Свойства низкотемпературных конденсатов иттербия, полученных в среде газообразного гелия

В.М. Кузьменко, А.Н. Владычкин

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт» ул. Академическая, 1, г. Харьков, 61108, Украина E-mail: marbor@roket.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 7 марта 2003 г.

Исследованы особенности электронных свойств и механизмов кристаллизации аморфных пленок иттербия, полученных низкотемпературной конденсацией в среде газообразного гелия (при парциальном давлении 2,3·10⁻³–7 Па). Изучены изменения электропроводности, магнитосопротивления и эффекта Холла, происходящие при отжиге пленок. Соответствующие изменения плотности и подвижности носителей заряда вычислены в рамках двухзонной модели. Предложена модель преобразования структуры низкотемпературных конденсатов газонасыщенного иттербия в процессе отжига.

Досліджено особливості електронних властивостей та механізмів кристалізації аморфних плівок ітербію, одержаних низькотемпературною конденсацією в середовищі газоподібного гелію (при парціальному тиску 2,3·10⁻³–7 Па). Вивчено змінення електропровідності, магнітоопору і ефекту Холла, що відбуваються при відпалі плівок. Відповідні змінення густини і рухливості носіїв заряду обчислено в межах двозонної моделі. Запропоновано модель перетворення структури низькотемпературних конденсатів газонасиченого ітербію у процесі відпалу.

PACS: 61.43.Dq, 64.70.Pf, 74.80.Bj

Введение

Конфигурация внешних электронов нейтральных атомов иттербия в их основном состоянии может быть записана как $4f^{14}6s^2$. Так как 4f-уровень в иттербии близок к уровню Ферми, возникает дополнительное анизотропное взаимодействие, связанное с сильным перемешиванием 4f-состояний с зоной проводимости. Зона 5*d* иттербия пуста и также перекрывается с s-зоной. Поскольку иттербий, как правило, является двухвалентным металлом, его электронные свойства определяются, в основном, степенью перекрытия s- и p-зон. Обычно, если постоянная решетки двухвалентных ГЦК и ОЦК металлов значительно увеличивается, ширина обеих зон уменьшается, и перекрытие их в какой-то момент исчезает — вещество становится полупроводником. В некоторых двухвалентных металлах перекрытие зон может уменьшаться при уменьшении постоянной решетки, и вещество становится полупроводником при достаточно высоких давлениях. Такое поведение наблюдается, в частности, у иттер-

бия. До давления $p \sim 3.10^9$ Па электросопротивление иттербия увеличивается с давлением, и иттербий приобретает полупроводниковые свойства [1,2]. В рамках двухзонной модели плотность носителей в ГЦК Үb (монокристаллы с отношением удельных электросопротивлений при температурах 293 К и 4,2 К: _{р293} / _{р42} = 4-22) уменьшается при увеличении давления от 0 до 1,7 10⁹ Па примерно в 5 раз [2]. Число носителей заряда при атмосферном давлении и $T \approx 2$ К составляло для изученных образцов $(0,3-4) \cdot 10^{20}$ см⁻³ (в зависимости от $\rho_{293} / \rho_{4,2}$). Предполагается, что в иттербии под давлением, вероятно, появляется энергетическая щель между валентной *s*-зоной и пустой *p*- зоной проводимости. Итак, переход металл-неметалл для кубического двухвалентного металла будет иметь место, если какой-либо параметр, влияющий на ширину запрещенной зоны (например, постоянная решетки), будет меняться в достаточной степени. За счет теплового расширения можно достичь увеличения постоянной решетки всего лишь на несколько процентов. Значительно более широкий диапазон изменения межатомных расстояний может быть осуществлен в некристаллических стеклообразных веществах.

Как известно, при конденсации паров иттербия в сверхвысоком вакууме на подложку, охлаждаемую жидким гелием, образуется аморфная модификация иттербия [3,4]. Переход в ГЦК модификацию (a-k-переход) происходит при $T_{a-k} \approx 15-20$ К или в процессе конденсации при достижении пленкой критической толщины (в последнем случае реализуется механизм лавинной (взрывной) кристаллизации [5]).

