Физика низких температур, 1995, т. 21, № 2, с. 219–227 УДК 538.945

Кинетика критических токов, критической температуры сверхпроводимости и электропроводности нормального состояния при фотооблучении эпитаксиальной пленки $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

В. М. Дмитриев, В. В. Еременко, И. С. Качур, В. Г. Пирятинская, О. Р. Приходько, А. М. Ратнер, Е. В. Христенко, В. В. Шапиро

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47

Статья поступила в редакцию 29 июля 1994 г.

Проведены измерения временных зависимостей критического тока I_c, критической температуры T_c и проводимости нормального состояния σ в эпитаксиальной сверхпроводящей металлооксидной пленке $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ в процессе длительного фотооблучения. Показано, что кинетика σ, T_c и I_c сформирована двумя процессами с различающимися на порядок постоянными времени. Быстрый процесс связан с возрастанием числа дырочных носителей. Медленный процесс связан с упорядочением кислорода в плоскости CuO_x при постоянном числе носителей. Этот процесс влияет на движение носителей в плоскости CuO_2 через потенциальный рельеф, создаваемый в ней примесными зарядами плоскости CuO_x. В кинетике критической температуры T_c проявляется только медленный процесс, откуда вытекает непосредственная связь высокотемпературной сверхпроводимости с потенциальным рельефом. Показано, что основным механизмом ограничения критического тока в пленках $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ являются слабые связи, образующиеся на участках с пониженной электрической прозрачностью.

Проведено вимірювання часових залежностей критичного струму I_c, критичної температури T_c та провідності нормального стану σ в епітаксіальній надпровідній металооксідній плівці $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ в процесі тривалого фотоопромінення. Показано, що кінетика σ, T_c та I_c сформована двома процесами з постійними часу, що відрізняються на порядок. Швидкий процес пов'язаний із зростанням кількості дірочних носіїв. Повільний процес пов'язаний із упорядкуванням кисню в площині CuO_x при постійній кількості носіїв. Цей процес впливає на рух носіїв в площині CuO_2 через потенціальний рельеф, створений у ній домішковими зарядами площини CuO_x. В кінетиці критичної температури T_c виявляється тільки повільний процес, звідки випливає беспосередній зв'язок високотемпературної надпровідності з потенціальним рельефом. Показано, що основним механізмом обмеження критичного струму в плівках $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ є слабкі зв'язки, що утворюються на ділянках із зниженою електричною прозорістю.

Введение

Известно [1–7], что ряд характеристик высокотемпературных сверхпроводящих (ВТСП) пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x < 0{,}95$ может быть улучшен путем их светового облучения. Фотооблучение генерирует дополнительные носители заряда — кислородные дырки — и металлизирует пленки, повышая плотность носителей и критическую температуру сверхпроводящего перехода аналогично кислородному допированию. Одновременно уменьшается электросопротивление в нормальной фазе [1–3,7]. При фотооблучении изменяются также спектральные характеристики пленок. Так например, облучение пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x < 0{,}6$ ослабляет полосу двухмагнонного рассеяния света вследствие подавления антиферромагнитных спиновых корреляций [6], а спектр поглощения света приобретает вид, соответствующий более высокому значению x [7].

Фотоиндуцированные изменения резистивных и спектральных характеристик $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ являются долгоживущими до тех пор, пока температура пленки не превышает 150–200 К. Анализируя экспериментальные данные о влиянии фотооблучения на резистивные характеристики широкого класса ВТСП соединений, авторы работы [1] эмпирически установили, что долгоживущий фотоиндуцированный эффект характерен именно для 1–2–3 системы и не может существовать в ВТСП соединениях без цепочечной CuO_x подсистемы, таких, как $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8\pm y}$ или $La_{2-x}Sr_xCuO_{4\pm\delta}$.

© В. М. Дмитриев, В. В. Еременко, И. С. Качур, В. Г. Пирятинская, О. Р. Приходько, А. М. Ратнер, Е. В. Христенко, В. В. Шапиро, 1995

Отсюда следует, что долгоживущие эффекты связаны с фотостимулированным движением кислорода по кислородным вакансиям медно-кислородных цепочек. Перераспределение кислорода приводит к удлинению цепочек и возрастанию их суммарного заряда [1], а следовательно, к повышению концентрации дырочных носителей в плоскости CuO_2.

Особый интерес представляет влияние фотооблучения на критическую температуру T_c. К настоящему времени сформировалось [1–3,8] довольно устойчивое представление о том, что критическая температура T_c медно-оксидных ВТСП соединений в основном определяется единственным параметром — числом дырочных носителей n_h. Такая точка зрения базируется на экспериментально наблюдаемой корреляции между T_c и n_h. Так, в области слабого и среднего допирования концентрационный ход T_c повторяет концентрационную зависимость n_h. Повышение T_c, соразмерное с возрастанием n_h, наблюдалось при сжатии образца $YBa_2Cu_4O_8$ [9]. Связь между T_c и числом дырочных носителей n_h подтверждается формой отклика T_c и проводимости нормального состояния σ при облучении образца короткими световыми импульсами [10]. В рамках таких представлений интерпретировались долгоживущие изменения T_c и σ, наблюдаемые в монокристаллических образцах $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при длительном фотооблучении или отжиге [1–3,8].

