно, для гистограмм с $2k_f/B_0=0.95$ и 1.45 по сравнению с гистограммой для $2k_f/B_0=0.75$ в значительной мере возрастает плотность состояний в низкочастотной области акустической полосы. Это при-

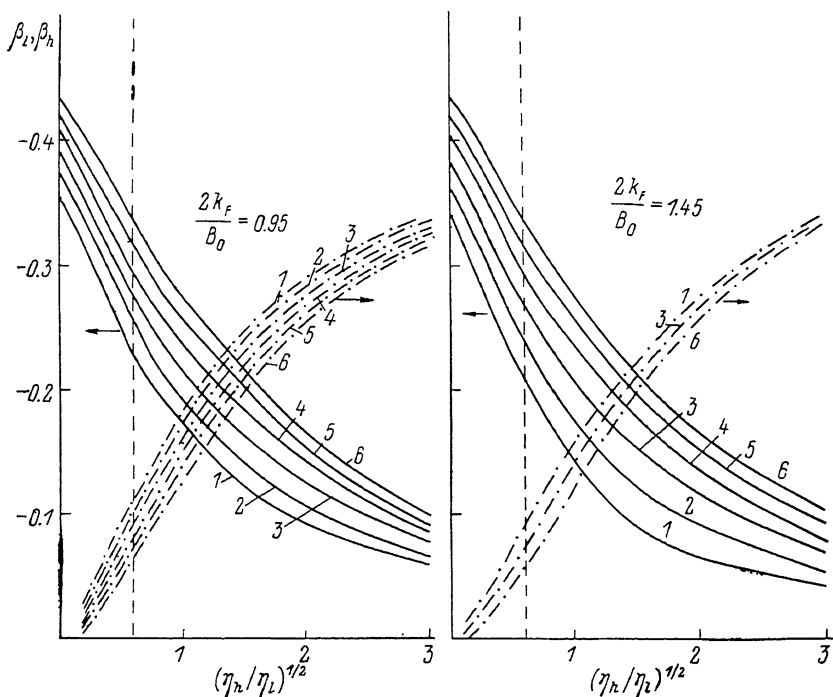


Рис. 2. Зависимость в двухатомной решетке параметров β_l и β_h от отношения $(\eta_h/\eta_l)^{1/2}$. Случай анизотропной геометрии ЭФВ. Кривые 1—6 имеют тот же смысл, что и на рис. 1.

водит к увеличению парциального вклада тяжелого атома в $\alpha^2 F(\omega)$ и следовательно, к некоторому уменьшению $|\beta_l|$. Однако, поскольку легкий атом тоже колеблется в акустических ветвях, изменения β_l в принятой модели заметны, но не радикальные. Обратим внимание на то, что при $\lambda \leq 1.5$ критическая температура T_c определяется с хорошей точностью формулой типа формулы Мак-Миллана и $\beta_l \sim M_l/\omega_{1n} \cdot \partial\omega_{1n}/\partial M_l$. В пределе $\lambda \gg 1$ имеем $T_c \approx 0.18 \sqrt{\lambda \langle \omega^2 \rangle}$ и $\beta_l \sim M_l/\langle \omega^2 \rangle \cdot \partial \langle \omega^2 \rangle / \partial M_l$. Поэтому при возрастании λ от 1.5 до 6.5 при фиксированном отношении Z_h/Z_l значения $|\beta_l|$ увеличиваются (приблизительно на 10%).

На рис. 1 и 2 в виде штрихпунктирных кривых изображены графики зависимости β_h (изотопического фактора для тяжелого атома) от $\sqrt{\eta_h/\eta_l}$. Как видно из рисунков, $|\beta_h|$ с ростом $\sqrt{\eta_h/\eta_l}$ увеличивается. В анизотропном случае $|\beta_h|$ меньше, чем в изотропном.

Как уже отмечалось, для керамик типа $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$, согласно конкретным зонным расчетам [7], эффективный фактор $Z_h/Z_l = \sqrt{\eta_h/\eta_l} \approx 0.6$. Будем полагать, что характерная фононная частота $\omega_{\text{max}}^{(A)}$ для $\alpha^2 F(\omega)$, отвечающая колебаниям атомов Cu, равна приблизительно 200 или 300 К. В принятой простейшей модели второй пик для $\alpha^2 F(\omega)$, отвечающей

атомам O, локализован при частоте $\sim 2\omega_{\max}^{(A)}$. С учетом результатов [12] нам представляется, что эксперименту лучше соответствует геометрия ЭФВ с $2k_F/B_0=0.95$. Для сравнения экспериментальных данных по β_l [2, 3] (и T_c) с теоретическими кривыми 1 и 2 (и расчетными T_c) нужно еще знать параметр ЭФВ λ . В [1, 7, 8], помимо η , оценены возможные значения λ : $\lambda \approx 2.5-3$. В [13, 14] сделаны оценки λ на основе экспериментальных данных об электросопротивлении ρ и найдено, что $\lambda=3.2-3.8$. В принципе термодинамические и транспортные функции могут иметь совершенно разную структуру [15], и к оценкам λ по ρ нужно подходить с осторожностью. Однако в рассматриваемой модели ЭФВ структуры $\alpha^2 F(\omega)$ и $\alpha^2 F_{tr}(\omega)$ близкие, и $\lambda \sim \lambda_{tr}$. Таким образом, наиболее вероятные значения λ заключены в интервале между 2.5 и 3.5.

