

Влияние облучения электронами на поперечную проводимость монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Г.Я. Хаджай, Н.Р. Вовк, Р.В. Вовк

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина

E-mail: gkhadjai@gmail.com

Статья поступила в редакцию 31 августа 2018 г., опубликована онлайн 26 ноября 2018 г.

Показано, что облучение электронами приводит к возникновению в образце макроскопических (сравнимых с толщиной образца) флуктуаций состава, которые сосуществуют с мезоскопическими флуктуациями. Обнаружено также снижение T_c из-за изменения кислородного дефицита и/или появления смещенных атомов Cu, Y и Ba. В нормальном состоянии наблюдается минимум сопротивления, который после облучения смещается в сторону высоких температур.

Ключевые слова: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, поперечное сопротивление, облучение электронами, размытый фазовый переход, флуктуации состава, прыжковая проводимость.

Некогерентный электротранспорт [1,2] наряду с псевдощелевой (ПЩ) [3] и флуктуационной (ФП) [4,5] аномалиями представляют собой одно из необычных явлений, наблюдаемых в сверхпроводящих купратах (ВТСП) в нормальном (несверхпроводящем) состоянии. Согласно современным представлениям [6,7], именно эти явления могут служить ключом к достижению понимания микроскопической природы ВТСП, которая остается невыясненной, несмотря на более чем 30-летнюю историю интенсивных экспериментальных и теоретических исследований.

Важнейшую роль при изучении этих явлений играет применение экстремальных внешних воздействий, таких как высокие давления [8,9], температура [10–12], магнитные поля [13,14] и радиационное облучение [15–17], которые позволяют не только модифицировать ряд структурных и электрофизических параметров ВТСП соединений, но и находить эмпирические пути повышения их электротранспортных и критических характеристик.

Преимуществом применения ионизирующего излучения является возможность контролируемым образом изменять концентрацию и топологию дефектного ансамбля [15–17] сверхпроводящих соединений без изменения их элементного состава. Применение современных методик типа «нанопрезеровки» (FIBID) позволяет также создавать сверхструктуры на наномасштабе [18–20], что может значительно расширить круг решаемых задач и обеспечить ряд дополнительных возможностей для исследований.

Одним из наиболее востребованных для такого рода исследований ВТСП соединений является так называемая система 1–2–3, или $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (где R = Y или другой редкоземельный элемент) [21], что обусловлено сразу несколькими причинами. Во-первых, при оптимальном допировании (ОД, кислородный индекс $7-\delta \sim 6,93$) это соединение имеет достаточно высокую критическую температуру, $T_c > 90$ К, превышающую температуру кипения жидкого азота [22,23]. Во-вторых, электротранспортные и магниторезистивные свойства этого соединения можно относительно легко варьировать путем легирования замещающими элементами [24] или полной замены его составляющих [25,26]. И в-третьих, в состав соединения входит лабильный компонент — кислород, который может легко перемещаться в объеме образца при воздействии температуры [10–12], давления [8,9], длительного отжига [27,28] или радиационной обработки [15–17]. При этом радиационное воздействие является наиболее интересным, поскольку оно позволяет не только контролируемым образом создавать структурные дефекты без изменения состава соединения, но и исследовать специфику процессов массопереноса и механизмы рассеяния носителей заряда на дефектах различной морфологии.

Учитывая сказанное выше, в настоящей работе было исследовано влияние облучения электронами на поперечную проводимость монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ оптимального состава, т.е. с допированием, близким к оптимальному.

Показано, что облучение электронами приводит к возникновению в образце макроскопических (сравнимых с толщиной образца) флуктуаций состава, которые сосуществуют с мезоскопическими флуктуациями. Обнаружено также понижение T_c (рис. 1) из-за изменения кислородного дефицита и/или появления смещенных атомов Cu, Y и Ba. В нормальном состоянии наблюдается минимум поперечного сопротивления при $T \approx 104$ К, который после облучения смещается в сторону высоких температур.

