## ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ НИЗЬКИХ ТЕМПЕРАТУР ім. Б.І. ВЄРКІНА НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ

Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Вєркіна Національної академії наук України

Кваліфікаційна наукова

праця на правах рукопису

Шитов Микита Віталійович

УДК 538.945

### **ДИСЕРТАЦІЯ**

# ОСОБЛИВОСТІ ФЛУКТУАЦІЙНОЇ ПРОВІДНОСТІ ТА ПСЕВДОЩІЛИНИ У ПЛІВКАХ І МОНОКРИСТАЛАХ YBa2Cu3O7-8 ПІД ВПЛИВОМ ЗОВНІШНІХ ЧИННИКІВ

104 – Фізика та астрономія

10 – Природничі науки

Подається на здобуття наукового ступеня доктора філософії.

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело \_\_\_\_\_\_\_\_ М. В. Шитов (підпис здобувача)

Науковий керівник: Соловйов Андрій Львович, доктор фізико-математичних наук, професор

Харків – 2024

#### АНОТАЦІЯ

Шитов М.В. Особливості флуктуаційної провідності та псевдощілини у плівках і монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> під впливом зовнішніх чинників. — Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 — «Фізика та астрономія» (10 — Природничі науки). — Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Вєркіна Національної академії наук України, Харків, 2024.

Дисертаційну роботу присвячено дослідженню особливостей впливу на основні електронні процеси, що формують нормальну та надпровідну (НП) фази в високотемпературних надпровідниках (ВТНП), таких факторів як: магнітне поле, опромінення високоенергетичними електронами та довготривале зберігання (старіння) тонких плівок та монокристалів YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (далі - YBCO).

У вступі коротко обґрунтована актуальність теми дисертаційної роботи, визначені мета та основні завдання досліджень, об'єкти, предмет і методи досліджень. Сформульована та викладена наукова новизна й практична значущість отриманих результатів. Наведено дані про особистий внесок дисертанта, апробацію роботи та публікації за темою дисертації, а також подається інформація про структуру та обсяг дисертаційної роботи.

Розділ 1 «Основні властивості досліджуваних надпровідників (Огляд літератури)» присвячено аналізу літературних даних за темою дисертації, а саме: структури, фазової діаграми та фізичних властивостей досліджуваних об'єктів. Розглянуті теоретичні основи фізики високотемпературних надпровідників, зокрема: тонких плівок та монокристалів YBCO. Описані основні властивості ВТНП, які відрізняють їх від низькотемпературних надпровідників (НТНП). Охарактеризовано такі поняття, як псевдощілина та локальні пари, розглянуті різні точки зору на механізм надпровідного спарювання у ВТНП. Наведено відомості про температурні залежності надлишкової провідності та псевдощілини. Розглянуті процеси які відбуваються у ВТНП при зниженні густини носіїв заряду,

2

обговорено питання щодо анізотропії властивостей та специфіки поведінки локальних пар у ВТНП. Детально досліджено загальну інформацію щодо впливу зовнішніх чинників, таких як: магнітне поле, електронне опромінення та довготривале старіння на ВТНП ҮВСО.

У розділі 2 «Об'єкти і методи експериментальних досліджень» висвітлено процес отримання та процедуру підготовки до вимірювань досліджуваних зразків монокристалів і тонких плівок YBCO. Детально розглянуто методику вирощування монокристалів YBCO та технологію виготовлення тонких плівок за допомогою імпульсного лазерного напилення. Детально обговорено методики нанесення електроконтактів для резистивних досліджень. Надано опис конструкції установки для вимірювання електроопору при низьких температурах, яка використовувалася в роботі. Описані методи вимірювання електронного опромінення.

Розділ 3 «Вплив магнітного поля на властивості тонких плівок YBCO» присвячений дослідженню впливу магнітного поля від 0 до 8 Тл на температурні залежності питомого опору, надлишкової провідності та псевдощілини тонких плівок YBCO.

Вперше проведено аналіз температурної залежності флуктуаційної провідності у магнітному полі. Виявлено, що у магнітному полі приблизно 3 Тл в області двовимірних флуктуацій відбувається перехід від класичної температурної залежності флуктуаційної провідності (ФЛП) 2D Макі-Томпсона (МТ) до несподіваної залежності 2D Асламазова-Ларкина (АЛ) вище температури 3D-2D кроссовера. З'ясовано, що коли значення магнітного поля перевищує 3 Тл, інтервал надпровідних флуктуацій різко зростає приблизно в 7 разів, а довжина когерентності вздовж осі *с* демонструє неочікувану залежність від температури НП переходу, що вказує на перебудову кристалічної структури зразка під впливом магнітного поля.

Показано, що у нульовому магнітному полі, температурна залежність псевдощілини починаючи від температури її відкриття до температури, де все ще працює теорія середнього поля, має широкий максимум при температурі

кроссоверу БЕК-БКШ, яка приблизно дорівнює 140 К, що характерно для добре структурованих плівок і монокристалів без двійників.

З'ясовано, що незважаючи на те, що магнітне поле не впливає на питомий опір за високих температур, усі параметри зразків, помітно змінюються при збільшенні поля до 8 Тл, що призводить до помітної зміни форми температурної залежності псевдощілини, незважаючи на те, що температура відкриття псевдощілини та надлишкова провідність вважаються незмінними. В одночас, виявлено помітне зміщення графіку температурної залежності псевдощілини у бік нижчих температур під впливом магнітного поля.

В області НП флуктуацій поблизу температури надпровідного переходу вперше спостерігалося суттєве зменшення значення псевдощілини під впливом магнітного поля. Показано, що різкий низькотемпературний максимум поблизу температури 3D-2D кроссоверу поступово пригнічується, і зміщується в бік вищих температур та потім повністю зникає у магнітному полі вище 5 Тл. Але, починаючи з *B* приблизно 0.5 Тл, вище температури Гінзбурга з'являється яскраво виражений мінімум. У той же час, виявлено незвичайну залежність величини псевдощілини при температурі Гінзубрга зі зростанням поля, яка складається з двох лінійних ділянок з однаковим нахилом, але зміщених приблизно на 1 Тл у полях, вищих за 2 Тл. Передбачаєтся, що специфічна еволюція форми псевдощілини, виявлена поблизу температури НП переходу, швидше за все, визначається саме впливом створеної магнітним полем двовимірної вихрової ґратки, що перешкоджає утворенню надпровідних флуктуацій поблизу температури НП переходу.

У розділі 4 «Вплив сильного електронного опромінення на властивості монокристалів YBCO» наведено результати дослідження впливу опромінення високоенергетичними електронами на температурні залежності флуктуаційної провідності (ФЛП) та псевдощілини (ПЩ) монокристала YBCO, який не містить двійників. Електронне опромінення з енергією 2,5 МеВ ефективно зміщує всі атоми в кристалі, що призводить до появи безлічі переважно точкових дефектів у площинах CuO<sub>2</sub>. Вплив цих дефектів на ФЛП і ПЩ у ВТНП при великих дозах опромінення раніше не вивчався. Виконання правила Матісена, згідно до якого зі збільшенням дози опромінення опір зростає майже без зміни свого нахилу у нормальному стані, підтверджує відсутність двійників. Показано, що, як і очікувалося, лінійне збільшення питомого опору з подальшим лінійним зменшенням температури НП переходу спостерігається при всіх дозах опромінення. Підтверджено, що за відносно малих доз опромінення лінійну залежність температури НП переходу від дози можна описати теорією розриву пар Абрикосова-Горькова (АГ), а при великих дозах опромінення – теорією Емері-Ківельсона (ЕК), яка враховує пригнічення критичної температури флуктуаціями фази параметра порядку, а вплив безладу, який виникає за рахунок дефектів опромінення, полягає в збільшенні квантових фазових флуктуацій. Таким чином, зі збільшенням дози опромінення має спостерігатися перехід АГ-ЕК.

З'ясовано, що питомий опір та температура НП переходу лінійно залежать від дози опромінення і ніяких особливостей на залежностях питомого опору та температури НП переходу від дози опромінення при АГ-ЕК кроссовері не спостерігається. У той же час виявлено несподіване зростання температури відкриття псевдощілини, значення псевдощілини за температури БЕК-БКШ кроссовера та в цілому всієї кривої псевдощілини при середньому значенні дози опромінення, що відповідає переходу АГ-ЕК, що свідчить про можливе зниження щільності станів на рівні Фермі (DOS) через дефекти. Також показано, що при цій дозі опромінення відстань між провідними площинами, довжина когерентності вздовж осі c та площині ab, а також область НП флуктуацій різко збільшуються, а флуктуаційний внесок 2D МТ несподівано змінюється на 2D АЛ.

З'ясовано, що при збільшенні дози опромінення до  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>, як ФЛП, так і псевдощілина демонструють криві, типові для добре структурованого YBCO, що підтверджує загальновідомий факт, що "чим більше дефектів, тим більш ізотропним є зразок". І саме з цього "ізотропного" стану монокристал YBCO під впливом електронного опромінення починає перехід метал-ізолятор.

Таким чином, показано, що відсутність будь-яких особливостей на залежностях питомого опору та критичної температури від дози опромінення вказує на те, що взаємодія дефектів опромінення з нормальними носіями заряду, відповідальними за питомий опір, та з локальними парами (ЛП), відповідальними за ФЛП та ПЩ, істотно відрізняється. Тобто доведено, що вплив дефектів на малі ЛП при високих температурах та на великі, майже НП, флуктуаційні куперівські пари поблизу температури НП переходу, відповідальні за поведінку псевдощілини за температури Гінзубрга, є також абсолютно різним.

З'ясовано, що утворення різноманітних ансамблів дефектів у монокристалах YBCO під впливом високоенергетичного електронного опромінення є немонотонним процесом і має власну специфіку. Показано, що ця специфіка може бути виявлена лише шляхом проведення аналізу ФЛП і ПЩ, які виявилися набагато більш чутливими до змін у внутрішніх електронних підсистемах, уражених індукованими дефектами.

У розділі 5 «Вплив довготривалого зберігання (старіння) на властивості монокристалів УВСО» вперше досліджено та проаналізовано вплив довготривалого зберігання (старіння), протягом 17 років за нормальних умов, на флуктуаційну провідність та псевдощілину в монокристалах УВСО з двійниками. Вивчення властивостей досліджуваного монокристала проводилися одразу після виготовлення (S1), через 6 (S2) та 17 років (S3) після виготовлення.

Завдяки зусиллям багатьох наукових груп фізика ВТНП певною мірою стала зрозумілішою. Проте залишається багато питань щодо практичного застосування купратів, одне з головних: "Як довго можливо використовувати ВТНП в різних приладах?". Таким чином, дослідження ефекту довготривалого зберігання купратів на повітрі та за кімнатної температури виявляється дуже важливим, але фактично Дійсно, кількість не вивченим питанням. робіт. присвячених ефекту довготривалого зберігання купратів, на диво мала, а наведені експериментальні дані є дещо суперечливими. Швидше за все це пов'язано з тим, що дані були отримані на зразках з різною технологічною передісторією, наприклад, на тонких плівках, кераміці, текстурованих полікристалах тощо.

У той же час, недоліком монокристалів YBCO, якщо не вживати спеціальних заходів, є наявність у них протяжних плоских дефектів, таких як двійники та двійникові границі (ДГ), що необхідно брати до уваги. Дослідження ФЛП та ПЩ на монокристалах YBCO після 6 та 17 років зберігання без сумніву повинні надати потрібну інформацію про вплив процесу старіння на надпровідні властивості ВТНП. Однак, наскільки нам відомо, такі дослідження раніше не проводилися.

Показано, що зразок S1 демонструє характеристики типові для оптимально допованих монокристалів YBCO, що містять двійники та двійникові границі. Виявлено, що після 6 років зберігання, дефекти, які виникли під час старіння, практично повністю усувають вплив двійників і двійникових границь у зразку. Як наслідок, температурна поведінка як ФЛП, так і ПЩ нагадує типову для добре структурованих монокристалів YBCO. Таким чином було доведено, що високотемпературні надпровідники після 6 років зберігання можна використовувати у різноманітних приладах.

Виявляється, що зі збільшенням часу зберігання ситуація змінюється. Так, з'ясовано, що після 17 років зберігання велика кількість структурних дефектів, які виникають у зразку, призводить до сильної деградації структури та перерозподілу заряду в кристалі, які призводять до сильного зростання опору та, швидше за все, відповідають за спостережувану незвичайну температурну залежність як ФЛП, так і ПЩ. Ми показали, що дефекти які виникають під час довготривалого старіння, суттєво впливають як на питомий опір, так і на ФЛП та псевдощілину.

Таким чином доведено, що високотемпературні надпровідники мають певні обмеження щодо терміну їх практичного використання. За наявних даних, можна стверджувати, що цей час обмежений, як мінімум, терміном близько півтора десятиріччя і, після 17 років зберігання, доповані ҮВСО ВТНП вже втрачають свої функціональні характеристики.

Ключові слова: надпровідність, надпровідна щілина, високотемпературні надпровідники, флуктуаційна провідність, радіаційні дефекти, дворівнева система, псевдощілина, надлишкова провідність, поверхня Фермі, квантова інженерія, допування, монокристали, тонкі плівки, питомий опір, рекомбінація зарядів, магнітне поле, електронне опромінення.

7

#### ABSTRACT

Shytov M.V. Features of fluctuating conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> films and single crystals under the influence of external factors. — Qualifying scientific work on manuscript rights.

Thesis for the Philosophical Degree (PhD) in speciality 104—«Physics and Astronomy» (10 — Natural Sciences). — B. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kharkiv, 2024.

The dissertation is devoted to the study of the effects of such factors as: magnetic field, irradiation with high-energy electrons, and long-term storage (aging) of thin films and single crystals of  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (hereinafter – YBCO) on the main electronic processes that form the normal and superconducting (SC) phases in high-temperature superconductors (HTSCs).

The introduction briefly substantiates the relevance of the topic of the dissertation, defines the purpose and main tasks of research, objects, subject and methods of research. The scientific novelty and practical significance of the obtained results are formulated and explained. Data on the personal contribution of the dissertation student, approval of work and publications on the topic of the dissertation, as well as information on the structure and scope of the dissertation work are provided.

**Chapter 1 "The main properties of the studied superconductors (Literature review)"** is devoted to the analysis of literature data on the topic of the dissertation, namely: the structure, phase diagram, and physical properties of the studied objects. The theoretical foundations of the physics of high-temperature superconductors are considered, namely: thin films and single crystals of YBCO. The main properties of HTSCs, which distinguish them from low-temperature superconductors (LTSCs), are described. Concepts such as pseudogap and local pairs are characterized, different points of view on the mechanism of superconducting pairing in HTSCs are considered. Information on the temperature dependence of the excess conductivity and the pseudogap is provided. Attention is drawn to the processes that occur in HTSCs when the density of

charge carriers decreases, questions are raised regarding the anisotropy of properties and the specifics of the behavior of local pairs in HTSCs. General information on the influence of external factors, such as: magnetic field, electronic irradiation and long-term aging on YBCO HTSC, was studied in detail.

**Chapter 2 "Objects and methods of experimental research"** covers the process of obtaining and the procedure of preparation for measurements of the studied samples of single crystals and thin films of YBCO. The method of growing YBCO single crystals and the technology of manufacturing thin films using pulsed laser sputtering are explained in detail. Methods of applying electrical contacts for resistive studies are discussed in detail. A description of the design of the installation for measuring electrical resistance at low temperatures, which was used in the work, is provided. Methods of measuring electrical resistance at low temperatures under the influence of a magnetic field and electron irradiation are described.

**Chapter 3 "Effect of the magnetic field on the properties of YBCO thin films"** is devoted to the study of the influence of the magnetic field from 0 to 8 T on the temperature dependences of the resistivity, excess conductivity, and pseudogap of YBCO thin films.

For the first time, the temperature dependence of fluctuating conductivity in a magnetic field was analyzed. It was found that in a magnetic field of approximately 3 T in the region of two-dimensional fluctuations, there is a transition from the classical 2D Maki-Thompson (MT) temperature dependence of fluctuating conductivity (FLC) to an unexpected 2D Aslamazov-Larkin (AL) dependence above the 3D-2D crossover temperature. It was found that when the value of the magnetic field exceeds 3 T, the interval of superconducting fluctuations increases sharply by about 7 times, and the coherence length along the c-axis shows an unusual dependence on the temperature of the SC transition, which indicates the rearrangement of the crystal structure of the sample under the influence of the magnetic field, which shown in the tables.

It is shown that in a zero magnetic field, the temperature dependence of the pseudogap in the entire temperature range from the temperature of the opening of the pseudogap to the temperature up to which the mean field theory works has a broad

maximum at the BEC-BCS crossover temperature, which is approximately equal to 140 K, which is characteristic of well-structured films and single crystals without twins.

