

О вкладе дислокаций в электросопротивление ниобия

В. И. Соколенко

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»
Украина, 310108, г. Харьков, ул. Академическая, 1
E-mail: nsc@kipt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 30 июня 1998 г., после переработки 27 октября 1998 г.

Для монокристаллов ниобия с различным структурным состоянием (после деформации прокаткой при 20 К и последовательного удаления поверхностных слоев) исследовано изменение прироста удельного электросопротивления, нормированного на величину средней плотности дислокаций в сердцевине $\Delta\rho/N_d$. Для гомогенной структуры с высокой плотностью равномерно распределенных дислокаций ($N_d = 13 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$) с учетом вклада вакансий в $\Delta\rho$ определена величина удельного электросопротивления единичной дислокации $r_d \approx (9 \pm 3) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. Выполнены количественные расчеты r_d ниобия в рамках моделей резонансного рассеяния электронов на дислокациях.

Для монокристалів ніобію з різним структурним станом (після деформації прокаткою при 20 К і послідовного видалення поверхневих шарів) досліджено зміну приросту питомого електроопору, нормованого на величину середньої густини дислокацій у серцевині $\Delta\rho/N_d$. Для гомогенної структури з високою густиною рівномірно розподілених дислокацій ($N_d = 13 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$) з урахуванням вкладу вакансій в $\Delta\rho$ визначено величину питомого електроопору одиничної дислокації $r_d \approx (9 \pm 3) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. Здійснено кількісні розрахунки r_d ніобію в рамках моделей резонансного розсіяння електронів на дислокаціях.

PACS: 72.10.Fk

Введение

Дислокации, как один из типов дефектов кристаллической решетки, вызывают рассеяние носителей заряда и влияют на характеристики электропереноса. Вклад дислокаций в электросопротивление металлов исследовался во многих экспериментальных и теоретических работах. Из анализа экспериментальных данных [1–3] следует, что наиболее полно изучены ГЦК металлы Cu, Au, Ag, Al, для которых величина удельного дислокационного электросопротивления $r_d \approx (1–2) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$, а разброс значений для каждого из них составляет ~ 20%. Переходные ОЦК металлы в этом плане исследованы в меньшей мере. Для них характерны более высокие значения r_d , а расхождение данных существенно выше в сравнении с указанными ГЦК металлами. В частности, значения r_d для Mo отличаются в ~ 3,8 раза [4,5], а для W — в ~ 2,5 раза [6,7]. Систематические исследования r_d элементов V группы практически отсутствуют. Для ванадия с низким

значением средней плотности дислокаций в [8] приведена оценка $r_d \sim 10 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. К имеющимся результатам для Nb следует относиться критически. Значения $r_d \sim 70 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$, представленные в работах [9,10], получены косвенным путем и значительно превышают характеристики других переходных металлов.

В рамках теоретических моделей [1–3], учитывающих специфику рассеяния носителей в локальных областях вблизи дислокационного ядра, получено удовлетворительное, а для ряда металлов (прежде всего благородных) хорошее соответствие расчетных и экспериментальных значений r_d . Расчеты r_d элементов V группы в указанных работах отсутствуют.

Цель настоящей работы — определение величины r_d для Nb с высокой плотностью равномерно распределенных дислокаций и сопоставление ее с характеристиками, рассчитанными в рамках моделей резонансного рассеяния электронов на квазистационарных состояниях, связанных с дисло-

кациями [1,3]. Высокая плотность дислокаций является необходимым условием корректного определения r_d при наличии конечной концентрации примесей в силу взаимосвязи между электрон-примесным и электрон-дислокационным рассеянием при низких температурах в случае металла с анизотропией времени релаксации электронов на несферической поверхности Ферми (ПФ) [11,12].

