

УДК 535.375

©1994

## ВОССТАНОВЛЕНИЕ КОМПЛЕКСНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ ИЗ ДАННЫХ ЭЛЕКТРОННОЙ И ОПТИЧЕСКОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

*А.Г. Панфилов, А.А. Буш, В.М. Микушкин, Г.В. Михайлов, А.Н. Старухин,  
А.В. Чугреев, В.В. Шнитов*

Предложен новый метод определения комплексной диэлектрической проницаемости  $\epsilon^*(\omega)$ , основанный на совместном анализе спектра характеристических потерь энергии электронов и оптического спектра отражения исследуемого материала. Данная методика имеет определенные преимущества перед обычно используемыми для восстановления  $\epsilon^*(\omega)$  методом Крамерса-Кронига и эллипсометрией (методом Друде). Метод апробирован на пленках Au и применен для вычисления диэлектрической проницаемости монокристалла  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$ .

Анализ Крамерса-Кронига, часто используемый для получения информации о комплексной диэлектрической проницаемости  $\epsilon^* = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ , дает значительные погрешности при попытке применения его к высокотемпературным сверхпроводникам (см. обзор [1]) и родственным им соединениям. Это связано как с сильной анизотропией этих соединений, сложностью элементарной ячейки, так и с необходимостью использования априорной информации об асимптотическом частотном поведении  $\epsilon_1$  и  $\epsilon_2$ .

Действительная и мнимая части комплексного коэффициента преломления  $n^* = n + ik$ , связанные с комплексной диэлектрической проницаемостью соотношениями  $\epsilon_1 = n^2 - k^2$  и  $\epsilon_2 = 2nk$ , могут быть вычислены в прозрачных образцах при совместном анализе их спектров пропускания и отражения света. В случае, например, высокотемпературных сверхпроводников область применимости такого подхода ограничена высококачественными оптически однородными пленками.

Более общим является эллипсометрический метод (метод Друде), в котором измеряются два параметра эллипса колебаний отраженного света. В настоящее время это, по-видимому, наиболее корректный метод изучения дисперсии комплексной диэлектрической проницаемости в широком спектральном интервале: в области ИК, видимого и ближнего УФ спектра. В более высокочастотной области применение эллипсометрических методов затруднено.

Мы предлагаем еще один метод, основанный на сопоставлении спектров отражения света и спектров характеристических потерь энергии

электронов. В отличие от эллипсометрии этот метод позволяет определить диэлектрическую функцию материала и в более высокочастотной области. В отличие от метода Крамерса-Кронига он не требует априорных предположений. В отличие от метода, основанного на измерении оптического пропускания и отражения, этот метод может быть использован и для непрозрачных объектов.

Спектры характеристических потерь предоставляют богатую информацию о спектре электронных возбуждений в материале. В то же время использование только электронной спектроскопии оказывается недостаточны для определения диэлектрической функции образцов. Однако дополнение данных электронной спектроскопии простыми оптическими измерениями позволяет восстановить спектральный ход комплексной диэлектрической проницаемости. Учитывая, что величина электронных потерь пропорциональна  $\text{Im}(-1/\varepsilon^*)$ , комплексный коэффициент преломления может быть получен в результате совместного решения уравнений

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}, \quad (1)$$

$$\text{Im}(-1/\varepsilon^*) = \frac{2nk}{n^2 + k^2}, \quad (2)$$

где  $R$  — коэффициент отражения света при нормальном падении, а  $\text{Im}(-1/\varepsilon^*)$  получается из спектров электронных потерь [2] (после вычитания квазиупругого пика и вклада многократного рассеяния) при стандартной нормировке

$$\int_0^{\infty} \omega d\omega [\text{Im}(-1/\varepsilon^*(\omega))] = \frac{\pi}{2} \omega_p^2, \quad (3)$$

где  $\omega_p$  — плазменная частота.

Для проверки корректности предлагаемого метода, анализа его преимуществ и недостатков были исследованы спектры пропускания и отражения света и спектры характеристических потерь энергии электронов тонких пленок золота, нанесенных на кварцевые подложки, и монокристаллов  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi-2212). Золото было выбрано в качестве контрольного материала, так как при его напылении не образуется оксидный слой и его спектры характеристических потерь и оптические спектры отличаются хорошей воспроизводимостью.

