

Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна
Міністерство освіти та науки України

Кваліфікаційна наукова
праця на правах рукопису

Ду Дзюньї (Junyi Du)

УДК 536.48:536.24:539.219.1(043.5)

ДИСЕРТАЦІЯ
«МОДИФІКАЦІЯ ОПРОМІНЕННЯМ ТА ВИСОКИМ ТИСКОМ
МАГНІТОРЕЗИСТИВНИХ ХАРАКТЕРИСТИК МОНОКРИСТАЛІВ
 $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ З ЗАДАНОЮ ТОПОЛОГІЄЮ ДЕФЕКТНОЇ
СТРУКТУРИ»

Спеціальність 104 – Фізика та астрономія

(Галузь знань 10 – Природничі науки)

Подається на здобуття ступеня доктора філософії

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело.

_____ Ду Дзюньї

Науковий керівник: Вовк Руслан Володимирович, доктор фізико-математичних наук, професор.

Харків – 2025

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 допування 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 $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 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 електротранспорт та можливі механізми виникнення надлишкової провідності і, зокрема, псевдоцилінної аномалії та флуктуаційної парaproвідності 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 доування 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 $T \lesssim 10 \text{ K}$. 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 K та проводили опромінення. Інтенсивність пучка була такою, що температура зразка в процесі опромінення не перевищувала 10 K. Після опромінення зразка дозою його нагрівали до температури 300 K та, поступово знижуючи температуру зразка, проводили вимірювання температурних залежностей опору при $T < 300 \text{ K}$. Електроопір вимірювали на постійному струмі до 10 mA 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 пінінга, 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 $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ » наведено результати досліджень впливу високого гідростатичного тиску до 11 kbar на провідність у базисній ab -площині середньо допованих празеодимом ($x \approx 0,23$) монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Показано, що, на відміну від чистих зразків $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, з оптимальним вмістом кисню, прикладання високого тиску сприяє фазовому розшаруванню в базисній площині монокристалів $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. 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 фонах (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 псевдощілинний стан, а температурна залежність псевдощілини задовільно описується в межах теорії переходу БКШ-БЕК.

П'ятий розділ «Вплив радіаційних та домішкових дефектів на флуктуаційну провідність монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ». Досліджено вплив середніх доз (від 10^{19} до 10^{20} см^{-2}) опромінення швидкими електронами на надлишкову провідність оптимально допованих киснем монокристалів $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. 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 $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ 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 ($D \leq 10^{19} \text{ см}^{-2}$) 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 $D \sim 7-8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ 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 вихорів 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 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню, в монокристалах $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 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 псевдоцілинний стан, і температурна залежність псевдоцілини 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 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$.
 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 $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ 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 ($D \leq 10^{19} \text{ см}^{-2}$) 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 $D \sim 7-8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ 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.

СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ:

Наукові праці у фахових виданнях України, що індексуються в міжнародних наукометричних базах:

1. G.Ya. Khadzhai, V.Yu. Gres, **Junyi Du**, Z.F. Nazyrov, A.L. Solovyov, N.R. Vovk, R.V. Vovk / Influence of pressure on the critical temperature and resistivity of $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // *Functional Materials*, 2022, 29(3), стр. 346-358.
2. Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, N.R. Vovk, A.O. Komisarov, **Junyi Du**, Z.F. Nazyrov, A.V. Samoylov, E.S. Gevorkyan, R.V. Vovk. // Пружні та непружні двійники та піннінг ліній магнітного потоку (вихорів) в

монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. *Fizika Nizkikh Temperatur*, 2023, 49(4), 444–451.

Наукові праці у фахових виданнях України

3. N.A. Azarenkov, G.Ya. Khadzhai, A.V. Matsepulin, M.V. Korobkov, A.O. Komisarov, A.I. Rusalovich, **Junyi Du**, S.N. Kamchatnaya, A.Yu. Vragov, L.A. Paschenko, V.Yu. Gres, E.S. Gevorkyan, R.V. Vovk / Evolution of fluctuation conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals under the influence of medium doses of electron irradiation and doping with praseodymium. // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, Series "Physics"*. Vol. 38, p.p. 7-14 (2023).
4. L.O. Pashchenko, Junyi Du, A.O. Komisarov, Z.F. Nazarov, R.V. Vovk / Features of the crystal structure and the effect of prolonged exposure to air on the electrical transport of the 1-2-3 system compounds (review) // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, series "Physics"*, Vol. 39, p.p. 7-25 (2023).
5. Г. Я. Хаджай, В. Ф. Коршак, С. В. Савич, **Junyi Du**, Р. В. Вовк / Вплив високого тиску на температурну залежність псевдощільності монокристалів $\text{Y}_{0.66}\text{Pr}_{0.34}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, series "Physics"*, Vol.40, p.73-77 (2024).
6. Г. Я. Хаджай, В. Ф. Коршак, М. Г. Ревякіна, О. Л. Чикіна, А. О. Комісаров, О. Ю. Врагов, **Junyi Du**, Л. О. Пащенко, Р. В. Вовк / Еволюція температурних залежностей електроопору монокристалів $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в широкому інтервалі прикладеного тиску і концентрацій домішок празеодиму // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, series "Physics"*, Vol.40, p.53-58 (2024).

Наукові праці апробаційного характеру (тези доповідей на наукових конференціях) за темою дисертації:

1. Л.О. Пащенко, **Junyi Du**, А.О. Комісаров, М.В. Коробков, Р.В. Вовк

/ Модифікація електронним опроміненням поздовжнього електроопору
ВТНП-монокристалів YBaCuO // Збірник матеріалів міжнародної конференції
«Ядерна фізика на Закарпатті» (до 55-річчя відділу фотоядерних процесів ІЕФ
НАН України) 21-23 травня 2024 року.

ABSTRACT

Du Junyi. Modification of magnetoresistive characteristics of single crystals

$Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with a given typology of defect structure by irradiation and high pressure – Qualification scientific work in the form of a manuscript.

Dissertation for the degree of Doctor of Philosophy in specialty 104 – Physics and Astronomy (Field of knowledge 10 – Natural Sciences). – V. N. Karazin Kharkiv National University of the Ministry of Education and Science of Ukraine, Kharkiv, 2025.

The study of the temperature dependence of the longitudinal and transverse conductivity of single crystals of $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with different praseodymium contents continues to be one of the most relevant areas of high-temperature superconductivity (HTS) physics, since, despite the large accumulated literature, both the mechanisms and the microscopic nature of high-temperature superconductivity, discovered at the end of the last century in non-stoichiometric superconducting cuprates, remain unclear.

The dissertation is dedicated to study of the temperature dependences of the longitudinal and transverse electrical resistance of single crystals of $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with different praseodymium contents, including under conditions of high pressure and radiation exposure. The studied compound is a superconductor of the second kind, its resistive characteristics and anisotropy of transfer processes in the range from the temperature range of the superconducting state to room temperatures are sensitive to structural changes in the crystal lattice. The degree of oxygen doping affects the crystal structure of the compound and radically changes the mechanisms of electrical conductivity of single crystals of $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. On the other hand, the creation of radiation defects of different concentration and morphology in a

wide range of radiation doses also affects the specified properties of the studied substance. The dissertation work investigates the regularities and mechanisms of the influence of irradiation on the structure and processes of electrical transfer in compound systems 1 – 2 – 3 based on modern ideas about the nature of conductivity in layered crystalline HTNP compounds.

Despite a fairly large number of scientific works devoted to the study of the influence of various factors on electrical transport in the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ system, there are almost no works in the scientific literature describing the results of studies on the study of the influence of irradiation on the anisotropy of charge carrier scattering processes both in the normal state and near the superconducting transition, pseudogap and fluctuation anomalies, as well as incoherent electrical transport. Since, according to modern ideas, it is precisely these unusual physical phenomena observed in HTNPs - compounds in the normal (non-superconducting) state, that are important for understanding the physical essence of the microscopic nature of HTNPs, which still remains unclear, despite the more than 37-year history of intensive theoretical and experimental research conducted in this field of solid-state physics.

As noted above, irradiation of HTNP compounds with electrons makes it possible, without changing the composition of the samples, to create defects of different concentrations and morphology in them. The creation of an ensemble of defects of a given concentration and nature opens up the possibility of controlling, in particular, the electrical transport properties of the sample in both the normal and superconducting states. Taking into account the prospect of using high-temperature superconductors as ultrasensitive sensors and electric current transmission lines with low energy losses operating in the boiling temperature range of liquid nitrogen, the creation of the so-called "controlled" defect structure in a superconductor is of significant fundamental and practical importance. Due to the complexity of the structure of the studied

compound, determining the distribution of defects over the volume of the sample, the stability of the defect composition and the dependence of transport parameters on the type of defects of the crystal structure in a wide temperature range requires significant experimental efforts.

The dissertation contains five chapters.

In the first section **"Crystallochemical structure and normal conductivity of HTNP cuprates under conditions of varying defect composition and irradiation exposure"** a systematization of available literature sources on the structure and basic physical properties of the compounds $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ with different oxygen index values was carried out.

The section contains general information about the crystal structure of the compound $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and the structural defects inherent in it. The results of experimental and theoretical studies of the influence of structural defects of various morphologies and the action of external extreme factors on the transport properties of the superconductor $\text{YPrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ in the normal (non-superconducting) state, incoherent electrical transport and possible mechanisms of the occurrence of excess conductivity and, in particular, pseudogap anomaly and fluctuation paraconductivity at temperatures above the critical (T_c) and 2D - 3D crossover are considered. Various theoretical models of this phenomenon are considered. The theoretical models of Aslamazov-Larkin and Mackie-Thompson for fluctuation conductivity directly near T_c ($T > T_c$) taking into account the presence of a magnetic field are also considered.

The section analyzes the available experimental and theoretical data on this issue. It emphasizes the limitations and contradictions of data devoted specifically to the issue of the influence of extreme external factors.

Experimental facts are presented that testify to the correctness of the hypothesis about the peculiarities of the action of doping with isovalent and non-isovalent substitution with rare-earth and other elements in the oxide superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, in particular, the conditions for the emergence of the so-called "praseodymium anomaly".

The *second section* “**Experimental Technique and Research Methods**” describes the methods for the synthesis of $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Re = Y, Pr) single crystals. $\text{YPrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals were grown by the solution-melt method in a gold crucible. The samples were irradiated with electrons with energies from 0.5 to 2.5 MeV at $T \lesssim 10$ K. The irradiation dose $\varphi = 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ with electrons with energy 2.5 MeV creates a defect concentration averaged over all sublattices of 10^{-4} dpa (displacements/atom). The sequence of measurements was as follows. First, the temperature dependences of the resistance of the samples to irradiation were measured. Then the temperature was reduced to 5 K and irradiation was carried out. The beam intensity was such that the temperature of the sample during the irradiation process did not exceed 10 K. After irradiating the sample with a dose, it was heated to a temperature of 300 K and, gradually reducing the temperature of the sample, measurements of the temperature dependences of the resistance were carried out at $T < 300$ K. The electrical resistance was measured at a constant current of up to 10 mA using a standard four-contact method.

Hydrostatic pressure was created in an autonomous piston-cylinder chamber. To determine the degree of influence of structural relaxation, measurements were performed immediately after the pressure change, as well as after holding at a constant pressure for several days. The sample temperature was determined with a platinum thermistor.

The *third section*, **“Elastic” and “inelastic” twins and pinning of Abrikosov vortices in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals”** presents the results of studies on the pinning of magnetic vortices (pinning effect) on

"inelastic" and "elastic" twins, the wedge-shaped vertices of which in the direction of twinning do not reach the crystal surface. Efficiency of action "Elastic" twins as pinning centers were studied by measuring the value of the critical transport current J_c in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals.

The presented experimental data indicate that the boundaries of "elastic" twins are effective centers of pinning of magnetic flux lines in single crystals of the studied compound. The main centers of pinning of vortices are dislocation clusters, which are formed at the vertices of "elastic" twins. Dislocation lines are located in the plane of twins and, when the orientation of magnetic vortices and dislocation lines coincide, the energy of the vortices decreases, a pinning force appears, which fixes their location, which in result and leads to an increase in the critical density of the transport electric current.

The *fourth section*, **“The Effect of Pressure on the Critical Temperature and Electrical Resistivity of $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Single Crystals”** presents the results of studies of the effect of high hydrostatic pressure up to 11 kbar on the conductivity in the basal ab-plane of moderately praseodymium-doped ($x \approx 0.23$) $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals. It is shown that, unlike pure $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ samples with an optimal oxygen content, the application of high pressure promotes phase separation in the basal plane of $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals. Possible mechanisms of the effect of praseodymium doping and high pressure on the two-step resistive transition to the superconducting state are discussed. It was found that in the normal state the conductivity is metallic and is caused by scattering on phonons (Bloch-Grüneisen regime) and defects. The

fluctuation conductivity is considered within the theoretical Lorentz-Doniach model. Hydrostatic pressure leads to a decrease in anisotropy, residual and phonon resistances. The Debye temperature does not depend on pressure. The possibility of applying the MacMillan formula in the presence of significant anisotropy in the system is discussed. The excess conductivity $\Delta\zeta(T)$ obeys an exponential temperature dependence in a wide temperature range $T_f < T < T^*$. The dependence $\Delta\zeta(T) \sim (1 - T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T)$ is interpreted in terms of the mean-field theory, where T^* is the mean-field temperature of the transition to the pseudogap state, and the temperature dependence of the pseudogap is satisfactorily described within the theory of the BCS-BEC transition.

Section Five **"The influence of radiation and impurity defects on the fluctuation conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals."** The effect of medium doses (from 10^{19} to 10^{20} cm^{-2}) of fast electron irradiation on the excess conductivity of optimally oxygen-doped $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals was investigated. The effect of irradiation was compared with the effect of doping praseodymium. It is shown that electron irradiation and an increase in the degree of praseodymium doping ($0.0 \leq z \leq 0.5$) leads to a significant expansion of the temperature interval of the existence of excess conductivity, thereby narrowing the region of linear dependence $\rho(T)$ in the ab -plane. It is established that at doses $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ the value of the transverse coherence length $\xi_c(0)$ increases with increasing D by approximately 3 times, and more than four times as the praseodymium content in the sample increases to $z \approx 0.42$. In both cases, the 2D-3D crossover point shifts with temperature. Unlike the case of low-dose irradiation ($D \leq 10^{19} \text{ cm}^{-2}$) and praseodymium doping to concentrations $z \leq 0.39$, medium-dose irradiation and praseodymium doping at higher

concentrations leads to a non-monotonic dependence of the transverse coherence length

$\xi_c(0)$ with characteristic maxima at $D \sim 7-8 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ and $z \approx 0.42$, which may be associated with the general suppression of superconducting characteristics.

The main scientific results obtained in the work are as follows.

1. It has been established for the first time that the boundaries of "elastic" twins are effective pinning centers of magnetic flux lines in single crystals of the studied compound.
2. It has been determined that the main centers of vortex pinning are dislocation clusters that form at the vertices of "elastic" twins. Dislocation lines are located in the plane of the twins and, when the orientation of magnetic vortices and dislocation lines coincide, the energy of the vortices decreases, a pinning force appears, which fixes their location and, ultimately, leads to an increase in the critical density of the transport electric current.
3. It was established for the first time that, unlike pure $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ samples with an optimal oxygen content, in single crystals of $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ the application of high pressure leads to phase separation in the basal plane.
4. It has been established that in the normal state, the conductivity is metallic and limited by scattering on phonons (Bloch-Grüneisen regime) and defects.
5. It is shown, that the fluctuation conductivity is satisfactorily described within the Lorentz-Doniach model.
6. It is found, that hydrostatic pressure leads to a decrease in the residual and phonon resistances. The Debye temperature and coherence length

are independent of pressure.

7. It is shown that the excess conductivity $\Delta\zeta(T)$ obeys an exponential temperature dependence in a wide temperature range $T_f < T < T^*$. The dependence $\Delta\zeta(T) \sim (1 - T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T)$ is interpreted in terms of mean field theory, where T^* is the mean-field temperature of the transition to the pseudogap state, and the temperature dependence of the pseudogap is satisfactorily described within the framework of the BCS-BEC transition theory.
8. For the first time, the effect of medium doses (from 10^{19} to 10^{20} cm^{-2}) of irradiation with fast electrons and changes in the praseodymium concentration in the interval $0.0 \leq z \leq 0.5$ on the excess conductivity of optimally oxygen-doped $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals was investigated.
9. It is shown for the first time that electron irradiation and an increase in the degree of praseodymium doping lead to a significant expansion of the temperature interval of the existence of excess conductivity, thereby narrowing the region of linear dependence $\rho(T)$ in the ab -plane.
10. It was found that at doses $0 \leq D \leq 6.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ the value of the transverse coherence length $\xi_c(0)$ increases with increasing D by approximately 3 times and more than four times as the praseodymium content in the sample increases to $z \approx 0.42$. In both cases, the 2D-3D crossover point shifts with temperature.
11. It is shown that, unlike the case of low-dose irradiation ($D \leq 10^{19} \text{ cm}^{-2}$) and praseodymium doping to concentrations $z \leq 0.39$, medium-dose irradiation and praseodymium doping at higher concentrations leads to a non-monotonic dependence of the transverse coherence length $\xi_c(0)$ with characteristic maxima at $D \sim 7-8 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ and $z \approx 0.42$, which may

be associated with a general suppression of superconducting characteristics.

Keywords: $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals, excess conductivity, irradiation, fast electrons, 2D-3D crossover, elastic twins, pinning, doping, hydrostatic pressure, anisotropy, scattering, Debye temperature.

LIST OF PUBLICATIONS OF THE GRANT ON THE TOPIC OF THE DISSERTATION:

Scientific works in professional publications of Ukraine, indexed in international scientometric databases:

1. G. Ya. Khadzhai, V.Yu. Gres, **Junyi Du**, ZF Nazyrov, AL Solovyov, NR Vovk, RV Vovk / Influence of pressure on the critical temperature and resistivity of $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // *Functional Materials*, 2022, 29(3), p. 346-358.
2. Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, NR Vovk, A.O. Komisarov, **Junyi Du**, ZF Nazyrov, A.V. Samoylov, E. S. Gevorkyan, RV Vovk. // Elastic and inelastic twins and pinning of magnetic flux lines (vortices) in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ single crystals. *Low Temperature Physics*, 2023, 49(4), 444–451.

Scientific papers in professional publications of Ukraine

3. N.A. Azarenkov, G.Ya. Khadzhai, AV Matsepulin, MV Korobkov, A.O. Komisarov, A.I. Rusalovich, **Junyi Du**, S.N. Kamchatnaya, A.Yu. Vragov, L.O. Paschenko, V.Yu. Gres, E.S. Gevorkyan, R.V. Vovk / Evolution of fluctuation conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals under the influence of medium doses of electron irradiation

- and doping with praseodymium. // Journal of VN Karazin Kharkiv National University, Series "Physics". Vol. 38, pp. 7-14 (2023).
4. LO Pashchenko, **Junyi Du**, AO Komisarov, ZF Nazyrov, RV Vovk / Features of the crystal structure and the effect of prolonged exposure to air on the electrical transport of the 1-2-3 system compounds (review) // Journal of VN Karazin Kharkiv National University, series "Physics", Vol. 39, pp 7- 25 (2023).
 5. G. Ya. Khadzhai, V. F. Korshak, S. V. Savych, **Junyi Du**, R. V. Vovk / The effect of high pressure on the temperature dependence of the pseudogap of $Y_{0.66}Pr_{0.34}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals // Journal of VN Karazin Kharkiv National University, series "Physics", Vol.40, p.73-77 (2024).
 6. G. Ya. Khadzhai, V. F. Korshak, M. G. Revyakina, O. L. Chikina, A. O. Komisarov, O. Yu. Vragov, **Junyi Du**, L. O. Pashchenko, R. V. Vovk / Evolution of temperature dependences of electrical resistance of $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals in a wide range of applied pressure and concentrations of praseodymium impurities // Journal of VN Karazin Kharkiv National University, series "Physics", Vol.40, p.53-58 (2024).

Scientific works of an approbatory nature (theses of reports at scientific conferences) on the topic of the dissertation:

1. L.O. Pashchenko, **Junyi Du**, A.O. Komisarov, M.V. Korobkov, R.V. Vovk
/ Modification of the longitudinal electrical resistance of YBaCuO HTNP single crystals by electron irradiation // Proceedings of the international conference

"Nuclear Physics in Transcarpathia" (to the 55th anniversary of the Department of Photonuclear Processes of the Institute of Physics and Technology of the National Academy of Sciences of Ukraine) May 21-23, 20

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ, СИМВОЛІВ, СКОРОЧЕНЬ ТА ТЕРМІНІВ.....	26
ВСТУП.....	29
РОЗДІЛ 1. КРИСТАЛОХІМІЧНА СТРУКТУРА ТА НОРМАЛЬНА ПРОВІДНІСТЬ ВТНП – КУПРАТІВ В УМОВАХ ВАРІЮВАННЯ ДЕФЕКТНОГО СКЛАДУ І ВПЛИВУ ОПРОМІНЕННЯ. ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ.....	37
1.1 Кристалохімічна структура та кластерна модель спарювання у ВТНП – сполуках системи $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	37
1.2 Дефекти кристалічної ґратки та їх вплив на електричний опір ВТНП сполук системи 1 – 2 – 3.....	43
1.2.1 Вплив дефектів на опір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ у базисній площині.....	45
1.2.2. Поперечний електричний опір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при різних значеннях кисневого дефіциту.....	47
1.3 Вплив опромінення на структуру та електротранспорт ВТНП – сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	51
Висновки до розділу 1.....	57
РОЗДІЛ 2. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ТЕХНІКА ТА МЕТОДИКИ ДОСЛІДЖЕНЬ.....	60
2.1 Вирощування монокристалів ВТНП системи 1 – 2 – 3 та виготовлення зразків для резистивних досліджень.....	60
2.1.1 Вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	60
2.1.2 Приготування зразків з різним ступенем відхилення від стехіометрії	65
2.1.3 Морфологія двійникових границь.....	66

2.1.4 Нанесення електроконтактів та виготовлення містків для резистивних досліджень	69
2.1.5 Структурні дослідження монокристалів	70
2.1.6 Опромінення високоенергетичними електронами	71
2.2 Методики вимірювання.....	71
2.2.1 Методика вимірювання поперечного та поздовжнього електроопору	71
2.2.2 Установка для проведення резистивних вимірювань із змінною орієнтацією магнітного поля.....	74
2.2.3 Камера високого тиску для резистивних вимірювань.....	76
2.3 Точність вимірювань та обробка експериментальних даних.....	77
Висновки до розділу 2.....	79
 РОЗДІЛ 3. "ПРУЖНІ" ТА "НЕПРУЖНІ" ДВІЙНИКИ ТА ПІННІНГ ВИХОРІВ АБРИКОСОВА В МОНОКРИСТАЛАХ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$	
3.1. Дислокаційна будова "пружних" двійників.....	83
3.2. Густина критичного транспортного струму J_c у випадку піннінгу вихорів Абрикосова на кластерах дислокацій.....	87
3.3. Піннінг на непружних двійниках.....	90
3.4. Піннінг на пружних двійниках.....	94
Висновки до розділу 3.....	96
 РОЗДІЛ 4. ВПЛИВ ТИСКУ НА КРИТИЧНУ ТЕМПЕРАТУРУ ТА ЕЛЕКТРООПІР МОНОКРИСТАЛІВ $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	
4.1. Поздовжній електротранспорт монокристалів $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в умовах прикладання високого гідростатичного тиску.....	100
4.2. Надпровідний перехід та фазове розшарування.....	102

4.3. Кластеризація та механізми розсіювання носіїв.....	107
4.4. Параметри апроксимації провідності в рамках моделей Блоха-Грюнайзена та Лоуренса-Доніаха.....	111
4.5. Константа електрон-фононої взаємодії і адекватність застосування формули Макміллана.....	114
4.6. Надлишкова провідність.....	116
4.6.1. Псевдощілинний стан та перехід БКШ-БСК.....	117
4.6.2. Флуктуаційна парaproвідність.....	120
Висновки до розділу 4.....	122
РОЗДІЛ 5. ВПЛИВ РАДІАЦІЙНИХ ТА ДОМІШКОВИХ ДЕФЕКТІВ НА ФЛУКТУАЦІЙНУ ПРОВІДНІСТЬ МОНОКРИСТАЛІВ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.....	125
5.1. Еволюція температурних залежностей електроопору монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при опроміненні швидкими електронами чи допуванні празеодимом.....	127
5.2. Модель NAFL та RVB теорія.....	130
5.3. 2D-3D кросовер.....	132
5.4. Аналіз залежностей поперечної довжини когерентності від критичної температури в рамках передбачень теорії Боголюбова-де-Жена.....	136
Висновки до розділу 5.....	138
ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ.....	140
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ.....	143
ДОДАТОК	167

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ, СИМВОЛІВ, СКОРОЧЕНЬ ТА ТЕРМІНІВ

АЛ	теорія Асламазова – Ларкіна
БЕК	бозе – ейнштейнівська конденсація
БКШ	теорія Бардіна – Купера – Шріфера
ХСГ	хвиля спінової густини
ХЗГ	хвиля зарядової густини
НП	надпровідність
ВТНП	високотемпературна надпровідність
ДГ	двійникові границі
МТ	теорія Макі – Томпсона
ЛД	теорія Лоуренса – Доніаха
ПЩ	псевдоцілінний стан
ФП	флуктуаційна провідність
ЯМР	ядерний магнітний резонанс
ARPES	фотоемісія з кутовим розподілом
NAFL	теорія «nearly antiferromagnetic Fermi liquid»
RVB	теорія резонуючих валентних зон
H	напруженість магнітного поля
H _{c2}	напруженість другого критичного магнітного поля
d	товщина двовимірного шару
J	транспортний струм

J_c	критичний транспортний струм
j	густина транспортного струму
j_c	густина критичного транспортного струму
K_B	константа Больцмана
$N(E_F)$	густина станів на рівні Фермі
$N(E)$	тривимірна густина станів
$T_c^{\max}$	максимальне значення T_c
$n^{\max}$	максимальна кількість дірок на площину $\text{CuO}(2)$
$n^{\min}$	мінімальна кількість дірок на площину $\text{CuO}(2)$
n^{opt}	число дірок на площину $\text{CuO}(2)$, при якій $T_c = T_c^{\max}$
$R(\infty)$ та $R(0)$	рівноважне та початкове значення електроопору, відповідно
T_c	критична температура
T^*	температура відкриття псевдощілини
T_{fluct}	характеристична температура, вище якої надпровідні флуктуації відсутні
$t_f = (T_{\text{fluct}} - T_c)/T_c$	відносна протяжність існування ФП – режиму
$t^* = (T^* - T_{\text{fluct}})/T_{\text{fluct}}$	відносна протяжність існування ПЩ – режиму
$\Delta\sigma$	надлишкова провідність
$\varepsilon = (T - T_c)/T_c$	зведена температура
Δ	енергія активації
Δ^*	величина, що визначає деякий термоактиваційний процес через енергетичну щілину – «псевдощілину»
δ	дефіцит кисню

ε_0	зведена температура в точці 2D – 3D кросовера
λ	константа електрон – фононної взаємодії
ξ_{ab} та ξ_c	довжина когерентності в площині ab та вздовж осі c , відповідно
ρ_{ab}	питомий електроопір у ab – площині
ρ_c	питомий електроопір уздовж осі c
ρ_n	електричний опір у нормальному (не надпровідному) стані

ВСТУП

Обґрунтування вибору теми дослідження. Дані, отримані у ході дослідження впливу опромінення високоенергетичними електронами та прикладання високого тиску на магніторезистивні характеристики високотемпературних надпровідних купратів (ВНП), є важливим експериментальним матеріалом, опрацювання якого створює можливість досягнути успіху у визначенні механізму високотемпературної надпровідності та поліпшенні функціональних характеристик існуючих ВНП – сполук. Надпровідні високотемпературні монокристали є технологічною основою для фундаментальних досліджень, спрямованих на встановлення механізмів взаємодії шаруватих структур із випромінюванням. Опромінення високоенергетичними електронами дає можливість, без зміни складу зразків, створювати в них радіаційні дефекти різної концентрації та морфології. Створення ансамблю дефектів заданої концентрації та природи відкриває можливості здійснювати керування, зокрема, транспортними властивостями зразка як у нормальному, так і в надпровідному станах. Враховуючи перспективу використання високотемпературних надпровідників у якості надчутливих датчиків та ліній передачі електричного струму з малими втратами енергії, які працюють в області температур кипіння рідкого азоту, створення так званої «керованої» дефектної структури у надпровіднику має значне фундаментальне та практичне значення. Внаслідок складності будови ВНП визначення розподілу радіаційних дефектів в об'ємі зразка, стабільності дефектного ансамблю та залежності транспортних параметрів від спектру дефектів у широкому інтервалі температур потребує великих, у першу чергу експериментальних зусиль.

Доцільність виконання даної роботи зумовлена тим, що, незважаючи на досить велику кількість наукових праць, присвячених вивченню різного роду експериментальних впливів на електротransпорт в системі $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, у науковій літературі майже відсутні праці з експериментальних досліджень

впливу опромінення на анізотропію процесів розсіювання носіїв заряду як у нормальному стані, так і поблизу надпровідного переходу, псевдощілинну та флуктуаційну аномалії, а також некогерентний електротранспорт. У той же час, відповідно до сучасних уявлень, саме ці незвичайні фізичні явища, що спостерігаються у ВТНП – сполуках у нормальному (не надпровідному), стані важливі для розуміння мікроскопічної природи ВТНП, яка ще залишається нез'ясованою, незважаючи на більш ніж 37 – річну історію інтенсивних теоретичних і експериментальних досліджень, проведених в цій галузі фізики твердого тіла.

З урахуванням вищевказаного у дисертаційній роботі було досліджено вплив опромінення високоенергетичними електронами з енергіями 0.5 – 2.5 MeV та дозами до $D = 10^{20} \text{ см}^{-2}$ і високого тиску на електро – та магнітоопір монокристалічних зразків ВТНП – сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з критичною температурою, близькою до максимальної.

Таким чином, встановлення фізичних закономірностей та механізмів впливу опромінення високоенергетичними електронами і високого тиску на процеси переносу заряду та розсіювання його носіїв у ВТНП – сполуках сімейства $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ у широкому інтервалі температур і магнітних полів; вивчення розподілу радіаційних дефектів, що утворюються, та встановлення фізичних особливостей релаксації цих дефектів є **актуальною науковою проблемою** яка стала основою для визначення напрямків досліджень цієї дисертаційної роботи.

Мета та основні завдання дослідження. Метою дисертаційної роботи є встановлення фізичних закономірностей еволюції магніторезистивних характеристик у шаруватих ВТНП – сполуках сімейства $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ в умовах дії екстремальних зовнішніх чинників (низької температури, високого тиску і електронного опромінення).

Для досягнення поставленої мети було необхідно вирішити *такі основні завдання:*

1. виготовити високодосконалі монокристалічні зразки сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ для магніторезистивних досліджень та провести їх опромінення високоенергетичними електронами з енергіями 0.5 – 2.5 MeV при різних дозах;
2. виготовити експериментальні зразки з монокристалів сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ у виді містків для резистивних досліджень з системою односпрямованих двійникових меж;
3. дослідити динаміку магнітного потоку і особливості піннінгу магнітних вихорів (ефект закріплення) на звичайних "непружних" та "пружних" двійниках, тобто на двійниках, клиновидні вершини яких в напрямку двійникування не виходять за поверхню кристала;
4. виміряти температурні залежності електроопору в базисній площині монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ до і після опромінення та провести їх кількісний аналіз у широкому інтервалі від кімнатних температур до температури надпровідного переходу, а також провести апроксимацію процесів переносу заряду в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на основі апробованих теоретичних моделей, зокрема моделей Блоха – Грюнайзена та Асламазова – Ларкіна;
5. виділити окремі механізми розсіювання носіїв заряду в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та їх додаткові внески у провідність зразків при наближенні до температури надпровідного переходу і вивчити вплив опромінення на параметри, що характеризують вищевказані механізми розсіювання носіїв заряду;
6. провести порівняльний аналіз впливу радіаційних і домішкових дефектів на флуктуаційну провідність, що домінує в температурному інтервалі поблизу критичної температури, T_c ;

7. дослідити вплив прикладання високого гідростатичного тиску до 14 кбар на електроопір та фазове розшарування в базисній площині монокристалів $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Об’єкт дослідження – динаміка переносу заряду та магнітного потоку в ВТНП – сполуках системи $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{Re} = \text{Y}, \text{Pr}$) під дією опромінення високоенергетичними електронами з енергіями 0.5 – 2.5 MeV при дозах до $D = 10^{20} \text{ см}^{-2}$ та високого гідростатичного тиску.

Предмет дослідження – процеси транспорту носіїв заряду та механізми їх розсіювання в монокристалічних зразках $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{Re} = \text{Y}, \text{Pr}$) в умовах дії екстремальних зовнішніх чинників (низької температури, високого тиску і електронного опромінення).

Методи дослідження. Для вирішення поставлених завдань були використані та апробовані експериментальні методи фізики конденсованого стану при низьких температурах. ВТНП – монокристали системи 1 – 2 – 3 вирощували за розчин – розплавною методикою в золотих тиглях та тиглях, виготовлених з кераміки ZrO_2 . Насичення кристалів киснем здійснювали в атмосфері кисню при 420°C протягом трьох діб. Дослідження структури зразків здійснювались з використанням оптичної та растрової електронної мікроскопії. Опромінення електронами з енергіями 0.5...2.5 MeV проводили при температурах $T < 10 \text{ K}$ на прискорювачі електронів. Дозі опромінення 10^{18} см^{-2} електронами з енергією 2.5 MeV відповідає усереднена по всіх підгратках концентрація дефектів 10^{-4} зміщень/ат. Використання гелієвого кріостату давало можливість проводити вимірювання опору після опромінення в інтервалі температур $10 < T < 300 \text{ K}$. Динаміку магнітного потоку досліджували магнітотранспортним методом. Вимірювання електроопору проводили методом Монтгомері. Температуру експериментальних зразків вимірювали платиновими термометрами електроопору. Спад електричної напруги вимірювали нановольтметрами В2 – 38. Обробку результатів

здійснювали з використанням комп'ютерних програм Microcal Origin та Matlab.

Наукова новизна отриманих результатів:

1. Вперше встановлено, 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, а, в підсумку, і приводить до збільшення критичної густини транспортного електричного струму.
2. Вперше встановлено, що, на відміну від чистих зразків $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню, прикладання високого тиску приводить до фазового розшарування в базисній площині монокристалів $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Встановлено, що у нормальному стані провідність є металевою та обмежується розсіюванням на фонах (режим Блоха-Грюнейзена) та дефектах. Встановлено, що гідростатичний тиск приводить до зменшення залишкового та фонного опорів. Температура Дебая та довжина когерентності не залежать від тиску.
3. 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 псевдоцілинний стан, і температурна залежність псевдоцілини задовільно описується в межах теорії переходу БКШ-БЕК.

4. 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 $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. 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.
5. 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.

Особистий внесок здобувача. Здобувач брав безпосередню участь у постановці завдань дисертаційної роботи, підготовці зразків, розробці методики автоматичного вимірювання резистивних та магніторезистивних залежностей зразків у широкому інтервалі температур. Експериментальні дослідження температурних залежностей позовжнього та поперечного електроопору в зразках, що були опромінені високоенергетичними електронами, виконані здобувачем особисто. Всі дослідження впливу опромінення на анізотропію магнітоопору монокристалічного зразка $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ проведені за безпосередньою участю здобувача. При підготовці всіх публікацій за темою дисертаційної роботи здобувач брав участь в аналізі, систематизації, узагальненні та тлумаченні отриманих результатів, на основі яких він спільно з науковим керівником сформулював висновки дисертаційної роботи.

Апробація результатів роботи. Матеріали дисертаційної роботи доповідалися та обговорювалися на міжнародній конференції «Ядерна фізика на Закарпатті» (до 55-річчя відділу фотоядерних процесів ІЕФ НАН України) 21-23 травня 2024 року.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами та темами. Робота виконана на кафедрі фізики низьких температур Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна. Результати, які представлені в дисертаційній роботі, були отримані при проведенні досліджень у рамках виконання держбюджетних НДР: № ДР 0117U004857 та № ДР 0116U000827, а також за підтримки програми Horizon 2020 у рамках гранту № 644348.

Практичне значення отриманих результатів. Основні наукові результати роботи можуть бути використані для подальшого пошуку шляхів модифікації електрофізичних характеристик матеріалів на основі купратних ВТНП – сполук сімейства $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{R} = \text{Ho}, \text{Y}, \text{Pr}, \text{Sc}$) під впливом опромінення електронами. Як відомо, електротransпортні характеристики визначають важливі конструкційні та експлуатаційні властивості ВТНП – сполук, що застосовуються як датчики чи лінії передачі електричної енергії. Опромінення електронами є вельми ефективним засобом створення значної кількості дефектів без зміни складу об'єкту, що опромінюється. Це дає можливість відокремити ефекти, які пов'язані безпосередньо з дефектами, що можуть виникнути як у процесі контрольованого впливу, так і під час експлуатації систем на основі ВТНП – сполук. Зокрема, встановлений вплив опромінення електронами на процеси розсіювання носіїв заряду на дефектах та фононах, на флуктуаційну провідність, фазове розшарування та стабільність характеристик, дасть можливість прогнозувати поведінку вказаних матеріалів в екстремальних умовах та створювати зразки з бажаними функціональними характеристиками.

Підвищення критичної температури надпровідного переходу та критичного струму існуючих високотемпературних надпровідників пов'язане з модифікацією їх властивостей за рахунок створенням певного ансамблю дефектів. Шляхом до зменшення енергоспоживання, підвищення швидкодії та мініатюризації надпровідних приладів є створення різного роду штучних наноструктур завдяки опроміненню керамічних надпровідників електронами чи іонами. Тому дослідження впливу опромінення електронами певних енергій на електричний опір системи $Y - Ba - Cu - O$ у широкому інтервалі температур від температури надпровідного переходу до кімнатних може дати важливу інформацію про взаємодію носіїв заряду з фононною та дефектною підсистемами, що необхідно для здійснення контрольованого впливу на властивості матеріалу.

Отримані результати можуть бути також використані при підготовці бакалаврів та магістрів фізичних спеціальностей, а саме при викладанні спецкурсів та проведенні лабораторних практикумів.

Публікації. За темою дисертації здобувачем у співавторстві опубліковано 6 наукових праць у міжнародних і вітчизняних фахових виданнях та 1 публікація за матеріалами конференцій.

Структура та обсяг дисертації. Дисертаційна робота складається зі вступу, 5 розділів, загальних висновків, примітки, переліку використаних літературних джерел та 1 додатку. Загальний обсяг дисертації складає 150 сторінок, з них, основного тексту - 125 сторінок. Робота ілюстрована 39 рисунками та 3 таблицями. Список використаних джерел містить 243 найменування.

