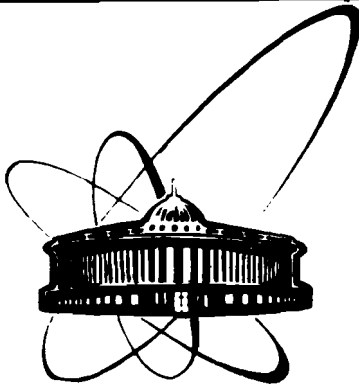


89-462



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

86

14-89-462

С.А.Корнев, В.А.Алтынов, В.В.Сиколенко,
А.Чернакова

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
ВОЗДЕЙСТВИЯ СИЛЬНОТОЧНЫХ ИМПУЛЬСНЫХ
ПУЧКОВ ЭЛЕКТРОНОВ И ИОНОВ УГЛЕРОДА
НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ СВЕРХПРОВОДНИКИ
 $Y-Ba-Cu-O$, $Bi-Ca-Sr-Cu-O$

Направлено в журнал "Сверхпроводимость: физика,
химия, техника"

1989

ВВЕДЕНИЕ

Исследования явления высокотемпературной сверхпроводимости ведутся во многих лабораториях мира. Особый интерес вызывает его практическое использование. При этом возникают вопросы влияния различного типа взаимодействия пучков заряженных частиц на характеристики и свойства высокотемпературных сверхпроводников. К таким пучкам заряженных части относятся импульсные сильноточные и электронные пучки.

В первых работах по облучению γ -Ва-Си-О сильноточным электронным пучком было показано, что поверхностный переплав образцов приводит к созданию условий для защиты этой керамики от деградации^{1,2/}.

Другие работы по облучению ВТСП заряженными частицами более высоких энергий^{3,4/} показали, что эффекты взаимодействия пучков носят сложный характер и не имеют однозначной трактовки.

Данная работа является продолжением наших предыдущих экспериментов по исследованию воздействия сильноточных пучков электронов и ионов углерода на высокотемпературные сверхпроводники.

МЕТОДИКА ОБЛУЧЕНИЯ ОБРАЗЦОВ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ

Эксперименты по облучению высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) проводились на установке для генерации электронных и ионных пучков^{5,6/}. Она включает в себя генератор импульсного напряжения типа Аркадьева-Маркса, вакуумный взрывоэмиссионный источник заряженных частиц и систему диагностики. Для получения электронных пучков на источник заряженных частиц диодного типа подается от генератора импульс напряжения отрицательной полярности, а для получения ионов - импульс напряжения положительной полярности. Источник заряженных частиц состоит из вакуумной камеры, проходного высоковольтного изолятора, инициатора эмитирующей частицы плазмы, вытягивающего электрода. В качестве инициатора плазмы в источнике используется углеродно-волоконистый эмиттер^{7/}. Вытягивающим электродом является металлическая мелкоструктурная сетка с коэффициентом прозрачности $\sim 0,6$. В таблице № I приведены основные параметры пучков заряженных частиц, используемых в рассматриваемых ниже экспериментах.

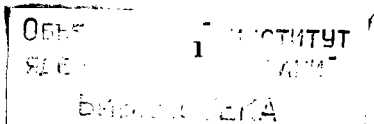


Таблица I

Сорт частиц	Кинетическая энергия, кэВ	Плотность тока, $A \cdot cm^{-2}$	Длительность импульса, нс	Частота следования импульсов, Гц
Электроны	100-300	$5 \cdot 1000$	300	0,2
Ионы углерода	100-300	$1 \cdot 60$	300	0,2

На рис. 1а приведены зависимости плотности тока пучка электронов j от расстояния между анодом и катодом D и j ионного пучка от D (рис. 1б) при напряжении на диоде $U = 100, 200, 300$ кВ. Эти зависимости дают представление о мощностных характеристиках применяемых в экспериментах пучков электронов и ионов углерода.

Давление остаточного газа в вакуумной камере источника заряженных частиц и в камере с образцами составляло $\sim 5 \cdot 10^{-5}$ Торр. Откачка этих систем осуществлялась вакуумным агрегатом ВА-0,5.

Измерение напряжения на источнике частиц осуществлялось высокоомным делителем напряжения, а тока пучка частиц - широкополосным шунтом тока с регистрацией сигналов на широкополосных осциллографах.