Заметим, что речь в настоящей работе будет идти только об аморфном иттербии и его ГЦК модификации. Даже следов низкотемпературной ГПУ модификации этого металла, которую наблюдали при температурах вблизи комнатной и ниже в высокочистом иттербии ($\rho_{293}/\rho_{4,2} \approx 100$ [6]), мы не обнаружили. Для массивного отожженного иттербия, использованного в настоящей работе, $\rho_{293}/\rho_{4,2}$ = 11 (чистота 99,7%). Электронные свойства чистых пленок иттербия в аморфном и кристаллическом состояниях при низких температурах изучены ранее [7].

В частности, в рамках двухзонной модели были определены плотность и подвижность носителей в зависимости от температуры и толщины пленок. Найденная в работе [8] температурная зависимость величины эффективного взаимодействия между электронами g(T) свидетельствует о возможности существования в аморфном Yb сверхпроводящего перехода при низких температурах. Тем не менее до T = 0.35 К сверхпроводимость в аморфных пленках иттербия обнаружена не была [9]. Правда, пленки, приготовленные при $p \approx 1.3 \cdot 10^{-4}$ Па, могли быть существенно загрязнены YbH₂ и Yb₂O₃ [10]^{*}.

Настоящая работа посвящена исследованию электронных свойств низкотемпературных конденсатов Yb-He. С одной стороны, увеличение числа рассеивающих центров при заметном различии рассеивающих потенциалов атомов Yb и He должно привести к увеличению р с ростом концентрации Не. С другой стороны, в результате внедрения в структуру иттербия атомов гелия возможно увеличение среднего межатомного расстояния для иттербия. В этом случае, судя по поведению ГЦК Yb под давлением, можно ожидать увеличения перекрытия 6s- и 6р-зон и уменьшение р. Существенно, что в отличие от активных примесей внедрения (H, O, N, C, B), невозможен переход электронов от внедренных атомов гелия на пустую 5*d*-подоболочку иттербия или образование химических соединений, что важно для

получения более объективных суждений об изменении электронных свойств иттербия под влиянием внедренных атомов гелия.

Целью настоящей работы является проверка возможности сверхпроводящего перехода в аморфной системе Yb—He; исследование влияния гелия на электронные свойства (эффект Холла, электросопротивление, магнитосопротивление) аморфного и ГЦК иттербия, а также исследование влияния гелия на стабильность и механизмы кристаллизации аморфной фазы Yb.

2. Методика

Методика получения аморфных пленок чистых металлов и исследования их электронных свойств подробно описана в работах [12,13]. Использованы стеклянные цельносваренные ампулы с плоской полированной подложкой, в которую вварены вводы из платиновой проволоки, служащие для электрических измерений сконденсированного на подложке металлического слоя. Предварительно откачанную до давления 1,3·10⁻⁴ Па ампулу заполняли до нужного давления чистым газообразным гелием, герметически заваривали газовой горелкой и отделяли от вакуумной установки. После монтажа ампулы в гелиевом криостате и заливки в криостат жидкого гелия в ампуле создавался сверхвысокий вакуум (~1,3·10⁻¹⁰ Па) по всем компонентам воздуха при парциальном давлении гелия в интервале от 2,3·10⁻³ Па до 7 Па. Подложка омывалась жидким гелием, поэтому ее температура в процессе конденсации Yb не превышала 5 К. Геометрия пленок для изучения электросопротивления и эффекта Холла определялась формой вырезов на маске из нержавеющей стали, накладываемой на подложку (рис. 1). Магнит-



Рис. 1. Форма пленок для измерения электросопротивления и напряжения Холла: токовые контакты (1), потенциальные (2), контакты для измерения холловской разности потенциалов (3).

^{*} Валентность 3 в последнем соединении обусловлена возбужденным состоянием $5d^{1}6s^{2}$, возникающим в результате перехода одного электрона с уровня 4*f* на уровень 5*d* [11].

ное поле для исследования эффекта Холла и магнитосопротивления создавалось с помощью сверхпроводящего соленоида с индукцией В = 1,6 Тл и накладывалось перпендикулярно плоскости пленки. Для проверки зависимости напряжения Холла и магнитосопротивления от поля использовали соленоид с $B \approx 4,0$ Тл. Электросопротивление и напряжение Холла измеряли компенсационным методом с помощью потенциометра. Изучены пленки толще 50 нм. При этой толщине практически все измеряемые характеристики пленок Yb-Не перестают зависеть от нее [7,12]. Толщину пленок определяли после окончания эксперимента и вскрытия ампулы интерферометрическим методом, а при d = 50-70 нм - по оптической плотности. Максимальная погрешность при этом составляла около 15%. Этой величиной определялись, в основном, и погрешности вычисленных значений коэффициента Холла и удельной проводимости. Температуру пленки в интервале 4,2-293 К измеряли с помощью платинового термометра сопротивления.