Однако корреляция между T_c и n_h, наблюдаемая в разных экспериментах, еще не доказывает того, что T_c определяется единственным параметром n_h. Остается открытым вопрос о том, в какой степени T_c может зависеть при данном n_h от ячеечной структуры монокристаллического образца, изменяющейся при перерасиределении допирующей примеси (например, в цепочечной плоскости CuO_x). Постановка такого вопроса представляется оправданной, поскольку допирующая акцепторная примесь влияет на электронные свойства двояким образом: в проводящую область CuO_2 поставляются дырочные носители, а отрицательные примесные ионы, располагающиеся в цепочках CuO_x, создают для носителей потенциальный рельеф [11].

Ранее этот вопрос систематически не изучался ввиду очевидных трудностей, связанных со следующими обстоятельствами. Структурные изменения, как правило, сопряжены с изменениями n_h. Например, при фотооблучении [1,2] или отжиге [8] образцов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ упорядочение кислорода в плоскости CuO_x сопровождается удлинением медно-кислородных цепочек, которое влечет за собой повышение концентрации носителей в проводящей плоскости CuO_2. Чтобы разделить вклады в небольшие изменения T_c, связанные со структурой и числом носителей, нужна надежная и точная методика измерения n_h, пока еще не разработанная.

В настоящей работе показано, что структурная зависимость критической температуры играет существенную роль и в определенных условиях оказывается доминирующей. Структурная зависимость T_c выделяется путем сравнительного анализа кинетики критической температуры и электропроводности в процессе длительного фотооблучения. Кроме того показано, что в результате фотооблучения повышается плотность критического тока в эпитаксиальных пленках $YBa_2Cu_3O_{6+x}$, а резистивный переход становится более узким.

1. Методика эксперимента

Для исследований использовалась эпитаксиальная пленка $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ на подложке из $SrTiO_3$ размером 10×10 мм. Критическая температура $T_c \approx 43{,}4$ K ($R = 0$), ширина перехода составляет приблизительно 7 K (рис. 1). Такую ширину перехода можно считать типичной для высококачественных эпитаксиальных пленок с кислородным содержанием $x = 0{,}5$ [1–3]. Толщина пленки составляет 230 нм. Образец разрезался на более узкие прямоугольные полосы шириной около 1 мм. Из полученных образцов исследовались образцы с наименьшими значениями критического тока. Это позволило проводить измерения их вольт-ампер-

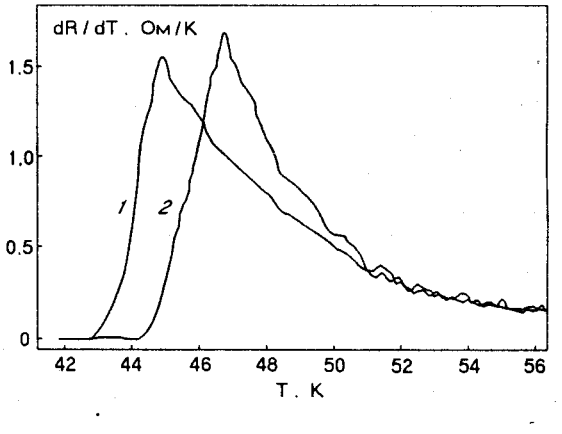

Рис. 1. Температурная зависимость производной электросопротивления dR/dT эпитаксиальной пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ вблизи температуры T_c сверхпроводящего перехода до (*1*) и после (*2*) фотооблучения в течение 20 ч.

ных характеристик (ВАХ) в стационарном режиме при минимальном нагреве контактов. Кроме того, ВАХ этих образцов имели ступенчатый характер, что представляло для нас дополнительный интерес.

В качестве источника фотооблучения использовалась лампа ксенонового наполнения ДКСШ-150, обладающая широкополосным спектром свечения ($\lambda_{max} \sim 700$ нм). Подводимая к образцу мощность электромагнитного излучения составляла примерно 1 Вт.

Измерения ВАХ образцов проводились с помощью стандартной четырехзондовой методики в двух режимах:

1. Импульсный режим с использованием коротких (порядка 5 мс) одиночных импульсов электрического тока треугольной формы. Регистрация временных зависимостей транспортного тока и падения напряжения на образце осуществлялись с помощью цифрового двухканального осциллоскопа с последующей передачей данных в персональный компьютер [7]. Импульсный режим использовался при измерениях критического тока в области температур 35–43 К, близких T_c. Образец находился в вакууме, и его температура контролировалась с помощью полупроводникового термометра.

2. Стационарный режим. Данные о величинах тока и падения напряжения передавались в персональный компьютер через преобразователь «напряжение–код». Стационарный метод использовался при измерениях в области низких температур ($\leq 20{,}4$ К). Пленка охлаждалась жидким водородом, а ее температура контролировалась с помощью двух последовательно соединенных медь-константановых термопар. Измерения в кипящем водороде не обнаружили повышения температуры пленки при пропускании стационарных токов вплоть до $I \sim 1$ А.

Четырехзондовая методика применялась и при измерениях температурной зависимости электросопротивления пленки R. В этом случае через пленку пропускался стабильный измерительный ток (1 мА), а в компьютер передавались текущие значения температуры и падения напряжения на образце.

Для регистрации спектров поглощения света пленками $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ применялся призменный спектрометр SPM-2 (дисперсия вблизи длины волны $\lambda = 500$ нм составляет приблизительно 12 нм/мм). В качестве детектора использовалась линейная матрица фотодиодов, входящая в состав оптического многоканального анализатора (ОМА). Из ОМА данные передавались в персональный компьютер для последующей обработки.