РОЗДІЛ 1

КРИСТАЛОХІМІЧНА СТРУКТУРА ТА НОРМАЛЬНА ПРОВІДНІСТЬ ВТНП КУПРАТІВ В УМОВАХ ВАРІЮВАННЯ ДЕФЕКТНОГО СКЛАДУ І ВПЛИВУ ОПРОМІНЕННЯ. ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ

1.1 Кристалохімічна структура та кластерна модель спарювання у ВТНП – сполуках системи $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Відкриття в 1986 – 1987 роках «високотемпературної» надпровідності (ВТНП) полікомпонентних металоксидних сполук (аномальна електрична провідність в області температур, що перевищують температуру кипіння рідкого азоту 77 К) викликало величезний інтерес до дослідження властивостей цього класу речовин [1,2]. До цих речовин відноситься ціла низка сполук, що можуть бути описані загальною хімічною формулою, $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, де $\text{R} = \text{Y}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}, \text{Gd}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Tm}, \text{Yb}, \text{Lu}$.

Найбільш вивченою є сполука $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, що характеризується температурою переходу в надпровідний стан $T_c \approx 90 \text{ K}$. Це на порядок величини вище за температури переходу, T_c , що спостерігаються у металевих надпровідників.

У цьому підрозділі на прикладі сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ проаналізовано характерні особливості кристалічної структури ВТНП матеріалів. Обговорено також експериментальні факти, що свідчать про тісний взаємозв'язок між кристалохімічною структурою металоксидних сполук та їх аномальною електричною провідністю.

З точки зору кристалохімії, полікомпонентний металевий оксид $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ відноситься до складних ізодефіцитних речовин з іонно – ковалентним типом зв'язку [3]. Саме в даній сполуці іон кисню О

(аніон) формує хімічні зв'язки з трьома різними іонами металів – Y, Ba, Cu (катионами) (Рис. 1.1).

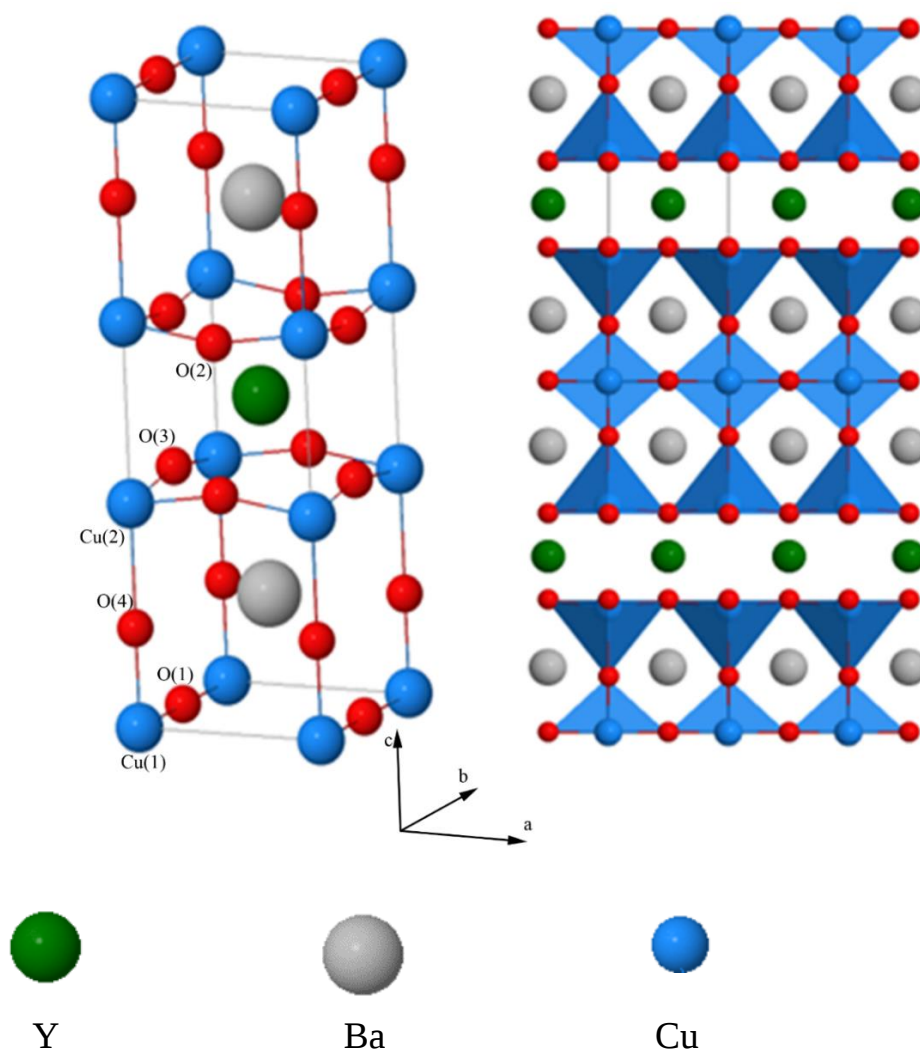


Рис.1.1 Кристалічна структура елементарної комірки ВТНП металоксидної сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (ліворуч) та вигляд кристалічної ґратки вздовж осі a (праворуч). $a = 3.824 \text{ \AA}$; $b = 3.888 \text{ \AA}$; $c = 11.690 \text{ \AA}$

Особливістю структур зазначеного типу є те, що в той час, як іони металів за потребою пов'язані тільки з киснем, кожен іон кисню пов'язаний з трьома різними катионами. Для досягнення стійкої (термодинамічно рівноважної) структури цієї сполуки, електричний заряд аніона повинен бути локально нейтралізований. Для виконання цієї умови необхідно, щоб сума

електростатичних валентностей окремих зв'язків аніона з усіма катіонами, дорівнювала величині його негативного заряду. У свою чергу, електростатична валентність кожного катіона визначається його зарядом, зменшеним в n разів, де n – координаційне число (число іонів, що оточують безпосередньо даний катіон). Відповідно до цього, при формуванні ізодесмічної структури, кількість іонів навколо кожного катіона має завжди перевищувати його індивідуальну валентність. Наявність трьох різних катіонів та одного аніона в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ і вимога стійкості цієї сполуки зумовлюють формування специфічної дефектної за киснем «перовскіто – подібної» кристалічної структури [3]. При цьому, власне величина зарядів всіх іонів та їх розподіл, що формується у кристалічній ґратці є другорядним чинником. Вимога виконання умови електричної нейтральності сполуки приводить до того, що частина іонів може змінювати свою валентність, а деякі з них можуть взагалі бути відсутніми, порушуючи стехіометрію сполуки, однак, при цьому, зберігаючи необхідну відповідність між електричними зарядами. Зазначені особливості процесу формування кристалохімічної структури сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ приводять до того, що її кристалічна ґратка за відсутності дефіциту за киснем, тобто при значенні параметра $\delta \approx 0$, характеризується специфічним взаємним розташуванням іонів, яке з точки зору кристалографії, описується орторомбічною елементарною коміркою. Відмінною особливістю цієї комірки є те, що вона є шаруватою і містить дві конфігурації кисневого оточення іонів міді: чотиригранна піраміда в площинах CuO_2 та ромб у вигляді ланцюжків CuO в базисній площині (ab) [4]. При цьому іони Cu в базисній площині знаходяться поруч з іонами O тільки уздовж осі (b), а вздовж осі (a) в цій площині іони O взагалі відсутні, що і зумовлює в кінцевому підсумку орторомбічну симетрію формування елементарної кристалічної комірки. Іони Cu , розташовані уздовж осі (c) в просторі між площинами іонів Ba і Y , оточені п'ятьма іонами O , утворюючи площину CuO_2 . Зі зменшенням вмісту кисню, тобто при

збільшенні параметра $\delta > 0$, кисневі вакансії виникають переважно в базисній площині, тому що саме ланцюжки CuO характеризуються мінімальною енергією хімічного зв'язку. При досягненні значення $\delta \approx 0.5$ іони O і кисневі вакансії приблизно в однаковій пропорції розподіляються уздовж осей (a) і (b) в площині (ab), а при $\delta \approx 1$ базисна площина взагалі залишається без іонів O , що приводить до перетворення орторомбічної решітки в тетрагональну. Формування саме такої специфічної кристалохімічної структури, наявність різних конфігурацій іонів Cu та O , а також зазначеного фазового перетворення у сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ експериментально підтверджено в багатьох наукових працях і, зокрема, в працях [5, 6]. При цьому слід звернути увагу на те, що кристалохімічний стан і електрична провідність цієї речовини є тісно взаємопов'язаними і суттєво залежать від концентрації іонів кисню в ньому, тобто від величини параметра δ . При великому дефіциті іонів кисню ($\delta > 0.5$), кристалічна структура є тетрагональною і надпровідність сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ не виявляється. У міру збільшення концентрації кисню і при досягненні величини параметра $\delta \approx 0.4$ спостерігається фазове перетворення: тетрагональна кристалічна ґратка перетворюється на орторомбічну. Одночасно з фазовим перетворенням у сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з'являється надпровідність при температурі $T_c \approx 50 \text{ K}$, а при $\delta \approx 0$ надпровідний перехід відбувається при максимальному значенні температури для цієї речовини – $T_c \approx 92 \text{ K}$ (Рис. 1.2).

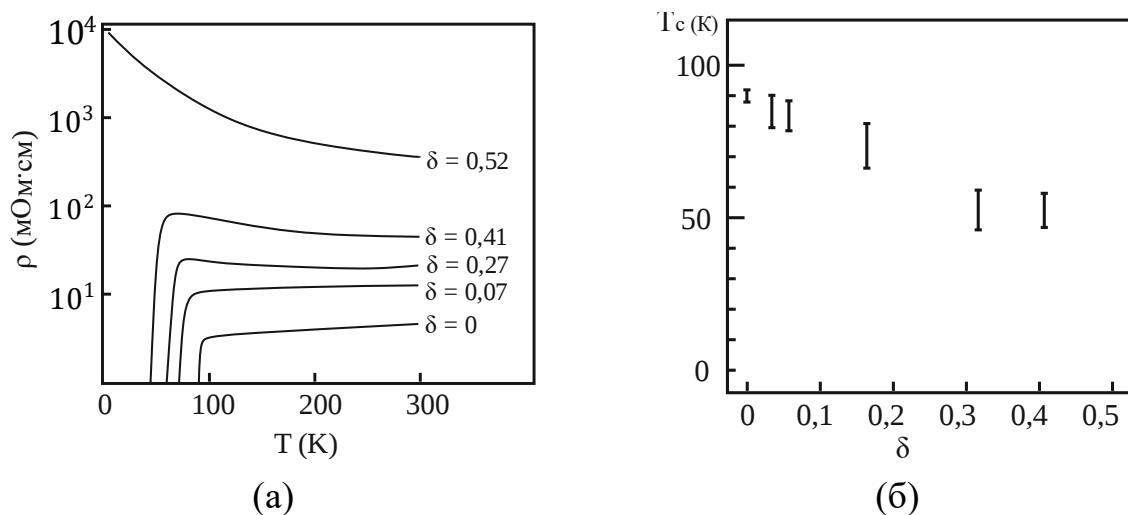


Рис. 1.2 Залежність електричного опору $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ від температури при варіації параметра δ (а) та залежність температури надпровідного переходу T_c сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ від параметра δ (б) [7]

Таким чином, на підставі проведеного вище аналізу, можна зробити висновок, що саме специфічна кристалохімічна структура є визначальним чинником, який зумовлює аномальну електричну провідність полікомпонентних металоксидних сполук.

Згідно з концепцією, запропонованою в працях [8,9,10], основними елементами структури, відповідальними за генерування пар електронів, що зумовлюють аномальну провідність металоксидних сполук, є скупчення (кластери), що формуються з негативних U – центрів

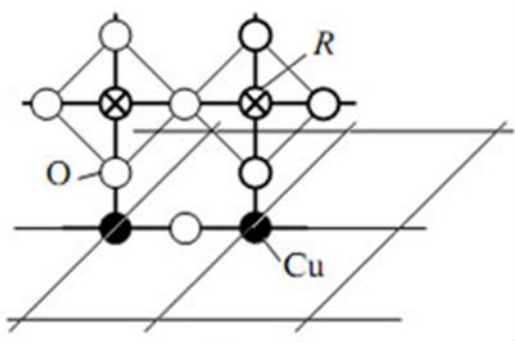


Рис. 1.3 Схема негативного U – центру у сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [10]

Кожен окремий U – центр складається з двох сусідніх катіонів Cu, вбудованих в площину CuO_2 , та іонів кисню O, що їх оточують (Рис. 1.3). Існування такої конфігурації іонів Cu та O в сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ було підтверджено в працях [4,6]. У цих працях методами рентгенівської спектроскопії та внутрішнього тертя було встановлено, що іони міді та кисню беруть участь в процесі утворення специфічних хімічних зв'язків, які характеризуються різними валентностями іонів. Цей результат є додатковим доказом утворення негативних U – центрів в сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Формування скупчень U – центрів (кластерів) зумовлює появу в енергетичному спектрі електронів рівня, що допускає локальний парний перехід з іона кисню на два сусідніх іона міді [10]. При цьому окремі (не пов'язані в кластери) U – центри зумовлюють деяку «надлишкову» незначну електричну провідність при температурі $T^* \gg T_c$ (виникає так звана флуктуаційна надпровідність). Відхилення від «нормальної» електричної провідності при температурі T^* є «передвісником» переходу в надпровідний стан, а сама температура T^* отримала назву температури відкриття «псевдощілини». Фактично, при цій температурі з'являються перші парні носії заряду.

Мінімальний розмір кластера, що зумовлює можливість парного переходу електронів, визначається довжиною когерентності в площині CuO_2 і становить $\xi \approx 10\text{\AA}$. У міру збільшення концентрації іонів кисню в металоксидній сполуці, тобто при $\delta \rightarrow 0$, середній розмір кластерів збільшується, а температура T^* при цьому поступово наближається до температури T_c (Рис. 1.4) [11].

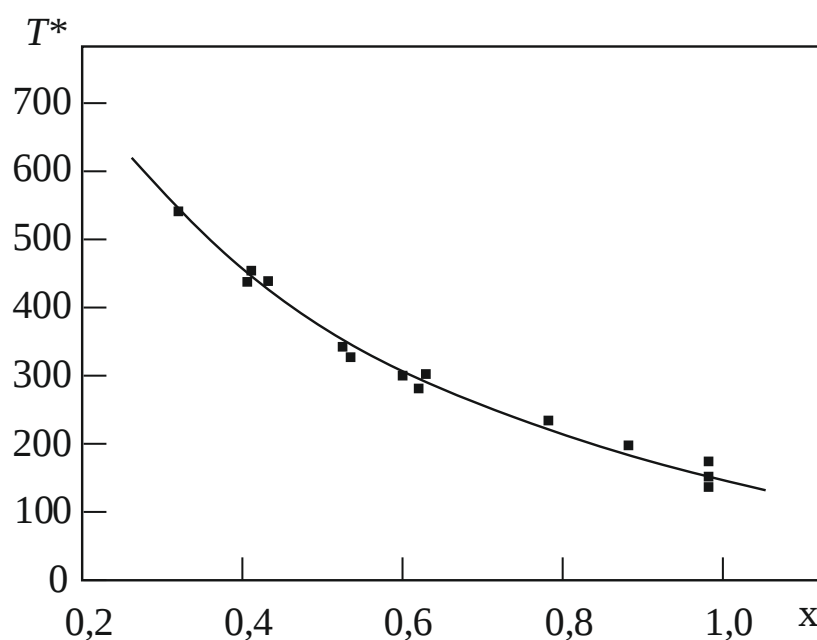


Рис. 1.4 Залежність температури відкриття «псевдошліни» T^* в сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ від параметра x (тут $x = 1 - \delta$) [10]

Важливим експериментальним фактом, що також свідчить на користь наведеної вище схеми, є результат, одержаний в праці [15], де процес збільшення розмірів кластерів з U – центрів був активований (прискорений) шляхом застосування зовнішнього гідростатичного тиску $p \approx 7\text{GPa}$. Як показано в цій праці, в зразках сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ із неповною стехіометрією ($\delta \approx 0.4$) тиск інтенсифікує процес зростання розмірів кластерів завдяки їх дифузійній коалесценції. Власне процес коалесценції здійснюється внаслідок перерозподілу іонів кисню і зменшення концентрації вакансій в аніонній підгратці, що супроводжується зменшенням параметра δ до нульового значення. Відповідно до описаної вище схеми, зазначений процес повинен супроводжуватися збільшенням температури T_c , наближаючи її до максимального значення $T_c \approx 90\text{ K}$, що і спостерігалось в експерименті.

1.2 Дефекти кристалічної ґратки та їх вплив на електричний опір ВТНП – сполук системи 1 – 2 – 3

Зміна ступеня відхилення від кисневої стехіометрії [13,14] і проведення ізовалентних та неізовалентних заміщень [15,16] продовжують залишатися

одними з основних методів модифікації електротранспортних характеристик ВТНП – сполук, так званої системи 1 – 2 – 3 – $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{Re} = \text{Y}$ та лантаноїди). Такі методики дають можливість не тільки окреслити емпіричні шляхи пошуку поліпшення критичних характеристик ВТНП – сполук [17,18], але й перевірити якість численних теоретичних моделей [19,20,21,25]. Відповідно до сучасних уявлень, розуміння природи ВТНП тісно пов'язане із з'ясуванням фізичної суті явищ, які спостерігаються в цих сполуках в нормальному (ненадпровідному) стані. До таких явищ, зокрема, можна віднести виникнення широкої температурної області флуктуаційної парепровідності (ФП) [22,23], так звану псевдощільну аномалію (ПЩ) [24,26], некогерентне перенесення заряду [27,28], переходи виду метал – ізолятор [29,30] тощо.

Найважливіше значення для розуміння природи цих явищ має точне визначення механізмів розсіювання носіїв заряду [31,32]. Оскільки сполуки $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ мають складну, шарувату структуру, механізми передачі струму різними кристалографічними напрямками не однакові. Це є причиною анізотропії електричних і магнітних властивостей в монокристалах $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

1.2.1 Вплив дефектів кристалічної ґратки на опір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ у базисній площині

Розглянемо температурні залежності питомого опору, $\rho_{ab}(T)$ в площині ab для різних значень кисневого дефіциту в зразку – δ (зростання номера кривої графіка відповідає зростанню δ), що наведені на Рис. 1.5.

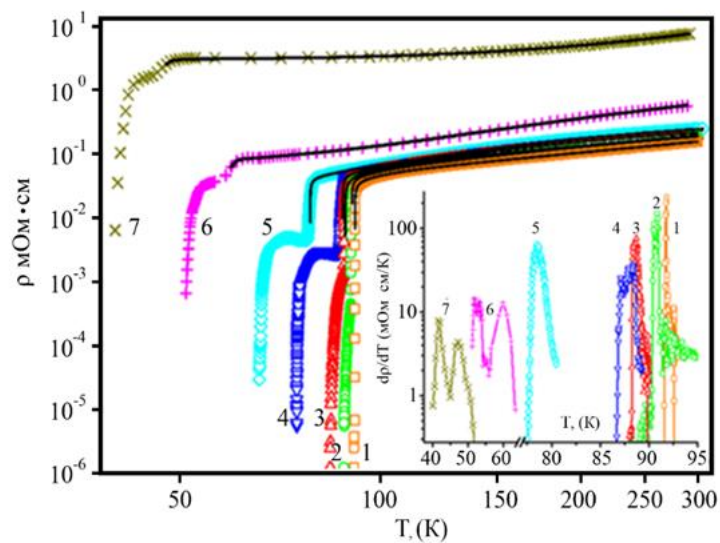


Рис. 1.5 Температурні залежності питомого опору, $\rho_{ab}(T)$ для різних значень кисневого дефіциту, δ (зростання номера кривої відповідає зростанню δ). На вставці: температурні залежності похідних, $d\rho_{ab}(T)/dT$, в області надпровідного переходу [33].

Температури переходів в надпровідний стан, T_c , ототожнювались з температурами максимумів $d\rho_{ab}(T)/dT$. Видно, що поблизу T_c характер залежностей $\rho_{ab}(T)$ та $d\rho_{ab}(T)/dT$ вказує на наявність у зразку принаймні двох надпровідних фаз. Для зразків 1 – 5 значення T_c цих фаз дуже близькі, залежність $d\rho_{ab}(T)/dT$ має один асиметричний максимум, а опір фази з низькою T_c в $100 \div 10$ разів менше опору фази з високою T_c . Для зразків 6 – 7, T_c цих фаз відрізняються на декілька градусів, а опір фази з низькою T_c менше опору фази з високою T_c приблизно в 2 рази.

Таким чином, у міру збільшення дефіциту кисню збільшуються як відмінності між T_c різних фаз, так і внесок в загальний опір зразка фази з низькою T_c . Відзначимо, що у всьому досліджуваному діапазоні зміни δ , перколяція відбувається по фазі з низькою T_c . Збільшення ширини сходинки зі зростанням температури відпалу також вказує на той факт, що різниця в критичних температурах низько – та високотемпературної надпровідних фаз зростає з пониженням вмісту кисню. Допіювання зразків празеодимом дає схожу залежність температури надпровідного переходу від ступеня допіювання.

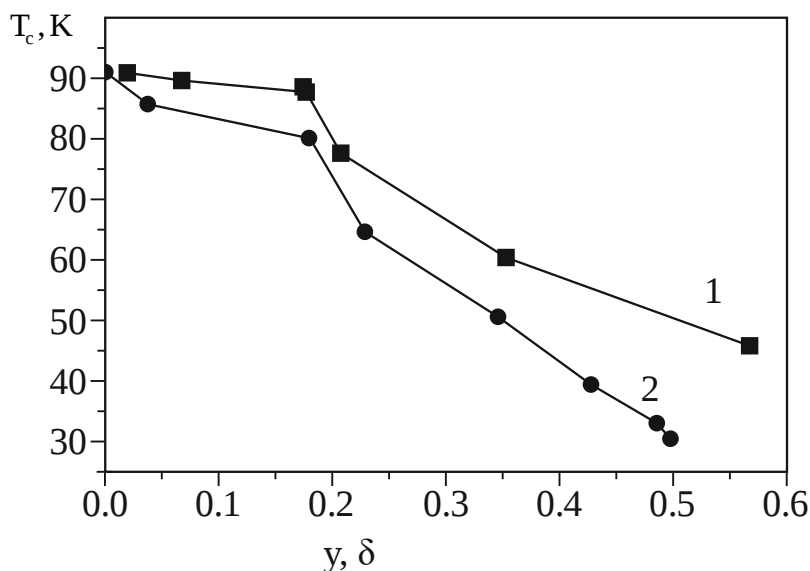


Рис. 1.6. Залежності T_c від дефіциту кисню, δ , для $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ – (1) [19] та від концентрації празеодима, x , для $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ – (2) [34].

Порівняємо вплив ступеня допіювання киснем та концентрації празеодима на значення температури надпровідного переходу T_c монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Залежність $T_c(\delta)$ – крива 1, побудована за даними праці [19], і залежність $T_c(x)$ – за даними праці [34] від концентрації

празеодима, для монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ – крива 2 зображено на Рис. 1.6.

Видно, що ці залежності подібні, принаймні, при $x, \delta < 0.2$. Залежність $T_c(x)$ може бути апроксимована універсальним рівнянням Абрикосова – Горькова, що описує пригнічення T_c немагнітними дефектами в разі d – спарювання електронів [35–37]. Для залежності $T_c(\delta)$ одна з моделей [39] передбачає випадковий розподіл вакансій по ланцюжках Cu (1) – O (1).

1.2.2. Поперечний електричний опір монокристалів $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ при різних значеннях кисневого дефіциту

Проведення вимірювань електричного опору поперек провідних шарів дає можливість мінімізувати розсіювання носіїв заряду на границях двійників (ДГ). Останні, [42,43], виникають в ВТНП в результаті сегнетоеластичного тетра – орто переходу в процесі насичення зразків киснем. ДГ розташовуються в кристалі поперек Cu – O площин, що проводять електричний струм [43]. Це, в свою чергу, дає можливість проаналізувати механізми розсіювання носіїв заряду у найбільш «чистому» вигляді.

Значення електроопору уздовж осі c в інтервалі температур T_c – 300 К монокристалічних зразків $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з різними значеннями δ ($0.02 < \delta < 0.57$ [44]), що забезпечують зміну T_c від 93 К до 33 К наведено на Рис.1.7.

Відзначимо, що, згідно з [40], виникнення флуктуаційних куперівських пар вище T_c викликає зменшення щільності одноелектронних станів на рівні Фермі, тобто виникнення псевдощільни при $T \approx T_{fluct}$. Однак врахувати відповідну зміну нормального опору важко, тому, що паралельно діє флуктуаційна провідність, яка дає більш вагомий внесок і визначає $\rho(T)$ поблизу T_c . Порівняння з [45,45] показує, що опір в площині ab обмежений у першу чергу розсіюванням носіїв заряду на фононах і дефектах решітки, в той

час як уздовж осі c опір демонструє тільки «напівпровідникову» температурну залежність.

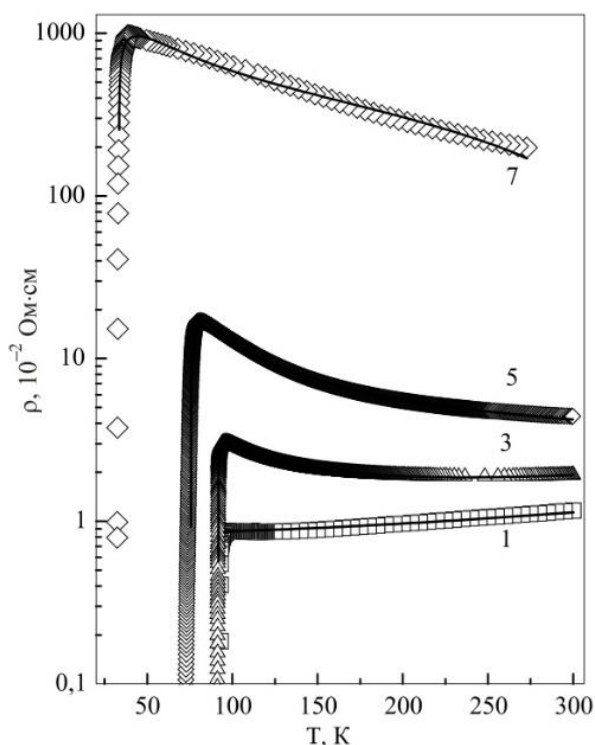


Рис. 1.7 Поперечний опір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Точки – експеримент, лінії – апроксимація згідно з теорією Асламазова –Ларкіна. Збільшення номеру зразка відповідає збільшенню δ . Залежності для частини зразків не відображені для спрощення [44].

Із зростанням кисневого дефіциту, δ , максимуми $d\rho/dT$ уздовж осі c зміщуються в область низьких температур і розширюються. Низькотемпературні максимуми розщеплюються, що свідчить про розпад зразка на дві надпровідні фази при відповідних величинах δ ($T_c < 60$ K). У площині шарів тільки зразки з $\delta \approx 1$ мають досить однорідний надпровідниковий перехід, а зразки, починаючи з $\delta \approx 0.06$, демонструють наявність принаймні двох надпровідних фаз [44].

Неоднорідність зразка може приводити до анізотропії T_c [47,48]. На Рис. 1.8 ця анізотропія T_c зображена в координатах $T_c^c - T_c^{ab}$. Природно, що

анізотропія T_c збільшується з ростом кисневого дефіциту, тобто з ростом неоднорідності зразка.

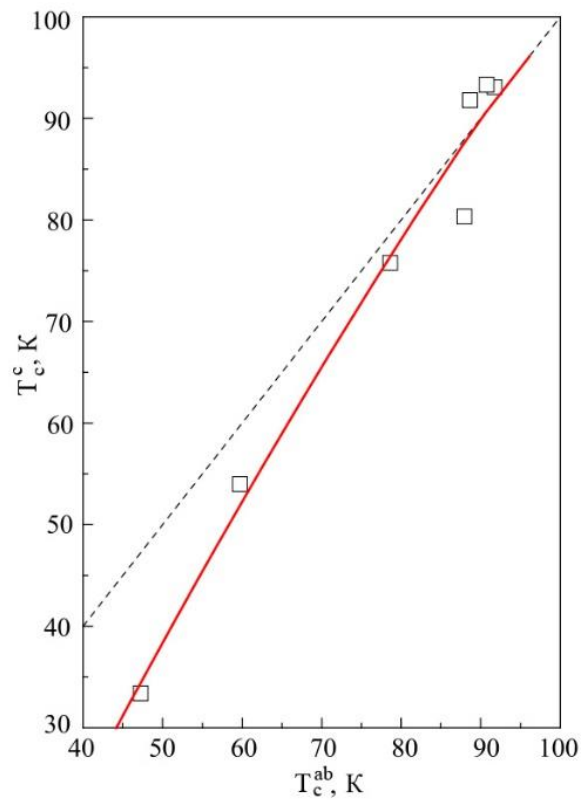


Рис. 1.8 Анізотропія T_c . Штрихова лінія – випадок відсутності анізотропії – $T_c^c = T_c^{ab}$ [44].

Та обставина, що в області надпровідного переходу похідні, dp/dT , уздовж осі c показують розпад на фази при більших значеннях δ (менших T_c), ніж в площині ab , свідчить про наявність переважної орієнтації зародження областей нової фази. Така переважна орієнтація може бути викликана тим, що нова фаза зароджується на двійниках, що орієнтовані вздовж осі c монокристала та під кутом 45° до осей a та b [48]. При вимірюванні електроопору уздовж осі c існують, ймовірно, перколяційні шляхи протікання струму високотемпературною фазою.

Значне зростання ρ_0 при збільшенні δ (зниженні T_c) як уздовж осі c , так і в площині ab (Рис. 1.9) [44] може бути пов'язане з неоднорідністю зразків.

Анізотропія ρ_0 сягає $-\rho_0^c / \rho_0^{ab} \propto 10^2 \div 10^3$, але демонструє тенденцію до зменшення при збільшенні δ (зниженні T_c).

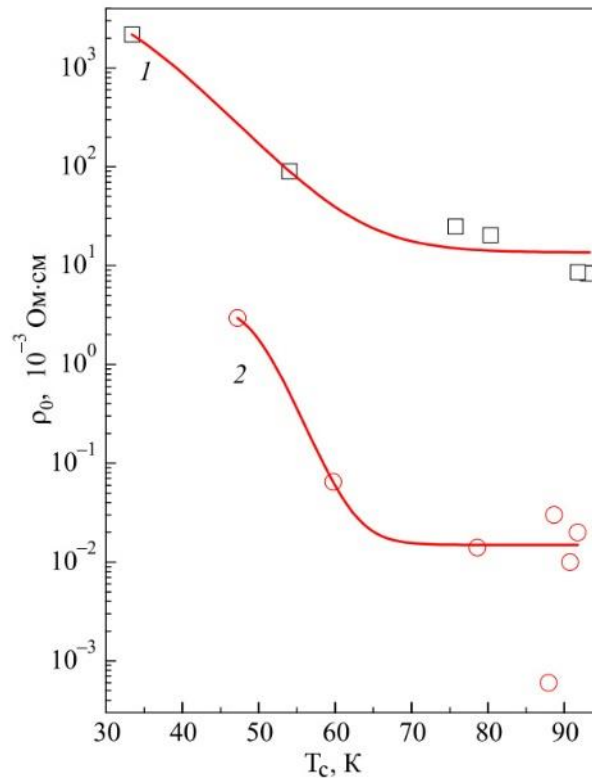


Рис. 1.9 Анізотропія ρ_0 : 1 – опір уздовж осі c ; 2 – опір в площині ab [44].

Температурна залежність опору зразка 1 не містить експоненти тобто ця залежність є перехідною від «металевої» до «напівпровідникової». У цьому випадку вище T_c , $\rho(T) \sim T^2$. З ростом δ опір набуває повністю «напівпровідникового» характеру.

У праці [44] вказується, на значну анізотропію довжини когерентності ($\xi_{ab}(0)/\xi_c(0) \sim 10^2$), а також на те, що рух флуктуаційних пар є тривимірним. Параметр $-\Delta T_{\text{fluct}}$, характеризує, згідно [50], температурні межі існування флуктуаційних пар і, отже, область існування псевдощільності. Залежності $\Delta T_{\text{fluct}} = f(T_c(\delta))$ [40] мають максимум, походження якого пов'язане з тим, що при високих T_c (низькі δ) утворенню флуктуаційних пар перешкоджає висока температура, а високі значення кисневого дефіциту, δ , що зменшують T_c аж до

руйнування надпровідного стану, також перешкоджають утворенню флуктуаційних пар. Опір монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ поперек шарів зазвичай описують емпіричним співвідношенням, що включає «напівпровідниковий» хід опору та флуктуаційну провідність поблизу T_c . На відміну від опору в площині ab , де температурна залежність опору в нормальному стані зумовлена процесами розсіювання, температурна залежність опору вздовж осі c в нормальному стані зумовлена як зміною кількості носіїв заряду, так і процесами їх розсіювання. При малих δ (високі T_c) носії заряду розсіюються переважно на фононах, а при великих δ (низькі T_c) переважає розсіювання на дефектах. Неоднорідність зразків викликає анізотропію T_c та стрибкову провідність зі змінною довжиною стрибка між різними фазами.

1.3 Вплив опромінення на структуру та електротранспорт ВТНП – сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

До теперішнього часу накопичено багато експериментальних даних з впливу радіаційних випромінювань на ВТНП – матеріали [51 – 69]. Як відомо, радіаційні дефекти виникають при опроміненні кристалів високоенергетичними ядерними частинками: нейтронами, дейтронами, α – частинками, фото – та комптон – електронами, що виникають при опроміненні кристалів γ квантами.

Пружне розсіяння швидких частинок в кристалах, що приводить до утворення структурних дефектів, залежить від енергії частинок, зменшуючись по мірі її збільшення. Кінетичну енергію частинок, що рухаються, прийнято для зручності розрахунків характеризувати енергетичним параметром [56]:

$$\varepsilon = \frac{m}{M_1} E, \quad (1.1)$$

де M_1 – маса частинки, E – її кінетична енергія, m – маса електрона. Таким чином, параметр ε – це значення енергії електрона, що має таку ж швидкість, як і важка частинка. У тому випадку, коли параметр ε досить великий, велика

частина енергії рухомої частинки витрачається на процеси збудження та іонізації атомів і лише незначна частина – на пружні зіткнення. Однак це справедливо лише до тих пір, поки ε значно більше ε_i – енергії збудження електронів в неметалевих (діелектричних і напівпровідникових) кристалах. Коли ε зменшується, процеси іонізації та збудження припиняються, і мають місце лише пружні зіткнення, що приводять до виникнення пружних хвиль та радіаційних дефектів.

При пружних зіткненнях співвідношення між енергією, що втрачається частинкою на утворення структурних дефектів та створення теплових коливань кристалічної ґратки, залежить від енергій цієї частки, а також від фізико – хімічних властивостей кристала. Так, повна втрата енергії при пружних зіткненнях рухомої частинки на одиниці шляху в кристалі може бути описана співвідношенням:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{упр}} = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2^2 e^4 N_0}{M_2 v^2} \ln \frac{E}{E^*} \quad (1.2)$$

Тут Z_1 і Z_2 – атомні номери частинок, між якими відбувається зіткнення. N_0 – концентрація атомів в кристалі, v – швидкість рухомої частки, E – її енергія, e – заряд електрона, M_2 маса частки, що перебуває у стані спокою,

$$E^* = 0.618 \left(Z_1^{\frac{2}{3}} + Z_2^{\frac{2}{3}} \right)^2 \frac{m M_1}{4\mu^2} R \quad (1.3)$$

де R – стала Рідберга ($R = 13.54$ еВ), μ – зведена маса рухомої та нерухомої частинок. У той же час віднесена до одиниці шляху енергія, що витрачається частинкою на утворення дефектів при пружних зіткненнях з атомами кристала, виражається в такий спосіб [56]:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{деф}} = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2^2 e^4 N_0}{M_2 v^2} \ln \left(\frac{E}{U_d} \frac{4\mu^2}{M_1 M_2} \right) \quad (1.4)$$

Добуток

$$\frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{деф}}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{пр}}} = \frac{\ln\left(\frac{E}{U_d M_1 M_2}\right)}{\ln\frac{E}{E^*}} \quad (1.5)$$

це частка енергії, що витрачається на утворення структурних дефектів при пружних зіткненнях частинки з атомами речовини. Для більшості випадків цей показник дорівнює приблизно 0.5.

Вище вже зазначалося, що граничне значення енергії частинок, необхідне для утворення радіаційних дефектів, визначається фізико – хімічними властивостями кристала, в тому числі і відносною вагою атомів, що утворюють кристал. У табл. 1.1 [57] наведено порогові значення енергії, необхідної для утворення радіаційних дефектів різними частинками в кристалах, що складаються з атомів з різною атомною вагою. З цієї таблиці видно, яку енергію повинні мати різні частинки, для створення радіаційних дефектів в кристалах.

Таблиця 1.1

Граничні значення енергії частинки, необхідної для утворення радіаційних дефектів в кристалах в залежності від атомної маси атомів кристала ($U_d = 25$ eV) [57].

Частинки	Відносна атомна маса			
	10	50	100	200
Нейтрони, протони (eV)	75	325	638	1263
Електрони, γ – випромінювання (MeV)	0.10	0.41	0.68	1.10
α – частинки (eV)	31	91	169	325
Частинки – продукти розпаду атомних ядер	85	30	25	27

Для оцінки числа атомів N , зміщених одним первинним атомом віддачі з енергією E і масою M_1 , можна скористатися такою наближеною формулою:

$$N = \frac{1}{U_d} \frac{M_1}{m} E_t \left(\ln \left(\frac{E}{U_d} \frac{4\mu^2}{M_1 M_2} \right) \right)^{\frac{1}{2}} \ln \frac{E}{E^*} \quad (1.6)$$

У формулі (1.6) E_t – порогове значення енергії збудження валентних електронів [58].

Слід зазначити, що радіаційні дефекти в кристалах можуть виникнути також в результаті місцевого (локального) нагріву або плавлення [58 – 63]. У місцях локального плавлення виникають скупчення дефектів з $10^3 - 10^4$ атомів. При локальному плавленні та подальшому охолодженні, крім точкових дефектів, можуть також виникнути лінійні, плоскі або об'ємні дефекти відповідно дислокації, границі зерен або мікропори.

У порівнянні зі звичайними надпровідниками, радіаційний вплив на ВТНП – матеріали приводить, як правило, до аномального пригнічення надпровідності [51 – 55]. При цьому, всі види жорстких випромінювань за характером їх взаємодії з різними компонентами кристалічної ґратки можна поділити на три групи:

1. Опромінення ВТНП – матеріалів в дослідницьких каналах ядерних реакторів або в пучках прискорених іонів приводить до зміщення з вузлів решітки всіх компонент сполуки [64 – 65]. Це сильно заплутує картину дефектоутворення і не дає можливості виявити роль кисневої підсистеми.

2. Випромінювання, які зміщують лише атоми кисню (наприклад, в розчинах показана можливість використання γ або рентгенівського випромінювання для створення дефектів у кисневій підґратці $YBa_2Cu_3O_7$ за рахунок іонізації [66]).

