

01;05.4

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ОТЖИГА ТОЧЕЧНЫХ ЦЕНТРОВ ПИННИНГА МАГНИТНОГО ПОТОКА В ОБЛУЧЕННОМ НЕЙТРОНАМИ МОНОКРИСТАЛЛЕ $YBaCuO$

© Д.В.Куликов, Р.А.Сулис, Ю.В.Трушин,
В.С.Харламов, Д.Циганков

Предложена модель эволюции точечных дефектов в $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, образованных при нейтронном облучении. Рассчитаны концентрации точечных дефектов, созданных нейтронным облучением. Показано, что при отжиге облученного образца при $30^\circ C$ (в канале реактора) в нем могут образовываться мелкие кластеры точечных дефектов в концентрациях, достаточных для эффективного пиннинга магнитного потока. В рамках этой модели удается объяснить анизотропию уменьшения плотности критического тока при отжиге облученных образцов и получить, что критический ток при магнитном поле, параллельном оси ab пропорционален концентрации центров пиннинга.

Введение

Экспериментальные исследования последних лет, проведенные в различных научных центрах ^[1-6], показали, что в облученных потоками энергетических частиц (нейтроны, ионы, γ -кванты) ВТСП-материалах, например на основе Y или Ba , наблюдается анизотропное повышение критического тока в зависимости от того, как направлено магнитное поле: параллельно плоскости ab или оси c . Отжиг таких облученных образцов при различных температурах приводит к постепенному снижению критического тока. Причиной указанных изменений критических токов является формирование в облученных ВТСП-материалах центров пиннинга магнитного потока ^[1-10]. Под воздействием жестких излучений в материалах генерируются радиационные дефекты различной природы и размеров (каскадные области, отдельные точечные дефекты, их мелкие кластеры) ^[11-13], которые и могут служить центрами пиннинга. Следовательно, эволюция и особенности радиационных дефектов должны влиять на изменения величин критических токов в облученных ВТСП-материалах.

Основные экспериментальные исследования радиационных повреждений в ВТСП-материалах относятся к изучению дефектов размерами больше 1 нм , обнаруживаемых с помощью просвечивающей электронной микроскопии

(ПЭМ). К таким дефектам относятся области сильного разупорядочения структуры облучаемого материала — центральные зоны каскадных областей. Однако существуют и периферийные зоны каскадов, где также генерируются точечные радиационные дефекты (вакансии и межузельные атомы) [14–16], причем эти зоны не видны в ПЭМ. Кроме того, считается (см. [5,6]), что если магнитное поле приложено параллельно оси с материала, за пиннинг ответственны крупные (более 1 нм) дефекты, наблюдаемые в ПЭМ. При магнитном поле, лежащем в плоскости ab , пиннинг обусловлен наличием точечных дефектов.

В работе [6] приведены результаты экспериментальных исследований критических токов в монокристаллах $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, облученных дозой нейтронов $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ при различных режимах отжига (при 30°C — 4 сут, изохронный отжиг (8 ч) при 100, 200, 300°C). Авторами [6] наблюдается анизотропия критических токов j_c . В частности, показано, что в случае магнитного поля в плоскости ab с ростом температуры отжига величина j_c снижается, а отжиг при 300°C приводит к возвращению j_c к значению тока для необлученного образца (см. рис. 3 в [6]).

Исходя из результатов работы [6] и известных литературных данных, в настоящей заметке рассмотрена модель эволюции точечных дефектов в $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, образованных при нейтронном облучении. Рассчитаны концентрации точечных дефектов, созданных нейтронным облучением, используемым в [6]. Показано, что при отжиге облученного образца при 30°C (в канале реактора) в нем могут образовываться мелкие кластеры точечных дефектов в концентрациях, достаточных для эффективного пиннинга магнитного потока. В рамках этой модели удастся объяснить анизотропию уменьшения плотности критического тока при отжиге облученных образцов и получить, что критический ток при магнитном поле, параллельном оси ab , пропорционален концентрации центров пиннинга.

Физическая модель

Рассмотрим процессы образования и отжига дефектов в сверхпроводнике $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, подвергнутом облучению нейтронами.

