

05;07

Термические эффекты в аморфных слоях YBaCuO при взаимодействии с лазерным излучением высокой мощности

© В.Д. Окунев, В.А. Исаев, P. Gierlowski,
A. Klimov, S.J. Lewandowski

Донецкий физико-технический институт НАН Украины
Instytut Fizyki PAN, Al. Lotnikow 32, 02–668 Warszawa, Poland
E-mail: okunev@mail.fti.ac.donetsk.ua

Поступило в Редакцию 8 февраля 2005 г.

Исследовано влияние УФ лазерного излучения (KrF , $\hbar\omega = 5.01 \text{ eV}$, $\tau = 25 \text{ ns}$) на оптическую прозрачность и распределение температуры в аморфных слоях YBaCuO. Показано, что взаимодействие лазерного излучения с пленками имеет адиабатический характер с экспоненциальным уменьшением температуры по толщине образцов; крутизна спада температуры определяется величиной коэффициента оптического поглощения лазерного излучения. Найдено значение удельной теплоемкости аморфного YBaCuO: $c = 1.15 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Интерес к взаимодействию оптического излучения с высокотемпературными сверхпроводниками обусловлен уникальной природой носителей заряда в ВТСП. Наличие диэлектрической формы существования у химических соединений, относящихся к ВТСП, стимулирует изучение явлений, связанных с генерацией носителей заряда, с переходом диэлектрик–металл и неравновесной сверхпроводимостью. Лазерное излучение позволяет усиливать эффекты, обусловленные фотогенерацией неравновесных носителей [1], влиять на атомный порядок образцов [2–4] и наблюдать фазовые переходы в неравновесных условиях. Большой интерес для проведения подобных экспериментов представляют неупорядоченные системы, обладающие высокой подвижностью элементов структуры [5–7].

Термические процессы, играющие значительную роль практически во всех исследуемых эффектах, вызывают необходимость в количественной оценке изменения средней температуры (ΔT) облучаемых пленок

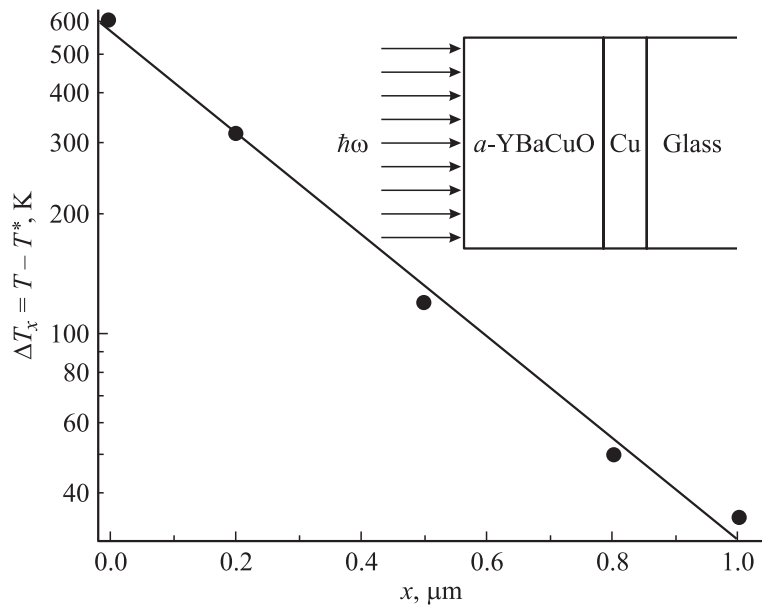


Рис. 1. Распределение температуры по толщине аморфных пленок YBaCuO при облучении лазерными импульсами с плотностью энергии 0.1 J/cm^2 . На вставке: геометрия структуры и схема эксперимента.

