

Электрооптический эффект в пленках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

© В.Н. Самоваров

Физико-технический институт низких температур Академии наук Украины,
310164 Харьков, Украина

(Поступила в Редакцию 13 февраля 1997 г.)

Представлены результаты исследования оптического поглощения металлических пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ при пропускании через пленку постоянного тока до 100 мА. Для пленок с существенно нелинейной вольт-амперной характеристикой обнаружено сильное влияние тока на величину межзонного поглощения. В области оптических переходов на локальных уровнях данный эффект не наблюдался. Проведен анализ результатов с точки зрения процессов локализации и делокализации носителей.

1. Конкуренция процессов локализации и делокализации носителей в значительной мере определяет параметры высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) в нормальной и сверхпроводящей фазах. В настоящее время для диагностики этих процессов в ВТСП-системах широко используется оптическая спектроскопия поглощения и отражения в видимой и ИК-областях спектра [1–3]. В настоящей работе представлены результаты по обнаружению на металлических пленках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ сильного электрооптического эффекта (ЭО-эффект), который может рассматриваться как новый метод изучения процессов локализации \rightleftharpoons делокализация. Суть эффекта состоит в том, что оптическое поглощение пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ изменяется при пропускании через пленку постоянного тока. Анализ данных свидетельствует о том, что взаимосвязь поглощения и тока возникает из-за возможности заполнения носителями в токовом режиме областей локализации (или, наоборот, из-за выброса локализованных носителей на уровень подвижности).

2. Электрооптические измерения были выполнены при 300 К для ряда *c*-ориентированных металлических пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($x = 0.6–0.9$) толщиной $l = 2500 \text{ \AA}$ (подложки SrTiO_3). В интервале токов до $i = 100 \text{ mA}$ пленки имели линейные и нелинейные вольт-амперные характеристики (ВАХ), но наиболее показательными явились эксперименты, в которых пленка с первоначально линейной ВАХ переводилась в режим с нелинейной ВАХ и обратно. Оптическое поглощение этих пленок в зависимости от тока измерялось в спектральном диапазоне $\hbar\omega \gtrsim 1.4 \text{ eV}$. Здесь при $\hbar\omega \gtrsim 2 \text{ eV}$ сосредоточены переходы на локальных уровнях, преимущественно *d*–*d*-характера в Cu^{2+} [4], а при $\hbar\omega \gtrsim 2 \text{ eV}$ — межзонные переходы между валентной зоной и верхней (пустой) зоной Хаббарда. Эти межзонные переходы с переносом заряда от кислорода к меди принадлежат металлической плоскости CuO_2 [1,3]. Отметим, что для пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ используемые нами токи до 100 мА (плотность тока $\simeq 4 \cdot 10^3 \text{ A/cm}^2$, поля $< 5 \text{ V/cm}$) не вызывают заметных болометрических эффектов [5] и не приводят к электромиграции кислорода по решетке, которая начинается при пороговом уровне $\simeq 10^6 \text{ A/cm}^2$ [6]. Экспериментально было установлено, что ЭО-эффект

возникает на межзонных переходах только в режиме нелинейной ВАХ, амплитуда эффекта увеличивается с ростом тока (напряжения), но по мере линейризации ВАХ ЭО-эффект исчезает. На рис. 1 представлены ВАХ для пленки, которая первоначально имела слабонелинейную ВАХ (кривая *a* на рис. 1), а затем путем термообработки в вакууме была переведена в режим с сильной нелинейной добавкой к ВАХ (кривая *b* на рис. 1), отвечающей росту динамического сопротивления пленки $R_d = dU/di$. Кривые *a* и *b* рис. 2 демонстрируют для ВАХ (см. кривые *a* и *b* на рис. 1) изменения коэффициента поглощения α на частоте межзонных переходов $\hbar\omega = 2.6 \text{ eV}$ при включении и выключении тока в моменты t_1 и t_2 соответственно. Абсолютное значение коэффициента поглощения составляло на этой частоте $\alpha l = 2.6$, где l — толщина пленки. Видно, что при $t = t_1$ сразу после включения тока $i = 80 \text{ mA}$ происходит резкий рост поглощения с выходом на насыщение через несколько минут; при выключении тока в момент $t = t_2$ поглощение немедленно уменьшается. Для слабонелинейной ВАХ амплитуда эффекта очень мала: $\Delta(\alpha l) \simeq 0.01$ ($\Delta\alpha/\alpha \simeq 0.4\%$), но для сильнонелинейной ВАХ наблюдается значительный рост

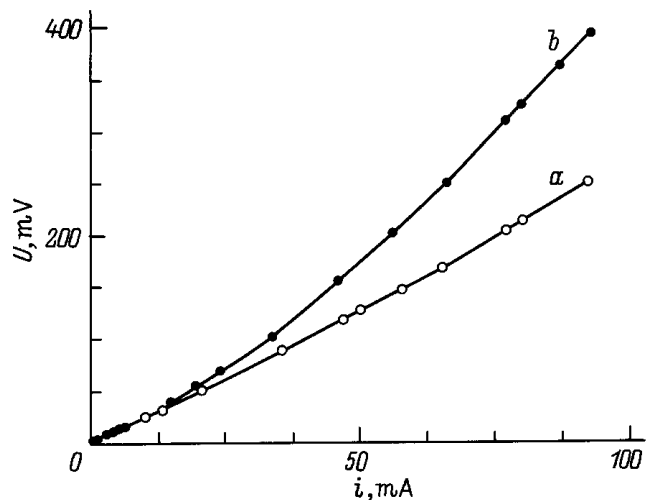


Рис. 1. ВАХ со слабой (*a*) и сильной (*b*) нелинейностью для двух электрон-структурных состояний пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($x \simeq 0.9$) при 300 К.