2. Экспериментальные результаты

На рис. 1 представлена температурная зависимость производной электросопротивления по температуре dR/dT для пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ вблизи T_c до и после широкополосного фотооблучения в течение двенадцати часов. Световое облучение повышает критическую температуру T_c сверхпроводящего перехода приблизительно на 3%. Обратим также внимание на повышение амплитуды dR/dT в максимуме и на сужение самого пика dR/dT в районе температуры перехода (его полуширина изменяется почти на 20%), что свидетельствует об уменьшении ширины перехода.

Рисунок 2 демонстрирует влияние фотооблучения пленки при температуре 77,4 К на ее электропроводность $\sigma = R^{-1}$ и критическую температуру T_c. Проводимость σ возрастает на 7% за 20 часов облучения, а критическая температура — на 3% за 12 часов. Отметим разный характер зависимостей проводимости и критической температуры от времени фотооблучения. Проводимость претерпевает наиболее существенные изменения в начальной стадии облучения — характерное время составляет около одного часа. Критическая же температура повышается с увеличением дозы облучения значительно медленней, с характерным временем порядка 10 ч.

На рис. 3 представлены временные зависимости электросопротивления и критической температуры под воздействием светового облучения и последующей релаксации в темноте при комнатной температуре. Фотооблучение осуществлялось при температуре $T = 20{,}4$ К, а измерения электросопротивления при $T = 56$ К. При повышении температуры, при которой осуществлялось фотооблучение, от 20,4 К до 77,4 К фотоиндуцированный

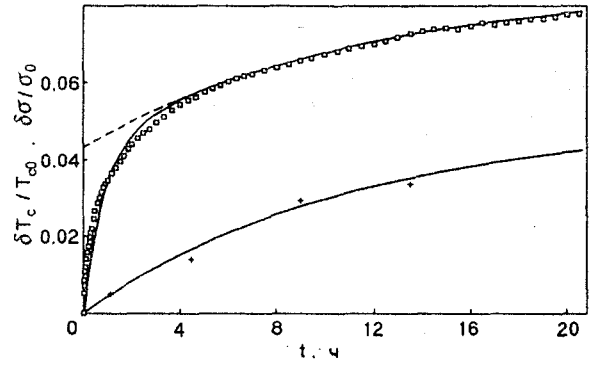

Рис. 2. Зависимость относительных изменений проводимости (□) и критической температуры (+) эпитаксиальной пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ от времени фотооблучения, осуществлявшегося при $T = 77{,}4$ К. T_{c0} и σ_0 — значения критической температуры и проводимости до облучения. Сплошные линии проведены по формулам (8) и (9), штриховая — по формуле (3).

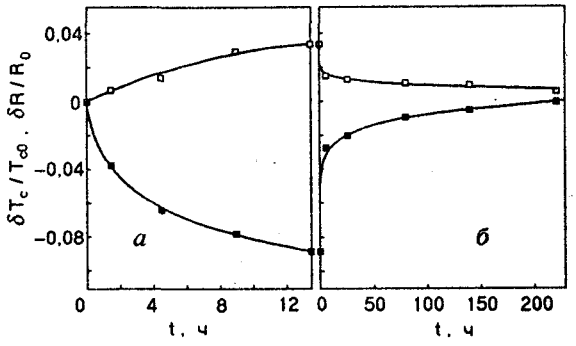

Рис. 3. Зависимость относительных изменений электросопротивления (■) и критической температуры (□) эпитаксиальной пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ от времени фотооблучения, осуществлявшегося при $T = 20{,}4$ K, R_0 — значение электросопротивления до облучения (*а*); зависимость тех же величин от времени релаксации после окончания облучения в темноте при комнатной температуре (*б*).

эффект ослабляется незначительно (ср. рис. 2 и 3), однако при дальнейшем повышении температуры он начинает резко ослабевать и при комнатной температуре практически отсутствует.

В отличие от кинетики низкотемпературных фотоиндуцированных изменений, процессы релаксации критической температуры T_c и электросопротивления R после прекращения облучения протекают приблизительно одинаковым образом (рис. 3,*б*). При $T = 300$ K время релаксации после прекращения облучения составляет примерно 200 часов (рис. 3,*б*). При понижении температуры оно резко увеличивается. Так, в процессе релаксации при $T = 20{,}4$ K электросопротивление изменяется за 20 ч всего на $5 \cdot 10^{-2}$%.

На рис. 4 представлены ВАХ пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ при трех различных температурах. При $T < 20$ K в области перехода в резистивное состояние ВАХ содержит небольшие скачки по напряжению.

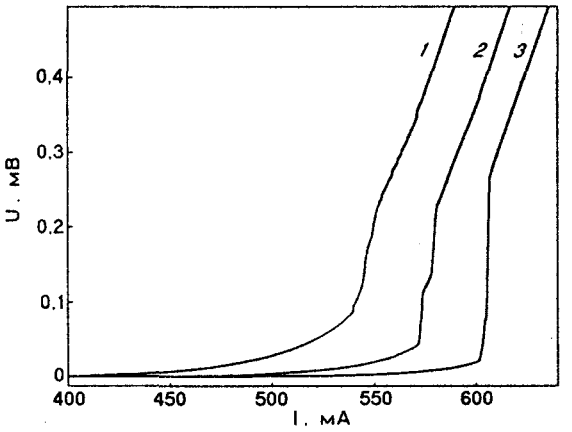

Рис. 4. Вольт-амперные характеристики $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ при различных температурах T, K: 20,4 (*1*); 17,5 (*2*); 15 (*3*).

