

Влияние отжига на поперечный электротранспорт облученных высокоэнергетическими электронами монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Г.Я. Хаджай, В.И. Белецкий, Р.В. Вовк

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина

пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина

E-mail: george.ya.khadjai@univer.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 27 февраля 2019 г., после переработки 19 марта 2019 г., опубликована онлайн 27 августа 2019 г.

Исследовано влияния отжига на поперечное электросопротивление облученных высокоэнергетическими электронами монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Установлено, что отжиг привел к возврату сопротивления до некоторого промежуточного уровня, включая положения ступеней на кривой перехода в сверхпроводящее состояние, характерные для этого уровня.

Ключевые слова: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, поперечное сопротивление, облучение электронами, отжиг, сверхпроводящий переход, флуктуации состава, дефекты.

Модификация состава и топологии дефектного ансамбля [1–5] является апробированным методом создания дополнительных центров пиннинга в современных высокотемпературных сверхпроводящих материалах (ВТСП). Важнейшую роль при этом играет применение ионизирующих излучений, в частности потоков высокоэнергетических электронов [6,7]. Это обусловлено, в том числе, и тем, что в силу малой длины когерентности ξ и большой глубины проникновения λ [8,9] точечные дефекты, создаваемые при таком облучении, также являются достаточно эффективными центрами пиннинга [10,11]. При этом возникает вопрос о термической устойчивости таких дефектов, эффективный отжиг которых возможен уже при температурах $T > 160$ К [12].

Следует также отметить, что анизотропный характер таких дефектов [13,14] совместно со структурной и кинематической анизотропией, присущей самим ВТСП материалам [15–17], в частности соединению YBaCuO , значительно расширяет круг фундаментальных и прикладных задач, возникающих при исследовании процессов переноса, происходящих при отжиге таких радиационных дефектов. В то же время, несмотря на большое число работ по исследованию влияния облучения на различные физические характеристики ВТСП соединений [18–20], в частности на электротранспорт, в

литературе практически не рассматривается вопрос о влиянии отжига на некогерентный поперечный электротранспорт в таких соединениях, подвергнутых радиационной обработке.

С учетом вышесказанного, в настоящей работе представлены результаты исследования влияния высокотемпературного отжига на температурную зависимость поперечного сопротивления совершенных монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ после их облучения высокоэнергетическими электронами с энергиями $\sim 2,5$ МэВ.

Монокристаллический образец $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ облучали электронами до различных доз [21], наибольшая из которых составляла $D_4 = 8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. После каждого облучения измеряли сопротивление образца в интервале $T_c - 300$ К. После достижения максимальной дозы образец отожгли при 400 К в течение 1 ч на воздухе и также измерили сопротивление.

На рис. 1 изображены температурные зависимости поперечного сопротивления $\rho_c(T)$ по данным [21] для образца, облученного электронами с суммарной дозой $D_3 = 4,3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (кривая 1 (■)); для образца с суммарной дозой $D_4 = 8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (кривая 2 (◆)). Кривая 3 (●) изображает $\rho_c(T)$ образца, отожженного при 400 К в течение 1 ч после достижения суммарной дозы D_4 . Видно, что зависимость $\rho_c(T)$ для отожженного образца весь-

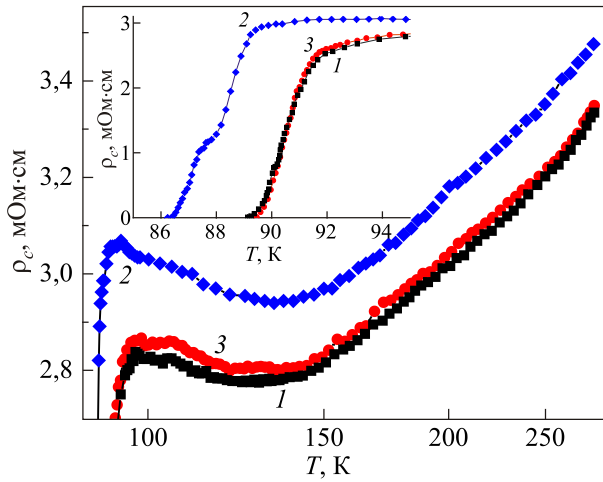


Рис. 1. (Онлайн в цвете) Температурные зависимости поперечного сопротивления монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ оптимального состава, $\rho_c(T)$: после облучения до дозы $4,3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (1 (■)); после облучения до дозы $8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (2 (◆)); после облучения до дозы $8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ и отжига при 400 К в течение 1 ч (3 (●)). На вставке: то же самое в области сверхпроводящего перехода.