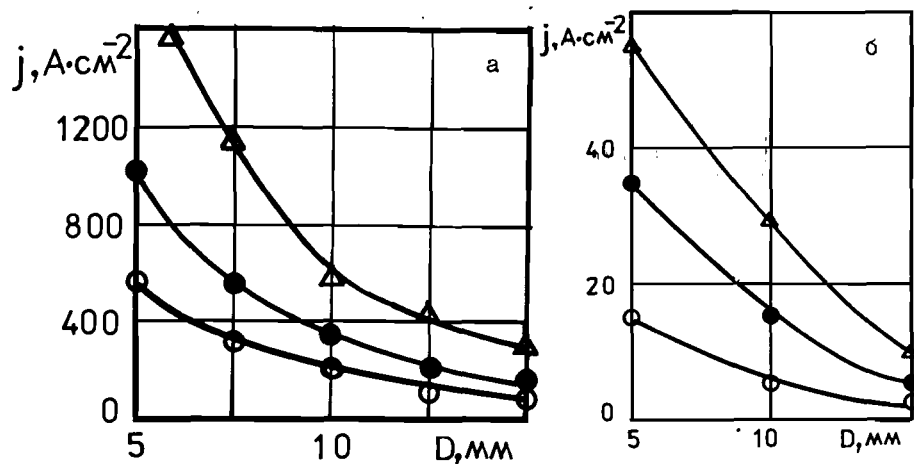


Рис. 1. Зависимость плотности тока электронного пучка (а) и пучка ионов углерода (б) от расстояния между анодом и катодом D при напряжении на диоде: \circ - 100 кВ; \bullet - 200 кВ; \triangle - 300 кВ.

Образцы высокотемпературных сверхпроводников представляли собой прямоугольные пластинки толщиной $0,5 \pm 1,5$ мм и имели средние размеры 5×15 мм. Схема облучения и расположение элементов в камере облучения вместе с источником заряженных частиц приведены на рис. 2.

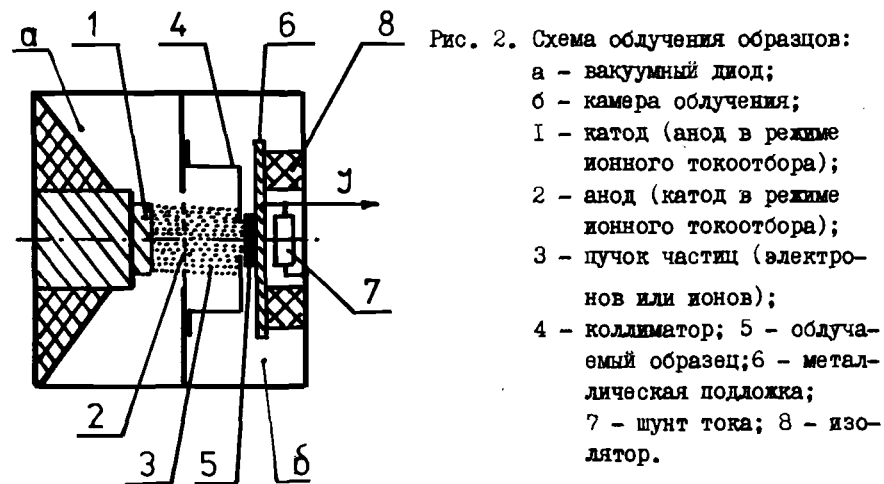


Рис. 2. Схема облучения образцов: а - вакуумный диод; б - камера облучения; 1 - катод (анод в режиме ионного токоотбора); 2 - анод (катод в режиме ионного токоотбора); 3 - пучок частиц (электронов или ионов); 4 - коллиматор; 5 - облучаемый образец; 6 - металлическая подложка; 7 - шунт тока; 8 - изолятор.

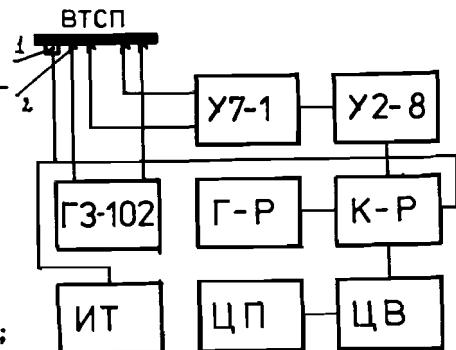
МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ

В проводимых экспериментах нами исследуются следующие основные характеристики и параметры высокотемпературных сверхпроводников:

- 1) температурные переходы;
- 2) сопротивление и критический ток;
- 3) структура;
- 4) элементный состав;
- 5) топография поверхности.

