

# СПЕКТРОСКОПИЯ ФОТОИНДУЦИРОВАННОГО ОТРАЖЕНИЯ СВЕТА В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ МОНОКРИСТАЛЛАХ $\text{La}_2\text{CuO}_4$

*А.В.Баженов, А.В.Горбунов, В.Б.Тимофеев*

*Институт физики твердого тела РАН  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 29 октября 1992 г.

После переработки 10 ноября 1992 г.

Показана возможность детектирования фотоиндущированных оптических переходов в монокристаллах  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  методом дифференциального отражения света. Обнаружены индуцированные светом электронные переходы в спектральном диапазоне  $0,1 \div 0,6$  эВ. При высоком уровне возбуждения интенсивность низкоэнергетичных переходов по отношению к переходу 0,55 эВ сверхлинейным образом зависит от интенсивности возбуждающего света. Фотоиндущированные переходы обсуждаются с привлечением модели спин-поляронных комплексов.

Исследование спектров фотоиндущированного поглощения (ФИП) в полупроводниковых фазах ВТСП показало, что дырка, поставляемая в их валентную зону легированием, либо оптическим возбуждением, образует самолокализованное состояние (СЛС) в запрещенной зоне кристалла<sup>1-3</sup>. Это приводит к появлению полосы поглощения света в среднем ИК диапазоне спектра и локальных фононных мод. Экспериментальные результаты объясняются поляронной моделью СЛС<sup>2-4</sup>. Однако в случае  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (214) теоретический расчет спектра оптической проводимости<sup>4</sup>, описывающий линию 0,5 эВ, существенно расходится с экспериментом в области энергий  $0,1 \div 0,3$  эВ. В<sup>4</sup> это связывалось с низким качеством исследовавшихся ранее образцов 214, но в последних измерениях расхождение теории и эксперимента стало еще большим<sup>1</sup>. Причина такого расхождения может иметь методический характер. Действительно, при исследовании ФИП на самом деле измерялся спектр пропускания порошка 214, помещенного в матрицу из KBr, CsI. При этом не учитывалось фотоиндущиванное изменение коэффициента отражения и рассеяния света зернами 214 размером  $\simeq 1$  мкм. Длина волны света в области расхождения поляронной теории и эксперимента имеет тот же масштаб и составляет 4 мкм в KBr для  $\hbar\omega = 0,2$  эВ. Таким образом, изменение рассеяния света в результате появления фотоиндущированного поляронного перехода 0,5 эВ может уменьшить пропускание света порошком в спектральном диапазоне  $0,1 \div 0,3$  эВ. Поэтому для решения вопроса о том, является ли расхождение поляронной модели с экспериментом проявлением дополнительных фотоиндущированных электронных переходов, или же определяется изменением рассеяния света, необходимо исследование однородных монокристаллов.

Для объемных кристаллов метод оптического пропускания практически трудно осуществим. Поэтому мы исследовали спектры фотоиндущированного отражения (ФИО) монокристаллов 214. Кристаллы  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ , выращенные методом<sup>5</sup>, имели размер  $4 \times 4 \times 4$  мм и температуру Нееля  $T_N = 250$  К. Состав, близкий к стехиометрическому, получался путем отжига исходных кристаллов при  $T = 600^\circ\text{C}$  в вакууме 1 Па в течение 4-6 ч. В приготовленных образцах  $T_N = 318$  К. В соответствии с зависимостью  $T_N$  от концентрации легирующей примеси<sup>6</sup> содержание кислорода в них  $x \approx 0$ . Спектры ФИО регистрировались

фурье-спектрометром в диапазоне  $35 \div 600$  мэВ при  $T = 5$  К. Измерялось отношение спектров отражения  $R_1(\nu)/R(\nu)$ :  $R_1(\nu)$  – спектр при освещении кристалла дополнительным светом Не–Cd-лазера ( $\hbar\omega = 2,8$  эВ),  $R(\nu)$  – спектр без лазерного возбуждения. Отсюда получался спектр ФИО:  $\Delta R/R = [R_1(\nu) - R(\nu)]/R(\nu)$ .

