

Наноскопические неоднородности и оптические свойства легированных купратов

© А.С. Москвин, Е.В. Зенков, Ю.Д. Панов

Уральский государственный университет,
620083 Екатеринбург, Россия

E-mail: Eugene.Zenkov@usu.ru

Предложен новый способ полуколичественного описания оптических свойств легированных купратов и родственных систем в инфракрасной области, основанный на предположении об их фазовой неоднородности. На основе имеющихся экспериментальных данных рассчитаны спектры оптической проводимости и электронных потерь для системы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ в несверхпроводящей фазе.

Работа частично выполнена благодаря финансовой поддержке гранта CRDF REC-005, гранта E00-3,4-280 Минобразования РФ, а также гранта Российского фонда фундаментальных исследований № 01-02-96404.

Результаты экспериментальных исследований оптических свойств купратов и других низкоразмерных оксидов, накопленных к настоящему времени, позволяют выявить ряд нетривиальных закономерностей, общих для этих систем. Основным эффектом, связанным с легированием, является перенос спектрального веса из области межзонных переходов исходного нелегированного диэлектрика (1.5–2.0 eV для $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$) к меньшим энергиям, сопровождающийся закрытием диэлектрической щели, появлением MIR-полосы поглощения и развитием квазиметаллического пика оптической проводимости $\sigma(\omega)$ в **ab**-плоскости. В некоторых системах ($\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$) такая эволюция выявляет интересную особенность: кривые $\sigma(\omega)$, полученные при разных x , пересекаются практически в одной точке [1]. Низкоэнергетическая часть (0–1000 cm^{-1}) оптической проводимости ВТСП, а также некоторых несверхпроводящих оксидов ($\text{La}_{8-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_8\text{O}_{20}$ [2]) демонстрирует сложную структуру и аномальную температурную зависимость, традиционно описываемую на основе представлений о псевдощели.

Мы покажем, что многие из перечисленных необычных оптических свойств легированных купратов могут получить естественное объяснение в рамках полуэмпирической модели, основным элементом которой является предположение о фазовой неоднородности рассматриваемых систем. Модели пространственно неоднородного состояния купратов относятся к одному из наиболее интенсивно развивающихся направлений в ВТСП и обычно связаны с формированием структур типа страйпов или электронных молекул [3]. В других подходах предполагается неоднородность в обратном пространстве, которая ассоциируется с горячими и холодными участками поверхности Ферми, детектируемыми методами спектроскопии с угловым разрешением (ARPES).

1. Модель эффективной среды

Основные физические принципы разрабатываемой нами модели состоят в следующем. Появление зарядового дефекта (неизовалентное замещение, кислородная ва-

кансия) в исходной диэлектрической матрице приводит к образованию потенциальной ямы и создает условия для формирования зародышей новой проводящей фазы, способной эффективно экранировать кулоновский потенциал примеси. Такой локальный переход металл–изолятор в окрестности примеси можно качественно описать в терминах теории Бринкмана–Райса [4], в которой эффективная масса квазичастицы зависит от величины хаббардовского потенциала U на узле: $m_{\text{eff}}/m = (1 - U^2/U_c^2)^{-1}$, обращаясь в бесконечность при критическом значении U_c , что соответствует локализации. В системе, находящейся на границе перехода металл–изолятор, кулоновское поле примеси может понизить потенциал отталкивания так, что в ограниченной области квазичастицы приобретут конечную массу. С другой стороны, стабильность новой фазы может обеспечиваться ее нетривиальной топологией [5].

Логично предполагать, что описанный переход затрагивает в первую очередь низкоэнергетическую область электронного спектра. Поэтому появление проводящей фазы приведет к уменьшению эффективного числа электронов вблизи края фундаментальной полосы поглощения и переносу части спектрального веса к меньшим энергиям.

Для количественного описания физических процессов, в которых характерная длина соответствует масштабу неоднородности (спектроскопия в области длин волн $\lambda = 0\text{--}2.0\ \mu\text{m}$), легированные купраты можно рассматривать как гранулированную среду, состоящую из диэлектрических и металлических зерен. Это позволяет использовать теорию эффективной среды, разрабатывавшуюся с 1920-х гг. для расчета свойств композитов.