YBaCuO. Определение ΔT по известной формуле

$$\Delta Q = cm\Delta T, \quad (1)$$

где ΔQ — энергия, c — теплоемкость, m — масса и ΔT — изменение температуры, дает большую неопределенность, связанную с наличием сильно различающихся друг от друга данных по теплоемкости YBaCuO, зависящих от температуры измерений и структурного состояния образцов [8–12]. Это привело к необходимости экспериментального определения температуры пленок, осуществлявшееся с использованием структуры, схематически изображенной на рис. 1. На подложки из кварцевого стекла, прозрачные для лазерного излучения, методом термического испарения осаждались тонкие ($\sim 1000 \text{ \AA}$) медные пленки, по изменению сопротивления которых (после соответствующей калиб-

ровки) определялась их температура при облучении лазерными импульсами. Далее, на данную структуру методом импульсного лазерного распыления сверхпроводящей мишени $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в атмосфере кислорода ($p = 270 \text{ mTorr}$) осаждались аморфные слои YBaCuO . Использовался эксимерный (KrF) лазер ($\hbar\omega = 5.01 \text{ eV}$, $\tau = 25 \text{ ns}$, $f = 10 \text{ Hz}$, $F = 1.5 \text{ J/cm}^2$). Условия роста слоев, за исключением температуры их осаждения ($T_s = 300 \text{ K}$) и типа подложек (кварцевые стекла), были близки к оптимальному режиму получения эпитаксиальных кристаллических пленок YBaCuO в геометрии „on-axis“ относительно оси плазменного факела [13]. Приготовленные таким образом структуры облучались тем же самым лазером KrF, но в воздушной атмосфере, за пределами вакуумной камеры, при $T = 295 \text{ K}$. Максимальная плотность энергии ($F < 0.3 \text{ J/cm}^2$) была ниже порога распыления мишени YBaCuO [14]. Параллельно осуществлялся контроль структуры (рентгеновским методом) и спектров оптического пропускания облученных образцов.

Гистерезис на зависимости сопротивления пленки Cu от энергии импульса при смене направления измерений отсутствовал, что обусловлено малой длительностью лазерного импульса и низкой склонностью стеклообразных слоев YBaCuO к кристаллизации.

При независимости коэффициента поглощения от интенсивности лазерное излучение ослабляется по экспоненциальному закону

$$I = I_0 f(R) \exp(-\alpha_{\text{YBCO}}^{(0)} d), \quad (2)$$

где d — толщина аморфной пленки и $f(R)$ — функция, зависящая от коэффициента отражения R ; в простейшем случае $f(R) = 1 - R$. Если за время импульса пренебречь теплообменом, рассматривая нагрев слоя YBaCuO как чисто адиабатический процесс, то увеличение температуры $\Delta T_x = T - T^*$, где T — локальная температура и T^* — температура окружающей среды, пропорционально интенсивности излучения и описывается соотношением, подобным (2):

$$\Delta T_x = T_0 f(R) \exp(-\alpha_{\text{YBCO}}^{(T)} x), \quad (3)$$

где x — текущая координата в направлении распространения излучения. Предполагая, что медная пленка полностью поглощает прошедшее через слой YBaCuO излучение (это соответствует результатам изме-