Нейтроны, смещая атомы материала, создают каскады атомных столкновений. Поскольку кислород в $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ имеет наименьшую энергию смещения [17–19], то в таких каскадах преобладает доля точечных радиационных дефектов в кислородной подсистеме.

Для оценки созданных нейтронами концентраций точечных дефектов, как и в работах [3-5], использовалась программа TRIM [20]. При этом удалось получить как радиальные, так и по глубине распределения дефектов в различных подсистемах материала. Наибольшее количество дефектов производят каскады движущихся атомов, созданные атомами Y, Ba и Cu, выступающими в качестве первично выбитых атомов (ПВА). Кислород же как ПВА генерирует каскадные области с малой дефектностью. Для последующих модельных расчетов был выбран каскад, инициированный атомом Ba, который в свою очередь был смещен нейтроном с энергией 2 МэВ.¹

Рассчитанные баллистические распределения вакансий и межузельных атомов в кислородной подсистеме, созданные Ba, взяты как начальные распределения для исследования эволюции точечных дефектов в процессе отжига облученного монокристалла $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ при различных температурах по следующей модели.

В процессе отжига $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ кислородные межузлия и вакансии диффундируют преимущественно в плоскости ab , поскольку

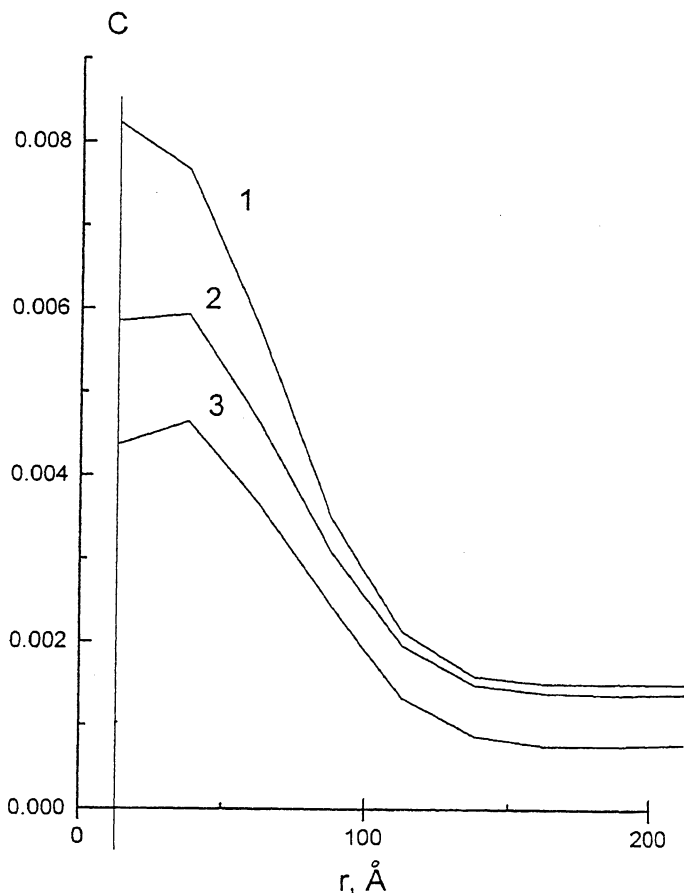
— эти дефекты имеют наибольшие коэффициенты диффузии и наименьшие энергии миграции среди компонент материала [21-25];

— их диффузия анизотропна и предпочтительна в плоскости ab [21,22]. Кислородные межузельные атомы, перемещаясь по кристаллу, могут образовывать би- и тримежузлия. Кроме того, возможно формирование мелких кластеров кислорода и меди [26].

Рассмотрим системы следующих формирующихся дефектов:

- кислородные межузлия (i), вакансии (v),
- би- и тримежузлия ($2i, 3i$),
- межузлия меди (c),
- кластеры меди с одним или двумя кислородными межузлиями ($ci, c2i$). При описании отжига системы таких дефектов учитываются следующие процессы:
 - диффузия дефектов (подвижными считаются кислородные межузлия вакансии с энергиями миграции $\epsilon_i^m = 0.8 \text{ эВ}$ [25] и $\epsilon_v^m = 1.2 \text{ эВ}$ [24]);
 - уход подвижных дефектов на центральные зоны каскадных областей, рассматриваемых как стоки;
 - рекомбинация разноименных дефектов в кислородной подсистеме;

¹ Реакторный спектр нейтронов, использованных в [6], имеет максимум при энергии 2 МэВ (см. [3]).