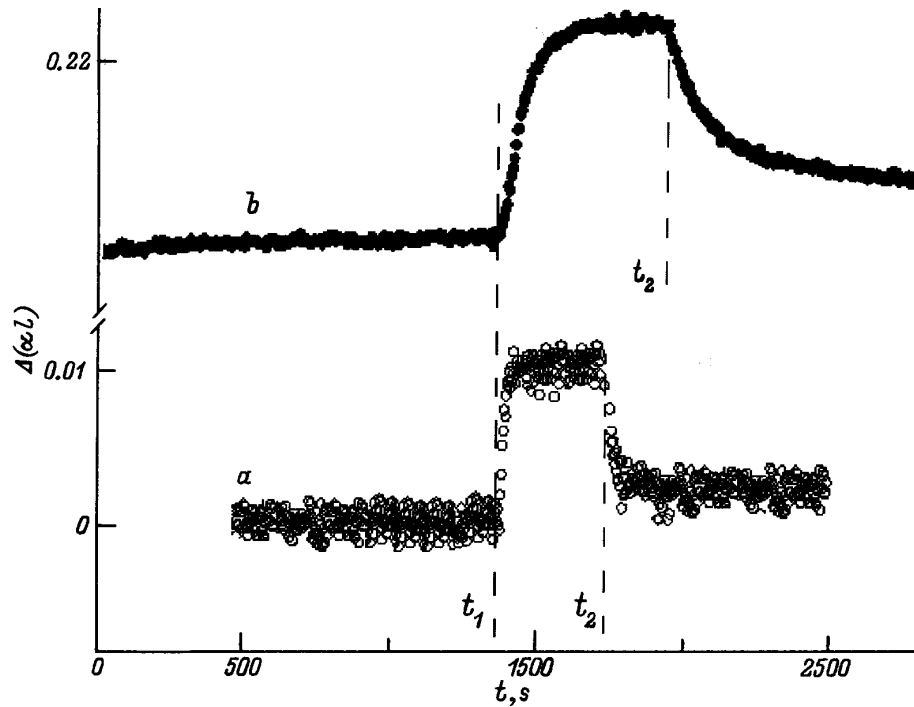


Рис. 2. Изменение оптического поглощения на частоте $\hbar\omega = 2.6 \text{ eV}$ для ВАОХ *a* и *b* (см. рис. 1) при включении и выключении тока 80 мА в моменты времени t_1 и t_2 соответственно.

поглощения: $\Delta(\alpha l) \simeq 0.22$ ($\Delta\alpha/\alpha \simeq 9\%$), причем после выключения тока поглощение не возвращается к исходному при $t = t_1$ уровню. Специальные эксперименты были проведены на неравновесных пленках, которые медленно, в течение десятков часов, релаксировали к своему равновесному для 300 К состоянию с линейной ВАХ. В процессе такой электрон-структурной релаксации, когда происходит изменение подвижности носителей [5], уменьшение нелинейной добавки к ВАХ сопровождалось уменьшением амплитуды ЭО-эффекта. В области частот $d-d$ -переходов вблизи $\hbar\omega \simeq 1.5 \text{ eV}$ рассмотренный ЭО-эффект не был обнаружен.

3. Обсудим некоторые особенности взаимосвязи ВАХ и оптического поглощения с процессами локализация \rightleftharpoons делокализация. Отклонения ВАХ от омического закона могут быть двух видов: 1) режим с избыточным током, когда ВАХ описывается законом $U^n \sim i$ ($n > 1$) и динамическое сопротивление R_d уменьшается с ростом тока; 2) режим с избыточным напряжением $U \sim i^n$ ($n > 1$), когда R_d увеличивается. Первый случай отвечает выбросу локализованных носителей из ловушек и появлению в образце инжекционного тока. Он наблюдается, например, для аморфных пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, причем для моноэнергетических ловушек ВАХ имеет вид $U^2 \sim i$ [7]. Во втором случае, наоборот, происходит захват подвижных носителей на локальные уровни и ВАХ следует закону $U \sim (\ln i)^n$ ($n > 1$) или более простому $U \sim i^2$ в зависимости от температуры и энергетического поведения плотности локальных состояний [8]. В частности, сильнонелинейная ВАХ на рис. 1,

близкая в области повышенных токов к закону $U \sim i^2$, свидетельствует о существовании в пленках пространственных областей локализации, куда в токовом режиме эффективно забрасываются подвижные носители.