Облучение проводили электронами с энергиями 0,5–2,5 МэВ при $T \approx 10$ К, использованная доза 10^{18} см⁻² вызывает концентрацию дефектов 10^{-4} дпа. Подробно эксперимент описан в [16,17]. Электрическое сопротивление измеряли методом Монгмери.

На рис. 1 показаны зависимости $\rho_c(T)$ для монокристалла $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ оптимального состава до и после облучения быстрыми электронами. Видно, что СП переход после облучения смещается в сторону низких температур (от 92,2 К до 87,1–88,5 К) и становится двухступенчатым, причем ширина каждой ступени (см. вставку) больше ширины перехода в исходном состоянии. В нормальном состоянии кривые $\rho_c(T)$ проходят через слабо выраженный минимум, который после облучения наблюдается при более высоких температурах.

По оценкам, сделанным в [29], электроны с энергией 1 МэВ вызывают в Y–Ba–Cu–O смещения любого из четырех типов атомов — O, Cu, Y и Ba. В [30] показано, что дефекты в виде немагнитных атомов приводят к уменьшению T_c . Поэтому в нашем случае уменьшение T_c может быть вызвано как увеличением кислородного дефицита, так и атомами Cu, Y и Ba, смещенными из своих регулярных позиций налетающими электронами.

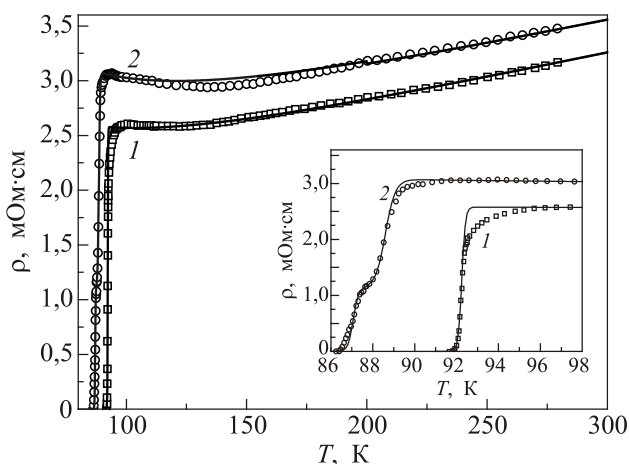


Рис. 1. Влияние облучения электронами на температурные зависимости поперечного сопротивления $\rho_c(T)$, монокристалла $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ оптимального состава: 1 — до, 2 — после облучения. Символы — эксперимент, линии — аппроксимации в соответствии с (1). На вставке: СП переходы.

Наилучшее описание полученных экспериментальных кривых $\rho_c(T)$ достигается при использовании соотношения

$$\rho = \frac{BT \exp(T_0/T)^{1/2}}{\sum_i \left(1 + a_i \exp\left(\frac{T_{ci} - T}{w_i}\right)\right)}. \quad (1)$$

В (1) числитель соответствует модели термоактивированной проводимости совокупности малых металлических гранул в диэлектрической матрице [31]. B и T_0 — константы, характеризующие этот процесс. Знаменатель представляет собой феноменологическую «функцию включения» для размытых фазовых переходов [32]. T_{ci} — температуры отдельных сверхпроводящих переходов; w_i — параметры, характеризующие ширины переходов; a_i — весовые множители. Значения параметров (1), обеспечивающие наилучшее согласие с экспериментом, приведены в табл. 1.

