

Можно предположить, что при облучении γ -квантами Co^{60} формируются радиационные дефекты, способствующие ионизации атомов кислорода по схеме $\text{O}^{2-} \rightarrow \text{O}^0$. Данное обстоятельство содействует более однородному распределению ионов кислорода в анионной подрешетке плотных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ образцов, за счет интенсификации процессов химической диффузии кислорода.

Заключение. В результате проведенных исследований, установлены две стадии поглощения кислорода плотным купратом иттрия-бария, связанные с изменением их кислородной нестехиометрии δ , которая управляемо регулируется параметрами состояния (температура T и парциальное давление кислорода $p\text{O}_2$). Предполагается, что скорость процессов насыщения кислородом $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на первой стадии лимитируется диффузией кислорода в отсутствие упорядочения анионов в линейных цепочках CuO_x , тогда как на второй стадии – лимитируется релаксацией различных упругих напряжений.

Установлено, что созданные в процессе облучения γ -квантами дефекты способствуют ускорению процессов насыщения кислородом кристаллов, плотных образцов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ и упорядочению анионов в цепочечных слоях CuO_x .

Работа выполнена в рамках проекта БРФФИ № Ф24В-005, проекта № 28-2024, а также в рамках приказа 289 / 2024 п. 17 Программы сотрудничества Беларусь – ОИЯИ.

Литература

1. Термостимулированная десорбция кислорода в сверхпроводящей керамике Y-Ba-Cu-O / А. Г. Мержанов [и др.] // Письма в ЖТФ. – 1989. – Т. 15, № 11. – С. 4–7.
2. Oxygen bonding in high-temperature superconductors / J.-P. Locquet [et al.] // Europhysics Letters. – 2007. – Vol. 7, № 5. – P. 469–472.
3. Influence of neutron and gamma radiation on YBCO and GaBCO/Ag superconducting bulks / V. Bartunek [et al.] // Ceramics International. – 2020. – Vol. 46, № 10. – P. 15400–15407.
4. Kalanda, N. A. Electrical conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals under conditions of anionic ordering in $\text{Cu}(1)\text{O}_{1-\delta}$ layers / N. A. Kalanda // Modern Electronic Materials. – 2020. – Vol. 6, № 2. – P. 53–57.

**Н. А. Каланда¹, М. В. Ярмолич¹, А. В. Петров¹, А. В. Семченко², А. Г. Юденков³,
А. Н. Петлицкий³, А. С. Дорошкевич⁴, Р. Ш. Исаев⁴, Ю. Е. Горшкова⁴**

¹НПЦ НАН Беларуси по материаловедению,
г. Минск, Республика Беларусь,

²Гомельский государственный университет имени Франциска Скорины,
г. Гомель, Республика Беларусь,

³ГЦ «Белмикрoанализ» НТЦ ОАО «Интеграл»,
г. Минск, Республика Беларусь,

⁴Объединенный институт ядерных исследований,
г. Дубна, Российская Федерация

ВЛИЯНИЕ ИМПЛАНТАЦИИ ИОНОВ ЛЕГКИХ ГАЗОВ НА ПРОЦЕССЫ ЭЛЕКТРОПЕРЕНОСА В ПЛЕНКАХ ФЕРРОМОЛИБДАТА СТРОНЦИЯ

Введение. В настоящее время интенсивно изучается влияние облучения на свойства магнитных материалов [1]. Основной объём исследований выполнен при облучении, главным образом, ионами высоких энергий, протонами и реакторными нейтронами. Встречаются лишь отдельные работы по имплантации однозарядных ионов легких газов (He^+ , с флюенсом $10^{12} \div 10^{16}$ частиц/см²) [2]. Разнообразие материалов, использующихся

в экспериментах по облучению (тонкие пленки, монокристаллы, керамика), полученных по различным технологиям, приводит к тому, что отдельные экспериментальные результаты носят противоречивый характер.