В приближении эффективной среды оптические свойства бинарной смеси описываются диэлектрической проницаемостью ϵ_{eff} , которая в простейшем случае определяется из уравнения

$$fD(\epsilon_{\text{eff}}, \epsilon_1) + (1 - f)D(\epsilon_{\text{eff}}, \epsilon_2) = 0, \quad (1)$$

где f — концентрация первой компоненты, $D(\epsilon_{\text{eff}}, \epsilon_1)$ — поляризуемость i -й компоненты, погруженной в эффективную среду, вычисляемая по формуле Клаузиуса–

Моссотти. Такой вариант теории соответствует простому приближению среднего поля.

Для моделирования концентрационной зависимости оптической проводимости системы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ мы использовали модифицированную теорию эффективной среды [6], в которой две компоненты смеси образуют либо ядро, либо покрытие составных частиц композита. Этот улучшенный вариант теории, аналогичный кластерному приближению среднего поля (приближение Бете–Пайерлса в модели Изинга), позволяет более правильно описать перколяционный переход и тонкие особенности оптического спектра.

Важно отметить, что представление легированного купрата в виде композита и применение формализма теории эффективной среды являются лишь удобной феноменологией для описания его сложной пространственно неоднородной электронной структуры.

Для вычисления эффективной диэлектрической проницаемости требуется задать эти функции для каждой компоненты смеси. Данные о диэлектрической проницаемости нелегированного La_2CuO_4 в области 0–2.5 eV были взяты из [1]. Мнимая часть $\epsilon(\omega)$ была подогнана двумя гауссовыми кривыми, соответствующими краю фундаментальной полосы поглощения, и лоренцианом, центрированным на 0.6 eV.

Для моделирования проводящей фазы была использована формула Друде

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)}, \quad (2)$$

в которой плазменная частота и скорость релаксации в принципе зависят от частоты, но в простейшем случае были выбраны постоянными: $\omega_p = 1.65$ eV, $\gamma = 0.5$ eV.

Существенное влияние на вид рассчитанных спектров оптической проводимости оказывают значения подгонных параметров теории, которые определяют форму эллипсоидальных частиц диэлектрической и металлической фаз. Они задают отношение полуосей эллипсоида, лежащих в **ab**-плоскости (параметр $0 < \alpha < 1$), и отношение внеплоскостной полуоси к большей из плоскостных (параметр $0 < \beta < 1$). Эти параметры входят в формулы поляризуемости частиц через деполяризационные факторы.

2. Сравнение с экспериментом

Рассчитанные спектры оптической проводимости $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ представлены на рис. 1, *a*. Они носят иллюстративный характер и не являются оптимальной подгонкой к экспериментальным кривым, приведенным на рис. 1, *b*. Числа около кривых соответствуют объемной доле p металлических частиц, которая зависит от степени легирования x . Расчет воспроизводит быстрое уменьшение спектрального веса в зоне с переносом заряда около 2.2 eV и формирование друдевского отклика, а также появление новой особенности при 1.5 eV,