Зависимость суммарной относительной концентрации $C(r, t)$ комплексов точечных дефектов $j = 2i, 3i, ci, c2i$ от расстояния r от центра каскадной области после различных этапов отжига: 1 — 30°C, 2 — 100°C, 3 — 200°C¹ ($r < 12 \text{ \AA}$ — центральная зона каскадной области).

— объединение межузельных атомов в кислородные и медно-кислородные кластеры;

— диссоциация кластеров (энергиями связи: для кислородных кластеров $\epsilon_j^b = 1.5 \text{ эВ}$ ($j = 2i, 3i$) [25], для медно-кислородных $\epsilon_j^b = 1.9 \text{ эВ}$ ($j = ci, c2i$) (ср. [27])²).

² Последняя энергия выбрана таким образом, чтобы эти дефекты ($j = ci, c2i$) полностью диссоциировали при температуре 300°C, когда критический ток в эксперименте [6] возвращается к своей исходной величине.

Для теоретического рассмотрения эволюции точечных дефектов записывается система балансных кинетических уравнений для относительных концентраций $C_j(r, t)$, учитывающих вышеперечисленные процессы, где r — расстояние от центральной зоны каскадной области, t — время. Такая система решается численно с помощью пакета программ GEAR [25,28]. В результате расчетов получены пространственные распределения точечных дефектов $C_j(r, t)$ в периферийной зоне каскадной области после различных этапов отжига, эквивалентных рассматриваемым в [6]. На рисунке представлены суммарные распределения (относительные концентрации) $C(r, t) = \sum_j C_j(r, t)$ комплексов точечных дефектов $j = 2i, 3i, ci, c2i$ (центр каскадной области в точке $r = 0$). Видно, что основная часть дефектов содержится в узкой области ($\sim 100\text{Å}$) вблизи центра каскада. Абсолютные суммарные значения концентраций кластеров имеют следующие значения: в межкаскадной области ($r > 100\text{Å}$) $C_a \sim 10^{18} - 10^{19} \text{ см}^{-3}$, вблизи центра каскадной области ($r < 100\text{Å}$) $C_a \sim 1 - 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Эти значения совпадают по порядку величины с экспериментальными оценками концентраций точечных дефектов, достаточных для эффективного пиннинга магнитного потока (ср. концентрации $10^{18} - 10^{19} \text{ см}^{-3}$ в [1,10]), что проявляется в увеличении критического тока [29,30].

Обсуждение результатов

Проанализируем полученные расчетные результаты и проведем сравнение с экспериментальными данными [6] для критического тока. При низкотемпературном отжиге (30°C , рис. 3 в [6]) после облучения подвижны только кислородные межузельные атомы, которые, мигрируя по кристаллу, рекомбинируют с вакансиями и образуют устойчивые комплексы $2i, 3i, ci, c2i$, приводящие к увеличению критического тока при магнитном поле, параллельном плоскости ab (см. рис. 3 [6]). В процессе отжига при 100°C становятся подвижными кислородные вакансии, которые, рекомбинируя с имеющимися комплексами, понижают их концентрацию, что должно вызывать уменьшение критического тока. В результате отношение рассчитанных средних концентраций $\langle C \rangle$ после отжига при 30 и 100°C равно

$$\frac{\langle C(30^\circ\text{C}) \rangle}{\langle C(100^\circ\text{C}) \rangle} = 1.16. \quad (1)$$

А отношение же экспериментальных значений критических токов при магнитном поле $H = 0.5$ Тл и параллельном плоскости ab после отжига при 30 и 100°C по данным, приведенным на рис. 3 в [6], получается

$$\frac{J_c(30^\circ\text{C})}{J_c(100^\circ\text{C})} \approx 1.17. \quad (2)$$

Сравнение отношений (1) и (2) показывает, что критический ток пропорционален средней суммарной концентрации центров пиннинга, что согласуется с имеющимися литературными данными [29,30].