Спектры характеристических потерь энергии электронов измерялись на электронном спектрометре LHS-11 фирмы «Leybold AG» (ФРГ) при энергии первичных электронов  $E_0 = 2.0 \text{ keV}$ . Выбор такой энергии был обусловлен необходимостью снижения вклада поверхности в функцию характеристических потерь. Измерения проводились в счетном режиме. Ток первичных электронов не превышал  $0.1 \mu\text{A}$ , что позволяло избегать его деструктивного влияния на поверхность образцов. С целью повышения абсолютного энергетического разрешения был выбран режим торможения анализируемых электронов ( $\Delta E = \text{const}$ ). Энергетическое разрешение было не хуже  $0.5 \text{ eV}$  и ограничивалось только энергетической шириной пучка первичных электронов. Вакуум в аналитической камере спектрометра был не хуже  $10^{-10} \text{ Торр}$ . Очистка поверхности образцов Bi-2212 достигалась прогревом при температуре

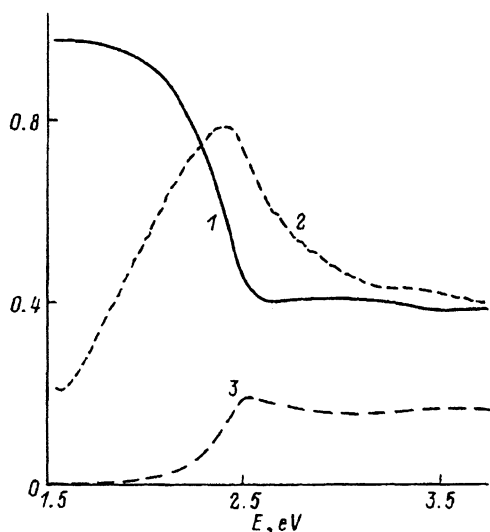


Рис. 1. Спектры оптического отражения (1), пропускания (2) золотой пленки и спектр характеристических потерь энергии электронов в золоте (3).

порядка  $450^{\circ}\text{C}$  в течение 30 min, поверхность пленок золота очищалась ионным травлением. Контроль чистоты поверхности проводился путем измерения Оже-линии углерода. Поверхность считалась чистой при невозможности выделить линию на уровне фона.

Спектры оптического отражения всех образцов и пропускания пленок были получены при нормальном падении света. Спектры в интервале  $0.5\text{--}6.0\text{eV}$  регистрировались с помощью дифракционного спектрометра СДЛ-2. При анализе спектров пленок учитывалось влияние многократного внутреннего отражения.

На рис. 1 представлены фрагменты спектров  $\text{Im}(-1/\epsilon^*)$ , оптического отражения и пропускания пленок золота, нанесенных на кварцевую подложку. Рис. 2 показывает «контрольные» спектральные зависимости  $\epsilon_1(\omega)$  и  $\epsilon_2(\omega)$ , полученные на основе только данных оптических измерений, т.е. с использованием формулы (1) и выражения, описыва-