Экспериментальные результаты

Найдено, что при парциальном давлении газообразного гелия в рабочей ампуле меньше $1,7 \cdot 10^{-1}$ Па и скорости конденсации 4–10 нм/мин такие параметры пленок как удельное электросопротивление в аморфном (ρ_a) и закристаллизованном (ρ_{a-k}) при температуре $T = T_{a-k}$ состояниях, а также гальваномагнитные характеристики (коэффициент Холла R_H и магнитосопротивление $\Delta \rho / \rho$) не отличаются в пределах погрешности от характеристик чистых пленок Yb. Энергия активации кристаллизации E, определенная методом отношения угловых коэффициентов из изотермических зависимостей $\rho(t)$ при разных температурах в процессе отжига одного образца [14] для аморфных пленок Yb— Не (получен-

Физические параметры пленок Yb и Yb-He

ных при $p < 1,7 \cdot 10^{-1}$ Па), также практически совпадает со значениями для чистых пленок Yb. Скорость фронта лавинной кристаллизации U_f, инициируемая в упомянутых пленках Yb-He локальным импульсом тока [14], не отличается существенно от U_f чистых пленок (табл. 1). Первая строка таблицы соответствует усредненным значениям для 15 чистых пленок Yb в интервале толщин 50-70 нм. Вторая строка соответствует усредненным значениям пяти таких же по толщине пленок Yb-He, полученных при следующих парциальных давлениях Не, Па: 0,9·10⁻⁴; 2,3·10⁻³; 5,7·10⁻²; 8,9·10⁻²; 1,7·10⁻¹. Для каждой отдельной пленки значения приведенных в первых двух строчках табл. 1 величин отличаются от усредненных на \pm 10%. Существенное увеличение ρ_a , ρ_{a-k} , T_{a-k} и Eнаблюдалось для пленок Yb-He, полученных при парциальном давлении гелия в рабочей ампуле большем, чем 2,7.10⁻¹ Па. Самоподдерживающаяся лавинная кристаллизация в этих образцах вообще не реализовывалась, т.е. инициирующий импульс тока переводил в кристаллическое состояние локальный участок пленки, по которому он пропускался (см. [14]), но фронт кристаллизации не распространялся самоподдерживающимся образом на остальную часть пленки. В 3-ей строке табл. 1 представлены параметры пленки Yb-He-2, сконденсированной при парциальном давлении в ампуле, равном $3,3 \cdot 10^{-1}$ Па, в 4–6 строках — при парциальном давлении He $\approx 4,4.10^{-1}$ Па (обозначим их соответственно Yb-He-3...5).

На рис. 2 показано изменение удельного электросопротивления по мере отогрева чистой пленки (кр. 1) и пленки Yb—He-2 (кр. 2). Участки кривых при $T \leq 20$ К соответствуют переходу образцов из аморфного в кристаллическое состояние. Видно резкое отличие удельных сопротивлений этих образцов

Таблица 1

Образцы	Скорость конденс., нм/мин	<i>d</i> , нм	<i>Т_{а-k},</i> К	$\frac{\Delta \rho_{a-k}}{\rho_{a}}, \%$	<i>βа</i> , мкОм∙см	<i>βа−k</i> , мкОм∙см	ρ ₂₉₃ , мкОм∙см	U _f , м/с	<i>Е</i> , кДж/моль
Yb	5-10	50-70	13,2	86	125	17	23	9,0	3,35
Yb-He-1	4,5-8,5	50-70	14,0	87	117	15	21	8,7	3,30
Yb-He-2	≤ 10	110	17,0	67	350	117	24,5	_	_
Yb-He-3	9,5	190	18,0	54	397	181	25,3	_	_
Yb-He-4	11,5	115	19,0	57	414	178	25	_	4,20
Yb-He-5	>100	700	18,0	38	900	558	25	_	4,80

Примечание: $\Delta \rho_{a-k} = \rho_{a-k} - \rho_{a}$



Рис. 2. Изменение удельного электросопротивления пленок чистого Yb (1) и Yb-He-2 (2) при отогреве