Далее в процессе отжига при 200°C диссоциируют комплексы кислородных межузельных атомов (энергия связи $\epsilon_j^b = 1.5\text{эВ}$ ($j = 2i, 3i$)). Тем самым еще более понижается количество центров пиннинга, что ведет к дальнейшему уменьшению критического тока. При этом отношения рассчитанных нами средних суммарных концентраций и экспериментально измеренных в [6] критических токов (при магнитном поле, равном 0.5 Тл) также практически совпадают:

$$\frac{\langle C(100^\circ\text{C}) \rangle}{\langle C(200^\circ\text{C}) \rangle} = 1.92, \quad \frac{J_c(100^\circ\text{C})}{J_c(200^\circ\text{C})} \approx 2. \quad (3)$$

Отжиг при 300°C приводит к полной диссоциации медно-кислородных комплексов, энергия связи которых была выбрана соответствующим образом. То есть все внесенные облучением центры пиннинга исчезли в процессе отжига, что и наблюдается в эксперименте [6], где критический ток после отжига при 300°C возвратился к своему первоначальному значению.

В ходе расчетов варьировался радиус захвата i_k^i дефектами $k = i, 2i$ кислородных межузлий i . Первоначально радиус r_k^i был выбран равным кратчайшему межатомному расстоянию в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, ($2A$ [31]). Однако в процессе расчетов было получено, что наилучшее согласие теоретических и экспериментальных данных получается, если $r_k^i = a_{ab}$, где $a_{ab} \approx 4\text{Å}$ — постоянная решетки в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [31].

Таким образом, в настоящей работе предложена физическая модель эволюции точечных дефектов в периферийных зонах каскадных областей в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, образованных в результате нейтронного облучения. Мелкие кластеры этих дефектов рассматриваются как центры пиннинга магнитного потока при магнитном поле, параллельном плоскости ab . Показано, что в процессе облучения и последующего

отжига могут образовываться кластеры следующих видов: би- и тримезулия кислорода и комплексы медь-кислород, в концентрациях, достаточных для эффективного пиннинга магнитного потока. Продемонстрировано, что в процессе отжига при повышенных температурах (100, 200 и 300°C) возможна многостадийная диссоциация сформировавшихся комплексов, имеющих различную природу, а соответственно и разные энергии связи. Это приводит к поэтапному снижению критического тока при различных температурах отжига для магнитного поля, параллельного плоскости *ab*. Из сравнения имеющихся экспериментальных данных [6] и результатов наших расчетов получено, что критический ток при магнитном поле, параллельном плоскости *ab*, пропорционален средней суммарной концентрации точечных центров пиннинга.

Авторы благодарят профессора Х. Вебера и доктора Ф.М. Заурцопфа из Атомного Института Австрийских Университетов (Вена) за полезные обсуждения.

Работа выполнена при поддержке Российской СП-программы (проект № 94048) и гранта в области фундаментального естествознания (СПБГУ) № 95-0-7.-54.