Образцы и методика

Исследовался Nb электронно-лучевой плавки чистотой 99,956 вес. %. Ранее в работе [13] на монокристаллах данного материала было изучено влияние деформации прокаткой при 20 К (направление прокатки близко к [110], а плоскость — к (001)) с последующим отеплением до комнатной температуры, а также последовательного симметричного удаления поверхностных слоев с помощью полировки на изменение ряда физических характеристик, в том числе удельного электросопротивления ρ_n , измеренного при $T = T_c + 0,5$ К, T_c — температура сверхпроводящего перехода (для образцов в исходном состоянии $T_{c0} = 9,15$ К и $\rho_{n0} = 0,937$ мкОм·см). Было также изучено изменение величины средней плотности дислокаций в сердцевине образца N_d . В настоящей работе с использованием полученных в [13] результатов проведены расчеты значений $\Delta\rho/N_d$ ($\Delta\rho = \rho_n - \rho_{n0}$) ниобия в различных структурных состояниях и выделена характеристика гомогенной дислокационной структуры с высокой плотностью дислокаций. Величина r_d определялась с учетом вклада в $\Delta\rho$ дефектов вакансионного типа в предположении аддитивности вкладов линейных и точечных дефектов.

Результаты и их обсуждение

При экспериментальном определении величины r_d основные погрешности обусловлены неточностями при определении плотности дислокаций и вклада в $\Delta\rho$ точечных дефектов, порожденных дислокациями. На рис. 1 показано влияние структурного состояния Nb, деформированного прокаткой при 20 К, на величину $\Delta\rho/N_d$. Для монокристалла текстурной ориентации (001)[110] увеличение $\Delta\rho/N_d$ в интервале $6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2} \leq N_d \leq 13 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ связано, в соответствии с результатами работы [13], с формированием в сечении образца гетерогенного структурного состояния, которое сочетает равномерно распределенные дислокации в сердцевине и более высокодефектную фрагментированную структуру в приповерхностных слоях. Из

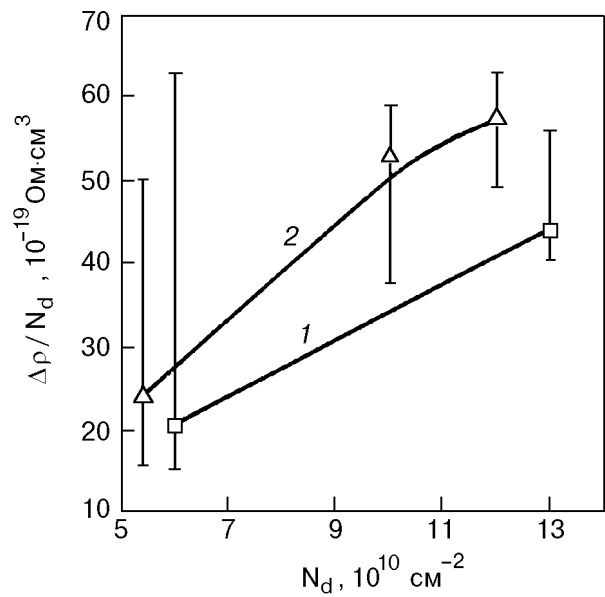


Рис. 1. Зависимости $\Delta\rho/N_d$ от N_d ($\Delta\rho$ — прирост электросопротивления, N_d — средняя плотность дислокаций в сердцевине) для монокристалла Nb текстурной ориентации (001)[110] (1) и поликристаллического образца (2), деформированных прокаткой при 20 К. Значения $\Delta\rho$ и N_d для поликристаллического Nb взяты из [14]. Усы соответствуют разбросу N_d от минимального до максимального значений.

рис. 1 следует, что по сравнению с монокристаллом для поликристаллического образца, деформированного в аналогичных условиях, характерно более интенсивное увеличение $\Delta\rho/N_d$ с ростом N_d , что может быть обусловлено как более высоким темпом накопления дефектов в приповерхностных слоях, так и большим вкладом в $\Delta\rho$ полей упругих напряжений.

Для расчетов r_d были использованы характеристики структурного состояния, сформированного в монокристалле после прокатки на $\delta = 42\%$ ($N_d = 13 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$). Для данного структурного состояния максимальный разброс значений N_d составляет 33%, что в ~ 2 раза ниже, чем для структурного состояния с $N_d = 6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ($\delta = 12\%$). При симметричном удалении поверхностных слоев монокристалла, деформированного на $\delta = 42\%$, реализуется последовательный переход от гетерогенного структурного состояния к гомогенному в виде равномерно распределенных дислокаций и для сердцевины образца достигается наименьшее значение деформационного прироста электросопротивления, нормированного на среднюю плотность дислокаций: $\Delta\rho_{\text{min}}/N_d \approx 18 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$ (рис. 2). Отметим, что для данного структурного состояния характерен минимальный фактор сжимающих напряжений [13]. Указанная величина $\Delta\rho_{\text{min}}/N_d$ в $\sim 2,5$ раза ниже величины, соответствующей структурному состоянию после прокатки