3. Випромінювання, які надають змішаний вплив на кристалічну решітку. З огляду на сказане, слід звернути увагу на теоретичні та експериментальні роботи, в яких сформульована модель еволюції точкових дефектів в кисневій підсистемі при γ – опроміненні тонких плівок $YBa_2Cu_3O_7$. Було показано, що при γ – опроміненні відбувається розбиття мікрокристалітів на фази з різним вмістом кисню. Такі фази мають, відповідно різні критичні

температури T_c , за відсутності дифузійного виходу кисню на поверхню. При цьому сили стоку міжкристалічних границь ($S_\beta = 2.5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$) та границь двійників ($S_\alpha = 5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$) для кисню, а також енергії зв'язку кисню з міжкристалітними границями ($\epsilon_\alpha = 1.6 \text{ eV}$) виявляються досить великими, щоб утримувати кисень в процесі відпалу при $T_A = 250^\circ\text{C}$ [67–69].

Експерименти з низькотемпературного електронного опромінення показують зсув температури надпровідного переходу в область низьких температур та збільшення опору вздовж напрямків ab та c [68,70,74]. При цьому металевий характер провідності вздовж ab – площини залишається незмінним, а вздовж напрямку c спостерігається посилення напівпровідникової залежності $\rho(T)$. Відпал опромінених монокристалітів при температурі від 100 до 410 К приводить до відновлення НП – параметрів. При цьому напівпровідниковий характер провідності вздовж осі c зберігається.

Опромінення плівок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ іонами He^{++} з енергією 6.7 MeV при флюенсах більше $2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ знижує T_c до 4.2 К та менше. При збільшенні флюенсів до $4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ спостерігається збільшення об'єму елементарної комірки та зменшення кількості фази $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ більш ніж в два рази [72,59]. Подальший відпал при $T = 900^\circ\text{C}$ протягом 120 хв. в атмосфері кисню приводить до відновлення критичної температури та об'єму елементарної комірки до величин, відповідних вихідному стану [69].

Таким чином, у працях значного числа авторів проводиться аналогія між погіршенням провідних властивостей в результаті радіаційного впливу та зміною складу, що супроводжуються розшаруванням системи на об'єми з різним вмістом кисню. Однак експерименти з опромінення зразків $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ швидкими нейтронами не виявили виникнення включень тетрагональної ненадпровідної структури при частковому перерозподілі кисню з позицій O (4) в позицію O (5) [66].

З цієї точки зору особливо цікавими є роботи з низькотемпературного опромінення [75,76] сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ з різним вмістом кисню за відсутності процесів термоупорядкування, в яких обговорюються дві альтернативні моделі розупорядкування, які відповідають різним рекомбінаційним об'ємам вакансій та міжвузлових атомів кисню:

1. При малих рекомбінаційних об'ємах ($\beta = 1$, β – число кисневих вузлів елементарної комірки, які потрапили в об'єм впливу міжвузельного атома кисню) вибиті атоми кисню рекомбінують в основному у вузли, що оточують атоми Y (вузли 06), практично порожні без опромінення. Одночасно з цим йде зростання концентрації міжвузлових атомів кисню та вакансій в вузлах 01 – 05. У цьому випадку на деградацію критичної температури ВТНП впливає зростання загальної дефектності зразка [77].

2. У разі великих рекомбінаційних об'ємів ($\beta = 50$) атоми кисню, вибиті з усіх кисневих вузлів ґратки, переміщуються в основному в площину Cu – O ланцюжків, оскільки початкова кількість атомів кисню на комірку велика – $(7 - y)$, а кількість структурних вакансій найбільша в площині ланцюжків (для $y = 0$ – принаймні одна). Відбувається "швидке перекачування" атомів кисню в площину ланцюжків, причому для заповнення цієї площини потрібно перемістити незначну частину кисню з вузлів 01, 02, 03 в незайняті ланцюжкові вузли 04 і 05. Вузли 06 залишаються порожніми де немає міжвузлових атомів кисню [78,79]. У цьому випадку деградацію критичної температури ВТНП $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з ростом флюенса опромінення можна пов'язати із зростанням концентрації атомів кисню в площині Cu – O ланцюжків. Слід зазначити, що опромінення по різному діє на ВТНП $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з різним вмістом кисню δ . Тобто якщо у випадку $\delta \sim 0$ відбувається монотонне зменшення критичної температури T_c ВТНП з ростом флюенса опромінення (числа зсувів на атом Cu), то для $\delta > 0$ при малих дозах опромінення може спостерігатися деяке зростання T_c , пов'язане з приходом атомів кисню в площину упорядкування (тут прийнято, що на зміну T_c впливає

тільки зміна концентрації атомів кисню в площині упорядкування. Зразки з $\delta > 0$ мають більшу радіаційну стійкість, ніж зразки з $\delta = 0$, хоча і мають менші T_c . Збільшення T_c було виявлено в низці експериментів з низькотемпературного опромінення ВТНП $YBa_2Cu_3O_7$ [75,76], хоча воно і не мало такого яскраво вираженого характеру, що можливо пов'язано з деяким розпорядкуванням атомів кисню в площині Cu – O ланцюжків.

"Критична" концентрація дефектів досягається при менших флюенсах в другій моделі. Однак, для визначення застосовності тієї чи іншої моделі необхідно експериментальне визначення зміни населеності кисневих вузлів під дією низькотемпературного опромінення.

Висновки до розділу 1

Підводячи підсумок викладених вище міркувань, можна сказати:

1. Особливі електричні властивості сполуки $YBa_2Cu_3O_7$ визначаються такими чинниками:

- речовина має складну ізодесмічну кристалохімічну структуру, що характеризується ромбічною елементарною коміркою, і містить як складові елементи – перовскітоподібні блоки, розділені площинами, що не містять іонів кисню;
- перовскітоподібні структурні блоки формуються, іонами кисню та іонами металу, які з одного боку, повинні характеризуватися «нормальною» (металевою) електричною провідністю, а з іншого боку, активно реагувати з киснем та формувати хімічні зв'язки різної конфігурації, тобто здатним змінювати свій валентний стан;
- іони металу, разом з іонами кисню, крім участі в формуванні блоків із перовскітоподібною структурою, повинні формувати або базисні площини (ab) або відокремлені «провідні» площини, паралельні базисним площинам;

2. Дефекти кристалічної решітки різної природи, впливають на електричні властивості ВТНП – сполуки $YBa_2Cu_3O_7$. Так, дефекти

кристалічної структури, внесені у зразки монокристалів ВТНП під впливом опромінення високоенергетичними електронами змінюють електричні параметри надпровідного переходу і поведінку електроопору при температурах, вищих T_c , в основному, за рахунок впливу на розподіл атомів кисню в кристалічній решітці.

Основні матеріали, розглянуті у розділі 1 опубліковані у огляді [1].

У зв'язку з наведеним вище, метою дисертаційного дослідження обрано проблему встановлення фізичних закономірностей еволюції магніторезистивних характеристик у шаруватих ВТНП – сполуках сімейства $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в умовах дії екстремальних зовнішніх чинників (низької температури, високого тиску і електронного опромінення).

Для досягнення поставленої мети було необхідно вирішити **такі основні завдання:**

1. виготовити високодосконалі монокристалічні зразки сполуки $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ для магніторезистивних досліджень та провести їх опромінення високоенергетичними електронами з енергіями 0.5 – 2.5 MeV при різних дозах;
2. виготовити експериментальні зразки з монокристалів сполук $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ у вигляді містків для резистивних досліджень з системою односпрямованих двійникових меж;
3. дослідити динаміку магнітного потоку та особливості пінінгу магнітних вихорів (ефект закріплення) на звичайних "непружних" та "пружних" двійниках, тобто на двійниках, клиновидні вершини яких в напрямку двійникування не виходять за поверхню кристала;
4. виміряти температурні залежності електроопору в базисній площині монокристалів $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ до і після опромінення та провести їх кількісний аналіз у широкому інтервалі від кімнатних температур до температури надпровідного переходу, а також

провести апроксимацію процесів переносу заряду в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на основі апробованих теоретичних моделей, зокрема моделей Блоха – Грюнайзена та Асламазова – Ларкіна;

5. виділити окремі механізми розсіювання носіїв заряду в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та їх додаткові внески у провідність зразків при наближенні до температури надпровідного переходу та вивчити вплив опромінення на параметри, що характеризують вищевказані механізми розсіювання носіїв заряду;
6. провести порівняльний аналіз впливу радіаційних та домішкових дефектів на флуктуаційну провідність, що домінує в температурному інтервалі поблизу критичної температури, T_c ;
7. дослідити вплив прикладання високого гідростатичного тиску до 14 кбар на електроопір та фазове розшарування в базисній площині монокристалів $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

РОЗДІЛ 2

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ТЕХНІКА ТА МЕТОДИКИ ДОСЛІДЖЕНЬ

Перенесення заряду в окремо взятому провіднику, як правило, обумовлене взаємодією носіїв струму з дефектами кристалічної структури, а також зі властивими данному зразку механізмами розсіювання. Зокрема, структурні особливості ВТНП-матеріалів приводять до виникнення в цих сполуках широкої температурної ділянки надлишкової парепровідності в базисній ab -площині, некогерентного поперечного електротранспорту, переходів виду метал-діелектрик, псевдощільної аномалії і т.д. Всі перераховані вище явища надзвичайно важливі для вирішення однієї з основних прикладних та фундаментальних задач фізики твердого тіла - створення нових технологічних матеріалів поліфункціонального призначення, в тому числі, з високою струмонесучою здатністю. Для з'ясування внеску окремо взятого типу дефектів в той чи інший механізм переносу заряду і, відповідно, до загального електротранспорту певної сполуки, часто необхідно проводити дослідження на зразках із заданою дефектністю кристалічної структури. З цієї точки зору найбільш оптимальними об'єктами досліджень є монокристали, які порівняно з іншими експериментальними зразками мають найбільш високий ступінь структурної досконалості. Стосовно ВТНП матеріалу $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (YBCO) велике значення мають наступні дві додаткові особливості. По-перше, в цьому надпровіднику можна контрольованим чином змінювати вміст кисню і, відповідно, контрольованим чином змінювати концентрацію точкових дефектів - вакансій кисню. По-друге, після насичення киснем в кристалах з'являються плоскі дефекти у вигляді площин двійникування, що можуть виконувати роль додаткового джерела анізотропії. Концентрацію цього виду дефектів також можна змінювати шляхом відповідної термомеханічної обробки.

У цьому розділі розглянуто методи отримання монокристалічних зразків з контрольованою структурою точкових та плоских дефектів, які включають: вирощування монокристалів з розчину – розплаву; насичення кристалів киснем; видалення двійників із монокристалів; створення у ВТНП кристалах точкових дефектів шляхом варіювання часу та температури процесу термообробки в потоці кисню та з використанням опромінення високоенергетичними електронами. У цьому ж підрозділі наведені результати структурних досліджень отриманих зразків.

Динаміку магнітного потоку досліджували транспортним методом на постійному струмі. Застосування цього методу пред'являє особливі вимоги до досліджуваних зразків, до методики створення низькоомних електричних контактів та до монтажу зразків. Також у цьому розділі викладені стислі описи експериментальних установок та їхніх основних метрологічних характеристик

2.1 Вирощування монокристалів ВТНП системи 1 – 2 – 3 та виготовлення зразків для резистивних досліджень

2.1.1 Вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

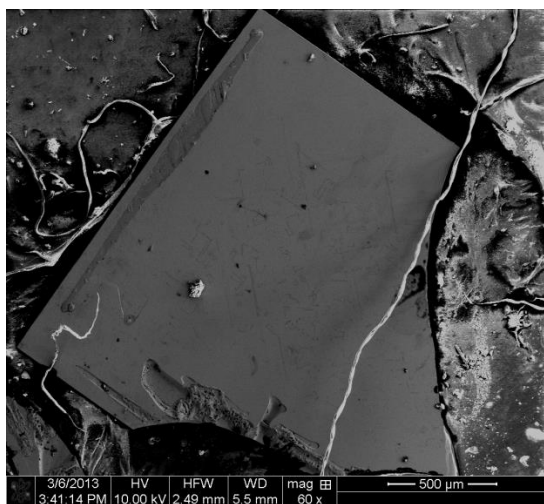
Розпад сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ по перитектичній реакції в області температур 1020-1040°C [81,82] виключає можливість вирощування кристалів такими традиційними способами, як метод Вернейля або Чохральського. В даний час найбільш поширеним способом вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ є розчин-розплавний метод, а як розчинник використовується надлишок сполук CuO та BaCuO_2 в молярному співвідношенні 1: 3. Такий вибір обумовлений двома причинами. По-перше, квазібінарні розрізи CuO - BaCuO_2 , CuO - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та BaCuO_2 - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, є подвійними евтектиками, і сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, CuO та BaCuO_2 утворюють потрібну евтектику при атомному співвідношенні елементів $\text{Y} : \text{Ba} : \text{Cu} = 0.7 : 25 : 73$ [83]. Тому при використанні складів зміщених в область збагачену ітрієм спочатку

кристалізується фаза $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, що дозволяє вирощувати монокристали розміром до 5 мм x 5 мм в АВ - площині і розміром до 0.2 мм в напрямку осі с [84]. По-друге, використання сполук CuO та BaCuO_2 в якості розчину-розплаву виключає забруднення кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ хімічними елементами, що входять до складу розчину-розплаву, оскільки всі хімічні елементи розчину-розплаву входять до складу вирощуваних кристалів.

При вирощуванні кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ використовують тиглі, виготовлені з тугоплавких оксидів, таких як Al_2O_3 , MgO та ZrO_2 , або тиглі виготовлені з золота або платини. При цьому монокристали $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в тій чи іншій мірі забруднюються матеріалом тигля, що може призводити до придушення надпровідних характеристик монокристалів. Найкращі надпровідні властивості кристалів отримані при використанні золотих тиглів [85]. Це ймовірно пов'язано з тим, що часткова заміна атомів Cu в площинах CuO_2 на Au призводить до невеликого збільшення критичної температури [86] і практично не змінює інших надпровідних характеристик. Необхідно зазначити, що використання золотих тиглів накладає обмеження на максимальну температуру вирощування кристалів, оскільки при температурах $T > 975^\circ\text{C}$ спостерігається взаємодія розплаву із золотом, що призводить до псування тиглів. Температура кристалізації потрібної евтектики $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - CuO - BaCuO_2 становить $T_E \approx 870^\circ\text{C}$. Тому інтервал температур, в якому можливе вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в золотом тиглі, укладений в межах від 870°C до 970°C .

Однією з технічних труднощів при отриманні кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ розчин - розплавним методом є їх відділення від розплаву, який закристалізувався. До теперішнього часу не знайдений розчинник, який розчиняє розчин-розплав, що закристалізувався і не взаємодіє з кристалами $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Одним з методів, який дозволяє вирощувати монокристали вільні від напливу закристалізованого розчину-розплаву є зростання з тонкого шару

розплаву в присутності слабкого градієнта температури вздовж тигля [87]. При наявності градієнта температури в процесі росту кристалів, розчин-розплав при температурах близьких до $T_E \approx 870^\circ\text{C}$ переміщається в область зі зниженою температурою. При цьому в області з підвищеною температурою отримують кристали, поверхня яких вільна від закристалізованого розплаву.



└──────────┘ 1мм

Рис. 2.1 Монокристал YBaCuO вирощений при поступовому охолодженні ростового розчин – розплаву.

При вирощуванні кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в якості вихідних компонентів зазвичай використовують сполуки Y_2O_3 , BaCO_3 та CuO . Використання BaCO_3 , вимагає попереднього високотемпературного відпалу вихідних наважок з метою декарбонізації карбонату барію.

Враховуючи

вищевикладене, при вирощуванні кристалів використовували такі процедури. Вихідні компоненти (Y_2O_3 ,

BaCO_3 та CuO , всі марки ОСЧ) взяті в атомному співвідношенні $\text{Y}:\text{Ba}:\text{Cu} = 2:25:73$ перемішували та відпалювали при температурі 850°C протягом двох діб з метою декарбонізації та синтезу сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ та BaCuO_2 . Потім навіску масою 10 г поміщали в золотий тигель виготовлений у вигляді плоского човника та нагрівали в печі до температури 965°C . Розплав витримували при цій температурі протягом двох годин, а потім знижували температуру зі швидкістю $2^\circ\text{C}/\text{год}$ до температури 870°C . При цьому градієнт температури вздовж тигля становив близько $3^\circ\text{C}/\text{см}$. Потім піч вимикали і закристалізований розплав та вирощені кристали охолоджувалися до

кімнатної температури разом з піччю. На рис. 2.1 представлений фотознімок кристалів вирощених за описаною технологією.

Контроль за процесом росту та режимами роботи установки забезпечувався використанням комп'ютерного вимірювального комплексу «ІТМ лабораторія». Одночасно з процесом нагрівання ростової суміші, установка забезпечувала можливість стеження за фазовими перетвореннями в тиглі методом ДТА.

Установку для вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, їх відпалювання в атмосфері кисню, та дослідження фазових перетворень з використанням ДТА, показано на Рис. 2.3.

Важливою проблемою, яка існує при вирощуванні монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, є вибір матеріалу для тиглів. З причини великої активності розплаву оксидів, відбувається їх взаємодія з матеріалом тигля і, як наслідок, забруднення кристалів.

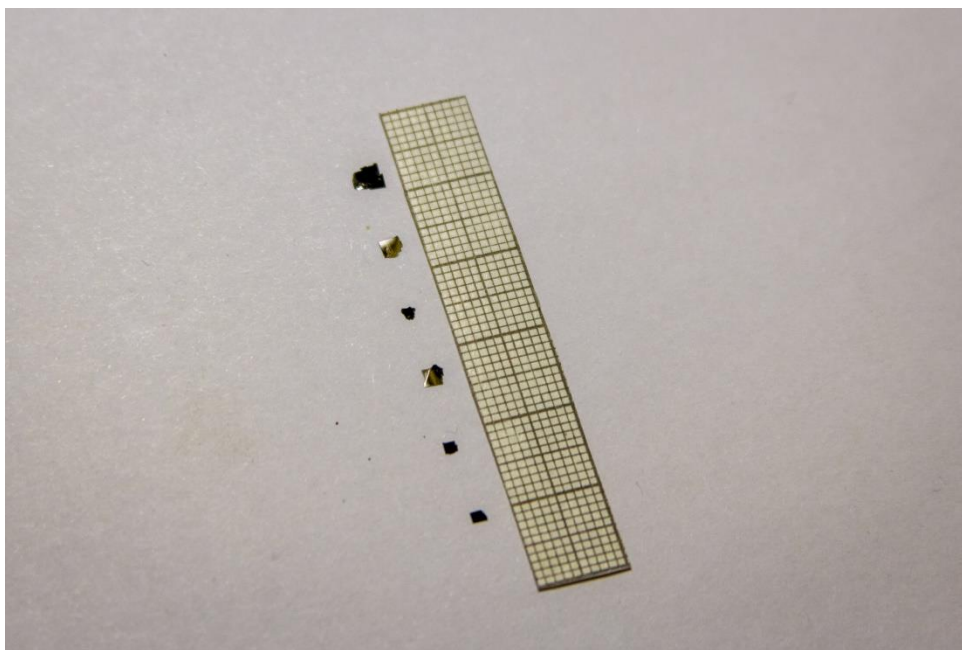


Рис. 2.2 Монокристали YBaCuO вилучені з розчин – розплаву.

Найчастіше для вирощування монокристалів YBaCuO використовують тиглі, виготовлені з золота [87], оксиду цирконію ZrO_2 , стабілізованого ітрієм або з ZrBaO_3 . Однак, лише тиглі з ZrBaO_3 , можуть бути використані

багаторазово. Для вирощування монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ нами використовувались як золоті тиглі так і тиглі з оксиду цирконію ZrO_2 стабілізованого ітрієм.

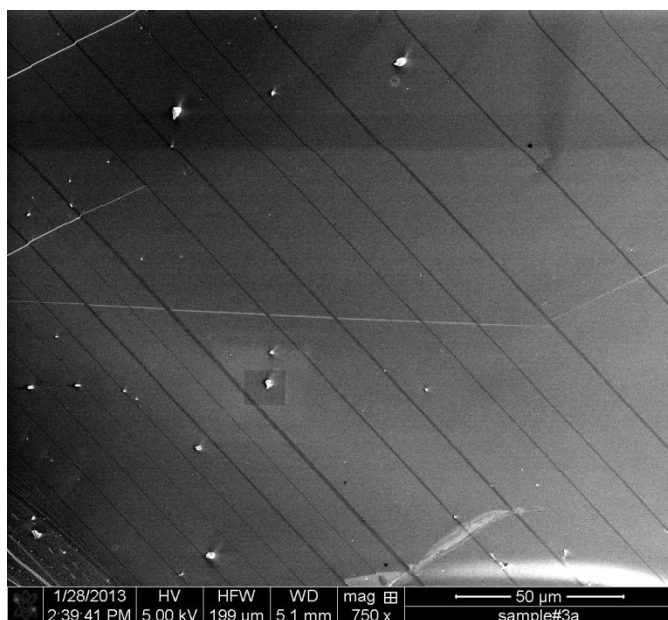
2.1.2 Приготування зразків з різним ступенем відхилення від стехіометрії

Монокристали $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, отримані після вирощування мають тетрагональну структуру. До процедури відпалу дефіцит по кисню становить $\delta \sim 0.4$. Від вмісту кисню залежить не тільки температура надпровідного переходу, але й наявність такого переходу. Перехід від тетрагональної до орторомбічної форми кристалічної решітки контролювали з використанням рентгеноструктурних досліджень зразків. Про зміну кристалічної структури, після відпалювання зразка в атмосфері кисню, опосередковано вказує поява двійникових границь на поверхні кристала. Зменшення кисневого дефіциту відзначається на підвищенні критичної температури надпровідного переходу зразків. Наприклад, при $\delta > 0.1$ критична температура становить менше 90 К. Для отримання орторомбічної фази з вмістом кисню, близьким до стехіометричного, зразки відпалювали в атмосфері кисню протягом 72 годин при температурі 430°C . Після насичення киснем кристали мали орторомбічну кристалічну структуру з параметрами ґратки $a = 0.3833$ нм, $b = 0.3898$ нм і $c = 1.17$ нм [60]. Як було вказано в процесі тетра – орто переходу відбувається утворення двійників, [64] які мінімізують пружну енергію кристала. Після такої термообробки кристалів їх критична температура становила близько 92 К, а ширина надпровідного переходу складала $\Delta T_c \approx 0.3$ К. Зниження вмісту кисню здійснювали відпаленням зразків в атмосфері повітря при температурі $420 - 650^\circ\text{C}$ протягом 24 – 48 годин. Дефіцит кисню « δ » визначався за часом та температурою відпалювання в потоці кисню, згідно відповідних градувальних таблиць наведених в [65–66]. Цей метод дає можливість

оцінити значення δ з точністю до 0.03. Більш грубу оцінку вмісту кисню (з точністю до $\delta \approx 0.1$) можна отримати за відомою залежністю критичної температури від параметра δ [59].

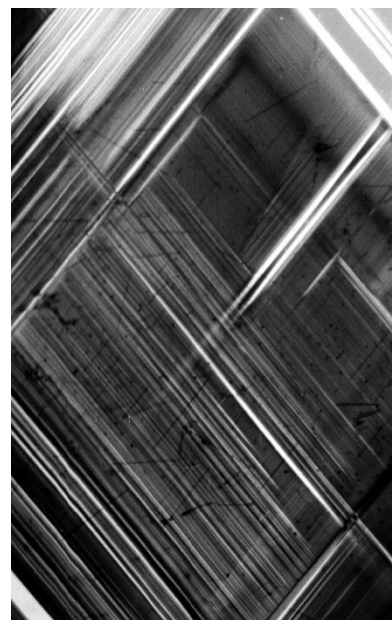
2.1.3 Морфологія двійникових границь

Оскільки насичення киснем відбувається через поверхню кристала, то орторомбічна фаза зароджується саме на поверхні кристала, в той час як в центрі кристала зберігається тетрагональна структура. Тому в процесі насичення киснем в кристалах виникають великі механічні напруження, які релаксують шляхом двійникування. Площини двійників в кристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ завжди орієнтовані під кутом 45° по відношенню до кристалографічних осей a й b і орієнтовані паралельно осі c [64]. Морфологія ГД в ab – площині як правило блокова.



100 мкм

а



1 мкм

б

Рис. 2.3 Морфологія двійників, отримана методом електронної і оптичної мікроскопії: а – двійники, що утворились у кристалі під час

вирощування, б – двійники, що утворилися у кристалі після відпалу в атмосфері кисню (зображення в поляризованому світлі).

У межах кожного блоку площини ГД орієнтовані в одному напрямку, а середній розмір блоків зазвичай становить $0.1 \times 0.1 \text{ мм}^2$. Відстань між ГД становить від 0.1 мкм до 10 мкм і може змінюватися в одному і тому ж кристалі в 4 – 5 разів [67]. У кристалах товщиною 10 – 30 мкм двійники зазвичай пронизують всю товщину кристала. Деякі кристали містять блоки з односпрямованими площинами ГД розміром $0.5 \times 0.5 \text{ мм}^2$ і більше. Двійникування кристалів відбувається й під час росту кристалів. Однак під час росту виникає значно менша кількість таких дефектів. На Рис. 2.3 показана морфологія ГД, які виникли під час вирощування (а) та після відпалу в атмосфері кисню (б). Для вирізання містків відбирали кристали з односпрямованими площинами ГД у вимірюваній частині зразків.

Межі двійників, що є двовимірними дефектами, можуть слугувати ефективними стоками для дефектів більш низької розмірності і, зокрема, для кисневих вакансій. Це зумовлено тим, що механічні напруження, викликані присутністю двійників, створюють дальнодіючі поля типу тяжіння. Наявні в літературі дані [64] показують, що концентрація кисню на двійниках дійсно знижена. Зниження концентрації кисню на двійниках приводить до локального пригнічення надпровідних характеристик. Ефективна товщина ГД

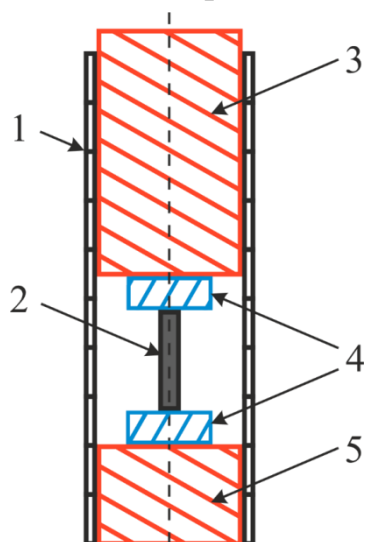


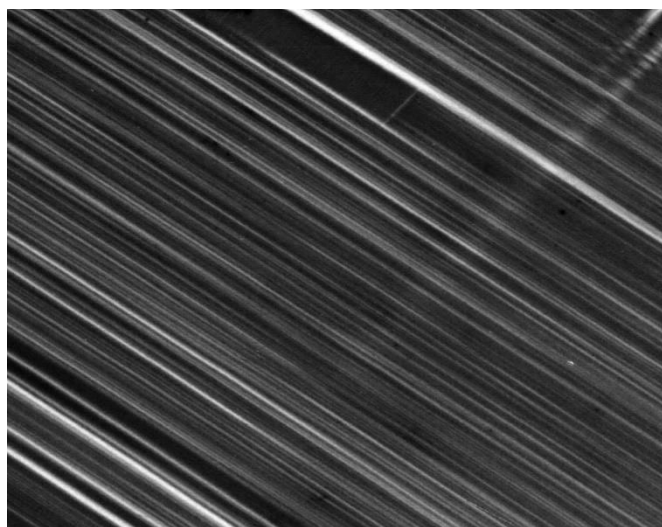
Рис. 2.4. Комірка для роздвійнювання монокристалів.

за оцінками дорівнює 10 – 30 мкм, і порівняна з довжиною когерентності, що приводить до ефективної взаємодії кернів абрикосівських вихорів з цими дефектами. Двійники можуть бути видалені з монокристалів за допомогою дії навантаження уздовж площини аb при високих температурах [68].

Комірка 1 для роздвійнювання (рис. 2.4) монокристала 2 складається з циліндричного корпусу 1, нерухомого дна 5 та рухомого поршня 3, до якого прикладали одноосьове навантаження. Щоб уникнути руйнування кристала 2, яке може статися внаслідок не паралельності поверхонь дна і поршня, між кристалом і поршнем, а також між кристалом та дном поміщали срібну фольгу 4. Це дозволяло створювати більш рівномірний розподіл навантаження по перетину зразка. Роздвійнювання проводили при температурі 720 К під тиском 30 - 40 ГПа в атмосфері повітря. Після роздвійнювання кристали повторно відпалювали в атмосфері кисню протягом трьох діб з метою отримання однорідного контрольованого вмісту кисню.

2.1.4 Нанесення електроконтактів і виготовлення містків для резистивних досліджень

Для проведення резистивних досліджень відбирали тонкі монокристали прямокутної форми довжиною 3 мм, шириною 0.5 мм і товщиною 0.03 мм з проникаючими ДГ, у яких були області з односпрямованими ДГ розміром $0.5 \cdot 0.5 \text{ мм}^2$ (рис. 2.3.6).



1
1 мкм

Рис. 2.5. Знімок області з односпрямованими двійниками. Масштаб позначений на рисунку.

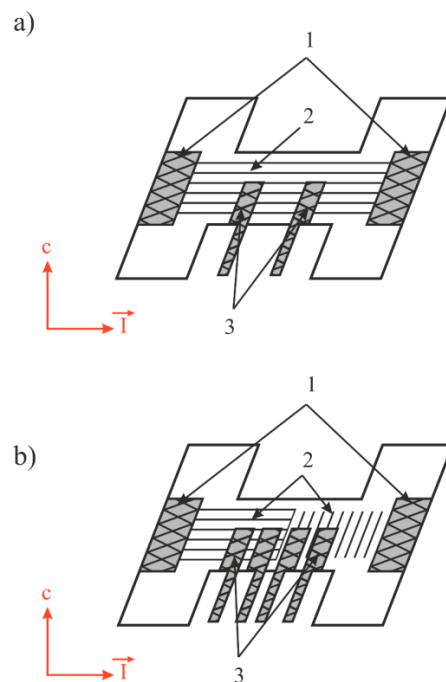


Рис. 2.6. Схематичне зображення містків для резистивних досліджень.

Електричні контакти створювали шляхом нанесення срібної пасти на поверхню кристала з подальшим підключенням срібних провідників і трьохгодинним відпалом при температурі 200°C в повітрі.

Провідники для струмових контактів виготовляли з фольги товщиною 0.1 мм і шириною 1,5 мм, а для потенційних контактів використовували дріт діаметром 0.04 мм. Використання такої технології давало можливість отримувати малий перехідний опір струмових контактів (менш $2 \cdot 10^{-3} \text{ Ом}$) та

проводити резистивні вимірювання при транспортних струмах до 1 А без омичного перегріву струмових контактів.

Після насичення киснем та виготовлення електричних контактів із кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ вирізали містки. Різання містків здійснювали імпульсним ультрафіолетовим лазером у ФТІНТ НАН України ім. Б.І.Веркіна. Тривалість імпульсів становила 10 мкс при шпаруватості імпульсів 1 мс. Діаметр лазерного променя в області різання становив близько 3 мкм. Характерна ширина таких містків становила близько 0.2 мм, а відстань між потенційними контактами близько 0.3 мм. Двійникові границі усередині містків були орієнтовані в одному напрямку. При цьому містки вирізали таким чином, щоб вектор транспортного струму I був паралельний, перпендикулярний (Рис. 2.6) або проходив під кутом до площин двійників.

2.1.5 Структурні дослідження монокристалів

Структурні дослідження проводили методами рентгенівської дифрактометрії, електронної та оптичної мікроскопії. Рентген – дифрактометричне дослідження проводили на апараті ДРОН – 3М в монохроматизованому випромінюванні. Параметри елементарної комірки a , b та c визначали шляхом реєстрації відбитків від площин (200) (020) та (006), відповідно. Рефлекс (006) реєструвався в геометрії Бреґга на відображення, а рефлекси (200) та (020) – в геометрії Лауе на просвіт. Блочність кристалів визначали з кривих гойдання для відображень від площин (006).

Зразки для електронної мікроскопії препарували з монокристалів, що пройшли рентгендифрактометричні дослідження. Зтоншення кристалів здійснювали в вакуумі іонним травленням атомами аргону. Прискорювальна напруга іонної гармати становила 10^4 В. Топологію двійникових меж досліджували на оптичному мікроскопі МІМ – 7 в поляризованому світлі, а також на оптичному мікроскопі МБС – 10.

2.1.6 Опромінення високоенергетичними електронами

Досліджені в роботі кристали вирощували розчин – розплавним методом в тиглі з оксиду цирконію. Насичення кристалів киснем здійснювали в атмосфері кисню при 430°C протягом трьох діб. Всі досліджені кристали мали ознаки двійникування, а площини двійників мали блочну структуру. Вимірювання опору проводили стандартним 4 – контактним методом. Струмові контакти виготовлялись такими, що транспортний струм протікав уздовж найбільшого розміру зразка. Характерні розміри зразків для цих вимірювань складали $(1.5...2) \times (0.2...0.3) \times (0.01...0.02)$ мм³. Найменший розмір відповідав осі с. Потенціальні контактами були рознесені на відстань біля 1 мм.

Зразки опромінювали високоенергетичними електронами з енергіями 0.5 – 2.5 МеВ. Опромінення відбувалось при температурах $T \sim 10$ К. Для дози опромінення 10^{18} см⁻² електронами з енергією 2.5 МеВ, характерна усереднена по всіх підгратках концентрація дефектів 10^{-4} зміщ./ат. Під час опромінення зразки поміщали у гелієвий термостат. Після опромінення відбувалось вимірювання опору в інтервалі температур $10 < T < 300$ К. Вимірювання опору проводили при фіксованих температурах. Температури вимірювались з використанням платинового термометра опору, а стабільність температури становила близько 5 мК.

2.2 Методики вимірювання

2.2.1 Методика вимірювання поперечного та поздовжнього електроопору

При виборі оптимальної методики вимірювання поздовжнього і поперечного електроопору, були використані результати відповідної роботи проф. М.А.Оболенского із співавторами [86]. При вимірюванні питомого

електроопору було випробувано кілька способів розташування контактів, зображених на Рис. 2.7 (вставки а, б, в). Вимірювання електроопору анізотропних кристалів зазвичай проводиться методом Монтгомері [89]. При цьому використовується конфігурація розташування контактів, наведена на рис. 2.7, вставка б.

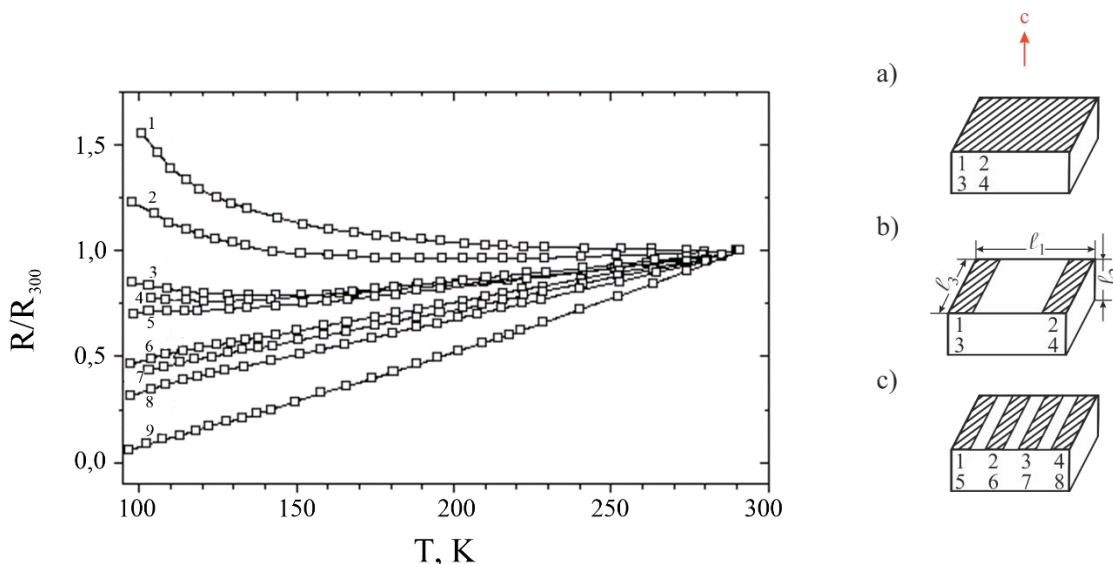


Рис. 2.7 Температурні залежності зведеного електроопору, виміряні різними методами. Справа показані конфігурації контактів, які використовували для вимірювання електроопору [86].

Оскільки двійникування відбувається уздовж напрямків $[200]$ та $[020]$, обидва напрямки в базисній площині повинні бути еквівалентні. У цьому випадку для визначення питомого електроопору уздовж осі c – rc і в базисній площині, перпендикулярній осі c – rab , потрібно вимірювати величини R_1 та R_2 , де R_1 – відношення спаду напруги на контактах 3 та 4 до величини струму, що пропускається через контакти 1 та 2, а R_2 – відношення спаду напруги на контактах 2 та 4 до величини струму, що пропускається через контакти 1 та 3.

На Рис. 2.7 температурні залежності R_1 та R_2 представлені кривими 9 та 1, відповідно, а розраховані температурні залежності rc та rab – відповідно кривими 8 та 3. Процедура розрахунку rc та rab значно спростилася б у разі,

коли l_3 значно менше l_1 та l_2 . Це можна здійснити при використанні не точкових, а лінійних контактів (заштриховані ділянки на Рис. 2.7, б).

У цьому випадку кристал можна розглядати як набір тонких пластин, покладених уздовж напрямку l_3 . Температурні залежності ρ_s та ρ_{ab} при використанні як точкових, так і лінійних контактів практично збігаються.

Достовірність результатів вимірювання ρ звичайним чотирьохзондовим методом визначається рівномірністю розподілу струму по перетину зразка між потенціальними контактами. В експерименті цього можна досягнути при використанні конфігурації контактів, наведеної на Рис. 2.7 а. При цьому в якості струмових використовували контакти 1 та 3, а в якості потенціальних – точкові контакти 2 та 4. Результати, отримані при використанні такого методу вимірювання, представлені кривою 5.

Була також використана конфігурація контактів, наведена на Рис. 2.7 в. Для вимірювання ρ_s як струмові використовувалися контакти 1, 3, 4 та 5, 7, 8, а як потенціальних – контакти 2 та 6. При цьому результати вимірів збігалися з кривою 5. При такій конфігурації можна простежити динаміку зміни ρ_s в міру збільшення рівномірності розподілу струму між потенціальними контактами. Якщо пропускати струм через контакти 1 та 5, а спад напруги знімати з контактів 4 та 8, 3 та 7, 2 та 6, то отримаємо криві 1, 2 та 4 відповідно. Таким чином, у міру зменшення відстані між струмовими та потенціальними контактами, що забезпечує більш рівномірний розподіл струму між потенціальними контактами, результати вимірювань наближаються до кривої 5. Така конфігурація контактів дає можливість проводити вимір ρ_{ab} . При цьому як струмові можна використовувати контакти 1 та 4, а як потенціальні – контакти 2 та 3 (крива 6) або як струмові використовувати контакти 1, 5 та 4, 8, а як потенціальні – контакти 2 та 3 (крива 7). У другому випадку відбувається більш рівномірний розподіл струму по перетину зразка і результати вимірювань ближчі до кривої 8. Вимірювання ρ_{ab} на дуже тонких

кристалах ($l_2 \sim 10^2$ см) дають результати, близькі до кривої 8. Відмінність полягає в тому, що на тонких кристалах нижче 200 К є відхилення від лінійної залежності в сторону зменшення.