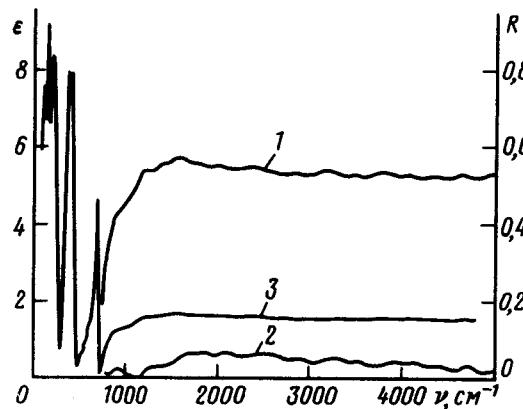


Рис.1

На рис.1 показаны спектр отражения  $R(\nu)$  в поляризации  $E \perp C$  и спектры действительной  $\epsilon_1(\nu)$  и мнимой  $\epsilon_2(\nu)$  части диэлектрической проницаемости. Последние получены с помощью преобразований Крамерса–Кронига из спектра отражения, измеренного в диапазоне от 0,005 до 3 эВ. В этих спектрах не обнаружено вклада свободных носителей в области  $0,005 \div 0,6$  эВ. В среднем ИК диапазоне ( $0,09 \div 0,5$  эВ)  $\epsilon_2(\nu)$  мала, причем  $|\epsilon_1| \gg \epsilon_2$ . В общем случае ФИО определяется изменением как  $\epsilon_1$ , так и  $\epsilon_2$ , но при  $|\epsilon_1| \gg \epsilon_2$   $dR/R \approx 2d\epsilon_1/[(\epsilon_1 - 1)\epsilon_1^{1/2}]$ . Используем традиционное приближение  $\epsilon_1(\nu)$  в среднем ИК диапазоне диэлектрического кристалла в виде набора лоренцевых осцилляторов  $\epsilon_1(\nu) = \epsilon_\infty + \sum \alpha_i N_i (E_i^2 - \nu^2)/[(E_i^2 - \nu^2)^2 + \Gamma_i^2 \nu^2]$ , где  $\alpha_i = 4\pi e^2/m_i^*$ ,  $N_i$  – концентрация,  $E_i$  – резонансная частота и  $\Gamma_i$  – затухание  $i$ -го электронного перехода. Получим, что ФИО пропорционально фотоиндуцированным изменениям плотности осцилляторов  $dN_i$ :  $dR/R \approx \sum A_i(\nu) dN_i$ .

На рис.2а показан спектр ФИО стехиометрического монокристалла 214 в поляризации  $E \perp C$  ( $T = 5$  К) при плотности мощности лазерного излучения  $I_0 = 0,2$  Вт/см<sup>2</sup>. Видно, что помимо известного перехода 0,55 эВ возникают фотоиндуцированные электронные переходы в области  $0,1 \div 0,3$  эВ, доминирующие в спектре ФИО. Таким образом, расхождение эксперимента с полярной теорией<sup>4</sup> свидетельствует о необходимости совершенствования модели СЛС в полупроводниковой фазе ВТСП.

Дополнительные исследования легированных кислородом однородных монокристаллов 214 ( $T_N = 250$  К) показали, что появляющееся при легировании поглощение в среднем ИК диапазоне можно описать вкладом нескольких лоренцевых осцилляторов, активных в поляризации  $E \perp C$ . На рис.2б оно аппроксимируется четырьмя осцилляторами с различным парциальным весом. Для нас особенно важно, что число этих осцилляторов больше одного. Качественное согласие спектра ФИО нелегированного, стехиометрического монокристалла и ИК спектра кристалла, легированного кислородом, (рис.2) свидетельствует о том, что причина изменений в спектрах в обоих случаях имеет

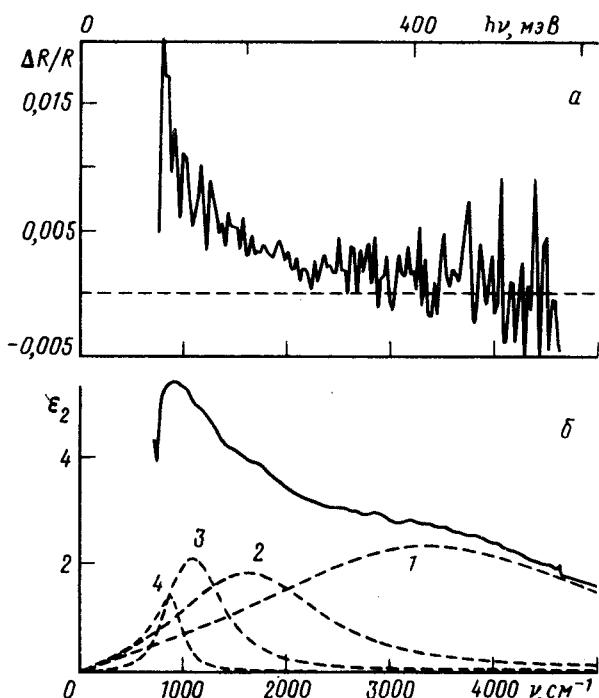


Рис.2

единую природу.

В <sup>1</sup> интенсивности фотоиндуцированных переходов 0,16 и 0,62 эВ одинаковым образом зависят от плотности лазерной мощности  $I$  как  $I^\alpha$ , в частности, при  $T = 4,2\text{ K}$   $\alpha = 0,25$ . Аналогичный результат мы получили для спектров ФИО 214 при  $I \leq 50\text{ мВт/см}^2$ . Однако при более высокой  $I$  обнаружена сверхлинейная зависимость интенсивности низкоэнергетических переходов  $A_1$  по отношению к переходу 0,55 эВ ( $A_2$ ) (рис.3), то есть  $A_1(I) = \text{const} \cdot A_2(I)^\beta$ , где  $\beta > 1$ .