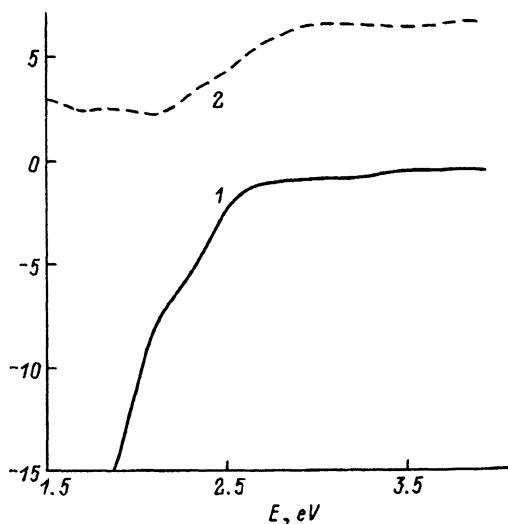
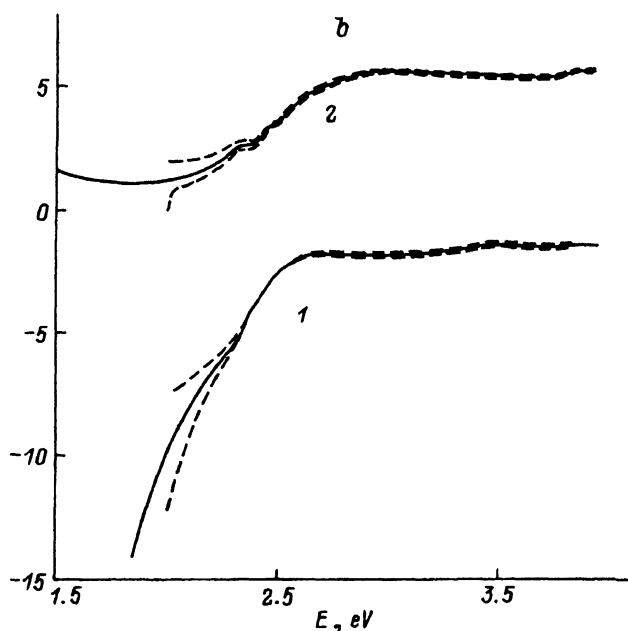
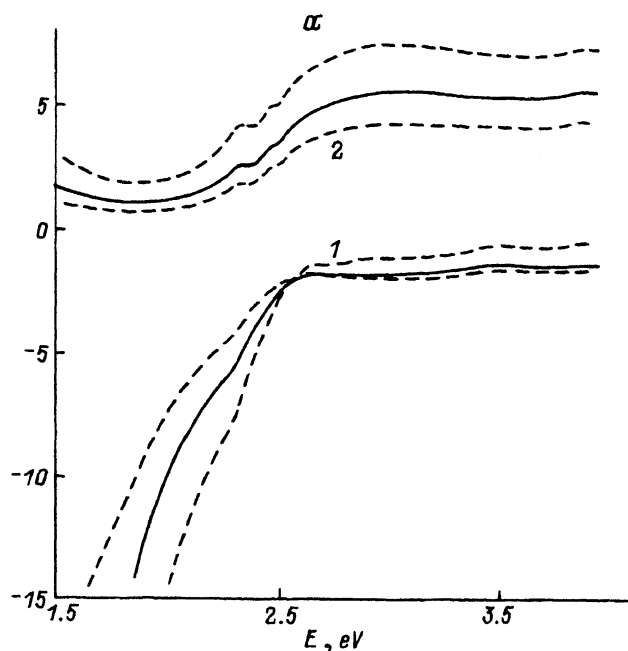


Рис. 2. Спектральные зависимости действительной  $\epsilon_1(\omega)$  (1) и мнимой  $\epsilon_2(\omega)$  (2) частей диэлектрической проницаемости золота, полученные из анализа спектров оптического отражения и пропускания пленок золота.



**Рис. 3.** Спектральные зависимости действительной  $\epsilon_1(\omega)$  (1) и мнимой  $\epsilon_2(\omega)$  (2) частей диэлектрической проницаемости золота, полученные из анализа спектров оптического отражения и характеристических потерь энергии электронов. Штриховые кривые показывают область изменения  $\epsilon_1(\omega)$  и  $\epsilon_2(\omega)$  при изменении спектра характеристических потерь электронов на  $\pm 20\%$ (a) и коэффициента отражения света на  $1\%$ (b) относительно их величин, приведенных на рис. 1.