ма близка к $\rho_c(T)$ образца после $D_3 = 4,3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Наблюдаемая небольшая разница сопротивлений этих состояний демонстрирует тенденцию к уменьшению при росте температуры (рис. 1, кривые 1 и 3), а T_c возрастает от 88,5–87 К для D_4 до 91–90 К после отжига.

После отжига образца также наблюдается изменение формы перехода в сверхпроводящее состояние. Например, как видно на вставке рис. 1, после релаксации электросопротивления, обусловленной отжигом, ступенчатая форма сверхпроводящего перехода (вставка рис. 1, кривая 2) существенно сглаживается (вставка рис. 1, кривые 1 и 3).

На рис. 2 изображены $d\rho_c(T)/dT$ в области сверхпроводящего перехода. Здесь наличие максимумов $d\rho_c(T)/dT$ свидетельствует о существовании макроскопических областей с различными температурами перехода в сверхпроводящее состояние [22].

Ступенчатая форма резистивных переходов в сверхпроводящее состояние и особенности производных $d\rho_c(T)/dT$ облученного кристалла до и после отжига свидетельствуют о наличии в этом кристалле, по крайней мере, четырех таких областей (фаз), которые характеризуются различным содержанием кислорода и, возможно, типом его упорядочения. Поэтому они имеют различную критическую температуру [23]. Наиболее вероятной причиной изменения формы сверхпроводящих переходов может быть перераспределение кислорода между этими четырьмя фазами.

Структура $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ характеризуется наличием цепочек Cu–O, и при $\delta = 0$ кислородные позиции O(l) полностью заполнены. При дефиците кислорода $\delta = 0,5$ структура характеризуется последовательным чередованием цепочек, в которых кислородные позиции O(l)

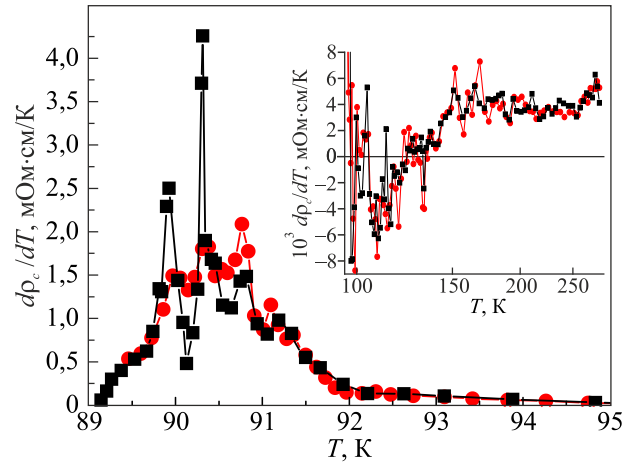


Рис. 2. (Онлайн в цвете) Производные $d\rho_c(T)/dT$ в области сверхпроводящего перехода: после облучения до дозы $4,3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (■); после облучения до дозы $8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ и отжига при 400 К в течение 1 ч (●). На вставке: $d\rho_c(T)/dT$ во всем исследованном интервале температур.

полностью заполнены, и цепочек, в которых позиции O(l) вакантны. Реализация упорядоченных структур такого типа возможна при стехиометрическом соотношении концентраций кислорода и вакансий 1:0 и 1:1 [24]. Экспериментальные исследования различных физических свойств образцов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с дефицитом кислорода $\delta < 0,3$ позволили авторам работы [25] обосновать представление о сверхпроводящем кластере, структура которого близка к упорядоченной при соотношениях концентраций кислорода и вакансий равных 5:1, 4:1, 3:1 и 2:1. Например, считается, что при соотношении 5:1 в каждой шестой цепочке кислородные позиции O(l) вакантны, а в остальных цепочках они заняты.

При нестехиометрическом соотношении концентраций кислорода и вакансий возможно либо разупорядочение в системе кислород–вакансии, либо образование смеси упорядоченных кластеров с различным содержанием кислорода. В работе [26], повышение T_c в процессе отжига кристаллов при комнатной температуре и увеличение концентрации носителей тока при уменьшении температуры от 150 до 20 °С, обнаруженное в работе [27], авторы интерпретировали упорядочением кислорода в плоскостях Cu–O. Наблюдаемое в настоящей работе уменьшение электросопротивления в процессе отжига также свидетельствует о частичном упорядочении в системе кислород–вакансии, ранее искусственно разупорядоченной при воздействии облучения высокоэнергетическими электронами. Поэтому следует ожидать, по крайней мере, при длительном отжиге при достаточно высоких температурах упорядоченного состояния в системе кислород–вакансии. Наблюдаемая же в настоящей работе ступенчатая форма

резистивных переходов, вероятно, свидетельствует о нестехиометрическом соотношении концентраций кислорода и вакансий в отдельных участках объема экспериментального образца, что приводит к образованию в этих участках объема смеси различных кластеров. Эти кластеры, которые могут представлять собой отдельные фазы, по-видимому, характеризуются разным содержанием кислорода и его упорядочением и, соответственно, имеют различные критические температуры. Наличие ступенек также предполагает отсутствие перколяционных путей протекания тока по фазе с большей критической температурой. В противном случае эта фаза шунтировала бы низкотемпературные и наблюдался бы переход в сверхпроводящее состояние только высокотемпературной фазы.