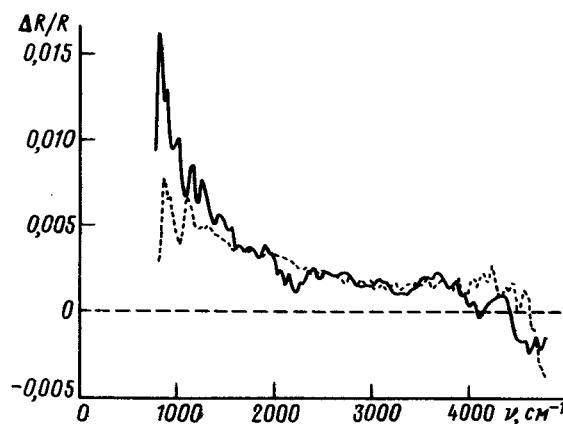


Рис.3

Мы полагаем, что генерированная светом дырка автолокализуется, образуя в запрещенной зоне кристалла СЛС, отстоящее от вершины валентной зоны на 0,55 эВ. Низкоэнергетические переходы, скорее всего, соответствуют многочастичным комплексам СЛС, о чем свидетельствует сверхлинейное возрастание

интенсивности низкоэнергетичных переходов по отношению к переходу 0,55 эВ при увеличении концентрации фотоносителей. Такой процесс, как результат многочастичных столкновений дырок, может происходить при их концентрации, большей, либо сравнимой с темновой концентрацией дырочных комплексов.

Наличие локальных фононных мод в спектрах ФИП<sup>3</sup> свидетельствует о релаксации кристаллической решетки в окрестности дырки. Скорее всего, релаксация определяется кулоновским взаимодействием дырки с ионами кристалла, что соответствует полярону. Однако расчет полярона поглощения<sup>4</sup>, описывающий линию 0,55 эВ, не объясняет переходов 0,1 ÷ 0,3 эВ, являющихся, по-видимому, многочастичными комплексами состояния 0,55 эВ. Образование комплексов из поляронов затруднено их кулоновским отталкиванием и требует привлечения некоего дальнодействующего притяжения поляронов. В качестве выхода из положения мы предлагаем обратить внимание на результаты исследования магнитных свойств полупроводниковой фазы ВТСП. Они показывают необходимость учета спинового взаимодействия дырки с медью, которое также может образовать СЛС в виде феррона<sup>7-9</sup> (спин-полярона<sup>10</sup>), представляющего собой ферромагнитный кластер диаметром 30 ÷ 40 Å<sup>8,9</sup>. В<sup>10</sup> обсуждалась принципиальная возможность спаривания спин-поляронов, что позволяет качественно объяснить наличие нескольких фотоиндущированных переходов в области энергий 0,1 ÷ 0,6 эВ и их свойства в зависимости от уровня возбуждения. Дырочные СЛС, по-видимому, включают и спиновую, и решеточную релаксацию.

Итак, в данной работе исследованы фотоиндущированные переходы в моноцистальах купратных оксидов. Это позволило исключить вероятное влияние рассеяния света на результаты известных исследований порошков. Показано, что в близком к стехиометрическому La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> имеется несколько фотоиндущированных переходов в области энергий 0,1 ÷ 0,6 эВ. Наряду с известной одинаковой зависимостью их интенсивностей от плотности мощности оптического возбуждения *I*, обнаружена сверхлинейная зависимость интенсивности низкоэнергетичных переходов по отношению к переходу 0,55 эВ при высокой *I*. Для объяснения природы фотоиндущированных электронных переходов предлагается учитывать как полярные эффекты, так и спиновое взаимодействие, то есть модель ферронов и их многочастичных комплексов.

- 
1. Y.H.Kim, S.-W.Cheong, and Z.Fisk, Phys. Rev. Lett. **67**, 2227 (1991).
  2. H.J.Ye, R.P.McCall, W.E.Farneth, et al., Phys. Rev. B **43**, 10574 (1991).
  3. D.Mihailovic, C.M.Foster, K.F.Voss, et al., Phys. Rev. B **44**, 237 (1991).
  4. D.Mihailovic, C.M.Foster, K.Voss, and A.J.Heeger, Phys. Rev. B **42**, 7989 (1990).
  5. С.Н.Барилло, А.П.Гель, С.А.Гурецкий и др., СФХТ **2**, 138 (1989).
  6. B.Dabrowski, J.D.Jorgensen, D.G.Hinks, et al., Physica C **162-164**, 99 (1989).
  7. Е.Нагаев, УФН **117**, 437 (1975).
  8. V.Hizhnyakov and E.Sigmund, Physica C **156**, 655 (1988).
  9. V.Hizhnyakov, N.Kristoffel, and E.Sigmund, Physica C **160**, 119 (1989).
  10. R.F.Wood and J.F.Cooke, Phys. Rev. B **45**, 5585 (1992).