It is revealed that despite the fact that the magnetic field does not affect the resistivity at high temperatures, all the parameters of the samples change noticeably when the field increases to 8 T, which leads to a noticeable change in the shape of the temperature dependence of the pseudogap, despite the fact that the temperature pseudogap opening and excess conductivity are assumed to be constant. At the same time, a noticeable shift of the pseudogap curve toward lower temperatures under the influence of the magnetic field was revealed.

In the region of SC fluctuations near the temperature of the superconducting transition, an intense decrease in the value of the pseudogap by the magnetic field was observed for the first time. It is shown that the sharp low-temperature maximum near the 3D-2D crossover temperature is gradually suppressed, and shifts towards higher temperatures and then completely disappears in the magnetic field above 5 T. But starting with *B* of about 0.5 T, a pronounced minimum appears above the Ginzburg temperature. At the same time, an unusual dependence of the value of the pseudogap at the Ginzuberg temperature with increasing field was revealed, which consists of two linear sections with the same slope, but shifted by approximately 1 T at a magnetic field greater than 2 T. It is proved that the specific evolution of the shape of the pseudogap, detected near the temperature of the SC transition, is most likely determined precisely by the influence of the two-dimensional vortex lattice created by the magnetic field, which prevents the formation of superconducting fluctuations near the temperature of the SC transition.

**Chapter 4 "The effect of strong electron irradiation on the properties of VBCO single crystals"**, presents the results of the study of the effect of high-energy electron irradiation on the temperature dependence of the fluctuation conductivity (FLC) and pseudogap (PG) of a YBCO single crystal that does not contain twins. Electron irradiation with an energy of 2.5 MeV effectively displaces all atoms in the crystal, which leads to the appearance of a set of mostly point defects in the CuO<sub>2</sub> planes. The influence of these defects on FLC and PG in HTSC with high doses of irradiation has not been studied before. The fulfillment of Matthiessen's rule, according to which as the radiation

dose increases, the resistance increases almost without changing its slope in the normal state, confirms the absence of twins. It is shown that, as expected, a linear increase in resistivity followed by a linear decrease in the temperature of the SC transition is observed at all irradiation doses. It has been confirmed that for relatively small doses of radiation, the linear dependence of the temperature of the SC transition on the dose can be described by the theory of breaking of Abrykosov-Gorkov (AG) pairs, and at high doses of irradiation – by the theory of Emery-Kivelson (EK), which takes into account the suppression of the critical temperature by fluctuations of the phase of the order parameter, and the effect of disorder, which arises due to irradiation defects, and increases the quantum phase fluctuations. Thus, with an increase in the radiation dose, the AG-EK transition should be observed.

It is shown that the resistivity and the temperature of the SC transition depend linearly on the radiation dose, and no peculiarities in the dependences of the resistivity and temperature of the SC transition on the irradiation dose are observed at the AG-EK crossover. At the same time, an unexpected increase in the temperature of the opening of the pseudogap, the value of the pseudogap at the temperature of the BEC-BCS crossover and, in general, the entire curve of the pseudogap at the average value of the irradiation dose corresponding to the AG-EK transition is revealed, which indicates a possible decrease in the density of states at the Fermi level (DOS) due to defects. It is also shown that at this radiation dose, the distance between the conducting planes, the coherence length, both along the *c*-axis and the ab plane, as well as the SC fluctuation region increase dramatically, and the fluctuation contribution of 2D MT unexpectedly changes to 2D AL.

It was found that with the further in the irradiation dose to  $\varphi_5 = 5.6 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$ , both the FLC and the pseudogap show curves typical of well-structured YBCO, from which it was concluded that "The more defects, the more isotropic the sample" And it is from this "isotropic" state that the YBCO single crystal begins the metal-insulator transition under the influence of electron irradiation.

Thus, it is shown that the absence of any features on the dependences of the resistivity and critical temperature on the irradiation dose indicates that the interaction of irradiation defects with normal charge carriers responsible for the resistivity and with LPs

responsible for FLC and PG is significantly differs. That is, it has been proven that the effect of defects on small LPs at high temperatures and on large, almost SC, fluctuating Cooper pairs near the SC transition temperature, which are responsible for the behavior of the pseudogap at the Ginzuberg temperature, is also completely different.

It was found that the formation of various ensembles of defects in YBCO single crystals under the influence of high-energy electron irradiation is a non-monotonic process and has its own specificity. It is shown that this specificity can be detected only by conducting an analysis of FLC and PG, which turned out to be much more sensitive to changes in internal electronic subsystems affected by induced defects.

In chapter 5, "Effect of long-term storage (aging) on the properties of YBCO single crystals", the effect of long-term storage (aging) for 17 years under normal conditions on the fluctuating conductivity and pseudogap in twinned YBCO single crystals was investigated and analyzed for the first time. The properties of the investigated single crystal were measured immediately after manufacture (S1), 6 (S2) and 17 years (S3) after manufacture.

Thanks to the efforts of many scientific groups, the physics of HTSC has become somewhat clearer. However, many questions remain regarding the practical use of cuprates, one of the main ones being: "How long is it possible to use HTSC in various devices?". Thus, the study of the effect of long-term storage of cuprates in air and at room temperature turns out to be a very important, but actually unstudied issue. Indeed, the number of works devoted to the effect of long-term storage of cuprates is surprisingly small, and the given experimental data are somewhat contradictory. Most likely, this is due to the fact that the data were obtained on samples with different technological backgrounds, for example, on thin films, ceramics, textured polycrystals, etc.

At the same time, the disadvantage of YBCO single crystals, if no special measures are taken, is the presence of extended planar defects such as twins and twin boundaries (TBs), which must be taken into account. Studies of fluctuation conductivity (FLC) and pseudogap (PG) on YBCO single crystals after 6 and 17 years of storage should undoubtedly provide the necessary information about the effect of the aging process on

the superconducting properties of HTSCs. However, to the best of our knowledge, such studies have not been conducted before.

In this section, for the first time, the temperature dependences of FLC, excess conductivity, and pseudogap were investigated and new data were obtained based on measurements of the resistivity of an optimally doped YBCO single crystal, which was studied immediately after fabrication (S1), 6 (S2), and 17 years (S3) after fabrication.

It is shown that sample S1 exhibits characteristics typical of optimally doped YBCO single crystals containing twins and twin boundaries. It was found that after 6 years of storage, defects that arose during aging almost completely eliminate the influence of twins and twin boundaries in the sample. As a result, the temperature behavior of both the FLC and the PG resembles that typical for well-structured YBCO single crystals. Thus, it has been proven that high-temperature superconductors can be used in various devices after 6 years of storage.

It is shown that the situation changes with an increase in storage time. Thus, it was found that after 17 years of storage, a large number of structural defects that appear in the sample lead to a strong degradation of the structure and redistribution of charge in the crystal, which lead to a strong increase in resistance and, most likely, are responsible for the observed unusual temperature dependence both FLC and PG. It is shown that the defects that arise during long-term aging significantly affect both the resistivity and the FLC and the pseudogap.

Thus, it has been proven that high-temperature superconductors have certain limitations regarding the term of their practical use. According to the available data, it can be stated that this time is limited, at least, to a period of about one and a half decades and, after 17 years of storage, YBCO-doped HTSCs already lose their functional characteristics.

**Key words:** superconductivity, superconducting gap, high-temperature superconductors, fluctuation conductivity, radiation defects, two-level system, pseudogap, excess conductivity, Fermi surface, quantum engineering, doping, single crystals, thin films, resistivity, charge recombination, magnetic field, electron irradiation.

### СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації:

 E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, Yu. A. Kolesnichenko, N. V. Shytov, K. Rogacki, D. M. Sergeyev, and A. L. Solovjov, Study of fluctuation conductivity in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films in strong magnetic fields, Low Temperature Physics, 47, № 12, 1150-1057, (2021), Q3,

DOI: 10.1063/10.0007080.

 A. L. Solovjov, L. V. Bludova, M. V. Shytov, S. N. Kamchatnaya, Z. F. Nazyrov, and R. V. Vovk, Evolution of the pseudogap and excess conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals in the course of long-term aging, Low Temperature Physics, 49, № 4, 477-485, (2023), Q3,

DOI: 10.1063/10.0017593.

 E. V. Petrenko, K. Rogacki, A. V. Terekhov, L. V. Bludova, Y. A. Kolesnichenko, N. V. Shytov, D. M. Sergeyev, E. Lähderanta, A. L. Solovjov, Evolution of the pseudogap temperature dependence in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films under the influence of a magnetic field, Low Temperature Physics, 50, № 4, 299-307, (2024), Q3, DOI: 10.1063/10.0025295. Наукові праці, які засвідчують апробацію результатів:

- M.V. Shytov, E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, A. L. Solovjov, K. Rogacki, Magnetoresistive study of the excess conductivity in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> monolayers, II International Advanced Study Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2021", 6 - 12 June 2021, Kharkiv, Ukraine, Poster, P. 9.
- 5. M. V. Shytov, A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, E. V. Petrenko, G. Ya. Khadzhai, D. M. Sergeyev, R. V. Vovk and K. Rogacki, "Effect of electron irradiation on fluctuation conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> twin single crystals", "PHOTON GRAPHENE INTERACTIONS: PHENOMENA AND APPLICATIONS-2", 9–10 September 2022, Wroclaw, Poland, Abstracts book, P.45.
- M. V. Shytov, A. L. Solovjov, L. V. Bludova, S. N. Kamchatnaya, Z. F. Nazyrov, R. V. Vovk, "Evolution of the pseudogap and excess conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals in the course of long-term aging", III International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2023", 5 11 June 2023, Kharkiv, Ukraine, Abstracts book, P. 55.
- М. В. Шитов, Є. В. Петренко, Л. В. Блудова, Ю. А. Колесніченко, К. Рогацький, А. Л. Соловйов, "Аналіз флуктуаційної провідності плівок YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> у сильних магнітних полях", IV конференції молодих вчених "СУЧАСНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО: МАТЕРІАЛИ ТА ТЕХНОЛОГІЇ — СММТ-2023", 5 – 6 October 2023, Kyiv, Ukraine, Abstracts book, P. 9.
- M. V. Shytov, A. L. Solovjov, E. V. Petrenko, L. V. Bludova, R. V. Vovk, K. Rogacki, "Influence of strong electron irradiation on fluctuation conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals", IV International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2024", 3 – 7 June 2024, Kharkiv, Ukraine, Abstracts book, P. 58.

### **3MICT**

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ ТА СКОРОЧЕНЬ	18
ВСТУП	20
РОЗДІЛ 1. ОСНОВНІ ВЛАСТИВОСТІ ДОСЛІДЖУВАНИХ	
НАДПРОВІДНИКІВ (ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ)	26
1.1. Високотемпературні надпровідники YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub>	26
1.2. Кристалічна структура та механізми провідності в YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub>	28
1.3. Фазова діаграма купратів YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub>	30
1.4. Надлишкова провідність та псевдощілина в ВТНП	32
1.4.1. Псевдощілина та модель локальних пар в ВТНП	32
1.4.2. Надлишкова провідність купратних ВТНП	34
1.4.3. Теоретичні аспекти опису псевдощілини в ВТНП	36
1.5. Вплив зовнішніх факторів на властивості ВТНП	37
РОЗДІЛ 2. ОБ'ЄКТИ І МЕТОДИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ	
досліджень	40
2.1. Технологія виготовлення ВТНП плівок за допомогою імпульсного	
лазерного напилення	40
2.2. Методи вирощування монокристалів ВТНП YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub>	41
2.3. Методика експерименту	43
2.3.1. Нанесення електроконтактів для резистивних досліджень	43
РОЗДІЛ З. ВПЛИВ МАГНІТНОГО ПОЛЯ НА ВЛАСТИВОСТІ ТОНКИХ	
ПЛІВОК ҮВа2Си3О7-б	47
3.1. Дослідження питомого опору та критичної температури	48
3.2. Вплив магнітного поля на надлишкову провідність	51

3.3	. Температурна залежність псевдощілини YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-б</sub> під впливом
маі	тнітного поля
Ви	сновки до розділу 3 69
PO3,	<b>ЦІЛ 4. ВПЛИВ ЕЛЕКТРОННОГО ОПРОМІНЕННЯ НА ВЛАСТИВОСТІ</b>
MOI	НОКРИСТАЛІВ УВа2Cu3O7-б 70
4.1	. Дефекти у ВТНП71
4.2	. Дослідження питомого опору та критичної температури 73
4.3	. Вплив електронного опромінення на надлишкову провідність
4.4	. Температурна залежність псевдощілини YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub>
Ви	сновки до розділу 4 100
PO3,	ЦІЛ 5. ВПЛИВ ДОВГОТРИВАЛОГО ЗБЕРІГАННЯ (СТАРІННЯ) НА
ВЛА	СТИВОСТІ МОНОКРИСТАЛІВ УВа2СизО7-б 101
5.1	. Дослідження питомого опору та критичної температури 102
5.2	. Вплив довготривалого зберігання на надлишкову провідність 104
5.3	. Температурна залежність псевдощілини YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-б</sub> під впливом
дон	вготривалого зберігання108
Ви	сновки до розділу 5 115
вис	НОВКИ 116
ПЕР	ЕЛІК ЛІТЕРАТУРИ 117
дод	АТОК А СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ
дис	ЕРТАЦІЇ
дод	АТОК Б ВІДОМОСТІ ПРО АПРОБАЦІЮ РЕЗУЛЬТАТІВ
дис	ЕРТАЦІЇ

### ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ ТА СКОРОЧЕНЬ

- ПФ поверхня Фермі;
- ОД оптимально допований;
- ДГ двійникова границя;
- НП надпровідний / надпровідність;
- ФКП флуктуаційні куперівські пари;
- ФЛП флуктуаційна провідність;
- ПЩ псевдощілина;
- НТНП низькотемпературні надпровідники;
- ВТНП високотемпературні надпровідники;
- БКШ теорія Бардіна Купера Шрифера;
- БЕК Бозе-Ейнштейнівська конденсація;
- КП куперівські пари;
- ЛП локальні пари;
- ХЛ теорія Хіками–Ларкіна.
- АЛ теорія Асламазова–Ларкіна;
- МТ теорія Макі-Томпсона;
- ЛД теорія Лоуренса-Доніаха;
- $\rho$  питомий опір;
- $\sigma'(T)$  надлишкова провідність;
- *d* розмір елементарної комірки уздовж осі с;
- $d_{01}$  відстань між провідними площинами CuO<sub>2</sub> в YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>;

 $D^*$  – відношення БКШ;

 $\xi_{ab}$  – довжина когерентності в площині ab;

 $\xi_c$  – довжина когерентності вздовж осі c;

 $\varepsilon$  – зведена температура;

*Т*<sup>\*</sup> – температура відкриття псевдощілини;

*n*<sub>f</sub> – густина носіїв заряду;

*T*<sub>c</sub> – критична температура;

*T<sub>c</sub><sup>mf</sup>*- критична температура в наближенні середнього поля;

*T<sub>pair</sub>* – температура трансформації БЕК-БКШ для локальних пар;

*Т*<sub>*G*</sub> – температура Ґінзбурга;

 $T_0$  – температура 3D - 2D кроссовера;

*T*<sub>01</sub> – верхня температура області надпровідних флуктуацій;

 $\Delta^*$  – псевдощілина.

#### ВСТУП

Актуальність теми. З моменту відкриття високотемпературних надпровідників типу REBCuO (RE=Y,Ho,Gd) з провідними площинами CuO<sub>2</sub> (ВТНП або купрати) пройшло майже 40 років і остаточно встановлено, що окрім високої критичної температури надпровідного переходу  $T_c$  ВТНП також мають ряд інших незвичайних властивостей, а саме:

- низьку щільність носіїв заряду n<sub>f</sub>, яка навіть в оптимально допованих (ОД)
   зразках на порядок менша, ніж в звичайних металах;
- ▶ сильні електронні кореляції;
- ▶ квазідвовимірність, яка обумовлена провідністю по площинах CuO<sub>2</sub>;
- ▶ та, як наслідок, сильну анізотропію електронних властивостей.

Але механізм надпровідного спарювання, який призводить до формування надпровідних куперівських пар в ВТНП при T > 100 К, як і раніше, невідомий. На сьогоднішній день, вважаться, що правильне розуміння ще однієї дуже цікавої і незвичайної властивості ВТНП, а саме – ПЩ, яка відкривається при температурі  $T^* >> T_c$  в купратах з допуванням менше оптимального, має допомогти зрозуміти механізм надпровідного спарювання в ВТНП та з'ясувати роль впливу зовнішніх чинників на формування спарених ферміонів при високих температурах, та на інші властивості ВТНП. Незважаючи на те, що кількість робіт з вивчення псевдолщілини винятково велика, на жаль, фізична природа цього явища ще до кінця не з'ясована.