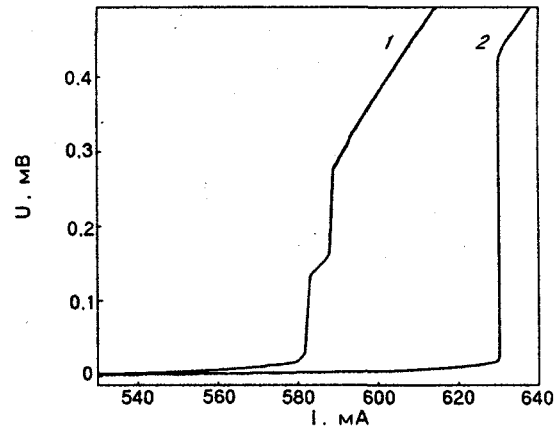

Рис. 5. Вольт-амперные характеристики $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ до (*1*) и после (*2*) фотооблучения в течение 1 ч при $T = 16{,}2$ K.

Рис. 5 иллюстрирует фотостимуляцию критических токов в пленке при температуре $T = 16{,}2$ K. В пределах точности измерений гистерезис ВАХ не обнаружен ни до, ни после фотооблучения.

На рис. 6 сопоставляются на относительной шкале временные зависимости электропроводности (□) и плотности динамического критического тока (■) в процессе фотооблучения при $T = 20{,}4$ K. Под величиной динамического крити-

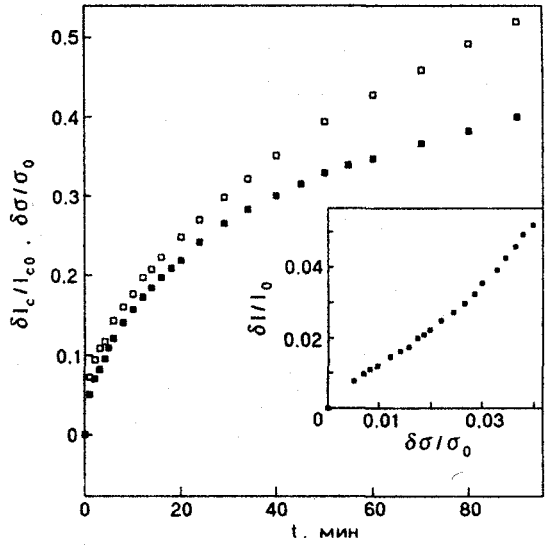

Рис. 6. Временная зависимость относительных изменений динамического критического тока $\delta I_c / I_{c0}$ (□) и электропроводности $\delta\sigma/\sigma_0$ (■) при фотооблучении пленки $YBa_2Cu_3O_{6,5}$, I_{c0} — значение критического тока до облучения. Критический ток измерялся при $T = 20{,}4$ K, а электропроводность — при $T = 77{,}4$ K. На вставке представлена взаимосвязь между фотоиндуцированными изменениями электропроводности в нормальной фазе и динамического критического тока в сверхпроводящей фазе.

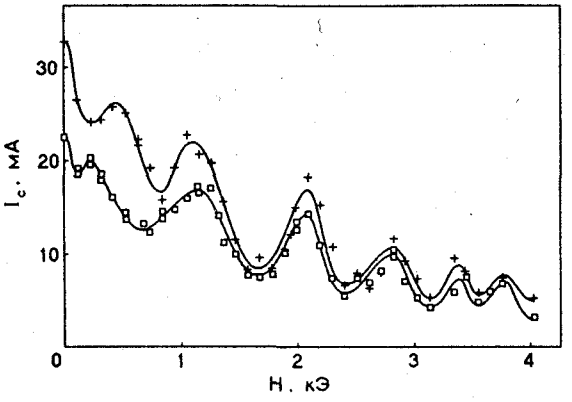

Рис. 7. Зависимость критического тока в пленке от напряженности внешнего магнитного поля H. H ∥ c, J ⊥ c, T = 38,2 K: до фотооблучения (□), после фотооблучения в течение 1 ч (+).

ческого тока понимается значение, определяемое пересечением линейного участка ВАХ с осью I (см. рис. 4). В моменты измерений I_c световой поток перекрывался. Кинетика критического тока не отличается по своему характеру от кинетики проводимости: быстрый рост обеих величин на начальной стадии фотооблучения постепенно сменяется более слабой зависимостью.

Наложение магнитного поля приводит к понижению критических токов в пленке. В окрестности T_c зависимость $I_c(H)$ имеет монотонно убывающий характер, однако при понижении температуры усиливается тенденция к осцилляциям $I_c(H)$ (рис. 7). Критические токи фотооблученной пленки оказываются выше, чем необлученной. Однако с ростом напряженности магнитного поля разница между величинами критических токов до и после фотооблучения заметно уменьшается.

Изменения коэффициента поглощения света на частоте 13 500 $см^{-1}$ (около 1,7 эВ) под влиянием фотооблучения показаны на рис. 8. Коэффициент поглощения увеличивается приблизительно на 3% в результате часового фотооблучения.

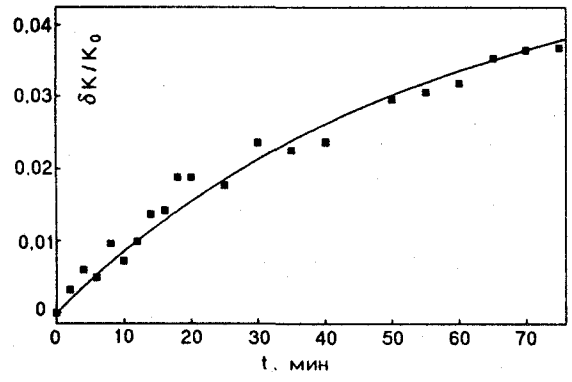

Рис. 8. Временная зависимость относительного изменения коэффициента поглощения на частоте 13 500 $см^{-1}$ (1,65 эВ) при фотооблучении (■). Сплошная линия — относительное изменение проводимости при тех же условиях.