как в аморфном состоянии, так и непосредственно после перехода. Однако после отогрева до 350 К удельное электросопротивление пленки Yb-He-2 при комнатной температуре практически не отличается от удельного электросопротивления чистой пленки Yb и использованного в работе массивного отожженного металла. Пленка Yb-He-5, полученная с высокой скоростью конденсации, в свежесконденсированном состоянии имела р ≈ 900 мкОм·см. В процессе а – k-перехода при температуре 18–20 К сопротивление уменьшилось на 37% и затем медленно уменьшалось до ~ 50 мкОм см при 320 К. После помещения ампулы в печь с температурой ≈ 450 К и выдержки при этой температуре в течение нескольких минут удельное сопротивление этой пленки при комнатной температуре совпало (в пределах погрешности) со значением р чистых пленок и исходного массивного металла, т.е. составило ≈ 25 мкОм см.

При парциальном давлении гелия в рабочей ампуле ≈ 7 Па на подложке образуется черный конденсат с ровной поверхностью. Он легко процарапывается до стекла медным или даже деревянным острием. Очевидно, в этом случае образуется порошок иттербия, черный цвет которого объясняется тем обстоятельством, что размер порошинок намного меньше длины световой волны и коэффициент поглощения порошка близок к единице. Тем не менее между порошинками имеется хороший контакт, так как непосредственно после конденсации удельное электросопротивление такого конденсата составляет несколько тысяч мкОм·см, $R_H \approx 6.5 \cdot 10^{-10} \text{ м}^3/\text{Кл}$, а после отогрева до комнатной температуры $\rho_{4,2} \approx 151 \text{ мкОм·см}$, $\rho_{293}/\rho_{4,2} \approx 1.15$, $R_H = 12.7 \cdot 10^{-10} \text{ M}^3/\text{Кл}$ (см. Yb—He-6 в табл. 2). Ни в одном из образцов Yb—He никаких признаков сверхпроводимости не было обнаружено вплоть до 1.5 К.

Известно, что ГЦК Yb является скомпенсированным металлом [15], т.е. в терминах двухзонной модели [16–18] обладает равным числом подвижных электронов и дырок. В закристаллизованных пленках Yb—He-1...5 на различных стадиях их отогрева при T = 4,2 К были измерены удельная проводимость, магнитосопротивление и коэффициент Холла. Зависимость магнитосопротивления от поля была близка к квадратичной ($\Delta \rho / \rho \sim H^2$), и мы применили формулы двухзонной модели для расчета плотности и подвижности носителей в этих пленках

$$\sigma = \rho^{-1} = en(\mu_e + \mu_h);$$

$$R_H = \frac{1}{en} \frac{\mu_h - \mu_e}{\mu_h + \mu_e}; \quad \frac{\Delta \rho}{\rho B^2} = \mu_e \mu_h$$

Здесь σ — удельная проводимость; $n = n_e = n_h$ — количество электронов или дырок в единице объема; μ_e и μ_h подвижности электронов и дырок; B — магнитная индукция.

Заметим, что в аморфном состоянии магнитосопротивление пленок Yb [8] и исследованных в настоящей работе пленок Yb—He аномально, что обусловлено квантовыми поправками к больцмановской проводимости [19]. В этом случае использование двухзонной модели представляется не бесспорным, хотя попытка описания с ее помощью (еще до появления теории квантовых поправок) была предпринята [7].

В таблице 2 представлены для сравнения электронные характеристики чистой пленки Yb и пленки Yb – He-2 при T = 4,2 К непосредственно после a - k-перехода и после отогрева до температур, близких к комнатной. Основное отличие заключается в том, что плотность носителей в чистых кристаллических пленках Yb после отогрева до 25 К только незначительно (на 10–20 %) увеличивается при отогреве до комнатной температуры. Гораздо более существенный рост параметра n (коррелирующий с уменьшением ρ) наблюдается в отожженных пленках Yb – He-(2...5). Интересно, что плотность носителей при 4,2 К в сажеобразном образце Yb – He-6 после отогрева до комнатной температуры по поряд-

^{*} Значение ρ для исходного Yb после прокатки составляло 35,7 мкОм·см, после отжига при *T* = 400° C в течение 2-х часов ≈ 22,4 мкОм·см.