Отже, з метою вивчення цього явища, у роботі були досліджені температурні залежності питомого опору, надлишкової провідності та псевдощілини в монокристалах та тонких плівках YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, в рамках моделі локальних пар під впливом різноманітних зовнішніх чинників. За визначенням ПЩ – це особливий стан речовини, що характеризується зниженою, але не до нуля, щільністю

електронних станів на рівні Фермі. Але слід зауважити, що є принципова відмінність псевдощілинного стану від надпровідного, в якому при  $T=T_c$  відкривається надпровідна щілина, і густина електронних станів на рівні Фермі дорівнює нулю.

У цій роботі передбачається, що в купратах псевдощілина обумовлена НП флуктуаціями, які в свою чергу призводять до утворення спарених ферміонів, так званих локальних пар, в температурному інтервалі  $T^* > T > T_c$ , які є передвісником переходу ВТНП в НП стан. Вважається, що ЛП виникають при температурах  $T \le T^*$ у вигляді сильно зв'язаних бозонів (СЗБ), які підкоряються теорії Бозе-Ейнштейнівської конденсації (БЕК). Але при зменшенні температури СЗБ поступово трансформуються у ФЛП, які біля  $T_c$  підкоряются теорії Бардіна - Купера - Шрифера (БКШ). Однак, як було зазначено вище, деталі формування СЗБ та їх трансформації у ФЛП досі до кінця не з'ясовані.

У дисертаційній роботі дотримуються ідеї, що псевдощілина є провісником надпровідності та її всебічне вивчення може допомогти у з'ясуванні природи як надпровідного спарювання, так і взагалі надпровідності у ВТНП, тому дослідження впливу зовнішніх чинників на флуктуаційну провідність та поведінку псевдощілини, з урахуванням того, як це впливає на надпровідність, безумовно важливо для фундаментальної, а також прикладної фізики твердого тіла, тому тема дисертаційної роботи є *актуальною*.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дослідження, які склали дисертаційну роботу, виконані у відділі мікроконтактної спектроскопії Фізико-технічного інституту низьких температур імені Б.І. Вєркіна НАН України, в рамках тематичного плану інституту за науково-дослідними роботами відомчої тематики: «Провідні, надпровідні, магнітні та сенсорні властивості новітніх функціональних матеріалів» (номер державної реєстрації 0122U001501, шифр Ф 19-5, термін виконання 2022 - 2026 рр.), «Низькотемпературні транспортні властивості низьковимірних та сильно анізотропних провідників» (номер державної реєстрації 0117U002289, шифр Ф 5 - 10, термін виконання 2017 - 2021 рр.).

*Мета і завдання дослідження.* Метою дисертаційної роботи було отримання нової інформації про основні електронні процеси та взаємодії, які формують нормальну і надпровідну фазу у ВТНП YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, та їх зміни під впливом магнітного поля, сильного електронного опромінення та довготривалого зберігання.

Для досягнення мети ставилися і вирішувалися такі основні *завдання дослідження*:

— експериментально, дослідити вплив магнітного поля на флуктуаційну провідність та псевдощілину в монокристалах та тонких плівах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>;

— дослідити вплив опромінення великими дозами високоенергетичних електронів на флуктуаційну провідність та псевдощілину купратних високотемпературних надпровідників;

— визначити, як під час довготривалого зберігання (старіння) змінюються основні характеристики купратних ВТНП, і як це впливає на флуктуаційну провідність та псевдощілину.

*Об'єктом дослідження* є процеси флуктуаційного спарювання в системах з сильними електронними кореляціями.

**Предметом дослідження** є механізм електронних процесів і їх взаємодії в купратних високотемпературних надпровідниках під впливом зовнішніх чинників.

*Методи дослідження.* У роботі застосовувалися експериментальні методи дослідження електроопору зразків монокристалів та тонких плівок YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub> під впливом магнітного поля, опромінення та під час довготривалого зберігання. Резистивні вимірювання проводилися стандартним чотирьох контактним методом на повністю комп'ютеризованій установці. Метод аналізу надлишкової провідності та псевдощілини був використаний для вивчення та аналізу електронних процесів

і взаємодій, які формують нормальну та надпровідну фазу у ВТНП. Отримані дані оброблялися в моделі локальних пар. Експерименти виконувалися на монокристалах і тонких плівках YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, під впливом різних вищезгаданих зовнішніх чинників.

#### Наукова новизна отриманих результатів:

 Вперше було отримано інформацію про еволюцію надлишкової провідності та псевдощілини під впливом магнітного поля до 8 Тл у тонкій плівці YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>.

2. Показано, що серед основних особливостей, що демонструє зразок, знайдених з аналізу флуктуаційної провідності, можна виділити перехід вище температури 3D-2D кроссовера при критичному полі ~ 3 Тл від класичної залежності 2D МТ до несподіваної залежності 2D АЛ. У той же час інтервал надпровідних флуктуацій різко зростає приблизно в 7 разів, а довжина когерентності  $\xi_c(0)$  вздовж осі *с* демонструє незвичну залежність від  $T_c$ , коли *В* зростає вище 3 Тл. Отримані результати демонструють можливість утворення специфічного вихрового стану в YBCO та його еволюції зі збільшенням магнітного поля.

3. Вперше отримано інформацію про еволюцію флуктуаційної провідності та псевдощілини під впливом електронного опромінення з дозами до 5.6·10<sup>19</sup> e/cm<sup>2</sup> у монокристалі YBCO.

4. Показано, що 2D флуктуаційний внесок теорії Макі-Томпсона (2D-МТ), який очікувано спостерігається вище температури 3D-2D кроссовера T<sub>0</sub> у випадку без опромінення, змінюється на 2D внесок теорії Асламазова-Ларкіна (2D-АЛ) при  $\varphi_3 = 2.5 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>, тобто під впливом дефектів. Проте, при дозі  $\varphi_5 = 5.6 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>, вище T<sub>0</sub> ФЛП несподівано знову описується внеском 2D-МТ, який є типовим для зразків без дефектів. Водночас, довжина когерентності  $\xi_c(0)$  демонструє зростання до  $\varphi_4 = 3.9 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>, а при більших дозах починає помітно зменшуватися. 5. Вперше виявлено несподівану немонотонну поведінку ПЩ  $\Delta^*(T)$  під впливом дефектів. Спочатку при  $\varphi_I=0$  величина та форма  $\Delta^*(T)$  такі ж, як і в монокристалах YBCO без дефетів. Зі зростанням  $\varphi$ ,  $\Delta^*(T)$  швидко зменшується, потім несподівано помітно зростає, а потім зменшується ще швидше і демонструє незвичайну форму. Однак при  $\varphi_5 = 5.6 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>  $\Delta^*(T)$  знову несподівано демонструє типову залежність для YBCO без дефектів, що свідчить про зміну механізму надпровідного спарювання під впливом індукованих дефектів.

6. Вперше показано, що дефекти, які виникають під час довготривалого зберігання, суттєво впливають не тільки на опір, а також і на флуктуаційну провідність та псевдощілину в монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> з двійниками і після 6 років зберігання такі дефекти практично повністю усувають вплив двійників і границь двійників у зразку, що призводить до ізотропізації зразка.

7. Вперше показано, що велика кількість дефектів, які з'являються в зразку після 17 років зберігання, призводить до деградації структури та перерозподілу заряду в кристалі, що, швидше за все, відповідає за спостережувану незвичайну форму ПЩ, отриману після 17 років зберігання.

Наукове та практичне значення отриманих результатів. Основні результати дисертаційної роботи отримані вперше і можуть бути використані для з'ясування механізмів надпровідного спарювання, для подальшего вивчення впливу магнітного поля, опромінення та довготривалого зберігання (старіння) в ВТНП типу YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>. Що важливо купратних для пошуку нових надпровідників з більш високим значенням критичної температури та для їх застосування. Високотемпературні надпровідники практичного переважно створенні струмопідводів надпровідних застосовують при магнітів, В потужнострумових лініях зв'язку, принципово нового обладнання залізничного транспорту, роз'єднувачів - запобіжників, в магнітометричних і високочастотних пристроях: надшвидкісних лініях зв'язку, резонаторах, SQUID, прийомних котушках для медичних томографів тощо.

**Особистий внесок здобувача.** Наукові статті [1-3], в яких представлені основні результати дисертаційної роботи, були виконані здобувачем у співавторстві. Особистий внесок здобувача полягає в підготовці зразків до вимірювань; проведенні експерименту; обробці експериментальних даних з використанням існуючих теоретичних моделей; підготовці матеріалів доповідей на конференціях і семінарах; в написанні та підготовці до друку наукових статей. Таким чином, особистий внесок дисертанта є визначальним.

*Апробація результатів дисертації.* Основні результати дисертації доповідались та обговорювались на міжнародних та вітчизняних конференціях:

- II International Advanced Study Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2021", 6 – 12 June, Kharkiv, Ukraine, 2021;
- "PHOTON GRAPHENE INTERACTIONS: PHENOMENA AND APPLICATIONS-2", 9 – 10 September, Wroclaw, Poland, 2022;
- III International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2023", 5 – 11 June, Kharkiv, Ukraine, 2023;
- ➢ IV конференції молодих вчених "СУЧАСНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО: МАТЕРІАЛИ ТА ТЕХНОЛОГІЇ — СММТ-2023", 5 – 6 October, Kyiv, Ukraine, 2023;
- ➢ IV International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2024", 3 − 7 June, Kharkiv, Ukraine, 2024.

*Публікації.* Основні результати дисертаційної роботи опубліковані у 8 наукових працях: 3 статтях у провідних спеціалізованих наукових журналах [1–3] та 5 тезах доповідей у збірниках праць міжнародних наукових конференцій [4–8].

Структура дисертації. Дисертація складається з анотацій українською та англійскою мовами, переліку умовних позначень і скорочень, вступу, п'яти розділів, висновків, переліку використаних літературних джерел та двох додатків. Загальний обсяг дисертації складає 133 сторінок, вона містить 32 рисунки, 7 таблиць та список використаних джерел з 139 найменувань на 14 сторінках.

## РОЗДІЛ 1. ОСНОВНІ ВЛАСТИВОСТІ ДОСЛІДЖУВАНИХ НАДПРОВІДНИКІВ (ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ)

#### 1.1. Високотемпературні надпровідники УВа2Си3О7-а

Останнім часом вченими в галузі фізики твердого тіла проводяться численні спроби винайти такі матеріали, які були б надпровідними за кімнатної температури та нормальних умов. Поки що успіхи досягаються тільки у складних речовинах, переважно на основі водню, за умови надвисокого тиску [1].

Початок цього напрямку у фізиці твердого тіла поклали Алекс Мюллер і Георг Беднорц ще у 1986 році, відкривши таке явище, як високотемпературна надпровідність в сполуці  $La_{2-x}Ba_xCuO_4$  з критичною температурою  $T_c = 35$  К. За це відкриття, в 1987 році, вони отримали Нобелівську премію. Критична температура сполуки La<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> була приблизно на 10 К вища за всі відомі у той час надпровідники. Майже одразу це відкриття спричинило поштовх для подальших досліджень інших купратів з високими критичними температурами [2-5]. І вже у 1987 році був відкритий надпровідник YBCO, 3 критичною температурою  $T_c \approx 93$  К, який став першим надпровідником, у якого критична температура переступила позначку температури кипіння рідкого азоту, що дорівнює 77,4 К. На момент написання диссертаційної роботи, серед оксидних надпровідників, купрати ртуті HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8+x</sub> [3, 5] мають максимальну критичну температуру  $T_c = 134$  K, яка під тиском може зростати майже до 165 K. Також з останніх досліджень було знайдено матеріали з більш високим показником температури надпровідного резистивного переходу, а саме:

- 2015 р. у сірководні H<sub>2</sub>S при тиску у 150 ГПа вдалося досягти T<sub>c</sub> = 203 К
   [6];
- ▶ 2018 р. у супергідриді лантану LaH<sub>10</sub> під впливом тиску до 170 ГПа отримали *T<sub>c</sub>* = 260 К [1, 7].

Однією з найбільш актуальних проблем сучасної фізики твердого тіла є розробка теорії, яка могла б повністю описати ВТНП. На жаль, серйозною перешкодою залишається відсутність чіткого розуміння фізики внутрішніх взаємодій у багатокомпонентних сполуках, таких як ВТНП, зокрема механізму надпровідного спарювання, що дає змогу мати температуру надпровідного переходу  $T_c > 100$  К. Передбачається, що вивчення незвичних особливостей ВТНП, насамперед таких як псевдощілина, проллє світло на мікроскопічний механізм високотемпературної надпровідності. Серед ВТНП можна виділити клас оксидів металів з активною площиною CuO<sub>2</sub>, наприклад YBCO, які називають купратами. Крім високих Т<sub>с</sub> і псевдощілини, ці речовини мають низьку густину носіїв заряду, сильні електронні кореляції, квазідвовимірність і, як наслідок, сильну анізотропію електронних властивостей. Саме низька густина носіїв заряду, сприяє утворенню спарених ферміонів у купратах нижче характерної температури  $T^* >> T_c$ , так званих локальних пар, які вважаються відповідальними за утворення ПЩ. Як зазначено у вступі, за високих температур  $T \leq T^*$ , ЛП виникають у вигляді СЗБ, які підпорядковуються теорії БЕК. Розмір СЗБ визначається довжиною когерентності в площині *ab*:  $\xi_{ab}(T)$ . Зі зниженням температури довжина когерентності, отже, і розмір пар зростає, і СЗБ поступово перетворюються на флуктуаційні куперівські пари, які вже підкоряються теорії БКШ поблизу Т<sub>с</sub>. Тобто в ВТНП має спостерігатися перехід БЕК-БКШ при характеристичній температурі *T<sub>pair</sub>*. Підкреслимо, що поблизу Т<sub>с</sub>, коли довжина когерентності перевищує розмір елементарної комірки вздовж осі с, квазідвовимірний 2D стан ВТНП змінюється на 3D стан.

Незважаючи на те, що інтерес до дослідження ПЩ помітно зріс останніми роками, фізика псевдощілинного стану досі не до кінця зрозуміла. У той же час, хоча кількість робіт, присвячених вивченню ВТНП і, зокрема, ПЩ, є надзвичайно великою, кількість робіт, що вивчають вплив зовнішніх факторів на надлишкову провідність та псевдощілину в ВТНП купратах винятково мала. У дисертації зроблено спробу систематизувати деталі такої нестандартної поведінки ВТНП у

псевдощілинному стані шляхом вивчення особливостей поведінки ФЛП та ПЩ у плівках та монокристалах YBCO під впливом магнітного поля, опромінення електронами та довготривалого зберігання.

#### 1.2. Кристалічна структура та механізми провідності в УВа2Си3О7-б

Купрати УВа<sub>2</sub>Си<sub>3</sub>О<sub>7-б</sub> – це чітко визначена хімічна сполука зі специфічною структурою та стехіометрією. Матеріали з менш ніж сімома атомами кисню на формульну одиницю є нестехіометричними сполуками. Структура цих матеріалів залежить від вмісту кисню. Ця нестехіометрія позначається буквою  $\delta$  у хімічній формулі YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>. При  $\delta$  = 1 місця O(1) у шарі Cu(1) вакантні та структура має тетрагональну форму. Тетрагональна форма ҮВСО є ізолюючою і не надпровідною. Але при допуванні ҮВСО, яке відбувається шляхом інтеркаляції кисню, відбуваються зміни описані нижче. Невелике збільшення вмісту кисню призводить до заняття більшої кількості місць O(1). Коли  $\delta < 0.65$  утворюються ланцюжки CuO вздовж осі b кристала. Подовження осі b змінює структуру на ромбічну з параметрами решітки a = 3,8227 Å, b = 3,8872 Å та c = 11,6802 Å. Оптимальні надпровідні властивості виникають, коли  $\delta \sim 0.07$ , це означає, що майже всі позиції О(1) зайняті, з невеликою кількістю вакансій. Хімічне допування супроводжується перетіканням заряду між CuO<sub>2</sub> і ланцюжками CuO<sub>x</sub>, що відіграють роль резервуара захоплених електронів. Мідь в ланцюжках має змінну валентність та залежить від числа найближчих «кисневих сусідів». У міру допування в CuO<sub>x</sub> виникає ситуація, коли кисень не знаходить позиції з двома сусідніми іонами Cu<sup>+</sup>. У цьому випадку необхідний електрон береться з сусідньої активної площини CuO<sub>2</sub>, що зрештою призводить до діркової провідності в YBCO. Слід також відзначити, що можливість перерозподілу заряду між розділеними в просторі квазінезалежними структурами елементарної комірки - це одна з основних концепцій фізики ВТНП [8], що в свою чергу пояснює відносно велику кількість станів на фазовій діаграмі та різноманітність електронних властивостей.