Виходячи з наведених вище експериментальних даних ми вважаємо, що найбільш близькою до істинної температурної залежності ρ_s є крива 5. При використанні методу Монтгомері завищення ρ_s може бути обумовлено тим, що контакти повинні бути точковими (а це не можливо забезпечити, враховуючи малі розміри кристалів), а також наявністю анізотропії ρ в базисної області вздовж напрямків l_1 та l_3 . Тому в подальшому для вимірювань використовували конфігурацію контактів, наведена на Рис. 2.7 (вставка в). Для вимірювання ρ_s як струмові використовували контакти 1, 3, 4 та 5, 7, 8, а потенціальні – контакти 2 та 6. Для вимірювання ρ_{ab} як струмові використовували контакти 1,5 та 4,8, а потенціальні – контакти 2 та 3, хоча це призводить до завищення результатів вимірювань. При резистивних вимірюваннях критичної температури враховувалося, що критичний струм вздовж перпендикулярної осі c може відрізнятись в тисячу разів ($j_c/j_{ab} \sim 10^3$).

2.2.2 Установка для проведення резистивних вимірювань із змінною орієнтацією магнітного поля

Для проведення резистивних вимірювань при різних орієнтаціях магнітного поля відносно кристалографічних осей експериментального зразка використовувалася спеціальна установка, блок-схему якою показано на рис. 2.8.

Азотний кріостат був спеціально сконструйований для проведення вимірювань з використанням електромагніту 2. Діаметр низькотемпературної частини кріостата, розташованої між полюсами електромагніта 3, становив 20 мм, що дозволяло отримувати магнітні поля до 1.5 Т. Нижня частина кріостата виготовлена з двох співвісних тонкостінних трубок 4, простір між якими

вакуумований. Теплий палець 5 також виготовлений з двох тонкостінних трубок з нержавіючої сталі і служить для термоізоляції об'єму, в якому розташований зразок 6 від резервуару з рідким азотом. Було передбачено можливість відкачування парів азоту в кріостаті. Така конструкція дозволяла проводити вимірювання в інтервалі температур 65-300 К. Електромагніт живився від джерела постійного струму 1, максимальна вихідна напруга якого становила 50 В, при струмі 20 А.

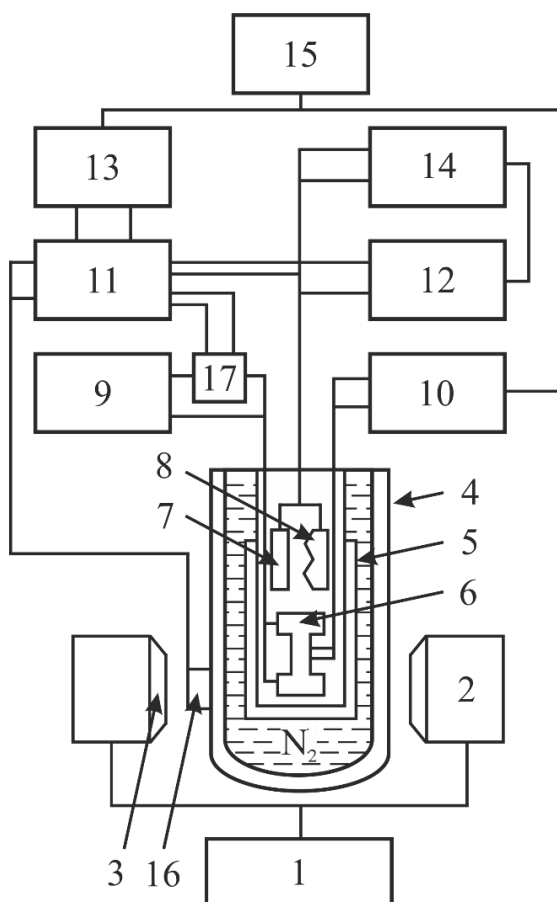


Рис. 2.8 Схематичне зображення експериментальної установки для вимірювання температурних залежностей електроопору в інтервалі температур 77 – 300 К та резистивних вимірювань із змінною орієнтацією магнітного поля.

Система регулювання температури зразка складається з теплового пальця 5, термометра 7, нагрівача 8, компаратора 12 і підсилювача потужності 14.

Термометр 7 виконаний з дев'яти послідовно з'єднаних мідь - константанових термопар, що дозволяло досягти чутливості термометра в області азотних температур 100 мкВ/К. Сигнал з термопари порівнювався з сигналом і посилювався по напрузі компаратором 12. Посилений по напрузі диференціальний сигнал подавався на підсилювач потужності 14, а потім на нагрівач 8. Така схема дозволяла отримати стабільність температури зразка не гірше 0.005 К.

Електромагніт 2, укріплений на поворотному пристрої, міг обертатися навколо власної осі на 360° через шестерну передачу. Спеціально сконструйована вставка дозволяла обертати зразок навколо перпендикулярної осі площини малюнка на кут $\pm 10^\circ$. Така конструкція дозволяла змінювати орієнтацію зовнішнього магнітного поля двох взаємно перпендикулярних площинах та отримати необхідну орієнтацію вектора поля ***H*** щодо кристалографічних осей кристала. Точність установки вектора ***H*** була не гірше за 0.1° .

Вимірювання проводили на постійному струмі, що дозволяло виключити термоелектричні сигнали. Падіння напруги на зразку вимірювали нановольтметром 10 з точністю 10^{-8} В. Стабільність джерела транспортного струму 9 становила 10^{-5} . Величину транспортного струму визначали за падінням напруги на зразковому опорі 17 включеному послідовно в струмовий контур зразка. Всі сигнали, що вимірюються через шину КОП вольтметрів 10 і 13 надходили в цифровому коді на комп'ютер 15.

2.2.3. Камера високого тиску для резистивних вимірювань

Схематичне зображення камери представлено на Рис. 2.9. Її основні розміри: діаметр робочого каналу 8.4 мм, зовнішній діаметр 29.8 мм, загальна довжина 160 мм.

Для створення тиску камера 1, виготовлена з берилієвої бронзи Бр Б-2, яка пройшла термомеханічну обробку, закріплюється в лещатах, загвинчуванням гайки зусилля передається на поршень 2 через компіруючий плунжер 6. Ущільнення плунжера здійснюється набором кілець 3, 4, 5 з берилієвої бронзи, відпаленої міді й свинцю. Тиск у камері фіксується гайкою

7. При необхідності витягання плунжера з камери застосовується спеціальний знімач.

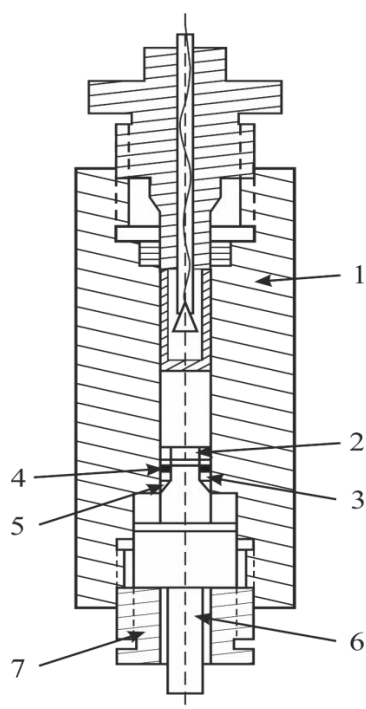


Рис. 2.9. Схема конструкції камери високого тиску.

Конструктивна особливість даної камери - сполучення обтюратора із запірною гайкою й електророз'ємом, що набагато полегшує й прискорює процес монтажу й одержання електричного контакту зі зразком та датчиком тиску. В обтюраторі розташовано один конусний електроввід (конструкція Амага) 6 з ізоляцією з аральдита. Із зовнішньої сторони конус з'єднується з електророз'ємом РС-10, а з боку робочого каналу камери до нього підпаюється зразок та датчик вимірювання тиску.

У даній камері створювався тиск при кімнатній температурі до 14 кбар. При охолодженні тиск у камері падав на величину ~ 3 кбар. У якості середовища, що передає тиск використовували збезводнену суміш трансформаторного масла з гасом 1:1. Використання даного розчину дозволяє одержувати досить однорідні тиски.

2.3. Точність вимірювань та обробка експериментальних даних.

При резистивних дослідженнях спад напруги на зразках вимірювали нановольтметром на основі 24 розрядного АЦП фірми Analog Devices з точністю 10^{-7} В, що відповідає напруженості електричного поля $\pm 5 \cdot 10^{-6}$ В/см.

При резистивних вимірюваннях температуру зразка вимірювали з використанням платинового датчика температури з точністю ± 3 мК. При вимірюванні процесів ізотермічної релаксації опору точність підтримування температури становила ± 5 мК, абсолютну величину питомого електроопору вимірювали з точністю до 2%, а відносна зміна опору з точністю 0,01%. Величина транспортного струму при вимірюваннях електроопору становила 0.1 – 1 мА. Вимірювання проводили при двох протилежних напрямки струму для того, щоб виключити вплив термоелектричних струмів. Стабільність магнітного поля при магнітних та резистивних дослідженнях складала 10^{-4} Тл. При апроксимації експериментальних даних аналітичними функціями використовували стандартну обробку методом найменших квадратів.

Для опису результатів експериментів з вимірювання температурних залежностей електричного опору зразків в інтервалі температур від T_c до 300° К, де ці залежності демонструють металеву поведінку, було використано 3D модель Блоха–Грюнайзена, яка враховує розсіювання електронів на фононах, дефектах кристалічної ґратки, а також флуктуаційну провідність, що дає найменшу похибку [41,40]. 2D – 3D кросовер описується моделями Лоуренса – Доніаха [98] та Макі – Томпсона [99]. Електрична провідність має такий вираз:

$$\sigma = \rho_n^{-1} + \Delta\sigma_{AL}, \quad (2.1)$$

де

$$\rho_n = (\rho_0 + \rho_{ph}) \cdot (1 + b_0 \cdot T^2); \quad (2.2)$$

ρ_{ph} – внесок фононів в розсіювання носіїв заряду, який описується співвідношенням Блоха – Грюнайзена [100]:

$$\rho_{ph} = C_3 \left(\frac{T}{\theta}\right)^3 \int_0^{\theta/T} \frac{x^3 e^x}{(e^x - 1)^2} dx. \quad (2.3)$$

Тут ρ_0 – залишковий опір, який зумовлений розсіюванням на дефектах кристалічної ґратки; ρ_{ph} – складова електричного опору зразка, яка зумовлена

розсіюванням на фононах; $C_3 \propto N(\varepsilon_F)$ ($N(\varepsilon_F)$ – щільність електронних станів на рівні Фермі); θ – температура Дебая; $b_0 \propto 3N_1^2 - N_2 + p$, (де $N_1 = \frac{1}{N(\varepsilon)} \cdot \frac{dN}{d\varepsilon}$; $N_2 = \frac{1}{N(\varepsilon)} \cdot \frac{d^2N}{d\varepsilon^2}$, а p – лінійна функція N_1 з коефіцієнтами, що містять ефективні маси носіїв заряду та енергії рівня фермі, відраховані від дна або стелі зони для електронів, або дірок, відповідно. Тобто b_0 залежить від форми кривої щільності електронних станів, ефективних мас носіїв струму та енергії Фермі.

Формула для флуктуаційної провідності (2.4) містить гіперболічний синус для обмеження інтервалу її впливу [41]:

$$\Delta\sigma_{AL} = \frac{e^2}{16\hbar\xi_c(0)\sqrt{2\varepsilon_0 \sinh(2\varepsilon/\varepsilon_0)}}, \quad (2.4)$$

де $\varepsilon = \ln[(T-T_c)/T_c]$ – зведена температура, T_c – критична температура надпровідного переходу, $T > T_c$, ξ_0 – довжина когерентності, ε_0 визначає температурний інтервал надпровідних флуктуацій $\varepsilon_0 = \ln(T^* - T_c / T_c)$, T^* – характеристична температура, яка визначає колапс надпровідних флуктуацій.

Висновки до розділу 2

1. Застосована методика вирощування кристалів із розчину – розплаву в присутності градієнта температури, дала можливість отримати монокристали високотемпературного надпровідника YBCO відносно великих розмірів в ab – площині та з малим розміром уздовж вісі c .

2. Великі розміри кристалів в ab – площині забезпечують можливість створення великої площі контакту кристал – струмопідвід, що у поєднанні з малим питомим перехідним електричним опором дає можливість пропускати через зразок транспортний струм до 2 А без перегріву контактів та, відповідно, досліджуваних зразків.

3. Застосована методика вимірювання транспортних характеристик сполук 1 – 2 – 3 та динаміки магнітного потоку, дала

можливість отримати температурні залежності резистивних та магніторезистивних властивостей монокристалічних зразків у широкому інтервалі температур і напруженості магнітних полів.

4. Спеціальні пристрої забезпечили зміну орієнтації вектора магнітного поля в двох взаємно перпендикулярних напрямках. Це давало можливість в процесі вимірювань контролювано змінювати напрямки магнітного поля як відносно кристалографічних осей кристалів, так і площин ДГ.

5. Наведені характеристики вимірювальних приладів та методи обробки експериментальних результатів відповідають цілям та задачам дослідження.

Основні результати роботи, які викладені в цьому розділі опубліковані в наукових працях [83, 85].

РОЗДІЛ 3

"ПРУЖНІ" ТА "НЕПРУЖНІ" ДВІЙНИКИ ТА ПІНІНГ ВИХОРІВ

АБРИКОСОВА В МОНОКРИСТАЛАХ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Як відомо [101,102], характерною особливістю структури ВТНП-сполук системи $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\text{Re}=\text{Y}$ або інший рідкоземельний іон) є наявність двійникових границь (ДГ). ДГ виникають внаслідок сегнетоеластичного тетра-орто переходу [101–104], який мінімізує еластичну енергію кристалу при насиченні його киснем до оптимального вмісту $\delta \leq 0.15$. ДГ орієнтовані вздовж осі c [105,106] і є додатковим джерелом анізотропії фізичних властивостей, що значно розширює спектр можливих задач [107,108], які можна вирішити в ході електро- та магніторезистивних, а також інших досліджень, проведених з використанням цієї сполуки. Крім того, ДГ є потужними центрами розсіювання нормальних та флуктуаційних носіїв електричного струму [109,110], вони також можуть служити центрами стоку дефектів меншої розмірності (дислокації, вакансії, домішки тощо) [111,112] та слугувати ефективними центрами піннінгу [107,108,113,114].

Оскільки скупчення двійників у монокристалічних зразках формують блокову структуру [115], а самі розміри блоків можуть досягати значень $1 \times 1 \text{ мм}^2$, то з таких монокристалів можна вирізати спеціальні зразки-містки з односпрямованою системою двійникових границь. При цьому самі ДГ у таких зразках можуть розташовуватися вздовж, поперек або під кутом до напрямку протікання транспортного струму [116]. Таким чином, змінюючи напрямок зовнішнього магнітного поля в таких містках, можна контролювати ефект піннінгу і, відповідно, величину критичного струму [108,113,116-119].

У монокристалічних зразках достатньо великих розмірів ($>1 \text{ мм}$) можуть з'являтися так звані "пружні двійники", природу яких описано в огляді [120].

У цій роботі ми детальніше зупинимося на морфології цих структурних дефектів та обговоримо особливості їх впливу на піннінг магнітних вихорів у сполуці $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Кристалічна сполука $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ є широко відомим та найбільш дослідженим представником групи високотемпературних надпровідників. Ця сполука відноситься до надпровідників другого роду, в яких формується так звана фаза Шубнікова, утворена з ліній магнітного потоку (вихорів), що проникають у глибину кристалу [121].

Виникнення двійників у кристалах цієї сполуки вперше було виявлено авторами [122,123]. Ці дефекти утворюються в процесі "тетра-орто" структурного перетворення в процесі відпалу кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в атмосфері кисню при температурі приблизно $\approx 700^\circ\text{C}$. Перетворення тетрагональної кристалічної решітки в орторомбічну в цьому випадку відбувається при насиченні кристала іонами кисню ($\delta \rightarrow 0$) та в процесі упорядкування цих іонів уздовж кристалографічних напрямків [010]. У результаті змінюються параметри решітки, що супроводжується появою механічних напружень, релаксація яких приводить до утворення двійників [124, 125].

Особливості дефектної структури кристала $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ відіграють важливу роль у формуванні деяких особливостей виникнення критичного стану. Зокрема, різноманітні види структурних дефектів (включення чужорідної фази, тріщини, пори, кластери дислокацій тощо) зумовлюють існування деякої критичної густини електричного струму J_c , внаслідок закріплення магнітних ліній потоку (вихорів) на цих дефектах [126–128]. Значення J_c є мірою деякої сили F_p (сили піннінгу), за допомогою якої вихори закріплюються в енергетично вигідних позиціях у матеріалі. Коли сила Лоренця F_L , що діє на вихори з боку зовнішнього магнітного поля, досягає

значення F_p , розпочинається рух вихорів, і, відповідно, виникає дисипація енергії у матеріалі, а надпровідність зникає [121].

У цьому розділі наведено результати досліджень піннінгу магнітних вихорів (ефект закріплення) на звичайних "непружних" та "пружних" двійниках, тобто на двійниках, клиновидні вершини яких в напрямку двійникування не виходять на поверхню кристала [129,130]. Такі структурні дефекти практично завжди утворюються в монокристалічних зразках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ розміром $\geq 1 \text{ mm}$ і лише іноді спостерігаються в полікристалах з розміром зерна $\approx 10^{-1} \text{ mm}$. У дрібнозернистих полікристалах з розміром зерна $\leq 10 \mu\text{m}$ вершини двійників у процесі свого формування досягають поверхні зерен і, відповідно, замість «пружних» двійників утворюються межі, що являють собою дзеркальні відображення двох однакових кристалічних решіток [129].

У наших дослідженнях ефективність дії «пружних» двійників як центрів піннінгу ми вивчали, вимірюючи величину критичного транспортного струму J_c в монокристалах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, розмір яких у площині (a–b) перевищував 1 mm. Методика отримання таких кристалів описана в роботі [131]. Критичну густину струму J_c вимірювали за допомогою стандартного чотирьохконтактного метода.

3.1. Дислокаційна будова "пружних" двійників

Двійникування – один із механізмів пластичної деформації кристалічних твердих тіл, що реалізуються в кристалах, які мають обмежену кількість площин легкого ковзання дислокацій (кристали з низькою кристалографічною симетрією) [129]. Двійником у найпростішому випадку називають дефект, який виникає при утворенні двох упорядкованих атомних структур, що є дзеркальним відображенням одна одної. Як правило, двійники утворюються

під дією локального (неоднорідного) зовнішнього навантаження на кристал або в процесі фазового перетворення.

Згідно з теоретичними оцінками і експериментальними даними, сама границя найпростішого двійника (шару двійника) є дефектом, який фіксує магнітні вихори, однак ефективність такого центру закріплення дуже низька [132]. У цьому плані "пружний" двійник може бути значно ефективнішим, ніж границя простого двійника. Це пов'язано зі специфічною структурою "пружного" двійника. Як вже зазначалося, клиноподібна вершина "пружного" двійника у напрямку поширення розташована у внутрішньому об'ємі кристалу (див. Рис. 3.1 а та б).

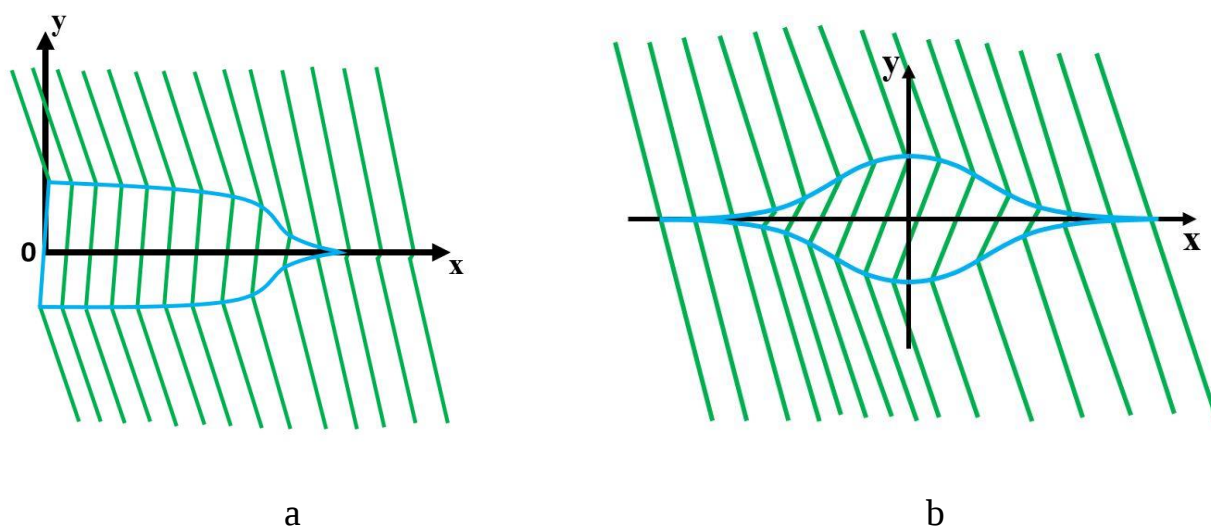


Рис. 3.1. Схематичне зображення "пружного" двійника: а) на поверхні кристала, б) у внутрішньому об'ємі кристала [120,129].

Термін "пружний", застосований до двійника, означає лише можливість зворотності пластичної деформації при зміні знака прикладеної зовнішньої механічної напруги або зміні орієнтації фазового перетворення. Детальні дослідження структури "пружних" двійників чітко показують їх дислокаційну структуру [129]. На Рис. 3.2 схематично показано "пружний" двійник з довжиною L , утворений N дислокаціями у кристалі з параметром решітки a .

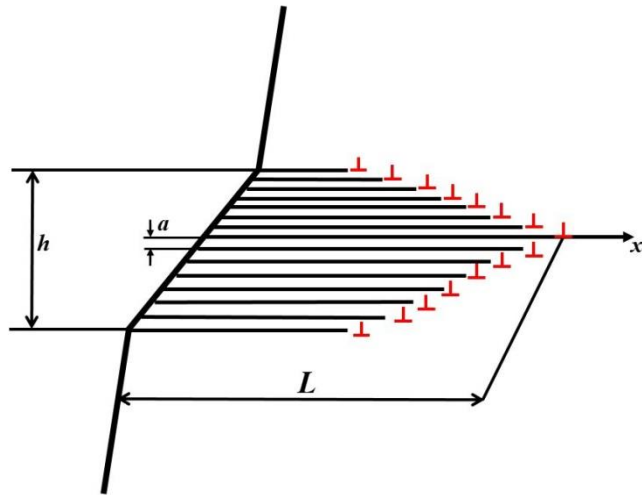


Рис. 3.2. "Пружний" двійник як кластер дислокацій (схема) [120,129].

Ширина двійника h визначається простим співвідношенням: $h \approx Na$. Параметр h також може бути виражений у термінах лінійної густини дислокацій $\rho(x)$:

$$h = a \int_0^L \rho(x) dx. \quad (3.1)$$

На практиці $h \ll L$ і схематично "пружний" двійник можна представити у вигляді кластера дислокацій, розташованих в одному плоскому ковзаючому шарі вздовж границі двійників (див. Рис. 3.3).

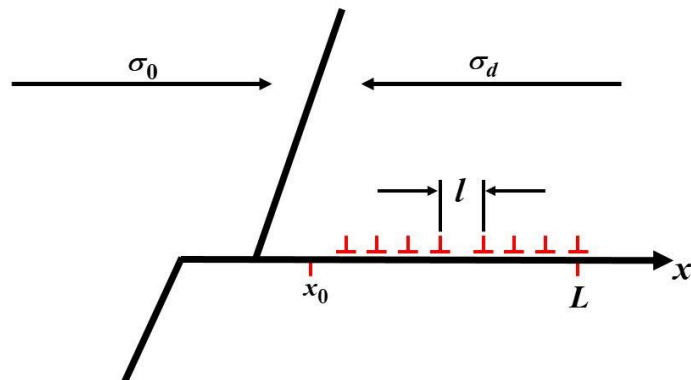


Рис. 3.3. Модель дислокацій "тонкого" "пружного" двійника.

За припущення про рівнодистанційне розташування дислокацій, очевидне таке співвідношення:

$$\rho(x) \approx 1/l = L/N = h/(L \cdot a), \quad (3.2)$$

де l - відстань між дислокаціями в границі двійників. Як показує експеримент, у випадку кристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ середнє значення $h/L \approx 0.005$, $a \approx 0.38$ нм, і, отже, лінійна густина дислокацій у "пружного" двійника, утвореного у цій кристалічній сполуці, може сягати $\rho \approx 10^7$ 1/м (див. Рис. 3.4) [120,130].

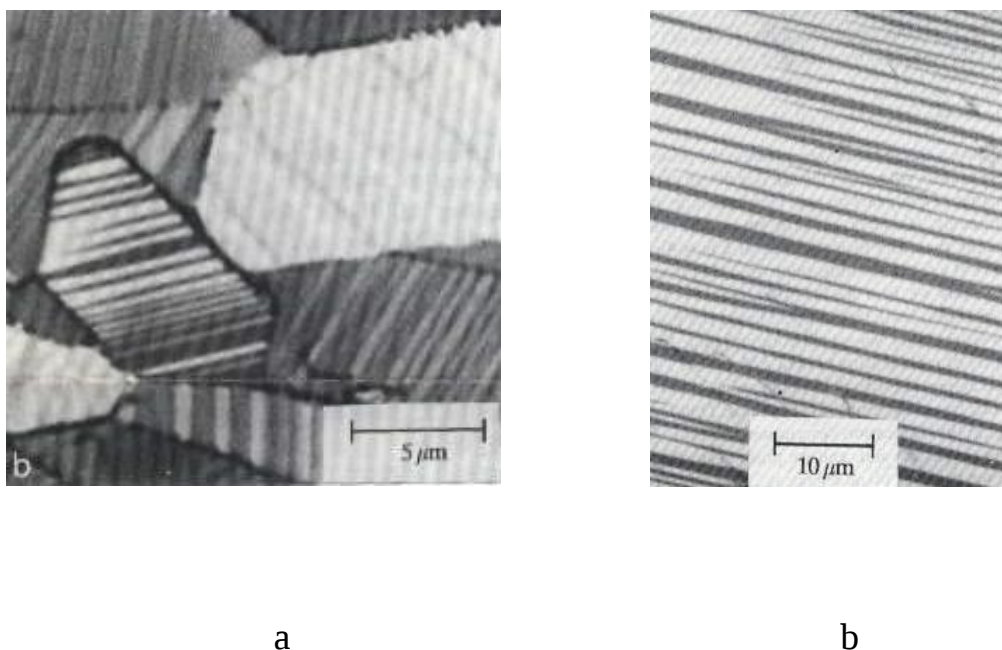


Рис. 3.4. а) Оптичний знімок типового полікристалічного зразка $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$; кілька "пружних" двійників видно в одному з кристалів б) "Пружні" двійники в однокристалічному зразку [130].

Враховуючи той факт, що кожна лінія дислокацій характеризується неупорядкованим розташуванням атомів і, отже, за своїми електричними властивостями не є надпровідником, їхнє велике скупчення може слугувати

центрами закріплення ліній магнітного потоку в надпровідниках 2 роду, до яких належить сполука $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$.

3.2. Густина критичного транспортного струму J_c у випадку піннінгу вихорів Абрикосова на кластерах дислокацій

Розглянемо процес фіксації магнітних ліній потоку (вихорів), використовуючи енергетичні уявлення. Згідно з феноменологічною теорією Гінзбурга-Ландау для надпровідника, який перебуває в фазі Шубнікова (надпровідник другого роду), енергія магнітного вихора, нормована на одиницю довжини, описується простим співвідношенням:

$$\varepsilon = B_{c1} \Phi_0 / \mu_0, \quad (3.3)$$

де B_{c1} - нижнє критичне магнітне поле (індукція), $\Phi_0 = 2 \cdot 10^{-15} \text{ Т} \cdot \text{м}^2$ – квант магнітного потоку та $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ В} \cdot \text{с} / \text{А} \cdot \text{м}$ [121,132]. У випадку полікристалічних зразків $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з розміром зерна приблизно $10 \text{ }\mu\text{м}$ значення B_{c1} становить $\approx 10^{-2} \text{ Т}$, і, відповідно, $\varepsilon \approx 10^{-11} \text{ Дж} \cdot \text{м}^{-1}$. Значення критичної густини транспортного струму J_c у такому матеріалі становить лише $\approx 5 \cdot 10^6 \text{ А} \cdot \text{м}^{-2}$ [133]. Така низька величина J_c пояснюється малим числом дефектів, які слугують центрами піннінга. Інша ситуація реалізується у монокристалічних зразках. У них критична густина транспортного струму J_c , в залежності від структурного стану кристала, може досягати набагато більшої величини порівняно з дрібнозернистими полікристалами. Розглянемо цю можливість стосовно до монокристалічних зразків, які містять у своїй структурі достатню кількість "пружних" двійників.

Очевидно що, якщо у об'ємі надпровідника є структурні дефекти, які самі не знаходяться у стані надпровідності, то магнітні вихори, намагаючись зайняти найбільш енергетично вигідні позиції, взаємодіють з цими дефектами. Це зменшує довжину вихорів і, відповідно, загальну енергію всієї системи

вихорів. Очевидно, що зміщення вихорів з їх рівноважних положень буде можливим лише після подолання певної сили (сили піннінга) $F_p = -\Delta E / \Delta x$, де ΔE – зміна енергії вихорів внаслідок збільшення їх довжини в процесі відокремлення від дефекта (центра піннінга), Δx – відповідне зміщення вихорів. Значення зміщення Δx визначається розміром структурного дефекта в напрямку сили Лоренця: $F_L = JB$ (J – густина транспортного струму, B – індукція зовнішнього магнітного поля). Отже, знаючи параметри окремого структурного дефекта, а також враховуючи їх розподіл у об'ємі надпровідника, можна оцінити величину сумарної сили піннінгу, що діє в об'ємі кристала F_p , і, відповідно, визначити значення критичної густини транспортного електричного струму J_c з умови $F_L = F_p$.

Дотримуючись цієї схеми, розглянемо вплив "пружних" двійників на величину J_c , з урахуванням того, що кожен "пружний" двійник є кластером N дислокацій одного знаку з лінійною густиною $\rho \approx 10^8 \text{ м}^{-1}$. Прив'язка магнітних вихорів до дислокацій зумовлена не-надпровідним характером ядра дислокації, що, в свою чергу, зумовлено розупорядкуванням атомів. Розмір області розупорядкування атомів біля ядра кожної дислокації характеризується величиною вектора Бюргерса: $b \approx 3a$, і, отже, величина мінімального зміщення Δx , достатнього для відриву магнітного вихора від лінії дислокації при їх паралельному розташуванні, визначається оцінкою: $\Delta x \approx 2b \approx 6a$. Сила Лоренця $F_L = JB$ нормована на одиницю об'єму, і, отже, у розглянутій задачі необхідно обчислити загальну силу піннінга F_p через наявність "пружних" двійників та асоційованих з ними кластерів дислокацій, розташованих у одиниці об'єму кристала. Як вже зазначалося, кожен "пружний" двійник складається з N дислокацій та характеризується лінійною густиною дислокацій ρ . Густина об'ємних дислокацій ρ_v можна оцінити, знаючи кількість "пружних" двійників у одиниці об'єму кристала та лінійну густина дислокацій у кожному з них:

$$\rho_v \approx \rho L / d H. \quad (3.4)$$

Тут L - середня довжина "пружних" двійників, d - відстань між двійниками, H - розмір кристала в площині (a – b). Для кількісної оцінки значення ρ_v можна припустити, що $L \approx H/2$, $d \approx 2 \mu\text{m}$ (див. [110]), і, отже, з (3.4) випливає, що $\rho_v \approx 2,5 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$. Ця оцінка об'ємної густини дислокацій свідчить про те, що середня відстань між лініями дислокацій становить $\bar{l} \approx 1/(\rho_v)^{1/2} \approx 6 \cdot 10^{-7} \text{ m}$. Це значення майже збігається зі значенням середньої відстані між магнітними вихорами $\delta \approx (\Phi_0/B)^{1/2} \approx 5 \cdot 10^{-7} \text{ m}$ при $B \approx B_{c1} \approx 10^{-2} \text{ T}$. Отже, для оцінки загальної сили піннінга, зумовленої наявністю дислокацій у "пружних" двійниках, в розрахунку на одиничний об'єм кристала, можна використати таке відношення:

$$F_p \approx \varepsilon \rho_v / 2b, \text{ if } 1/(\rho_v)^{1/2} \approx \delta. \quad (3.5)$$

Підставляючи числові значення $\varepsilon \approx 10^{-11} \text{ J} \cdot \text{m}^{-1}$, $\rho_v \approx 2,5 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$ та $b \approx 3a \approx 10^{-9} \text{ m}$, маємо $F_p \approx 10^{10} \text{ N} \cdot \text{m}^{-3}$. Враховуючи, що для кристала $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ значення нижнього критичного поля складає $B_{c1} \approx 10^{-2} \text{ T}$ та вважаючи, що $B \approx 10B_{c1} \approx 10^{-1} \text{ T}$, з умови $F_L = F_p$ ми отримуємо теоретичну оцінку максимально можливого значення критичної густини транспортного струму $J_c \approx 10^{11} \text{ A} \cdot \text{m}^{-2}$. Ми наголошуємо, що оцінка, зроблена для критичної густини транспортного струму, стосується найбільш вигідної ситуації, коли відстань між магнітними вихорами збігається з відстанню між дислокаціями, на яких відбувається піннінг: $\bar{l} \approx \delta$. Зі збільшенням магнітного поля B відстань між вихорами δ зменшується, і певна частина вихорів не фіксується на дислокаціях, тому значення критичної густини транспортного струму може значно знизитися.

Межі звичайних двійників, як центри піннінга, відрізняються від кластерів дислокацій, що утворюють "пружний" двійник, не лише своєю ефективністю, але й своєю відповідною реакцією на орієнтацію магнітних вихорів. У зв'язку з цим внесок двох різних центрів прив'язки не є адитивним.

Саме цей факт ми враховували під час проведення описаних у статті експериментів.

3.3. Піннінг на непружних двійниках

Ми виміряли резистивні переходи та вольт-амперні характеристики двох зразків з односпрямованими двійниками, орієнтованими паралельно та перпендикулярно вектору транспортного струму в магнітних полях, нахилених відносно осі c . Ми спостерігали склоподібну поведінку опору при низьких транспортних струмах для вектора струму, спрямованого перпендикулярно до площин двійникової системи. Виявлені особливості резистивної поведінки обох містків можна пояснити специфічною динамікою вихорів у похилому полі.

Дослідження резистивних переходів $R(T)$ надпровідника $YBaCuO$ в присутності зовнішнього магнітного поля H показує існування навколо деякої температури T_{sh} спаду електроопору, який називається плече. Вольт-амперні характеристики для H_{c2} лінійні вище T_{sh} і нелінійні нижче T_{sh} . Температура T_{sh} набагато нижча середньопольової температури переходу T_{c2} і набагато вища лінії незворотності T_{irr} . На сьогодні припускається, що вище T_{sh} існує незапіннінгована вихорова рідина, а нижче T_{irr} - вихорова решітка або фаза вихорового скла. Теоретичні дослідження у слабкому [134] та проміжному [135] режимах піннінга показують, що нижче T_{sh} може існувати частково запіннінгована фаза вихорової рідини. Альтернативна модель [136] інтерпретує спад як граничну фазу між високотемпературною ізотропною та низькотемпературною гексатичною рідкими фазами вихорів.

Нашою метою було дослідження фазового стану та дисипації енергії в системі вихорів в монокристалах $YBaCuO$ в похилих відносно двійникових меж магнітних полях. На рис. 3.5 представлені резистивні переходи в надпровідний стан $R(T)$, а на рис. 3.6 – вольт-амперні характеристики містка (див. вставку на Рис. 3.5), вирізаного з монокристала $YBaCuO$. Поперечний

переріз містка складав $0.2 \times 0.015 \text{ mm}^2$. Вимірювання проводили в магнітному полі $H=15 \text{ kOe}$. Вектор транспортного струму I був паралельний площині ab , а також був паралельним двійниковим границям (ДГ) у зразку 1 (потенційні контакти 1 та 2) та був перпендикулярним ДГ у зразку 2 (потенційні контакти 3 та 4). Місток можна було обертати у полі навколо двох осей, що дозволяло отримувати бажане положення H відносно ДГ.

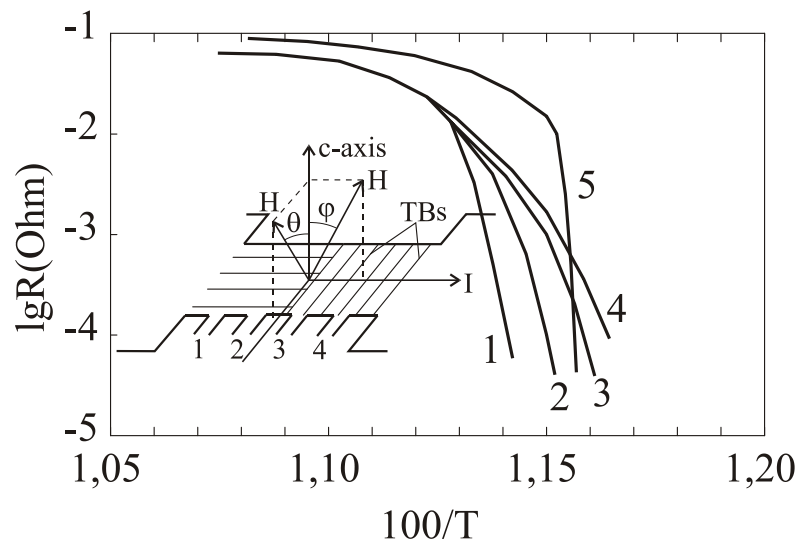


Рис. 3.5. Ареніусівський графік резистивних переходів зразка 1 (криві 1–4) та зразка 2 (крива 5). Криві 1–4 відповідають значенням $\theta = 0, 3, 7, 11^\circ$ відповідно ($\varphi = 0$). Крива 5 була отримана для $\theta = \varphi = 0$. На вставці схематично показано місток, який ми використовували, та геометрію експерименту.

На Рис. 3.5 показано резистивний перехід зразка 1, виміряний в похилих магнітних полях (криві 1-4). Нижче $T_{sh}=88 \text{ K}$ спостерігається спад до нульового опору. Крива 5 показує резистивний перехід зразка 2 у полі $H \parallel c$. Вище T_{sh} вольт-амперні характеристики були лінійними для обох зразків, що свідчить про незапінінгований стан вихорів.

