

05.4

© 1991

ОБРАЗОВАНИЕ ДЕФЕКТОВ В МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ ПРИ „ПОДПОРОГОВОМ“ И „НАДПОРОГОВОМ“ ОБЛУЧЕНИИ

В.В. Е м ц е в, Ю.Н. Д а л у д а

Ранее в [1] мы наблюдали, как под действием „подпорогового“ рентгеновского облучения (с максимумом излучения около 10 кэВ) изменяются электрические параметры монокристаллических пленок $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$. Изменение остаточного удельного сопротивления пленок (для ветви $\rho(T)$ при $T > T_c$) получает простое объяснение в рамках ионизационного механизма дефектообразования [2], основанного на электростатической неустойчивости выделенных локальных атомных конфигураций. Последние возникают при ионизации глубоких электронных оболочек (K или L) анионов (кислорода) с появлением на них двух (или трех) дырочных состояний; анионные вакансии рождаются за счет отталкивания положительно заряженного (многократно ионизированного) аниона от соседних катионов. Основанные на экспериментальных данных оценки по порядку величины [1] показывают, что рассматриваемый механизм образования дефектов может быть эффективен в $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ при „подпороговом“ облучении; в этом случае его действие не маскируется проявлением обычного механизма „надпорогового“ упругого смещения регулярных атомов и может быть сравнительно легко обнаружено.

В настоящем сообщении мы приводим новые данные, свидетельствующие в пользу сделанного в [1] заключения о реализуемости ионизационного механизма дефектообразования в монокристаллических пленках $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$.

Условия рентгеновского облучения и параметры образцов аналогичны [1]. В качестве подложки наряду с титанатом стронция использовались также окись магния и фианит. „Надпороговое“ облучение пленок проводилось при комнатной температуре на гамма-источнике ^{60}Co с мощностью дозы $I = 1.4 \cdot 10^{13}$ квант/см² с.

Ниже приведены основные экспериментальные результаты.

1). Как и в [1], рентгеновское облучение не влияло заметно ни на критическую температуру $T_c \approx 85$ К, ни на коэффициент пропорциональности $\alpha \approx 9 \cdot 10^{-7}$ Ом·см/К в удельном сопротивлении $\rho = \rho_0 + \alpha T$ для $T > T_c$ (для подавляющего большинства пленок разброс в значении α не превышал $\pm 1 \cdot 10^{-7}$ Ом·см/К). Скорость изменения $\Delta\rho/\Phi$ (где $\Delta\rho = |\rho_0^{исх} - \rho_0^{обл}|$ - радиационное изменение остаточного удельного сопротивления для дозы Φ) сохраняется примерно постоянной $(4 \pm 1) \cdot 10^{-21}$ Ом·см³/квант для использованного интервала доз $\Phi = 2 \cdot 10^{15} - 2 \cdot 10^{16}$ квант/см².

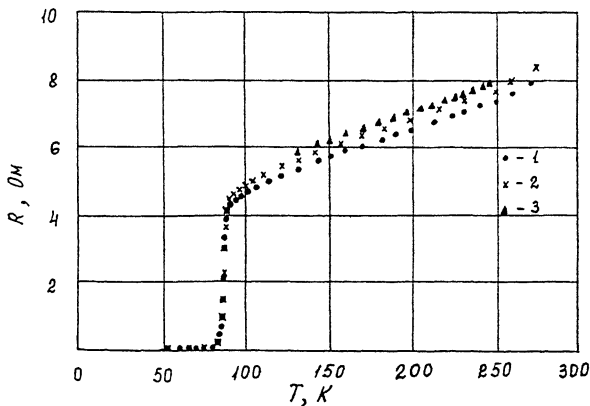


Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления монокристаллической пленки $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ в исходном состоянии (1) после гамма (2) и рентгеновского (3) излучения. Доза Φ . 10^{-16} , квант/см². с: 2 - 26, 3 - 1.

Вообще говоря, кинетика накопления радиационных дефектов при действии ионизационного механизма [2] следует экспоненциальному закону, однако при большой концентрации рассматриваемых анионов (в данном случае кислорода, $N_0 \sim 10^{22}$ см⁻³) на начальных этапах облучения кинетику можно аппроксимировать линейной дозой зависимостью. Поскольку комплексы первичных дефектов с примесями и другими структурными дефектами, являющиеся центрами рассеяния носителей заряда, могут быть различными для разных пленок, то $\rho_0^{обл}$ может как уменьшаться, так и возрастать (по отношению к $\rho_0^{исх}$) в процессе облучения (как это наблюдалось экспериментально, изредка оно может изменяться немонотонно).

