

НАБЛЮДЕНИЕ "ПОДПороГОВОГО" ОБРАЗОВАНИЯ ДЕФЕКТОВ В МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ



Ю.Н.Далуда, В.В.Емцев, М.И.Клингер, В.В.Третьяков

Экспериментально обнаружено увеличение сопротивления монокристаллических пленок $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ (выше критической температуры) под действием "подпорогового" рентгеновского облучения при комнатной температуре. Показано, что такой эффект "подпорогового" облучения может быть объяснен в рамках ионизационного механизма образования дефектов структуры - вакансий анионов (ионов кислорода).

В ряде недавних работ (например, ^{1,2}) было исследовано проявление универсального "надпорогового" упруго-столкновительного дефектообразования в оксидах меди, в том числе материалах ВТСП. Исследование спектров катодолюминесценции ^{3,4} и десорбции ионов кислорода O^+ ⁵, однако, свидетельствуют также о том, что в этих материалах возможно и "подпороговое" дефектообразование. Здесь мы представим результаты изучения температурной зависимости сопротивления пленок $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ (выше критической температуры), облученных рентгеновскими лучами с "подпороговой" энергией.

В качестве исходного материала использовались монокристаллические пленки $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$, полученные методом магнетронного напыления на подложку из титаната стронция. Пленки имели толщину 0,3 - 0,6 мкм. Облучение рентгеновскими лучами проводилось при комнатной температуре. Для облучения был использован рентгеновский излучатель "РЕИС" с анодом из меди. В основном рабочем режиме максимум излучения приходился на область $E_R \approx 10$ кэВ, что гораздо меньше пороговой энергии смещения E_d наиболее легких атомов кислорода в исследованном материале, для которых можно полагать E_d 120 - 150 кэВ (см. ^{1,6}). Температурная зависимость сопротивления измерялась по методу ван-дер-Пау в интервале 50-300 К.

В качестве примера на рисунке представлена температурная зависимость сопротивления для одной из исследованных пленок в исходном состоянии (кривая 1), после облучения (кривая 2, доза $\Phi = 3 \cdot 10^{15}$ см⁻²) и после выдержки облученной пленки при комнатной температуре в течение $1,2 \cdot 10^6$ и $2,4 \cdot 10^6$ с (кривая 3 и 4 соответственно). Во всех случаях температурная зависимость удельного сопротивления $\rho(T)$ до критической температуры удовлетворительно описывается линейным законом $\rho = \rho_0 + \alpha T$, где ρ_0 - остаточное удельное сопротивление, а коэффициент пропорциональности $\alpha = (9,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$ Ом · см/К. Установлено, что само облучение не влияет заметным образом ни на критическую температуру ($T_c = 89$ К), ни на величину α . Однако в результате облучения существенно увеличивается остаточное удельное сопротивление; для данных, представленных на рисунке, $\rho_0^{ис} = 1,8 \cdot 10^{-5}$ Ом · см, $\rho_0^{obl} = 3,2 \cdot 10^{-5}$ Ом · см. Мы считаем, что это связано с увеличением рассеяния носителей заряда на дефектах структуры радиационного происхождения. Примечательно, что после прекращения облучения величина остаточного удельного сопротивления продолжала возрастать еще некоторое время (при хранении облученных пленок при комнатной температуре), а затем окончательно стабилизировалось. Последнее может означать, что первичные дефекты, возникшие во время облучения, подвижны при комнатной температуре и участвуют в комплексообразовании. Оценки показывают, что в данном случае энергия активации E_a диффузионного движения (при "нормальном" предэкспоненциальном множителе в коэффициенте диффузии) отнюдь не мала ($E_a \sim 1$ эВ) в согласии с некоторыми недавними

работами, см., например, ⁷. С другой стороны, отмеченный рост удельного сопротивления при отжиге может быть обусловлен тем, что вторичные дефекты (комплексы) обладают сечением рассеяния носителей заряда в два-три раза большим, чем первичные радиационные дефекты (для пленок с хорошей исходной структурой остаточное удельное сопротивление после стабилизации превышает ρ_0^{obl} в два-три раза).

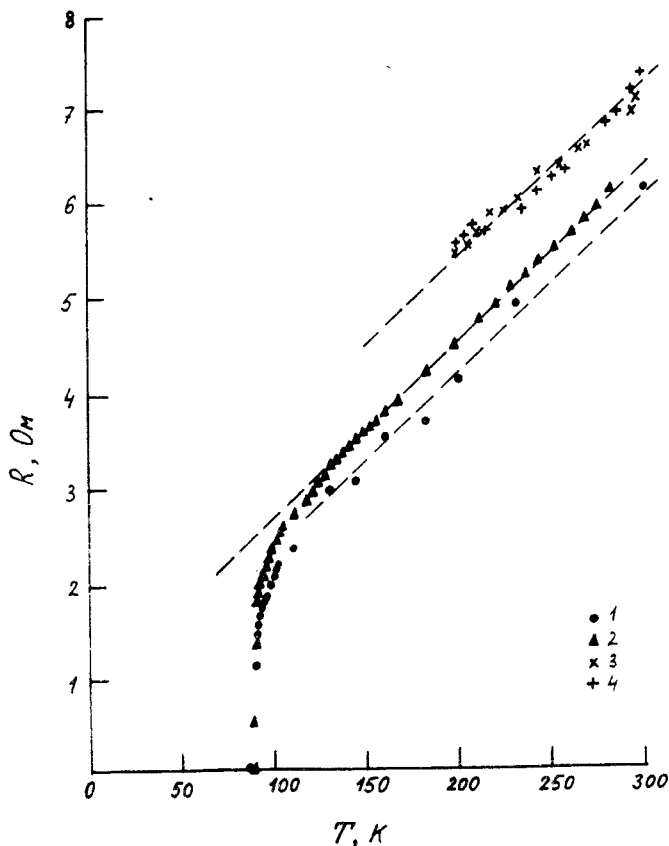


Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления монокристаллической пленки $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ в исходном состоянии, после рентгеновского облучения и в процессе отжига при комнатной температуре