3. Обсуждение результатов

3.1. Критический ток

Прежде чем перейти к обсуждению основных экспериментальных результатов настоящей работы, сразу оговоримся: обсуждаемое ниже явление — влияние фотооблучения на ВАХ пленок — не имеет ничего общего с известным эффектом Элиашберга [12] — непосредственной стимуляцией критического тока электромагнитным полем, поскольку частота возбуждающего поля (ν_{ph} ~ ~ 13 500 $см^{-1}$) более чем на два порядка превышает частоту сверхпроводящей щели (Δ_s ~ 50 $см^{-1}$, судя по величине критической температуры T_c).

Критический ток I_c, как и проводимость нормальной фазы σ и критическая температура T_c, связаны со свойствами проводящей плоскости CuO_2. Плоскость же CuO_x при низкой температуре измерения (ниже 77,4 K) не вносит заметного вклада в формирование этих величин ввиду пренебрежимо малой подвижности дырок, локализованных в этой плоскости.

Предварительно охарактеризуем исследуемую систему. Напомним, что все образцы были составной частью большого образца, однако лишь в двух из них критические токи оказались сравнительно небольшими (1 А). В остальных образцах критический ток оказался значительно выше. Поскольку ширины всех образцов близки, а средние плотности критического тока существенно разнятся, можно предположить, что в данном случае мы сталкиваемся со сверхпроводимостью в достаточно узких каналах. Суммарная ширина этих каналов с высокой электрической прозрачностью может оказаться гораздо меньше ширины исследуемых образцов. По всей вероятности, эти каналы разделены участками с более низкими сверхпроводящими характеристиками. При этом важным фактом является то, что в отсутствие внешнего магнитного поля форма кривой вольт-амперной характеристики (ВАХ) будет определяться лишь одним из этих каналов, а именно каналом с наилучшими проводящими свойствами.

Резкие особенности, обнаруженные на ВАХ (рис. 4), подтверждают высказанное предположение. Такие особенности ВАХ со скачками и ступеньками характерны именно для одномерного случая, когда слабые связи проявляются как центры проскальзывания фаз. Существование слабых связей подтверждается осциллирующей зависимостью $I_c(H)$, наблюдаемой при низких температу-

рах. По периоду H_0 осцилляций зависимости $I_c(H)$ (рис. 7) можно приближенно оценить их размеры [13,14]:

$$H_0 = 2\Phi_0/dL \ ,$$

где Φ_0 — квант магнитного потока ($\sim 2\cdot 10^{-7}$ Э·см^2); L — ширина контакта в направлении, перпендикулярном Н; d — толщина контакта. Полагая d и L приблизительно равными, получаем $d \sim 10^3$ Å, т.е. вполне макроскопическую величину порядка сотни периодов кристаллической решетки.

Наличие слабых связей естественно связать с неоднородностью пространственного распределения носителей в плоскости CuO_2, характерной для пленок с пониженным содержанием кислорода. Эта неоднородность может быть обусловлена, прежде всего, флуктуацией длин цепочек в CuO_x подсистеме, приводящей к обеднению CuO_2 плоскости носителями на отдельных участках (не исключена и пространственная неоднородность по индексу x [1,5]). Эти участки можно рассматривать как звенья с пониженной электрической прозрачностью, которая повышается при облучении светом. Не исключено, что в качестве слабых связей могут выступать также участки пленки с нарушенной эпитаксией.

Таким образом, в кислородно обедненных эпитаксиальных ВТСП пленках $YBa_2Cu_3O_{6+x}$, по-видимому, реализуется естественная джозефсоновская среда, образующаяся в виде слабых связей на участках пленки с пониженным содержанием плотности носителей.

Известно, что для слабых связей максимальный бездиссипативный ток через джозефсоновский переход пропорционален плотности куперовских пар n_c. Если считать I_c и σ пропорциональными n_c и n_h соответственно, то из рис. 6 (вставка) следует, что n_c и n_h изменяются по близким законам:

$$\frac{\delta n_c}{n_c} = \gamma \frac{\delta n_h}{n_h} \ , \qquad \gamma \approx 1{,}35 \ .$$

Небольшое отличие γ от единицы не должно вызывать удивление, поскольку I_c и σ измерялись (и в принципе могут быть измерены) при разных температурах (20,4 и 77,4 К соответственно). Более низкой температуре соответствует более быстрое возрастание плотности носителей (ср. рис. 2 и 3).

Помимо фотоиндуцированного увеличения плотности носителей заряда возможен еще один механизм усиления критического тока. С ростом длины медно–кислородных цепочек в CuO_x подсистеме растет сила пиннинга кольцевых абрикосовских вихрей, плоскость которых перпендикулярна транспортному току [13]. В таком случае величина критического тока должна определяться средней длиной цепочек, которая коррелирует с концентрацией носителей n_h в CuO_2 плоскости.

3.2. Анализ кинетики T_c и σ и связь сверхпроводимости с потенциальным рельефом дна дырочной зоны CuO_2 плоскости

Обнаруживаемые при фотооблучении различия между временными зависимостями I_c и σ, с одной стороны, и T_c, с другой, состоят в том, что наиболее существенные изменения σ и I_c происходят в начальный момент времени, т.е. помимо длинной компоненты с $\tau_s \sim 10$ ч имеется короткая ($\tau_n \sim$ ~ 1 ч). В то же время наблюдаемая зависимость $T_c(t)$ не имеет короткой компоненты.

