

АНОТАЦІЯ

Ду Дзюньї. Модифікація опроміненням та високим тиском магніторезистивних характеристик монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з заданою топологією дефектної структури – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 Фізика та астрономія (Галузь знань 10 Природничі науки). – Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти та науки України, Харків, 2025.

Дослідження температурної залежності поздовжньої та поперечної провідності монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з різним вмістом празеодиму продовжує залишатися одним з найактуальніших напрямків фізики високотемпературної надпровідності (ВТНП), оскільки, не дивлячись на великий накопичений літературний матеріал, дотепер неясними залишаються, як механізми, так і мікроскопічна природа високотемпературної надпровідності, відкритої в кінці минулого століття в нестехіометричних надпровідних купратах.

Дисертація присвячена дослідженням температурних залежностей поздовжнього та поперечного електроопору монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з різним вмістом празеодиму, в тому числі в умовах дії високого тиску та радіаційного опромінення. Досліджувана сполука є надпровідником другого роду, її резистивні характеристики та анізотропія процесів переносу в інтервалі від області температур надпровідного стану до кімнатних температур є чутливою до структурних змін кристалічної ґратки. Ступінь допущення киснем впливає на кристалічну структуру сполуки й кардинальним чином змінює механізми електричної провідності монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. З іншого боку, створення радіаційних дефектів різної концентрації та морфології в широкому інтервалі доз опромінення також впливає на вказані властивості досліджуваної речовини. У дисертаційній роботі досліджені закономірності та механізми впливу опромінення на структуру та процеси електропереносу у сполуках системи 1 – 2 – 3 на основі сучасних уявлень про природу провідності в шаруватих кристалічних сполуках ВТНП.

Незважаючи на досить велику кількість наукових праць, присвячених вивченню впливу різного роду чинників на електротранспорт в системі $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, у науковій літературі майже відсутні праці, в яких описані результати досліджень щодо вивчення впливу опромінення на анізотропію процесів розсіювання носіїв заряду як у нормальному стані, так і поблизу надпровідного переходу, псевдощільнну та флуктуаційну аномалії, а також некогерентний електротранспорт. Оскільки, відповідно до сучасних уявлень, саме ці незвичайні фізичні явища, що спостерігаються у ВТНП – сполуках у нормальному (не надпровідному) стані, є важливими для розуміння фізичної суті мікроскопічної природи ВТНП, яка все ще залишається нез'ясованою, незважаючи на більш ніж 37 – річну історію інтенсивних теоретичних та експериментальних досліджень, проведених в цій галузі фізики твердого тіла.

Як відзначалося вище, опромінювання електронами ВТНП сполук дає можливість, без зміни складу зразків, створювати в них дефекти різної концентрації та морфології. Створення ансамблю дефектів заданої концентрації та природи відкриває можливості керування, зокрема, електротранспортними властивостями зразка як у нормальному, так і в надпровідному станах. Враховуючи перспективу використання високотемпературних надпровідників в якості надчутливих датчиків та ліній передачі електричного струму з малими втратами енергії, що працюють в інтервалі температур кипіння рідкого азоту, створення так званої «керованої» дефектної структури у надпровіднику має значне фундаментальне та практичне значення. Внаслідок складності будови досліджуваної сполуки, визначення розподілу дефектів по об'єму зразка, стабільності дефектного складу та залежності транспортних параметрів від виду дефектів кристалічної структури у широкому інтервалі температур потребує значних експериментальних зусиль.

Дисертаційна робота містить п'ять розділів.

У першому розділі «Кристалохімічна структура та нормальна провідність ВТНП – купратів в умовах варіювання дефектного складу і впливу опромінення» проведена систематизація наявних літературних джерел

про структуру та основні фізичні властивості сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з різними значеннями кисневого індексу.

Розділ містить загальну інформацію про кристалічну будову сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та структурні дефекти, що їй притаманні. Розглянуто результати експериментальних та теоретичних досліджень впливу структурних дефектів різної морфології та дії зовнішніх екстремальних чинників на транспортні властивості надпровідника $\text{YPrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ у нормальному (ненадпровідному) стані, некогерентний електротransпорт та можливі механізми виникнення надлишкової провідності і, зокрема, псевдоцилінної аномалії та флуктуаційної паравовідності при температурах вище критичної (T_c) та 2D – 3D кросовер. Розглянуто різні теоретичні моделі цього явища. Також розглянуті теоретичні моделі Асламазова-Ларкіна та Макі-Томпсона для флуктуаційної провідності безпосередньо поблизу T_c ($T > T_c$) з урахуванням наявності магнітного поля.

