

## МЕХАНИЗМЫ ГЕНЕРАЦИИ ОПТИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННЫХ НАПРЯЖЕНИЙ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ YBCO

© А.И.Грачев, И.В.Плешаков, А.П.Паугурт, С.Г.Шульман

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
(Поступила в Редакцию 18 апреля 1996 г.)

Представлены результаты впервые проведенного экспериментального разделения и идентификации вкладов различной природы в электрические напряжения, возникающие вдоль поверхности тонких пленок YBCO при их освещении. Исследованы образцы трех типов, отличающиеся по своим структурным и физическим характеристикам. Установлено существование по крайней мере трех источников напряжений, включающих фотовольтаический и пироэлектрический эффекты, а также стационарный эффект термической природы (вероятнее всего, термоэдс). Относительные вклады указанных механизмов зависят как от структурно-физических свойств пленок, так и условий эксперимента.

Существование оптически индуцированных напряжений (ОИН) в YBCO, впервые обнаруженное в [1] и независимо в [2], явилось очередным сюрпризом для исследователей высокотемпературных сверхпроводников. Действительно, появление заметных напряжений (достигавших единиц вольт [3]) в сочетании с поперечной геометрией эксперимента (напряжения возникали между электродами, находящимися на поверхности пленки, при нормальном падении на нее лазерного пучка) на первый взгляд выглядело весьма неожиданным, если учесть предполагаемую центросимметричность структуры YBCO. Последующие исследования, к сожалению, не внесли ясности в причину появления ОИН, поскольку данные, полученные различными исследовательскими группами, были весьма противоречивы. Так, если наблюдаемая в [3,4] зависимость величины напряжений от угла падения лазерного луча свидетельствовала в пользу фотовольтаической природы эффекта, то данные [5,6] о пропорциональности напряжений градиенту температуры по толщине пленки указывали на тепловой механизм генерации. Ситуация стала выглядеть еще более запутанной после появления сообщений [7,8] о наблюдении в кристаллах YBCO оптически индуцированного пироэлектрического эффекта. В результате сложившаяся к настоящему времени картина возникновения ОИН в YBCO выглядит достаточно неоднозначной и противоречивой.

Анализ имеющихся литературных данных позволяет предположить, что причины указанных противоречий кроются, во-первых, в

различия оптических способов генерации напряжений (с помощью мощных импульсных лазеров или лазеров с непрерывной генерацией), во-вторых, в различиях структурно-физических свойств используемых образцов и, наконец, в существовании в YBCO нескольких механизмов оптической генерации напряжений (стационарных и нестационарных), степень проявления которых зависит от двух указанных выше причин.

Целью проведенных нами исследований явилось экспериментальное разделение стационарных и переходных компонент оптической и термической природы в ОИН, наблюдавшихся в различных по своим структурно-физическим свойствам пленках YBCO, а также изучение их свойств и причин возникновения. Настоящая работа посвящена изложению идеи разделения компонент ОИН, основанной на различии их амплитудно-частотных зависимостей, и описанию ее экспериментальной реализации. Приведены частотные зависимости сигналов напряжений, наблюдавшиеся в образцах, отличавшихся по своим структурным и физическим характеристикам. Однозначно установлено наличие, как минимум, трех источников возникновения ОИН в сверхпроводящих пленках YBCO: фотовольтаический и пирозлектрический токи и напряжение, обусловленное стационарным термическим эффектом (вероятнее всего, термоэдс). Результаты более детального исследования природы и свойств первых двух эффектов и их связи со структурно-физическими характеристиками образцов будут опубликованы позднее.

## 1. Амплитудно-частотные характеристики механизмов генерации оптически индуцированных напряжений

Все известные на сегодняшний день механизмы генерации ОИН могут быть классифицированы, исходя из четырех следующих признаков: 1) оптический или термический механизм генерации тока; 2) их стационарная или нестационарная природа. При использовании модулированного по интенсивности света каждый из механизмов (в зависимости от сочетания указанных признаков) будет характеризоваться своей амплитудно-частотной зависимостью.