Предположение о двух разных процессах при фотооблучении, протекающих с различными постоянными времени, вполне согласуется с существующими представлениями о долгоживущих структурных изменениях в сверхпроводнике $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ [4,5]. Эти изменения происходят в цепочечной плоскости CuO_x, структура которой неоднозначна ввиду большого числа кислородных вакансий (при $x < 1$). Фотостимулированное перераспределение кислорода в плоскости CuO_x сопровождается удлинением медь-кислородных цепочек, которое приводит к увеличению суммарного отрицательного заряда этой плоскости, а следовательно, и числа дырочных носителей в проводящей CuO_2 плоскости. Этот процесс (в дальнейшем n-процесс) должен протекать сравнительно быстро, поскольку свободная энергия достаточно сильно зависит от распределения зарядов между кристаллическими плоскостями.

Однако стимулированная диффузия кислорода продолжается и после окончания n-процесса, когда средняя длина цепочек и число носителей n_h перестают изменяться. Естественно предположить, что в процессе диффузии кислорода устанавливается корреляция между медь–кислородными цепочками и они образуют более или менее упорядоченную структуру. Это должно приводить к упорядочению потенциального рельефа, создаваемого заряженными цепочками в плоскости CuO_2. Такой процесс (в дальнейшем структурный или s-процесс) не сопряжен с заметными изменениями свободной энергии и поэтому протекает сравнительно медленно. Тем не менее, как показано ниже, медленный s-процесс ощутимо влияет как на σ (благодаря возрастанию подвижности носителей), так и на T_c.

Итак, в основе дальнейшего анализа лежит предположение о том, что быстрый n-процесс связывается с возрастанием числа носителей в плоскости CuO_2, а медленный s-процесс — с упорядочением примесного потенциального рельефа в этой же плоскости за счет упорядочения цепочек в CuO_x плоскости.

Для проверки исходного предположения сопоставим временной ход проводимости σ и коэффициента внутризонного поглощения света K (рис. 8). В работе [15] было показано, что поглощение света на частотах ν ниже ширины диэлектрической псевдощели ν_g может быть использовано как зонд числа носителей n_h. Действительно, вероятность оптических переходов в пределах почти заполненной валентной зоны пропорциональна числу n_h не заполненных электронами состояний. Из рис. 2 и 8 видно, что на протяжении первого часа фотооблучения σ и K возрастают одинаковым образом. Очевидно, что их возрастание связано с фотоиндуцированным изменением n_h, чем и подтверждается предположение о быстром n-процессе.

Будем рассматривать временную зависимость σ и T_c при фотооблучении как процесс установления равновесия в кристалле, находящемся, начиная с момента времени $t = 0$, в новых постоянных условиях. Можно предположить (и это подтверждается дальнейшим анализом), что такая релаксация протекает по экспоненциальному закону, и ввести времена экспоненциальной релаксации, τ_n и τ_s, для быстрого n- и медленного s-процессов соответственно ($\tau_n \ll \tau_s$).

Судя по временной зависимости проводимости (рис. 2), она включает в себя, по меньшей мере, два процесса. Эти процессы можно разделить с помощью известного соотношения: $\sigma \propto \tau n_h$, где $\tau = l/v$ — время свободного пробега; l — длина свободного пробега; v — скорость носителей вблизи энергии Ферми ε_F. В двумерном случае $v \propto n_h^{1/2}$, а l существенно зависит от n_h. Действительно, при $n_h = 0$, когда в плоскости CuO_2 остаются только локализованные дырки, следует положить $l = 0$, так что $l \to 0$ при $n_h \to 0$. Полагая в первом приближении $l \propto n_h$, запишем

$$\sigma = An_h^{3/2} . \qquad (1)$$

Коэффициент пропорциональности A может изменяться только в s-процессе, характеризуемом постоянной времени τ_s:

$$A(t) = A(0)[1 + \alpha - \alpha \exp(-t/\tau_s)] . \qquad (2)$$

При больших временах $t \gg \tau_n$, когда n_h практически достигает предельного значения $n_h(\infty)$, соотношение (1) с учетом (2) приобретает вид

$$\sigma(t)/\sigma(0) = \beta^{3/2}[1 + \alpha - \alpha \exp(-t/\tau_s)] , \qquad (3)$$

где введено обозначение

$$\beta = n_h(\infty)/n_h(0) . \qquad (4)$$

При надлежащем выборе параметров кривая (3) хорошо описывает экспериментальную зависимость $\sigma(t)$ в области больших t. Это видно из рис. 2, где штриховая линия проведена по формуле (3) при $\alpha = 0{,}04$, $\beta = 1{,}02866$, $\tau_s = 11{,}3$ ч.