Таблица 2

Образец	<i>d</i> , нм	<i>Т</i> _w , К	ρ _{4,2} , мкОм·см	$R_H,$ 10 ⁻¹⁰ $\frac{M^3}{K\pi}$	^{Δρ} / _ρ (1,6 Тл), 10 ⁻⁴	$10^{-2} \frac{\mathrm{m}^2}{\mathrm{B} \cdot \mathrm{c}}$	$10^{-2} \frac{\mathrm{m}h}{\mathrm{B} \cdot \mathrm{c}}$	$n_e = n_h,$ 10^{20} cm^{-3}
Yb	105,0	25	24,4	8,9	4,7	1,20	1,57	9,23
чистый		293	11,6	7,6	15,8	2,21	2,87	10,60
Yb-He-2	110,0	25	117,0	6,35	1,3	0,72	0,77	3,58
		350	11	8,20	17,6	2,32	3,07	10,53
Yb-He-6	540,0	293	151	12,7	0,6	0,47	0,55	4,06

Электронные характеристики пленок Yb и Yb-He

ку величины близка к значению для чистых пленок (см. табл. 2).

Изменение плотности и подвижности носителей при 4,2 К в зависимости от удельного электросопротивления пленок Yb—He (на разных стадиях их отогрева) показано на рис. З. Интересно, что в ин-



Рис. 3. Увеличение плотности (*a*) и подвижности (*б*) носителей заряда в кристаллических плёнках Yb—He-2 и Yb—He-3 при 4,2 К с уменьшением их электросопротивления при отогреве от 25 до 350 К.

тервале удельных сопротивлений 150–50 мкОм-см плотность носителей практически постоянна и только в результате дальнейшего отжига быстро увеличивается до значений, близких к значениям чистых пленок (рис. 3,*a*). В то же время подвижности электронов и дырок монотонно возрастают при уменьшении ρ (рис. 3,*б*).

Обсуждение результатов

Известно, что примеси кислорода, азота, углерода, бора, фосфора и др. существенно задерживают рост кристаллов в аморфных пленках чистых металлов [12,20]. Стабилизирующая способность атомов гелия, как следует из настоящей работы, гораздо меньше. Существует несколько гипотез, пытающихся объяснить механизмы стабилизации аморфного состояния металла при добавлении второго компонента [20]. Согласно гипотезе Бенетта и др. [21], для реализации кристаллизации примесные атомы, заполняющие поры в аморфной структуре металла, должны сместиться, по крайней мере, на одно межатомное расстояние. Тогда рост кристаллов будет ограничен частотой прыжков примесных атомов в положения, обеспечивающие более высокую степень локального порядка атомов металла. Постоянная времени этого процесса τ должна быть на уровне постоянной времени диффузии примесных атомов [22]. То есть значение т должно быть гораздо больше, чем для движения межфазной поверхности аморфный металл-кристалл в чистых системах, которое происходит путем гораздо меньших атомных смещений (по бездиффузионному механизму [5]). В этом и заключается, согласно [21], механизм стабилизации аморфного состояния металла примесями. Однако в случае низкотемпературных конденсатов иттербий-гелий наблюдается иная картина.

При конденсации паров иттербия в остаточной атмосфере гелия на охлаждаемую жидким гелием

подложку попадание атомов гелия в металлический конденсат осуществляется путем криозахвата [23]: попадающие на подложку атомы гелия замуровываются поступающим потоком металлических атомов. В ГЦК Уb радиус октаэдрического междоузлия составляет примерно 0,08 нм, тетраэдрического — 0,043 нм [24], а на каждый атом ГЦК Үb приходится одно октаэдрическое междоузлие. Поскольку плотность аморфного иттербия ниже плотности ГЦК Үb (в аморфном иттербии при одинаковых с ГЦК Yb кратчайших межатомных расстояниях меньше координационное число [4]), можно предположить наличие в аморфном иттербии большого количества субмикропор, размером > 0,08 нм. Многочисленные работы по аннигиляции позитронов также свидетельствуют, что в структуре аморфных веществ имеются вакансионно-подобные дефекты с радиусом до 0,7 r_0 [25], где r_0 – радиус атома основного компонента (для Yb $r_0 = 0,199$ нм). Такие субмикропоры, по-видимому, и заполняются атомами гелия (радиус которых 0,122 нм), что мало сказывается на электронных свойствах конденсата, когда давление в ампуле не превышает $1,7 \cdot 10^{-1}$ Па, а скорость конденсации < 10 нм/мин. В этом случае не отличаются от чистых пленок иттербия и параметры кристаллизации — энергия активации превращения и скорость распространения фронта лавинной кристаллизации (см. табл. 1). В процессе кристаллизации иттербия атомы гелия занимают, по-видимому, октаэдрические междоузлия ГЦК решетки. Процесс этот должен быть бездиффузионным, так как энергия активации кристаллизации обсуждаемой серии пленок Yb-He-1 такая же, как и в случае чистых пленок иттербия.