В подавляющем большинстве работ в этой области преимущественно рассматривались вопросы образования смещений под действием облучения и их влияние на структуру и свойства магнитных полуметаллических пленок $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ (SFMO) с упорядоченной структурой двойного перовскита. Данные объекты являются перспективными материалами для спинтронных устройств ввиду своих уникальных свойств – химической стабильности в восстановительной атмосфере, больших значений температуры Кюри (~ 420 K), высокой степени спиновой поляризации электронов проводимости, достигающей ~ 100 % при достаточно низких значениях магнитных полей ($B < 0,5$ Тл), и в условиях обязательного сверхструктурного упорядочения катионов железа и молибдена [3].

Физико-химические свойства SFMO в значительной степени зависят от стехиометрии по кислороду, влияющей на степень сверхструктурного упорядочения катионов железа и молибдена, орбитальные, зарядовые и спиновые степени свободы и, соответственно, на электронный обмен между Fe^{3+} и Mo^{5+} .

В таком сложном соединении, как SFMO, существенную роль играют радиационно стимулированные процессы. Скорость изменения концентрации кислородных дефектов и соответственно антиструктурных дефектов Fe_{Mo} и Mo_{Fe} в кристаллической решетке SFMO под воздействием облучения существенно увеличиваются. Поэтому, комплексное исследование влияния сравнительно небольших доз облучения ионами легких газов ($E = 2,5$ МэВ) на пленки $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ при анализе данных по электропроводности и структурным характеристикам, позволяет установить корреляцию дозы облучения, изменения концентрации и перераспределения кислородных дефектов, а также антиструктурных дефектов. Таким образом, появляется возможность оптимизации условий облучения для улучшения гальваномагнитных свойств магнетика.

Методика эксперимента. Формирование пленок SFMO толщиной ~ 1 мкм осуществлялось ионно-лучевым методом на вакуумной установке Z-400 фирмы «Leybold-Heraeus», оснащенной безмасляной системой откачки на базе турбомолекулярного насоса.

Фазовый состав пленок определялся методом XRD с использованием для анализа базы данных «ICSD-PDF2» (Release 2000), программ «POWDERCELL» и «FULLPROF».

Степень сверхструктурного упорядочения P катионов железа и молибдена определялась с использованием уравнения

$$P = (2 \cdot \text{SOF} - 1) 100 \%,$$

где SOF – фактор заполнения места. Эту информацию мы получили путем моделирования спектра XRD SFMO с использованием программы «POWDERCELL».

Облучение образцов ионами He^+ с энергией 2,5 МэВ и флюенсами в диапазоне $0,5 \cdot 10^{15} - 122 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ проводилось в научном центре «Helmholtz – Zentrum Dresden – Rossendorf» (Дрезден, ФРГ).

Измерения электрических характеристик проводились по 4-х электродной методике в режиме заданного постоянного тока с коммутацией направлений электрического и магнитного полей. Температурные зависимости магнитосопротивления (MR) пленок SFMO изучались на универсальной установке фирмы «Cryogenic Limited» в диапазоне 4,2–300 K в постоянном магнитном поле до 8 Тл.

Результаты и их обсуждение. Следует отметить, что без облучения ионами легкого газа (He^+) на основании данных рентгеноструктурного анализа и по измерению удельного электросопротивления образцов в низкотемпературной области 300–4,2 K установлено, что в результате проведенных отжигов при температурах выше 770 K вплоть до 1 170 K и в потоке смеси газов происходят медленные порой незначительные

изменения $\rho(T)$, P ,% и MR . Предполагается, что при облучении ионами He^+ формируются дефекты в пленке, которые будут способствовать ускорению процессов радиационно-стимулированной диффузии анионов и аннигиляции антиструктурных дефектов $[\text{Fe}_{\text{Mo}}]$ и $[\text{Mo}_{\text{Fe}}]$.