Полученные согласно нашим оценкам величины T_c и β_l для двух значений $\omega_{\max}^{(A)}$ и λ приводятся в таблице (см. также рис. 2). Они находятся в разумном согласии с экспериментом [2, 3]. Заметим, что для изотопов Cu изотопический эффект при $\sqrt{\eta_h/\eta_l} \approx 0.6$ должен быть слабым; $|\beta_h| < 0.1$. Таким образом, по нашему мнению, в керамике $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$ преобладает электрон-фононный механизм спаривания электронов.

Объяснить экспериментальные данные по β_0 [16] для керамик на основе Y в принятой модели, где $|\beta_0| \approx 0.01$, как и следовало ожидать, не удастся. В этих системах более сложная и анизотропная структура, и для них характерно более сильное межэлектронное взаимодействие. Тем не менее из сравнения кривых рис. 1 и 2 видно, что с ростом анизотропии величина β_l уменьшается. Следовательно, в рамках ЭФВ и в очень грубой модели удается качественно правильно описать наблюдаемое различие между двумя высокотемпературными керамиками. Что касается керамики $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$, то, согласно теоретическим оценкам, при $x=0.3$ отношение факторов $\sqrt{\eta_h/\eta_l} \approx 1.2$ и $\lambda \approx 3$ [17]. Из рис. 1 в качестве грубой оценки получаем $\beta_l \approx -0.24$. Этот результат не противоречит эксперименту.

Один из авторов (А. П. Жернов) признателен Кагану Ю. М. за проявленный к работе интерес и подробное обсуждение ее результатов.

Л и т е р а т у р а

- [1] Weber W. Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 58, N 13, p. 1371—1374.
- [2] Batlogg B., Kouroukis G., Weber W., Cava R. J., Jayaraman A., White A. E., Short K. T., Repp L. W., Rietman F. A. Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 59, N 8, p. 912—914.
- [3] Falens T. A., Ham W. K., Keller S. W., Leary K. J., Michaels J. N., Stacy A. M., zur Loye H. C., Moris D. E., Baebee T. W., Bourne L. C., Cohen M. L., Hoen S., Zettl A. Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 59, N 8, p. 915—919.
- [4] Whitmore M. D., Hare I. P., Knee L. B. Phys. Rev., 1982, vol. B26, N 7, p. 3733—3746.
- [5] Жернов А. П., Малов Ю. А. ФТТ. 1980, т. 22, № 5, с. 1265—1270.
- [6] Жернов А. П., Дрекслер Ш. Л. ФНТ, 1985, т. 11, № 9, с. 899—909.
- [7] Pickett W. E., Krakauer H., Papaconstantopoulos D. A., Boyer L. L. Phys. Rev., 1987, vol. B35, N 13, p. 7552—7555.
- [8] Мазин И. И., Максимов Е. Г., Рашкеев С. Н., Саврасов С. Ю., Успенский Ю. А. Письма в ЖЭТФ (приложение), 1987, т. 46, с. 121—123.
- [9] Каган Ю. М., Маслов В. А. ЖЭТФ, 1962, т. 41, № 10, с. 1296—1303.
- [10] Каган Ю. М., Жернов А. П. ЖЭТФ, 1971, т. 60, № 5, с. 1832—1844.
- [11] Allen P. B., Dynes R. C. Phys. Rev., 1975, vol. B12, N 3, p. 905—922.

Значения температуры сверхпроводящего перехода T_c и изотопического фактора β_l

$\omega_{\max}^{(A)}$, К	λ	
	2.5	3.5
200	26	42
	—0.245	—0.270
300	37	63
	—0.239	—0.263

Примечание. В каждой клетке таблицы число над чертой соответствует T_c , а под чертой — β_l . Фактор $(\eta_h/\eta_l)^{1/2}$ равен 0.6 и параметр $2k_F/B_0 = 0.95$.

- [12] *Hu J. H., Watson-Yang T. J., Yu J., Freeman A. J.* Phys. Lett. A, 1987, vol. 120, N 9, p. 489—493.
- [13] *Allen P. B., Pickett W. E., Krakauer H.* Phys. Rev., 1987, vol. B35, N 12, p. 6181—6191.
- [14] *Gurvitch M.* Bull. Am. Phys. Soc., 1987, vol. 32, p. 905.
- [15] *Zhernov A. P., Kulagin V. D., Kulagina T. N. J.* Phys. F, 1985, vol. 15, N 3, p. 579—589.
- [16] *Leary K. J., zur Loye H. C., Keller S. W.* Phys. Rev. Lett., 1987, vol. 59, N 11, p. 1236—1239.
- [17] *Shirai M., Suzuki N., Motizuki K.* Sol. St. Commun., 1986, vol. 60, N 6, p. 489—493.

Институт атомной энергии
им. И. В. Курчатова
Москва

Поступило в Редакцию
25 ноября 1987 г.