Действительно, если бы переход атомов иттербия через границу аморфной и кристаллической фаз в процессе кристаллизации образцов иттербий—гелий зависел от диффузии атомов гелия, то и энергия активации превращения соответствовала бы энергии активации диффузии гелия в иттербии. Очевидно, что высокая стабилизирующая способность внедренных в аморфную структуру металла атомов О, N, C, P и B обусловлена (в отличие от примеси гелия) не только необходимостью их диффузии для реализации кристаллизации, но и существованием сильного взаимодействия активных атомов примеси с атомами металла [20,21].

Как было показано выше, увеличение парциального давления гелия в ампуле до $p > 2,7 \cdot 10^{-1}$ Па и скорости конденсации $v \ge 10$ нм/мин приводит к тому, что в несколько раз увеличивается удельное электросопротивление неотожженных пленок (Yb—He-2...5) по сравнению с чистыми пленками иттербия. Более высокое удельное электросопротивление пленки Yb—He-5 по сравнению с пленками Yb—He-3 и 4 (хотя все они получены при одинаковом парциальном давлении гелия) связано с высокой скоростью конденсации этой пленки. Повышение скорости испарения при постоянном давлении газа действует аналогично повышению давления при постоянной скорости испарения [26].

В случае пленок Yb-He-2...5, кроме конденсации молекулярного потока, характерной для более высокого вакуума, наблюдались признаки осаждения частиц металла объемной конденсации, а именно: размытость границ молекулярной тени в результате рассеяния молекулярного потока. Процесс взаимодействия между атомами металла не требует энергии активации. Поэтому практически любая встреча между испаренными атомами иттербия, возникающая в плохом вакууме, приводит к их соединению на пути к подложке. Сталкиваясь между собой, атомы металла могут образовывать частицы, состоящие из двух, трех и вообще самого различного количества атомов. Одновременное осаждение на подложку дисперсных частиц, образовавшихся в результате объемной конденсации, и конденсация молекулярного потока, который попутно обеспечивает внедрение порошковых частиц, приводит к реализации пленочных материалов с высокой концентрацией микропор и развитой удельной поверхностью [27]. Этим фактором, в основном, можно объяснить высокое удельное электросопротивление и существенно меньшую (по сравнению с чистыми пленками иттербия) плотность носителей в образцах Yb-He-2...5 непосредственно после их кристаллизации (см. табл. 2). Влияние на удельное электросопротивление возможного увеличения межатомных расстояний (из-за внедрения в решетку Yb атомов гелия), по-видимому, должно быть обратным, так как в ГЦК Үb значение р увеличивается с давлением [1,2].

Известно, что в условиях интенсивного выделения скрытой теплоты перехода (и плохого теплоотвода) возможно самоускорение кристаллизации аморфных веществ, когда скорость единого фронта превращения достигает десятков метров в секунду. Природа этого явления, названного лавинной или взрывной кристаллизацией, изучена в аморфных пленках ряда веществ [5,28], к числу которых относятся и аморфные пленки чистого иттербия.

Представляется, что основной причиной отсутствия в образцах Yb—He-2...5 механизма лавинной кристаллизации является значительно меньшая, по сравнению с пленками Yb и Yb—He-1, величина скрытой теплоты перехода на единицу объема пленки в результате более высокой степени микропористости.