Список литературы

- [1] *Giapinzakis J.R., Lee W.C., Rice J.P., Ginsberg D.M., Robertson I.M., Wheeler Kirk M.A., Ruault M.-O.* // *Phys. Rev. B.* 1992. V. 45. N 18. P. 10677-10683.
- [2] *Legris A., Rullier-Albenque F., Lejay P.* // *Phys. Rev. B.* 1993. V.48. N 14. P. 10634-10641.
- [3] *Sauerzopf F.M., Wiesinger H.P., Kriitscha W., Weber H. W., Frischherz M. C., Gerstenberg H.* // *Cryogenics.* 1993. V. 33. N 1. P. 8-13.
- [4] *Welp U., Kwork W.K., Crabtree G.W., Vandervoort K.G., Kiu J.Z.* // *Phys. Rev. Lett.* 1989. V. 62. P. 1908.
- [5] *Frischherz M.C., Kirk M.A., Farmer J., Greenwood L.P., Weber H.W.* // *Physica C.* 1994. V. 232. P.309-n 315.
- [6] *Vleck B.M., Viswanathan H.K., Frischherz M.C, Flesher S., Vandervoort K.G., Downey J., Welp U., Kirk M.A., Crabtree G.W.* // *Phys. Rev. B.* 1993. V. 48. N 6. P. 4067-4073.
- [7] *Huang Z.J., Xue Y.Y., Kulik J., Sun Y.Y., Hor P.H.* // *Physica C.* 1991. V. 174. P. 253.
- [8] *Sauerzopf F.M., Wiesinger H.P., Weber H.W., Crabtree G.W.* // *Phys. Rev. B.* 1995. V. 51. N 9. P. 6002-6011.
- [9] *Bourgault P., Bouffard S., Toulemonde M., Groult P., Provost J., Studer F., Nguyen N., Ravean B.* // *Phys. Rev. B.* 1989. V. 39. N 10. P. 6549-6554.
- [10] *Chudnovsky F.M.* // *Phys. Rev. Lett.* 1990. V. 65. N 24. P. 3060.
- [11] *High-T_c Superconductors* / Ed H.W. Weber. 1988. Plenum Publishing Corporation.
- [12] *Thompson M.W.* *Defects and Radiation Damage in Metals.* Cambridge: Univ. Press. 1969.
- [13] *Lehmann C.* *Interaction of Radiation with Solids and Elementary Defect Production.* North-Holland Publishing Comp. Amsterdam, NY, Oxford, 1977.

- [14] Суворов А.Л. Фотоионная микроскопия радиационных дефектов в металлах. М.: Энергоатомиздат, 1982. 168 с.
- [15] Курсанов В.В., Суворов А.Л., Трушин Ю.В. Процессы радиационного дефектообразования в металлах. М.: Энергоатомиздат, 1985. 272 с.
- [16] Trushin Yu. V. Theory of Radiation Processes in Metal Solid Solutions. Nova Science Publishers Inc. NY. 1996. 405 p.
- [17] Kirsanov V.V., Musin N.N., Roskin D.G., Shamarina H.J. // Cryogenics. 1993.V. 33. N 5. P. 477.
- [18] Kirsanov V.V., Musin N.N., Shamarina H.J. // Phys. Lett. 1992. V. 171. P. 223-233.
- [19] Ciu F.Z., Xie J., Li H.D. // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. N 17. P. 11182.
- [20] Biersack J.P., Haggmark L.G. // Nucl. Instr. Meth. 1980. V. 174. P. 257.
- [21] Routbort J.L., Rothman S.J., Nam Chen, Mundy J.N., Baker J.E. // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. N 7. P. 5489-5497.
- [22] Rothman S.J., Routbort J.L., Welp U., Baker J.E. // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. N 5. P. 2326.
- [23] Tu K.N., Yeh N.C., Park S.I., Tsuei C.C. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. N 1. P. 304-312.
- [24] Xie X.M., Chen T.G., Wu Z.L., Phys. Rev. B. 1989. V. 40. N 7. P. 4549.
- [25] Kulikov D.V., Suris R.A., Trushin Yu.V. // Supercond. Sci. Technol. 1995. V. 8. p. 303-311.
- [26] Kirk M.A., Baker M.C., Liu J.Z., Lam D.J., Weber H.W. High-Tc Superconductors / Ed H.W. Weber. Plenum Publishing Corporation. 1988. P. 59.
- [27] Молекулярные постоянные неорганических соединений: Справочник / Ред. К.С. Краснов. Л.: Химия, 1979.
- [28] Hindmarch A.C., GEAR: ordinary differential equation system solver. Lawrence Livermore Laboratory. Report UCID-3000. Rev. 3, December, 1974.
- [29] Brandt H. // J. of Low Temp. Phys. 1983. V. 53. N 1/2. P. 41.
- [30] Cambell A.M., Evets J.E., Critical Currents in Superconductors. Taylor and Francis Ltd. London. 1972. 331 p.
- [31] Baetzold R.C. // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. N . P. 56.

Физико-технический
институт им. А.Ф. Иоффе РАН
С.-Петербург

Поступило в Редакцию
26 сентября 1996 г.