Зависимость от интенсивности падающего света  $I$  легко определить при условии линейности индуцируемых токов и температуры нагрева образца. Данное предположение в случае наших экспериментов вполне корректно, если учесть низкий уровень использовавшейся засветки ( $I_{\max} \sim 10^{-1} \text{ W/cm}^2$ ).

Предположим, что интенсивность падающего на образец света меняется по простому гармоническому закону с частотой  $\omega = 2\pi f$  (в условиях линейности отклика присутствие высших гармоник не существенно)

$$I(\omega) = I_0 \cos(\omega t). \quad (1)$$

Выражение для частотной зависимости переменной составляющей температуры освещенного образца вытекает из уравнения теплопроводности и при условии однородности засветки в плоскости пленки и незначительности градиента температуры по ее толщине имеет вид

$$\Delta T(\omega) = \delta T \left[ \omega_{\text{th}} / (\omega^2 + \omega_{\text{th}}^2)^{1/2} \right] \cos(\omega t + \varphi). \quad (2)$$

Здесь  $2\delta T$  — повышение температуры образца в условиях непрерывной засветки,  $\varphi = \text{arctg}(\omega/\omega_{\text{th}})$ , где  $\omega_{\text{th}} = 2\pi\tau_{\text{th}}^{-1}$ ,  $\tau_{\text{th}}$  — тепловая постоянная времени образца.

Предположение о незначительности градиента температуры не носит принципиального характера и сделано лишь для простоты. Однако, учитывая, что в работах [5,6] появление ОИН связывается с существованием температурного градиента по толщине пленки, необходимо остановиться на корректности этого допущения для наших экспериментальных условий. По имеющимся оценкам [3] время тепловой диффузии в пленках YBCO с толщинами порядка 100–1000 nm составляет  $10^{-7} - 10^{-6}$  s (не следует путать данную величину с  $\tau_{\text{th}}$ , которая определяется тепловыми процессами в образце в целом, т.е. «пленка + подложка»). Максимальная частота модуляции в наших экспериментах не превышала 1 kHz. Отсюда ясно, что при указанном уровне засветки ожидаемый градиент температуры будет весьма незначительным.

Исходя из выражений (1) и (2), амплитудно-частотные зависимости токов, возникающих за счет механизмов, классифицированных по выше указанным признакам, можно представить в следующем виде:  
1) стационарный фотовольтаический (или фотогальванический) ток:

$$j(\omega) = AI(\omega) \sim \cos(\omega t), \quad (3)$$

2) стационарный термоток (например, термоэдс):

$$j(\omega) = B\Delta T(\omega) \sim \left[ \omega_{\text{th}} / (\omega^2 + \omega_{\text{th}}^2)^{1/2} \right] \cos(\omega t + \varphi), \quad (4)$$

3) нестационарный термоток (например, пироэлектрический):

$$j(\omega) = C d\Delta T(\omega)/dt \sim \left[ \omega / (\omega^2 + \omega_{\text{th}}^2)^{1/2} \right] \sin(\omega t + \varphi), \quad (5)$$

4) нестационарный оптически индуцируемый ток (например, эффект «оптического выпрямления»):

$$j(\omega) = D dI(\omega)/dt \sim \omega \sin(\omega t). \quad (6)$$

Здесь  $A, B, C, D$  — коэффициенты, учитывающие геометрические и соответствующие физические (оптические, фотоэлектрические, тепловые и т.д.) характеристики образца. В выражениях (3)–(6) не учтен неизбежный для любого из механизмов спад величины генерируемого тока в области высоких частот модуляции. Однако соответствующие частоты среза (определяемые, например, в случае фотовольтаического эффекта временем жизни фотогенерируемых носителей или временем пролета ими области пространственного заряда барьера) лежат обычно существенно выше 1 kHz.