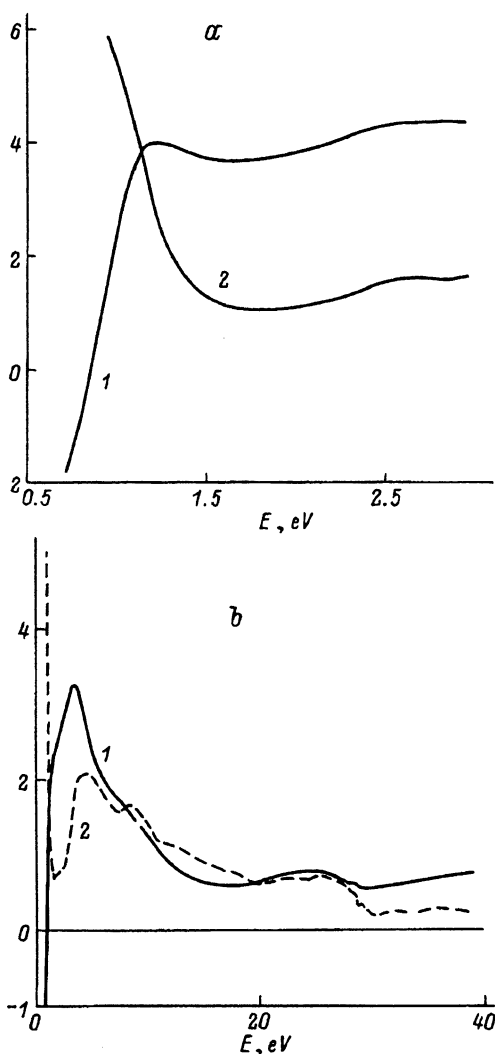


Рис. 4. Спектральные зависимости действительной  $\varepsilon_1(\omega)$  (1) и мнимой  $\varepsilon_2(\omega)$  (2) частей диэлектрической проницаемости для монокристалла  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$ , полученные из анализа спектров оптического отражения и характеристических потерь энергии электронов в различных спектральных диапазонах.

ющего пропускание с учетом многократного внутреннего отражения света

$$T = (1 - R)^2 \exp(-\alpha d) / (1 - R^2 \exp(-2\alpha d)), \quad (4)$$

где  $R$  — коэффициент отражения,  $\alpha = 2\omega k/c$  — коэффициент поглощения,  $d$  — толщина образца. Отметим хорошее совпадение этих спектральных зависимостей с данными по золоту [3–5].

На рис. 3 представлены зависимости  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$  в спектральной области 1.5–4 eV, восстановленные из данных электронной и оптической спектроскопии по (1) и (2). Видно хорошее согласие с контрольными данными рис. 2, что говорит о корректности метода, предлагаемого в данной работе.

Штриховыми кривыми на рис. 3, б показаны зависимости  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$ , полученные при изменении на  $\pm 20\%$  относительно приведенных на рис. 1 спектра характеристических потерь энергии электронов и на  $1\%$  коэффициента отражения света. Большая чувствительность к данным оптической спектроскопии следует и из сравнения данных [3] и [4]. Отметим, что возможные погрешности определения как абсолютной величины отражения, которые могут возникнуть из-за неидеальности поверхности образца, так и абсолютной величины  $\text{Im}(-1/\varepsilon^*)$ , получаемой из спектра характеристических потерь энергии электронов, не оказывают существенного влияния на вид зависимостей  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$ , что характеризует устойчивость метода.

Аналогичным образом были получены спектральные зависимости  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$  для монокристалла  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$  (рис. 4, а) в области спектра 0.5–3 eV. Для восстановления диэлектрической проницаемости  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$  в более высокоэнергетической области спектра ( $\hbar\omega \geq 6\text{ eV}$ ) мы использовали данные по оптическому отражению из работы [6]. Вычисленные на основе этих данных и спектра характеристических потерь энергии электронов зависимости  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$  для монокристалла  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$  в спектральной области до 40 eV приведены на рис. 4, б. Полученные спектры удовлетворительно согласуются с известными данными по  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$  [6, 7].

Таким образом, предлагаемый метод, не требуя априорных предположений об асимптотическом частотном поведении  $\varepsilon_1(\omega)$  и  $\varepsilon_2(\omega)$ , позволяет восстановить комплексную диэлектрическую функцию материалов на основе спектров характеристических потерь энергии электронов и простых измерений оптического отражения.

#### Список литературы

- [1] Bozovic I. // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. P. 1969–1984.
- [2] Михайлов Г.М., Рубцов В.И. // Поверхность. 1987. № 7. С. 99–105.
- [3] Landolt-Börnstein. Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. New Series. Group 3. V. 15 (b). Metals. Au.
- [4] Johnson P.B., Christy R.W. // Phys. Rev. B. 1972. V. 6. P. 4370–4379.
- [5] Irani G.B., Huen T., Wooten F. // J. Opt. Soc. Am. 1971. V. 61. P. 128–129.
- [6] Terasaki I., Tajima S., Eisaki H., Takagi H., Uchinokura K., Uchida S. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. P. 865–868.
- [7] Kim J.H., Bozovic I., Harris J.S. et al. // Physica C. 1991. V. 185–189. P. 1019–1020.

Физико-технический  
институт им. А.Ф. Иоффе РАН  
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию  
23 мая 1994 г.