Рис. 1.1. Кристалічна структура YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (YBCO) із зазначенням розмірів комірки вздовж її основних осей a, b, c.

Елементарна комірка YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, як зображено на рис. 1.1, складається з:

- ▶ двох ланцюжків CuO по краях, які не мають поперчних атомів кисню;
- ▶ двох площин BaO з атомом Ba, який знаходиться в центрі площини;
- ≻ двох площин CuO<sub>2</sub>;
- та ітрієвого (Y)-шару в центрі.

Головна задача ланцюжків CuO це забезпечення площин CuO<sub>2</sub> носіями заряду  $n_f$  [8,10]. Основу електронної конфігурації купратів складають провідні площини CuO<sub>2</sub>, які саме і визначають квазідвомірність електронних властивостей ВТНП, а вже саме *Y*-шар забезпечує анізотропний рух носіїв заряду у комірці [9].

#### 1.3. Фазова діаграма купратів YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

Однією з особливостей ВТНП купратів, а саме YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, що відрізняють їх від НТНП, є надзвичайно висока чутливість його властивостей до вмісту кисню, як було зазначено вище. Це добре видно на фазовій діаграмі YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (рис. 1.2). У вихідному стані при  $\delta > 0,6$  YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> є моттівським діелектриком з далеким антиферомагнітним порядком, а при  $\delta < 0,6$  сполука є електропровідною і надпровідною, що видно з рис. 1.2. Ще з ранніх дослідженнь ефекту Холла в ВТНП було встановлено, що вони мають «діркову» провідність. Носіями заряду у цих сполуках є переважно дірки, а не електрони.



Рис. 1.2. Фазова діаграма купратних ВТНП УВа<sub>2</sub>Си<sub>3</sub>О<sub>7-б</sub>.

У ролі допанту дірок виступають іони кисню. Тому ці сполуки відносять до так званих «діркових» надпровідників, на відміну, від НТНП, які мають переважно електронну провідність і називаються електронними. Експериментально було встановлено, що для виникнення надпровідності в сполуці YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> необхідно, щоб валентність міді в CuO<sub>2</sub>-шарах з колективізованими електронами трохи

відрізнялася від +2 і знаходилася в діапазоні від 2,05 до 2,25 [11]. В інтервалі густини дірок  $p_{min} \leq 0.05$ , в купратах YBCO електрони локалізуються на атомах міді, утворюючи антиферомагнітний моттівський діелктрик. Але вже при появі невеликої кількості дірок дальній АФМ порядок в ҮВСО швидко зникає. Це відбувається тому, що дірки, які в проникають в кисневі 2*p*-орбіталі, ефективно руйнують обмінну взаємодію між спінами міді [12,13]. Відповідно починаючи з  $0.05 відбувається перехід діелектрик-метал і сполуки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-<math>\delta$ </sub> стають електропровідними і надпровідними. При цьому найвищу критичну температуру має сполука при  $p \approx 0,17$ . Максимальні значення  $T_c^{max} \approx 92$  К досягаються при оптимальному (з точки зору досягнення максимальної  $T_c$ ) вмісті кисню у надпровідній фазі  $p_{opt}$  ((7- $\delta$ ) = 7) [14,15]. У разі подальшого підвищення концентрації носіїв заряду ҮВСО стає передопованим [16], тобто при подальшому допуванні, в інтервалі 0.17 , система переходить в*overdoped*-режим. Алепри цьому Т<sub>с</sub> знижується до моменту повного зникнення надпровідності при *p<sub>max</sub>*>0.275. Також треба зазначити, що для переходу YBCO в *overdoped*-режим необхідно застосовувати допування Са.

В overdoped-режимі система все більше металізується, і виникає необхідність врахування електрон-електронної взаємодії [12,17]. Таким чином, за допомогою різного рівня допування киснем можна змінювати надпровідні властивості у широкому діапазоні.

Також розглянемо область фазової діаграми між двома граничними концентраціями  $p_{min}$  і  $p_{opt}$ , яка відповідає слабо допованому режиму. Вище пунктирної лінії  $T^*(p)$  матеріал знаходиться в нормальному стані, ця область характеризується стабільністю поверхні Фермі (ПФ) і стабільною інтенсивністю розсіювання нормальних носіїв. Це призводить до лінійної залежності  $\rho(T)$  за високих температур, що є вірною ознакою нормального стану системи. Нижче пунктирної лінії  $T^*(p)$  - область псевдощілинного стану (де  $T^*$  – температура відкриття ПЩ). Слід підкреслити, що ПЩ спостерігається тільки в області  $p < p_{opt}$ , де є магнітні кореляції. Виходячи з цього передбачається, що механізм взаємодії,

що відповідає за формування локальних пар, скоріш за все магнітного типу [18-21]. Це виправдовує особливий інтерес до дослідження магнетизму і впливу магнітного поля на ВТНП надпровідники.

#### 1.4. Надлишкова провідність та псевдощілина в ВТНП

#### 1.4.1. Псевдощілина та модель локальних пар в ВТНП

Як було заначено вище, на відміну від низькотемпературних надпровідників ВТНП мають не тільки більшу критичну температуру  $T_c$ , але й ще одну не менш важливу особливість. Згідно результатами експериментальних 3 досліджень [22, 23] зрозуміло, що зі зменшенням концентрації носіїв заряду n<sub>f</sub>, в ОД зразках, на деякому температурному інтервалі вище критичної температури в ВТНП відбувається незвичне явище, а саме, поєднання властивостей як нормальної, так і надпровідної фази. Цей незвичайний стан називається «псевдощілинна фаза» (або «псевдощілина»). Однак, як було зазначено О.О. Абрикосовим у його роботі [24], цей стан реально не можна розглядати, як новий фазовий стан речовини, оскільки ПЩ не відділена фазовим переходом від нормального стану. Але, можно говорити про те, що має місце кроссовер при температурі  $T = T^*$  [25, 26]. В температурному інтервалі від  $T^* > T > T_c$  в силу не встановленних на цей час причин, щільність квазічастинкових станів на рівні Фермі [27-29] починає зменшуватись, через це явище і отримало свою назву «псевдощілина».

В дисертаційній роботі поділяється точка зору про те, що ПЩ стан обумовлений саме надпровідними флуктуаціями, які призводять до формування спарених ферміонів, у вигляді ЛП, в інтервалі температур нижче  $T^*$ . Виходячи з цього, можемо зробити висновок, що ЛП є передвісником переходу ВТНП в надпровідний стан [22, 30-33]. Згідно до теорії [34-38] в області високих температур  $T \leq T^*$  локальні пари виникають у вигляді СЗБ, які підпорядковуються теорії БЕК. Як вже зазначалося, розмір СЗБ визначається за наступною

формулою:  $\xi_{ab}(T) = \xi_{ab}(0)(T/T_c-1)^{-1/2}$ , де  $\xi_{ab}(T)$  - довжина когерентності в площині ab, розмір якої  $\xi_{ab}(0) \sim \xi_{ab}(T^*) \sim 10$  Å виключно малий. Відповідно сила зв'язку в такій парі,  $\varepsilon_b \sim (\xi_{ab}^2)^{-1}$  [35, 36, 37], навпаки виключно велика. Вважається, цей зв'язок, скоріше за все обумовлений магнітним механізмом взаємодії, настільки сильний, що СЗБ не руйнується тепловими флуктуаціями, що забезпечує можливість їх існування при високих температурах. Таким чином, СЗБ представляють собою сильно зв'язані, але локальні, тобто не взаємодіючі між собою, утворення, оскільки розмір такої пари набагато менше відстані між ними [30]. Відповідно до теорії [36 - 38], СЗБ можуть формуватися лише за умови систем зі зниженою щільністю носіїв зарядів n<sub>f</sub>, якими як раз і є купрати при рівні допування менше оптимального *p*opt. Відповідно, псевдощілина спостерігається у ВТНП саме з таким рівнем допування, як можна побачити з фазової діаграми (рис. 1.2), тобто вочевидь пов'язана з появою СЗБ. Але слід уточнити, що локальні пари виникаючі при високій температурі, можуть сконденсуватися тільки при T<sub>c</sub> << T\* [34-38]. Це відбувається в результаті сильних гауссівських флуктуацій параметра порядку в двовимірних (2D) системах, якими як раз і є ВТНП в широкому інтервалі температур. Такі флуктуації перешкоджають виникненню будь-якої фазової когерентності в двовимірному стані. В результаті цього, критична температура Т<sub>с</sub> надпровідного переходу в ідеальному 2D металі виявляється рівною нулю, згідно теоремі Мерміна – Вагнера – Хоенберга, і кінцеве значення можна отримати тільки при врахуванні тривимірних(3D) факторів [34, 35]. Виходячи 3 цього, ФЛП [16, 22, 30] в ВТНП завжди переходить у 3D стан при наближенні температури T до критичної T<sub>c</sub>, та описується стандартним рівнянням (1.2) класичної флуктуаційної теорії Асламазова-Ларкіна [17] для 3D систем. Однак локальні СЗБ не можуть сконденсуватися за визначенням. Отже теорія припускає, що при одночасному зменшенні температури і збільшенні довжини когерентності  $\xi_{ab}(T)$ , сильнозв'язані бозони повинні трансформуватися у флуктуаційні куперівскі пари (ФКП), які підкоряються теорії БКШ [30,39], тобто передбачається перехід БЕК - БКШ [35-38]. Температура цього переходу позначається як T<sub>pair</sub>, та чітко

спостерігається в ряді експериментів [22, 33, 40]. Але, на жаль, деталі переходу БЕК-БКШ також ще не до кінця зрозумілі.

#### 1.4.2. Надлишкова провідність купратних ВТНП

При температурах вище  $T^*$  залежність  $\rho(T)$  в високотемпературних надпровідниках лінійна. Згідно з теоретичною моделлю NAFL (Nearly Antiferromagnetic Fermi Liquid model) [19], лінійна залежність  $\rho(T)$  відповідає нормальному стану системи. При температурах нижче за  $T^*$  вимірюваний питомий опір відхиляється від лінійної залежності в бік менших значень, що призводить до виникнення надлишкової провідності:

$$σ'(T) = σ(T) - σ'_N(T) = [1/ρ(T)] - [1/ρ_N(T)],$$
aбo

$$\sigma'(T) = [\rho_N(T) - \rho(T)] / [\rho(T)\rho_N(T)], \qquad (1.1)$$

де  $\rho_N = aT + \rho_0 - лінийний опір зразка в нормальному стані, екстрапольований в область низьких температур. Відповідно, <math>\rho_0$  - опір, який лінійна залежність відсікає по осі Ү. Критична температура  $T_c$  визначається екстраполяцією резистивного переходу до значення  $\rho(T_c) = 0$  [22]. Температурні залежності ФЛП та ПЩ можна визначити з аналізу надлишкової провідності  $\sigma'(T)$ , що проводиться в рамках моделі локальних пар [18-20, 22].

Поблизу  $T_c$ , де довжина когерентності вздовж осі  $c \xi_c(T) = \xi_c(0)(T/T_c^{mf}-1)^{-1/2}$ більше відповідного розміру елементарної комірки d = c = 11.67 Å (YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>) [41], ФКП взаємодіють у всьому об'ємі надпровідника. Область температур  $T_0 < T < T^*$ , це область 3D флуктуацій, в якій до температури 3D-2D кроссоверу  $T_0$ , експеримент добре екстраполюється флуктуаційним внеском АЛ для 3D систем [17]:

$$\sigma'_{3DAL}(T) = C_{3D} \frac{e^2}{32\hbar\xi_c(0)} \varepsilon^{-1/2}, \qquad (1.2)$$

34

де *є* – зведена температура, яка визначається рівнянням:

$$\varepsilon = T/T_c^{mf} - 1 \tag{1.3}$$

Тобто,  $T_c^{mf} > T_c$  - критична температура в наближенні середнього поля, яка відділяє область ФЛП від області критичних флуктуацій або флуктуацій надпровідного параметра порядку  $\Delta$  безпосередньо поблизу критичної температури  $T_c$  (де  $\Delta < k_B T$ ), що не враховуються в теорії Гінзбурга-Ландау [39]. У всіх рівняннях C - це чисельний коефіцієнт (*C-factor*), який служить для поєднання теорії з експериментом. Чим краще структура зразків, тим ближче  $C_{3D}$  до 1 [22,42].

Область температур  $T_0 < T < T_{01}$ , це область 2D флуктуацій які описуються рівнянням МТ теорії Хікамі - Ларкіна (ХЛ) для двовимірних систем (рів. 1.5) [43], або рівнянням Асламазова-Ларкіна для 2D систем (рів. 1.4) [17], в якій вище температури кроссовера  $T_0$  реалізується ситуація, коли  $d > \xi_c(T) > d_{01}$ , де  $d_{01}$  відстань між внутрішніми провідними площинами CuO<sub>2</sub> в купратах [8, 10, 41], і  $\xi_c(T)$  пов'язує джозефсонівською взаємодією тільки внутрішні площини.

$$\sigma'_{2DAL} = C_{2D} \cdot [e^2/16\hbar d] \tag{1.4}$$

$$\sigma'_{MT} = C_{2D} \frac{e^2}{8d\hbar} \cdot \frac{1}{1 - \alpha/\delta} \cdot ln\left(\left(\delta/\alpha\right) \cdot \frac{1 + \alpha + \sqrt{1 + 2\alpha}}{1 + \delta + \sqrt{1 + 2\delta}}\right) \cdot \varepsilon^{-1}$$
(1.5)

Параметри спарювання (α) і розпарювання (δ) в цих рівняннях відповідно дорівнюють:

$$\alpha = 2[\xi_c(0)/d]^2 \varepsilon^{-1}; \tag{1.6}$$

$$\delta = 1,203 \cdot \frac{l}{\xi_{ab}} \cdot \frac{16}{\pi\hbar} \left[ \frac{\xi_c(0)}{d} \right]^2 \cdot k_B T \tau_{\varphi}, \qquad (1.7)$$

$$\tau_{\varphi}\beta T = \pi\hbar/8k_B\varepsilon = A/\varepsilon, \qquad (1.8)$$

де  $\tau_{\varphi}$  – це час фазової релаксації флуктуаційних пар. Множник  $A = 2,998 \cdot 10^{-12} \text{ с·K}$ ; Множник  $\beta = 1,203(1/\xi_{ab})$ , де l - довжина вільного пробігу та  $\xi_{ab}$  - довжина когерентності в площині ab, враховує наближення чистої межі [44]. Таким чином,  $T_0$  – це температура 3D-2D кроссовера. Виходячи з того, що  $\xi_c(T_0) = d$ , можемо визначити:

$$\xi_c(0) = d \sqrt{\varepsilon_0}. \tag{1.9}$$

За температур вище температури області надпровідних флуктуацій  $T_{01}$ , де  $\xi_c(T) < d_{01}$ , пари знаходяться всередині площин, між якими вже немає корреляцийної взаємодії і флуктуаційні теорії вже не можуть описати експеримент. Тому експериментальні дані зазвичай відхиляються вниз від теорії при  $T = T_{01}$ . Оскільки ми вже визначили  $\xi_c(0)$ , та очевидно, що за температури  $T = T_{01}$ :

$$\xi_{\rm c}(T_{01}) = \xi_{\rm c}(0) / \sqrt{\varepsilon_{01}} = d_{01}, \qquad (1.10)$$

та ми можемо визначити d<sub>01</sub> - відстань між провідними площинами CuO<sub>2</sub>.

Таким чином,  $T_{01}$  - це температура, до якої в ВТНП існують надпровідні флуктуації, тобто, відповідно до теорії [31], зберігається жорсткість фази параметра порядку в ВТНП, що підтверджується експериментом [32, 33]. З усього вище написаного можна дійти висновку, що в інтервалі температур  $T_c < T < T_{01}$  ФКП в значній мірі поводять себе як надпровідні, але не когерентні пари (short-range phase correlations) [18, 30, 31, 45].