Выражение для нестационарного фотоиндуцированного тока приведено для полноты картины. В наших экспериментах подобной компоненты обнаружено не было, однако возможность ее появления в YBCO, особенно при использовании мощных лазерных импульсов, полностью исключить нельзя.

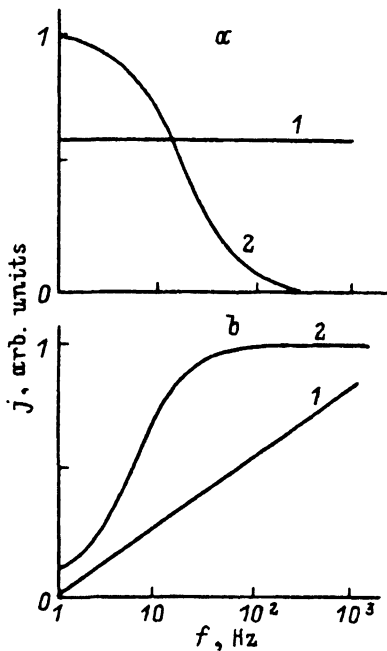


Рис. 1. Амплитудно-частотные зависимости  $j$  для стационарных (а) и нестационарных (б) эффектов.  
 1 — оптический механизм генерации, 2 — термический механизм генерации. При расчете зависимостей для термических эффектов использовалось значение  $\tau_{th} = 10^{-1}$  s.

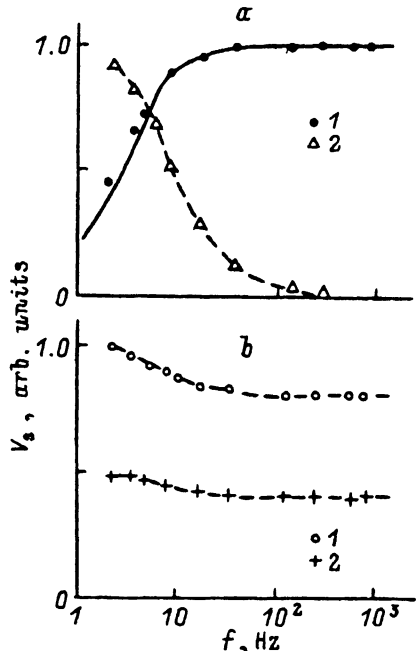


Рис. 2. а) Амплитудно-частотные зависимости сигналов  $V_s$  (1) и  $V_b$  (2) образца S1: сплошной линией показана расчетная зависимость нестационарного термического эффекта для значения  $\tau_{th} = 2.2 \cdot 10^{-1}$  s, определенного на основании зависимости  $V_b(\omega)$  образца. б) Амплитудно-частотные зависимости сигнала  $V_s$  образцов S2 (1) и S3 (2).

Выражения (3)–(6) описывают оптически индуцируемые токи, являющиеся экспериментально измеряемым сигналом в случае реализации режима короткозамкнутых электродов, когда сопротивление источника оптически индуцируемого тока  $R_{sc}$  много выше входного сопротивления регистрирующего устройства  $R_i$  (в общем случае необходим также учет сопротивления областей образца, не участвующих в генерации тока). Для нашего случая в силу высокой проводимости образцов YBCO справедливо обратное соотношение:  $R_{sc} \ll R_i$  (режим разомкнутых контактов). Поэтому измеряемый сигнал представляет собой напряжение  $V_s$ , создаваемое генерируемым током на некотором сопротивлении, близком, но не превышающем сопротивления образца  $R_s$ . Поскольку в общем случае сопротивление образца, и YBCO в частности, зависит от температуры, в индуцируемом сигнале могут появиться дополнительные составляющие, обусловленные тепловой модуляцией  $R_s$ , а именно

$$V_{ad}(\omega) = j(\omega)(dR_s/dT)\Delta T(\omega). \quad (7)$$

Легко понять, что дополнительные компоненты на основной частоте появляются лишь у стационарных эффектов. В известном смысле они аналогичны сигналу болометрического отклика, возникающего в образце, через который пропущен ток. В данном случае роль внеш-