Характерной особенностью влияния отжига является изменение высоты пиков на резистивных переходах. Наиболее ярко это изменение проявляется для двух низкотемпературных фаз. На кривой, полученной после отжига (рис. 2, красные кружки), самый низкотемпературный пик практически исчез, а высота второго снизу по температуре пика уменьшилась более чем в пять раз. При этом, высота третьего, более высокотемпературного пика, увеличилась приблизительно вдвое. Такое большое изменение крутизны ступенек по сравнению с кривой до отжига (рис. 2, черные квадраты) указывает на изменение путей протекания тока после отжига кристаллов при комнатной температуре, что возможно при изменении пространственного распределения и размеров кластеров низко- и высокотемпературной фаз. Последнее требует диффузионного перемещения кислорода на расстояние порядка размеров кластеров. Так, например, оценка длины диффузии $L_0 = (Dt)^{1/2}$ кислорода при комнатной температуре в течение суток дает величину 30–300 Å [28], сопоставимую с расстоянием 50–400 Å [29–30], на котором реализуется упорядочение кислорода в монокристаллах с $\delta \sim 0,5$ при комнатной температуре.

Поведение $dp_c(T)/dT$ для отожженного образца указывает на то, что температуры сверхпроводящих переходов в этих фазах возвращаются к своим значениям, соответствующим дозе D_3 . Поскольку только кислород обладает ощутимой подвижностью при $T_a \approx 400$ К, то такой «возврат» T_c означает, что электронное облучение создает в образце только кислородные, подвижные, дефекты, но распределение кислорода (распределение δ) определяется «индивидуальностью» образца, т.е. случайным набором малоподвижных дефектов, на которые отжиг не влияет, и распределение которых определяет распределение кислорода.

На вставке рис. 2 приведены $dp_c(T)/dT$ во всем исследованном интервале температур. Видно, что поведение температурных производных сопротивления после отжига воспроизводится, т.е. перераспределение кислорода является обратимым.

Полученные данные свидетельствуют о том, что электронное облучение создает дефекты только в кислородной подсистеме, и распределение этих дефектов, а именно лабильного кислорода, определяется иными дефектами, на которые ни облучение, ни отжиг (при достаточно низких температурах) не влияют.

1. V.M. Pan, V.L. Svechnikov, and V.F. Solovjov, *Supercond. Sci. Technol.* **5**, 707 (1992).
2. A.V. Bondarenko, V.A. Shklovskij, M.A. Obolenskii, R.V. Vovk, A.A. Prodan, M. Pissas, D. Niarchos, and G. Kallias, *Phys. Rev. B* **58**, 2445 (1998).
3. R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, M.A. Obolenskii, I.L. Goulatis, A. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Alloys Compd.* **509**, 4553 (2011).
4. A.L. Solovyov, L.V. Omelchenko, V.B. Stepanov, R.V. Vovk, H.-U. Habermeier, P. Przyslupski, and K. Rogacki, *Phys. Rev. B* **94**, 224505 (2016).
5. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, D.A. Lotnyk, and K.A. Kotvitskaya, *Physica B* **404**, 3516 (2009).
6. F. Rullier-Albenque, H. Alloul, and R. Tourbot, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 047001 (2003).
7. N.A. Azarenkov, V.N. Voevodin, R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, S.V. Lebedev, V.V. Sklyar, S.N. Kamchatnaya, and O.V. Dobrovolskiy, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **28**, 15886 (2017).
8. M.V. Feigel'man, V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin, and V.M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 1125 (1994).
9. A.B. Бондаренко, А.А. Продан, М.А. Оболенский, Р.В. Вовк, Т.Р. Ароури, *ФНТ* **27**, 463 (2001) [*Low Temp. Phys.* **27**, 339 (2001)].
10. A.V. Bondarenko, A.A. Prodan, Y.T. Petrusenko, V.N. Borisenko, F. Dworschak, and U. Dedek, *Phys. Rev. B* **64**, 092513 (2001).
11. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, V.V. Kruglyak, and A. Chroneos, *Mod. Phys. Lett. B* **25**, 2131 (2011).
12. Yu.T. Petrusenko, I.M. Neklyudov, A.N. Sleptsov, V.F. Yakovlev, A.V. Bondarenko, and M.A. Obolensky, *Phys. B* **169**, 711 (1991).
13. F. Dworschak, U. Dedek, and Yu. Petrusenko. *Phys. C* **235–240**, 1343 (1994).
14. Г.Я. Хаджай, Н.Р. Вовк, Р.В. Вовк, *ФНТ* **45**, 155 (2019) [*Low Temp. Phys.* **45**, 135 (2019)].
15. P.W. Anderson and Z. Zou, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 132 (1988).
16. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, A.V. Bondarenko, I.L. Goulatis, A.V. Samoilov, A.I. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Alloys Compd.* **464**, 58 (2008).
17. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, I.L. Goulatis, A.I. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **20**, 858 (2009).
18. И.В. Берман, Н.Б. Брандт, *ФНТ* **16**, 1227 (1990) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **16**, 707 (1990)].
19. Р.В. Вовк, А.Л. Соловьев, *ФНТ* **44**, 111 (2018) [*Low Temp. Phys.* **44**, 81 (2018)].