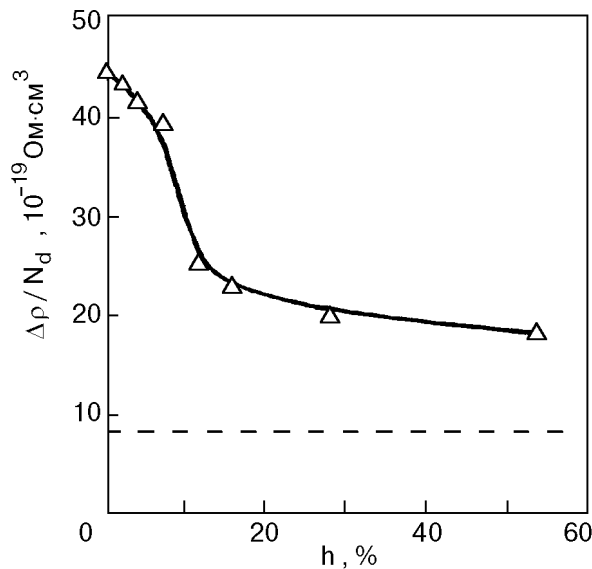


Рис. 2. Зависимость $\Delta\rho/N_d$ от относительного увеличения толщины удаленного слоя h при химической полировке для монокристалла Nb, предварительно деформированного прокаткой на 42%. Пунктирная линия соответствует уменьшению $\Delta\rho$ на ~ 50% вследствие отжига вакансий.

на 42%. Для образца, прокатанного на 10% ($N_d = 6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$), разница составляет ~ 12%. Из рис. 2 следует, что использование при расчете r_d величины $\Delta\rho$, характеризующей образец, деформированный прокаткой на «средние» степени без удаления приповерхностных слоев, приводит к существенно завышенным значениям. Отсюда понятна причина сильного (в ~ 3,8 раза) различия значений r_d для Mo, деформированного прокаткой на 44% (без удаления приповерхностных слоев) [5] и растяжением [4].

Величина $\Delta\rho_{\min}/N_d \approx 18 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$, кроме дислокационного вклада, содержит также вклад дефектов вакансионного типа, оставшихся в образце после отогрева до комнатной температуры. Перемещение этих дефектов в решетке Nb происходит при $T > 420 \text{ K}$ [15]. В [16] было установлено, что для поликристаллического Nb, деформированного прокаткой на 37% при 20 K, характерно двухстадийное изменение $\Delta\rho$ и T_c при отжигах в интервале $423 \text{ K} \leq T \leq 553 \text{ K}$, причем стадии увеличения T_c , связанной с уходом на стоки дефектов вакансионного типа, соответствует снижение $\Delta\rho$ на ~ 65%. Дополнительные эксперименты показали, что прокатка на 80% приводит к расширению до ~ 530 K стадии увеличения T_c при снижении $\Delta\rho$ на ~ 70%. Для монокристалла Nb (идентичного исследуемому в настоящей работе), деформированного прокаткой при 20 K на 78%, отжиг при 533 K обуславливает снижение $\Delta\rho$ на 56% [17]. Можно полагать, что соотношения вакансионных вкладов

в $\Delta\rho$ для образцов поликристаллического и монокристаллического Nb, прокатанных соответственно на 37 и 80% и на 42 и 78%, не будут существенно различаться. Тогда получаем усредненное значение дислокационного вклада в электросопротивление $r_d \approx 0,5\Delta\rho_{\min}/N_d \approx 9 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. Этой величине соответствует пунктирная линия на рис. 2. Принимая во внимание указанную выше точность определения N_d и вакансионного вклада в $\Delta\rho$, окончательно имеем $r_d \approx (9 \pm 3) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. Полученная для Nb величина r_d хорошо согласуется с имеющимися в литературе данными для таких ОЦК переходных металлов, как Mo ($r_d = 5,8 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$ [4]), W ($r_d = 7,5 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$ [7]), Fe ($r_d = (10 \pm 4) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$ [18]), V ($r_d \sim 10 \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$ [8]).