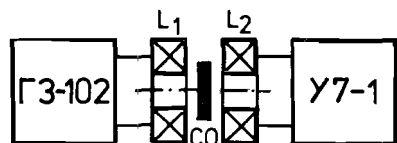
Температурные переходы и сопротивление образцов определялись четырехточечным методом измерения удельного сопротивления. Блок-схема измерительной установки приведена на рис. 3. В эту установку входит измерительная штанга, в которой устанавливается исследуемый образец, и система электроники. Для включения образца в измерительную схему применяются прижимные золотеные контакты, при этом сопротивление контактов $\leq 10^{-3}$ Ом. Измерения удельного сопротивления сверхпроводников в зависимости от температуры ведутся на частоте $f = 250 \pm 500$ Гц. Температура образца определяется при помощи термометра ТВО ($R = I \cdot R_{\text{ом}}$)^{8/}. Время охлаждения образцов до азотной темпе-

Рис. 3. Блок-схема измерительной установки температурных переходов ВТСП-образцов. ВТСП - высокотемпературный сверхпроводник; 1 - термометр; 2 - контакты; У7-1 - дифференциальный усилитель; У2-8 - усилитель с детектором, Г3-102 - генератор синусоидальных колебаний; К-р - коммутатор сигналов с термометра и с детектора; Г-Р - генератор управления коммутатором; ЦВ - цифровой вольтметр типа TR-65II150, ЦП - цифrophечать;



ИТ - источник тока ($I = 100 \text{ мкА}$) для термометра.

Рис. 4. Схема индуктивного метода измерения температурного перехода высокотемпературных образцов.



L_1 - возбуждающая катушка индуктивности; L_2 - приемная катушка индуктивности; СО - сверхпроводящий образец.

ратуры составляет $\sim 20+30$ минут. Для определения температурных переходов нами применялся и индуктивный метод, упрощенная схема которого представлена на рис. 4. Исследуемый образец устанавливается между двумя катушками, выход У7-1 подключается к У2-8 согласно блок-схеме измерительной установки (рис. 3). Рабочая частота генератора Г3-102 в этом методе составляет $f = 5+10 \text{ кГц}$. Величина критического тока, протекающего через образец, находящийся в сверхпроводящем состоянии при азотной температуре, определялась по схеме, приведенной на рис. 5.

Величина критического тока определялась равенством величин падения напряжения на образце, измеряемых дифференциальным усилителем при $\Delta T_c/2$ (ΔT_c - достаточно мал) и при азотной температуре образца в условиях увеличения величины тока в цепи. Ток измеряется бесконтактным способом при помощи трансформатора тока (пояс Роговского). Регистрация сигналов осуществлялась на запоминающем двухлучевом осциллографе С1-17.

Рентгеноструктурный анализ сверхпроводников проводился на рентгеновском дифрактометре ДРОН-3М.

Элементный анализ образцов проводился методом электронного зонда с помощью полупроводникового спектрометра рентгеновского излучения фирмы Link System (Англия) на растровом электронном микроскопе JSM-840 (Япония).

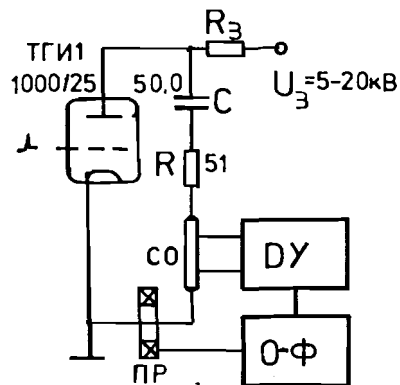


Рис. 5. Схема измерения критического тока. ТГИ1-1000/25-водородный тиратрон; R_3 - зарядное сопротивление; СО - сверхпроводящий образец; ДУ - дифференциальный усилитель; ПР - пояс Роговского; О-Ф - осциллограф (С1-17).

Условия возбуждения излучения были следующими: 1) ускоряющее напряжение $\sim 20 \text{ кВ}$; 2) ток электронного зонда $\sim 6 \cdot 10^{-10} \text{ А}$. Вследствие небольшого по глубине образца пробега электронов (ускоряющее напряжение $\sim 20 \text{ кВ}$) элементному анализу подвергается приповерхностный слой образца глубиной $\sim 1 \text{ мкм}$.

Топография поверхности сверхпроводников исследовалась на японском растровом микроскопе JSM - 840.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Исследования проводились на образце типа "bulk" В (Y-Ba-Cu-O, Bi-Ca-Sr-Cu-O) и поликристалл (Bi-Ca-Sr-Cu-O) ПК.