#### 1.4.3. Теоретичні аспекти опису псевдощілини в ВТНП

Згідно до моделі локальних пар, якби не було ніяких процесів які призводять до відкриття псевдощілини в ВТНП, то питомий опір  $\rho(T)$  зменшувався б лінійно до  $T_c$ , що у купратних ВТНП не відбувається. Виходячи з цього можна зробити висновок, що надлишкова провідність  $\sigma'(T)$ , яка спостерігається у експериментах та виникає в результаті процесів, які призводять до відкриття псевдощілини, повинна містити інформацію про величину і температурну залежність псевдощілини. Для отримання потрібної інформації необхідно мати рівняння, яке б описувало надлишкову провідність в інтервалі температур  $T^* > T > T_c$  та в явному
вигляді містило псевдошілинний параметр  $\Delta^*(T)$ . За відсутності строгої теорії була запропонована відповідна формула [22, 46] для надлишкової провідності  $\sigma'(T)$ :

$$\sigma'(T) = \frac{e^2 A_4 \left(1 - \frac{T}{T^*}\right) \left(exp\left(-\frac{\Delta^*}{T}\right)\right)}{16\hbar\xi_c(0)\sqrt{2\varepsilon_{c0}^*\sinh(2\varepsilon/\varepsilon_{c0}^*)}},$$
(1.11)

де прийнята до уваги динаміка формування та руйнування локальних пар, а саме:  $\left(1 - \frac{T}{T^*}\right)$  – визначає скільки пар виникає при температурі  $T \leq T^*$ , а  $\left(exp\left(-\frac{\Delta^*}{T}\right)\right)$ показує скільки пар руйнуються тепловими флуктуаціями при наближенні до критичної температури  $T_c$  [22, 46].

Розв'язавши рівняння (1.11) щодо  $\Delta^*(T)$ , отримуємо наступне рівняння:

$$\Delta^{*}(T) = T \ln \frac{e^{2} A_{4} \left(1 - \frac{T}{T^{*}}\right)}{\sigma'(T) 16 \hbar \xi_{c}(0) \sqrt{2\xi_{c0}^{*} \sinh(2\varepsilon/\varepsilon_{c0}^{*})}},$$
(1.12)

де  $\sigma'(T)$  – надлишкова провідність, яка вимірюється в експерименті, а  $A_4$  – числовий коефіцієнт, аналогічний коефіцієнту C(C-factor) в теорії надпровідних флуктуацій.

Для знаходження коефіцієнта  $A_4$  за рівнянням (1.11) розраховується залежність  $\sigma'(T)$  в інтервалі температур  $T^*>T>T_c^{mf}$  та поєднується з експериментом в області 3D-AЛ флуктуацій, де  $ln\sigma'$  – лінійна функція  $ln\varepsilon$  з нахилом  $\lambda = -1/2$  [22, 46]. Усі інші параметри, що входять в рівняння (1.11) та (1.12), в моделі ЛП, разом з теоритичним параметром  $\varepsilon^*_{c0}$  та коефіцієнтом  $A_4$ , визначаються з експерименту, що буде описано в наступних розділах.

#### 1.5. Вплив зовнішніх факторів на властивості ВТНП

Як було зазначено в попередніх розділах, висока критична температура  $T_c$  не єдина особливість, якою відрізняються ВТНП та класичні НТНП [13, 16, 18, 20 - 22, 30, 42]. Як вже неодноразово зазначалося, ще одна не менш значуща властивість ВТНП купратів – це реалізація в них псевдощілинного стану. Згідно до результатів більшості експериментів в ВТНП купратах [22, 23, 26, 32, 33, 40] можна

переконливо сказати, що зі зменшенням концентрації носіїв заряду  $n_f$  відносно її значення в ОД зразках, в інтервалі температур  $T_c < T < T^*$  реалізується стан зі зниженою щільністю станів на рівні Фермі, як було показано вище, який і називається «псевдощілина» [20, 22, 46]. Питання про природу псевдощілини, як обговорювалося раніше, залишається об'єктом дискусій. Одним із механізмів вивчення псевдощілини є аналіз впливу зовнішніх факторів на флуктуаційну провідність та псевдощілину у ВТНП [47-50]. У дисертації було проведено дослідження впливу магнітного поля, опромінення високоенергетичними електронами та довготривалого зберігання на надлишкову провідність та псевдощілину в Купратах YBCO.

Надпровідність характеризується абсолютним діамагнетизмом. У магнітному полі в надпровіднику виникають струми, магнітне поле яких повністю компенсує прикладене слабке зовнішнє магнітне поле, тобто магнітне поле виштовхується з надпровідника, це явище називається ефект Мейснера-Оксенфельда [39]. Надпровідники за своєю поведінкою у сильних магнітних полях, у залежності від поверхневої енергії границі розділу нормальної та надпровідної фаз умовно поділяються на 2 групи:

- надпровідники І роду, у яких глибина проникнення магнітного поля λ < ξ<sub>ab</sub>(T) і поверхнева енергія додатна та при збільшені магнітного поля вище критичного поля H<sub>c</sub> надпровідність руйнується.
- надпровідники II роду, де  $\lambda > \xi_{ab}(T)$  і поверхнева енергія границі розділу надпровідної та нормальної фаз від'ємна. А при підвищені зовнішнього магнітного поля до так званого першого критичного поля  $H_{c1}$ , магнітне поле починає поступово проникати у надпровідник в деяких місцях, навколо яких утворюються вихрові струми, так звані вихори Абрикосова. Якщо продовжувати збільшувати зовнішнє магнітне поле до другого критичного поля  $H_{c2}$ , то таких вихорів стає більше. При  $H_{c2}$  ці вихори заповняють весь обсяг надпровідника і надпровідність руйнується [39, 50].

Переважна більшість практичних застосувань надпровідників використовує саме надпровідники другого роду. Використовуваний у дисертації ВТНП не є винятком, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> це надпровідник II роду, бо у цьому ВТНП завжди глибина проникнення магнітного поля  $\lambda > \xi_{ab}(T)$ . Передбачається, що збільшення величини магнітного поля буде збільшувати питомий опір  $\rho(T)$ , ширину резистивного переходу  $\Delta T_c$  та довжину когерентності вздовж осі  $c \xi_c(0)$ , але зменшувати як  $T_c$ , так і діапазон НП флуктуацій  $\Delta T_f$ .

На ФЛП та ПЩ в монокристалі YBCO також впливає опромінення високоенергетичними електронами. Опромінення електронами, у нашому експерименті з енергією 2,5 МеВ, призводить до помітного зміщення O, Cu, Y, Ba в кристалі та утворення великої кількості дефектів за рахунок зміщення всіх атомів. Падаючі електрони з високою енергією, використані в експерименті, з високою ймовірністю можуть видалити частину атомів кисню з площин CuO<sub>2</sub>, таким чином зменшуючи густину носіїв заряду  $n_f$ , але збільшуючи швидкість їх розсіювання, особливо при високих температурах. Це має призвести до спостережуваного зниження  $T_c$ , та збільшення  $\rho(T)$  і  $d\rho/dT$ .

I останнє, але не менш важливе, це вплив довготривалого зберігання на монокристал  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , або іншими словами, — старіння цього зразка при нормальних умовах. У матеріалах для написання цієї роботи, вимірювання питомого опору зразка проводилися одразу після виготовлення, а потім через 6 та 17 років. Стосовно експериментальних досліджень впливу довготривалого зберігання на монокристал  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , я зміг приймати безпосередню участь в них лише на завершальному етапі.

Зрозуміло, що під впливом часу у надпровіднику повинні утворюватися дефекти, які мають прямий вплив на характеристики надпровідника. Результати аналізу експериментальних данних виявились дуже цікавими, про що буде показано у відповідному розділі дисертаційної роботи.

## РОЗДІЛ 2. ОБ'ЄКТИ І МЕТОДИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ

# 2.1. Технологія виготовлення ВТНП плівок за допомогою імпульсного лазерного напилення

У експериментах із впливом магнітного поля на надпровідник (Розділ 3), використовувалися тонкі епітаксійні плівки YBCO. Вони були нанесені методом імпульсного лазерного напилення (pulsed laser deposition – PLD) при T = 770 °C під тиском кисню 3 мбар на підкладки (LaAlO<sub>3</sub>)<sub>0,3</sub>(Sr<sub>2</sub>TaAlO<sub>6</sub>)<sub>0.7</sub>, як описано в [51,52]. Товщина нанесених плівок,  $d \sim 100$  нм, контролювалася часом осадження відповідних мішеней. Рентгенівський аналіз показав, що всі зразки являють собою чудові текстуровані плівки з віссю *c*, ідеально орієнтованою перпендикулярно поверхні плівки, тобто площинам CuO<sub>2</sub>.

Метод імпульсного лазерного напилення [53] дає можливість приготувати плівки багатокомпонентних матеріалів, таких як ВТНП плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub> з високоякісною кристалічною структурою. Основною відмінною рисою цього методу є поява плазмового факела в просторі між мішенню та підкладкою, що виникає в результаті опромінення мішені високоенергетичними лазерними імпульсами. Важливим моментом є те, що час, необхідний для розігріву поверхні мішені до температури, при якій починається випаровування, менше, ніж 2 нс. В результаті чого, імпульс лазера, тривалість якого 30 нс, взаємодіє з уже випаруваними частинками, продовжуючи їх розігрів і утворюючи плазму. Очевидно, що плазма поглинає падаючі фотони тільки в тій області, де її щільність досить велика, тобто біля підкладки. Механізм поглинання фотонів і швидкої трансформації теплової енергії в кінетичну контролює ізотермічну температуру плазми і формує саморегулюючий режим поблизу поверхні мішені. Через це, поблизу мішені виникає сильний градієнт щільності, та високотемпературна і високощільна плазма поширюється в вакуум. Основною перевагою цього методу є те, що за його допомогою точно відтворюється композиційний склад мішені в випаруваній субстанції, а значить і в самій плівці. Що є основною властивістю

40

метода лазерного напилення, що виникає в результаті утворення плазми і її спрямованого руху від мішені до підкладки [53].

#### 2.2. Методи вирощування монокристалів ВТНП УВа2Си3О7-8

Створення ВТНП монокристалів це обширна та цікава тема, тому у цьому розділі стисло розглянуто методику вирощування монокристалів YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, які використовувалися в експериментах з опромінення високоенергетичними електронами (Розділ 4) та довготривалого зберігання (Розділ 5). Тетрагональна фаза монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> при температурах 1020 ÷ 1040 °C розкладається по перитектичній реакції з виділенням кисню та утворенням Y<sub>2</sub>BaCuO<sub>5</sub> фази. Що відсікає можливість вирощування кристалів традіційними способами, такими як метод Чохральського або метод Вернейля [54]. В таких випадках найпоширінишим способом отриманням монокристалів YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> є розчин-розплавний метод з використанням в якості розчинника надлишку сполук Cu<sub>2</sub>O і BaCuO в молярному співвідношенні 1 : 3. Даний метод має декілька переваг:

- ➢ згідно з дослідженнями псевдобінарних розрізів Cu<sub>2</sub>O-BaCuO, CuO-YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> та BaCuO-YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> показало наявність подвійних евтектик, а сполуки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Cu<sub>2</sub>O і BaCuO утворюють потрійну евтектику при атомному співвідношенні елементів Y:Ba:Cu=0.7:25:75 [55]. При використанні сполук, зміщених в область збагачену іттріем, спочатку кристалізується фаза YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, що дозволяє отримати монокристали розміром 5×5×0.2 мм [56].
- виключення забруднення кристалів хімічними елементами, що входять до складу розчин – розплаву, оскільки всі хімічні елементи розчин - розплаву входять до складу синтезованої сполуки. Найкращі надпровідні характеристики були отримані для кристалів, вирощених в золотих тиглях [56].

Але існують і інші методи віготовлення монокристалів YBCO, наприклад такі як звичайний флюсовий метод [57]. Однак, слід зазначити, що у всіх методах, якщо не дотримуватися особливої технології [57-59], монокристали ВТНП завжди містять дефекти у вигляді двійників (рис. 2.1), які з'являються в процесі виробництва і дозволяють мінімізувати внутрішню енергію кристала [60-64]. На монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-б</sub> з двійниками було проведено експерименти з довготривалого зберігання (старіння) (Розділ 5). Монокристали були вирощені методом розчин-розплав у золотому тиглі, як зазначено в [56]. Для виконання кристали вимірювань питомого опору були обрані прямокутні приблизно 2×0,5×0,02 мм. Найменший параметр кристала відповідає осі *с*.



Рис. 2.1. Знімок ділянки монокристалу з односпрямованими двійниками. Світлі смужки - це границі двійників зі зниженою щільністю носіїв заряду.

В експериментах з опроміненням (Розділ 4) монокристали YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> вирощувалися традиційним флюсовим методом [57, 58]. В даному випадку робилася спроба прибрати двійники шляхом роздвійникування (detwinning) [57-59]. Спочатку кристали піддаються відпалу, щоб забезпечити необхідний вміст кисню, отже, і  $T_c$ . Кристали завжди загартовують наприкінці високотемпературного відпалу, щоб уникнути явищ далекого впорядкування кисню, які часто ускладнюють фізику YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> [58]. Роздвійникування зазвичай виконується при температурах нижче 220 °C під одновісним тиском 0,1 ГПа під час моніторингу поверхні кристала за допомогою мікроскопа з поляризованим світлом.

Таким чином, усі отримані таким чином зразки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> вважаються недвійниковими монокристалами з  $T_c$  відпалених кристалів у діапазоні (90–92) К і шириною переходу  $\Delta T_c \sim 1$  К. Зрештою, були досліджені оптимально доповані кристали з кисневим індексом (7- $\delta$ ) ~ 6,96. Для оцінки вмісту кисню у наших кристалах ми порівнювали значення  $T_c$ , взяті при  $\rho(T) = 0$  на екстраполірованому надпровідному переході, з літературними даними [58].

#### 2.3. Методика експерименту

#### 2.3.1. Нанесення електроконтактів для резистивних досліджень

Тонкі епітаксійні плівки ҮВСО були виготовлені методом імпульсного лазерного напилення [53] (див. 2.1). За допомогою фотолітографії на плівки наносили відповідний візерунок і хімічно цькували в чітко виражені структури Холла розміром 2,35×1,24 мм. Крім великих майданчиків під струмові контакти по краях структури, вздовж зразка формували дві пари поперечних контактів для вимірювання поздовжної  $V_{xx}$ , а також і поперечної  $V_{xy}$  холлівської напруги. Для виконання контактів до контактних майданчиків за допомогою провідної срібної пасти приклеювалися золоті дроти малого діаметра. Зазвичай контактний опір був нижче 1 Ом. Таким чином, така конфігурація контактів дозволяла використовувати чотиризондовий метод для вимірювання опору у площинах *ab*,  $\rho_{ab}(T) = \rho(T)$ . Вимірювання проводилися на повністю комп'ютеризованій установці Quantum Design Physical Properties Measurement System (PPMS-9) з використанням струму збудження ~100 мкА на частоті 19 Гц. Це лабораторне обладнання дозволяє вимірювати температурну залежність питомого опору на малих зразках в щирокому температурному діапазоні 0,05 – 400 К і в магнітних полях до 9 Тл [65].

Для проведення резистивних вимірювань монокристалів, зразки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- δ</sub>, бажано у вигляді прямокутних паралелепіпедів, відбирають з однієї дослідної партії, задля більш точних результатів вимірювань. Геометрію зразка підбирають таким чином, щоб, вектор транспортного струму був паралельним площині *ab*. Для цього електричні струмові контакти кріплять шляхом нанесення срібної пасти на кінці кристала для досягнення однорідного розподілу струму в центральній частині зразка, де розташовуються потенційні контакти, як схематично показано на рис. 2.2.



Рис. 2.2. Стандартна схема чотириконтактної методики вимірювання опору монокристалів YBCO, де вісь с спрямована перпендикулярно вимірювальному струму.

Таким чином. вимірах монокристалів застосовується також y чотиризондовий метод вимірювання опору в площинах *ab* (рис. 2.3). Цей метод застосовується до плоского зразка, тобто товщина зразка вздовж осі с повинна бути набагато меншою за відстань між контактами, як показано на рис 2.3. Основні вимірювання також проводилися на повністю комп'ютеризованій установці Ouantum Design Physical Properties Measurement System (PPMS-9). Використовуваний метод забезпечує експериментальну точність вимірювань не менше 3% [65]. У експериментах зі зразкоми під впливом електронного

опромінення монокристали YBCO вирощували з використанням флюсового методу [57]. Кристали являли собою дрібні пластинки з типовими розмірами (1,5...2) × (0,2...0,3) × (0,01...0,06) мм, де найменший розмір відповідав осі *с*. Невеликі розміри зразків були необхідні для мінімізації часу опромінення при обмеженому струмі опромінення.

Зазвичай монокристали ВТНП містять різні дефекти, переважно двійники та границі двійників [64,66,67], які заважають чіткій інтерпретації результатів [63]. У даному випадку робилася спроба роздвійникування (detwinning) [57-59] (див. 2.2) і зразки вважалися бездвійниковими [58,69].



Рис. 2.3. Знімок монокристалла ҮВСО підготовленого для вимірів.