Таблица 1. Параметры аппроксимации зависимостей $\rho_c(T)$ соотношением (1)

Параметр	До облучения	После облучения
B , мОм см/К	$3,35 \cdot 10^{-3}$	$3,33 \cdot 10^{-3}$
T_0 , К	415	484
T_{c1} , К	92,252	88,6
T_{c2} , К	—	87,0675
w_1 , К	0,0828	0,24
w_2 , К	—	0,124
a_1	1	0,638
a_2	—	0,369

На вставке к рис. 1 и из табл. 1 видно, что до облучения есть только один СП переход ($i = 1$), но после облучения узкий ($\Delta T_c \approx 0,3$ К), сверхпроводящий переход исходного образца значительно расширился и приобрел характерную двухступенчатую форму ($i = 1, 2$), обусловленную наличием по меньшей мере двух сверхпроводящих областей, каждая из которых имеет свою T_c , что, в свою очередь, может свидетельствовать о различном содержании кислорода в них. Ширины СП переходов также увеличились ($\Delta T_{c1} \approx 0,8$ К и $\Delta T_{c2} \approx 0,4$ К).

Согласно [32], ширина фазового перехода, в частности сверхпроводящего перехода, определяется существованием в образце областей с несколько различными критическими температурами. Наличие этих областей связано с флуктуациями состава образца. Это могут быть флуктуации концентрации дефектов, в первую очередь, кислородных вакансий. Для случая сегнетоэлектрических фазовых переходов такие области называют областями Кенцига [32,33], размер которых оценивается как $l \sim 10^{-5} - 10^{-6}$ см ($a \ll l \ll L$, a — постоянная кристаллической решетки, L — размер образца). Можно предположить тогда, что ширина СП перехода в исходном состоянии определяется мезоскопическими флук-

туациями концентрации дефектов — кислородных вакансий. Появление после облучения двухступенчатого СП перехода свидетельствует о возникновении по крайней мере двух макроскопических областей с разными, более низкими, чем в исходном состоянии, температурами перехода. Ясно, что каждая из этих областей обладает своей шириной перехода (см. табл. 1), порожденной мезоскопическими флуктуациями концентрации дефектов в этой области.

Таким образом, облучение электронами привело к возникновению макроскопических флуктуаций концентрации дефектов наряду с уже имеющимися мезоскопическими флуктуациями, а также к понижению T_c как за счет увеличения кислородного дефицита, так и за счет атомов Cu, Y и Ba, смещенных из своих регулярных позиций.

Отметим, что обращение сопротивления в нуль обусловлено образованием единого сверхпроводящего кластера, простирающегося от одного потенциального контакта до другого и шунтирующего все иные как нормальные, так и сверхпроводящие области, если таковые имеются.

В нормальном состоянии поперечное сопротивление описывается универсальным «законом 1/2» (см. числитель в (1)), который в [31] трактуется как результат туннельных переходов носителей заряда между проводящими гранулами в диэлектрической среде, если размер гранул изменяется в широких пределах. В соответствии с [31] T_0 — температурный параметр, величина которого сильно зависит от объемного содержания x , проводящей фазы и стремится к нулю при $x \rightarrow x_c$ — точке перехода диэлектрик → металл. Тогда увеличение T_0 из-за облучения (см. табл. 1) обусловлено уменьшением x . Последнее вызывает также увеличение сопротивления после облучения. Отметим, что числитель в (1) проходит минимум при $T_{\min} = T_0/4$, т.е. облучение приводит к увеличению T_{\min} вместе с T_0 .

Возникшие после облучения макроскопические неоднородности содержат подобные проводящие гранулы, и их подчиняется тому же «закону 1/2», что и сопротивление всего образца. Поэтому температурный параметр T_0 после облучения является эффективным, характеризующим весь образец.

Аналогичная температурная зависимость сопротивления обнаружена в [34] для аморфного сплава Zr–Rh в интервале 4,8–298 К и связывается авторами с возможной пространственной неоднородностью этого сплава. В [35], ссылаясь на экспериментальные данные о расщеплении $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ на металлические области с большими δ и диэлектрические области с малыми δ (размер областей $\sim 10^{-5}$ см), обосновывают энергетическую выгоду разбиения ВТСП на домены с высокой и низкой проводимостями. Разумеется, процесс разбиения контролируется диффузией соответствующих ионов, которая даже вблизи комнатных температур достаточ-

но низкая. Тем не менее однородное состояние ВТСП с дефектами является, по данным [35], нестабильным. Можно полагать также, что анизотропия ВТСП-купратов приводит к анизотропии доменной структуры.