На рис. 6 приведены фотографии поверхности образцов до облучения (рис. 6а (В) - Y-Ba-Cu-O, рис. 6б (В) - Bi-Ca-Sr-Cu-O и после их облучения электронами и ионами (рис. 6 в, д, ж, з). Параметры пучков частиц, характеристики образцов приведены в таблице № 2. На рис. 7 приведены зависимости сопротивления висмутовых образцов от температуры $R/R_0 = f(T)$. Для примера на рис. 8 представлены зависимости изменения сопротивления образца Bi-Ca-Sr-Cu-O до и после облучения ионами углерода. Исследование иттриевой керамики показало, что образцы можно условно разделить на две группы: первая группа образцов имеет $T_c \sim 85-90 \text{ К}$, а вторая $T_c \sim 78+80 \text{ К}$, при этом и эффекты воздействия высокоэнергетических электронных пучков (СЭП) различны, см. рис. 9 (зависимости $R/R_0 = f(T)$). Из этих зависимостей видно, что: 1) T_c смещается в область более высоких значений; 2) для образцов с высоким T_c наблюдается только уменьшение сопротивления.

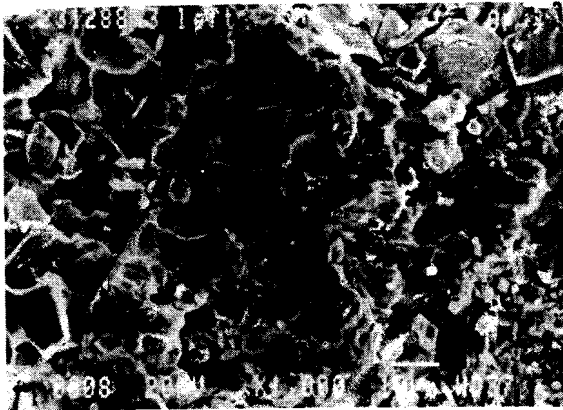


Рис. 6. Фотографии поверхности образцов $Y-Ba-Cu-O$:
а - фотография поверхности $Y-Ba-Cu-O$ до облучения.



Рис. 6б. Фотография поверхности $Y-Ba-Cu-O$ после облучения.



Рис. 6в. Фрагмент поверхности иттриевой керамики.

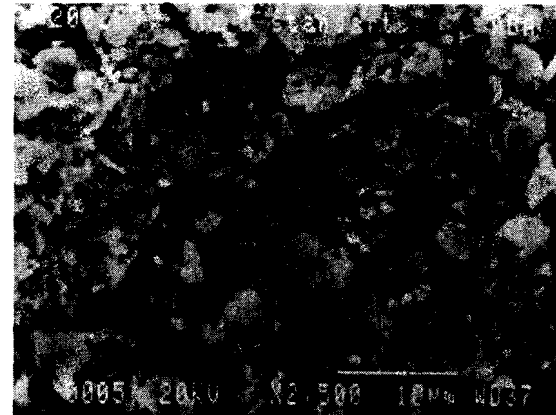


Рис. 6г. Фотография поверхности $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ ("bulk") до облучения.

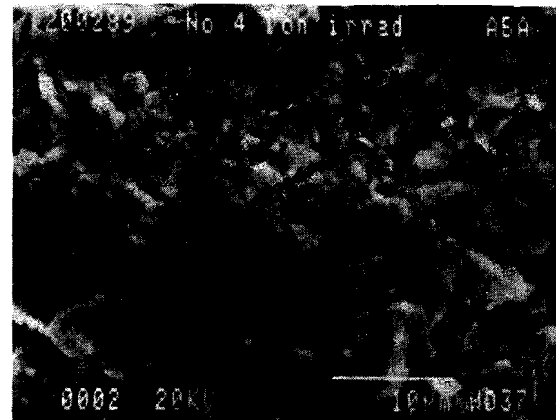


Рис. 6д. Фотография поверхности $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ после облучения пучком ионов углерода.

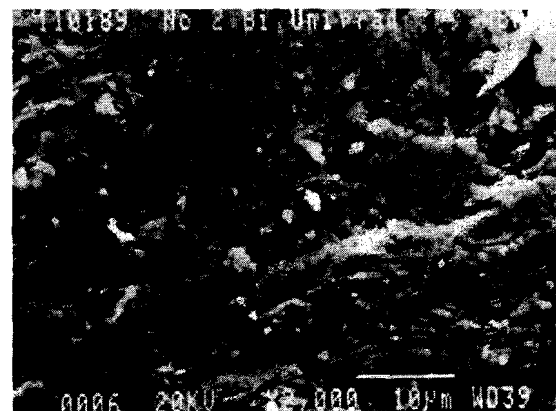


Рис. 6е. Фотография поверхности $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ (поликристалл) до облучения.