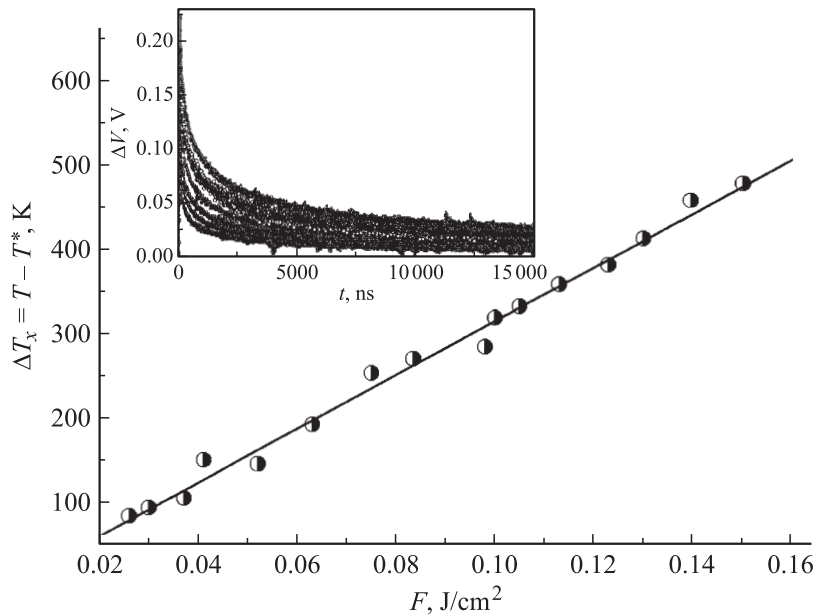


Рис. 2. Линейная связь между локальной температурой в аморфном слое (при $x = 0.2 \mu\text{m}$) и плотностью энергии лазерного импульса. На вставке: осциллограммы отклика медного датчика (изменения температуры со временем).

рений), баланс энергии можем представить в виде

$$J = \Delta Q_{(\text{YBCO})} + \Delta Q_{(\text{Cu})}, \quad (4)$$

где J — поглощенная энергия лазерного импульса. Количество энергии лазерного излучения, поглощенное аморфной пленкой и перешедшее в тепло на единицу поверхности:

$$\Delta Q_{(\text{YBCO})} = c_{(\text{YBCO})} m \Delta T \sim \frac{1}{d} \int_0^d \exp(-\alpha_{\text{YBCO}}^{(T)} x) dx. \quad (5)$$

Отклик датчика от величины потока описывается линейной зависимостью (рис. 2). Анализ осциллограмм изменения сопротивления пленки Cu под действием лазерного импульса (типичные кривые

приведены на вставке к рис. 2) показал, что инерционность системы аморфная пленка—медный датчик—стеклянная подложка, определяющаяся процессами перераспределения тепла, на 2–3 порядка превышает длительность импульса. Следовательно, при рассмотрении нагрева аморфной пленки лазерным излучением процессы теплопередачи можно действительно не учитывать. При адиабатическом взаимодействии лазерного излучения со структурой, представленной на рис. 1, температура на границе слоя YBaCuO толщиной d_i с пленкой Cu составляет $T_{di} = f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_i)$, уменьшаясь к границе с подложкой до величины $T_{Cu-G} = f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_i) \times f(R_{YBCO-Cu}) \exp(-\alpha_{Cu}d_{Cu})$. При температурах на поверхностях медной пленки $f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_i)f(R_{YBCO-Cu})$ и $f(R_{YBCO})T_0 \times \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_i)f(R_{YBCO-Cu}) \exp(-\alpha_{Cu}d_{Cu})$ ее средняя температура увеличивается на

$$\Delta T_i = \frac{f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_i)f(R_{YBCO-Cu})[1 - \exp(-\alpha_{Cu}d_{Cu})]}{\varphi}, \quad (6)$$

где φ зависит от процедуры усреднения температуры по толщине медного датчика. В простейшем случае $\varphi = 2$. Аналогично для аморфного слоя YBaCuO толщиной d_j

$$\Delta T_j = \frac{f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d_j)f(R_{YBCO-Cu})[1 - \exp(-\alpha_{Cu}d_{Cu})]}{\varphi}. \quad (7)$$

И таким образом, при лазерном облучении двух пленок YBaCuO толщиной d_i и d_j для соотношения разностей температур $\Delta T_i/\Delta T_j$ получаем:

$$\frac{\Delta T_i}{\Delta T_j} = \exp[-\alpha_{YBCO}^T(d_j - d_i)], \quad (8)$$

которое не зависит от ряда параметров исследуемой структуры, характеристик измерительной системы и от процедуры усреднения температуры по толщине медного датчика. Как видно из (6)–(8), при определении α_{YBCO}^T не обязательно и полное поглощение лазерного излучения медной пленкой. Исходя из экспериментальных данных для толщин слоев YBaCuO $d_1 = 2000 \text{ \AA}$ и $d_2 = 5000 \text{ \AA}$, была определена величина $\alpha_{YBCO}^T = 3.26 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$. При использовании значений $\Delta T_i/\Delta T_j$ для $d_i = 0.5 \mu\text{m}$ и $d_j = 1.0 \mu\text{m}$ коэффициент $\alpha_{YBCO}^T = 2.46 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$.