Расчеты r_d Nb в рамках теоретических моделей

Модель Брауна [1] основана на предположении о резонансном характере рассеяния фермиевских электронов на дислокационном ядре при отсутствии межзонного рассеяния. Выражение для r_d соответствует хаотически ориентированным дислокациям и имеет вид

$$r_d = 8\hbar/3e^2n_e, \quad (1)$$

где \hbar — постоянная Планка; e — заряд электрона; n_e — концентрация носителей. Применимость уравнения (1) для металлов со сложной ПФ обсуждалась в работе [1], в которой показано разумное соответствие с экспериментальными результатами при оценке n_e из объема закрытых листов ПФ. Для Nb, по данным [19,20], концентрация носителей составляет соответственно $4,5 \cdot 10^{22}$ и $5,6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$. Подставляя указанные значения n_e в формулу (1), получаем $r_d \approx (1,8-2,4) \cdot 10^{-19} \text{ Ом}\cdot\text{см}^3$. Таким образом, для Nb величина, соответствующая верхней границе расчетных значений r_d , в ~ 2,5 раза меньше величины, соответствующей нижней границе значений, определенных экспериментально.

В модели Каролика—Лухвича [3] r_d рассчитывалось в приближении времени релаксации с использованием выражения

$$r_d = \hbar k_F Q / e^2 n_{\text{eff}}, \quad (2)$$

где k_F — волновой вектор; Q — транспортное сечение рассеяния; n_{eff} — эффективная концентрация носителей. Для расчетов Q в приближении свободных электронов в [3] был использован метод парциальных волн. При этом дислокационное

ядро рассматривалось как линейный дефект, с которым связан избыточный свободный объем. Причиной резонансного рассеяния является возможность кратковременного захвата электрона в области избыточного положительного заряда с образованием квазистационарного состояния вблизи энергии Ферми. Оценки значений k_F также выполнены в приближении свободных электронов с использованием представленных в [1] данных о числе носителей на атом. Для переходных металлов величины n_{eff} рассчитаны с привлечением известной модели Мотта двухзонного переходного металла, причем для элементов начала и середины переходных серий (Ti, Zr, Mo, W) использована оценка $n_{\text{eff}} = n_e N_s(0)/N(0)$. Здесь $N_s(0)$ и $N(0)$ — соответственно плотность состояний s -электронов на уровне Ферми и полная плотность состояний.

Для Nb выполнить оценки параметров, заложенных в формулу (2), можно с привлечением имеющихся литературных данных. В переходных металлах зону проводимости образуют почти свободные s - и p -электроны. Из представленных в [21] данных о вкладах парциальных плотностей состояний в полную плотность состояний Nb следует, что $(N_s(0) + N_p(0))/N(0) \approx 0,17$, тогда $n_{\text{eff}} \approx 0,17n_e \approx (0,76-0,95) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$. В приближении свободных электронов $k_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3}$, что для $n_e = (4,5-5,6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ дает $k_F \approx (1,1-1,2) \cdot 10^8 \text{ см}^{-1}$. Используя данные [3], легко показать, что в ряду непериодических и периодических ГЦК и ОЦК металлов Na, K, Cu, Au, Al, Ni, Pt, Mo, W величина Q составляет $\sim (1,1-1,3)b$ (b — вектор Бюргерса). Можно полагать, что и для Nb $Q \sim b$ ($b = 2,86 \cdot 10^{-8} \text{ см}$ [22]). Используя указанные значения Q , k_F и n_{eff} в соответствии с формулой (2) получаем $r_d \sim (14-18) \cdot 10^{-19} \text{ Ом} \cdot \text{см}^3$. Таким образом, в данном интервале расчетных значений средняя величина r_d с точностью $\sim 50\%$ соответствует средней величине r_d , определенной экспериментально.

Заключение

Для монокристаллов ниобия с различным структурным состоянием (после деформации прокаткой при 20 К и последовательного удаления поверхностных слоев) проведены исследования изменения прироста удельного электросопротивления, нормированного на величину средней плотности дислокаций в сердцевине, что позволило выделить характеристику гомогенной структуры с высокой плотностью равномерно распределенных

дислокаций ($N_d = 1,3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$). Для данного структурного состояния с учетом вклада вакансий в прирост электросопротивления определена величина удельного электросопротивления единичной дислокации. Полученное значение $r_d \approx (9 \pm 3) \cdot 10^{-19} \text{ Ом} \cdot \text{см}^3$ находится в хорошем соответствии с литературными данными для ряда ОЦК переходных металлов (Mo, W, Fe, V), для которых $r_d \approx (6-10) \cdot 10^{-19} \text{ Ом} \cdot \text{см}^3$.