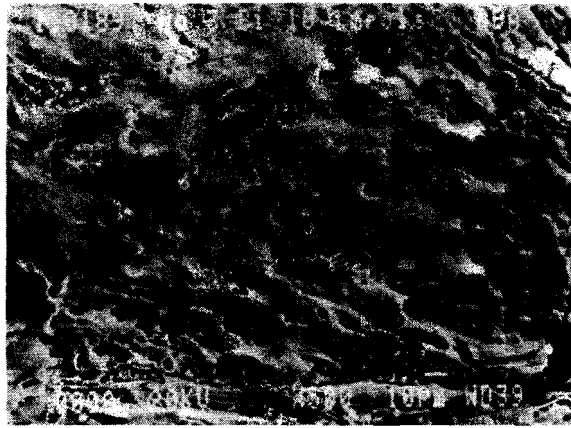


Рис.6ж. Фотография поверхности Bi-Ca-Sr-Cu-O после облучения пучком электронов (10 импульсов).

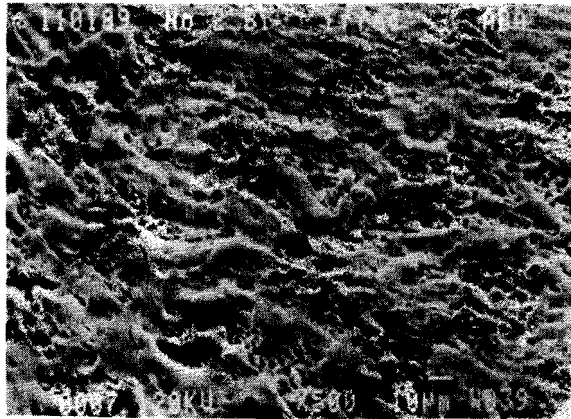


Рис.6з. Фотография поверхности Bi-Ca-Sr-Cu-O после облучения пучком электронов (20 импульсов).

Результаты рентгеноструктурного анализа показали отсутствие аморфизации ВТСП. Для примера на рис.10 показаны рентгеновские дифрактограммы для образцов типа Bi-Ca-Sr-Cu-O при их облучении электронным пучком и ионами углерода. Рентгенограмма необлученного сверхпроводника соответствует рис.10(1), облученного ионами углерода ($j_1 = 35 \text{ A/cm}^2$, $E = 200 \text{ кэВ}$, число импульсов $N = 200$) - рис.10(3), и облученного электронным пучком ($j = 140 \text{ A/cm}^2$, $E = 200 \text{ кэВ}$, $N = 140$) - рис.10(2).

Измерение критического тока показали, что для образцов Y-Ba-Cu-O, Bi-Ca-Sr-Cu-O его величина $J_{кр} \sim 80-90 \text{ А}$. Облучение ионами углерода не изменило этой величины $J_{кр}$. Однако при электронном облучении при наличии проплавленной поверхности наблюдается относительное увеличение в ~ 2 раза. Увеличение $J_{кр}$ наблюдалось для образцов Y-Ba-Cu-O и Bi-Ca-Sr-Cu-O.

Таблица 2

Тип образца	Тип облучаемых частей	Число импульсов облучения	Кинетич. энергия, кэВ	Длина волны, нм	Плотность тока пучка, А/см ²	Соотношение Y/Ba, Sr/Ca, Cu			№ фото на рис.6	№ рентгенограмм, рис.10		
						Y	Ba	Sr/Ca				
I	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Иттрий "bulk"	нет облучения	0	0	0	0	1	2		3	6а	9а(○)	
Иттрий "bulk"	электроны	10	250	300	1000	1	2		3	6б	9а(●)	
Висмут поликристалл	нет облучения	0	0	0	0	3	1	2	4	6в	7а(○)	
Висмут поликристалл	электроны	10	200	300	1000	3	1	2	4	6ж	7а(●)	
Висмут поликристалл	электроны	20	200	300	1000	3	1	2	3,6	6з	7а(▲)	
Висмут "bulk"	нет облучения	0	0	0	0	2	1	1	2	6г	7б(○)	I
Висмут "bulk"	электроны	140	200	300	7	2	1	1	2	-	7б(△)	
Висмут "bulk"	электроны	140	200	300	150	2	1	1	2	-	7б(●)	2
Висмут "bulk"	ионы углерода	80	200	300	35	2	1	1	2	-	7б(X)	
Висмут "bulk"	ионы углерода	200	200	300	35	2	1	1	2	6д	7б(★), 8	3

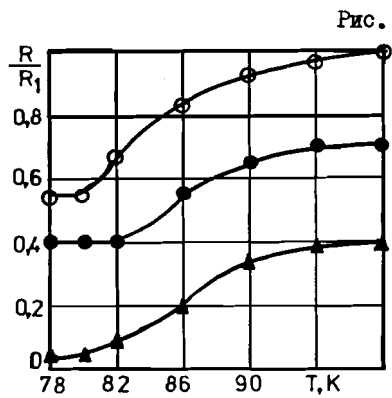


Рис. 7а. Зависимость для висмутовых поликристаллических образцов до облучения пучком электронов (○) и после облучения 10 импульсами электронных пучков (●) и 20 импульсами электронных пучков (▲). $R/R_1 = F(T)$.