На Рис. 3.6а показано вольт-амперні характеристики зразка 1, виміряні при температурах нижче T_{sh} для $\theta=7^\circ$ та $\varphi=0^\circ$ (криві 1-5) і для $\theta=\varphi=0^\circ$ (крива 6). Вольт-амперна характеристики для $\theta=0^\circ$ сильно нелінійна, оскільки

вихори розташовані паралельно до ДГ, знаходяться у запіннінгованому стані. Для $\theta = 7^\circ$ вольт-амперні характеристики лінійні, але опір $R_l = dV/dI$ набагато менший за опір в'язкій течії потоку Бардіна-Стефана $R_l = R_N B / B_{c2}$ (тут R_N - опір нормального стану, а B_{c2} - індукція верхнього критичного поля).

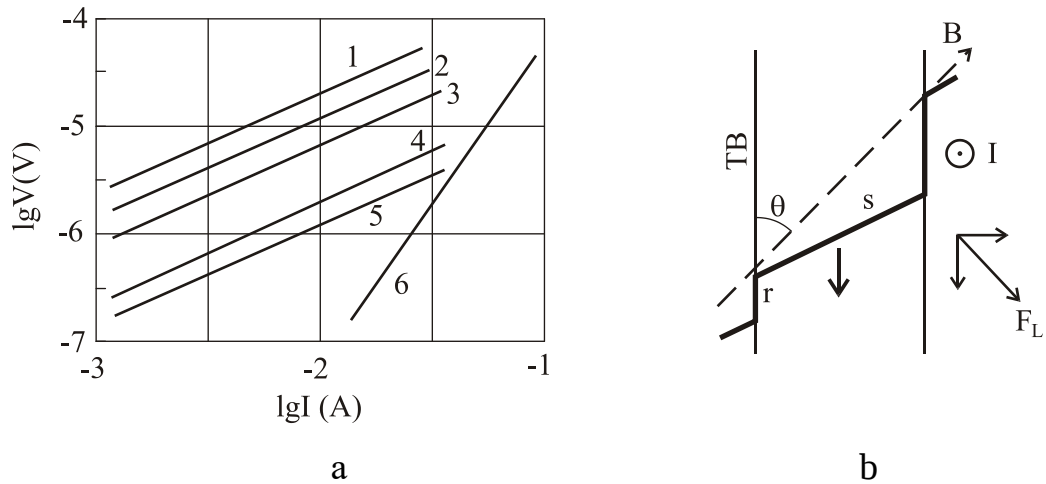


Рис. 3.6. а) I – V криві зразка 1, виміряні для $\varphi = 0$ та $\theta = 3^\circ$ при температурах $T = 87.34, 87.03, 86.65, 86.07$ та 85.47 К (криві 1–5 відповідно). Крива 6 була виміряна для $\varphi = \theta = 0$ та $T = 87.31$ К; б) геометрія вихора в похилих полях. Товста стрілка показує напрямок руху вихора.

В магнітних полях, похилих відносно ДГ, вихор має структуру, показану на Рис. 3.6b [137]. Оскільки частина вихора r , паралельна ДГ, запіннінгована, опір R_l може виникнути через рух частини вихора s , розташованої поза ДГ. У цьому випадку частина вихора s може розглядатися як незакріплена вихорова рідина, яка має особисту вязкість через закріплення частини вихора r , паралельної ДГ. Торсіонна вязкість, пов'язана зі збереженням орієнтаційного порядку, може бути причиною зменшення лінійного опору зі зниженням температури.

На Рис. 3.7 показано вольт-амперні характеристики зразка 2, виміряні при температурах нижче T_{sh} для $\theta = 0^\circ$. Криві 1-5 були отримані для $\varphi = 9^\circ$, а криві 6 і 7 - для $\varphi = 0^\circ$.

Повний набір вольт-амперних характеристик для $\varphi = 0^\circ$ представлений у [108]. Початкові частини кривих не лінійні через термічно активований крип магнітного потоку, який виникає, коли сила Лоренца $F_L = IB$ менше сили піннінгу, яка визначається критичним струмом депіннінгу. При високих значеннях I спостерігаються лінійні або майже лінійні I - V криві, що свідчить про режим потоку флуктуацій при $F_L > F_p$ або $I > I_{cd}$. У цьому режимі похідна dV/dI визначає опір потоку вихорів, а екстраполяція лінійних частин вольт-амперних характеристик до $V=0$ визначає I_{cd} . Близько $T=84.3\text{K}$ ми отримали $R_{fl}(\varphi = 0^\circ) \approx 4\text{ mOhm}$ та $R_{fl}(\varphi = 9^\circ) \approx 4.5\text{ mOhm}$, що добре узгоджується з $R_{BS} \approx 4.1\text{ mOhm}$.

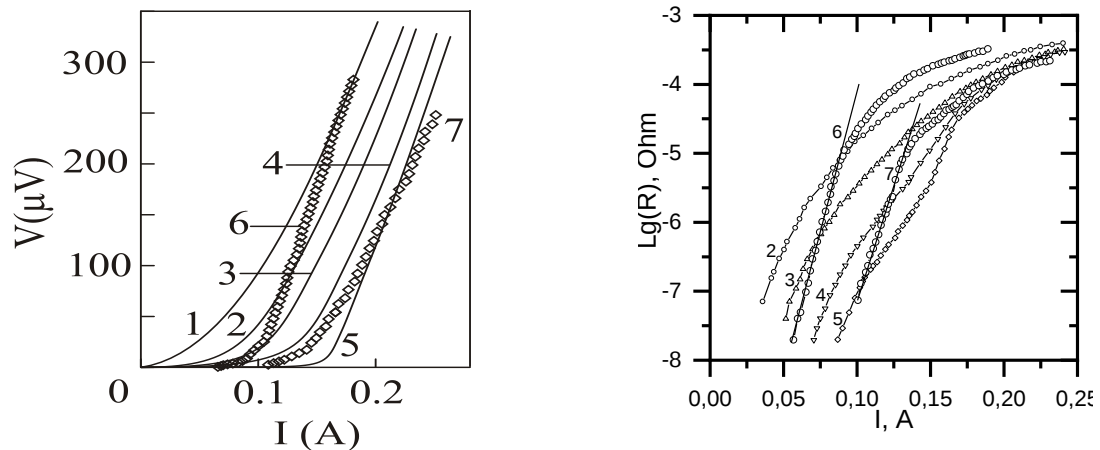


Рис. 3.7. Вольт-амперні характеристики зразка 2, виміряні для $\varphi = 9^\circ$ та $\theta = 0^\circ$ при температурах $T=86.82, 86.46, 86.04, 85.41, 84.21\text{ K}$ (відповідно криві 1–5) та для $\theta = \varphi = 0^\circ$ при температурах $T=84.29$ та 81.81 K (криві 6 та 7 відповідно).

Критичний струм депіннінгу для $\varphi=0^\circ$ приблизно в 1.8 рази менший, ніж для $\varphi = 9^\circ$. Для $\varphi = 9^\circ$ початкові частини вольт-амперних характеристики добре описуються рівнянням:

$$V = A \exp(-C \sqrt{I}), \quad (3.6)$$

де A та C – константи. Така залежність передбачається для фази вихорового скла для невеликих струмів [138]. Початкові частини вольт-амперних

характеристик для $\varphi = 0^\circ$ добре описуються моделлю крипа потоку в теорії Андерсона-Кіма [139]

$$V = D \exp(-U_0/T) \sinh(U_0 I / I_c T), \quad (3.7)$$

де I_c - критичний струм, U_0 - потенціал піннінга, D - феноменологічний параметр. Оскільки для фази вихорового скла початкові частини вольт-амперних характеристик описуються рівнянням (3.6), ми вважаємо, що залежність (3.7) може вказувати на існування фази вихорової решітки при низьких температурах для H строго паралельної до осі c . Поворот магнітного поля поза площини ТВ породжує фазу вихорового скла і підвищує значення I_{cd} .

Найкраще узгодження експериментальних кривих з рівнянням (3.7) при $T \leq 82$ К було отримано для $U_0 = 1900$ К та $D = 10^{-4}$. Для термічно активованого переходу вихорових ліній або пучків через бар'єр закріплення ми можемо записати [140] $D = 2a N v_0 B l$ та $U_0 = B L v_c I_c / S$, де a - величина стрибка, N - кількість вихорів у каскаді, v_0 - частота спроб, $l \approx 0.2$ nm - довжина зразка, L - розмір потенційної ями піннінгу, а v_c - активаційний об'єм. Припускаючи $L \approx \xi \approx 40$ Å (ξ - довжина когерентності Гінзбурга-Ландау) ми отримуємо $v_c \approx 10^{-19}$ m³, що приблизно в 5 разів більше за активаційний вихоровий об'єм $v_c \approx 2 \cdot 10^{-20}$ m³. Припускаючи $a \approx a_0 \approx 360$ Å (a_0 - відстань між вихорами) та $N = 5$, ми отримуємо $v_0 \approx 10^6$ Hz. Це значення набагато менше за фононну частоту, яку ми оцінюємо приблизно в 10^{11} Hz.

3.4. Піннінг на пружних двійниках

Для вивчення процесів закріплення на пружних двійниках вирощували монокристали $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ за методом, описаним у [106,141]. Використаний метод дозволяє отримувати монокристали розміром до 5×5 мм² у площині (a – b) і товщиною 0.02–0.05 мм. Кристали були насичені киснем шляхом відпалу у потоці кисню за температури 430°C протягом трьох днів. Електричні

вимірювання проводили згідно зі стандартною чотирьохзондовою методикою. Контакти створювали, наносячи срібну пасту на поверхню кристала, з подальшим під'єднанням срібних провідників та трьохгодинним відпалом при температурі 200°C в атмосфері кисню. Провідники для вимірювання величини транспортного струму виготовлялися з фольги товщиною 0.1 мм та шириною 2 мм, а для потенційних контактів використовувався дріт діаметром 0.05 мм. Ця технологія дозволила отримати малий контактний опір і проводити резистивні вимірювання при достатньо великих значеннях транспортного струму без перегрівання зон контакту зразка. Після насичення киснем та створення електричних контактів із кристала було вирізано зразок розміром 2×3 мм у площині (a–b) з товщиною 0.02–0.03 мм.

У вивчених зразках всі ДГ були орієнтовані в одному напрямку. У цьому випадку вершини двійників у 90% випадків знаходилися всередині зразка, тобто це були "пружні" двійники. Вимірювання проводилися таким чином, що вектор транспортного струму був паралельний площинам двійників. Магнітне поле створювали електромагнітом. Обертаючи магніт, можна було змінювати орієнтацію поля щодо кристала, тобто змінювати кут між напрямом вектора B , який встановлює орієнтацію магнітних ліній потоку, і віссю кристала. Зразок кріпили у вимірювальному осередку таким чином, щоб вектор поля B завжди був направлений перпендикулярно до вектора транспортного струму. Усі вимірювання проводили при температурі $T < 90$ К, тобто в стані надпровідності досліджуваного кристала.

Аналіз експериментальних даних вказує на наступне. Максимальне значення критичної густини транспортного струму J_c у наших експериментах було зафіксовано у випадку, коли $B \parallel c$, тобто коли напрямки магнітних ліній потоку збігалися з напрямками ліній дислокацій, що утворюють "пружні" двійники, і рух вихорів відбувався перпендикулярно до меж двійників. Зі збільшенням кута між вектором B та віссю кристала критична густина

транспортного струму постійно зменшувалася та досягала свого мінімального значення, коли вихори знаходилися перпендикулярно до ліній дислокацій, а рухалися паралельно межах двійників. Кількісно співвідношення $J_c^{\max} / J_c^{\min}$ виявилось приблизно ≈ 12 (under $10^{-2} T \leq B \leq 10^{-1} T$ and $T = 78 K$). Отриманий результат добре узгоджується з припущенням про закріплення магнітних вихорів на дислокаціях, утворених під час створення "пружних" двійників.

Щодо абсолютного значення критичної густини транспортного струму, воно складало $J_c^{\max} \approx 10^8 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2}$ ($10^{-2} T \leq B \leq 10^{-1} T$), що значно менше теоретичної оцінки: $\approx 10^{11} \text{ A} \cdot \text{m}^{-2}$. Це розходження можна пояснити тим, що у реальній ситуації не всі магнітні лінії прикріплені до ліній дислокацій, оскільки лінії дислокацій зв'язані з межами двійників, і вони знаходяться на відстані одна від одної $d \approx 2 \cdot 10^{-6} \text{ m}$, що значно перевищує відстань між магнітними лініями потоку $\delta \approx 10^{-7} \text{ m}$. Таким чином, більшість вихорів не закріплені на дислокаціях і, відповідно, ефективна сила закріплення та значення критичної густини транспортного струму зменшуються. У цьому випадку певну роль можуть відігравати специфічні механізми взаємодії квазічастинок [142-144] та структурна релаксація [145-147].

Висновки до розділу 3

Представлені експериментальні дані свідчать, що межі "пружних" двійників є ефективними центрами піннінгу ліній магнітного потоку (вихорів) у монокристалах дослідженої сполуки. Основними центрами піннінгу вихорів є кластери дислокацій, розташовані на вершинах "пружних" двійників. Лінії дислокацій розташовані у площині двійників, і коли орієнтація магнітних вихорів та ліній дислокацій збігаються, енергія вихорів зменшується і, відповідно, виникають сили піннінгу, що фіксують їх розташування, що в кінцевому підсумку призводить до збільшення критичної густини транспортного електричного струму.

Зроблені висновки щодо того, що межі "пружних" двійників у високотемпературних надпровідниках є ефективними центрами піннінгу ліній магнітного потоку, повністю відповідають основній концепції тісного взаємозв'язку між зворотною пластичністю надпровідників та їх фізичними властивостями.

РОЗДІЛ 4

ВПЛИВ ТИСКУ НА КРИТИЧНУ ТЕМПЕРАТУРУ ТА ЕЛЕКТРООПІР МОНОКРИСТАЛІВ $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

Використання технологій високого тиску для вивчення критичних характеристик матеріалів з високотемпературною надпровідністю (ВТНП) продовжує залишатися одним із найбільш перспективних експериментальних методів, що дозволяють не лише перевірити адекватність численних теоретичних моделей, а й знайти емпіричні шляхи покращення їх транспортних характеристик і підвищення критичних параметрів [148,149]. Останній аспект є особливо важливим, враховуючи те, що, незважаючи на більш ніж 37-річну історію інтенсивних теоретичних і експериментальних досліджень, починаючи з відкриття ВТНП у 1986 році [150], так і не вдалося перебороти психологічний поріг в 200 К за критичною температурою, не говорячи вже про кімнатну надпровідність [151,152]. При цьому мікроскопічний механізм ВТНП залишається невизначеним до теперішнього часу [148,153].

У досить численному ряді купратів ВТНП особливе місце для досліджень у цьому аспекті займає сполука системи 1-2-3 з частковою заміною іттрію празеодимом [154,155], що зумовлено одразу кількома причинами. По-перше, сполуки системи 1-2-3 мають достатньо високу критичну температуру (T_c), що дозволяє проводити вимірювання при температурах, що перевищують температуру кипіння рідкого азоту [156,157]. По-друге, часткова заміна іттрію на празеодим, на відміну від заміни іншими рідкоземельними елементами, дозволяє поступово змінювати електричний опір та критичні характеристики цієї сполуки, поетапно пригнічуючи її провідні параметри (так звана "аномалія празеодиму") [158-161]. По-третє, у сполуках $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню [162,163] не виникає, так званий нерівноважний стан, який у

чистих кисневодефіцитних зразках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ може бути досить легко індукований стрибкоподібною зміною температури, старінням [164,165] або використанням високого тиску [166,167].

Останній факт є досить суттєвим, оскільки у випадку чистих зразків часто необхідно використовувати спеціальні техніки, які дозволяють відокремити так званий "істинний ефект тиску" [168,169] (зумовлений зміною параметрів кристалічної решітки, електрон-фононою взаємодією, тощо) і релаксаційний ефект [170,171] (зумовлений перерозподілом лабільної компоненти). Незважаючи на досить велику кількість робіт, доступних у літературі щодо вивчення впливу тиску на провідність ВТНП-купратів, лише відносно невелика частина з них була присвячена вивченню баричних залежностей електроопору та форми надпровідних переходів сполук $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (див. наприклад, огляд [154] та посилання там). Більше того, наведені у цих роботах дані часто є досить суперечливими. Наприклад, повідомляється, що були зафіксовані як позитивні, так і негативні баричні похідні dT_c/dP , і в деяких випадках знак dT_c/dP змінювався [172].

У той же час апроксимація температурної залежності опору з урахуванням відомих механізмів розсіювання носіїв заряду у нормальному стані та під час переходу до надпровідного стану, дозволяє отримати ряд параметрів, що характеризують ці процеси, встановити зв'язок між ними, а також вивчити вплив зовнішніх факторів на процеси розсіювання та перехід до надпровідного стану. До таких відомих механізмів розсіювання носіїв заряду в нормальному стані відносяться розсіювання носіїв фононами та дефектами кристалічної ґратки.

У наших попередніх роботах [173,174] ми вивчали вплив високого гідростатичного тиску до 17 кбар на низку резистивних характеристик слабкодопованих празеодимом зразків ($z \approx 0.05$) $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. У цьому розділі ми наводимо результати досліджень впливу високого гідростатичного

тиску до 11 кбар на фазове розшарування у базисній ab -площині середньодопованого кристалу із концентрацією празеодиму ($z \approx 0.23$) сполуки $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Ми апроксимували температурну залежність опору в інтервалі $T_c - 160$ К, використовуючи відношення Блоха-Грюнайзена з переходом до флуктуаційної провідності, описаної в межах теоретичної моделі Лоуренса-Доніаха.

4.1. Поздовжній електротранспорт монокристалів $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ в умовах прикладання високого гідростатичного тиску

Кристали ВТНП сполук $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ вирощували за допомогою розчин-розплавної технології в золотому тиглі, згідно з [173]. Для резистивних досліджень були обрані прямокутні кристали розміром $3 \times 0.5 \times 0.03$ mm³. Мінімальний розмір кристалу відповідає напрямку c -осі. Електричні контакти створювали за допомогою стандартної 4-контактної схеми за шляхом нанесення срібної пасти на поверхню кристала, з наступним під'єднанням срібних провідників діаметром 0.05 mm та відпалюванням протягом трьох годин при температурі 200°C у атмосфері кисню. Ця процедура дозволяла отримувати електроопір контакту менше одного Ому та проводити резистивні вимірювання при транспортних струмах до 10 mA у ab -площині. Гідростатичний тиск створювали у мультиплікаторі [173,174]. Тиск визначали за допомогою манганінового датчика, а температуру вимірювали мідь-константановою термopарою, закріпленою на зовнішній поверхні камери на рівні положення зразка.

Температурні залежності електричного опору у базисній площині, $\rho_{ab}(T, P)$, монокристала $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$, виміряні при різних тисках (від $P = 0$ до 11 kbar, див. також Таблицю 4.1), показані на вставці до Рис. 4.1. При атмосферному тиску $T_c(0)$ та $\rho_{ab}(300$ К, 0) становили приблизно 67 К та

приблизно $333 \mu\Omega\cdot\text{cm}$, відповідно. Таким чином, порівняно з чистими монокристалами $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, критична температура зменшилася на приблизно 25 К з одночасним збільшенням $\rho_{ab}(300 \text{ K}, 0)$ на приблизно $120 \mu\Omega\cdot\text{cm}$, що загалом узгоджується з літературними даними. Причини погіршення провідних характеристик сполук $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при допуванні празеодимом (“аномалія прасеодиму”) детально аналізуються в огляді [154].

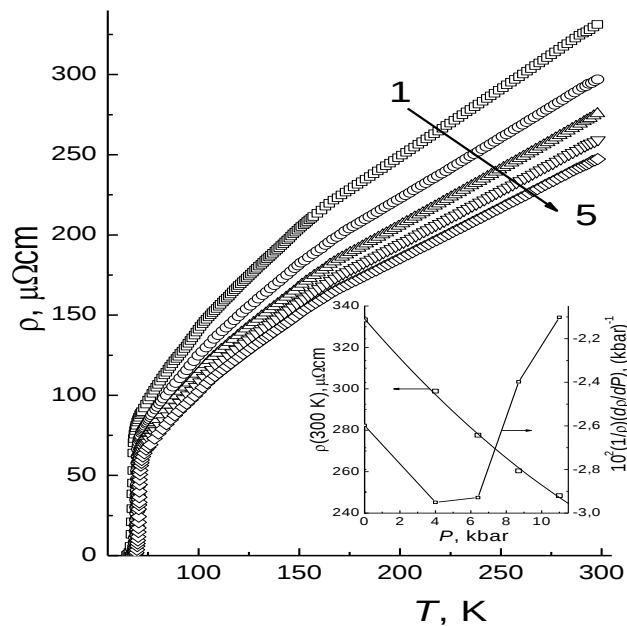


Рис. 4.1. Електричний опір монокристала $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ у базисній площині, $\rho_{ab}(T, P)$, для: 1 - $P = 0$; 2 - $P = 4$; 3 - $P = 6.4$; 4 - $P = 8.7$; 5 - $P = 11 \text{ kbar}$. Вставка: залежності $\rho_{ab}(300, P)$ та похідна, $(d[\ln\rho_{ab}(300, P)]/dP)$.

На вставці до Рис. 4.1 показана залежність електроопору від тиску при кімнатній температурі, $\rho_{ab}(300, P)$, та похідна, $d[\ln\rho_{ab}(300, P)]/dP$. Опір ρ_{ab} залежить від тиску в першу чергу через зменшення об'єму, тобто через збільшення температури Дебая, θ , та, при достатньо великих температурах, $\rho \propto \theta^{-2}$. Тоді $d(\ln\rho_{ab})/d(\ln V) = [d(\ln\rho_{ab})/d(\ln\theta)]/[d(\ln\theta)/d(\ln V)] \approx -2\gamma$ [175] та $(1/\rho)(d\rho/dP) = 2\gamma\beta$, де $\beta = -(1/V)(dV/dP)$.

Видно, що значення $(1/\rho)(d\rho/dP)=2\gamma\beta$ змінюється в межах $3\div 2$ (kbar) $^{-1}$, що для $\gamma\approx 2$ дає значення об'ємної стискуваності, $\beta\approx 0.005\div 0.007$ (kbar) $^{-1}$. Ці значення якісно узгоджуються з даними [176], де $\beta\approx 0.0085$ було отримано для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$. Зменшення стискуваності нашого зразка може бути зумовлене як присутністю празеодиму, так і неоднорідністю самого зразка (див. Рис. 4.2).

4.2. Надпровідний перехід та фазове розшарування

Як було встановлено в [177], високотемпературні надпровідники характеризуються наявністю в своєму об'ємі мікроскопічних областей (доменів) з різними T_c . Іншими словами, існує розподіл T_c по об'єму зразка. Ця неоднорідність зразка приводить до розширення надпровідного переходу до $0.1\div 1$ К у оптимально допованих ВТНП [178]. Зазначимо, що експериментально виміряний ефективний опір зменшується з падінням температури по мірі зростання одного надпровідного кластера, який складається з доменів, які вже перейшли в надпровідний стан, а при відсутності ефектів перколяції, зменшення опору біля надпровідного переходу пропорційне загальному обсягу доменів, які вже стали надпровідними при заданій температурі, $T \leq T_{ci}$. У таких умовах єдиний характеристичний показник критичної температури в області надпровідного переходу, який визначається безпосередньо з експерименту – це температура максимуму похідної, $d\rho/dT$, і сама похідна, $d\rho(T\approx T_c)/dT$, пропорційна функції розподілу для T_{ci} [179,180].

Зазначимо, що ефективний опір зникає тільки тоді, коли з одного надпровідного кластера формується єдиний кластер, що простягається від одного потенціального контакту до іншого. Оскільки функція розподілу для T_{ci} є наслідком неоднорідності конкретного зразка, вона є характеристикою

зразка і тому повинна бути визначена шляхом апроксимації функції $F(T)=d\rho(T\approx T_c)/dT$ за допомогою емпіричних залежностей.

У випадку недодопованих зразків та зразків з дефектами (домішками, заміщаючими атомами тощо) можуть утворюватися макроскопічні області з власними розподілами T_c по об'єму такої області, що приводить до формування багатосхідчастого надпровідного переходу [181]. У цьому випадку, згідно з добре відомою параболічною залежністю [182], кожна з цих фаз характеризується відповідною концентрацією струмових носіїв. Тоді, як наслідок, функція розподілу T_{ci} є сумою відповідних функцій $F_i(T)$.

На Рис. 4.2 показано похідну, $d\rho_{ab}(T)/dT$, в області надпровідного переходу для одного з тисків (6.4 kbar) та відповідну емпіричну функцію розподілу. Як останню ми використовували суму $F(T) = F_l(T) + F_h(T)$, де $F_l(T)$ та $F_h(T)$ мають наступний вигляд

$$F_i(T) = \frac{b_i}{\sqrt{(T^2 - T_{ci}^2)^2 + (w_i T)^2}} \quad (4.1)$$

Тут $i = h, l$; T_{ci} , b_i та w_i - параметри, визначені методом найменших квадратів. Середня похибка апроксимації близька до 3%. Значення цих параметрів представлені в Таблиці 4.1.

Таблиця 4.1. Значення параметрів емпіричної розподільної функції
(4.1)

	P , kbar	0	4.1	6.4	8.7	11
Low	T_{cl} , K	67.23	69.0135	69.530	70.027	70.320
	w_l , K	24.37	8.61	10.98	6.15	5.13
	b_l , $\mu\Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}$	949	454	524	415	408
	$(d\rho/dT)_{l\max}$	67.5	88.8	75.6	105.73	122.57

High	T_{ch} , K	67.69	69.422	69.988	70.413	70.729
	w_h , K	8.28	14.87	5.20	9.85	10.15
	b_h , $\mu\Omega\cdot\text{cm}\cdot\text{K}$	601	726	447	542	550
	$(d\rho/dT)_{h\max}$	121.91	78.3	130.3	85.8	83.6

На Рис. 4.2 видно, що емпірична розподільна функція (4.1) добре описує похідну, $d\rho_{ab}(T, 6.4 \text{ kbar})/dT$, у всій області надпровідного переходу, за винятком найнижчої температурної області $T < 69.5 \text{ K}$, де може бути локалізований ще один розподіл типу (4.1), параметри якого важко визначити через невелику кількість експериментальних точок.

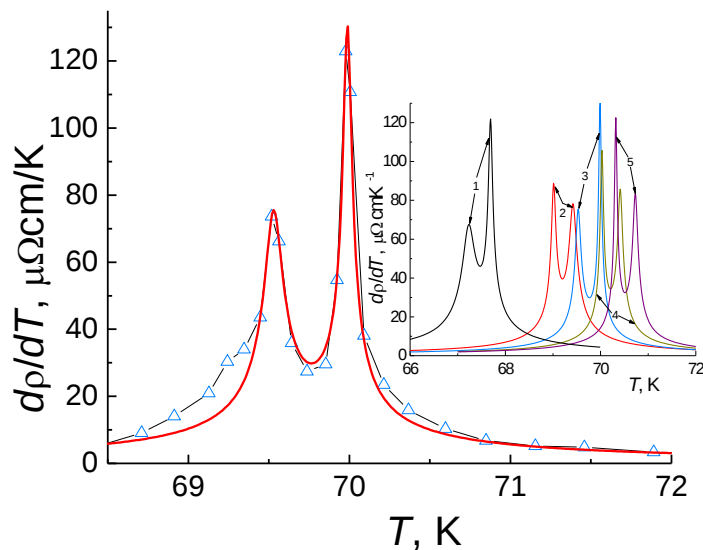


Рис. 4.2. Похідна, $d\rho_{ab}(T, 6.4 \text{ kbar})/dT$, в області надпровідного переходу: точки - розраховані з експериментальних даних $\rho_{ab}(T, 6.4 \text{ kbar})$; лінія - емпірична розподільна функція (4.1). Вставка: емпіричні розподільні функції (4.1) для використаних тисків (див. підпис до Рис. 4.1)

Вставка до Рис. 4.2 демонструє зміщення максимумів $d\rho_{ab}(T, P)/dT$ в області надпровідного переходу до вищих температур при докладанні

гідростатичного тиску. У цьому випадку висоти максимумів змінюються довільним чином; із кожним заохолодженням утворюється свій власний розподіл T_c , який тільки якісно відповідає попередньому. З таблиці видно, що лише T_{ci} зростає при збільшенні тиску. Параметри b_i та w_i не залежать від тиску. Виняток складає лише висота нижньотемпературного максимуму, $(dp/dT)_{lmax}$, яка демонструє тенденцію до зростання зі збільшенням тиску. Така зміна крутизни кроків свідчить про зміну шляхів протікання струму після відпалювання кристалів при кімнатній температурі, що є можливим зі зміною просторового розподілу та розмірів кластерів низько- та високотемпературних фаз.

Ширина надпровідного переходу визначається неоднорідністю зразка - наприклад, коливаннями його складу [183]. Ці неоднорідності приводять до появи у зразку областей з власною локальною температурою переходу, і перехід в цих областях відбувається незалежно від стану сусідніх областей. Як зазначалося вище, однорідний стан ВТНП з дефектами нестійкий - енергетично вигідно розщепити ВТНП на домени $l \sim 10^{-5}$ см з більш високим та більш низьким провідностями (металеві області з малим δ та області з поганою провідністю з великим δ). Для випадку фероелектричних фазових переходів такі області називають Kenzig областями [184], розмір яких також оцінюється як $l \sim 10^{-5} \div 10^{-6}$ см, ($a \ll l \ll L$, де a - це стала кристалічної решітки, L - розмір зразка). Можна припустити, що ширина односхідчастого надпровідного переходу - ширина одного максимуму $dp_c(T)/dT$ в половині його висоти - визначається саме такими мезоскопічними коливаннями концентрації дефектів - вакансій кисню або атомів домішок.

Виникнення, після допування празеодимом, двохсхідчастого надпровідного переходу (два максимуми $dp_c(T)/dT$) вказує на появу принаймі двох макроскопічних областей з різними, меншими, ніж у початковому стані, температурами переходу. Очевидно, що кожна з цих областей має власну

ширину переходу, згенеровану мезоскопічними коливаннями концентрації дефектів в цій області.

Варто зауважити, що зникнення опору зумовлене формуванням єдиного надпровідного кластера, що простягається від одного потенційного контакту до іншого та замикає всі інші, як нормальні, так і надпровідні області, якщо такі є. Таким чином, допущення празеодимом привело до появи, разом із мезоскопічними, макроскопічних неоднорідностей, які викликали двохсхідчастий надпровідний перехід, зміщений в область нижчих температур, і сходинок якого розширюються зі збільшенням концентрації празеодиму.

Таким чином, просторовий розподіл дефектів, створений домішками празеодиму, приводить до того, що разом з мезоскопічними коливаннями також спостерігаються макроскопічні коливання концентрації дефектів. Ймовірно, що такі макроскопічні області з різними концентраціями дефектів є окремими фазовими кластерами в ab -площинах монокристала $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Подібну температурну залежність опору було виявлено в [185] для аморфного сплаву Zr-Rh в діапазоні 4.8–298 К і авторами віднесено до можливої просторової неоднорідності цього сплаву. У [177], посиляючись на експериментальні дані про розділення $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ на металеві області з великою та діелектричні області з малою провідністю (розмір областей $\sim 10^{-5}$ см), вони обґрунтовують енергетичну перевагу розділення ВТНП на домени з високою та низькою провідністю. Зазвичай, процес розділення контролюється дифузією відповідних іонів, яка відносно малоінтенсивна, навіть поблизу кімнатних температур. Однак, згідно з [177], однорідний стан ВТНП з дефектами є досить нестійким.

4.3. Кластеризація та механізми розсіювання носіїв

Залежності температур переходу в надпровідний стан від прикладеного тиску для монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($x = 0.23$ - ця робота, $x = 0.05$ - з посилання [167]) представлені на Рис. 4.3. Залежності відповідних похідних (dT_c/dP) від тиску представлені вставкою на Рис. 4.3. Видно, що криві $T_c^{high}(P)$ та $T_c^{low}(P)$ майже паралельні одна одній. Це означає, що збільшення тиску не викликає помітної зміни різниці $T_c^{high}-T_c^{low}$ (див. Таблицю 4.1), що може свідчити про збереження первинної фазової сегрегації у кристалі. Слід зауважити, що вміст кисню у нашому зразку близький до стехіометричного, що має мінімізувати перерозподіл лабільного кисню в описаних вище процесах. Дійсно, як було показано в роботах [148,149,164,166], прикладання високого тиску у випадку стехіометричних монокристалів $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ зазвичай не викликає процесів структурної релаксації, які відбуваються внаслідок дифузії лабільного кисню в об'ємі зразка.

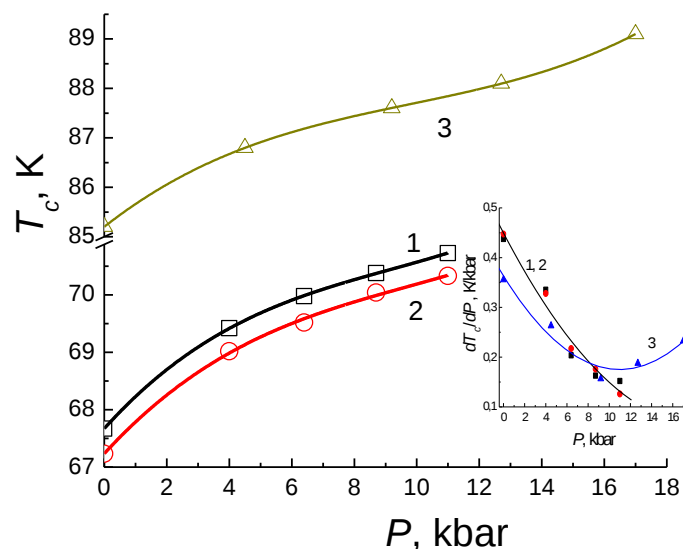


Рис. 4.3: Залежності температур надпровідного переходу від тиску: 1– T_c^{high} , 2– T_c^{low} , 3– $Y_{0.95}Pr_{0.05}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ [20]. Вставка: Залежності відповідних похідних dT_c/dP для монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($x = 0.23$, $x = 0.05$). Нумерація кривих на вставці збігається з основною панеллю.

Фазова сегрегація в нашому зразку під дією тиску, ймовірно, зумовлена різними розмірами та складом кластерів, які характеризуються різною концентрацією празеодиму [154,158]. У той же час варто зазначити, що збільшення вмісту празеодиму в локальному об'ємі експериментального зразка, як правило, приводить до ефекту, протилежного ефекту збільшення вмісту кисню. А саме, якщо збільшення концентрації кисню приводить до зростання T_c та поліпшення провідних характеристик певної фази, то збільшення вмісту празеодиму сприяє пригніченню провідності та зниженню T_c . Певну роль при цьому може відігравати наявність структурної та кінематичної анізотропії у системі [186-190]. Таким чином, можна припустити, що фазова сегрегація, що спостерігається в монокристалі $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ під тиском, на відміну від кристалів $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ без празеодиму, є більш складним та неоднозначним процесом. Проте перевірка вірності цього припущення потребує додаткових досліджень впливу гідростатичного тиску на критичну температуру сполук $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, включаючи більш широкий спектр концентрацій празеодиму, а також використання структурних вимірювань на зразках з вищим ступенем допування празеодимом.

Зазначимо, що T_c зростає зі збільшенням тиску. Зокрема, криві $T_c(P)$ для $x \approx 0.23$ проходять під кривими для $x \approx 0.05$ [167]. Якісно це спостереження узгоджується з даними [154] для композитів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. На вставці на Рис. 4.3 видно, що dT_c/dP майже лінійно зменшується зі збільшенням тиску, показуючи вигин вгору при найвищих тисках. У той же час, для $Y_{0.95}Pr_{0.05}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ [162,167] залежності dT_c/dP від тиску проходять через мінімум при $P \approx 10$ kbar. Можна припустити існування такого мінімуму і для $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ при ще більших тисках.

Температурну залежність опору зразка ми апроксимували згідно з співвідношеннями:

$$\rho_{ab}(T) = (\rho^{-1} + \Delta\sigma_{LD})^{-1}; \rho = (\rho_0 + \rho_3 + \rho_5) \cdot (1 - b_0 \cdot T^2); \quad (4.2)$$

$$\rho_n = C_n \left(\frac{T}{\theta}\right)^n \int_0^{\theta/T} \frac{x^n e^x}{(e^x - 1)^2} dx; \Delta\sigma_{LD} = \left(\frac{e^2}{16\hbar d}\right) \varepsilon^{-1} (1 + J\varepsilon^{-1})^{-1/2}$$

Тут ρ_0 - це залишковий опір, зумовлений розсіюванням носіїв заряду на дефектах; ρ_3 , ρ_5 - опори зумовлені розсіюванням носіїв заряду фононами (співвідношення Блоха-Грюнайзена), ρ_3 характеризує міжзонне розсіювання, ρ_5 - внутрішньозонне розсіювання [191]; b_0 описує зміну форми кривої густини електронних станів при збільшенні температури [192]; $\Delta\sigma_{LD}$ - це надлишкова провідність Лоуренса-Доніаха [92], d - міжплощинна відстань у монокристалі $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, $\varepsilon \approx (T - T_c)/T_c$, $J = (2\xi_c(0)/d)^2$ - константа міжплощинного спарювання, ξ_c - довжина когерентності вздовж вісі c .

Таблиця 4.2

P, kbar	0	4.1	6.4	8.7	11
T_c^{high}, K	67.67	69.42	69.98	70.38	70.73
T_c^{low}, K	67.23	69.02	69.52	70.04	70.33
θ, K	279	284	281	279	279
T_c^{high}/θ	0.242	0.244	0.249	0.252	0.254
ρ_0, $\mu\text{Ohm}\cdot\text{cm}$	58	49	35	34	37
C_3, $\mu\text{Ohm}\cdot\text{cm}$	71	60	68	65	31
C_5, $\mu\text{Ohm}\cdot\text{cm}$	1456	1462	1369	1244	1199
b_0, 10^{-6} K^{-2}	3.1	4.2	5.4	4.8	4.0
J	14.4	7.2	21	18.5	11.4
$\xi_c(0)$, Å	22	15	26	24	19
Error, %	1.5	1	1.5	1.5	1.5

Температура надпровідного (НП) переходу визначається з положення максимуму $d\rho(T)/dT$ в області надпровідного переходу, оскільки ця температура є єдиною експериментально визначеною температурою, що характеризує надпровідний перехід.

Параметри апроксимації (4.2) наведені в Таблиці 4.2 разом з відносним зменшенням об'єму та відстані міжплощинних вимірювань, розрахованими з даних [194], а також значеннями $\xi_c(0)$.

На Рис. 4.4 показані залежності $\rho_{ab}(T)$ при різних тисках та відповідні апроксимуючі криві для монокристалу $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Можна бачити, що залежність $\rho_{ab}(T)$ якісно не змінюється при всіх прикладених тисках та залишається металевою. Параметри апроксимації змінюються відповідно до (4.2) - див. Таблицю 4.2.