2) Гамма-облучение монокристаллических пленок $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ вызывает эффект, аналогичный „подпороговому“ рентгеновскому облучению: не изменяя T_C и α , такое надпороговое облучение ведет к изменению остаточного удельного сопротивления (рис. 1), хотя эффективная скорость $\Delta\rho_0/\Phi$ оказалась, как это не кажется парадоксальным на первый взгляд, существенно меньше - по крайней мере на порядок величины (вопрос требует дополнительного изучения, учитывая возможность немонотонного изменения $\rho_0^{обл}$ в процессе облучения). Это сильно отличается от ситуации, имеющей место при электронном (1 МэВ) облучении керамики на основе $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ [3]: облучение приводило к сильному уменьшению T_C и к качественному изменению температурной зависимости сопротивления образцов $R(T)$ при $T > T_C$ - переход от „металлического“ к „полупроводниковому“ поведению $R(T)$.

Теперь обсудим вопрос о вкладе механизма упругого смещения в дефектообразование при „надпороговом“ облучении. Если считать пороговую энергию смещения регулярных атомов $E_d \approx 20$ эВ

(для „внезапного“ события), то сечение образования первичных дефектов для четырех составляющих $\gamma - \text{Ba} - \text{Cu} - \text{O}$ при электронном (1 МэВ) облучении оказываются сравнимыми [3], так как средняя передаваемая при столкновении энергия значительно превышает E_d . Напротив, при гамма-облучении можно ожидать преимущественного смещения более мелких атомов кислорода, поскольку энергия, передаваемая регулярным атомам при столкновении с фото- и комптон-электронами, несильно отличается от E_d и вероятность смещения более „тяжелых“ атомов Cu , γ и Ba существенно уменьшается. В данном приближении ($E_d \approx 20$ эВ) сечение упругого смещения анионов кислорода не может превышать ≤ 0.1 барн [4]; в свою очередь это означает, что концентрация первичных дефектов при использованных дозах гамма-облучения не превышает $\leq 10^{15}$ см⁻³. Такая концентрация рассеивающих центров (первичных или вторичных дефектов) вряд ли может заметно изменить остаточное удельное сопротивление (при обычном сечении рассеяния носителей заряда $T \approx 10^{-15}$ см², см [1]). Для того, чтобы оценки соответствовали экспериментальным результатам, необходимо принять одно из двух предложений – либо пороговая энергия смещения намного меньше 20 эВ, либо основной вклад в дефектообразование при гамма-облучении вносит какой-нибудь другой механизм „неупругого“ смещения, в первую очередь, ионизационный механизм [2], если принять во внимание данные для „подпорогового“ облучения (настоящая работа и [1]). Рассмотрим коротко оба предложения.

Величина E_d при упругом смещении („внезапное“ событие) вряд ли может быть меньше нескольких эВ, поскольку процесс существенно неадиабатичен (при адиабатических „атомных“ процессах масштабom может служить энергия активации самодиффузии, которая во многих твердых телах превышает 1 эВ; см., например, [5, 6]). Однако снижение E_d в несколько раз не спасает положение, так как даже для кристаллической решетки из легких атомов, например бериллия, изменение E_d с 20 до 5 эВ увеличивает сечение дефектообразования при гамма-облучении ^{60}Co менее чем на два порядка величины [4], в то время как „зазор“ между расчетной ($\leq 10^{15}$ см⁻³) и реальной ($\geq 10^{20}$ см⁻³, см [1]) концентрацией рассеивающих центров (радиационных дефектов) составляет пять-шесть порядков величины. Таким образом, обычный механизм упругого смещения не может быть ответственным за наблюдаемое изменение остаточного удельного сопротивления.