Мы полагаем, что первичными радиационными дефектами, вызывающими дополнительное рассеяние носителей заряда в облученных пленках являются вакансии анионов (ионов кислорода) концентрация которых ΔN_{vac} может быть оценена как $\Delta N_{vac} \approx \Delta \rho_0 / (pe^2/m_p^*) (\sigma_{vac} v)$. Здесь: $\Delta \rho_0 = \rho_0^{obl} - \rho_0^{nc}$, m_p^* и p - эффективная масса и концентрация дырок, v - средняя скорость носителей заряда, σ_{vac} - сечение рассеяния вакансии. Подставляя для $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ $v \approx 3 \cdot 10^7$ см/с, $(pe^2/m_p^*) \approx 10^{30}$ с⁻² и используя для оценки $\sigma_{vac} \approx 10^{-15}$ см², получаем $\Delta N_{vac} \approx 4 \cdot 10^{20}$ см⁻³ (для $\Delta \rho_0 \approx 10^{-5}$ Ом · см). Мы полагаем также, что рождение анионных вакансий определяется механизмом ⁹, обусловленным ионизацией анионов (их глубоких электронных K- или L₁-оболочек) с появлением на них достаточно долгоживущих двух (или трех) дырочных состояний. Согласно ⁹, этот механизм определяется электростатической неустойчивостью некоторых выделенных локальных атомных конфигураций и может быть эффективным и при низких температурах; такая неустойчивость возникает за счет отталкивания положительно заряженного ионизованного аниона от соседних катионов. Сече-

ние рассматриваемого процесса, эффективного особенно в "подпороговой" области энергии в радиационных экспериментах, $\sigma^* \approx \sigma_{\text{ион}} w^*$ может достигать масштаба сечения указанной выше ионизации; при этом безразмерная вероятность образования анионной вакансии может быть большой ($w^* \sim 1$) и не зависеть от температуры облучения. Поскольку энергия ионизации $\epsilon_{\text{ион}}^{(K)} \approx 530$ эВ и $\epsilon_{\text{ион}}^{(L_1)} \approx 25$ эВ, а энергия облучения $E_R \approx 10$ кэВ, то грубая оценка коэффициента умножения числа ионизаций γ дает $\gamma(K) \approx 20$ и $\gamma(L_1) \approx 400$. Приближенные оценки показывают также, что $1 \ll \sigma_{\text{ион}}(L_1)/\sigma_{\text{ион}}(K) \ll \epsilon_{\text{ион}}^{(K)}/\epsilon_{\text{ион}}^{(L_1)}$, так что по масштабу величины здесь скорее $\Delta N_{\text{vac}} \approx N_0 \sigma^*(L_1) I_{RtR} \gamma(L_1) \kappa_{\text{vac}}$, где N_0 - полная концентрация ионов кислорода, $\sigma^*(L_1) \approx \sigma_{\text{ион}}(L_1) w^*(L_1)$ и κ_{vac} - доля свободных анионных вакансий. В рассматриваемой ситуации $\Delta N_{\text{vac}} \approx 10^{21} \cdot 4 w^*(L_1) \kappa_{\text{vac}}$ (см⁻³) при $\sigma_{\text{ион}}(L_1) \approx 10^{-18}$ см², $I_{RtR} \approx 10^{15}$ см⁻² и $N_0 \approx 10^{22}$ см⁻³. Из сравнения таких оценок с экспериментальной оценкой $\Delta N_{\text{vac}} \approx 4 \cdot 10^{20}$ см⁻³ следует, что $w^*(L_1) \kappa_{\text{vac}} \sim 0,1$ так что при типичных $\kappa_{\text{vac}} \approx 0,1 - 0,3$ вероятность $w^*(L_1) \approx (1 - 0,3)$ имеет разумный масштаб величины. В согласии с анализом⁹, отсюда можно заключить, что зона дырочной проводимости в $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ либо является хаббардовской, либо в альтернативном случае имеет место предсказанное ранее¹⁰ замедление распада двухдырочного состояния аниона. При более точном количественном рассмотрении механизма ионизационного дефектообразования сравнение теории с экспериментом может не содержать подгоночного параметра ($w^* \kappa_{\text{vac}}$). Это обстоятельство, а также природа зоны дырочной проводимости будут более детально обсуждены в отдельной статье.

Работа выполнена при финансовой поддержке в рамках проекта N324 Программы по ВТСП.

Авторы признательны Л.Г.Сахарову за предоставленные образцы.

Литература

1. Adem E. et al. J. Mater. Res., 1988, 3, 807.
2. Алексашин Б. и др. ЖЭТФ, 1989, 95, 678.
3. Луцкич Ч.Б. и др. Тр. Института физики АН ЭССР, 1989, 63, 137.
4. Fugol I.Ya. et al. Mod. Phys. Lett. B, 1990, 4, 803.
5. Rosenberg R., Wen C.-R. Phys. Rev. B, 1989, 37, 5841.
6. Chinard F. et al. J. Appl. Phys., 1989, 65, 5057.
7. Xie X. et al. Phys. Rev. B, 1989, 40, 4549.
8. Pickett W. Rev. Mod. Phys., 1989, 61, 433.
9. Klinger M.I. Phys. Lett., 1990.
10. Klinger M.I., Mashovets T.V. Cryst. Latt. Def., 1981, 9, 113.