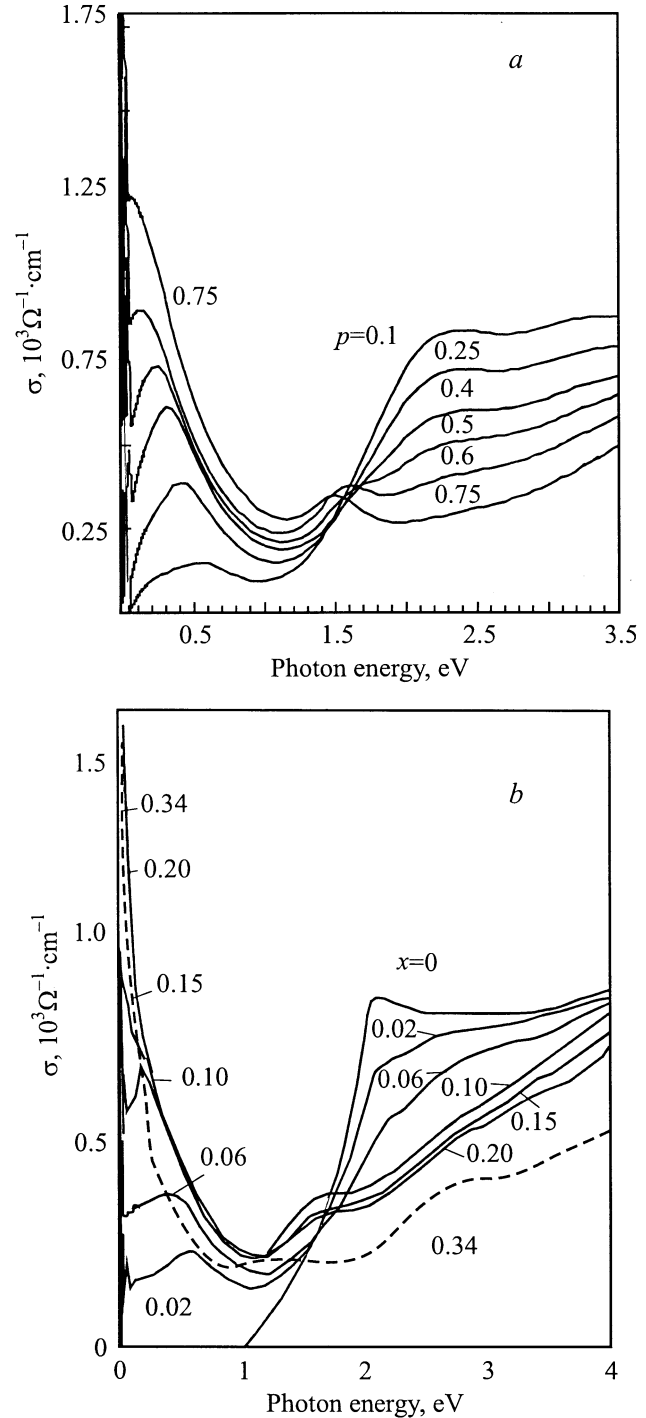


Рис. 1. Спектры оптической проводимости $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ в **ab**-плоскости при комнатной температуре. *a* — расчет, *b* — эксперимент [1]. p — объемная доля металлических частиц, зависящая от степени легирования x .

начиная с достаточно больших p . Мы связываем эту особенность, действительно наблюдаемую на экспериментальном спектре, с эффектом возбуждения поверхностных плазмонов на границах раздела металлической и диэлектрической фаз. Этот тип резонансного поглощения является специфическим для неоднородных

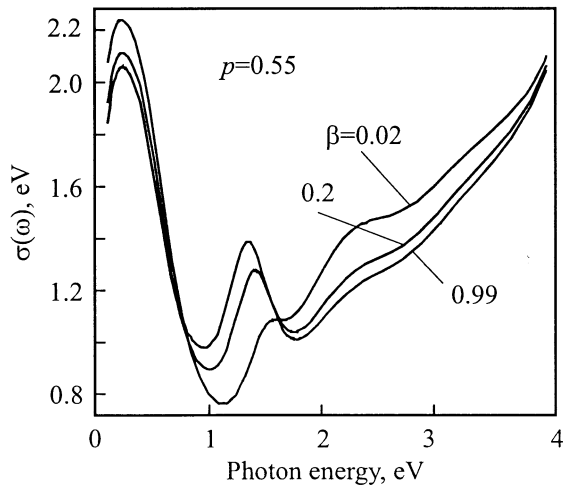


Рис. 2. Зависимость оптической проводимости от формы областей металлической и диэлектрической фаз. Меньшие числа β соответствуют более уплощенным частицам.

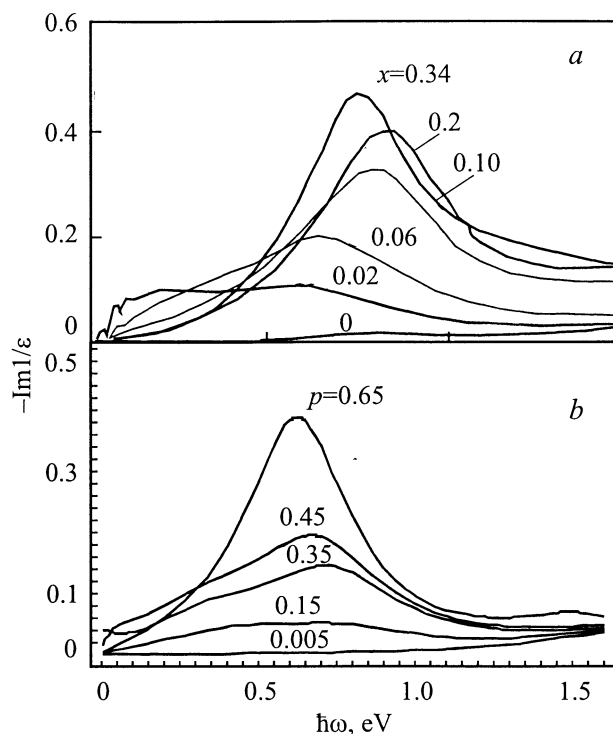


Рис. 3. Экспериментальные спектры электронных потерь при $\mathbf{k} = 0$ [1] (a) и расчет при тех же параметрах, которые использовались при расчете оптической проводимости на рис. 1, a (b).