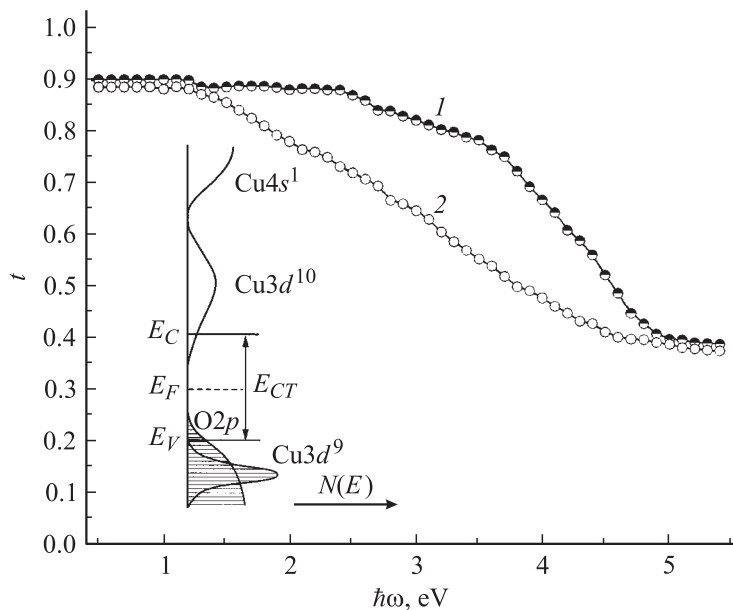


Рис. 3. Спектры оптического пропускания *a*-YBaCuO: 1 — исходной пленки толщиной 2500 Å; 2 — после лазерного облучения. На вставке: модель плотности состояний *a*-YBaCuO.

Средняя величина $\alpha_{\text{YBCO}}^T = 2.86 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ с точностью до 15% соответствует коэффициенту оптического поглощения $\alpha_{\text{YBCO}}^0 = 2.5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ для $\hbar\omega = 5 \text{ eV}$.

Обработка результатов измерений оптического пропускания излучения с $\hbar\omega = 5 \text{ eV}$ пленками различной толщины в области, где пропускание не зависит от энергии лазерного импульса, показало, что коэффициент отражения составляет около 10%. При $R_{\text{YBCO}} = 0.1$ значение $T_0 = 684^\circ\text{C}$. В соответствии с описанной процедурой была определена температура еще в нескольких точках. Как и ожидалось, распределение температуры по толщине слоя YBaCuO имеет экспоненциальный характер (рис. 1) и описывается (3) с $\alpha_{\text{YBCO}}^T = 2.9 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$.

Спектры оптического пропускания одной из пленок толщиной $d = 2500 \text{ Å}$, до и после лазерного облучения (45 импульсов с энергиями от 30 до 270 мДж/см²) приведены на рис. 3. Модель плотности

состояний [7] представлена на вставке к рис. 3. Края валентной зоны и зоны проводимости размыты, и в распределении плотности состояний имеются протяженные „хвосты“. Интенсивность оптических переходов ($O2p \Rightarrow Cu3d$) через щель с переносом заряда (E_{CT}) мала и обусловлена в основном наличием небольшого количества кристаллических кластеров, являющихся источниками внутренних напряжений и локализованных состояний в аморфных пленках [6,7,15]. Благодаря локализации электронных состояний в зоне $Cu3d^{10}$ роль зоны проводимости переходит к зоне $Cu4s^1$ состояний, а край оптического поглощения смещен в область $\hbar\omega > 4\text{ eV}$ [7].

Приготовленные образцы были устойчивы к воздействиям лазерного излучения: изменения в спектрах оптического пропускания были слабыми и заметными лишь в средней области спектра. При $\hbar\omega \cong 5\text{ eV}$ эти изменения не превышали 2–3%, в то время как при $\hbar\omega = 2.5 \div 4.5\text{ eV}$ — на порядок выше. Необходимо отметить, что оптические спектры ВТСП при энергиях $\hbar\omega > 4\text{ eV}$ мало чувствительны даже к значительным изменениям структурного состояния, например к фазовым переходам аморфное состояние — кристалл [7,16]. Кроме этого, сочетание низкой кристаллизационной способности исследуемых аморфных слоев с малой длительностью лазерного импульса сохраняет практически в неизменном виде структуру пленок даже при достижении высоких (вплоть до плавления $YBaCuO$) температур.