Тот факт, что температурная зависимость поперечного сопротивления в нормальном состоянии является прыжковой и описывается «законом 1/2», свидетельствует о наличии в образце пространственных неоднородностей, приводящих к сильным изменениям сопротивления. Поскольку облучение вызывает только изменение (рост) параметра T_0 , естественно предположить, что речь идет о тех же неоднородностях (мезоскопического масштаба), которые вызывают уширение сверхпроводящих переходов как до, так и после облучения (см. табл. 1).

Проведенные исследования позволяют утверждать, что:

1) все особенности температурного хода поперечного сопротивления как до, так и после облучения электронами обусловлены пространственно-неоднородной структурой образца;

2) до облучения неоднородности имели мезоскопический масштаб и определяли ширину СП перехода, а также приводили к температурной зависимости поперечного сопротивления, описываемой «законом 1/2»;

3) облучение электронами привело к возникновению, наряду с мезоскопическими, макроскопических неоднородностей, которые вызвали двухступенчатый СП переход, сдвинутый в область более низких температур и ступени которого шире, чем в исходном переходе.

1. P.W. Anderson and Z. Zou, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 132 (1988).
2. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, and O.V. Dobrovolskiy, *Appl. Phys. A* **117**, 997 (2014).
3. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, and O.V. Dobrovolskiy, *Solid State Commun.* **204**, 64 (2015).
4. T.A. Friedmann, J.P. Rice, J. Giapintzakis, and D.M. Ginsberg, *Phys. Rev. B* **39**, 4258 (1989).
5. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, and Z.F. Nazyrov, *Current Appl. Phys.* **14**, 1779 (2014).
6. J. Ashkenazi, *J. Supercond. Nov. Magn.* **24**, 1281 (2011).
7. P.B. Вовк, А.Л. Соловьев, *ФНТ* **44**, 111 (2018) [*Low Temp. Phys.* **44**, 89 (2018)].
8. A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, R.V. Vovk, O.V. Dobrovolskiy, Z.F. Nazyrov, S.N. Kamchatnaya, and D.M. Sergeev, *Physica B* **493**, 58 (2016).
9. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica B* **422**, 33 (2013).
10. J.D. Jorgensen, P. Shiyon, P. Lightfoot, H. Shi, A.P. Paulikas, and B.M.W. Veal, *Physica C* **167**, 571 (1990).
11. R.V. Vovk, Y.I. Boiko, V.V. Bogdanov, S.N. Kamchatnaya, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica C* **536**, 26 (2017).
12. G.Y. Khadzhai, R.V. Vovk, N.R. Vovk, S.N. Kamchatnaya, and O.V. Dobrovolskiy, *Physica C* **545**, 14 (2018).