сред и не связан с переходами в электронном спектре чистых фаз. Его параметры существенно зависят от геометрии частиц, образующих композитивную среду. Чтобы продемонстрировать влияние формы частиц на вид оптической проводимости, мы приводим на рис. 2 три спектра, рассчитанные при фиксированных физических параметрах и различной форме частиц компо-

зитной среды. Интересно отметить, что гораздо более интенсивный резонанс при 1.5 eV наблюдался в спектрах пропускания тонких пленок $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [7]. Такое поведение легко объяснить, исходя из геометрической природы рассматриваемой особенности, поскольку способ приготовления образца, внутренние напряжения в нем и т.п. могут оказывать влияние на форму границ фаз.

Приведенные на рис. 1, a теоретические спектры хорошо воспроизводят другую характерную особенность концентрационной зависимости оптической проводимости $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ — пересечение $\sigma(\omega, x)$ около 1.7 eV при различных x . Существование такой точки естественно следует из двухфазной модели. В точке, где пересекаются кривые оптической проводимости чистого металла и диэлектрика, будут пересекаться и кривые, соответствующие их смеси, так как на этой частоте изменение доли объема одной фазы за счет другой не меняет численного значения проводимости.

На рис. 3, a приведены экспериментальные спектры, а на рис. 3, b — рассчитанные спектры электронных потерь (EELS), которые определяются выражением $\text{Im}(-1/\epsilon(\omega))$, явно зависящим как от мнимой, так и от вещественной части диэлектрической проницаемости. Отметим, что в отличие от традиционных подходов в рамках теории эффективной среды пик EELS не связан напрямую с плазменной частотой, фигурирующей в формуле Друде.

Рассмотренная простейшая модель достаточно успешно передает многие характерные особенности оптических спектров выше 0.2 eV, но требует модификации для корректного описания низкоэнергетической области, где разные купраты демонстрируют универсальное поведение оптической проводимости, характеризующееся двумя компонентами при 0 и 1000 cm^{-1} , разделенными провалом. Эта структура проявляется при понижении температуры и обычно связывается с возникновением псевдошели, однако в последнее время в некоторых работах указывается на возможность ее появления в результате фазовой неоднородности [8].

Для описания низкоэнергетических процессов в развиваемой модели следует учесть, во-первых, вклады различных механизмов поглощения, а во-вторых — неоднородность рассматриваемых систем. В то время как в окрестности зарядового дефекта формируется хорошо экранирующая проводящая фаза с малой скоростью релаксации квазичастиц γ , в периферических областях на краю потенциальной ямы квазичастицы близки к локализации, а их скорость релаксации γ возрастает за счет развитых флуктуаций. На γ также может оказывать влияние малый конечный размер самой квазиметаллической капли. В поглощение такой системы вносят вклад электронные переходы внутри зародыша проводящей фазы, а также механизмы, не связанные с внутренней структурой зародыша, но характеризующие эту фазу в целом, например дрейф зародыш во внешнем поле. Это последнее представление является упрощенным.