20. J. Giapintzakis, D.M. Ginsberg, M.A. Kirk, and S. Ockers, *Phys. Rev. B* **50**, 15967 (1994).
21. Г.Я. Хаджай, Ю.В. Литвинов, Р.В. Вовк, *ФНТ* **45**, 916 (2019) [*Low Temp. Phys.* **45**, 785 (2019)].
22. Б.Н. Ролов, В.Э. Юркевич, *Физика размытых фазовых переходов*, Изд-во РГУ, Ростов-на-Дону (1983).
23. R.V. Vovk, N.R. Vovk, and O.V. Dobrovolskiy, *J. Low Temp. Phys.* **175**, 614 (2014).
24. R. Beyers, B.T. Ahn, G. Gorman, V.Y. Lee, S.S.P. Parkin, M.L. Ramirez, K.P. Roche, J.E. Vazquez, T.M. Gut, and R.A. Huggins, *Nature* **340**, 619 (1989).
25. Б.Я. Сухаревский, И.В. Жихарев, С.И. Хохлова, Г.Е. Шаталова, А.Я. Дудка, Е.О. Цибульский, П.Н. Михеенко, *Проявление атомного упорядочения в характеристиках нормального и сверхпроводящего состояния ВТСП оксидов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$* , препринт ДонФТИ-91-10 (1991).
26. J. Kircher, M. Cardona, A. Zibold, K. Widder, and H.P. Getherich, *Phys. Rev. B* **48**, 9684 (1993).
27. D. Jorgensen, S. Pes, P. Lightfoot, H. Shi, A.P. Paulikas, and B.W. Veal, *Physica C* **17**, 571 (1990).
28. М.А. Оболенский, А.В. Бондаренко, Р.В. Вовк, А.А. Продан, *ФНТ* **23**, 1178 (1997) [*Low Temp. Phys.* **23**, 882 (1997)].
29. K. Widder, A. Zibold, M. Merz, H.P. Getherich, A. Erb, and G. Muller-Vogt, *Physica C* **232**, 82 (1994).
30. F. Heinmaa, H. Lutgemeier, S. Pecker, G. Krabbes, and M. Buchgeister, *Appl. Magn. Res.* **3**, 689 (1992).

Вплив відпалу на поперечний електротранспорт монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, які опромінено високоенергетичними електронами

Г.Я. Хаджай, В.І. Білецький, Р.В. Вовк

Досліджено вплив відпалу на поперечний електроопір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, які опромінено високоенергетичними електронами. Встановлено, що відпал спричинив повернення опору до деякого проміжного рівня, включаючи положення ступенів на кривій переходу у надпровідний стан, що є характерним для цього рівня.

Ключові слова: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, поперечний опір, опромінення електронами, відпал, надпровідний перехід, флуктуації складу, дефекти.

The effect of annealing on the transverse electrotransport of single crystals $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ irradiated with high-energy electrons

G.Ya. Khadzhai, V.I. Biletskyi, and R.V. Vovk

The effects of annealing on the transverse resistivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals irradiated with high-energy electrons were studied. It is established that annealing led to a return of resistance to a certain intermediate level, including the positions of the steps on the transition curve to the superconducting state, characteristic of this level.

Keywords: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, transverse resistance, electron irradiation, annealing, superconducting transition, composition fluctuations, hopping conductivity, defects.