Зразки занурювали в рідкий Не і використовували потік електронів, обмежений 10<sup>14</sup> (e/cm<sup>2</sup>)/c, щоб уникнути нагрівання зразків [68]. Опромінення проводили електронами з енергією 2,5 МеВ в низькотемпературній установці прискорювача Ван де Граафа ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут» (Харків, Україна). Для забезпечення рівномірного розподілу наведених дефектів по

об'єму зразка товщина зразків (≈ 10–60 мкм) вибиралася значно меншою за глибину проникнення електронів. Розраховані втрати енергії для електронів 2.5 МеВ для YBCO становлять ~ 1 кеВ/мкм (див. [69, 70] і посилання в них) і не перевищують (3–8)% для використовуваної товщини кристала. Спеціально розроблений гелієвий кріостат [68] дав змогу вимірювати опір після опромінення в діапазоні температур (10 < T < 300) К.



Рис. 2.4. Блок-схема установки для вимірювання температурної залежності електроопору під впливом електронного опромінення. Генератор електронів не показаний.

Блок-схема установки для вимірювання температурної залежності електроопору показано на рис. 2.4. Постійний струм подавався на зразок зі стабілізованого джерела живлення. Вимірювана напруга подавалася на комп'ютер. Як завжди при вимірюваннях опору використовувалася чотириконтактна схема розташування контактів на кристалі, як показано на рис. 2.3. У схемі, що показана на рис. 2.4 також передбачено можливість вимірювання першої похідної вольтамперної характеристики зразка на змінному струмі. Проте у наших експериментах ця частина схеми не використовувалася. Температуру вимірювали платиновим датчиком з точністю близько 1 мК. У всіх випадках експерименти проводилися з кроком приблизно 0.2 К поблизу  $T_c$  і 0.5 К при  $T >> T_c$ .

# РОЗДІЛ З. ВПЛИВ МАГНІТНОГО ПОЛЯ НА ВЛАСТИВОСТІ ТОНКИХ ПЛІВОК УВа2Си3О7-б

Не зважаючи на те, що кількість робіт, присвячених дослідженню високотемпературної надпровідності та, зокрема, псевдощілини, винятково велика, кількість робіт присвячених вивченню впливу сильного магнітного поля на надлишкову провідність та псевдощілину в купратних ВТНП явно недостатньо.

Як приклад ми розглянули кілька цікавих робіт, у яких була спроба аналізу надлишкової провідність ҮВСО в сильних магнітних полях [45-47]. У роботі [45] для дослідження ФЛП були використані як *В*//*ab*, так і *В*//*c* орієнтації зовнішнього магнітного поля в допованих алюмінієм монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-z</sub>Al<sub>z</sub>O<sub>7-δ</sub> із системою односпрямованих двійникових границь (ДГ). Очевидно, що в цій статті на отримані результати сильно впливають домішки алюмінію та ДГ. Та ще використовується невелике магнітне поле до 1,27 Тл. У роботі [46] зразок також був легований Ag, що сильно вплинуло на результати, але застосоване для дослідження ФЛП, магнітне поле В було до 12 Тл. Нажаль авторами не було вказано, були це полікристали, монокристали чи плівки. Також авторами не було показано еволюцію ФЛП під впливом магнітного поля, а лише були наведені дані для зразку без поля B = 0, та при максимальному полі B = 12 Тл. У роботі [47] ФЛП магнітну сприйнятливість вимірювали в оптимально легованій плівці та YBCO ( $T_c$ = 91,1 K), в полях до 9 Тл перпендикулярно до площини *ab*. Але, як і в роботі [46], автори не показали еволюцію ФЛП під впливом магнітного поля. Також, не було навіть спроб використати флуктуаційні теорії Асламазова-Ларкіна та Макі-Томпсона для опису ФЛП як функії В. У результаті, механізм впливу магнітного поля на ФЛП та вихровий рух в купратних ВТНП ҮВСО все ще незрозумілий.

У дисертаційній роботі повідомляється про дослідження впливу магнітного поля в площині ab на питомий опір  $\rho(T)$  і флуктуаційну провідність  $\sigma'(T)$  тонкої плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> (YBCO) зі збільшенням магнітного поля від 0 до 8 Тл. Оскільки

магнітне поле не впливає на питомий опір у нормальному стані, дослідження проводили в інтервалі температур, що відповідає переходу плівки у надпровідний стан. Дослідження може стати ключем до розуміння формування вихрового стану в YBCO та його еволюції зі збільшенням магнітного поля.

#### 3.1. Дослідження питомого опору та критичної температури

Температурну залежність питомого опору  $\rho(T) = \rho_{ab}(T)$  плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> за відсутності зовнішнього магнітного поля наведено на рис. 3.1. Для температури вище за  $T^*=$  215 K і до T= 300 K залежність  $\rho(T)$  є лінійною з нахилом  $a = d\rho/dT = 2,050$  мкОм·см/К. Нахил було розраховано шляхом апроксимації експериментально отриманих кривих і підтверджено лінійну поведінку  $\rho(T)$  зі середньоквадратичною похибкою  $\Delta\rho(T)=0,009\pm0,002$  мкОм·см у зазначеному інтервалі температур. Температуру  $T^*$ , яка вища за  $T_c$ , визначали як температуру, при якій резистивна крива відхиляється від лінійності вниз (рис. 3.1) (див. Розділ 1.3.2).

Більш точний підхід до визначення  $T^*$  з точністю ± 1 К полягає у дослідженні критерію  $[\rho(T) - \rho_0]/aT = 1$  [71] (вставка на рис. 3.1), де, температура відкриття псевдощілини  $T^*$  виначається як відхилення від одиниці.

Обидва методи дають однакову  $T^*= 215$  К, яка є характерною для добре структурованих плівок YBCO з  $T_c \approx 88$  К і добре узгоджується з літературними даними [58, 72, 73]. Вплив магнітного поля від B=0 до 8 Тл на температурну залежність  $\rho(T)$  показано на рис. 3.2. Як видно з рисунку, магнітне поле помітно розширює резистивний перехід і зменшує  $T_c$ , але, як зазвичай, не впливає на опір у нормальному стані зразка [42, 74, 75]. Температури як  $T_c^{offset}(B)$ , так і температури  $T_c^{onset}(B)$  визначаються прямими  $0, 1\rho_n$  і  $0, 9\rho_n$  відповідно, де  $\rho_n$  — це питомий опір нормального стану поблизу НП переходу. Вимірювання  $T_c^{onset}(B)$  дає змогу визначити температурну залежність верхнього критичного поля  $B_{c2}(T)$ . Обидва методи дають однакову  $T^*= 215$  К, яка є характерною для добре структурованих плівок YBCO з  $T_c \approx 88$  К і добре узгоджується з літературними даними [58, 72, 73].



Рис. 3.1. Залежність  $\rho(T)$  для плівки  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  за відсутності зовнішнього магнітного поля (B=0, крапки). Суцільна лінія визначає  $\rho_N(T)$ , екстрапольовану в область низьких температур. Менша крапка відповідає температурі  $T^*=215$  К. Вставка: Методика визначення  $T^*$  за критерієм [ $\rho(T) - \rho_0$ ]/aT=1 [71].

Вплив магнітного поля від B = 0 до 8 Тл на температурну залежність  $\rho(T)$  показано на рис. 3.2. Як видно з рисунку, магнітне поле помітно розширює резистивний перехід і зменшує  $T_c$ , але, як зазвичай, не впливає на опір у нормальному стані зразка [42, 74, 75]. Температури як  $T_c^{offset}(B)$ , так і температури  $T_c^{onset}(B)$  визначаються прямими  $0, 1\rho_n$  і  $0, 9\rho_n$  відповідно, де  $\rho_n$  — це питомий опір нормального стану поблизу НП переходу. Вимірювання  $T_c^{onset}(B)$  дає змогу визначити температурну залежність верхнього критичного поля  $B_{c2}(T)$  (рис. 3.3, •)) [75]. Відповідно, вимірювання  $T_c^{offset}(B)$  дають можливість визначити  $B^*(T)$  (рис. 3.3, •). Ми припускаємо, що в певному сенсі поле  $B^*(T)$ , яке визначається при  $0.1\rho_n$ , можна розглядати як поле незворотності (irreversibility), що

зазвичай визначається з вимірювань намагніченості [75-77]. Вважаєтся, що  $B^*(T)$  це лінія незворотності (irreversibility) яка є розділовою лінією між вихровим склом та вихровою рідиною [75 - 77]. Ця лінія визначається температурною залежністю магнітних полів незворотності  $B^*(T)$ , вище якої крива намагніченості є зворотною (reversible) [77], та протікання струму змушує вихори рухатись.



Рис. 3.2. Температурні залежності питомого опору плівки  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , виміряні в області надпровідного переходу в магнітному полі від 0 до 8 Тл, паралельному площині ab:  $\rho_n = 203 \text{ мк}OM \cdot cm$  при T = 92,3 K - питомий опір нормального стану $поблизу НП переходу. 0,9<math>\rho_n$  і 0,1 $\rho_n$  визначають  $T_c^{onset}(B)$  і  $T_c^{offset}(B)$  відповідно.

Це означає, що з'являється розсіювання енергії і зникає надпровідний струм. Обидві величини показані на рис. 3.3 як функції температури. Нагадаємо, що магнітне поле орієнтоване перпендикулярно до осі *с* зразка (*B*//*ab*). Прямі лінії зі стрілками на кінцях, які показують різницю між  $T_c^{onset}(B)$  та  $T_c^{offset}(B)$ , тобто фактично ширину надпровідного переходу, яка очікувано зростає із зростанням поля, позначені як  $\Delta T_c(B)$ .



Рис 3.3. Верхнє критичне поле  $B_{c2}(T)$  (критерій 0.9рп, •) і поле незворотності  $B^*(T)$  (критерій 0.1рп, •) як функція температури для досліджуваної плівки  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Магнітне поле орієнтоване в площині ab. Прямі лінії зі стрілками на кінцях показують різницю між  $T_c^{onset}(B)$  і  $T_c^{offset}(B)$ , позначені як  $\Delta T_c(B)$ .

#### 3.2. Вплив магнітного поля на надлишкову провідність

За високих температур  $T > T^*$  при резистивних вимірюваннях залежність питомого опору  $\rho_{ab}(T) = \rho(T)$  у ВТНП є лінійною. Як зазначено в Розділі 1.3.2, нижче  $T^*$  відбувається відхилення  $\rho(T)$  від лінійної залежності в бік менших значень (див. рис. 3.1), що призводить до надлишкової провідності: яка визначається рівнянням (1.1), де  $\rho_N(T) = aT + b$  – питомий опір зразка в нормальному стані, екстрапольований в область низьких температур [22, 42, 46, 73, 78, 79]. Слід зазначити, що відповідно до моделі [19] лінійна залежність  $\rho(T)$  вище  $T^* \epsilon$  нормальним станом ВТНП, який характеризується стабільністю поверхні Фермі [16, 18, 80]. Згідно з останніми уявленнями [22, 30, 31, 34, 43, 66, 81, 82], мале значення довжини когерентності в поєднанні з квазішаровою структурою ВТНП призводить до утворення помітної області надпровідних флуктуацій на  $\rho(T)$ біля  $T_c$ , де  $\sigma'(T)$  відповідає традиційним флуктуаційним теоріям [17, 22, 43, 44, 83, 84]. Водночає зміни вмісту кисню, наявність домішок та структурних дефектів вже суттєво впливають на  $\sigma'(T)$  і, відповідно, на реалізацію різних режимів ФЛП за температур вище  $T_c$  [66, 85-87]. Флуктуаційна провідність досліджуваної плівки YBCO визначалась шляхом аналізу надлишкової провідності, яку розраховували за стандартною методикою за формулою (1.1). Аналіз ФЛП проводили в рамках моделі локальних пар, в якій передбачається наявність спарених ферміонів (СФ) у BTHП в інтервалі температур  $T^* > T > T_c$  [22, 30, 31, 46, 88]. Спочатку необхідно визначити температуру середнього поля  $T_c^{mf} > T_c$ , що обмежує область критичних флуктуацій поблизу  $T_c$ , де теорія середнього поля не працює [39].



Рис. 3.4. Залежності  $\sigma'^{-2}(T)$  для плівки  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  при B = 0 (•); 3 (•) і 8 (★) Тл. Стрілки вказують  $T_c$ ,  $T_c^{mf}$ , температуру Гінзбурга  $T_G$ , позначену  $\blacktriangle$ , і температуру 3D-2D кроссовера  $T_0$ . Прямими штриховими лініями позначені лінійні ділянки  $\sigma'^{-2}(T)$ .

Крім того, за допомогою визначення  $T_c^{mf}$  можна вичислити зведену температуру, яка визначается рівнянням (1.3) (див. 1.3.2), яка використовується в усіх рівняннях нашого аналізу. З цього зрозуміло, що правильне визначення  $T_c^{mf}$ відіграє ключову роль у розрахунках ФЛП. Поблизу температури  $T_c$  довжина когерентності вздовж осі c,  $\zeta_c(T)$  більша ніж d. Тут  $d \approx 11,7$  Å [41] — параметр ґратки осі c елементарної комірки YBCO [84]. У цьому випадку флуктуаційні куперівські пари поєднуються по всьому надпровіднику й утворюють тривимірний (3D) стан ВТНП (див. 1.3.2). Тому в області температур біля  $T_c$  ФЛП можна описати тривимірним рівнянням теорії Асламазова–Ларкіна [17, 72] з критичним показником  $\lambda = -1/2$ , який визначає ФЛП у будь-якій тривимірній системі (рів. 1.2), де  $C_{3D}$  - це коефіцієнт масштабування.

Оскільки  $\sigma'(T) \sim \varepsilon^{-1/2}$  (див. рів. 1.2), то виходячи з цього ми отримуємо  $\sigma'^{-2}(T) \sim \varepsilon \sim T - T_c^{mf}$ , тобто при  $T = T_c^{mf}$  зведена температура дорівнює в нулю (див. рис. 3.4), таким чином, можна визначити як  $T_c^{mf}$  так і  $\varepsilon$  з високою точністю [46, 52, 79, 81]. Водночас на рис. 3.4 стрілками показано критичну температуру  $T_c$ , температуру Гінзбурга  $T_G$ , до якої справедлива теорія середнего подя [39] і температуру 3D–2D кроссовера  $T_0$ , яка обмежує область 3D флуктуацій. Примітно, що вище  $T_0 = 90.89$  K (див. рис. 3.4) дані відхиляються вправо від лінійної залежності, що вказує на наявність 2D внеску Макі–Томпсона в ФЛП [52]. Якщо 2D-MT внесок в ФЛП пригнічений дефектами, дані завжди відхиляються вліво [42, 89].

Далі, визначивши є, можна побудувати температурні залежності ФЛП у подвійних логарифмічних координатах  $ln\sigma'(ln\varepsilon)$  при різних значеннях B (рис. 3.5). Верхня ліва панель на рис. 3.5 показує відповідну залежність у випадку відсутності магнітного поля. Як і очікувалося, біля  $T_c$ , в інтервалі  $T_G - T_0$  ( $ln \varepsilon_0 = -4,28$ ), ФЛП добре описується флуктуаційним внеском 3D-АЛ (рів. 1.2). У подвійних логарифмічних координатах це пряма лінія АЛ з нахилом  $\lambda = -1/2$ . Як зазначалося вище, це означає, що класична тривимірна  $\Phi \Pi \Pi$  реалізується у ВТНП при  $T \to T_c$ та  $\xi_c(T) > d$  [22, 52, 79, 81]. Вище температури кроссовера  $T_0$ ,  $\xi_c(T) < d$  [22, 43, 84], i це вже не 3D режим. Проте, як і раніше,  $\xi_c(T) > d_{01}$ , де  $d_{01} \approx 3,5$  Å – відстань між провідними YBCO [41]. площинами CuO<sub>2</sub> в Таким чином, ДО температури T<sub>01</sub> ( $ln\varepsilon_{01} = -2,16$ , рис. 3.5, верхня ліва панель)  $\zeta_c(T)$  з'єднує внутрішні площини CuO<sub>2</sub> джозефсонівською взаємодією [22, 84]. Це режим 2D флуктуацій,

який добре апроксимується рівнянням 2D-МТ (крива 2D-МТ) теорії Хікамі– Ларкіна для ВТНП [42] (рів. 1.5 з параметрами (1.6), (1.7) і (1.8), наведеними у підрозділі 1.3.2).



Рис. 3.5. Верхня ліва панель:  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для YBCO при B = 0 у порівнянні з флуктуаційними теоріями: 3D AЛ (лінія 1) та 2D MT (крива 2). Температура  $T_{01}$  $(ln\varepsilon_{01} = -2.16)$  визначає діапазон НП флуктуацій,  $T_0$  ( $ln\varepsilon_0 = -4.28$ ) – температура кроссовера 3D–2D і  $T_G$  ( $ln\varepsilon_G = -5.39$ ) – температура Гінзбурга. Нижня ліва панель: ті самі залежності для B = 1 Тл. Верхня права панель: Ті самі залежності, що й в лівій, тільки для B = 3 Тл. Нижня права панель: Ті самі залежності, що й лівій, тільки для B = 8 Тл. В обох випадках (на панелях праворуч) внесок MT повністю пригнічений магнітним полем і  $\sigma'$  вище  $T_0$  описується рівнянням 2D АЛ (синя лінія). Область НП флуктуацій, як і раніше, обмежена зверху  $T_{01}$ . Дані для B = 0.5, 2, 4, 5, 6 та 7 Тл не показані (див. текст).