Рис. 7б. Зависимость R/R_1 от T для висмутовых образцов типа "bulk" до облучения (○) и после облучения пучками электронов (●) и (Δ) и ионами углерода (x) и (ж).

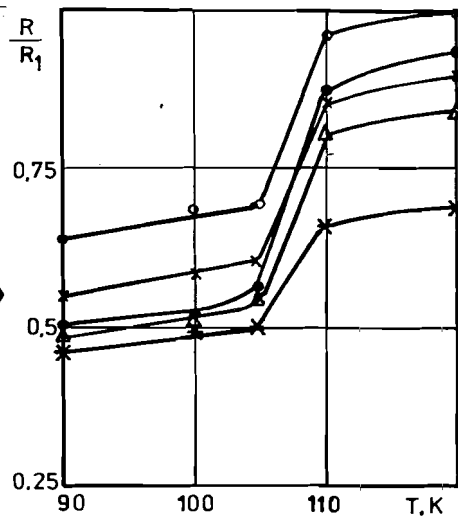


Рис. 8. Зависимость сопротивления образца из висмутовой керамики от температуры T до облучения (○) и после облучения ионами углерода (●) ($N = 200$ импульсов).

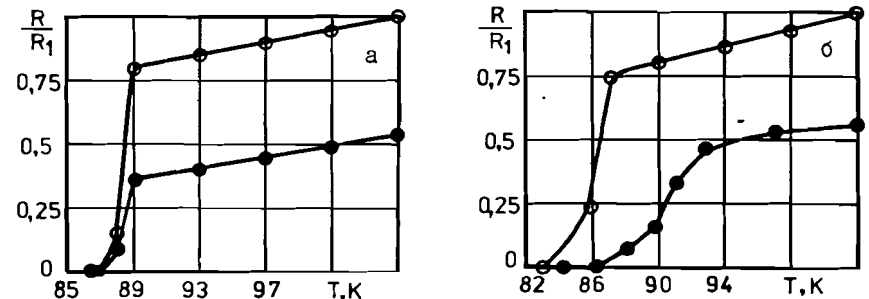
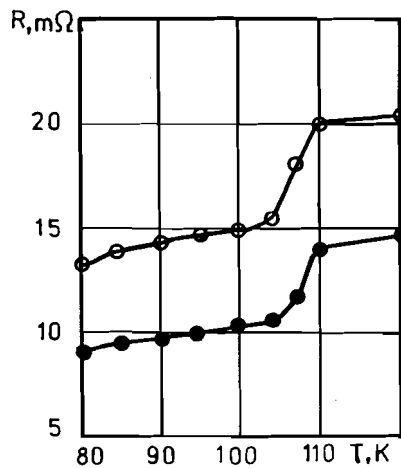


Рис. 9. Зависимость $R/R_1 = F(T)$ для иттриевой керамики двух типов до облучения (○) и после облучения электронным пучком (●) плотностью тока $j = 1000 \text{ A/cm}^2$, с кинетической энергией 250 кэВ и длительностью импульса $\sim 300 \text{ нс}$; число импульсов $N = 10$.