У розділі проаналізовані наявні експериментальні та теоретичні дані з цього питання. Підкреслена обмеженість та суперечливість даних, присвячених саме питанням впливу екстремальних зовнішніх факторів.

Наведені експериментальні факти, що свідчать на користь правильності гіпотези про особливості дії доповнення ізовалентної та неізовалентної заміни рідкоземельними та іншими елементами в оксидному надпровіднику $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, зокрема умов виникнення, так званої «аномалії празеодиму».

У другому розділі «Експериментальна техніка та методики досліджень» описані методики синтезу монокристалів $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{Re} = \text{Y}, \text{Pr}$). Монокристали $\text{YPrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ вирощували за розчин-розплавним методом у золотому тиглі. Зразки опромінювалися електронами з енергіями від 0,5 до 2,5 МеВ при $T \lesssim 10$ К. Доза опромінення $\Phi = 10^{18} \text{ см}^{-2}$ електронами з енергією 2,5 МеВ створює усереднену по всіх підгратках концентрацію дефектів 10^{-4} дпа (зміщень/атом). Послідовність вимірювань була наступною. Спочатку вимірювали температурні залежності опору зразків до опромінення. Потім знижували температуру до 5 К та проводили опромінення. Інтенсивність пучка була такою, що температура зразка в процесі опромінення не перевищувала 10 К. Після опромінення зразка дозою його нагрівали до температури 300 К та,

поступово знижуючи температуру зразка, проводили вимірювання температурних залежностей опору при $T < 300$ К. Електроопір вимірювали на постійному струмі до 10 мА стандартною чотирьох контактною методикою.

Гідростатичний тиск створювали в автономній камері типу поршень-циліндр. Для визначення ступеня впливу структурної релаксації вимірювання проводили безпосередньо після зміни тиску, а також після витримки при постійному тиску протягом декількох діб. Температуру зразка визначали платиновим терморезистором.

У *третьому розділі* «**"Пружні" та "непружні" двійники та піннінг вихорів Абрикосова в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$** » представлено результати досліджень закріплення магнітних вихорів (ефект піннінга) на «непружних» та «пружних» двійниках, клиновидні вершини яких в напрямку двійникування не виходять на поверхню кристала. Ефективність дії «пружних» двійників як центрів піннінгу вивчали, вимірюючи величину критичного транспортного струму J_c в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

Представлені експериментальні дані свідчать про те, що межі «пружних» двійників є ефективними центрами піннінга ліній магнітного потоку в монокристалах досліджуваної сполуки. Основними центрами закріплення вихорів є дислокаційні скупчення, які утворюються в вершинах «пружних» двійників. Лінії дислокацій розташовуються в площині двійників і, при збігові орієнтації магнітних вихорів та дислокаційних ліній, зменшується енергія вихорів, з'являється сила піннінга, що закріплює їх місце розташування, що в підсумку і приводить до збільшення критичної густини транспортного електричного струму.

У *четвертому розділі* «**Вплив тиску на критичну температуру та електро опір монокристалів $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$** » наведено результати досліджень впливу високого гідростатичного тиску до 11 kbar на провідність у базисній ab-площині середньо допованих празеодимом ($x \approx 0,23$) монокристалів $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Показано, що, на відміну від чистих зразків $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, з оптимальним вмістом кисню, прикладання високого тиску сприяє фазовому розшаруванню в базисній площині монокристалів $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Обговорюються можливі механізми впливу допування празеодимом та високого тиску на двохсхідчастий резистивний перехід у надпровідний стан. Було встановлено, що у нормальному стані провідність є металевою та обумовлюється розсіюванням на фононах (режим Блоха-Грюнайзена) та дефектах. Флуктуаційну провідність розглянуто в межах теоретичної моделі Лоренца-Доніаха. Гідростатичний тиск приводить до зменшення анізотропії, залишкового та фононного опорів. Температура Дебая не залежить від тиску. Обговорюється можливість застосування формули МакМіллана при наявності в системі значної анізотропії. Надлишкова провідність $\Delta\sigma(T)$ підкоряється експоненціальній температурній залежності в широкому діапазоні температур $T_f < T < T^*$. Залежність $\Delta\sigma(T) \sim (1 - T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T)$ інтерпретується в термінах теорії середнього поля, де T^* - середньопольова температура переходу в псевдоцілінний стан, а температурна залежність псевдоціліни задовільно описується в межах теорії переходу БКШ-БЕК.