Вище  $T_{01}$  експериментальні крапки остаточно відхиляються вниз від теорії (рис. 3.5), що означає, що класичні флуктуаційні теорії більше не дійсні.

Таким чином,  $T_{01}$  обмежує зверху область НП флуктуацій  $\Delta T_{fl} = T_{01} - T_G$ . І навпаки,  $T_G$  обмежує область НП коливань знизу.

У результаті, нижче  $T_G$ , позначеного як  $ln\varepsilon_G$  на рис. 3.5, експериментальні крапки також відхиляються від теорії в бік зниження, що свідчить про перехід в область критичних флуктуацій або флуктуацій надпровідного параметра порядку  $\Delta$  безпосередньо біля  $T_c$ , де  $\Delta < kT$  [22, 39, 65]. При  $T_0$ ,  $\zeta_c(T_0) = d = 11,7$  Å, що дозволяє визначити  $\zeta_c(0)$  за рівнянням (1.9) [22, 52, 72,73]. Враховуючи, що  $ln\varepsilon_0 = -4,28$  (рис. 3.5, верхня ліва панель) та використовуючи рівняння (1.9) отримуємо  $\zeta_c(0) = (1,38 \pm 0,02)$  Å (B = 0), що добре узгоджується з  $\zeta_c(0) = (1,65 \pm 0,02)$  Å, отриманим для добре структурованої плівки YBCO з трохи нижчою  $T_c = 87.4$  К (зразок F1 в [72]), але майже в 1.6 рази перевищує довжину когерентності вздовж осі c, отриману для ОД бездвійникового монокристала YBCO з  $T_c = 91.6$  К (зразок A1 в [59]).

Однак, в обох зразках при B = 0 область НП флуктуацій приблизно однакова:  $\Delta T_{fl} = T_{0l} - T_G = 100 \text{ K} - 90.06 \text{ K} \approx 9.9 \text{ K}$  (табл. 3.1). Обидва результати вказують на кращу узгодженість між властивостями тонкої плівки та монокристала і припускають справедливість класичного співвідношення [39]:

$$\xi_0 \sim \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta(0)} \sim \frac{1}{T_c},$$
 (3.1)

враховуючи той факт, що надпровідна щілина  $\Delta(0) \sim k_B T_c$  [39] і в плівках ҮВСО швидкість Фермі  $v_F$  майже не залежить від  $T_c$  [46, 72]. Крім того, очевидно, що  $\xi_c(T_{0l}) = d_{0l}$ , а оскільки  $\xi_c(0)$  уже визначено рівнянням (1.9) можна розрахувати  $d_{0l}$  із співвідношення  $\xi_c(0) = d\sqrt{\varepsilon_0} = d_{01}\sqrt{\varepsilon_{01}}$ . Для B=0 розрахунки дають  $d_{0l} = (4, 1 \pm 0, 2)$  Å, що добре узгоджується з літературними даними [41, 52, 59]. Окрім B = 0 на рис 3.5 наведено залежності  $ln\sigma'(ln\varepsilon)$  для магнітних полів 1, 3 та 8 Тл. Видно, що зі збільшенням B внесок 2D МТ флуктуацій поступово пригнічується, а  $\Delta T_{fl} = T_{0l} - T_G$  також поступово зменшується, але лише до ~ 2,5 Тл (табл. 3.1). Зрештою, дещо несподівано, вище  $B \approx 3$  Тл,  $ln\sigma'(ln\varepsilon)$  при  $T > T_0$  тепер добре описується флуктуаційним внеском 2D АЛ [17] (рів. 1.4), де d = товщина зразка. Одночасно істотно зростає як  $T_{01}$  ( $ln\varepsilon_{01}$  на рисунках), тобто діапазон НП флуктуаций, так і  $T_0$  ( $ln\varepsilon_0$  на рисунках), тобто  $\zeta_c(0)$  (табл. 3.1). Відповідні дані для B = 0.5, 2, 4, 5, 6 та 7 Тл не показані, оскільки вони повністю підтверджують тенденцію зміни ФЛП з магнітним полем, наведену на рис. 3.5.

Таблиця 3.1. Параметри ФЛП аналізу плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> під впливом зовнішнього магнітного поля.

В,	Тс,	$T_c^{mf}$ ,	То,	$\ln \varepsilon_0$	<i>T01</i> ,	$\ln \varepsilon_{01}$	<i>T</i> <sub><i>G</i></sub> ,	$\ln \varepsilon_G$	$\Delta(T_{fl}),$	$\xi_{c}(0),$	$\xi_c(0)_{theory}$ ,
Т	K	Κ	K		K		K		Κ	Å	Å
0	88.7	89.65	90.89	-4.28	100.0	-2.16	90.06	-5.39	9.9	1.38	1.38
0.5	88.3	89.50	91.14	-4.00	96.8	-2.50	89.89	-5.43	6.9	1.58	1.39
1	87.9	89.40	91.12	-3.95	94.5	-2.87	89.89	-5.20	4.6	1.62	1.39
2	87.2	89.06	92.69	-3.20	94.0	-2.89	89.60	-5.10	4.4	2.36	1.40
3	86.6	88.88	100	-2.08	120.0	-1.05	89.51	-4.94	30.5	4.13	1.41
4	86.0	88.67	100	-2.06	120.0	-1.04	89.44	-4.75	30.6	4.18	1.42
5	85.6	88.46	100	-2.04	115.0	-1.20	89.24	-4.73	25.8	4.22	1.43
6	84.9	88.30	100	-2.02	115.0	-1.20	89.26	-4.51	25.8	4.26	1.44
7	84.5	88.09	98.4	-2.15	115.0	-1.19	89.10	-4.47	25.9	3.99	1.45
8	84.0	87.90	98.1	-2.15	115.0	-1.18	89.02	-4.36	26.0	3.99	1.46

Як видно з таблиці 3.1, довжина когерентності  $\xi_c(0)$  зростає від 1,38 Å (B = 0) до 3,99 Å (B = 8 Тл) відповідно до рів. (3.1), оскільки  $\xi_c(0) \sim 1/T_c$ , а магнітне поле поступово зменшує  $T_c$  (табл. 3.1). Однак  $\xi_c(0)$ , виміряна в магнітному полі, неочікувано демонструє незвичайну залежність  $\xi_c(0)(T_c)$  (рис. 3.6, крива 1). Видно, що отримана  $\xi_c(0)(T_c)$  істотно відрізняється від теоретичної  $\xi_c(0)(T_c)$  (рис. 3.6, крива 2), яка розраховується за рів. (3.1) при B = 0 з  $v_F = 1,16 \cdot 10^5$  м/с та коефіцієнтом пропорційності K = 0.11, отриманим для YBCO плівки F1 в [72]. Цікаво, що при B = 3 Тл, знайдена  $\xi_c(0)$  різко зростає приблизно в 3 рази потім ще трохи зростає до  $\xi_c(0)= 4.26$  Å при B = 6 Тл, а потім зменшується до 3.99 Å та залишається майже незалежною від B (табл. 3.1 і рис. 3.6). Оскільки рівняння (3.1) досить просте і  $T_c$  зменшується рівномірно та не дуже сильно, можна зробити висновок, що магнітне поле повинно, якимось чином, збільшувати  $v_F$  і, очевидно, що не монотонним чином. Або більш ймовірно, що рівняння класичної надпровідності (3.1) не застосовується у ВТНП за наявності магнітного поля.



Рис. 3.6. Температурні залежності  $\xi_c(0)$  плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, розраховані з виміряних в експерименті значень lnɛ<sub>0</sub> за рівнянням (1.9), (крапки з відповідними значеннями поля позначені стрілками), та значення  $\xi_c(0)$  теорії (квадрати), розраховані при B = 0 за формулою (3.1).

Відповідно до цього,  $\Delta T_{fl}$  також різко зростає при B = 3 Тл і також приблизно в 3 рази. Потім  $\Delta T_{fl}$  зменшується до 26.0 К при B = 8 Тл, причому, що цікаво, демонструючи дві майже лінійних ділянки від 3 Тл до 4 Тл ( $\Delta T_{fl} \approx 30.6$  К) і від 5 Тл до 8 Тл ( $\Delta T_{fl} \approx 25.9$  К) (див. табл. 3.1). За нашими даними, такі незвичайні перетворення  $\xi_c(0)$  і  $\Delta T_{fl}$ , які виходять з аналізу ФЛП під зовнішнім впливом, спостерігаються вперше. Дійсно, у плівках YBCO з дефектами [42, 89]  $ln\sigma'(ln \epsilon)$  завжди описується моделлю Лоуренса-Дониаха [90]:

$$\sigma_{LD}' = C_{LD} \frac{e^2}{16\hbar d} \frac{1}{\varepsilon \sqrt{1+2\alpha}},\tag{3.2}$$

яка зводиться до 3D АЛ при  $T \rightarrow T_c$  і до 2D АЛ за високих температур [42]. Наприклад, рівняння (3.2) добре працює для монокристалів Y<sub>1-x</sub>Pr<sub>x</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> [91], де збільшення кількості дефектів, породжених Pr, призводить як до помітного зниження  $T_c$ , так і до значного збільшення питомого опору та зміни величини ФЛП.

Крім того, у всіх випадках, коли немає магнітного поля, ширина резистивного переходу  $\Delta T_c$  залишається досить вузькою, і поведінка 2D АЛ  $ln\sigma'(ln\varepsilon)$  ніколи не спостерігалася. Крім того, магнітне поле не впливає на питомий опір у нормальному стані вище початкової критичної температури  $T_c$  [42, 75], як зазначено вище. Також варто відзначити відсутність видимих особливостей на кривих питомого опору (рис. 3.2), отриманих при різних значеннях магнітного поля *B* в діапазоні надпровідних флуктуацій. Враховуючи все вищесказане, можна зробити висновок, що вплив зовнішнього магнітного поля не зводиться до простого внесення додаткового безладу в систему. І, власне, виявлена трансформація ФЛП з 2D-МТ у 2D-АЛ під дією магнітного поля залишається відкритим питанням. Швидше за все, магнітне поле може утворювати в плівці двовимірну вихрову гратку, що призводить до спостереження 2D-АЛ ФЛП вище  $T_0$ , коли *B* перевищує 3 Тл.

# 3.3. Температурна залежність псевдощілини YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> під впливом магнітного поля

Як зазначено вище (див. Розділ 1.3), купрати мають псевдощілину (ПЩ), яка відкривається за температур нижче  $T^*$  і призводить до появи надлишкової провідності  $\sigma'(T)$  (рівняння 1.1). Таким чином, вважається, що  $\sigma'(T)$  має містити інформацію про величину та температурну залежність псевдощілини [46, 63, 92].

Проте відкритим залишається питання: як отримати цю інформацію, оскільки досі немає строгої теорії ВТНП. Як зазначалося вище, псевдощілина у купратах може бути пов'язана з утворенням локальних пар (ЛП) при  $T < T^*$ , які при  $T \le T^*$ з'являються у формі СЗБ, що підлягають теорії БЕК, але зі зниженням температури вони поступово змінюють свої властивості до великих флуктуаційних куперівських пар поблизу Т<sub>с</sub>, підкоряючись теорії БКШ [22, 30, 93-95]. Класичні флуктуаційні теорії Асламасова-Ларкіна (3D АЛ) [17] і Макі-Томптона (2D МТ), модифіковані Хікамі і Ларкіним (ХЛ) [43] для ВТНП добре описують експериментальну  $\sigma'(T)$  у купратах, але лише в діапазоні НП флуктуацій, тобто зазвичай не більше ніж на 20 К вище Т<sub>с</sub> [22,52]. Очевидно, що для отримання інформації про ПЩ у всьому діапазоні температур, від  $T^*$  до  $T_G$ , необхідно рівняння, яке описує всю експериментальну криву  $\sigma'(T)$  і містить ПЩ параметр  $\Delta^*(T)$  у явному вигляді. Таке рівняння було запропоновано в роботі [46] із урахуванням моделі ЛП. Це рівняння 1.11, в якому (1-  $T/T^*$ ) та  $exp(-\Delta^*/T)$  враховують динаміку утворення ЛП при  $T \leq T^*$  та їх руйнування тепловими флуктуаціями kT поблизу  $T_c$ , відповідно. Розв'язавши рівняння (1.11) відносно  $\Delta^*(T)$  отримаємо рівняння (1.12) для псевдощілини, у якому  $\sigma'(T)$  то експериментально виміряна надлишкова провідність у всьому діапазоні температур від  $T^*$  до  $T_G$ . Відповідно,  $A_4 \in$  числовим коефіцієнтом, який має значення *C*-фактора в теорії  $\Phi \Pi \Pi, \Delta^*(T_G)$  є значенням  $\Pi \coprod$ параметра поблизу  $T_c$  і  $\varepsilon^*_{c0}$  є певним теоретичним параметром, який детально обговорюється нижче [22, 46, 73, 96].

Як бачимо, рівняння (1.11) та (1.12) містять ряд параметрів, які, що важливо, можна визначити експериментально [22, 46, 52, 79]. Такі параметри як  $T^*$ ,  $T_c^{mf}$ , зведена температура  $\varepsilon = (T - T_c^{mf})/T_c^{mf}$  та  $\xi_c(0)$  при різних значеннях *B* вже були визначені вище (див. табл. 3.1).  $T_c^{mf}$  визначає зведену температуру і, отже, має першочергове значення для ФЛП та ПЩ аналізу [22, 42, 46]. Насправді  $T_c^{mf}$  критична температура середнього поля, що відокремлює діапазон НП флуктуацій від критичних флуктуацій в області  $T_c$ , де параметр НП порядку  $\Delta < kT$  і теорія середнього поля Боголюбова не працює [39, 97, 98]. Щоб знайти  $T_c^{mf}$ , ми використовуємо той факт [17, 22, 42, 52], що в усіх ВТНП поблизу  $T_c$  надлишкова провідність  $\sigma'(T)$  завжди описується стандартним рівнянням теорії 3D АЛ [17], в якій  $\sigma'_{AL3D} \sim \varepsilon^{-1/2} \sim (T - T_c^{mf})^{-1/2}$ . Відповідно до цього,  $\sigma'^{-2} \sim (T - T_c^{mf})$  і перетин його лінійної екстраполяції з віссю температури якраз визначає  $T_c^{mf}$ , оскільки  $\sigma'^{-2} = 0$ при  $T = T_c^{mf}$  [42]. Зауважимо, що  $T_c^{mf} > T_c$  завжди. Також температура Гінзбурга  $T_G > T_c^{mf} \epsilon$  ще однією характеристикою, до якої працює теорія середнього поля [39]. Як видно з таблиці 3.1, магнітне поле впливає на всі характерні температури, крім  $T^* = 215 \ K$ , яка фактично залишається незмінною і тому не показана. Такі ж висновки про незалежність  $T^*$  від магнітного поля були отримані як для сполук YBCO [16], так і для сполук Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+y</sub> (Bi-2212) [99, 100], незважаючи на дуже сильні магнітні поля, що використовуються в експерименті.

ежност	і віо прі	иклаоен	ного магнітно	го поля.		
В, Тл	$\varepsilon^*{}_{c0}$	$A_4$	$2\Delta^*(T_G)/k_BT_c$	T <sub>pair</sub> , K	$\Delta^*(T_{pair})/k_B, K$	$\Delta^*(T_G)/k_B, K$
0	0.26	7.7	5.0	140	254	219.5
0,5	0.28	9.3	5.0	140	254	218.3
1	0.25	9.65	5.0	140	254	217.8
2	0.25	15.3	5.0	135	254	215.3
3	0.25	27.1	5.0	135	254	215.4
4	0.25	27.8	5.0	135	254	213.4
5	0.25	28.5	5.0	130	254	211.4
6	0.25	29.1	5.0	130	254	209.8
7	0.25	27.7	4.9	130	254	207.2
8	0.25	28.0	4.9	130	254	203.8

Таблиця 3.2. Параметри аналізу псевдощілини для плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> в залежності від прикладеного магнітного поля.