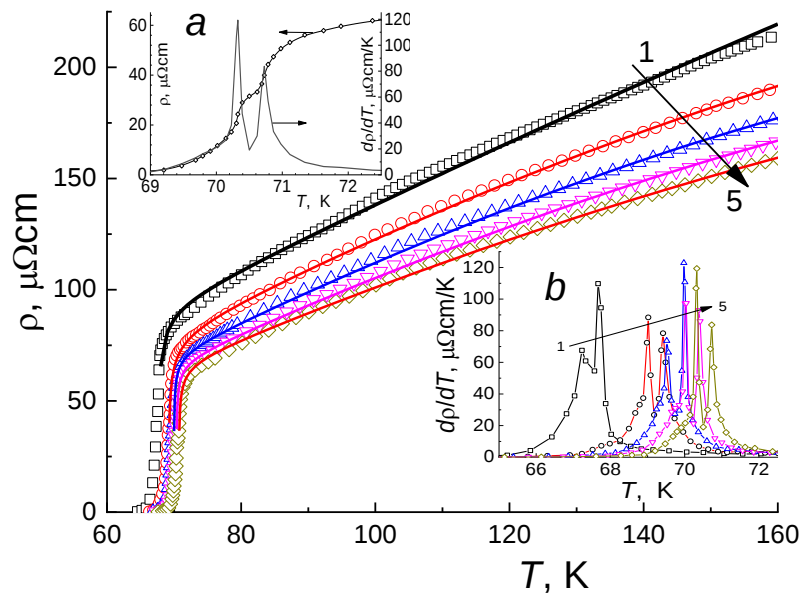


Рис. 4.4. Температурні залежності електроопору в базисній площині монокристалу $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ при різних тисках: 1 - $P = 0$; 2 - 4.1 kbar; 3 - 6.4 kbar; 4 - 8.7 kbar; 5 - 11 kbar. Символи - експериментальні дані; лінії - апроксимація відповідно до (4.2). Вставка а: перехід до надпровідного стану

при $P = 11 \text{ kbar}$ та відповідна температурна похідна опору. Вставка б: Температурні похідні опору в області НП при різних тисках.

Вставка *a* показує НП перехід при одному з тисків (11 kbar). Загальна ширина переходу ($\sim 3 \text{ K}$) та наявність сходинок на ньому свідчать про неоднорідність зразка, тобто про існування як макроскопічних областей з різними T_c , так і варіацій T_c в межах таких макроскопічних областей. Сходинки відповідають максимумам похідних dp/dT . З таблиці та вставки *b* видно, що зі збільшенням тиску максимумами dp/dT зміщуються до вищих температур, але відстань між максимумами ($\langle T_c^{high} - T_c^{low} \rangle \approx 0.4$) не залежить від тиску [195].

Оскільки T_c залежить від дефіциту кисню, δ , а також від концентрації Pr, очевидно, що тиск у тих межах, що використовуються в даному експерименті, має дуже малий вплив на розподіл атомів кисню та празеодиму в зразку.

4.4. Параметри апроксимації провідності в рамках моделей Блоха-Грюнайзена та Лоуренса-Доніаха

На Рис. 4.5 показані температурні залежності окремих членів у (4.2) в початковому стані ($P = 0$). Видно, що в нормальному стані основний внесок у опір дає внутрішньозонне розсіювання (член ρ_5) та залишковий опір, ρ_0 . Внески від міжзонного розсіювання (член ρ_3) та поправки через зміну форми кривої густини електронних станів (фактор $1 - b_0 T^2$) значно менші.

Вставка на Рис. 4.5 показує провідність у моделі Лоуренса-Доніаха [193], $\Delta\sigma_{LD}$, у порівнянні з загальною провідністю зразка в нормальному стані, $\rho_{ab}(T, P=0)$. Видно, що при температурах нижче деякої (у цьому випадку, при $T \leq 68 \text{ K}$), внесок $\Delta\sigma_{LD}$ переважає.

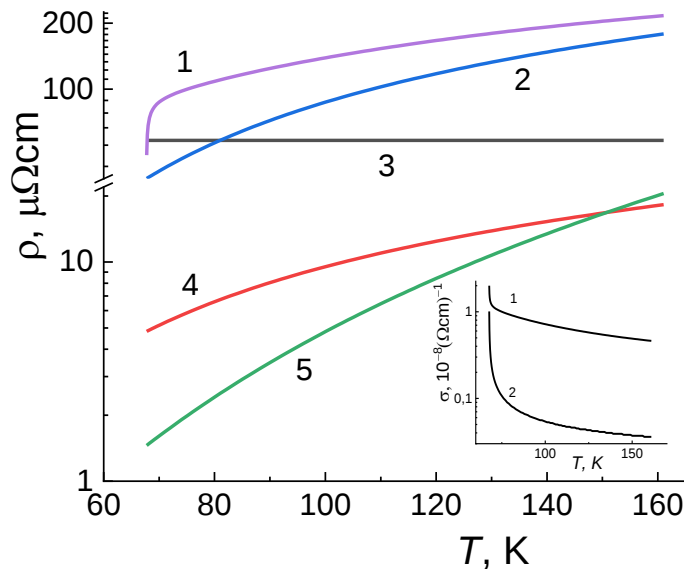


Рис. 4.5. Значення членів у (4.2) для $P=0$: 1 – загальний опір, $\rho(T)$; 2 – ρ_5 ; 3 – ρ_0 ; 4 – ρ_3 ; 5 – $1-b_0T^2$. Вставка: 1 – загальна провідність, $1/\rho(T)$; 2 – $\Delta\sigma_{LD}$.

Згідно з даними [194, 196], при значеннях тиску, які ми використовували, відносне зменшення об'єму зразка не перевищує 1%, тоді як відносні зменшення параметрів апроксимації (4.2) набагато більші (див. Таблицю 4.2). Це означає, що вплив тиску на опір зразка зумовлений не стільки зміною густини провідних електронів, скільки зміною електронної структури.

У попередній роботі [194] було відзначено, що сполуки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ характеризуються значною анізотропією лінійної стискуваності в напрямках вздовж і перпендикулярно до осі c . Цю анізотропію стискуваності, яка зменшується зі збільшенням тиску, в [194] характеризують рівнянням $An = [c/3 - (a+b)/2]/V^{1/3}$ (де a , b та c - параметри елементарної ґратки). На Рис. 4.6 ми зобразили відносні зміни параметрів апроксимації відповідно до (4.2) в залежності від тиску, P , (нижня шкала) та анізотропії лінійної стискуваності, An , (верхня шкала).

У [197] описано геометричний перехід, коли при зменшенні температури відбувається перехід від 3D режиму $\xi(T) \ll h$ (де h - товщина плівки) до 2D режиму $\xi(T) \gg h$.

У [198] зменшення анізотропії у сполуці $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41+\delta}$ зі збільшенням тиску пов'язували з переходом від одновимірної до двовимірної провідності.

Зменшення анізотропії у $\text{Y}_{0.77}\text{Pr}_{0.23}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ зі збільшенням тиску пов'язане з більш швидким зменшенням міжплощинної відстані, c , у порівнянні з параметрами a та b . При високих тисках цей процес може призвести до "баричного" переходу від 3D до 2D режиму через зменшення міжплощинної відстані (інтервалу) до $c \leq \xi(T)c$ при докладанні тиску.

З Рис. 4.6 видно, що під тиском найбільш змінюється відносне значення параметру b_0 , який, згідно з [192], залежить від форми кривої густини електронних станів на поверхні Фермі; параметри ρ_0 , C_5 та C_3 проявляють тенденцію до зменшення зі збільшенням тиску або зі зменшенням анізотропії; температура Дебая, θ , отримана з співвідношення Блоха-Грюнейзена, фактично не залежить від тиску.

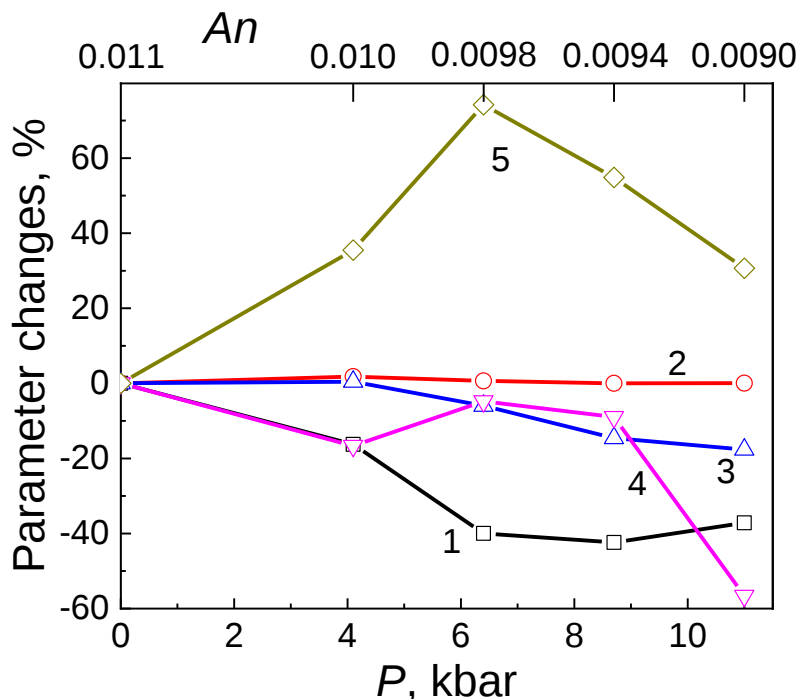


Рис. 4.6. Відносні зміни параметрів апроксимації (4.2) залежно від тиску P (нижня шкала) або анізотропії лінійної стискуваності $An = [c/3 - (a+b)/2]/V$ $l/3$ (верхня шкала). 1 – ρ_0 , 2 – θ , 3 – C_5 , 4 – C_3 , 5 – b_0 .

Оскільки $\Delta\theta/\theta \approx \Delta V/V + \Delta F/F$ ($\Delta F/F$ - величина міжатомної взаємодії), сталість значення θ (при $\Delta V/V < 0$) означає, що в діапазоні використовуваних тисків (та відповідної зміни анізотропії лінійної стискуваності) $\Delta F/F \approx |\Delta V/V|$ - посилення міжатомної взаємодії компенсує зменшення об'єму.

У [199] було показано, що для описання фононної теплоємності зразків $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ необхідно ввести три температури Дебая: θ_1 , що відповідає поперечним коливанням, які поширюються вздовж вісі c , θ_2 , що відповідає поперечним коливанням, які поширюються перпендикулярно до вісі c , і θ_3 , що відповідає поздовжнім коливанням, при цьому $\theta_3 \sim \theta_2 \gg \theta_1$. Для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ $\theta_1 = 90$ K, $\theta_2 = 850$ K and $\theta_3 = 295$ K.

Як видно з Таблиці 4.2, для нашого зразка $\theta \approx 280$ K, тобто носії заряду переважно розсіюються довгохвильовими коливаннями. Оскільки довгохвильові коливання завжди пов'язані з деформаціями у всіх трьох напрямках, зменшення анізотропії зі збільшенням тиску вплинуло на них досить слабо, що зумовило сталість температури Дебая θ .

4.5. Константа електрон-фононної взаємодії та адекватність застосування формули Макміллана

Значення T_c та θ , отримані з експериментальних залежностей $\rho(T)$, дозволяють визначати константу електрон-фононного взаємодії, λ , з використанням виразу Макміллана [200,201]:

$$T_c = \frac{\theta}{1.45} \exp \left[-\frac{1.04(1+\lambda)}{\lambda - \mu^*(1+0.62\lambda)} \right]. \quad (4.3),$$

де μ^* - ефективне кулонівське відштовхування.

Однак з (4.3) випливає, що існує максимальне значення відношення T_c/θ : при $\mu^*=0$ і $\lambda \rightarrow \infty$ $(T_c/\theta)_{\max} \approx 0.2438$. Для наших даних відношення T_c^{high}/θ зростає від 0.242 до 0.254, що відповідає або нереалістично великим значенням λ , або взагалі не відповідає рівнянню (4.3).

Ця ситуація, на нашу думку, зумовлена тим, що реальний фононний спектр анізотропного монокристалу $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ не може бути описаний моделлю Дебая, а параметр θ , отриманий з встановлення зв'язку (4.3) з експериментальними значеннями $\rho_{ab}(T)$, характеризує тип коливань, які розсіюють носії заряду. Зауважимо, що у [202], де температура Дебая у полікристалічному $YBa_2Cu_3O_x$ була визначена за часом релаксації спін-решітка, значення θ варіювали від 450 К до 280 К для T_c від 74,7 К до 56,3 К, що відповідає T_c/θ від 0.166 до 0.201. За формулою Макміллана було виявлено, що λ змінюється від 4 до 10, відповідно. Очевидно, адекватність формули Макміллана в цьому випадку визначається значенням θ , яке в ізотропному полікристалі було більшим, ніж у анізотропному монокристалі.

Таблиця також показує, що міжплощинна парна константа, $J=(2\xi_c(0)/d)^2$, не залежить від тиску. Розраховане (з урахуванням залежності $c(P)$ [194]) середнє значення довжини когерентності становить $\langle \xi_c(0) \rangle = (21 \pm 3)$ Å. Це в декілька разів більше, ніж значення, отримане в [195]. Ця невідповідність, ймовірно, пов'язана з методом визначення надлишкової провідності. У [195] надлишкову провідність визначали шляхом віднімання низькотемпературної екстраполяції високотемпературної провідності від експериментальних значень, а тут надлишкова провідність визначалася шляхом віднімання від експериментальних значень провідності, ρ^{-1} , розрахованої за формулою (рівн.) (4.2). Велика похибка в значенні $\langle J \rangle$, ймовірно, пов'язана з неоднорідністю зразка (див. вставку а на Рис. 4.4).

Зазначимо, що прикладання тиску також приводить до значного (до 17 К) розширення лінійної частини в $\rho_{ab}(T)$ при високих температурах. Останнє відображається в зменшенні температури T^* , при якій експериментальні точки починають систематично відхилятися вниз від лінійної залежності. Згідно з сучасними уявленнями, T^* відповідає температурі відкриття псевдощілини [148,155], яка буде більш детально розглянута нижче.

4.6. Надлишкова провідність

Більш швидко, ніж лінійне зменшення $\rho_{ab}(T)$, що спостерігається при $T < T^*$, відображає появу, так званої, надлишкової провідності $\Delta\sigma$ у кристалі. Температурна залежність надлишкової провідності визначається [148,155] співвідношенням:

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_{lin}, \quad (4.4)$$

де $\sigma_{lin} = \rho_{lin}^{-1} = (A + BT)^{-1}$ – це провідність, визначена шляхом екстраполяції лінійного відрізка $\rho_{ab}(T)$ до нульової температури, а $\sigma = \rho^{-1}$ – експериментально виміряне значення провідності в нормальному стані.

На досить широкому температурному інтервалі ці залежності мають досить довгу лінійну ділянку в координатах $\ln\Delta\sigma - 1/T$, що дозволяє їх описати експоненційною залежністю:

$$\Delta\sigma \sim \exp(\Delta^*_{ab}/T), \quad (4.5)$$

де величина Δ^*_{ab} визначає деякий термоактиваційний процес через енергетичну щілину – псевдощілину.

4.6.1. Псевдощілинний стан та перехід БКШ-БЕК.

Наразі найбільш широко обговорювані механізми реалізації псевдощілинного стану у ВТНП -купратів представлені концепціями некорельованих пар [148,203] та різними моделями діелектричних флуктуацій [204]. Що стосується першої концепції, то тут слід особливо відзначити теоретичну модель переходу від механізму БКШ до механізму Бозе-Ейнштейна (БЕК) [203]. У межах цієї теорії отримано температурні залежності псевдощілини для випадків сильного та слабого зв'язку. У загальному вигляді ці залежності описуються рівнянням:

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \Delta(0) \sqrt{\frac{\pi}{2}} \sqrt{\frac{T}{\Delta(0)}} \exp\left[-\frac{\Delta(0)}{T}\right] \times \left[1 + \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{x_0^2 + 1 - 1}{T/\Delta(0)}}\right)\right], \quad \dots\dots\dots (4.6)$$

де $x_0 = \mu/\Delta(0)$ (μ - хімічний потенціал; $\Delta(0)$ - енергетична щілина при $T=0$), а $\operatorname{erf}(x)$ - функція похибок.

У випадку слабого зв'язку [203] рівняння (4.6) зводиться до виразу:

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \Delta(0) \sqrt{2\pi\Delta(0)T} \exp\left[-\frac{\Delta(0)}{T}\right], \quad (4.7)$$

добре відомого в теорії БКШ.

У межі БЕК, сильного спарювання [203], у 3D випадку, $x_0 < -1$, рівняння (4.6) набуває виду:

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \frac{8}{\sqrt{\pi}} \sqrt{-x_0} \left(\frac{\Delta(0)}{T}\right)^{3/2} \exp\left[-\frac{\sqrt{\mu^2 + \Delta^2(0)}}{T}\right] \quad (4.8)$$

При цьому, як було показано в роботах [148,155,164,167,205], при достатній точності вимірювань, значення псевдощілини в широкому діапазоні

температур можна отримати з даних $\rho_{ab}(T)$ при $T < T^*$. Експоненціальна залежність $\Delta\sigma(T)$ раніше спостерігалася для плівок YBCO [205]. Як було показано в [205], підгонка експериментальних даних може бути значно покращена за допомогою введеного попереднього множника $(1-T/T^*)$. У цьому випадку надлишкова провідність виявляється пропорційною густині надпровідних носіїв $n_s \sim (1-T/T^*)$, і обернено пропорційною кількості надпровідних пар $\sim \exp(-\Delta^*/kT)$, зруйнованих тепловим рухом:

$$\Delta\sigma \sim (1-T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T). \quad (4.9)$$

Тут T^* розглядається як температура переходу в псевдоцилінний стан в теорії середнього поля. Температурний інтервал $T_c < T < T^*$ реалізації псевдоцилінного стану визначається жорсткістю фази параметра порядку, яка, у свою чергу, залежить від дефіциту кисню та концентрації допантів. Таким чином, використовуючи підхід, запропонований у [205], температурну залежність псевдощільності $\Delta^*_{ab}(T)$ можна отримати з експериментальної залежності $\Delta\sigma(T)$ безпосередньо до температури T^* .

На Рис. 4.7 представлені температурні залежності псевдощільності для різних тисків представлені в координатах $\Delta^*(T)/\Delta^*_{max} - T/T^*$. Тут, Δ^*_{max} - значення Δ^* на плато оддалік від T^* . Залежності $\Delta^*(T)/\Delta^*_{max} - T/T^*$ розраховані за формулами (4.7) та (4.8) у середньопольовому наближенні в рамках теорії переходу від БКШ [203] для значень хімпотенціала $\mu/\Delta(0)=10$ (межа БКШ), -2, -5, -10 (межа БЕК), показані пунктирними лініями на Рис. 4.7. Зі збільшенням тиску експериментальні дані переходять від залежностей, описаних формулою (4.8), до залежностей, описаних формулою (4.7).

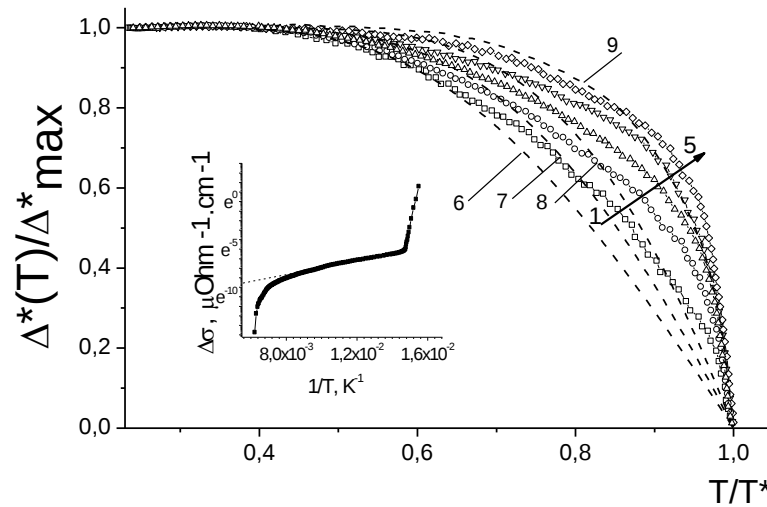


Рис. 4.7: Температурні залежності псевдощілини в монокристалі $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ в зведених координатах $\Delta^*(T)/\Delta^*_{max}$ - T/T^* (Δ^*_{max} - значення Δ^* на плато оддалік від T^*). Нумерація кривих відповідає нумерації на Рис. 4.4. Залежності $\Delta^*(T)/\Delta(0)-T/T^*$, розраховані згідно [203] для значень хімпотенціала $\mu/\Delta(0)=10$ (межа БКШ), -2, -5, -10 (межа БЕК), показані пунктирними лініями 6-9 відповідно.

Така еволюція кривих виявляється якісно подібною до поведінки температурних залежностей псевдощілини в монокристалах YBCO при зменшенні ступеня нестехіометрії кисню [151,182]. Вірогідно, що згадані кореляції $\Delta^*(T)$ не є випадковими. Насправді, як відомо з літератури (див., наприклад, [148,149,166,167]), прикладання високого тиску до ВТНП -сполук системи 1-2-3, а також збільшення вмісту кисню [164,169], приводить до підвищення T_c та зменшення ρ . Таким чином, з урахуванням певної умовності визначення T^* за відхиленням $\rho_{ab}(T)$ від лінійної залежності, узгодженість експерименту з теорією у нашому випадку може вважатися задовільною.

4.6.2. Флуктуаційна парепровідність.

Як видно зі вставки до Рис. 4.7, найсильніше збільшення надлишкової провідності відбувається при наближенні до T_c . Як відомо, поблизу T_c надлишкова провідність, ймовірно, спричинена процесами флуктуаційного спаровування носіїв заряду і може бути описана в рамках моделі Лоуренса-Доніаха [193]. Ця модель передбачає наявність дуже плавного переходу від 2D до 3D режиму флуктуаційної парепровідності зі зниженням температури зразка:

$$\Delta\sigma = \left[\frac{e^2}{16\hbar d} \right] \varepsilon^{-1} \left\{ 1 + J\varepsilon^{-1} \right\}^{-1/2}, \quad (4.10)$$

де $\varepsilon = (T - T_c^{mf})/T_c^{mf}$ – зведена температура; T_c^{mf} – критична температура у середньопольовому наближенні; $J = (2\xi_c(0)/d)^2$ – константа міжшарового зв'язку; ξ_c – довжина когерентності вздовж вісі c , а d – товщина 2D шару. Поблизу T_c , коли $\xi_c \gg d$, взаємодія між флуктуаційними надпровідними парами реалізується в усьому об'ємі зразка, що відповідає 3D режиму. 2D режим реалізується, коли $\xi_c \ll d$, і взаємодія можлива лише в межах площин провідних шарів. Відповідно, в цих двох випадках рівняння (4.10) перетворюється в відомі співвідношення для 3D та 2D випадків, отримані в теорії Асламазова-Ларкіна [197]:

$$\Delta\sigma_{2D} = \frac{e^2}{16\hbar d} \varepsilon^{-1}, \quad (4.11)$$

$$\Delta\sigma_{3D} = \frac{e^2}{32\hbar\xi_c(0)} \varepsilon^{-1/2}, \quad (4.12)$$

Слід відзначити, що точне визначення величини T_c^{mf} , яка сильно впливає на нахил кривої $\Delta\sigma(\varepsilon)$, є важливим для порівняння експерименту з

теорією. При цьому $\xi_c(0)$, d та T_c у формулах (4.10)-(4.12) зазвичай варіюються як параметри підгонки [206]. Однак, цей підхід часто приводить до істотних кількісних розбіжностей між теорією та експериментом. Це вимагає включення деякого масштабного фактора, як додаткового параметра підгонки. Цей, так званий, С-фактор дозволяє покращувати точність підгонки до експериментальних даних та, тим самим, враховувати можливу неоднорідність у розподілі транспортного струму в розглянутій системі. У нашому аналізі для визначення T_c^{mf} ми використовували значення T_c , визначені у точках максимумів похідної $d\rho_{ab}/dT$ в області надпровідного переходу [149].

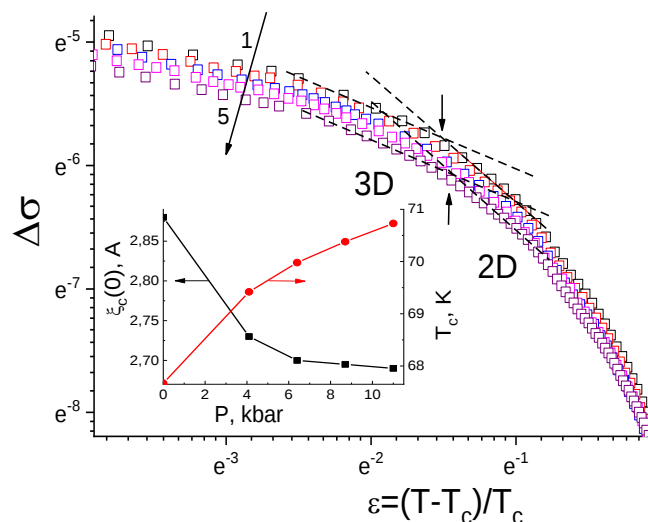


Рис. 4.8: Температурні залежності $\Delta\sigma(T)$ для серії тисків у відображенні $\ln\Delta\sigma$ проти $\ln\varepsilon$. Нумерація кривих відповідає Рис. 4.4. Вставка: Залежності $T_c(P)$ та $\xi_c(P)$.

Температурні залежності $\Delta\sigma(T)$ представлені на Рис. 4.8 у координатах $\ln\Delta\sigma$ - $\ln\varepsilon$. Поблизу T_c , ці залежності задовільно апроксимуються прямими лініями з кутом нахилу $\alpha_1 \approx -0.5$, що відповідає показнику $1/2$ в рівнянні (4.12), і свідчить про тривимірний характер флуктуаційної провідності в цьому

температурному інтервалі. З подальшим збільшенням температури швидкість зменшення $\Delta\sigma$ зростає до ($\alpha_2 \approx -1$), що свідчить про зміну вимірності в поведінці флуктуаційній провідності. З формул (4.11) і (4.12) випливає, що у точці 2D-3D переходу (кросовера):

$$\varepsilon_0 = 4[\xi_c(0)/d]^2. \quad (4.12)$$

У цьому випадку, визначивши значення ε_0 та використовуючи літературні дані для залежності T_c та міжшарової відстані від δ [207,208], можна обчислити значення $\xi_c(0)$.

Як слідує зі вставки до Рис. 4.8, $\xi_c(0)$, розраховане за формулою (4.12), зменшується від 2.88 Å до 2.69 Å зі збільшенням T_c . Ця поведінка якісно відрізняється від залежностей $\xi_c(0)$ від тиску, отриманих для бездомішкових зразків YBCO оптимального складу [164,169] та для монокристалів з малими домішками празеодиму [155,167]. Зокрема, для монокристалів YBCO оптимального складу $\xi_c(0)$ майже не змінюється зі збільшенням тиску [149,169]. У той же час, для монокристалів з малими домішками празеодиму [167], $\xi_c(0)$ збільшується приблизно на 15% зі збільшенням тиску від 0 до 17 kbar. Також слід відзначити, що у нашій роботі виявлена певна кореляція в поведінці баричних залежностей $\xi_c(P)$ та $T_c(P)$ (див. вставку на Рис. 4.8). Обидві величини змінюються практично симетрично - зі зростанням $T_c(P)$ величина $\xi_c(P)$ зменшується і навпаки, що може свідчити про однакову природу зміни цих характеристик.

Висновки до розділу 4

В результаті проведених досліджень можна зробити висновок, що:

1. Допування празеодимом приводить до виникнення анізотропного розподілу дефектів та формування плоских макроскопічних надпровідних

областей з різними T_c . Макроскопічні надпровідні неоднорідності викликають багатосхідчастий НП-перехід, зміщений в область більш низьких температур; сходинки цього переходу ширше, ніж у вихідному переході через посилення мезоскопічних неоднорідностей.

Збільшення концентрації празеодиму приводить до зменшення довжини локалізації носіїв заряду, що свідчить про зменшення просторового поширення хвильової функції носіїв заряду.

2. У нормальному стані головний внесок в опір монокристала $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ дають внутрішньозонні розсіяння ($\propto T^5$) та залишковий опір. Гідростатичний тиск приводить до зменшення анізотропії лінійної стискуваності разом із зменшенням залишкового опору та фононного опору; температура Дебая та довжина когерентності залишаються сталими.

Отримані з експериментальної температурної залежності електроопору температура надпровідного переходу та температура Дебая не узгоджуються з формулою МакМіллана, вірогідно через наявність в системі істотної анізотропії.

3. Загалом, прикладання високого тиску до монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з середнім ступенем допування празеодимом ($x \approx 0.23$) приводить до суттєвого розширення лінійного ділянки залежності $\rho_{ab}(T)$, що супроводжується звуженням температурного інтервалу реалізації псевдоцилінричного режиму. При цьому надлишкова провідність підкоряється експоненціальній температурній залежності в широкому діапазоні температур, а температурна залежність псевдоцилінричності задовільно описується в рамках теорії переходу БКШ-БЕК.

4. Еволюція під тиском ФП-режиму у середньо допованих празеодимом зразках $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ вірогідно визначається двома процесами: загальною «трьохмеризацією» системи, внаслідок зміни співвідношення між

ξ_c та d , з одного боку, і, зумовленим внесенням домішки празеодима, зміщенням рівня Фермі відносно особливостей густини станів – з іншого. При цьому, на відміну від бездомішкових та слабо легованих празеодимом зразків $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, прикладання високого тиску приводить до суттєвого зростання величини баричних похідних dT_c/dP та $d\xi_c/dP$.

РОЗДІЛ 5

ВПЛИВ ОПРОМІНЮВАННЯ ТА ДОМІШОК ПРАЗЕОДИМА НА ФЛУКТУАЦІЙНУ ПАРАПРОВІДНІСТЬ МОНОКРИСТАЛІВ

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Відомо, що купратні сполуки системи $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ($\text{R} = \text{Y}$ або інші рідкоземельні елементи) є технологічно важливими структурами для отримання новітніх перспективних матеріалів з високою струмонесучою здатністю, забезпечення компонентів для виготовлення осередків пам'яті, надчутливих елементів зчитування і надшвидкісних ліній зв'язку на основі ВТНП. Характерною особливістю ВТНП-купратів є наявність широкої ділянки надлишкової провідності ($\Delta\sigma$) на температурних залежностях електроопору $\rho(T)$ [209-219]. Відповідно до сучасних уявлень [209,219] при температурах $T^* > T \gg T_c$ $\Delta\sigma$ обумовлена проявом так званої псевдощілинної (ПЩ)-аномалії. При температурах поблизу критичної $T \geq T_c$ визначається механізмами флуктуаційного спаровування носіїв (ФП), детально описаних у класичних роботах [220-222]. Важливу роль при цьому відіграє склад та топологія дефектного ансамблю [209,211,217,223], що визначає умови протікання транспортного струму та механізми розсіювання носіїв. При цьому серед експериментальних методик, що дозволяють контрольованим способом змінювати склад та морфологію дефектного ансамблю у ВТНП-матеріалах необхідно особливо виділити метод радіаційного впливу [224,225] та допування празеодимом [226,227]. Ці методи мають певні переваги в порівнянні з іншими методами введення в надпровідник дефектів, такі як збереження стехіометричного складу речовини та середньої кількості електронів на атом, можливість збереження макрооднорідності зразків та контрольована зміна концентрації радіаційних та домішкових дефектів [227,228].

Вивчення впливу радіаційних ефектів на ФП у ВТНП-купратах є принципово важливим з двох точок зору: розуміння мікроскопічної природи високотемпературної надпровідності [229,230], яка залишається нез'ясованою, незважаючи на 37 років інтенсивних досліджень, та покращення надпровідних властивостей цих сполук для їх практичних застосувань [231]. Слід зазначити, що, незважаючи на досить великий експериментальний матеріал, накопичений до теперішнього часу [209-218,223–228], питання впливу радіаційного опромінення на різні режими провідності і, зокрема, флуктуаційної провідності ВТНП-сполук залишається досі остаточно не з'ясованим. Очевидно, певну роль тут відіграє той факт, що основна кількість наявних експериментальних даних була отримана на текстурованих [232] та керамічних [209] зразках з високим вмістом міжгранулярних зв'язків, а також плівках [216], осаджених на підкладках різного виду за допомогою доволі відмінних технологічних процесів.

Відомо, що критична температура (T_c) сполук $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($R = Y$ та інші рідкоземельні елементи), оптимально допованих киснем, становить $T_c \approx 90$ К і слабо залежить від природи R . При цьому $CeBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ і $TbBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ не утворюють ОРТО-структуру [233], $PmBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ є радіоактивним, а $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ не надпроводить («аномалія празеодима»), незважаючи на наявність орторомбічного елементарного осередку [233]. Особливий інтерес у цьому аспекті представляють сполуки з частковою заміною Y на Pr , що, з одного боку, приводить до часткового пригнічення надпровідності, а з іншого – дозволяє зберігати практично незмінними параметри решітки та кисневий індекс сполуки [209,226]. Зокрема, дослідження впливу опромінення і домішок Pr на умови та режими реалізації флуктуаційної провідності у таких сполуках [227,228] відіграє важливу роль не тільки для прояснення природи високотемпературної надпровідності, але й для визначення емпіричних шляхів підвищення критичних параметрів ВТНП-сполук.

У циклі наших попередніх робіт [234-238] було досліджено вплив малих доз D від 1.4 до $8,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ і слабого допування празеодимом на ФП та надлишкову провідність у монокристалах $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ стехіометричного складу. У цій роботі представлені результати дослідження впливу середніх доз (до $100 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$) опромінення високоенергетичними електронами та вплив домішок Pr у широкому інтервалі концентрацій ($0.0 \leq z \leq 0.5$) на флуктуаційну провідність у монокристалах $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при протіканні транспортного струму в базисній ab -площині.

5.1. Еволюція температурних залежностей електроопору монокристалів $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при опроміненні швидкими електронами чи допуванні празеодимом

Досліджувані у цій роботі монокристали $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ були вирощені за розчин-розплавною технологією у золотому тиглі [209,211,213]. Кристали насичували киснем в атмосфері кисню за 430°C протягом чотирьох днів. Всі досліджені кристали були здвійникові, а двійникові площини мали блокову будову. Опір вимірювали за стандартним 4-контактним методом. Відповідні розміри кристалів цих вимірювань складали $(1.5 \dots 2) \times (0.2 \dots 0.3) \times (0.01 \dots 0.02) \text{ мм}^3$, де найменший розмір відповідав осі c . Для отримання кристалів з частковою заміною Y на Pr, $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, в початкову шихту додавали Pr_5O_{11} у відповідному відсотковому співвідношенні. Режимы вирощування та насичення киснем кристалів $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ були такими ж, як і для нелегованих монокристалів [209,211]. Як початкові компоненти для вирощування кристалів використовували сполуки Y_2O_3 , BaCO_3 , CuO та Pr_5O_{11} .

Способи вирощування і насичення киснем кристалів $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ були такі ж, як і для недопованих монокристалів [227,228]. Для вирощування кристалів використовувалися сполуки Y_2O_3 , BaCO_3 , CuO та Pr_5O_{11} .

Транспортний струм до 10 mA пропускався через найбільший розмір зразка, відстань між потенційними контактами зазвичай складала 1 mm.

Технологія отримання експериментальних зразків і проведення резистивних вимірювань, а також аналіз транспортних властивостей зразків у нормальному та надпровідному станах, детально описані в [209,211,213, 227,228]. Опромінення електронами з енергіями від 0.5 до 2.5 MeV проводилося при $T < 10$ K. Доза опромінення $D = 10^{18}$ e/cm² електронами з енергією 2.5 MeV відповідає концентрації дефектів, усередненій по всім підрешіткам, 10^{-4} виходять за атом [224,239]. Послідовність вимірювань була такою: спочатку ми виміряли температурні залежності опору зразків до опромінення. Потім температура знижувалася до 5K і проводилося опромінення. Інтенсивність пучка була такою, що температура зразка під час опромінення не перевищувала 10 K. Після опромінення зразок відповідної дози підігрівали до температури 300K і, поступово знижуючи температуру зразка, вимірювали температурні залежності опору при $T < 300$ K. Для проведення резистивних вимірювань після опромінення використовували спеціально розроблений гелієвий кріостат у діапазоні температур $4.2 < T < 300$ K. Усі вимірювання опору проводили за фіксованої температури. Температуру вимірювали платиновим термометром з опором, а стабільність температури складала близько 5 mK.

На Рис. 5.1 (a) показані залежності $\rho_{ab}(T)$, отримані до і після опромінення швидкими електронами при дозах від 0 (крива 1) до $100 \cdot 10^{18}$ e/cm² (крива 8). Частина кривих на Рис. 5.1 (a) не показана, щоб не ускладнювати загальну картину. Детально криві цих залежностей аналізуються нами у [240]. Залежності опору монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ при зміні вмісту празеодиму z відображено на Рис. 5.1 (b). Як можна побачити з Рис. 5.1, в обох випадках криві характеризуються квазіметалевою поведінкою електроопору з характерною лінійною частиною залежності $\rho(T)$

при високих температурах. Як при максимальних дозах опромінення, так і при максимальному вмісті Pr криві починають набувати характерної S-подібної форми, що свідчить про появу на залежностях $\rho_{ab}(T)$ термоактиваційної ділянки, про що докладніше буде сказано нижче.

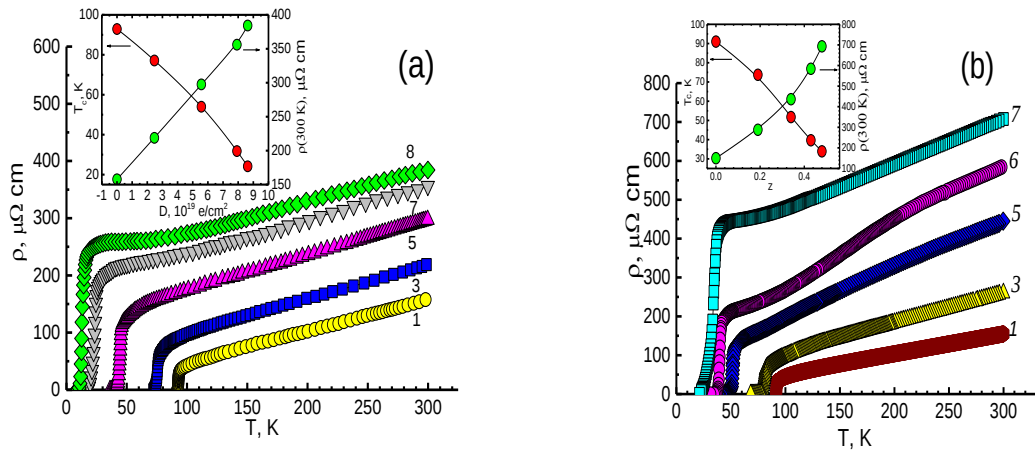


Рис. 5.1(a). Температурні залежності $\rho_{ab}(T)$ монокристала $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ до та після опромінення електронами з дозами (0; 24.7; 55.7; 79.2; 86.3) 10^{18} e/cm² - криві 1;3;5;7;8 відповідно. На вставках показано залежності від дози критичної температури T_c (червоні кола) та електричного опору при кімнатній температурі ρ_{300} (зелені кола) для всіх зразків.