Распределение температуры по толщине аморфного слоя $YBaCuO$ определяется соотношением $T_x = f(R_{YBCO})T_0 \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}x)$, где x — текущая координата в направлении распространения излучения. Для средней температуры в аморфном слое можно записать:

$$\begin{aligned} T_m &= \frac{1}{d} f(R_{YBCO})T_0 \int_0^d \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}x) dx \\ &= \frac{1}{\alpha d} f(R_{YBCO})T_0 [1 - \exp(-\alpha_{YBCO}^{(T)}d)]. \end{aligned} \quad (9)$$

В соответствии с (1), значение удельной теплоемкости $c = \frac{\Delta Q}{m\Delta T}$. При $F = 0.1\text{ J/cm}^2$, $d = 2.5 \cdot 10^{-5}\text{ cm}$ получаем $T_m = 467.3^\circ\text{C}$ и находим значение $c = 1.15\text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, что несколько превышает величину $c = 1.0\text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [8] для кристаллического $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в области высоких температур.

Авторы признательны З.А. Самойленко и Е.И. Пушенко за проведение рентгеноструктурных исследований образцов.

Работа частично поддержана грантом Польского Правительства № 2 РОЗВ 044 23.

Список литературы

- [1] *Adam R., Kula W., Sobolewski R.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67. N 25. P. 3801–3803.
- [2] *Bock A., Kursten R., Bruhl M.* et al. // *Phys. Rev. B.* 1996. V. 54. N 6. P. 4300–4309.
- [3] *Li Y.B., Shelley C., Cohen L.F.* et al. // *J. Appl. Phys.* 1996. V. 80. N 5. P. 2929–2934.
- [4] *Iliev M.N., Habermeier H.U., Cardona M.* et al. // *Physica C.* 1997. V. 279. N 1 & 2. P. 63–69.
- [5] *Мотт Н., Дэвис Э.* Электронные процессы в некристаллических веществах. М.: Мир, 1982. Т. 1. 368 с.
- [6] *Konopka J., Okunev V.D., Samoilenko Z.A.* et al. // *Physica C.* 2000. V. 341–348. P. 2147–2148.
- [7] *Okunev V.D., Samoilenko Z.A., Abal'oshev A.* et al. // *Phys. Rev. B.* 2000. V. 62. N 1. P. 696–701.
- [8] *Otsubo S., Minamikawa T., Yonezawa Y.* et al. // *Japan J. Appl. Phys.* 1990. V. 29. N 1. P. L73–L76.
- [9] *Shan P.C., Celik-Butler Z., Butler D.P.* et al. // *J. Appl. Phys.* 1996. V. 80. N 12. P. 7118–7123.
- [10] *Варламов Ю.Д., Волков А.Н., Предтеченский М.Р.* и др. // *Сверхпроводимость.* 1992. V. 5. N 10. P. 1736–1740.
- [11] *Onuki M., Fujiyoshi T., Ohsumi H.* et al. // *Physica C.* 1994. V. 235–240. Part II. P. 1383–1384.
- [12] *Fujishiro H., Ikebe M., Naito T.* et al. // *Physica C.* 1994. V. 235–240. Part II. P. 825–826.
- [13] *Okunev V.D., Samoilenko Z.A., Abal'oshev A.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1999. V. 75. N 13. P. 1949–1951.
- [14] *Singh R.K., Narayan J.* // *Phys. Rev. B.* 1990. V. 41. N 13. P. 8843–8859.
- [15] *Okunev V.D., Samoilenko Z.A., Svistunov V.M.* et al. // *J. Appl. Phys.* 1999. V. 85. N 10. P. 7282–7290.
- [16] *Окунев В.Д., Дьяченко Т.А.* // *ФТТ.* 1993. Т. 35. N 11. С. 3076–3081.