Для чистых аморфных металлов теплота, выделяемая в процессе их кристаллизации, составляет примерно половину теплоты плавления (см. [5,12]). Можно предположить, что теплота кристаллизации единицы объема пленки иттербий-гелий существенно меньше, чем для чистых пленок иттербия не только за счет наличия микро- и субмикропор. Судя по высоким значениям удельного электросопротивления пленок Yb-He-2...5 после кристаллизации (превышающим р жидкого Yb [29]), они сохраняют, вероятно, высокую энергию разупорядочения, которая уменьшается путем освобождения тепла во время дальнейшего отжига. Такая ситуация наблюдается, например, при отжиге чистых пленок олова, свинца, меди и золота, предельно искаженных в результате конденсации при 4,2 К, но не образующих аморфной фазы [30]. Ход зависимости ρ(T) низкотемпературных конденсатов этих металлов [20,31] в интервале 4,2-300 К такой же, как и в пленках Yb-He-2...5 после *a* – *k*-перехода (см. рис. 2, кр. 2). Тот факт, что плотность носителей в пленках Yb-He-2...5 практически не зависит от их удельного электросопротивления в интервале 50-150 мкОм см (см. рис. 3,а) может быть связан с тем, что концентрация микропор здесь не меняется, а уменьшение р (рис. 2, кр. 2) обусловлено исправлением решетки Yb. Последнее сопровождается увеличением подвижности носителей (рис. 3,6). Дальнейшее уменьшение удельного электросопротивления и рост плотности носителей при увеличении температуры отжига связаны, по-видимому, с выходом гелия из образца и зарастанием микропор, как в случае отжига пленок селена, полученных лазерным напылением в атмосфере кислорода [32]. В работе [32] стадии кристаллизации пленок селена предшествовала стадия выделения избыточного газа в виде пузырьков, замурованных в аморфной матрице. Образование пузырьков кислорода (или аргона [33]) наблюдали и в процессе кристаллизации (при $T \approx 362$ K) аморфных пленок золота, полученных при парциальном давлении газа ≥ 90 Па и температуре подложки, близкой к комнатной. Очень низкие значения температуры и энергии активации кристаллизации пленок Yb-He-2...5 (см. табл. 1) исключают необходимость диффузии гелия для перехода. Образование пузырьков гелия в кристаллических пленках Yb-He-2...5, если и происходит, то при существенно более высоких, по сравнению с T_{a-k} , температурах. Однако нельзя исключить влияние на морфологию пленок возможности безактивационного подбарьерного туннелирования атомов Не при низких температурах.

К сожалению, мы не располагаем техническими возможностями (в частности, низкотемпературным

электронным микроскопом), чтобы проследить динамику изменения морфологии пленок Yb—He- по мере их отжига от 4,2 до 300–350 К и связать это изменение с изменением электронных параметров изученных пленок.

В излучении хрома была снята рентгенограмма пленки Yb—He с параметрами, близкими к образцу Yb—He-5 после ее отогрева до комнатной температуры ($\rho_{293} = 60 \text{ мкOM} \cdot \text{см}$). Исключительно все дифракционные линии рентгенограммы принадлежали ГЦК Yb. Фотометрирование рентгенограммы показало, что постоянная решетки этой пленки практически не отличается от значения для исходного массивного иттербия.

Заключение

Электронные характеристики пленок иттербия, полученных низкотемпературной конденсацией при парциальном давлении гелия ниже $1,7 \cdot 10^{-1}$ Па (и *p* ≤ 1,3·10⁻¹⁰ Па для остальных газов) практически не отличаются от характеристик пленок иттербия, полученных в сверхвысоком вакууме. Также обычны в этом случае и механизмы кристаллизации пленок Yb-He – возможна как изотермическая кристаллизация при отогреве, так и лавинная кристаллизация, инициированная при 4,2 К локальным импульсом тока или спонтанно возникающая при достижении пленкой критической толщины. Изменение электронных свойств и подавление механизма самоподдерживающейся лавинной кристаллизации иттербия наступает в результате его испарения при парциальном давлении гелия $p > 2,7 \cdot 10^{-1}$ Па. В этом случае кроме конденсации молекулярного потока наблюдается и объемная конденсация комплексов атомов, что приводит, очевидно, к существенному увеличению пористости конденсата (его разрыхлению). Тем не менее и здесь при отогреве до T = 350-450 К параметры пленок Yb становятся близкими к параметрам пленок, полученных в сверхвысоком вакууме. При парциальном давлении гелия больше 7 Па конденсат приобретает порошкообразный вид черного цвета. Однако он сохраняет признаки металла - металлическую проводимость и высокую плотность носителей заряда, что свидетельствует о том, что порошинки представляют собой чистый металл и сохраняют контакт между собой. Никаких признаков сверхпроводимости в пленках Yb-He не обнаружено вплоть до 1,5 К.

- 1. М.Н. Павловский, ЖЭТФ 73, 237 (1977).
- S. Minomura, G. Fujii, O. Shimomura, H. Nagano, and S. Tanuma, Proc. 12th Int. Conf. Low Temp. Phys., Kyoto, 1970, Tokyo (1971), p. 567.