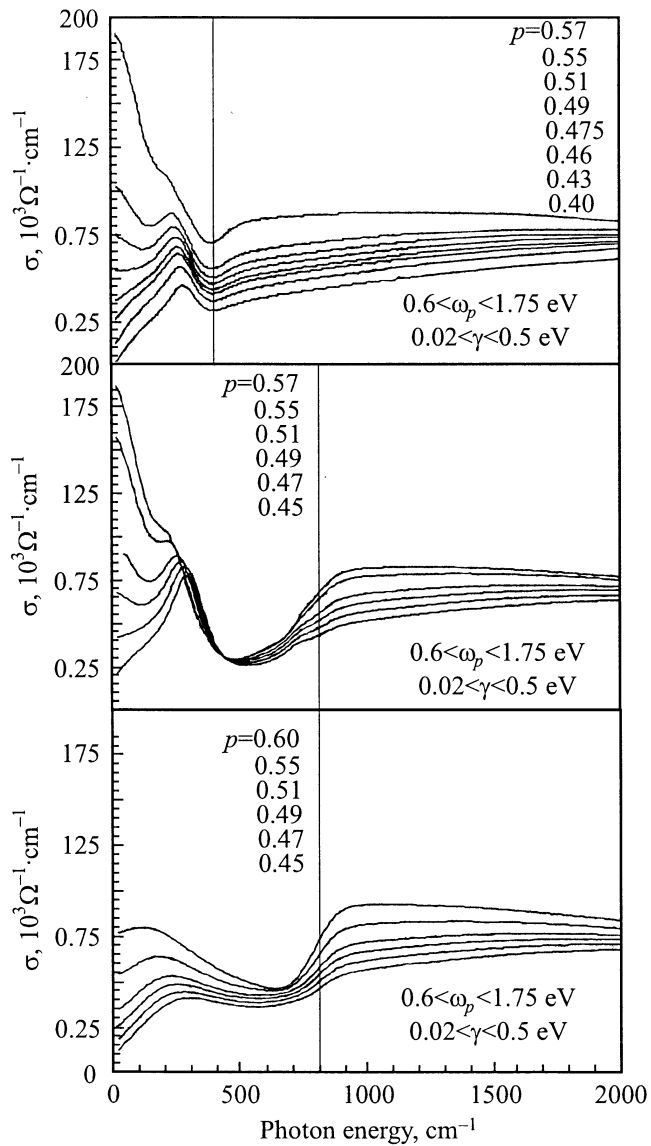


Рис. 4. Спектры низкочастотной оптической проводимости для различных концентраций металлической фазы p и значений параметров ω_0 , γ_1 и γ_2 . Вертикальной чертой отмечена граничная частота перехода ω_0 от низкочастотного к высокочастотному режиму. Интервалы изменения эффективной скорости релаксации $\gamma_1 < \gamma < \gamma_2$ и плазменной частоты $\omega_{p1} < \omega_p < \omega_{p2}$ указаны на рисунке.

Более вероятным мы считаем возникновение коллективной моды в системе зародышей (типа волн зарядовой плотности) и связанного с ней поглощения.

При построении простой феноменологической модели перечисленные факторы можно учесть путем введения частотной зависимости эффективных параметров в формуле Друде (2). В частности, мы рассмотрели ступенчатую зависимость $\gamma(\omega)$ и $\omega_p(\omega)$: при некоторой частоте ω_0 происходит переключение с режима „хорошего“ металла ($\gamma_1 = 0.05$ eV, $\omega_{p1} = 0.6$ eV) на режим „плохого“ металла ($\gamma_2 = 0.5$ eV, $\omega_{p2} = 1.75$ eV).

Из экспериментальных данных следует значение ω_0 порядка 25 meV. На рис. 4 приведен ряд спектров оптической проводимости для различных концентраций металлической фазы, а также значений ω_0 и γ_1 , γ_2 . Эти результаты показывают, что небольшое усложнение модели, делающее ее более реалистичной, приводит к весьма нетривиальному виду оптической проводимости, передающему характерные особенности, наблюдаемые в эксперименте.

Таким образом, предложенная феноменологическая модель обладает значительной общностью и может быть применена к широкому классу сильнокоррелированных систем, к которым относятся различные оксидные ВТСП, а также, например, манганиты лантана. В ее основе лежит представление о формировании зародышей проводящей фазы в минимумах потенциального рельефа, который возникает при легировании исходного диэлектрика. Для описания оптических свойств такой неоднородной системы была использована теория эффективной среды, позволяющая моделировать ее диэлектрическую проницаемость в широком диапазоне концентрации легирующей примеси. Рассчитанные в диапазоне 0.2–2 eV спектры оптической проводимости и электронных потерь системы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ разумно согласуются с имеющимися экспериментальными данными и позволяют объяснить с единых позиций многие из их характерных особенностей.

Список литературы

- [1] S. Uchida, T. Ido, H. Takagi et al. Phys. Rev. **B43**, 7942 (1991).
- [2] A. Lucarelli, S. Lupi, P. Calvani et al. Cond-mat/0106402.
- [3] F.V. Kusmartsev. Europhys. Lett. **54**, 786 (2001).
- [4] W.F. Brinkman, T.M. Rice. Phys. Rev. **B2**, 4302 (1970).
- [5] R.J. Gooding. Phys. Rev. Lett. **66**, 2266 (1991).
- [6] Ping Sheng. Rev. Lett. **45**, 60 (1980).
- [7] M. Suzuki. Phys. Rev. **B39**, 2321 (1989).
- [8] D. Mihailovic, T. Mertelj, K.A. Müller. Phys. Rev. **B57**, 6116 (1998).