Рис. 5.1(b). Температурні залежності $\rho(T)$ монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ для $z = 0.0, 0.19, 0.34, 0.43, 0.48$, криві 1;3;5;6;7, відповідно. На вставках показані концентраційні залежності критичної температури T_c (червоні кола) та електричного опору при кімнатній температурі ρ_{300} (зелені кола) для всіх зразків.

Існують помітні відмінності в еволюції кривих електроопору під впливом опромінення та допування празеодимом. Як видно з Рис. 5.1, опромінення приводить до аномально сильного (порівняно зі зміною складу [224,241]) пригнічення надпровідності (зниження T_c) у $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Однак природа змін електричних та надпровідних властивостей ВТНП при зміні

складу [241] та під впливом опромінення трохи відрізняється. Основна відмінність полягає в наступному: якщо при зміні складу зниження T_c до 86 K, як правило, супроводжується зміною форми кривих $\rho(T)$ від металевої до так званої «S-подібної кривої» з характерним термоактиваційним прогином [209,241], то під час опромінення таке ж, за абсолютним значенням, зниження T_c з помітним збільшенням ρ в діапазоні температур $T_c - 300K$ не супроводжується появою S-подібної залежності $\rho(T)$. Термоактиваційна поведінка електричного опору опромінених зразків з'являється лише при досить низьких значеннях T_c [240]. Однією з причин, що приводить до сильного зниження T_c в опромінених зразках, може бути поява діелектричних включень під впливом опромінення через перерозподіл кисню між позиціями O(4) та O(5) та утворення локальних областей з тетрагональною структурою.

При збільшенні дози критична температура знижується від ~ 92 до ~ 24 K, а $\rho_{ab}(T)$ зростає з $\rho \sim 158$ до $384 \mu\Omega \cdot \text{cm}$, відповідно, що узгоджується з літературними даними [242,243]. Якісно подібні залежності спостерігаються при допуванні празеодимом [209,226]. Дозові та концентраційні залежності, $T_c(D,z)$ та $\rho_{300}(D,z)$, представлені на вставках до Рис. 5.1.

5.2. Модель NAFL та RVB теорія

Як випливає з Рис. 5.1, у базисній площині на залежностях $\rho_{ab}(T)$ в області відносно високих температур, вище деякого характерного рівня, T^* , зберігається досить широкий лінійний відрізок навіть при значних дозах опромінення. Для пояснення таких залежностей було запропоновано ряд різних теоретичних моделей, найбільш відомі з яких - так звана RVB теорія та модель NAFL [216]. Згідно з першою, розсіювання в складних ВТНП сполуках відбувається через взаємодію носіїв з двома видами квазічастинкових збуджень, спінонами та холонами [216]. При цьому температурна залежність

електричного опору показує, крім лінійного за температурою члена, наявність додаткового члена, пропорційного $1/T$ [216], у обох випадках, як при вимірюваннях поздовжнього, так і поперечного електричного опору:

$$\rho(T) = AT^{-1} + BT \quad \dots\dots\dots (5.1)$$

Як видно з Рис. 5.2, при дозах опромінення до $\leq 70 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ та при низькому рівні легування празеодимом $x < 0.25$, температурні залежності $\rho_{ab}(T)$ стають практично лінійними у координатах $\rho \cdot T - T^2$.

Однак для випадку середніх та високих доз $D > 100 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ та для випадку середньо- та сильнолегованих празеодимом зразків $x \geq 0.25$, експериментальні криві $\rho_c(T)$ вже не можуть бути добре описані залежністю (5.1). Згідно з моделлю NAFL [216], розсіювання носіїв в складних ВТНП системах визначається антиферромагнітною взаємодією. При цьому наявність лінійного відрізка на залежностях $\rho(T)$ слугує надійною ознакою нормального стану системи. Слід зазначити, що жодна з теоретичних моделей, які пояснюють таку поведінку кривих $\rho(T)$ в області відносно високих температур, не може задовільним чином пояснити відхилення електричного опору від лінійної залежності при температурах нижче певного характерного значення T^* , що відповідає температурі відкриття псевдощілини [209].

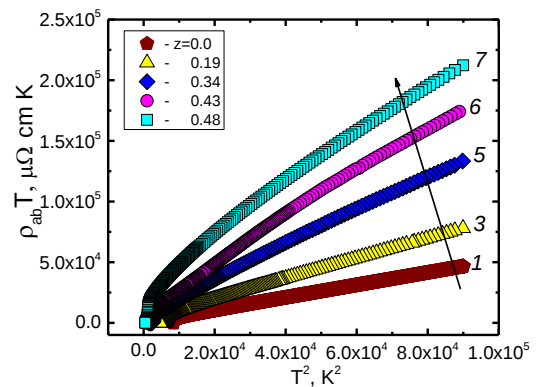
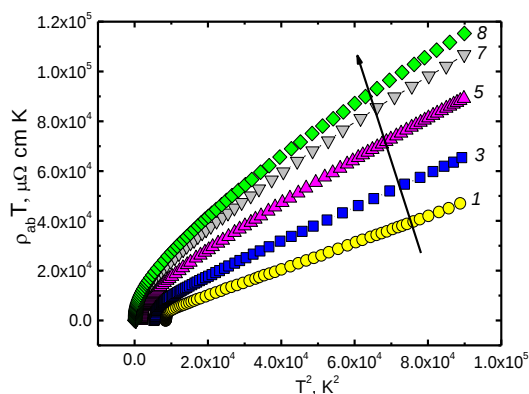


Рис. 5.2. Температурні залежності електричного опору в координатах $\rho \cdot T - T^2$ у ab -площині. Позначення кривих такі ж, як на Рис. 5.1.

5.3. 2D-3D кросовер

Відхилення експериментальних кривих вниз від лінійної залежності свідчить про появу так званої надлишкової провідності, $\Delta\sigma$, температурна залежність якої може бути отримана за формулою: $\Delta\sigma = \sigma - \sigma_{\text{lin}}$, де $\sigma = \rho_{ab}^{-1}$ є експериментальним значенням провідності в нормальному стані при $T < T^*$, а $\sigma_{\text{lin}} = (\rho_{\text{lin}}^{-1}) = (\rho_0 + AT)^{-1}$.

Поблизу T_c , згідно з існуючими уявленнями [209,220-223], у випадку 2D та 3D флуктуацій, $\Delta\sigma$ в полікристалічних системах може бути описана виразами:

$$\Delta\sigma_{2D} = 1/4 \left\{ \frac{e^2}{16 \hbar d} \varepsilon^{-1} \left[1 + \left(1 + \frac{8\xi_c^4(0)}{d^2 \xi_{ab}^2(0)} \varepsilon^{-1} \right)^{1/2} \right] \right\}, \quad (5.2)$$

$$\Delta\sigma_{3D} = \frac{e^2}{32 \hbar \xi_p(0)} \varepsilon^{-1/2}, \quad (5.3)$$

де ξ_c та ξ_{ab} - це довжини когерентності вздовж та поперек базисної площини, d - міжплощинна відстань, $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$ - зведена температура, і $\xi_p(0)$ - ефективна характеристична довжина когерентності при $T=0$, яка задається рівнянням:

$$1/\xi_p(0) = 1/4 [1/\xi_c(0) + (1/\xi_c^2(0) + 8/\xi_{ab}^2(0))^{1/2}] \quad \dots \quad (5.4)$$

У випадку монокристалічних зразків $\Delta\sigma$ визначається класичним рівнянням АЛ [220]: $\Delta\sigma = C\varepsilon^\alpha$, де

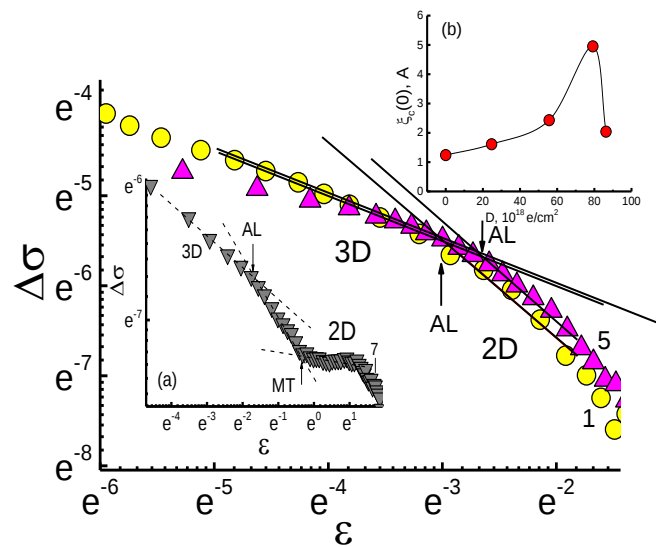
для 3D випадку $C = \frac{e^2}{32\hbar\xi_c(0)}$ та $\alpha = -0.5$ (поблизу T_c , при $\xi_c \gg d$ взаємодія між флуктуаційними надпровідними парами реалізується в усьому об'ємі надпровідника); (5.5a)

для 2D випадку $C = \frac{e^2}{16\hbar d}$ та $\alpha = -1$ (оддалік від T_c , при $\xi_c \ll d$ взаємодія можлива тільки в площинах провідних шарів). (5.5b)

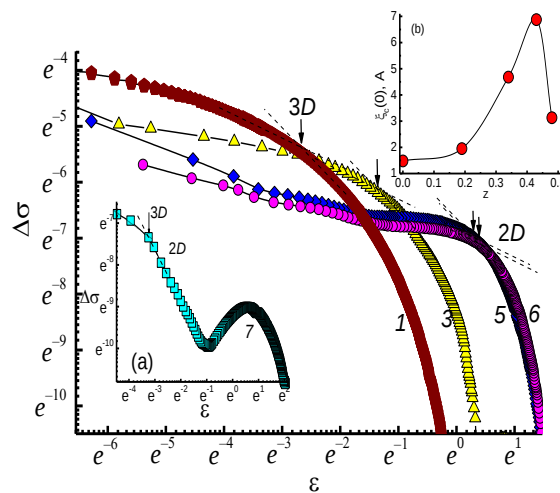
На Рис. 5.3 показано температурні залежності $\Delta\sigma(T)$ в координатах $\ln\Delta\sigma(\ln\varepsilon)$. Можна бачити, що в діапазоні температур між T_c та $\leq 1.1T_c$ ці залежності задовільно апроксимуються прямими лініями з кутом нахилу $\alpha_1 \approx -0.5$, що свідчить про тривимірний характер флуктуаційної надпровідності в цьому діапазоні температур. З подальшим збільшенням температури швидкість зменшення $\Delta\sigma$ суттєво зростає ($\alpha_2 \approx -1$), що, у свою чергу, можна розглядати як ознаку зміни розмірності флуктуаційної провідності (ФП). Ця зміна розмірності відповідає так званому 2D-3D кросоверу. Слід відзначити, що в попередніх дослідженнях ФП в ВТНП-системах $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ різних складів з використанням методу Коувеля-Фішера [212,214,218] було зафіксовано цілу послідовність переходів 1D-2D, 2D-3D, 3D-критичні флуктуації та проміжні типи між ними.

Враховуючи ці результати, ми можемо представити наступний сценарій формування підсистеми надпровідних пар в ВТНП. Флуктуаційні пари, які, очевидно, зароджуються всередині площин CuO_2 при $T \leq T^*$, приводять до збільшення n_{SC} . Оскільки при $T \gg T_c$ значення n_{SC} та, особливо, значення $\xi_c(T)$, дуже малі, ймовірно, взаємодії між парами практично немає. Відповідний електронний стан флуктуаційних пар можна вважати нульвимірним, який не

описується існуючими теоріями ФП. При $T < T_{2D}$ флуктуаційні пари починають перекриватися, але все ще лише в межах площин CuO_2 , формуючи 2D електронний стан, який описується внеском режиму Макі-Томпсона (МТ) теорії Хікамі-Ларкіна (ХЛ) [222].



(a)



(b)

Рис. 5.3 (а) Залежності $\ln \Delta \sigma(T)$ від $\ln \varepsilon$ для доз 0 (жовті кружечки), $55.7 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$ (фіолетові трикутники) та $79.2 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$ (сірі трикутники, вставка (а)). На вставці (b) показані залежності $\xi_c(0)$ від D .

*Рис. 5.3 (b) Температурні залежності надлишкової провідності в площині **ab** для монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в координатах $\ln\Delta\sigma$ - $\ln\varepsilon$. На вставці (a) показана та ж залежність для $z = 0.48$. Вставка (b) показує залежності $\xi_c(0)$ від z .*

При $T < T_{3D}$ зростаюча $\xi_c(T)$ стає більшою за d та об'єднує провідні площини за допомогою парних тунельних взаємодій джозефсонівського типу. Тепер флуктуаційні пари взаємодіють по всьому об'єму надпровідника, формуючи 3D електронний стан, який добре описується 3D внеском теорії Асламазова – Ларкіна (АЛ) [220]. Фактично тільки зараз система повністю готова завершити перехід до надпровідного стану.

Слід зазначити, що для залежностей $\ln\Delta\sigma(\ln\varepsilon)$, отриманих при опроміненні максимальними дозами $D=7.92$ та $8.63 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, спостерігається немонотонна поведінка кривих, що характеризується додатковим кросовером при температурах $\varepsilon \geq \varepsilon_0$ з різким зменшенням величини кута нахилу α . Ця особливість вже була помічена раніше в [216] і може свідчити про наявність переходу до так званого режиму Макі-Томпсона (MT) в системі [222] поведінки температурних залежностей надлишкової провідності $\Delta\sigma$.

У 2D-області двохчастинкове тунелювання між шарами виключається, внаслідок чого надпровідні та нормальні носії знаходяться безпосередньо в площинах провідних шарів. Домінуючий вклад у ФП в цьому режимі вносить додатковий внесок, обґрунтований Макі-Томпсоном [222], який виникає як результат взаємодії флуктуаційних пар з нормальними носіями заряду. Такий внесок залежить від терміну існування флуктуаційних пар та визначається процесами розпарювання в кожному конкретному зразку. Важливе значення у цьому випадку набуває врахування ступеня неоднорідності структури зразка. Згідно [216] для зразків досконалої структури:

$$\sigma_{MT} = \frac{e^2}{8\hbar d(1-\alpha/\delta)} \ln \left\{ \left(\frac{\delta}{\alpha} \right) \frac{1+\alpha+(1+2\alpha)^{1/2}}{1+\delta+(1+2\delta)^{1/2}} \right\} \varepsilon^{-1} \quad (5.6)$$

Тут:

$$\alpha = 2[\xi_c(0)/d]^2 \varepsilon^{-1} \text{ та } \delta = 1,203(l/\xi_{ab}(0))(16/\pi\hbar)[\xi_c(0)/d]^2 k_b T \tau_\varphi \quad (5.7)$$

це параметри зв'язку та розпаровування відповідно. l – довжина вільного пробігу, ξ_{ab} – довжина когерентності в ab -площині і τ_φ – термін існування флуктуаційних пар. За наявності неоднорідностей структури залежність $\sigma(T)$ визначається моделлю Лоуренса-Доніаха (ЛД) [221].

Згідно рівнянню (5.5) в точці 2D-3D кросовера:

$$\varepsilon_0 = 4[\xi_c(0)/d]^2. \quad (5.8)$$

У цьому випадку, визначивши значення ε_0 та використовуючи літературні дані щодо залежності T_c та міжплощинного інтервалу від δ [207], можна обчислити значення $\xi_c(0)$. Залежність $\xi_c(0)$ від дози опромінення показана на вставці (b) до Рис. 5.2 (a).

5.4. Аналіз залежностей поперечної довжини когерентності від критичної температури в рамках передбачень теорії Боголюбова-де-Жена

Як видно з рисунка, значення $\xi_c(0)$, обчислене за рівнянням (5.8), зростає від 1.3 до більш ніж 5 Å і, після проходження через максимум, різко зменшується до значень приблизно 2 Å зі зростанням дози опромінення та зменшенням T_c , що якісно відрізняється від залежності $\xi_c(0)$ від D , отриманої на монокристалічних зразках $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [235] при опроміненні низькими дозами швидких електронів до $D = 8.8 \cdot 10^{18}$ е/см². Пунктирні лінії показують апроксимацію експериментальних кривих прямими лініями з кутами нахилу

$\alpha_1 \approx -0.5$ (режим 3D) та $\alpha_2 \approx -1.0$ (режим 2D). Стрілки показують точки переходу від 2D до 3D режиму. На вставці (а) показані ті ж залежності для зразків К7 та К8. На вставці (b) показані концентраційні залежності довжини когерентності $\xi_c(z)$.

На Рис. 5.4 показані залежності $\xi_c(0)$ від T_c для всіх досліджених зразків. Темні квадрати показують дані, отримані раніше для зразків плівок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ при різних значеннях δ [216]. Як відомо з загальної теорії надпровідності (Боголюбова-де-Жена – БдЖ [36]), співвідношення між $\xi_c(0)$ та T_c у надпровідних сполуках описується рівнянням:

$$\xi_0 \sim \hbar v_F / [\pi \Delta(0)], \quad (5.9)$$

де $\Delta(0)$ - параметр порядку при $T=0$ К. Оскільки для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ значення $2\Delta(0)/k_B T_c \approx 5$, тоді, взявши $\xi_0 = \xi_c(0)$, можна записати:

$$\xi_c(0) = G/T_c \quad (5.10)$$

де $G = 2K \hbar v_F / (5\pi k_B)$, а коефіцієнт пропорційності - $K \approx 0.12$.

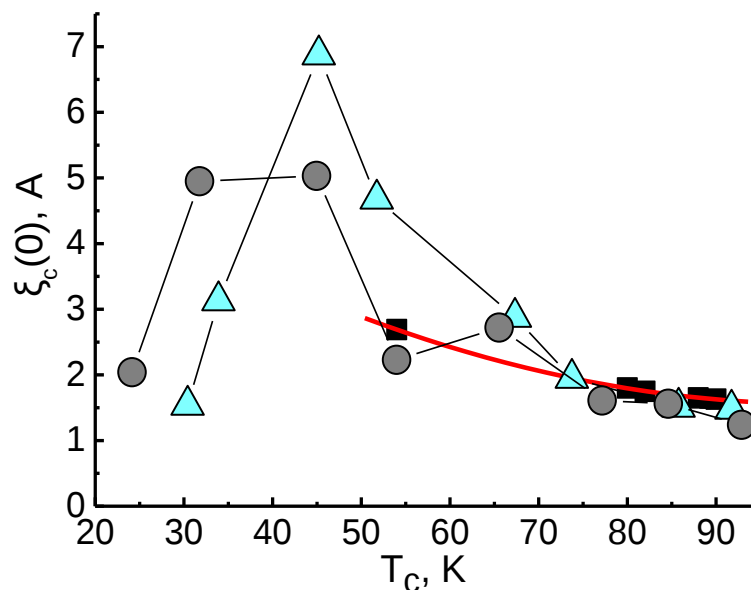


Рис. 5.4. Залежності $\xi_c(0)$ від T_c для $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (кола) та для $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (трикутники). Квадрати - дані [216] для плівок $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Залежність $\xi_c(0)$ як функція T_c , обчислена згідно (5.10), показана на Рис. 5.4 червоною лінією, що свідчить про те, що механізми спаровування в плівках та опромінених монокристалах $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та середньодопованих празеодимом монокристалах $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, у цьому діапазоні температур значною мірою відповідають загальній теорії надпровідності.

Немонотонний характер поведінки залежності $\xi_c(0)$ від D та концентрації Pr , отриманої при опроміненні середніми дозами швидких електронів та допуванні празеодимом, очевидно, пов'язаний із загальним пригніченням надпровідних характеристик ВТНП-сполук $YBaCuO$ при дозах опромінення $D \geq 10^{20} \text{ cm}^{-2}$ чи концентраціях празеодима $z \geq 0.4$, що детальніше обговорюється нами в [197]. Остаточна відповідь на це питання може бути отримана при аналізі впливу більш високих доз опромінення та концентрацій празеодиму на температурні залежності електроопору, в тому числі, безпосередньо до повного пригнічення надпровідності цих сполук.

Висновки до розділу 5

Таким чином, узагальнюючи вищесказане, можна зробити висновок про те, що:

1. Опромінення середніми дозами високоенергетичних електронів та збільшення ступеня допування празеодимом оптимально допованих киснем монокристалів $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ приводить до якісно подібних змін температурних залежностей електроопору $\rho(T)$ у ab -площині, зокрема до значного розширення температурного інтервалу існування надлишкової провідності $\Delta\sigma(T)$. При цьому, в обох випадках, відбувається кратне

збільшення величини поперечної довжини когерентності $\xi_c(0)$ та істотно зміщується за температурою точка 2D-3D кросовера.

2. Вперше встановлено, що на відміну від випадку опромінення малими дозами високоенергетичних електронів ($D \leq 10^{19} \text{ cm}^{-2}$) 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 $\xi_c(0)$ від критичної температури T_c 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.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ

У результаті виконання дисертаційної роботи було розв'язане поставлене наукове завдання: встановлення фізичних закономірностей еволюції магніторезистивних характеристик у шаруватих ВТНП – сполуках сімейства $Y_{1-y}Pr_yBa_2Cu_3O_{7-x}$ в умовах дії екстремальних зовнішніх чинників (низької температури, високого тиску та електронного опромінення).

У роботі були синтезовані досконалі монокристали $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ та отримані експериментальні зразки з заданою топологією дефектної структури для резистивних вимірювань. Проведені вимірювання в широкому інтервалі температур магніторезистивних характеристик експериментальних зразків, у тому числі, в умовах гідростатичного стиснення до 14 кбар та після їх електронного опромінення. Проведено аналіз отриманих експериментальних залежностей з урахуванням сучасних теоретичних моделей

Основними науковими та практичними результатами є такі:

1. Вперше встановлено, що межі «пружних» двійників є ефективними центрами пінінга ліній магнітного потоку в монокристалах досліджуваної сполуки.
2. Основними центрами закріплення вихорів є дислокаційні скупчення, які утворюються в вершинах «пружних» двійників. Лінії дислокацій розташовуються в площині двійників та, при збігу орієнтації магнітних вихорів та дислокаційних ліній, зменшується енергія вихорів, з'являється сила пінінга, 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 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню, прикладання високого тиску приводить

до фазового розшарування в базисній площині монокристалів $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$.

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 псевдоцілінний стан, і температурна залежність псевдоціліни 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 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$.
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 ($D \leq 10^{19} \text{ cm}^{-2}$) та допущання празеодимом до концентрацій $z \leq 0.39$, опромінення середніми дозами та допущання 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.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. J. G. Bednorz. Possible high T_c superconductivity in the Ba–La–Cu–O system / J. G. Bednorz, K. A. Mueller // *Physica B*. – 1986. – Vol. 64. – P. 189 – 193.
2. Wu M.K. Superconductivity at 93 K in a new mixed - phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure / M.K. Wu, J.R. Ashburn, C.J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C.W. Chu // *Phys. Rev. Lett.* – 1987. – Vol. 58, № 9. – P. 908 – 910.
3. Р. Эванс. Введение в кристаллохимию: научное издание / Р. К. Эванс // [Пер. с англ. Е. С. Макаров] Москва. Л.: «Госхимиздат», 1948. – 367 с.
4. K. Yvon. Crystal structures of high - T_c oxides / K. Yvon, M. Francois // *Physika B: Condensed Matter*. – 1989 – Vol. 76. – P 413 – 444.
5. M. Weller. Internal friction measurements on polycrystalline $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ / M. Weller, H. Jaeger, G. Kaiser, K. Schulze // *Physica C: Superconductivity*. – 1989. – Vol. 162.- P. 953.
6. H. Jaeger. XPS and SAM study of the high T_c superconductor $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ / S. Hofman, G. Kaiser, G. Petzow // *Physica C*. – 1988. – Vol. 153. – P. 133.
7. G. Fuchs. Effect of oxygen concentration on the superconducting transition of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ in high magnetic fields / G. Fuchs, A. Gladun and all // *Journal of the Less Common Metals*. – 1989. – Vol. 151. – P.103 – 107.
8. O. V. Abramov. Strong diamagnetism of normal and superconductivity / O. V. Abramov, O. M. Gradov, A. Yu. Kyrie // *Physica Scripta*. – 1992. – Vol. 46. – P. 76 – 82.
9. O. V. Abramov. Drift theory of strong diamagnetism and superconductivity of electron plasmas in conductor / O. V. Abramov, O. M. Gradov, A. Yu. Kyrie // *Physica Scripta*. – 1993. – Vol. 48. – P. 620 – 629.
10. К. В. Мицен. U – центры, перколяция и переход диэлектрик – металл в ВТСП / К. В. Мицен, О. М. Иваненко // *ЖЭТФ*. – 2000. – Т. 118. – С. 666.

11. К. В. Мицен. Фазовая диаграмма $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$ как ключ к пониманию природы ВТСП / К. В. Мицен, О. М. Иваненко // УФН. - 2004. - Т. 174, № 5 - С. 545 – 563.
12. Бойко Ю.И. Перераспределение ионов кислорода в монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, обусловленное внешним гидростатическим давлением / Ю.И. Бойко, В.В. Богданов, Р.В. Вовк, Г.Я. Хаджай, С.В. Савич // Физика низких температур. – 2018. – Т. 44, № 1. – С. 53 – 58.
13. Pressure dependens of T_c to 17 GPa with and without relaxation effects in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ / S. Sadewasser, J.S. Schilling, A.P. Paulicas, B.M. Veal // Phys. Rev. B. - 2000. -Vol. 61, № 1. - P.741 - 749.
14. M. A. Obolenskii. Resistive relaxation processes in oxygen - deficient single crystals of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ / M. A. Obolenskii, A. V. Bondarenko, R. V. Vovk, and A. A. Prodan // Low Temp. Phys. - 1997. - Vol. 23. - P 882.
15. H. A. Borges. Pressure study of the paraconductivity of high T_c superconductors / H. A. Borges and M. A. Continentino // Solid State Communications. - Vol. 80.- P 197.
16. A. Chroneos. Atomic Scale Models for $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ and $\text{R}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ Compounds ($\text{R}=\text{Y}$ and Lanthanides) / A. Chroneos, I.L. Goulatis, R.V. Vovk // Acta Chimica. Slovenica. - 2007. - Vol 54.- P 179.
17. L. Mendonca. Effects of pressure on the fluctuation conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ / L. Mendonca Ferreira et al. // Phys. Rev. B. – 2004. – Vol. 69.- P 212505.
18. R. V. Vovk. Incoherent transport and pseudo – gap in $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ // Journal Materials. Sci.: Materials in Electronics. - 2009. – Vol. 20. - P 858.
19. M. V. Sadovskii. Pseudogap in strongly correlated metals: A generalised dynamical mean-field theory approach / M. V. Sadovskii, I. A. Nekrasov, E. Z. Kuchinskii, Th. Pruschke, and V. I. Anisimov / Phys. Rev. B. – 2005 - Vol. 72. – 155105.

20. Ruslan V. Vovk. Transverse conductivity in $\text{Pr}_y\text{Y}_{1-y}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals in a wide range of praseodymium concentrations / Ruslan V. Vovk, Georgij Ya. Khadzhai, Oleksandr V. Dobrovolskiy // Appl. Phys. A. – 2014. - Vol. 117. – P. 997 - 1002.
21. M. Akhavan The question of Pr in HTSC // Physica B: Condensed Matter. - 2002.- Vol. 321, № 1 – 4. - P 265 – 282.
22. R. V. Vovk. Fluctuation conductivity of oxygen underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals / R. V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I. L. Goulatis, A. Chroneos // Physica B: Condensed Matter. - 2014.- Vol. 436.- P. 88 – 90.
23. A. L. Solovjov. Fluctuation conductivity and pseudogap in $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals under pressure with transport current flowing under an angle 45° to the twin boundaries / A. L. Solovjov, M. A. Tkachenko, R. V. Vovk, and A. Chroneos // Physica C: Superconductivity. – 2014. - Vol. 501.- P. 24 - 31.
24. R. V. Vovk. Temperature dependence of the pseudogap in $\text{Y}_{1-z}\text{Pr}_z\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals / R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, A. Chroneos // Journal of Materials Science: Materials in Electronics.- 2013. - Vol. – 24, № 4.- P. 1146 - 1149.
25. Babaev E. Nonperturbative XY-model approach to strong coupling superconductivity in two and three dimensions / E. Babaev, H. Kleinert // Phys. Rev. B. – 1999. – Vol. 59, № 18. – P. 12083 - 12089.
26. Vovk R.V. Influence of high pressure on the temperature-dependence of the pseudo-gap in oxygen deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals / R.V. Vovk , A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, I.L. Goulatis, A. Chroneos., V.M.P. Simoes // Modern Physics Letters B. – 2010. – Vol. 24, № 22 – P. 2295 - 2301.
27. P.W. Anderson. Hall effect in the two - dimensional Luttinger liquid // Phys. Rev. Lett. - 1991.- Vol. 67.- P. 2092.
28. R.V. Vovk. C - axis hopping conductivity in heavily Pr-doped YBCO single crystals / R.V. Vovk, N.R. Vovk, O.V. Shekhovtsov, I.L. Goulatis and A.

- Chronos // Supercond. Sci. Technol.- 2013. - Vol. 26 - P 085017
29. R. V. Vovk. Temperature dependence of the pseudogap in $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals Metal – to - insulator transition in $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals with various praseodymium contents / R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, A. Chronos // Physica C: Superconductivity. - 2013.- Vol. 485.- P. 89 - 91.
 30. Widdera K. Optical investigation of the metal - insulator transition in $NdBa_2Cu_3O_x$ a comparison with $YBa_2Cu_3O_x$ / K. Widdera, D. Bernera, H.P. Geserich, W. Widderb, H.F. Braunb // Physica C. – 1995. – Vol. 251, № 3 - 4. – P. 274 - 278.
 31. Vovk R.V. Effect of long aging on the resistivity properties of optimally doped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals / R.V. Vovk, N.R. Vovk, A.V. Samoilov, I.L. Goulatis, A. Chronos // Solid State Communications. – 2013. –Vol. 170. – P. 6 - 9.
 32. Vovk R. V. Relaxation of the normal electrical resistivity induced by high - pressure in strongly underdoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystal / R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, A. // Physica B. – 2012. – Vol. 407, № 22. – P. 4470 - 4472.
 33. R.V. Vovk. Transverse resistance in $Y_{1-y}Pr_yBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ at large praseodymium concentrations / R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy // Physica B.- 2014. - Vol. 451. - P. 84 – 86.
 34. R.V. Vovk. Effect of praseodymium on the electrical resistance of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals / R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I.L. Goulatis, A. Chronos // Solid State Communications. – 2014. - Volume 190, - P. 18 - 22.
 35. B. Batlog. Isotope Effect in the High - T_c Superconductors $Ba_2YCu_3O_7$ and $Ba_2EuCu_3O_7$ / B. Batlog, R. G. Cava and all // Phys. Rev. Letters. -1987.- Vol. 58.- P. 2333.

36. P.G. De Gennes, Superconductivity of Metals and Alloys, W.A. Benjamin, Inc., New York-Amsterdam (1966).
37. Kebede. Magnetic ordering and superconductivity in $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ / Kebede, C.S. Jee, J. Schwegler, J.E. Crow, T. Mihalisin, G.H. Myer, R.E. Salomon, and P. Schlottmann, M.V. Kuric, S.H. Bloom, and R.P. Guertin // Phys. Rev. B.- 1989. – Vol. 40, № 7.- P. 4453 – 4462.
38. А.И.Посаженникова, М.В.Садовский. Эффекты разупорядочения в сверхпроводниках с анизотропным спариванием: от куперовских пар к компактным бозонам // Письма ЖЭТФ. – 1997. – Т. - 65, №3, - С. 258 – 262.
39. Takita K. X-Ray Diffraction Study on the Crystal Structure of $Nd_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{7-\delta}$ / Takita K., Katoh H., Akinaga H., Nishino M., Ishigaki T., Asano H.// Japanese Journal of Applied Physics. - 1988.- Vol. 27, № 1. - P L57.
40. А. А. Варламов. Теория флуктуаций в сверхпроводниках / А. А. Варламов, А. И. Ларкин // М.: - Добросвет. - КДУ.- 2007. - 557 с.- С. 494 - 530.
41. L.G. Aslamasov. The influence of fluctuation pairing of electrons on the conductivity of normal metal / L.G. Aslamasov, A.I. Larkin. // Phys. Lett. A. – 1968. - Vol. 26, № 6. – P. 238 - 239.
42. Vovk R.V. Influence of longitudinal magnetic field on the fluctuation conductivity in slightly Al - doped $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ single crystals with a given topology of plane defects / Vovk R.V., Obolenskii M.A., Zavgorodniy A.A., Nazyrov Z.F., Goulatis I.L., Kruglyak V.V., Chroneos A // Modern Physics Letters B. – 2011.- V. 25, № 27.- P. 2131 - 2136.
43. M. Sarikaya. Structure and formation of twins in the orthorhombic $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ / M. Sarikaya, R. Kikuchi // Physica C.- 1988. - Vol. 152, № 2. - P 161 - 170.
44. M. A. Obolenskii. Localization effects and pseudogap state in $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ single crystals with different oxygen content / M. A. Obolenskii, R. V. Vovk,

- A. V. Bondarenko, and N. N. Chebotaev // Low Temp. Phys. - 2006 - Vol. 32, №6. - P. 746 - 752.
45. R.V. Vovk. Effect of defects on the basal-plane resistivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{Y}_{1-y}\text{Pr}_y\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals / R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Oleksandr V. Dobrovolskiy, Z.F. Nazyrov // Journal of Materials Science: Materials in Electronics.- 2015.- Vol. 26.- P. 1435 – 1440. DOI 10.1007/s10854-014-2558 – y
 46. Puchkov A.V., Fournier P., Basov D.N., Timusk T., Kapitulnik A., Kolesnikov N.N. Evolution of the Pseudogap State of High - T_c Superconductors with Doping // Phys. Rev. Lett. -1996. -V.77. -P.3212-3215.
 47. R. V. Vovk. Transverse conductivity in $\text{Pr}_y\text{Y}_{1-y}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals in a wide range of praseodymium concentrations / R. V. Vovk, G. Ya. Khadzhai, O. V. Dobrovolskiy // Appl. Phys. A. – 2014. – Vol. 117. – P. 997 - 1002.
 48. V. N. Zverev. Anisotropy of the superconducting properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals with reduced oxygen content / V. N. Zverev, D.V. Shovkun, I.G. Naumenko // Pisma Zh. Exp. Theor. Phys. Let. – 1998.- Vol. 68.- P 332 – 337.
 49. Vovk R.V. Electro - transport and structure of 1 – 2 - 3 HTSC single crystals with different plane defects topologies / Vovk R.V., Obolenskii M.A., Nazyrov Z.F., Goulatis I.L., Chroneos A. and Pinto Simoes V.M. // J. Mater. Sci. - Mater. Electron. - 2012.- Vol. 23.- P. 1255 -1259.
 50. Leridon B. Conductivity of Underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$: Evidence for Incoherent Pair Correlations in the Pseudogap Regime / Leridon B., Défossez A., Dumont J., Lesueur J. // Phys. Rev. Lett. - 2001.- Vol 87.- P. 197007 - 1.
 51. Stritzke B. Electron Irradiation of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ at low Temperatures // Materials Research Society Symposium - Proceedings. - 1988.- Vol. 99.- P. 491.
 52. Kirk M. A. Electron irradiation effects in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals / Kirk M. A., Baker M. C., Liu J. Z., Lam D. J., Weber H. W. //. High - T_c Superconductors. Plenum Press, New York, - 1988. - P. 59.

53. Summers G. P. Electron and proton radiation effects in the high temperature superconductor $\text{YBa}_{2-x}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / Summers G. P., Chrisey D. B., Maisch W. G., Stauss G. H., Burke E. A., Nastasi M., Tesmer J. R. // IEEE Trans. Nucl. Sci.- 1989. - Vol. 36, № 6.- P. 1840.
54. Marwick A. D. Resistivity changes and defect mobility in ion - irradiated $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ / Marwick A. D., Clark G. J., Yee D. S., Laibowitz R. B., Coleman G., Cuomo J. J. // Phys. Rev. B.- 1989.- Vol. 39, № 13.- P. 9061.
55. Renk K. Use of high T_c superconductors for far - infrared Fabry – Perot resonators / Renk K. F., Betz J., Schutzman J., Pruckl A., Brunner B., Lengferner H. // Appl. Phys. Lett. – 1990.- Vol. 57, № 20.- P. 2148.
56. Meyer O., Geerk J., Kroener T., Li Q., Linker G., Strehlau B., Xi X. X. // Materials Research Society Symposium Proceedings. 1990.- Vol. 157. - P. 493.
57. Watanabe H. The influence of 173 MeV Xe - ion irradiation on the microstructure of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films / Watanabe H., Kabius B., Urban K., Roas B., Klaumunzer S., Saemann-Ischenko G. // Physica C.- 1991.- Vol. 179, № 1. - P. 75 - 84.
58. Wei - Kan Chu. Radiation effects of high - T_c superconductors / Wei - Kan Chu, Jia Rui Liu, Zu Hua Zhang // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B.- 1991.- Vol. 59/60.- P. 1447 - 1457.
59. Basu S. N. Electron – beam - irradiation effects in bulk $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ / Basu S. N., Mitchell T. N., Nastasi M. // J. Appl. Phys.- 1991.- Vol. 69, № 5.- P. 3167.
60. H L Dewing. The effect of the superconducting phase transition on the near - infrared absorption of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / H L Dewing and E K H Salje // Superconductor Science and Technology.- 1992.- Vol. 5, № 2.- P. 105.
61. Frishherz M. C. Transmission electron microscopy of defect cascades in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ produced by ion irradiation / Frishherz M. C., Kirk M. A., Zhang G. P., Weber H. W. // Philosophical Magazine. A.- 1993.- Vol. 67, № 6.- P. 1347 - 1363.