Для выявления взаимосвязи оптического поглощения ВТСП-систем с процессами локализация \rightleftharpoons делокализация необходимо учесть "правило сумм", связывающее оптическую проводимость $\sigma(\omega)$ с кинетической энергией системы $\langle T \rangle$. Для квадратной решетки с N узлами эта взаимосвязь выглядит следующим образом [1]:

$$\int_0^{\infty} \text{Re} \sigma(\omega) d\omega = (e/\hbar)^2 \langle T \rangle / N. \quad (1)$$

Подобное интегральное соотношение можно записать для коэффициента поглощения α , так как $\text{Re} \sigma(\omega) = (c/4\pi)\alpha(\omega)n(\omega)$, где $n(\omega)$ — показатель преломления. Для диэлектрика с полностью заполненной валентной зоной проводимость (поглощение) целиком сосредоточена в области межзонных переходов $\hbar\omega \geq E_g$, где $E_g \simeq 1.7 \text{ eV}$ — оптическая щель для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$. Особенность хаббардовской системы состоит в том, что при металлизации диэлектрика энергия $\langle T \rangle$ слабо меняется, если $u/t \gtrsim 10-12$, где u — хаббардовская энергия отталкивания, а t — межузельный интеграл переноса [1]. Для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ величина $u/t \simeq 10$, поэтому при металлизации интеграл (1) сохраняется, но происходит спектральное перераспределение проводимости (поглощения) по разным участкам частотного диапазона. В

низкочастотной области, где появляется друдевская компонента, проводимость (поглощение) будет пропорциональной кинетической энергии свободных кислородных дырок $\langle T \rangle^D$. Тогда для металла в высокочастотной области выше некоторой граничной частоты ω_c имеем

$$(c/4\pi)n \int_{\omega_c}^{\infty} \alpha(\omega) \sim \text{const} - \langle T \rangle^D, \quad (2)$$

где учтено, что в высокочастотной области показатель преломления n от частоты практически не зависит [9]. Экспериментальные данные по перераспределению спектра в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ при кислородном допировании показывают, что $\hbar\omega_c \simeq 1.2 \text{ eV}$ и эта граничная энергия при металлизации практически не смещается [1]. Из (2) следует, что поглощение в высокочастотной области зависит от поведения $\langle T \rangle^D$. При захвате дырочных носителей в области локализации, когда кинетическая энергия локальных дырок увеличивается и соответственно уменьшается $\langle T \rangle^D$, поглощение на межзонных переходах должно расти. Этот случай отвечает рассмотренному выше ЭО-эффекту для пленки, в которой существуют пространственные области локализации, определяющие нелинейность ВАХ на рис. 1. С увеличением тока все большее число носителей забрасывается в области локализации, и амплитуда ЭО-эффекта увеличивается. При этом "асимметричное" поведение поглощения на рис. 2 означает, что после выключения тока часть носителей остается в областях локализации. Для $d-d$ -переходов, когда поглощение определяется сильно локализованными медными дырками, рассмотренный ЭО-эффект должен отсутствовать, что, как уже отмечалось, наблюдается в эксперименте. Вместе с тем следует ожидать сильного ЭО-эффекта в области друдевского поглощения ($\hbar\omega < 1 \text{ eV}$), когда уменьшение $\langle T \rangle^D$ при захвате кислородных носителей в области локализации приведет к заметному снижению поглощения в токовом режиме. Аналогичным образом на основании вышеизложенного можно провести рассмотрение электрооптического эффекта для ВТСП-пленок с "инжекционным" типом ВАХ (например, для мелкокристаллических или аморфных пленок), когда происходит выброс носителей на уровень подвижности.

Автор выражает глубокую признательность М.Ю. Либину, С.А. Уютнову за помощь в экспериментах, а также И.Я. Фуголь за обсуждение полученных результатов.

Список литературы

- [1] E. Dagotto. Rev. Mod. Phys. **66**, 3, 763 (1994).
- [2] A.V. Puchov, P. Fournier, T. Timusk, N.N. Kolesnikov. Phys. Rev. Lett. **77**, 9, 1853 (1996).
- [3] И.Я. Фуголь, В.Н. Самоваров. ФНТ **22**, 11, 1241 (1996).
- [4] D. Salamon, P. Abbamante, R. Liu, M. Klein, W. Lee, D. Gingsberg. Phys. Rev. **B53**, 2, 886 (1996).

- [5] В.М. Дмитриев, В.В. Еременко, И.С. Качур, В.Г. Пирятинская, О.Р. Приходько, А.М. Ратнер, Е.В. Христенко, В.В. Шапиро. ФНТ **21**, 2, 219 (1995).
- [6] V. Moeckly, D. Lathrop, R. Buhrman. Phys. Rev. **B47**, 1, 400 (1993).
- [7] В.Д. Окунев, Н.Н. Пафомов. Письма в ЖТФ **17**, 9, 1 (1991).
- [8] Е.И. Гольдман, А.Г. Ждан, В.Н. Неменуций. ФТП **12**, 5, 833 (1978).
- [9] W. Markowitsch, W. Mayr, P. Schwab, X. Wang. Physica **C223**, 1/2, 117 (1994).