13. A.B. Bondarenko, A.A. Prodan, M.A. Obolenskiy, P.B. Vovk, T.P. Arouri, *ФНТ* **27**, 463 (2001) [*Low Temp. Phys.* **27**, 339 (2001)].
14. R.V. Vovk, Z.F. Nazayrov, M.A. Obolenskii, I.L. Goulatis, A. Chronos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Alloys and Compd.* **509**, 4553 (2011).
15. U. Divakar, G.L. Bhalla, and R. Kumar, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **171**, 309 (2000).
16. 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).
17. H.A. Azarenkov, B.H. Воеводин, Р.В. Вовк, Г.Я. Хаджай, *ФНТ* **44**, 1100 (2018) [*Low Temp. Phys.* **44**, 860 (2018)].
18. O.V. Dobrovolskiy, M. Huth, V.A. Shklovskij, and R.V. Vovk, *Sci. Rep.* **7**, 13740 (2017).
19. O.V. Dobrovolskiy, R. Sachser, M. Huth, V.A. Shklovskij, R.V. Vovk, V.M. Bevez, and M. Tsindlekht, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 152601 (2018).
20. O.V. Dobrovolskiy, R. Sachser, V.M. Bevez, A. Lara, F.G. Aliev, V.A. Shklovskij, A.I. Bezuglyj, R.V. Vovk, and M. Huth, *Physica Status Solidi — Rapid Research Letters* **12**, 1800223 (2018).
21. *Physical Properties High-Temperature Superconductors I*, D.M. Ginsberg (ed.), World Scientific, Singapore (1989).
22. M.K. Wu, J.R. Ashburn, C.J. Torng, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Y.Q. Wang, and C.W. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 908 (1987).
23. 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).
24. D.A. Lotnyk, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, J. Kováč, M. Kaňuchová, M. Šefciková, V. Antal, P. Diko, A. Feher, and A. Chronos, *J. Low Temp. Phys.* **161**, 387 (2010).
25. M. Akhavan, *Physica B* **321**, 265 (2002).
26. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, Z.F. Nazayrov, and A. Chronos, *Physica C* **516**, 58 (2015).
27. B. Martinez, F. Sandiumenge, S. Pinol, N. Vilalta, J. Fontcuberta, and X. Obradors, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 772 (1995).
28. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, and Z.F. Nazayrov, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron* **25**, 5226 (2014).
29. J. Giapintzakis, W.C. Lee, J.P. Rice, D.M. Ginsberg, I.M. Robertson, R. Wheeler, M.A. Kirk, and M.O. Ruault, *Phys. Rev. B* **45**, 10677 (1992).
30. A.A. Abrikosov and L.P. Gor'kov, *J. Exp. Theor. Phys.* **39**, 1781 (1960).
31. Е.З. Мейлихов, *ЖЭТФ* **115**, 1484 (1999).
32. Б.Н. Ролов, В.Э. Юркевич, *Физика размытых фазовых переходов*, изд-во РГУ, Ростов-на-Дону (1983).
33. W. Känzig, *Ferroelectrics and Antiferroelectrics*, Academic Press, (1957), p. 197 [Кенциг, *Сегнетоэлектрики и анти-сегнетоэлектрики*, ИЛ, Москва (1960)].
34. А.Ф. Прекул, В.А. Рассохин, С.В. Ярцев, *Письма в ЖЭТФ* **38**, 340 (1983).
35. М.И. Иванов, В.М. Локтев, *ФНТ* **25**, 1325 (1999) [*Low Temp. Phys.* **25**, 996 (1999)].

Вплив опромінення електронами на поперечну провідність монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Г.Я. Хаджай, Н.Р. Вовк, Р.В. Вовк

Показано, що опромінення електронами призводить до виникнення в зразку макроскопічних (порівнянних з товщиною зразка) флуктуацій складу, які співіснують з мезоскопічними флуктуаціями. Виявлено також зниження T_c через зміни кисневого дефіциту і / або появи зміщених атомів Cu, Y та Ba. У нормальному стані спостерігається мінімум опору, який після опромінення зміщується в бік високих температур.

Ключові слова: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, поперечний опір, опромінення електронами, розмитий фазовий перехід, флуктуації складу, стрибкова провідність.

Effect of electron irradiation on the transverse conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystal

G.Ya. Khadzhai, N.R. Vovk, and R.V. Vovk

It is shown that the irradiation with electrons leads to the appearance in the sample of macroscopic (comparable with the thickness of the sample) fluctuations in the composition, which coexist with mesoscopic fluctuations. There was also a decrease in T_c due to a change in the oxygen deficit and / or the appearance of displaced Cu, Y, and Ba atoms. In the normal state, a minimum of resistance is observed, which shifts toward high temperatures after irradiation.

Keywords: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, transverse resistivity, electron irradiation, diffuse phase transition, composition fluctuations, hopping conductivity.