Рассмотрим теперь n-процесс, развивающийся в области $t \leq \tau_n$. В приближении экспоненциальной релаксации

$$n_h(t)/n_h(0) = \beta + (1 - \beta)\exp(-t/\tau_n) . \qquad (5)$$

Ту же зависимость $n_h(t)$ можно выразить, исходя из соотношения (1), через экспериментальную зависимость $\sigma(t)$ и функцию (2):

$$n_h(t)/n_h(0) =$$

$$= [\sigma(t)/\sigma(0)]^{2/3}[1 + \alpha - \alpha \exp(-t/\tau_s)]^{-2/3} . \qquad (6)$$

Приравнивая выражения (5) и (6), находим:

$$\exp(-t/\tau_n) = Q(t) =$$

$$= \frac{\beta - \{[1 + \alpha - \alpha \exp(-t/\tau_s)]\,\sigma(0)/\sigma(t)\}^{-2/3}}{\beta - 1} . \qquad (7)$$

На рис. 9 зависимость (7) представлена в логарифмическом масштабе при указанных выше параметрах. Из рисунка видно, что на протяжении 4 часов (исключая первые двадцать минут*) экспериментальная зависимость линейна, тангенс угла наклона дает релаксационное время n-процесса: $\tau_n = 90$ мин. Тем самым подтверждается высказанное предположение об экспоненциальном характере как быстрого, так и медленного ралаксационных процессов. Подтверждается также исходное предположение о существенном различии со-

* На протяжении этого малого начального промежутка времени происходят незначительные фотоиндуцированные изменения n_h, связанные с непосредственным перебросом электронов из проводящей плоскости в цепочечную.

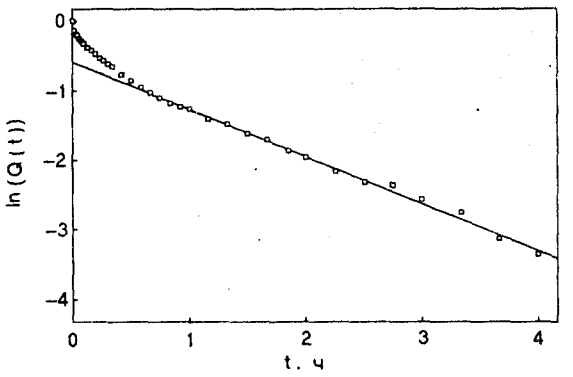

Рис. 9. Зависимость (7) в логарифмическом масштабе с использованием экспериментальных значений σ (□).

ответствующих времен релаксации — полученные значения τ_s и τ_n различаются на порядок.

На всем протяжении эксперимента (исключая первоначальный промежуток в несколько минут) экспериментальная зависимость $\sigma(t)$ практически точно описывается выражением (1), которое с учетом (2) и (5) приобретает вид

$$\sigma(t)/\sigma(0) =$$

$$= [\beta + (1-\beta)\exp(-t/\tau_n)]^{3/2}[1+\alpha-\alpha\exp(-t/\tau_s)]. \quad (8)$$

Сплошная кривая $\sigma(t)$ на рис. 2 проведена по формуле (8).

Рассмотрим теперь временную зависимость T_c. Если предположить, что она связана только с медленным s-процессом, то T_c должна релаксировать к предельному значению $T_c(\infty)$ по экспоненциальному закону с найденной выше постоянной времени s-процесса τ_s:

$$\frac{T_c(t)}{T_c(0)} = \frac{T_c(\infty)}{T_c(0)} + \left[1 - \frac{T_c(\infty)}{T_c(0)}\right]\exp(-t/\tau_s) . \quad (9)$$

На рис. 2 кривая T_c проведена по формуле (9) при $T_c(\infty)/T_c(0) = 1{,}05$. Кривая описывает экспериментальную зависимость $T_c(t)$ в пределах разброса экспериментальных точек. Тем самым подтверждается предположение о том, что в нашем эксперименте временной ход T_c связан с s-процессом.

Каким же образом структура влияет на T_c при заданном числе носителей n_h? Примесные заряды цепочечной плоскости CuO_x искривляют дно дырочной зоны, принадлежащей плоскости CuO_2. Отрицательный заряд примесного кислорода, отстоящий от проводящей плоскости на расстоянии 4,15 Å, создает в ней потенциальную яму с шириной, на порядок превышающей межатомное расстояние. Для дырочных носителей, движущихся в плоскости CuO_2, искривленное дно зоны играет роль вторичного потенциального рельефа [11], если учесть первичный в терминах эффективной массы. В диэлектрической фазе дырки локализуются в минимумах вторичного потенциального рельефа. В металлической фазе дырки делокализованы, однако вблизи перехода диэлектрик — металл дырка проводит в потециальной яме достаточно долгое время, на протяжении которого успевает установиться корреляция между движением дырок в соседних потенциальных ямах, т.е. возникают силы ван-дер-ваальсовского притяжения между дырками.

Почему же T_c не повторяет возрастание n_h на первом этапе фотооблучения? Это можно объяснить тем, что в процессе фотооблучения при фиксированном кислородном индексе на первом этапе ($t \le \tau_n$) возрастает средняя длина медно-кислородных цепочек [1], что одновременно приводит к возрастанию числа носителей n_h и среднего расстояния r между соседними потенциальными ямами. Ван-дер-ваальсовский потенциал притяжения уменьшается пропорционально r^{-6}, в основном компенсируя возрастание n_h [11]. На втором этапе облучения ($t > \tau_n$) число носителей и средняя длина цепочек остаются практически постоянными, а происходит более тонкое упорядочение потенциального рельефа: уменьшается дисперсия распределения потенциальных ям по расстояниям при неизменном среднем расстоянии. Такой процесс требует более длительного времени τ_s, поскольку он слабо влияет на свободную энергию.

Подобная компенсация влияния n_h на T_c не имеет места ни в концентрационном процессе (когда цепочки удлиняются путем присоединения новых атомов кислорода, а не за счет увеличения r), ни в процессе сжатия образца. Поэтому в обоих последних случаях T_c коррелирует с возрастанием n_h.