Эффективность ионизационного механизма дефектообразования грубо оценивается по темпу ионизации регулярных атомов. Следуя [1] и используя известный коэффициент поглощения гамма-излучения для атомов со „средней“ массой $M \approx 60$ [7], мы получаем, что темп ионизации глубоких оболочек ($E_{\text{ион}} \approx 500$ эВ) при гамма-облучении ^{60}Co составляет около 10^{11} см⁻³с⁻¹, т.е. оказывается примерно того же порядка, что и при „мягком“ (≈ 10 кэВ) рентгеновском облучении. В данном случае большая разница в поглощении „жесткого“ гамма- и „мягкого“ рентгеновского излучения (см.,

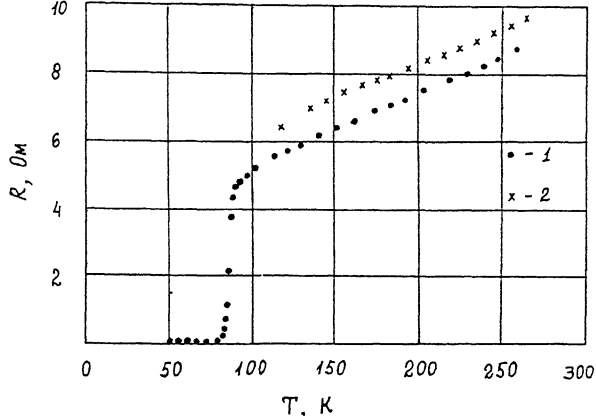


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления монокристаллической пленки $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ в исходном состоянии (1) и после отжига при $T=200^\circ\text{C}$ в течение 15 мин (2).

например, [7, 8]) в значительной степени компенсируется большим различием в энергии поглощаемых квантов (при качественном рассмотрении не учитывается геометрический фактор в система „излучатель–поглотитель“, см. [7]). Из приведенной оценки следует, что процессы образования дефектов в $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ могут быть подобны при „надпороговом“ и „подпороговом“ облучении в том смысле, что преимущественное смещение „легких“ анионов (кислорода) происходит под действием ионизации глубоких электронных оболочек; при гамма-облучении механизм упругого смещения играет второстепенную роль, так как сечение дефектообразования для него оказывается на несколько порядков величины меньше аналогичного сечения для ионизационного механизма. При существенном увеличении энергии бомбардирующих частиц (например, при облучении электронами с энергией 1 МэВ) следует ожидать качественного изменения ситуации, во-первых, за счет резкого увеличения вклада в дефектообразование механизма упругого смещения и, во-вторых, за счет смещения других регулярных атомов (Cu, Y, Ba).

3) Термообработка исходных монокристаллических пленок $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ на воздухе при $T > 100^\circ\text{C}$ также приводит к увеличению остаточного удельного сопротивления, не изменяя самой температурной зависимости $\rho(T)$ при $T > T_c$ (рис. 2). Нагрев в режиме изохронного отжига (с шагом 50°C и временем выдержки 15 мин) показал, что наибольшая скорость возрастания ρ_0 наблюдается около $T=150^\circ\text{C}$. Как полагают, при повышении температуры происходит частичный уход атомов кислорода (и, возможно, меди) из регулярных узлов кристаллической решетки (см., например, [9]), и в этом смысле по конечному результату нагревание эквивалентно облучению.

Таким образом, приведенные в настоящей работе экспериментальные данные дают серьезные основания рассматривать ионизационный механизм дефектообразования [2] как актуальный для монокристаллического $\gamma\text{-Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

Работа выполнена при финансовой поддержке в рамках проекта № 324 Программы по ВТСП.

Авторы признательны М.И. Клингеру за интерес к работе и критические замечания при обсуждении статьи.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Д а л у д а Ю.Н., Е м ц е в В.В., К л и н г е р М.И., Т р е т ь я к о в В.В. // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 52. В. 10. С. 1154-1156.
- [2] К l i n g e r M.I. // Phys. Lett. 1990.
- [3] A d a m E., M a r t i n e z L. et al. // J. Mater. Res. 1988. V. 3. P. 807-810.
- [4] O e n O.S., H o l m e s D.K. // J. Appl. Phys. 1959. V. 30. P. 1289-1295.
- [5] Атомная диффузия в полупроводниках. / Под ред. Д. Шоу, пер. с англ. М.: Мир, 1975.
- [6] Т о м п с о н М. Дефекты и радиационные повреждения в металлах./Пер. с англ. М.: Мир, 1971.
- [7] А г л и н ц е в К.К., К о д ю к о в В.М., Л ы з л о в А.Ф. С и в и н ц е в Ю.В. Прикладная дозиметрия. М.: Госатомиздат, 1962.
- [8] А г л и н ц е в К.К. Основы дозиметрии ионизирующих излучений. Л.: Медгиз, 1954.
- [9] X i e X., S h e n T., W u Z. // Phys. Rev. 1989. V. 40. P. 4549.

Поступило в Редакцию

11 октября 1991 г.