него источника тока играют сами стационарные ОИН. Нетрудно также усмотреть квадратичность зависимости  $V_{ad}$  от  $I$ , что обеспечивает легкость их отделения от сигналов (3)–(6), линейных по  $I$ . Величины дополнительных и соответствующих основных компонент соотносятся как  $V_{ad}/V_s = (dR_s/dT)(\delta T/R_s)$ . В YBCO характерное значение  $dR_s/dT \sim 1 \Omega \cdot K^{-1}$ , поэтому вклад  $V_{ad}$  в общий сигнал может стать существенным, например при использовании мощных лазерных импульсов, вызывающих нагрев образца на десятки градусов. Однако в области сверхпроводящего перехода  $V_{ad}$  могут проявиться и при засветках существенно меньшей мощности.

На рис. 1 приведены полученные на основании выражений (3)–(6) амплитудно-частотные зависимости  $j$ . Следует отметить, что кроме очевидного различия вида кривых на рис. 1 каждый из механизмов (3)–(6) отличается и величиной сдвига фазы  $j(\omega)$  относительно фазы  $I(\omega)$ . Это дает дополнительную возможность их разделения при использовании фазочувствительного метода регистрации. Таким образом, отличие амплитудно-частотных (и фазочастотных) зависимостей существующих механизмов генерации ОИН: создает принципиальную возможность их экспериментального разделения или по крайней мере установления наличия того или иного вклада в наблюдаемом сигнале. Однако в общем случае для установления конкретной природы той или иной компоненты ОИН (например, пироэлектрического происхождения нестационарной термической составляющей) знания одной лишь амплитудно-частотной зависимости ОИН может оказаться недостаточно.

## 2. Образцы

В работе были доисследованы пленки, полученные методами магнетронного распыления и лазерной абляции на различные подложки. Электрические контакты к образцам прикреплялись с помощью индий-галлиевой эвтектики.

В таблице приведены некоторые данные о структурных и физических характеристиках трех различных типов образцов, исследованных в работе. Данные о структуре пленок были получены из рентгеновских и электронно-микроскопических исследований, а также из

Некоторые технологические и структурно-физические характеристики трех типов исследованных пленок YBCO

Образец	Метод напыления	Подложка	Текстура пленки	Толщина, nm	$T_c$ (начало перехода), К
S1	Лазерная абляция	NdGaO <sub>3</sub> ; срез (100)	Преобладание с-ориентированных кристаллитов	~ 100	93
S2	Магнетронное распыление	MgO	~ 80% площади а-ориентированные кристаллиты	~ 200	91
S3	То же	LaAlO <sub>3</sub> ; срез (110)	Кристаллиты с 45° наклоном оси с	~ 200	93

спектров комбинационного рассеяния света. Образцы  $S_2$  и  $S_3$  продемонстрировали анизотропию ряда физических характеристик, отвечающую наличию в плоскости пленки выделенного направления. Так, измерения проводимости с использованием контактов, нанесенных по углам практически квадратного образца, показали значительную разницу (в  $S_3$  она достигала одного порядка) величин сопротивлений, измеряемых между ортогонально расположенными парами контактов. Отличался и ход температурной зависимости сопротивлений: он имел более ярко выраженный полупроводниковый характер для направлений, отвечающих более высокому значению сопротивления. Наличие выделенного направления ярко проявилось и в экспериментах по микроволновому поглощению данных образцов в слабых магнитных полях.