При облучении пленки SFMO ионами He^+ установлено, что температура Кюри (T_c) перехода в магнитоупорядоченное состояние не существенно зависит от флюенса облучения, тогда как величина сверхструктурного упорядочения катионов Fe/Mo, температурные зависимости MR и удельного электросопротивления $\rho(T)$ меняются значительно при увеличении флюенса облучения ионами легкого газа (He^+) (рисунок 1).

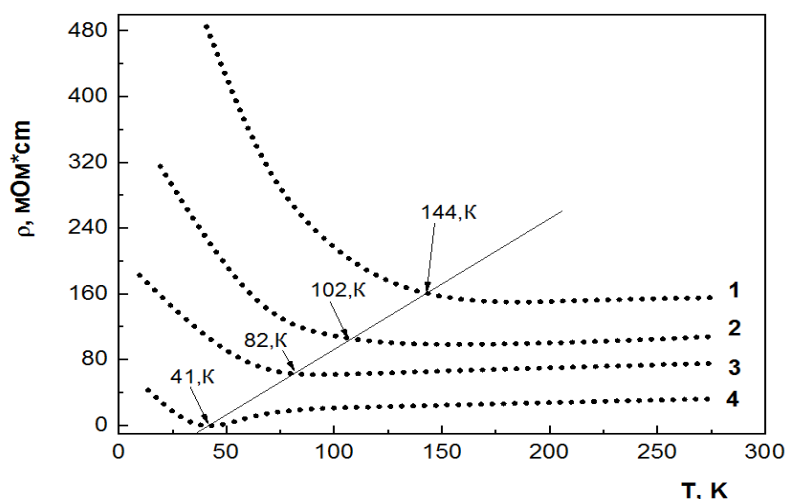


Рисунок 1 – Температурная зависимость удельного сопротивления пленки $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$, подвергнутой облучению ионами He^+ с флюенсами:
1) $F_{\text{He}^+} = 0,5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$; 2) $F_{\text{He}^+} = 0,8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$; 3) $F_{\text{He}^+} = 1,1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$; 4) $F_{\text{He}^+} = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$

Так, при измерении температурной зависимости удельного электросопротивления пленки SFMO, облученной с флюенсом $F_{\text{He}^+} = 0,5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ в интервале температур 300–41 К обнаружен металлический характер проводимости, а при последующем понижении температуры ниже $T = 41 \text{ K}$, сопротивление начинало плавно увеличиваться (рисунок 1). После облучения ионами He^+ с большим флюенсом температура перехода из металлического типа проводимости в полупроводниковый повышается (рисунок 1).

Так, при флюенсе облучения $F_{\text{He}^+} = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$, обнаружено, что пленка SFMO в интервале температур 300–144 К обладает слабым металлическим типом проводимости, а в интервале температур 144–4,2 К – ярко выраженным полупроводниковым типом проводимости.

Как указывалось выше, при облучении материала формируются дефекты, которые способствуют ускорению процессов радиационно-стимулированной диффузии анионов. Данное обстоятельство, на наш взгляд, будет содействовать перераспределению кислорода в анионной подрешетке пленки SFMO. Обнаружено, что облучение образцов ионами He^+ с последующим их отжигом в интервале температур 850–1 050 К в потоке газовой смеси 5 % H_2/Ar приводит к увеличению величин MR и P . При этом наблюдается уменьшение значений удельного электросопротивления. Для оптимизации условий отжигов и доз облучения пленок $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ были рассмотрены зависимости $\{MR, P, \rho\} = f(F_{\text{He}^+})$ (рисунок 2).

При изучении искажения кристаллической решетки в зависимости от флюенса облучения с последующим отжигом образцов, установлено несколько стадий изменения скорости роста MR и P . На первой стадии облучения (от 0 до $0,8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$) наблюдалось более быстрое увеличение значений MR и P , чем на втором этапе (от $0,8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ до $2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$) (рисунок 2).