Результаты расчетов r_d Nb в рамках модели резонансного рассеяния электронов на дислокациях Каролика — Лухвича, представляющей ясную физическую картину рассеяния электронов вблизи дислокационного ядра, свидетельствуют о $\sim 50\%$ соответствии с экспериментальной величиной. Для теории Брауна расхождение с экспериментом превышает 200%.

Автор признателен Я. Д. Стародубову и В. Д. Нацкику за поддержку работы и ценные замечания.

1. R. A. Brown, *J. Phys.* **F7**, 1283 (1977).
2. B. R. Watts, *J. Phys.* **F18**, 1197 (1988).
3. A. S. Karolik and A. A. Luchvich, *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 873 (1994).
4. L. D. Whitmire and F. R. Brotzen, *AIME Trans.* **239**, 824 (1967).
5. Z. Gierak, J. W. Moron, and A. Lehr, *Phys. Status Solidi* **A77**, 775 (1983).
6. H. V. Shukovsky, R. M. Rose, and J. Wulf, *Acta Met.* **14**, 821 (1966).
7. B. Warlimont-Meier, P. Beardmore, and D. Hill, *Acta Met.* **15**, 1393 (1967).
8. В. К. Аксенов, Н. А. Черняк, О. И. Волчок, А. В. Мац, Я. Д. Стародубов, *ФНТ* **24**, 268 (1998).
9. R. B. Zubeck, T. W. Barbee, Jr., T. H. Giballe, and F. Chilton, *J. Appl. Phys.* **50**, 6423 (1979).
10. T. W. Barbee, Jr., *Phys. Status Solidi* **31**, 535 (1969).
11. M. Kaveh and N. Wiser, *J. Phys.* **F13**, 953 (1983).
12. M. Kaveh and N. Wiser, *J. Phys.* **F16**, 795 (1986).
13. В. К. Аксенов, И. Ф. Борисова, В. И. Соколенко, Я. Д. Стародубов, *ФНТ* **19**, 1077 (1993).
14. В. И. Соколенко, *Дисс. ... канд. физ.-мат. наук*, Харьков (1991).
15. F. Philipp, B. Saile, and K. Urban, in: *Proc. Yamada Conf. V*, Tokyo (1982), p. 261.
16. И. Ф. Борисова, В. И. Соколенко, Я. Д. Стародубов, *ФНТ* **18**, 844 (1992).
17. В. И. Соколенко, Я. Д. Стародубов, Б. А. Мерисов, И. Ф. Борисова, *ФНТ* **16**, 246 (1990).
18. K. Tanaka and T. Watanabe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **11**, 1429 (1972).
19. А. И. Головашкин, А. Л. Шелехов, в кн.: *Труды ФИАН*, т. 151, Наука, Москва (1984), с. 137.
20. G. M. Crabtree, D. H. Dye, D. H. Karim, D. D. Koelling, and J. B. Ketcherson, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 390 (1979).
21. С. В. Вонсовский, Ю. А. Изюмов, Э. З. Курмаев, *Сверхпроводимость переходных металлов, их сплавов и соединений*, Наука, Москва (1977).
22. Ж. Фридель, *Дислокации*, Мир, Москва (1972), с. 326.

On electrical resistivity produced by dislocations in niobium

V. I. Sokolenko

The change of specific electrical resistivity divided by the mean dislocation density in the core ($\Delta\rho/N_d$) of niobium single crystals in different structure states is studied (after rolling deformation

at 20 K and subsequent removal of surface layers). For a homogeneous-type structure of high-density dislocations ($N_d = 13 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) the value of specific electrical resistivity produced by dislocations $r_d \simeq (9 \pm 3) \cdot 10^{-19} \text{ } \Omega \cdot \text{cm}^3$ is defined taking into account the vacancy part in $\Delta\rho$. The r_d of niobium has been calculated quantitatively within the models of electron resonance scattering by dislocations.