Если анизотропия свойств пленки  $S_3$  не так удивительна, если учесть преимущественную ориентацию оси  $c$ , связанную с условиями роста пленки (см. таблицу), то появление выделенного направления в пленке на изотропной подложке из  $MgO$  достаточно неожиданно. Более подробные результаты исследования природы анизотропии и ее связи с ОИН данных образцов будут опубликованы позднее.

### 3. Методика эксперимента

В экспериментах для освещения использовалась галогенная лампа, свет от которой подводился к образцу с помощью оптоволоконного жгута. Максимальное значение интенсивности падающего света, определявшееся с помощью болометрического измерителя мощности, достигало примерно  $3 \cdot 10^{-1} \text{ W/cm}^2$ . Модуляция интенсивности светового потока осуществлялась с помощью механических прерывателей, обеспечивавших изменение частоты модуляции в диапазоне от 2 до 900 Hz.

В максимальной близости от поверхности пленки размещалась маска с прорезью, сделанная из хорошо отражающей алюминиевой фольги. Она надежно защищала электрические контакты образца от попадания света, а также существенно снижала влияние на них светового нагрева пленки.

Генерируемые сигналы напряжений через согласующий трансформатор и предусилитель подавались на вход селективного нановольтметра или фазочувствительного усилителя. В последнем случае в качестве референтного использовался сигнал фотодиода, на который подавалась часть модулированного светового потока лампы.

Температурные зависимости ОИН снимались в диапазоне от 77 К до комнатной температуры (в ряде случаев измерения пирозлектрических напряжений проводились и при более высоких температурах). Все температурные измерения проводились в режиме непрерывного нагрева образца, при этом скорость роста температуры могла варьироваться в достаточно широких пределах.

### 4. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 2 показаны частотные зависимости  $V_s$ , полученные для образцов, указанных в таблице, а также для примера приведена частотная зависимость болометрического отклика  $V_b$  одного из образцов (рис. 2,а). Сравнение зависимостей  $V_s(\omega)$  и  $V_b(\omega)$  образцов позволя-

ет не только надежно установить присутствие в  $V_e$  вкладов тепловой природы, но и произвести их количественную обработку путем использования значений  $\tau_{th}$ , извлекаемых из зависимости  $V_b(\omega)$ .

Из сравнения вида зависимостей, изображенных на рис. 1 и 2, можно однозначно сделать следующие выводы: 1) в образцах  $S2$  и  $S3$  доминирует фотовольтаическая составляющая, на фоне которой в области низких частот проявляется компонента стационарного эффекта тепловой природы; 2) в образце  $S1$  основной вклад в  $V_s$  связан с нестационарным термическим эффектом (отметим, что данные о фазовом сдвиге  $V_s(\omega)$  относительно  $I(\omega)$  подтверждают этот вывод).

Первый из выводов основан на том факте, что кроме фотовольтаического такую же частотную зависимость, как на рис. 2,  $b$ , имеет только фотогальванический эффект [9]. Последний действительно рассматривался рядом авторов [4, 10] как возможный механизм ОИН в YBCO, при этом давалась ссылка на анализ и выводы работы [11]. К сожалению, при оценке величины фотогальванического эффекта, ожидаемого для YBCO, автор [11] исходил из выражения, приведенного в [9] для случая генерации тока в продольной геометрии, в то время как генерируемые в YBCO напряжения наблюдаются в поперечной геометрии. В результате полученная в [11] оценка оказывается завышенной, как минимум, на 3-4 порядка, что не позволяет объяснить экспериментально полученные в [1-4] значения токов на основе механизма фотогальванического эффекта. Поскольку в  $S2$  и  $S3$  величина эффекта (определяемая отношением  $j/I$ ) достигала  $10^{-6} \text{ V}^{-1}$ , что по порядку величины совпадает с данными [1-4], фотогальванический механизм следует исключить из рассмотрения. Таким образом, мы приходим к вышеуказанному выводу. В дальнейшем более детальное исследование ОИН в указанных образцах подтвердило его правильность.