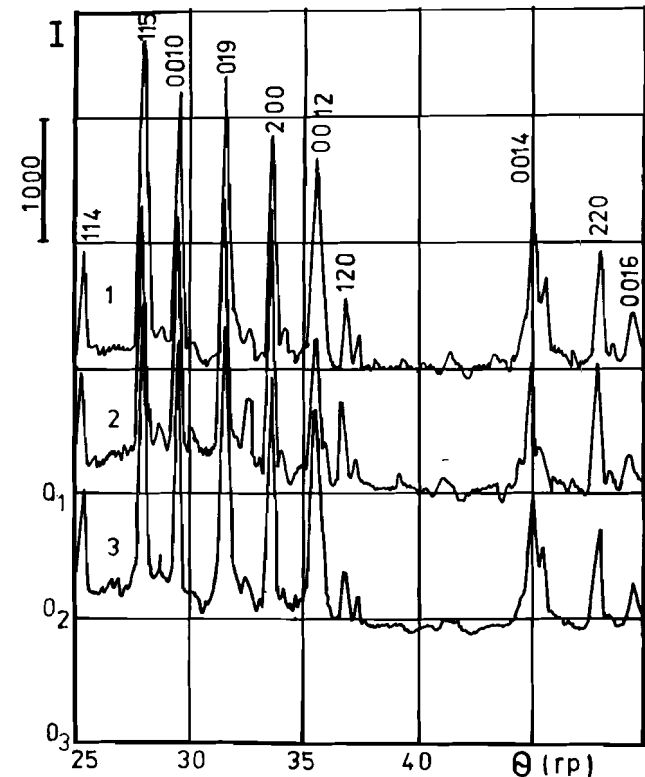


Рис. 10. Рентгеновские дифрактограммы для образцов Bi-Ca-Sr-Cu-O ("bulk") до облучения (1), после облучения электронами (2), после облучения ионами углерода (3).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

В силу определенного различия механизмов воздействия импульсных сильноточных электронных пучков и импульсных пучков ионов углерода на исследуемые высокотемпературные сверхпроводники рассмотрим результаты облучений по отдельности.

Электронное облучение

Как было показано в работах^{/1,9/}, при облучении сильноточными электронными пучками при выполнении условия:

$$\tau_p = \frac{2h^2 c \rho}{\lambda} > \tau_u, \quad (1)$$

где τ_p - тепловая постоянная облучаемого образца, h - пробег электронов в образце, ρ, c, λ - плотность, удельная теплоемкость, коэффициент теплопроводности образца; τ_u - длительность импульса тока пучка, происходит адиабатический нагрев тонкого слоя образца, определяемого h .

Для обоих типов керамик τ_p составляет

$$\tau_{Y} \sim 10^{-5} \text{с} > 3 \times 10^{-7} \text{с}; \quad \tau_{Bi} \sim 2 \times 10^{-5} \text{с} > 3 \times 10^{-7} \text{с}.$$

Анализ аномального эффекта выделения энергии в образце вследствие замагниченности пучка показывает, что коэффициент энергетического вклада $K_E/10^7$:

$$K_E = \frac{3 J_b}{2 J_A} \approx 1,2 \cdot 10^{-1} < 1, \quad (2)$$

где J_b - ток пучка электронов, $J_A = 17,8 \gamma \text{ кА}$, ($\gamma = \frac{v}{c}$, γ - релятивистский фактор). Другие аномальные эффекты выделения энергии в веществе из-за того, что $J_b \ll J_A$, также не проявляются при облучении сильноточными электронными пучками с указанными выше параметрами. Глубина пробега электронов в иттриевой и висмутовой керамике представлена в таблице 3.

Из таблицы видно, что выделение тепла идет на довольно большой глубине пробега.

Фотографии поверхности иттриевой и висмутовой керамик, приведенные на рис. 6б, 6в, 6ж, 6з, показывают их поверхностный переплав. Пороговое значение по плотности мощности пучка, при которой наблюдается поверхностный проплав, для иттриевой керамики составляет 10^7Вт/см^2 , а для висмутовой керамики $4 \times 10^6 \text{Вт/см}^2$. Кроме того, проплав

Таблица 3

Энергия электронов, кэВ	100	150	200	250	300
h , мкм	16	30	45	70	90
h , мкм	42	96	112	140	165

Bi-Ca-Sr-Cu-O более однороден, чем Y-Ba-Cu-O. Этот эффект может быть использован в технике СВЧ при возможном использовании высокотемпературных сверхпроводников в этой технике для снижения потерь ВЧ-мощности путем уменьшения микронеровностей поверхности^{/11,12/}.

На рис. 6в видна рекристаллизация иттриевой керамики.

Поверхностный проплав приводит не только к уменьшению интегрального сопротивления высокотемпературных сверхпроводников, но и к увеличению критического тока. Этот результат можно попытаться объяснить созданием "монокристаллического" токонесущего слоя.

Необходимо отметить, что в данной работе учитывается интегральный эффект изменения сопротивления, т.к. модификация образца происходит на глубине пробега электронов, меньшей толщины образца.

Аморфизация образцов при электронном облучении не наблюдается, а это приводит к возможности использования высокотемпературных сверхпроводников в технологических исследованиях этих материалов. К этому выводу приводит анализ стехиометрического соотношения Y-Ba-Cu-O и Bi-Ca-Sr-Cu-O.

Ионное облучение

Облучение ионами отличается в основном процессами на глубине их пробега, т.к. эта глубина существенно меньше, чем для электронов. В таблице 4 приведены значения h в зависимости от кинетической энергии ионов углерода.

Таблица 4

E , кэВ	100	150	200	250	300
h , мкм	1,5	1,8	2,1	2,5	2,8

Как показали эксперименты, поверхностного проплава не наблюдается при ионном облучении, но видна модификация поверхности (см. рис. 6д).