62. Sauerzopf F. M. Fast neutron irradiation and flux pinning in single crystalline high temperature superconductors / Sauerzopf F. M., Wiesinger H. P., Kritchka W., Weber H. W., Frischherz M. C., Gerstenberg H. // Cryogenics.- 1993.- Vol. 33, № 1.- P. 8 - 13.
63. Baetzold R. C. Atomistic study of defects in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ // Phys. Rev. B.- 1990. - Vol. 42, № 1.- P. 56 - 67.
64. Fiory A. T. Effect of oxygen desorption on electrical transport in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / Fiory A. T., Gurvitch M., Cava R. J., Espinosa C. P. // Phys. Rev. B.- 1987.- Vol. 36, № 13.- P. 7262 - 7266.
65. Cava R. J. Single - phase 60 - K bulk superconductor in annealed $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{7-\delta}$ with correlated oxygen vacancies in the Cu-O chains / Cava R. J., Battlog B., Chen C. H., Rietman E. A., Zahurak S. M., Werder D. // Phys. Rev. B.-1987.- Vol. 36, № 10.- P. 5719 - 5723.
66. Jorgensen J. D. Structural properties of oxygen - deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / Jorgensen J. D., Veal B. W., Paulikas A. P., Nowicki L. J., Crabtree G. W., Claus H., Kwok W. K. // Phys. Rev. B.- 1990.- Vol. 41, № 4.- P. 1863 - 1868.
67. Veal B. W., Paulikas A. P. / Dependence of hole concentration on oxygen vacancy order in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. A chemical valence model // Physica C.-1991.- Vol. 184, № 4.- P. 321 - 331.
68. Poulsen H. V., Andersen N. H., Andersen J. V., Bohr H., Mouritsen O. G. / Relation between superconducting transition temperature and oxygen ordering in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ // Nature. 1991.- Vol. 349, № 6310.- P. 594 - 596.
69. Klinger M. I. / Possible ionization induced defect generation in layered crystals of copper oxides // Phys. Lett. A.- 1990.- Vol. 151, № 3/4.- P. 181.
70. Hauck J. Phase relations in pseudobinary $\text{Ba}_2\text{MCu}_3\text{O}_{6.5} + x(\text{M}=\text{Y}, \text{Gd})$ / J. Hauck, K. Bickmann, F. Zucht // J. Mater. Research. – 1987. – Vol. 2, № 6. – P. 762 - 764.

71. Бондаренко А.В. Синтез монокристаллов ВТСП на основе иттрия / Бондаренко А.В, Веркин Б.И., Зубарева М.О., Оболенский М.А. // Препринт ФТИНТ АН УССР. – 1988. – № 41. – С. 12.
72. Reyers R. The Structure of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and its Derivatives / R. Reyers, T.M. Shaw // Sol. St. Physics. – 1989. – Vol. 42. – P. 150 - 151.
73. Оболенский М.А. Локализация носителей и сверхпроводимость в монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ / М.А. Оболенский, А.В. Бондаренко, М.О. Зубарева // ФНТ. – 1989. – Т. 15, № 11. – С. 1152 - 1158.
74. Mitkevich V. V. Структура и сверхпроводящие свойства монокристалла YBaCuO / V. V. Mitkevich, S. A. Vasilchenko, A. V. Bondarenko, M. A. Obolenskij // FNT. – 1990. – Т. 16, № 1. – С. 117 - 119.
75. Schleger P. Thermodynamics of oxygen in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ between 450°C and 650°C / P. Schleger, W.N. Hardy, B.X. Yang // Physica C. – 1991. – Vol. 176. – P. 261 - 273.
76. Hong D.J.L. Effect of the temperature annealing on the oxygen content in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ superconductor / D.J.L. Hong, D.M. Smith // J. Am. Ceram. Soc. – 1991. – Vol. 74, № 5. – P. 1751 - 1759.
77. Akhavan M. Angular dependence of switching field of magnetic recording particles / M. Akhavan, A. Sebt // Physica B. – 2002. – Vol. 321, № 1 - 4. – P. 120 - 123.
78. Р.В. Вовк, А.Л. Соловьёв / Электротранспорт и псевдощель в ВТСП-соединениях системы 1-2-3 в условиях всестороннего сжатия // (Обзор) ФНТ 2018.- Т.44, №2. - С.111-153.
79. S.I. Bondarenko et al. / High-temperature superconductors of the family $(\text{RE})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and their application (Review Article) // Low Temperature Physics – 2017. – Vol. 43, - P.101125.
80. Кристаллохімічна структура і електрична провідність ВТНП – купратів в умовах варіювання дефектного складу і впливу високоенергетичного опромінення (літературний огляд) / Г.Я. Хаджай, Ю.В. Литвинов, Р.В.

- Вовк, Н.М. Завгородня, В.Ю. Гресь, К.А. Котвицька, І.М. Чурсіна, О.В. Боцула, К.Г. Приходько, С.М. Камчатна // Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 30, 2019. С.45 – 63.
81. D H A Blank, H Kruidhof and J Flokstra / Preparation of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ by citrate synthesis and pyrolysis // Journal of Physics D: Applied Physics.- 1988.- Vol.- 21, №.1.- P. 226 – 2
 82. Sozeri H., Ozkan H., Ghazanfari N. / Properties of YBCO superconductors prepared by ammonium nitrate melt and solid-state reaction methods // Journal of alloys and compounds.- 2007 – Vol.- 428. – P. 1–7.
 83. Синтез ВТНП кераміки YBCO «золь – гель» методом / Набойченко О.С., Савич Б.С., Литвинов Ю.В. // «Фізичні явища в твердих тілах» IV Міжнародна наукова конференція, 3 – 5 грудня 2019: книга тез. – Харків. – С.134.
 84. Бондаренко А.В. Синтез монокристаллов ВТСП на основе иттрия / Бондаренко А.В, Веркин Б.И., Зубарева М.О., Оболенский М.А. // Препринт ФТИНТ АН УССР. – 1988. – № 41. – С. 12.
 85. Отримання досконалих бездомішкових монокристалів високотемпературних надпровідників $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / С.М. Камчатна, Ю.В. Литвинов, Р.В. Вовк. // Нанорозмірні системи: будова, властивості, технології (НАНСИС-2019): Тези VI Наук. конф. (Київ, 4 – 6 грудня 2019 р.) / редкол.: А. Г. Наумовець [та ін.]. – Київ, 2019. – С. 231
 86. М.А.Оболенский, А.В.Бондаренко, М.О.Зубарева / Локализация носителей и сверхпроводимость в монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ // ФНТ, - 1989.- Т.15, №11.- С.1152-1158.
 87. Ruixing Liangac, Douglas A. Bonnbc Walter N. Hardybc / Growth of YBCO single crystals by the self-flux technique // Philosophical Magazine.- 2012.- Vol. 92, №.19 – 21. - P. 2563 – 2581.

88. Миткевич В.В. Структура и сверхпроводящие свойства монокристалла YBaCuO / В.В. Миткевич, С.А. Васильченко, А.В. Бондаренко, М.А. Оболенский // ФНТ. – 1990. – Т. 16, № 1. – С. 117 - 119.
89. H.C. Montgomery. Method for measuring electrical resistivity of anisotropic materials. Journal of applied physics. 1971.- Vol. 42, № 7.- P. 2971 - 2975.
90. Schleger P. Thermodynamics of oxygen in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ between 450°C and 650°C / P. Schleger, W.N. Hardy, B.X. Yang // Physica C. – 1991. – Vol. 176. – P. 261 - 273.
91. Hong D.J.L. Effect of the temperature annealing on the oxygen content in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ superconductor / D.J.L. Hong, D.M. Smith // J. Am. Ceram. Soc. – 1991. – Vol. 74, № 5. – P. 1751-1759.
92. W.E.Lawrence and S.Doniach, Proceedings of the 12th International Conference on Low Temperature Physics, Kyoto, Japan, 1970, edited by E. Kanda /Keigaku, Tokyo// 1970. - P. 361.
93. J. B. Bieri, K. Maki and R. S. Thompson / Nonlocal effect in magnetoconductivity of high - T_c superconductors // Phys. Rev.- B 1991.- Vol. 44.- 4709 - 4712.
94. Akhavan M. Angular dependence of switching field of magnetic recording particles / M. Akhavan, A. Sebt // Physica B. – 2002. – Vol. 321, № 1 - 4. – P. 120 - 123.
95. Effect of pressure on paraconductivity in $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals with oxygen deficiency / K.V. Tiutierieva, Ya.V. Dovgoplova, O.O. Chernovol-Tkachenko, I.L. Ivrij, R.V. Vovk, S.I. Prihod'ko // Functional Materials. — 2016. — Т. 23, № 3. — С. 370-377. — Бібліогр.: 68 назв. — англ.
96. Bondarenko, A.V., Prodan, A.A., Obolenskii, M.A., Vovk R.V., Arouri, T.R. / Anisotropy of the flux creep in the motion of vortices along twin-boundary planes in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals // Low Temperature Physics.- 2001.- Vol. 27, № 5.- P. 339 - 344.

97. A.L. Solovyov. Specific temperature dependence of pseudogap in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nanolayers / A.L. Solovyov L.V. Omelchenko, V.B. Stepanov, R.V. Vovk, H.-U. Habermeier, P. Przyslupski and K. Rogacki // *Physical Review. B.* - 2016.- 94.- Vol. 22.- P. 224505 – 224506.
98. Г.Я. Хаджай. Кристалохімічна структура і електрична провідність ВТНП – купратів в умовах варіювання дефектного складу і впливу високоенергетичного опромінення (літературний огляд) / Г.Я. Хаджай, Ю.В. Литвинов, Р.В. Вовк, Н.М. Завгородня, В.Ю. Гресь, К.А. Котвицька, І.М. Чурсіна, О.В. Боцула, К.Г. Приходько, С.М. Камчатна // *Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика»*. -2019.- Вип. 30.- С.45 – 63.
99. J. B. Bieri. Nonlocal effect in magnetoconductivity of high - T_c superconductor / J. B. Bieri, K. Maki and R. S. Thompson // *Phys. Rev. B.* - 1991.- Vol. 44.- P 4709.
100. Colquitt L. J. Instantaneous Direct - Display System of Plasma Parameters by Means of Triple Probe // *Appl. Phys.* – 1965.- Vol. 36.- P. 2454.
101. A.I. Belyaeva, S.V. Vojtsenya, V.P. Yuriyev, M.A. Obolenskii, A.V. Bondarenko, *Solid State Commun*, **85**, № 5, 427 (1993).
102. Conductivity anisotropy and pseudogap state evolution in $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals of a present flat defect topology at decreasing oxygen concentration / M.A. Obolenskii, R.V. Vovk, A.V. Bondarenko, I.L. Goulatis // *Functional Materials*. — 2006. — Т. 13, № 4. — С. 645-651. — Бібліогр.: 17 назв. — **АНГЛ.**
103. G. Lacay, R. Hermann, G. Kaestener, *Physica C*, **192**, 207 (1992).
104. R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, A.A.Zavgorodniy, A.V.Bondarenko, I.L.Goulatis, A.I.Chroneos, *J. Mater Sci: Mater in Electron* **18**, 811 (2007).
105. V.V. Kvardakov, V.A. Somenkov, S.Sh. Shilshtein, *SFHT* **5**, №4, 624 (1992).
106. R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, A. Chroneos, *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* **23**, 1255 (2012) DOI 10.1007/s10854-011-0582-8.

107. W. K. Kwok, S. Fleshler, U. Welp, V. M. Vinokur, et.al., Phys. Rev. Lett. **69**, №23, 3370 (1992).
108. A.V.Bondarenko, A.A.Prodan, M.A.Obolenskii, R.V.Vovk, T.R.Arouri., Low Temperature Physics **27**, N5, 339 (2001).
109. V.V. Moshalkov, N.A. Samarin, Yu.D. Tret'yakov, A.R. Kaul, I.E. Graboj, Yu.G. Metlin, FNT **14**, №9, 988 (1988).
110. R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, A. A. Zavgorodniy, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, V.V. Kruglyak, A. Chroneos, Modern Physics Letters B (MPLB), **25 (27)**, 2131 (2011).
111. B. S. Bokshtein, S. Z. Bokshtein, A. A. Zhuhovickij Termodinamika i kimetika diffuzii v tverdyh telah, M.:«Metallurgiya» (1974) [in russian].
112. R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, A.A.Zavgorodniy, A.V.Bondarenko, I.L.Goulatis, A.V.Samoilov, A.I.Chroneos, V.M. Pinto Simoes, J. Alloys and Compounds **464**, 58 (2008).
113. G. Blatter, M.V. Feigel'man, V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin, V.M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. **66**, №4, 1125 (1994).
114. A.V.Bondarenko, V.A.Shklovskij, M.A.Obolenskii, R.V.Vovk, and A.A.Prodan, Phys.Rev.B, N1, 2445 (1998).
115. R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, A.A.Zavgorodniy, I.L.Goulatis, A.I.Chroneos, V.M. Pinto Simoes, J Mater Sci: Mater in Electron, **20**, 858 (2009) DOI: 10.1007/s10854-008-9806-y.
116. A.V.Bondarenko, V.A.Shklovskij, R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, and A.A.Prodan, Low Temp. Phys., **23(12)**, 962 (1997).
117. V.M. Pan, V.L. Svechnikov, V.F. Solovjov, V.F. Taborov, H.W. Zandbergen, Supercond. Sci. Technol., **5**, № 12, 707 (1992).
118. R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, M. A. Obolenskii, I. L. Goulatis, A. Chroneos, V.M. Pinto Simoes, Journal of Alloys and Compounds, **509**, 4553 (2011).
119. A.V.Bondarenko, A.A.Prodan, M.A.Obolenskii, R.V.Vovk, D.Niarchos, M.Pissas, G.Kallias, T.R.Arouri, Physica C, **655-657**, 317 (1999).

120. V.S. Boyko, A.M. Kosevich, Yu.A. Kosevich, *Fizika Nizkih Temperatur* **17**, 3 (1991) [in russian].
121. V. Bukkel *Sverhprovodimost*, Izdatelstvo «Mir», Moskva, , 366 (1975) [in russian].
122. G. Tendeloo, H. Zanderbergen, S. Amelinkx, *Solid State Commun.*, **63**, 389 (1987).
123. H. Hoff, A. Singh, C. Pande, *Appl. Phys. Letters*, **52**, 669 (1988).
124. A. Brokman, M. Palhan, M. Weger, *Physica C*, **153 – 155**, 1653 (1988).
125. U. Schafer, G. Muller, H. Jaeger, K. Schulze, *Pract. Metallography*, **25**, 610 (1988).
126. H. Theuss, H. Kronmuller, *Phys., C*, **177**, 253 (1991).
127. T. Matsushita, *Cryogenics* **30**, 817 (1990).
128. Yu. Boyko, P. Majewski, F. Aldinger, *Cryst. Res. Technol.*, **29**, 1109 (1994).
129. A. M. Kosevich, *Dislokacii v teorii uprugosti*, «Naukova dumka», Kiev (1978) [in russian].
130. Yu. Boyko, H. Jaeger, M. Aslan, K. Shulze, G. Petzov, *Materials Letters*, **11**, 207 (1991).
131. Zavgorodniy, A. A., Vovk, R. V., Obolenskii, M. A., Nazyrov, Z. F., Roshko, S., & Pinto Simoes, V. M. (2011). Relaxation of electrical resistance and phase separation in $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Re= Y, Ho) single crystals strongly underdoped with oxygen. *Functional Materials*.
132. Yu. Boyko, P. Majewski, F. Aldinger, *Phys. Stat. Sol. (b)* **184**, 1 (1994).
133. M. Aslan, H. Jaeger, K. Shulze, Frisch A., Petzow G., *J. Am. Ceram. Soc.*, **73** (2), 450 (1990).
134. Tiutierieva, K. V., Zavgorodnya, N. M., Dovgopolova, Y. V., Tkachenko, O. C., Vovk, R. V., & Chroneos, A. (2016). Effect of longitudinal magnetic field on the excess conductivity of monodomain YBa Cu O. *Functional materials*, **2**, 171.

135. T.K.Worthington, M.P.A.Fisher, D.A.Huse, J.Toner, A.D.Merrick, T.Label, C.A.Field, F.Holdtzberg, Phys. Rev. B46 (1992) 11854.
136. C.Marchetti and D.R.Nelson, Phys. Rev. B42 (1990) 1910
137. G.Blatter, J.Rhyner, V.M.Vinokur, Phys. Rev. B43 (1991) 7826
138. T.Nattermann, Phys. Rev. Lett. 64 (1990) 2454
139. P.W.Anderson and Y.B.Kim, Rev.Mod. Phys. 36 (1964) 39
140. A.P.Malozemoff, T.K.Worthington, E.Zeldov, N.C.Yen, M.W.McElfresh, and F.Holtzberg, Proc. Symp. Strong Correlation and Superconductivity, (May, 1989, Japan) p.349
141. Kislitsa, M. V., Khadzhai, G. Y., Vovk, R. V., Matsepulin, A. V., & Pivovar, M. E. (2020). Transverse conductivity of Y. *Functional materials*, 4, 653.
142. R.V.Vovk / Effect of flat defects on scattering of normal and fluctuation carriers in $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Re=Y, Ho) single crystals // Physics and Chemistry of Solid State V.8, №3 (2007) p. 500-503.
143. R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, A.V.Bondarenko, I.L.Goulatis, A.I.Chroneos./ Excess Conductivity of $\text{Y}_{0.95}\text{Pr}_{0.05}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ Single Crystals./ Acta Physica Polonica A, v.111, №1, p.129-133 (2007).
144. Vovk, R.V., Obolenskii, M.A., Zavgorodniy, A.A., Goulatis, I.L.,Chroneos, A., Biletskiy, E.V. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 485(1-2).
145. Vovk, R.V., Zavgorodniy, A.A., Obolenskii, M.A., Chroneos, A., Pinto Simoes, V.M. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2011, 22(1), pp. 20–24.
146. Vovk, R.V., Vovk, N.R., Dobrovolskiy, O.V. Journal of Low Temperature Physics, 2014, 175(3-4), pp. 614–630.
147. A. L. Solovjov, E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, R.V. Vovk, I. L. Goulatis, A. Chroneos, Scientific Reports 9, 9274 (2019). <https://doi.org/10.1038/s41598-019-45286-w>.
148. R.V.Vovk, M.A.Obolenskii, A.V.Bondarenko, I.L.Goulatis, M.R.Levy and A.I.Chroneos./ Scattering Processes of Normal and Fluctuating Carriers in

- ReBa₂Cu₃O_{7-δ} (Re=Y,Ho) Single Crystals with Unidirectional Twin Boundaries.// *Acta Physica Polonica A*, v.111, №1, p.123-128 (2007).
149. A.A.Zavgorodniy, R.V.Vovk, M.A.Obolenskii / Relaxation of electrical resistance and phase separation in ReBa₂Cu₃O_{7-δ} (Re = Y, Ho) single crystals strongly underdoped with oxygen // *Functional Materials* 18, №1 (2011) p. 56-65.
 150. Zavgorodniy, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.V. Samoilov, M.G. Revyakina, E.V. Biletskiy, V.M. Pinto Simoes / Metal – dielectric transition and temperature dependence of the pseudo-gap in YBa₂Cu₃O_{7-δ} single crystals: effect of pressure and oxygen nonstoichiometry. // *Functional materials* 17, №2, p.143-150 (2010)
 151. Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, R.V. Vovk, B.V. Grinyov. *Funct. Mater.*, 27(4), 703 (2020).
 152. Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, R.V. Vovk, B.V. Grinyov. *Funct. Mater.*, 28(3), 415 (2021).
 153. M.A. Obolenskiy, D.D. Balla, A.A. Zavgorodniy, R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, I. L. Goulatis, M.Januszczyk, J.N.Latosińska / Compression changes of the electrical resistance and of the critical temperature in Nb_{1-x}Se₂Sn_x single crystals. // *Acta Physica Polonica A* Vol.122 (2012) №1 p.1111-1113
 154. Chroneos A., Vovk R.V., Goulatis I. / Oxygen self-diffusion in apatites // *Chemical Monthly* (2012) –V.143. –P.345-353. DOI 10.1007/s00706-011-0696-y REVIEW.
 155. R.V. Vovk, M.A. Obolenskiy, A.A. Zavgorodniy, D.A. Lotnyk, K.A. Kotvitskaya. *Physica B* 404, 3516 (2009).
 156. R.V. Vovk, A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, A.V.Samoilov, E.V. Biletskiy / Evolution of the pseudogap state in HTSC-single crystals of the 1-2-3 system at complete or partial replacement of their constituents // *Functional materials* 16, №3, p.32-39 (2009).

157. R.V. Vovk , V.M. Gvozdkov, M.A. Obolenskii, Z.F. Nazyrov, V.V. Kruglyak / Magneto-resistance and intrinsic pinning of vortices in the untwined $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals with a small deviation from the oxygen stoichiometry // *Acta Physica Polonica A*, Vol.121 (2012) №5-6 p.1191-1194.
158. R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, V.V. Kruglyak, F.Y. Ogrin / Anisotropy of magnetoresistance in untwinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // *Functional Materials* 19, №2 (2012) p. 157-162.
159. R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, L. I. Goulatis, A. Chroneos // *Journal of Low Temperature Physics* (2013) Volume 170, Issue 3-4, pp 216-222 DOI 10.1007/s10909-012-0755-8
160. G.Ya. Khadzhai, N.R. Vovk, R.V. Vovk. *Low Temperature Physics*, **40**, 488 (2014); <https://doi.org/10.1063/1.4881197>
161. R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, G.Ya. Khadzhai, V.M. Pinto Simoes, V.V. Kruglyak / Effect of transverse and longitudinal magnetic field on the excess conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-z}\text{Al}_z\text{O}_{7-\delta}$ single crystals with a given topology of plane defects // *Functional Materials* 20, №2 (2013) p. 208-216.
162. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, Z.F. Nazyrov. *Current Applied Physics*, 14, 1779 (2014).
163. R.V. Vovk, N.R. Vovk, A.V. Samoilov, I.L. Goulatis, A. Chroneos. *Solid State Communications* 170, 6 (2013); <http://dx.doi.org/10.1016/j.ssc.2013.07.011>.
164. A.L. Solovjov, E.V. Petrenko, L.V. Omelchenko, R.V. Vovk, I.L. Goulatis and A. Chroneos, *Scientific Reports* 9: 9274 (2019).
165. D.A. Lotnyk, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, J. Kováč, M. Kaňuchová, M. Šefčíková, V. Antal, P. Diko, A. Feher, A. Chroneos. *Journal of Low Temperature Physics*, v. 161, № 3-4, 387 (2010).
166. D.D. Balla, A.V. Bondarenko, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, and A.A. Prodan. *Low Temp. Phys.* **23**, 777 (1997).

167. A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, E.V. Petrenko, R.V. Vovk, V.V. Khotkevych, and A. Chroneos. Scientific Reports (2019) 9:20424.
168. R.P. Gupta, M. Gupta, Phys. Rev. B 51, 11760-11766 (1995).
169. D.A. Lotnik, A.V. Sokolov, R.V. Vovk / Structure lamination influence on the magnetic flux dynamics in the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // Functional Materials 21, №1 (2014) p. 5-9.
170. S. Sadewasser, J.S. Schilling, A.P. Paulicas, B.M. Veal. Phys. Rev. B, v.61, № 1, 741 (2000)
171. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, A. Chroneos. Physica B, 407, 4470 (2012).
172. W.-H. Li, S.Y. Wu, Y.-C. Lin, K.C. Lee, J.W. Lynn, S.S. Weng, I.P. Hong, J.-Y. Lin, and H.D. Yang. Phys. Rev. B, v. 60 4212 (1999).
173. R.V. Vovk, N.R. Vovk, A.V. Samoilov / Effect of praseodymium doping on electroresistivity along c-axis in $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // Functional Materials 20, №4 (2013) p. 457-461.
174. G.Ya. Khadzhai, A. Chroneos, I.L. Goulatis, S.N. Kamchatnaya, A.L. Chikina, N.R. Vovk, R.V. Vovk. Journal of Low Temperature Physics, v. 203, 430 (2021) <https://doi.org/10.1007/s10909-021-02590-y>.
175. J.M. Ziman. Electrons and Phonons. Oxford at the Clarendon Press. 1960, 488 p.
176. I.V. Alexandrov, A.F. Goncharov, S.M. Stishov. JETP Letters, v. **47** (7), 428 (1988)
177. M.A. Ivanov, and V.M. Loktev. Low Temperature Physics, **25**, 996 (1999); <https://doi.org/10.1063/1.593854>
178. G.Ya. Khadzhai, C.R. Vovk and R.V. Vovk. Low Temperature Physics, **43**, 1119 (2017); <https://doi.org/10.1063/1.5004458>
179. S. Kirkpatrick, Rev. Mod. Phys. 45, 574 (1973).
180. J. Maza and F. Vidal, Phys. Rev. B, v. 43, № 13, 10560 (1991) <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.43.10560>

181. Y.I. Boiko, V.V. Bogdanov, R.V. Vovk, A.G. Ort, Yu.V. Litvinov / Single-file diffusion in oxygen underdoped $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (Re = Y, Ho) single crystals // *Functional Materials*, 24, №4 (2017), p. 527-529.
182. G. Lacayc, R. Hermann, G. Kaestener. *Physica C*, v.192, 207 (1992).
183. B.N. Rolov, V.E. Jurkiewicz. *Physics blurred phase transitions*. In Russian, State Rostov University, 1983. 319 p.
184. W. Känzig. *Ferroelectrics and Antiferroelectrics*. New York: Academic Press, 1957, 197 p.
185. A.F.Prekul, V.A. Rassokhin, S.V. Yartsev. *JETP Letters*, v. 38, № 7, 408 (1983).
186. R.V. Vovk, C.D.H. Williams and A.F.G. Wyatt. *Phys. Rev. B* 69. 144524 (2004).
187. A.J. Matthews, K.V. Kavokin, A. Usher, M.E. Portnoi, M. Zhu, J.D. Gething, M. Elliot, W.G. Herrenden-Harker, K. Phillips, D.A. Ritchie, M.B. Simmons, C.B. Sorensen, O.P. Hansen, O.A. Mironov, M. Myronov, D.R. Leadley, and M. Henini, *Phys. Rev. B* **70**, 075317 (2004).
188. D.H.S. Smith, R.V. Vovk, C.D.H. Williams, and A.F.G. Wyatt. *Phys. Rev. B*, v. 72, № 5, 054506 (1-7) (2005).
189. P.G. Curran, V.V. Khotkevych, S.J. Bending, A.S. Gibbs, S.L. Lee, and A.P. Mackenzie, *Phys. Rev. B* 84, 104507 (2011).
190. Edwin Gevorkyan, Volodymyr Mechnik, Mykola Bondarenko, Ruslan Vovk, Sergiy Lytovchenko, Volodymyr Chishkala, Olga Melnik / Peculiarities of Obtaining Diamond–(Fe-Cu-Ni-Sn) Composite Materials by Hot Pressing // *Functional Materials*, 24, №1 (2017), p. 31-45.
191. L. Colquit. *J. Appl. Phys.* v. 36 (8), 2454 (1965)
<https://doi.org/10.1063/1.1714510>
192. T. Aisaka and M. Shimizu. *J. Phys. Soc. Japan*, v. 28, № 3, 646 (1970)
<https://doi.org/10.1143/JPSJ.28.646>

193. Roth G., Heger G., Schweiss P. Copper deficiency in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ // Zh. Physica. -1988. -V.152, №4. -P.329-334.
194. Victor Jaja N., Natarajan S., Subba Rao G.V. Sol. St. Commun., 1988, v.67, N1, p.51-54.
195. G.Ya. Khadzhai, N.R. Vovk, and R.V. Vovk. Fiz. Nizk. Temp. 47, **388** (2021); <https://doi.org/10.1063/10.0004231>
196. V.P. Glazkov, I.N. Goncharenko, V.A. Somenkov. Solid State Physics, vol. 30, № 12, (1988).
197. N.A. Azarenkov, V.N. Voevodin, R.V. Vovk, S.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, V.V. Sklyar / Effect of electron irradiation on excess conductivity of single $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ crystals // Functional Materials, 25, №2 (2018), p.234-240.
198. H. Takahashi, N. Mori, T. Nakanishi, T. Nagata, M. Uehara, J. Akimitsu, K. Kinoshita, N. Motoyama, H. Eisaki, and S. Uchida. Rev. High Pressure Sci. Technol., v. 7, 388 (1998) <https://doi.org/10.4131/jshpreview.7.388>
199. Welp U., Flesher R., Kwok W.K. et al. (8 auth.) Effect of gold impurities on the superconducting fluctuations and the upper critical field of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals // Phys. Rev. B. -1993.- V. 47, №18. -P.12369-12373.
200. R.C. Dynes. Solid State Communications, V. 10, № 7, 615 (1972). [https://doi.org/10.1016/0038-1098\(72\)90603-5](https://doi.org/10.1016/0038-1098(72)90603-5)
201. P.B. Allen and R.C. Dynes. Phys. Rev. B, V. 12, № 3, 905 (1975)
202. L.K. Aminov, V.A. Ivanshin, I.N. Kurkin, M.R. Gafurov, I.Kh. Salikhov, H. Keller, M. Gutmann. Physica C 349, 30 (2001).
203. E. Babaev and H. Kleinert, *Phys. Rev. B* **59** (1999) 12083.
204. Reyers R., Show T.M. The Structure of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ and its Derivatives // Sol. St. Physics. -1989. -V.42. -P.150-151.
205. Д.Д. Прокофьев, М.П. Волков, Ю.А. Бойков // ФТТ. - 2003. – Т.45, №7. - С.1168-1176.

206. Selvamanickam V., Mironova M., Son S. Flux pinning by dislocation in deformed melt-textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ superconductors // *Physica C*. -1993. - V.208. -P.238-244.
207. G. D. Chryssikos, E. I. Kamitsos, J. A. Kapoutsis, A. P. Patsis, V. Psycharis, A. Koufoudakis, C. Mitros, G. Kallias, E. Gamari-Seale and D. Niarchos, *Physica C* **254** (1995) 44.
208. Hauck J., Bickmann K., Zucht F. Phase relations in pseudobinary $\text{Ba}_2\text{MeCu}_3\text{O}_x$ // *J. Mater. Science*. -1987. -V.2, №5. -P.825-827.
209. Van Dover R.B., Schneemeyer L.F., Waszczak J.V. et al. Extraordinary effect of aluminum substitution on the upper critical field of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ // *Phys Rev, B*. - 1989. - V.39. -P.2932-2935.
210. Radousky H.B. A review of the superconducting and normal state properties of $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ // *J.Mater. Res*. -1992. -V.7, №7. -P.1917-1955.
211. R.V. Vovk, A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, et al., *Modern Physics Letters B*, **24**, 2295 (2010). <http://dx.doi.org/10.1142/S0217984910024675>
212. Schleger P., Hardy W.N., Yang B.X. Thermodynamics of oxygen in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ between 450 °C and 650 °C // *Physica C*. -1991. –V.176. -P.261-273.
213. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I.L. Goulatis, A. Chroneos, *Physica B: Condensed Matter*, **436**, 88 (2014).
<https://doi.org/10.1016/j.physb.2013.11.056>
214. Menegotto Costa R., Pureur P., Gusmao M., Senoussi S., Behnia K. Fluctuation magnetoconductivity in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$: Gaussian, three-dimensional XY, beyond three-dimensional XY, and lowest-Landau-level scaling // *Phys. Rev. B*. -2001. - V.64. -P.214513.
215. A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, V.B. Stepanov, et al., *Phys. Rev. B*, **94**, 224505-1 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.224505
216. A. L. Solovjov, H.-U. Habermeier, T. Haage, *Low Temp. Phys.*, **28**, 17 (2002).

217. Claus H., Yang S., Paulicas A.P. et al. (5 auth.). Atomic short-range order in oxygen-deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ // *Physica*. -1990. -V.C.171, №1,2. -P.205-210.
218. Widder K., Zibold A., Merz M., Getherich H.P., Erb A., Muller-Vogt G. Optical investigations of single-domain crystals // *Physica C*. -1994. -V.232, №1,2. -P.82-88.
219. Veal B.W, You H., Paulicas A.P. et al. (6 auth.). Time-dependent superconducting behavior of oxygen-deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$: Possible annealing of oxygen vacancies at 300 K // *Phys. Rev. B*. -1990. -V.42, № 3. -P.4770-4773.
220. L.G. Aslamazov, A.I. Larkin, *Phys. Lett.*, 26A, **238** (1968).
221. Reggani L., Vaglio R., Varlamov A.A. Fluctuation conductivity of layered high- T_c superconductors: A theoretical analysis of recent experiments // *Phys. Rev. B*. -1991. - V.44 (17). -P.9541-9546.
222. Kircher J., Cardona M., Zibold A., et al. (5 auth.). Optical investigations of room-temperature chain ordering in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ // *Phys. Rev. B*. -1993. -V. 48, № 7. -P. 9684-9688.
223. Heinmaa I., Lutgemeier H., Pekker, S., Krabbes, G., Buchgeister M. Copper NMR and NQR in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ and $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ with x between 6 and 7. A study of the oxygen ordering // *Applied Magnetic Resonance*. -1992. -V.3, №.3-4. -P.689-709.
224. N.A. Azarenkov, V.N. Voevodin, R.V. Vovk, et al., *J. Mater Sci.: Mater. Electron.*, **28**, 15886, (2017).
225. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, *J. Mater Sci.: Mater. Electron.*, **30**, 4766 (2019). <https://doi.org/10.1007/s10854-019-00770-x>
226. Sandu V., Cimpoiasu E., Katuwal T., LiS., Maple M.B., Almasan C.C. Evidence for Vortices in the Pseudogap Region of $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ from Angular Magnetoresistivity Measurements // *Phys. Rev. Lett.* -2004. -V.93, №17, -P.177005(1-4).

227. Hor P.H. et al. Irradiation effects on flux pinning and J_c in high temperature conductors // *Physica C*. -1991. -V.185-189. -P.2311-2312.
228. V.I. Beletskiy, G.Ya. Khadzhai, R.V. Vovk, et al., *J. Mater Sci.: Mater. Electron.*, **30**, 6688, (2019). <https://doi.org/10.1007/s10854-019-00978-x>.
229. Vovk R.V., Obolenskii M.A., Bondarenko A.V. Excess conductivity and pseudogap state in $YBa_2Cu_{3-y}Al_yO_{7-\delta}$ single crystals with a system of unidirectional twin boundaries // *Functional Materials*. -2007. -V.14, №1. -P.32-36.
230. Krasnov V.M., Yurgens A., Winkler D., Delsing P., Claeson T. Evidence for Coexistence of the Superconducting Gap and the Pseudogap in Bi-2212 from Intrinsic Tunneling Spectroscopy // *Phys. Rev. Lett.* -2000. -84, №25. - P.5860-5863.
231. O.O. Oduleye, S. J. Penn, N. Alford., et al., *IEEE Trans. Appl. Supercond*, **9**, 2621 (1999).
232. Q. Wang, G.A. Saunders, H.J. Liu, et al., *Phys. Rev. B*, **55**, 8529 (1997).
233. Obolenskii M.A., Vovk R.V., Bondarenko A.V. Effect of twin boundaries on scattering processes of normal and fluctuating carriers in $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals // *Functional Materials*. -2006. -V.13, №1. -P.35-38.
234. A. Chroneos, D.D. Kolesnikov, I.A. Taranova, et al., *J. Mater Sci.: Mater. Electron.*, **31**, 19429 (2020). <https://doi.org/10.1007/s10854-020-04476-3>
235. N.A. Azarenkov, V.N. Voevodin, R.V. Vovk, et al., VANT ISSN 1562-6016. PAST. 2 (126), 9 (2020).
236. G.Ya. Khadzhai, R.V. Vovk, O.V. Dobrovolskiy, *Physica B: Condensed Matter*, **566**, 121 (2019).
237. G.Ya.Khadzhai, R.V.Vovk, Z.F.Nazyrov, O.V.Dobrovolskiy, *Physica C*, **565**, 1353507 (2019).
238. G.Ya. Khadzhai, Yu.V. Litvinov, R.V. Vovk, et al., *J. Mater Sci.: Mater. Electron.*, **29**, 7725 (2018).

239. Krasnov V.M., Kovalev A.E., Yurgens A., Winkler D. Magnetic Field Dependence of the Superconducting Gap and the Pseudogap in Bi2212 and HgBr₂-Bi2212, Studied by Intrinsic Tunneling Spectroscopy // *Phys. Rev. Lett.* -2001. -V.86, №12. -P.2657-2660.
240. G.Ya. Khadzhai, V.V. Sklyar, R.V. Vovk, *Low Temp. Phys.*, **48**, 271 (2022).
241. Fauqué B., Sidis Y., Hinkov V., Pailhès S., Lin C.T., Chaud X., Bourges P. Magnetic order in the pseudogap phase of high - T_c superconductors // *Phys. Rev. Lett.* -2006. -V.96, №19. -P.197001 (1-4).
242. J.M. Valles, Jr., A.E. White, K.T. Short, et al., *Phys. Rev. B*, **39**, 11599 (1989). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.39.11599>
243. M.C. Frishherz, M.A. Kirk, G.P. Zhang, H.W. Weber, *Philosophical Magazine A*, **67**, 1347 (1993).

ДОДАТОК
СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ:
Наукові праці у фахових виданнях України, що індексуються в міжнародних наукометричних базах:

1. G.Ya. Khadzhai, V.Yu. Gres, **Junyi Du**, Z.F. Nazyrov, A.L. Solovyov, N.R. Vovk, R.V. Vovk / Influence of pressure on the critical temperature and resistivity of $Y_{0.77}Pr_{0.23}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals // *Functional Materials*, 2022, 29(3), стр. 346-358.
2. Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, N.R. Vovk, A.O. Komisarov, **Junyi Du**, Z.F. Nazyrov, A.V. Samoylov, E.S. Gevorkyan, R.V. Vovk. // Пружні та непружні двійники та пінінг ліній магнітного потоку (вихорів) в монокристалах $YBa_2Cu_3O_{7-x}$. *Fizika Nizkikh Temperatur*, 2023, 49(4), 444–451.

Наукові праці у фахових виданнях України

3. N.A. Azarenkov, G.Ya. Khadzhai, A.V. Matsepulin, M.V. Korobkov, A.O. Komisarov, A.I. Rusalovich, **Junyi Du**, S.N. Kamchatnaya, A.Yu. Vragov, L.A. Paschenko, V.Yu. Gres, E.S. Gevorkyan, R.V. Vovk / Evolution of fluctuation conductivity of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals under the influence of medium doses of electron irradiation and doping with praseodymium. // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, Series "Physics"*. Vol. 38, p.p. 7-14 (2023).
4. Г. Я. Хаджай, В. Ф. Коршак, С. В. Савич, Junyi Du, Р. В. Вовк / Вплив високого тиску на температурну залежність псевдощільності монокристалів $Y_{0.66}Pr_{0.34}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ // *Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, series "Physics"*, Vol.40, p.73-77 (2024).
5. Г. Я. Хаджай, В. Ф. Коршак, М. Г. Ревякіна, О. Л. Чикіна, А. О. Комісаров, О. Ю. Врагов, Junyi Du, Л. О. Пащенко, Р. В. Вовк /

Еволюція температурних залежностей електроопору монокристалів $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в широкому інтервалі прикладеного тиску і концентрацій домішок празеодиму // Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University, series "Physics", Vol.40, p.53-58 (2024).

Наукові праці апробаційного характеру (тези доповідей на наукових конференціях) за темою дисертації:

2. Л.О. Пащенко, **Junyi Du**, А.О. Комісаров, М.В. Коробков, Р.В. Вовк / Модифікація електронним опроміненням поздовжнього електроопору ВТНП-монокристалів $YBaCuO$ // Збірник матеріалів міжнародної конференції «Ядерна фізика на Закарпатті» (до 55-річчя відділу фотоядерних процесів ІЕФ НАН України) 21-23 травня 2024 року.