Природа стационарной термической компоненты в  $S2$  и  $S3$  нами подробно не исследовалась. На наш взгляд, ее появление, скорее всего, обусловлено термоэдс, возникающей из-за наличия областей как сверхпроводящей, так и диэлектрической фазы, на что указывают данные структурных и других физических исследований (необходимый градиент температуры в плоскости пленки практически неизбежен из-за неоднородности засветки, краевых эффектов и т.п.). Более того, наличие заметной фотовольтаической компоненты, наблюдаемой в этих образцах, означает присутствие в них протяженных неоднородностей, способных обесценить появление определенного вклада в термоэдс.

Пироэлектрическое происхождение нестационарной термической компоненты ОИН в образце  $S1$  было однозначно установлено благодаря специфическому характеру ее температурной зависимости (рис. 3,  $a$ ), прежде всего в области  $T_c$ . Результаты детального исследования температурного поведения пиротока публикуются отдельно; здесь же отметим, что наиболее важной его чертой является наличие резкого пика в области  $T \sim T_c$ . В принципе появление подобного пика могло бы быть связано с вкладом  $V_{ad}$ . Однако наблюдаемая линейная зависимость высоты пика от интенсивности света полностью исключает такую возможность. Следует отметить и другую особенность температурной зависимости пироэлектрического сигнала, показанной

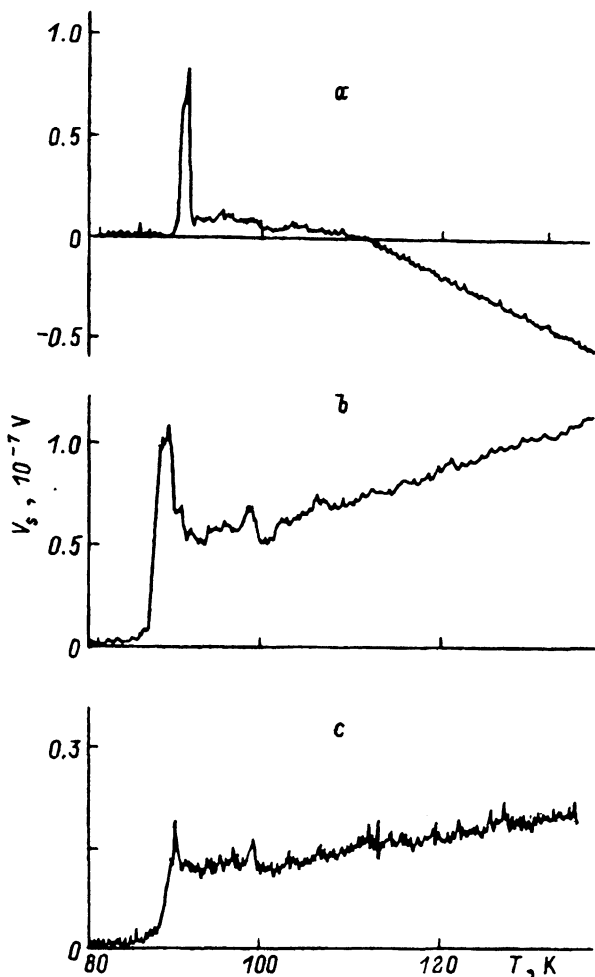


Рис. 3. Температурное поведение сигнала  $V_s$  в области сверхпроводящего перехода в образцах  $S1$  (а),  $S2$  (б) и  $S3$  (с).

на рис. 3,а — смену знака  $V_s$ , наблюдаемую при фазочувствительном методе регистрации сигнала.