Литература

Аналогичные результаты по изменению морфологии поверхности получены для металлов при их облучении ионами углерода в работе [13]. Уплотнение кристаллитов керамики приводит к уменьшению сопротивления (рис. 7б, рис. 8), но увеличения критического тока не происходит. Видно также, что с увеличением числа воздействий (импульсов тока) ионного пучка на образцы наблюдается уменьшение сопротивления.

Отсутствие аморфизации облучаемой керамики и стабильность стехиометрического соотношения $Y-Ba-Cu-O$, $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ позволяют применять ионные пучки в технологических экспериментах по исследованию свойств высокотемпературных сверхпроводников.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение можно сделать следующие выводы:

- поверхностный проплавление иттриевой и висмутовой керамики при импульсном электронном облучении приводит к увеличению токонесущей способности в ~ 2 раза;
- при кинетической энергии электронов 100 - 300 кэВ и адиабатических тепловых процессах (при длительности импульса тока пучка, меньшей тепловой постоянной вещества) пороговая плотность мощности пучка электронов для поверхностного проплавления составляет 10^6 Вт/см² для иттриевой керамики, $4 \cdot 10^6$ Вт/см² для висмутовой;
- проплавление поверхности снижает микронеровности с 10 - 15 мкм до 1 мкм;
- облучение иттриевой керамики импульсным электронным пучком с плотностью тока $j_e \sim 100 - 1000$ А/см² приводит к ее рекристаллизации;
- уменьшение интегрального сопротивления $Y-Ba-Cu-O$, $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ в $k \sim 2,5$ раза происходит при облучении пучками электронов с $\tau_u \sim 300$ нс, $E \sim 100 - 300$ кэВ, $j_e \sim 10 - 1000$ А/см²;
- облучение $Y-Ba-Cu-O$, $Bi-Ca-Sr-Cu-O$ пучком ионов углерода с $\tau_u \sim 300$ нс, $E \sim 100 - 300$ кэВ, $j_i \sim 1 - 60$ А/см² приводит к уменьшению интегрального сопротивления образцов в 1,25 - 1,8 раза;
- при облучении высокотемпературных сверхпроводников пучками частиц с указанными выше параметрами не происходит их аморфизации;
- усовершенствован импульсный метод измерения критического тока сверхпроводящих образцов.

Авторы выражают благодарность В.И.Лушикову, О.Н.Ореловичу за помощь в работе.

1. С.А.Коренев, Д.Валентович, В.И.Лушиков, Краткие сообщения ОИЯИ, № 4 [30] - 88, с. 83, Дубна, ОИЯИ, 1988.
2. С.А.Коренев, Д.Валентович, Тезисы докладов I Всесоюзной конференции "Модификация свойств конструкционных материалов пучками заряженных частиц", 4, II, с.4, 1988, Томск, ТПИ.
3. E.L. Swelgard et al. J. Modern Physics Letters B Vol. 2, No 9, 1988, p. 1055. ✓
4. M. Nastasi et al. J. Appl. Phys. Lett. Vol. 53, No 14, 1988, p. 1326. ✓
5. С.А.Коренев, ОИЯИ, № 9-87-313, Дубна, 1987.
6. С.А.Коренев. Тезисы докладов III Всесоюзного семинара "Плазменная электроника", 1988, с.93, Харьков, ХФТИ АН УССР.
7. С.А.Коренев, А.М.Баранов, С.В.Костюченко, Н.М.Черненко. Препринт ОИЯИ № 13-88-292, ОИЯИ, Дубна, 1988.
8. В.И.Дацков. Препринт ОИЯИ № 8-83-717, ОИЯИ, Дубна, 1983.
9. И.Вавра, С.А.Коренев. Тезисы II Международной конференции по электронно-лучевым технологиям, т.3, с. 641, 1988, София, НРБ, Изд-во БАН.
10. В.И.Бойко, В.В.Евстигнеев. Введение в физику взаимодействия сильноточных пучков заряженных частиц с веществом, М.Энергоатомиздат, 1988. ✓
11. Е.А.Казановский, В.П.Карцев, В.И.Шахтарин. Сверхпроводящие магнитные системы, Наука, Ленинград, 1967.
12. И.Вавра, С.А.Коренев. Препринт ОИЯИ № Р13-86-860, ОИЯИ, Дубна, 1986.
13. А.Н.Диденко, А.Е.Лигачев, И.Б.Куракин. Воздействие пучков заряженных частиц на поверхность металлов и сплавов. Москва, Энергоатомиздат, 1987. ✓

Рукопись поступила в издательский отдел
22 июня 1989 года.