Описанный компенсационный механизм перестает действовать и в нашем случае после прекращения фотооблучения. Такой вывод вытекает из сопоставления кривых релаксации T_c и σ к их первоначальным значениям при $T = 300$ K после выключения облучения (рис. 3,*б*). В этом случае наблюдается одинаковый временной ход T_c и n_h. Это означает, что релаксационный процесс не повторяет в обратном направлении путь, пройденный системой под воздействием фотооблучения. Можно предположить, например, что в процессе обратной релаксации, протекающей при комнатной температуре, от концов цепочек отделяются ионы кислорода, остающиеся после этого изолированными. Но отдельные ионы кислорода не поставляют дырок и поэтому не влияют на вторичный по-

тенциальный рельеф. Такой процесс укорочения цепочек при сохранении их числа и расстояния между их центрами близок к концентрационному процессу.

Заключение

Показано, что вблизи перехода диэлектрик — металл фотоиндуцированные изменения критической температуры сверхпроводимости T_c, электропроводности σ нормальной фазы, коэффициента поглощения света K ниже оптической щели E_g, а также критического тока I_c в сверхпроводящей фазе носят характер вынужденной релаксации и описываются экспоненциальными зависимостями. Установлено, что кинетика электропроводности σ и критического тока I_c сформирована не менее чем двумя процессами, с отличающимися на порядок временами релаксации. Быстрый процесс связан с ростом числа носителей в плоскости CuO_2, а медленный — с упорядочением кислорода в плоскости CuO_x при постоянном числе носителей. Последний процесс влияет на движение носителей в плоскости CuO_2 через потенциальный рельеф, создаваемый в ней примесными зарядами плоскости CuO_x. В кинетике критической температуры T_c доминирует медленный процесс, откуда вытекает, что вблизи перехода диэлектрик — металл существует связь высокотемпературной сверхпроводимости с потенциальным рельефом дна дырочной зоны CuO_2 плоскости.

Авторы выражают благодарность В. П. Галайко, Б. Я. Сухаревскому и И. К. Янсону за обсуждение результатов и ряд ценных замечаний, а также В. В. Славину за разработку и изготовление многоканального преобразователя «напряжение–код» для синхронной передачи аналоговых сигналов в персональный компьютер.

1. E. Osquiguil, M. Maenhoudt, B. Wuyts, Y. Bruynseraede, D. Lederman, and I. K. Schuller, *Phys. Rev.* B49, 3675 (1994).
2. D. Lederman, J. Hasen, I. K. Schuller , E. Osquiguil, and Y. Bruynseraede, *Appl. Phys. Lett.* 64, 652 (1994).
3. K. Tanabe, S. Kubo, F. H. Teherani, H. Asano, and M. Suzuki, *Phys. Rev. Lett.* 72, 1537(1994).
4. V. I. Kudinov, A. I. Kirilyuk, N. M. Kreines, R. Laiho, and E. Landeranta, *Phys. Lett.* A151, 358 (1990).
5. V. I. Kudinov, I. L. Chaplygin, A. I. Kirilyuk, N. M. Kreines, F. R. Laiho, E. Landeranta, and C. Ayache, *Phys. Rev.* B47, 9017 (1993).
6. V. V. Eremenko, V. P. Gnezdilov, and V. I. Fomin. *Physica* C185–189, 961 (1991).
7. В. М. Дмитриев, В. В. Еременко, В. Г. Пирятинская, О. Р. Приходько, Е. В. Христенко, *ФНТ* 19, 1376 (1993).
8. B. M. Veal, A. P. Paulikas, H. You, H. Shi, Y Fang, J. W. Downey, *Phys. Rev.* B42, 6305 (1990).
9. J. J. Scholtc, I. N. van Eenige, R. J. Wijngaarden, and R. Griessen, *Phys. Rev.* B45, 3077 (1992).
10. G. Yu, C. H. Lee, A.J.Heeger, N. Herron, E. M. McCarron, L. Cong, G. C. Spalding, C. A. Nordman, and A. M. Goldman, *Phys. Rev.* B45, 4964 (1992).
11. А. М. Ратнер, *ФНТ* 21, 208 (1995).
12. Г. М. Элиашберг, *Письма в ЖЭТФ* 11, 186 (1970).
13. В. В. Шмидт, *Введение в физику сверхпроводников*, Наука, Москва (1982).
14. А. Бароне, Дж. Патерно, *Эффект Джозефсона: физика и применения*, Мир, Москва (1984).
15. I. Fugol', V. Samovarov, A. Ratner, V. Zhuravlev, G. Zaemann-Ischenko, M. Lippert, and B. Holzapfel, *Physica* C216, 391 (1993).

Kinetics of critical currents, critical temperature of superconductivity and electrical conductivity of normal state under photoirradiation of epitaxial $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ film

V. M. Dmitriev, V. V. Eremenko, I. S. Kachur, V. G. Piryatinskaya, O. R. Prikhod'ko, A. M. Ratner, E. V. Khristenko, and V. V. Shapiro

Time dependences of critical current, I_c, critical temperature, T_c, and normal state conductivity, σ, were measured during a prolonged exposure of the epitaxial superconductive metal-oxide film $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ to photoirradiation. It is shown that the kinetics of σ, T_c and I_c are grown up by two processes the time constants of which differ an one order of magnitude. A fast process is related to the increase in the number of hole carriers, a slow one is related to the ordering of the oxygen ions in the CuO_x plane with the number of carriers unchanged. This process affects the motion of carriers in the CuO_2 plane via the potential relief created by the impurity charges of the CuO_x plane. Only the slow process reveals itself in the kinetics of critical temperature T_c. Hence it follows that the high-T_c superconductivity is related to the potential relief. It is shown that the critical current in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ films is limited mainly by the weak links formed in the regions with reduced electrical transparency.