Как показали измерения температурной зависимости ОИН в образцах  $S2$  и  $S3$ , аналогичные пики наблюдаются и в них (рис. 3,б,с). Причем очень важно, что пироэлектрическая компонента (как впрочем и доминирующий фотовольтаический сигнал) демонстрирует ярко выраженную анизотропию в плоскости пленок. В  $S3$  пик наблюдается только в направлении, параллельном проекции оси  $c$  на плоскость подложки. Этот результат полностью коррелирует с данными [7,8] о преимущественной ориентации пиротока вдоль указанной оси. В образце  $S2$  пик также проявился заметным образом только для пар контактов, расположенных вдоль одной из сторон подложки. Это можно расценить как указание на определенную упорядоченность расположения  $a$ -ориентированных кристаллитов, формирующих основной объем пленки (см. таблицу).



Таким образом, в ОИН образцов  $S_2$  и  $S_3$  кроме стационарного фотовольтаического и термического механизмов свой вклад вносит и пироэлектрический эффект. Очевидно, что при использовании подобных образцов в работах [1-4,6] разделение указанных вкладов в рамках проведенных там экспериментов вряд ли было стало возможным (не говоря уже о появлении дополнительных компонент типа  $V_{ad}$ ). С другой стороны, мы осознаем возможность проявления в цитируемых работах других источников ОИН (в частности, из-за значительных отличий условий генерации напряжений при использовании коротких мощных лазерных импульсов). Очевидна и роль различий структурно-физических характеристик образцов, наглядно проявившаяся и в наших экспериментах. Однозначный вывод о конкретной природе наблюдавшихся ранее в YBCO ОИН могло бы дать проведение исследований, включающих в качестве необходимого элемента измерение амплитудно-частотной зависимости ОИН.

Резюмируя, отметим, что в настоящей работе были исследованы индуцируемые белым светом малой интенсивности электрические напряжения, возникавшие вдоль поверхности тонких пленок YBCO с различной морфологией. Для разделения возможных механизмов генерации тока, вносящих вклад в общий сигнал, было проведено измерение амплитудно-частотной зависимости напряжений. Эти измерения, а также данные о температурной зависимости и анизотропии напряжений позволили идентифицировать по крайней мере три источника сигналов, а именно фотовольтаический и пироэлектрический эффекты, а также стационарный ток термоэлектрической природы (вероятнее всего, термоэдс). Полученные результаты ясно показывают, что относительные вклады указанных (и других возможных) механизмов зависят от структурных и физических свойств пленок YBCO, а также от условий эксперимента.

Данная работа выполнена при поддержке Международного научного фонда (грант N R2Z300).

#### Список литературы

- [1] C.L. Chang, A. Kleinhammes, W.G. Moulton, L.R. Testardi. Phys. Rev. **В 41**, 16, 11564 (1990).
- [2] K.L. Tate, R.D. Johnson, C.L. Chang, E.F. Hilinski, S.C. Foster. J. Appl. Phys. **67**, 9, 4375 (1990).
- [3] A. Kleinhammes, C.L. Chang, W.G. Moulton, L.R. Testardi. Phys. Rev. **В 44**, 5, 2313 (1991).
- [4] K.L. Tate, E.F. Hilinski, S.C. Foster. Appl. Phys. Lett. **57**, 23, 2407 (1990).
- [5] H.S. Kwok, J.P. Zheng. Phys. Rev. **В 46**, 6, 3692 (1992).
- [6] H. Lengfellner, G. Kremb, A. Schnellbögl, J. Betz, K.F. Renk, W. Prettl. Appl. Phys. Lett. **60**, 4, 501 (1992).
- [7] D. Mihailović, A.J. Heeger. Solid State Commun. **75**, 4, 319 (1990).
- [8] D. Mihailović, I. Poberaj, A. Mertelj. Phys. Rev. **В 48**, 22, 16634 (1993).
- [9] В.И. Белиничер, Б.Н. Стурман. УФН **130**, 3, 415 (1980).
- [10] H.S. Kwok, J.P. Zheng, S.Y. Dong. Phys. Rev. **В 43**, 7, 6270 (1991).
- [11] J.F. Scott. Appl. Phys. Lett. **56**, 19, 1914 (1990).