П'ятий розділ «Вплив радіаційних та домішкових дефектів на флуктуаційну провідність монокристалів $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ». Досліджено вплив середніх доз (від 10^{19} до 10^{20} cm^{-2}) опромінення швидкими електронами на надлишкову провідність оптимально допованих киснем монокристалів $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Вплив опромінення порівняний зі впливом допування празеодимом. Показано, що опромінення електронами та збільшення ступеня допування празеодимом ($0.0 \leq z \leq 0.5$) приводить до значного розширення температурного інтервалу існування надлишкової провідності, тим самим звужуючи область лінійної залежності $\rho(T)$ у ab -площині. Встановлено, що при дозах $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19}$ cm^{-2} значення величини поперечної довжини когерентності $\xi_c(0)$ збільшується зі зростанням D приблизно в 3 рази, та більш ніж у чотири рази у міру підвищення вмісту празеодиму у зразку до $z \approx 0.42$. При цьому в обох випадках зміщується за температурою точка 2D-3D кросовера. На відміну від випадку опромінення малими дозами ($D \leq 10^{19}$ cm^{-2}) та допування празеодимом до концентрацій $z \leq 0.39$, опромінення середніми дозами та допування празеодимом при більш високих концентраціях приводить до немонотонної залежності поперечної довжини когерентності $\xi_c(0)$

з характерними максимумами при $D \sim 7-8 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ та $z \approx 0.42$, що може бути пов'язане із загальним пригніченням надпровідних характеристик.

Головні наукові результати отримані у роботі, є наступними.

1. Вперше встановлено, що межі «пружних» двійників є ефективними центрами піннінга ліній магнітного потоку в монокристалах досліджуваної сполуки.
2. Визначено, що основними центрами закріплення вихорів є дислокаційні скупчення, які утворюються в вершинах «пружних» двійників. Лінії дислокацій розташовуються в площині двійників і, при збігові орієнтації магнітних вихрів та дислокаційних ліній, зменшується енергія вихорів, з'являється сила піннінга, що закріплює їх місце розташування, а, в підсумку, і приводить до збільшення критичної густини транспортного електричного струму.
3. Вперше встановлено, що, на відміну від чистих зразків $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню, в монокристалах $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ прикладання високого тиску приводить до фазового розшарування в базисній площині.
4. Встановлено, що у нормальному стані провідність є металевою та обмежується розсіюванням на фононах (режим Блоха-Грюнейзена) та дефектах.
5. Показано, що флуктуаційна провідність задовільно описується в межах моделі Лоренца-Доніаха.
6. Встановлено, що гідростатичний тиск приводить до зменшення залишкового та фононного опорів. Температура Дебая та довжина когерентності не залежать від тиску.
7. Показано, що надлишкова провідність $\Delta\sigma(T)$ підкоряється експоненціальній температурній залежності в широкому діапазоні температур $T_f < T < T^*$. Залежність $\Delta\sigma(T) \sim (1 - T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T)$ інтерпретується в термінах теорії середнього поля, де T^* - середньопольова температура переходу в

псевдощілинний стан, і температурна залежність псевдощілини задовільно описується в межах теорії переходу БКШ-БЕК.

8. Вперше досліджено вплив середніх доз (від 10^{19} до 10^{20} cm^{-2}) опромінення швидкими електронами та зміни концентрації празеодиму в інтервалі $0.0 \leq z \leq 0.5$ на надлишкову провідність оптимально допованих киснем монокристалів $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.
9. Вперше показано, що опромінення електронами та збільшення ступеня допування празеодимом приводить до значного розширення температурного інтервалу існування надлишкової провідності, тим самим звужуючи область лінійної залежності $\rho(T)$ у ab -площині.
10. Встановлено, що при дозах $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19}$ cm^{-2} значення величини поперечної довжини когерентності $\xi_c(0)$ збільшується зі зростанням D приблизно в 3 рази та більш ніж у чотири рази у міру підвищення вмісту празеодиму у зразку до $z \approx 0.42$. При цьому в обох випадках зміщується за температурою точка 2D-3D кросовера.
11. Показано, що на відміну від випадку опромінення малими дозами ($D \leq 10^{19}$ cm^{-2}) та допування празеодимом до концентрацій $z \leq 0.39$, опромінення середніми дозами та допування празеодимом при більш високих концентраціях приводить до немонотонної залежності поперечної довжини когерентності $\xi_c(0)$ з характерними максимумами при $D \sim 7-8 \cdot 10^{19}$ cm^{-2} та $z \approx 0.42$, що може бути пов'язане із загальним пригніченням надпровідних характеристик.

Ключові слова: монокристали $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, надлишкова провідність, опромінення, швидкі електрони, 2D-3D кросовер, пружні двійники, піннінг, допінг, гідростатичний тиск, анізотропія, розсіювання, температура Дебая.