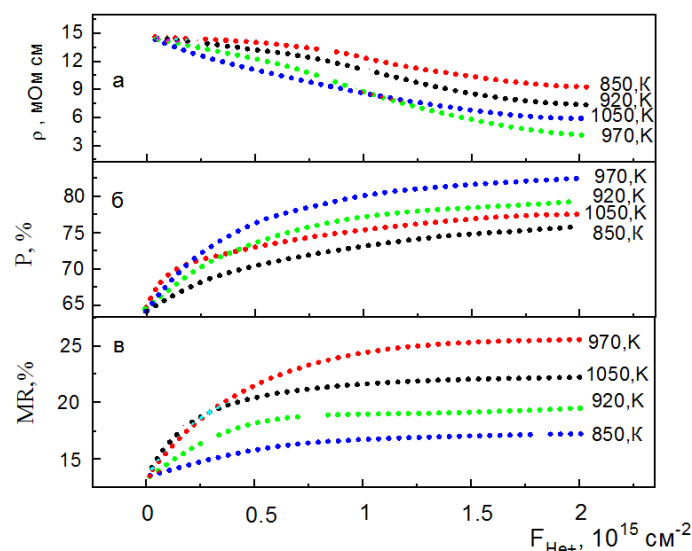


Рисунок 2 – Зависимость ρ (а), P (б) и MR (в) от дозы облучения пленки с последующим их отжигом при различных температурах и $pO_2 = 10^5$ Па

Значительное уменьшение удельного электросопротивления пленки SFMO наблюдалось только на второй стадии. Наличие двух разных стадий изменения MR , P и ρ при облучении может быть связано с переходом реакции окисления из диффузионного режима (первая стадия) в кинетический (вторая стадия) за счет накопления в соединении различных упругих напряжений. Следует также обратить внимание на то, что с увеличением температуры отжига до 970 К после облучения пленок скорость улучшения гальваномагнитных и структурных характеристик повышается, что, по-видимому, обусловлено количеством диффундирующих дефектов. Можно предположить, что с возрастанием температуры, меняется вероятность процессов рекомбинации и ухода компонентов пар Френкеля на стоки. Кроме того, меняется концентрация носителей заряда и, следовательно, зарядовое состояние реагирующих дефектов, что вызывает изменение скоростей реакций. В этом случае температурная зависимость сечений образования и распада комплексов дефектов приводит к преимущественному введению более стабильных дефектов с ростом температуры отжига.

Заключение. Таким образом, созданные в процессе облучения легкими ионами гелия с энергией 2,5 МэВ дефекты содействуют ускорению диффузионных процессов рекомбинации в пленках $Sr_2FeMoO_{6-\delta}$, что способствует упорядочению ионов кислорода и аннигиляции антиструктурных дефектов при проведении последующей термообработки.

Авторы признательны профессору Д. Финку за помощь в организации облучения пленок $Sr_2FeMoO_{6-\delta}$ ионами He^+ .

Работа выполнена в рамках проекта БРФФИ № Ф24В-005, проекта № 28-2024, а также в рамках приказа 289 / 2024 п. 17 Программы сотрудничества Беларусь – ОИЯИ.

Литература

1. High-energy ion beam irradiation of Co/NiFe/Co/Cu multilayers: effects on the structural, transport and magnetic properties / P. L. Grande [et al.] // Thin Solid Films. – 2008. – Vol. 516, № 8. – P. 2087–2093.
2. Ion-irradiation induced reduction in $Sr_2Fe_{1.5}Mo_{0.5}O_{6-\delta}$ perovskite / S. Wang [et al.] // NIMB. – 2014. – Vol. 326. – P. 298–302.
3. Double perovskites with ferromagnetism above room temperature / D. Serrate [et al.] // J. Phys.: Condens. Matter. – 2007. – Vol. 19. – P. 1–86.