- 3. Б.Г. Лазарев, В.М. Кузьменко, А.И. Судовцов, Р.Ф. Булатова, *ДАН СССР* **184**, 587 (1969).
- Ю.Ф. Комник, Л.А. Яцук, в сб.: Нитевидные кристаллы и тонкие пленки, ч. 2, Воронеж (1975), с. 85.
- 5. В.А. Шкловский, В.М. Кузьменко, *УФН* **157**, 311 (1989).
- E. Bucher, P.H. Schmidt, A. Jayaraman, K. Antres, J.P. Maita, K. Nassan, and P.D. Dernier, *Phys. Rev.* B2, 3911 (1970).
- В.М. Кузьменко, В.И. Мельников, А.И. Судовцов, ЖЭТФ 71, 1503 (1976).
- В.М. Кузьменко, А.Н. Владычкин, В.И. Мельников, А.И. Судовцов, ЖЭТФ 86, 180 (1984).
- N. Jacobsen, C.G. Granqvist, T. Claeson, Z. Phys. B25, 265 (1976).
- A.E. Curzon, O.J. Singh, Less-Common Metals 39, 227 (1975).
- К. Тейлор, М. Дарби, Физика редкоземельных соединений, Мир, Москва (1974).
- 12. В.М. Кузьменко, Б.Г. Лазарев, В.И. Мельников, А.И. Судовцов, УФЖ **21**, 883 (1976).
- В.М. Кузьменко, А.Н. Владычкин, ФТТ 41, 177 (1999).
- В.М. Кузьменко, В.И. Мельников, ЖЭТФ 82, 802 (1982).
- 15. W.R. Datars, S. Tanuma, Phys. Lett. A27, 182 (1968).
- E.H. Sondheimer and A.H. Wilson, *Proc. Roy. Soc.* A190, 435 (1947).
- 17. E.H. Sondheimer, Proc. Roy. Soc. A193, 484 (1948).
- 18. M. Kohler, Ann. Phys. 6, 18 (1949).
- Б.Л. Альтшулер, А.Г. Аронов, А.И. Ларкин, Д.Е. Хмельницкий, ЖЭТФ 81, 768 (1981).
- 20. Ю.Ф. Комник, *ФНТ* **8**, 3 (1982).
- 21. C.H. Bennet, D.E. Polk, and D. Turnbull, Acta Metallurg. 19, 1295 (1971).
- 22. К. Судзуки, Х. Фудзимори, К. Хасимото, Аморфные металлы, Металлургия, Москва (1987).
- 23. Э. Тренделенбург, *Сверхвысокий вакуум*, Мир, Москва (1966).
- 24. Е. Фромм, Е. Гебхардт, *Газы и углерод в металлах*, Металлургия, Москва (1980).

- 25. Ю. В.Бармин, И.В. Золотухин, в сб: Физикохимия аморфных (стеклообразных) металлических материалов, Наука, Москва (1987), с. 80.
- J. Hengevoss and E.A. Trendelenburg, Naturforsch A18, 481 (1963).
- 27. Л.С. Палатник, И.Х. Тартаковская, О.И. Ковалева, ДАН СССР **260**, 335 (1981).
- В.М. Кузьменко, Зарубежная радиоэлектроника. Успехи современной радиоэлектроники, № 5, 17 (2002).
- H.J. Güntherodt, E.Hauser, and H.U. Künzi, *Phys. Lett.* A50, 313 (1974).
- 30. W. Mönch, Z. Phys. 164, 229 (1961).
- К.А. Нейгебауэр, в кн.: Физика тонких пленок 2, Мир, Москва (1967), с. 13.
- 32. А.Г. Багмут, В.Д. Сарана, Ю.Г. Машкаров, Вопросы атомной науки и техники, сер.: ядерно-физические исследования, вып. 1(27), 63 (1994).
- 33. А.Г. Багмут, *Изв. Акад. наук, сер. физ.* **57**, 112 (1993).

Properties of low-temperature ytterbium condensates grown in helium gas

V.M. Kuz'menko and A.N. Vladychkin

The singularities of electronic properties and crystallization mechanisms of ytterbium amorphous films, obtained by low-temperature condensation in a gas helium medium (at a partial pressure of $2,3\cdot10^{-3}-7$ Pa) are investigated. The changes of conductance, magnetoresistance and Hall effect with annealing the films are studied. The respective changes of carries density and mobility are calculated within the framework of the two-band model. A model of transformating the structure of the low-temperature condensates of gas-saturated ytterbium on an annealing is proposed.