Ці результати ще раз підкреслюють добре відомий факт, що навіть сильне магнітне поле (~ 80 Тл, [21]) не має помітного впливу на питомий опір купратів у

нормальному стані. Усі відсутні параметри, необхідні для рівняння 1.11 і 1.12, такі як теоретичний параметр  $\varepsilon_{c0}^*$ ,  $\Delta^*(T_G)$  і коефіцієнт  $A_4$  також можуть бути визначені з експерименту за допомогою підходу, розробленого в рамках моделі ЛП [46, 59, 72, 93]. На рис. 3.7 наведено залежності  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для B = 0, 1, 3 і 8 Тл у всьому діапазоні температур від  $T^*$  до  $T_G$ .



Рис. 3.7.  $ln\sigma' i ln\varepsilon$  (символи), нанесені на графік у всьому діапазоні температур від  $T^*$  до  $T_c^{mf}$  для B = 0 (ліва верхня панель), 1 Тл (ліва нижня панель), 3 Тл (права верхня панель) і 8 Тл (права нижня панель). Червоні суцільні криві на кожній панелі відповідають даним рівняння (1.11). Вставки:  $ln\sigma'^{-1}$  як функція  $\varepsilon$ . Прямі червоні лінії позначають лінійні частини кривих між  $\varepsilon_{c01}$  і  $\varepsilon_{c02}$ . Нахил  $\alpha^*$  визначає параметр  $\varepsilon^*_{c0} = 1/\alpha^*$  (див. текст).

Теоретично було показано [96], що  $\sigma'^{-1} \sim exp(\varepsilon)$  в певному діапазоні температур, позначеному стрілками  $ln\varepsilon^*_{c01}$  і  $ln\varepsilon^*_{c02}$  на головних панелях. Ця особливість виявляється однією з основних властивостей більшості ВТНП [22, 46, 72]. В результаті в інтервалі  $\varepsilon_{c01} < \varepsilon < \varepsilon_{c02}$  (див. вставки на панелях)  $ln\sigma'^{-1} \epsilon$  лінійною функцією  $\varepsilon$  з нахилом  $\alpha^*$ , який визначає параметр  $\varepsilon^*_{c0} = 1/\alpha^*$  [96]. Такий підхід дає змогу отримати достовірні значення  $\varepsilon^*_{c0}$  для всіх значень прикладеного магнітного поля, наведених у табл. 3.2.



Рис. 3.8. Графік залежності  $ln\sigma'$  від 1/Т для B = 0 (верхня панель, чорні кружечки) та 8 Тл (нижня панель, рожеві кружечки) у всьому діапазоні температур від  $T^*$ до  $T_G$ . Суцільні червоні та чорні криві на кожній панелі відповідають даним рівняння (1.11). Найкраща апроксимація спостерігається при  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c = 5,0 \pm 0,05$  (B = 0) та  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c = 4,9 \pm 0,05$  (B = 8 Тл).

На рис. 3.8 представлені ті самі залежності для B = 0 Тл (верхня панель) та B = 8 Тл (нижня панель), але в координатах  $ln\sigma'$  від 1/T. Як показано у посиланнях [22, 52, 72], у цьому випадку ПЩ параметр  $\Delta^*(T_G)$  суттєво впливає на форму теоретичних кривих, наведених на рис. 3.8, при  $T > T_{01}$ , тобто помітно вище області НП флуктуацій.

Таким чином, шляхом вибору найкращого підходу можна визначити правильне значення  $\Delta^*(T_G)$  (Таблиця 3.2). Крім того, встановлено, що  $\Delta^*(T_G) = \Delta(0)$ , де  $\Delta - H\Pi$  щілина [101, 102]. Найкраще наближення  $ln\sigma'$  як функції l/T з рівняння (1.11) для випадку B = 0 досягається при  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c = 5,0 \pm 0,05$  (табл. 3.2), що відповідає межі сильного зв'язку, характерний для УВСО [72, 103, 104-106]. Коли  $\varepsilon_{c0}^*$ і  $\Delta^*(T_G)$  відомі, коефіцієнт  $A_4$  можна визначити шляхом апроксимації даних  $\sigma'(\varepsilon)$ за рівнянням (1.11) та за допомогою знайдених параметрів (табл. 3.1, 3.2). При правильному виборі  $A_4$  (табл. 3.2) теорія поєднується з експериментом в області 3D флуктуації АЛ поблизу  $T_c$ , де  $ln\sigma'(\varepsilon)(ln\varepsilon)$  є лінійною функцією приведеної температури  $\varepsilon$  з нахилом  $\lambda = -1/2$  [22, 46, 52, 72] (рис. 3.7). Як видно з рисунку (червоні криві), рівняння (1.11) добре описує експеримент при температурах від  $T^*$ до  $T_G$  як при B = 0, так і для всіх прикладених магнітних полів. Однак варто зазначити, що якщо В вище ~ 2.5 Тл, в інтервалі температур від  $T_{c01}$  до  $T_{c02}$  ( $ln\varepsilon_{c01}$  і  $ln\varepsilon_{c02}$  на рис. 3.7), експериментальні дані дещо відхиляються вниз від теоретичної кривої. Швидше за все це пов'язано з тим, що при B> 2,5 Тл температурна залежність ФЛП змінюється з 2D МТ на 2D АЛ, що не враховується в моделі ЛП. При B = 0 (ліва верхня панель) параметри:  $A_4 = 7,7, \varepsilon_{c0}^* = 0,26$  і  $\Delta^*(T_G)/k_B = 219,5$  К (табл. 3.2). Значення відповідних параметрів для всіх магнітних полів також наведено в таблицях. Як видно, усі параметри, крім  $2\Delta^*(T_c)/k_BT_c$ , помітно змінюються зі зміною поля, що свідчить про можливий вплив поля і на ПЩ.

Той факт, що всі залежності  $\sigma'(T, B)$  добре описуються рівнянням (1.11) (рис. 3.7), свідчить про те, що рівняння (1.12) з відповідним набором знайдених параметрів має давати надійні значення, а також температурні та магнітні залежності параметра  $\Delta^*(T, B)$  у будь-якому прикладеному полі.



Рис. 3.9. Псевдощілина  $\Delta^*$  як функція T досліджуваної плівки YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, розрахованої за рівнянням (3.11) для B = 0 (чорні крапки) і 8 Тл (рожеві крапки). Порожні кружечки вказують на характерну температуру  $T_{01}$ , яка обмежує діапазон НП флуктуацій зверху (також на вставці для B = 0). Вставка: Залежності  $\Delta^*(T)$  для температурного інтервалу  $T_G < T < T_{01}$  для B = 0, 0, 5, 1, 2,3, 4, 5, 6, 7 і 8 Тл. Усі характерні температури, як на головній панелі, так і у вставці, позначені стрілками. Крайній лівий символ кожної кривої —  $T_G$ , який обмежує НП флуктуації знизу. Допоміжна чорна крива на вставці допомагає простежити еволюцію в полі для низькотемпературного мінімуму  $T_{min}$ , який з'являється при B > 0,5 Тл. Інші суцільні криві намальовані, щоб орієнтуватися.

На рисунку 3.9 (головна панель) показано результат аналізу  $\Delta^*(T)$  за допомогою рівняння (1.12) для B = 0 і 8 Тл з усіма необхідними для аналізу ПЩ параметрами, наведеними в таблицях 3.1 і 3.2. Як і очікувалося, при B = 0 (чорні крапки на рисунку) форма  $\Delta^*(T)$  є типовою для плівок YBCO [46, 72] та недвійникових монокристалів [59] з максимумом при  $T = T_{pair} \approx 140$  К і мінімум при  $T \approx T_{01}$ . Як зазначалося вище,  $T_{pair}$  є температурою кроссоверу БЕК-БКШ [22, 30, 31, 46, 93]. Відповідно, коли Т наближається до Т<sub>с</sub>, спостерігається максимум  $\Delta^*(T)$  трохи нижче  $T_0$  і мінімум при  $T = T_G$  [59, 107] (див. вставку на рис. 3.9 при *B*=0). Нижче  $T_G$  зазвичай спостерігається різкий стрибок  $\Delta^*(T)$ при  $T \to T_c^{mf}$  [46], який навмисно не показано через його нефізичну природу, оскільки він відповідає переходу в область критичних флуктуацій, де теорія середнего поля не працює [39]. Таким чином, підхід у рамках моделі ЛП дає змогу точні  $T_G$  i, наслідок, визначити значення як отримати достовірні значення  $\Delta^*(T_G) \approx \Delta(0)$  залежно від прикладеного магнітного поля (табл. 3.2). Крім того, залежність  $\Delta^*(T_G)$  від *B* (рис. 3.10) можна апроксимувати двома лінійними ділянками з однаковим нахилом: перший від 0 до 2 Тл, а другий, після плато між 2 та 3 Тл, який чітко видно, від 3 до 8 Тл. Слід зазначити, що спостережувана поведінка  $\Delta^*(T_G)$  корелює зі зміною ФЛП з 2D МТ на 2D АЛ при В>2 Тл, як уже обговорювалося вище.

Зараз можна розглянути деталі поведінки  $\Delta^*(T)$  під впливом магнітного поля. Як видно з рис. 3.9 (основна панель, рожеві крапки), магнітне поле B = 8 Тл помітно знижує значення ПЩ при всіх температурах вище  $T_{pair}$ , особливо поблизу  $T^*$ . Це виглядає досить дивно, оскільки магнітне поле практично не впливає на криву питомого опору при високих температурах (рис. 3.1 та [42, 75]).

Таким чином, отриманний результат (рис. 3.9) фактично підкреслює підвищену чутливість нашого підходу та приводить до висновку, що магнітне поле має набагато сильніший вплив на локальні пари, ніж на нормальні електрони. Проте, щоб пояснити цей дуже важливий і дещо несподіваний результат, необхідно також мати на увазі, що, згідно з сучасними уявленнями [93], магнітне поле, яке є відносно слабким у нашому випадку, не руйнує СЗБ, що виникають у ВТНП при  $T < T^*$  [30]. З іншого боку, також потрібно пам'ятати, що ПЩ виникає одночасно зі зменшенням густини станів на рівні Фермі [27, 108, 109]. Це означає, що ми можемо лише припустити, що магнітне поле якимось чином збільшує густину станів, що призводить до спостережуваного зниження значення ПЩ. Можливо, що магнітне поле якимось чином змінює розподіл нормальних

електронів і СЗБ у зразку, тим самим змінюючи густину станів. Проте з'ясування цього питання потребує спеціального дослідження. Від  $T_{pair}$  до  $T_{01}$  спостерігається протилежна динаміка (рис. 3.9), яка виражається в незначному збільшенні  $\Delta^*(T)$ , що також є дивним. Тому можна припустити, що змінився і вплив магнітного поля на ЛП і, можливо, на густину носіїв заряду нижче T<sub>pair</sub>. Цікаво, що абсолютне значення  $\Delta^*(T_{pair})$  залишається постійним, тоді як  $T_{pair}$  зсувається в область нижчих температур від 140 К при B = 0 до 130 К при 8 Тл. Здається, що вся крива  $\Delta^*(T)$ також зміщується в бік нижчих температур разом із полем, що можна вважати ще однією причиною отриманного зниження  $\Delta^*(T)$ . Однак виміряне зменшення  $T_c^{mf}$ становить  $\Delta T_c^{mf} = 1,75$  K, а  $\Delta T_G$  становить лише 1.04 K, i, строго кажучи, цього явно недостатньо для визначення остаточної форми  $\Delta^*(T)$ . Водночас відношення БКШ  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c$  при B > 7 Тл має тенденцію до зменшення від 5,0 до 4,9 (рис. 4 і табл. 3.8). Зауважимо, що всі інші параметри плівки, крім  $\Delta^*(T_{pair}) = 254$  К, також помітно змінюються (табл. 3.2). Проведений аналіз показав, що саме зміна параметрів плівки призводить до отриманого несподіваного значення  $\Delta^*(T)$ при B = 8 Тл, оскільки значення надлишкової провідності  $\sigma'(T)$  вважається таким же, як і при B = 0. Але, власне кажучи, фізика зміни форми ПЩ під дією магнітного поля залишається незрозумілою.

З наближенням T до  $T_c$  магнітне поле починає інтенсивно зменшувати  $\Delta^*(T)$ в області НП флуктуацій нижче  $T_{0l}(B = 0) = 100$  К (див. вставку на рис. 3.9), а в певному інтервалі температур до  $T_{pair}(B = 8$  Тл) = 103 К,  $\Delta^*(T)$  залишається підвищеним. Еволюція  $\Delta^*(T)$  нижче  $T_{0l}$  зі збільшенням магнітного поля виглядає наступним чином (див. вставку на рис. 3.9). Різкий низькотемпературний максимум поблизу  $T_0$  пригнічується за величиною і зміщується в бік більш високих температур і повністю зникає при B > 5 Тл. У той же час, починаючи з ~ 0,5 Тл, вище  $T_G$  з'являється яскраво виражений мінімум при  $T_{min}$ . Який можна побачити на вставці, як  $\Delta^*(T_{min})$ , так і, що більш важливо,  $\Delta^*(T_G)$ , яка є крайньою лівою точкою кожної кривої, помітно зменшуються зі збільшенням поля, одночасно зміщуючись у бік нижчих температур. Цілком ймовірно, що це пов'язано з розривною дією магнітного поля на ФКП, що призводить до появи помітного магнітоопору, а також можливим впливом створюваної магнітним полем двовимірної вихрової ґратки. Проте з рис. 3.10 видно, що зменшення  $\Delta^*(T_G)$  зі збільшенням поля також є незвичним. Дійсно, залежність  $\Delta^*(T_G)$  складається з двох лінійних ділянок з однаковим нахилом, але зміщених на ~ 1 Тл при B> 2 Тл. Слід зазначити, що спостережувана поведінка  $\Delta^*(T_G)$  корелює зі зміною ФЛП з 3D АЛ на 2D МТ, як обговорювалося вище.



Рис. 3.10. Псевдощілина при  $T_G$ ,  $\Delta^*(T_G)$ , як функція В, демонструє досить гарну лінійну залежність, позначену двома пунктирними лініями, зміщеними на ~1 Тл при B > 2 Тл. Значення  $\Delta^*(T_G)$  були отримані в полях, що відповідають таким, як на рис. 3.9. Тонкі суцільні лініі проведені для орієнтування очей.

Виявлена поведінка також корелює з тим фактом, що всі характеристичні температури, виявлені при аналізі ФЛП, а також діапазон НП флуктуацій  $\Delta T_{fl}$  і довжина когерентності вздовж осі  $c \xi_c(0)$  різко зростають при  $B \ge 3$  Тл (Таблиця 3.1 та [153]). Усі ці результати свідчать про те, що розрив пари - не єдиний фактор впливу магнітного поля.

Але, якщо взяти дані, наведені на вставці до рис. 3.9, ми побачимо, що  $\Delta^*(T) \approx 219$  К при B = 0 і  $\Delta^*(T) \sim 204$  К при B = 8 Тл, тобто під дією магнітного поля  $\Delta^*(T)$  зменшується приблизно на 7,0 %. Таким чином, ми можемо зробити висновок, що поблизу критичної температури  $T_c$ , де ЛП перетворюються на ФКП, розрив пари магнітним полем відіграє значну роль у зниженні значення ПЩ. Але еволюція форми  $\Delta^*(T)$  поблизу  $T_c$  під дією магнітного поля (рис. 3.9) швидше за все визначається саме динамікою створюваних полем вихорів в діапазоні НП флуктуацій і ймовірно деякими іншими механізми.

### Висновки до розділу 3

- Вперше досліджено еволюцію флуктуаційної провідності та псевдощілини у тонкій плівці YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> під впливом магнітного поля до B = 8 Тл.
- Вперше виявлено перехід від класичної залежності ФЛП 2D МТ до несподіваної залежності 2D АЛ вище температури 3D-2D кроссовера T<sub>0</sub> у магнітному полі ~ 3 Тл.
- Вперше показано, що коли В перевищує 3 Тл, інтервал надпровідних флуктуацій різко зростає приблизно в 7 разів, а довжина когерентності вздовж осі с демонструє незвичну залежність від T<sub>c</sub>.
- Вперше спостерігалося помітне зміщення *Д*\*(*T*) у бік нижчих температур під впливом магнітного поля, причому форма *Д*\*(*T*) майже не змінюється.
- Вперше виявлено, інтенсивне зменшення Δ\*(T) в області НП флуктуацій поблизу T<sub>c</sub> швидше за все за рахунок впливу створеної магнітним полем двовимірної вихрової ґратки.

# РОЗДІЛ 4. ВПЛИВ ЕЛЕКТРОННОГО ОПРОМІНЕННЯ НА ВЛАСТИВОСТІ МОНОКРИСТАЛІВ УВа<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

Нагадаємо, (див. Вступ), що спосіб, у який надпровідне (НП) спарювання у надпровідниках (BTHII) призводить високотемпературних ДО утворення 100 K куперівських пар значно вище [1-7], залишається найбільш фундаментальним питанням у сучасній фізиці надпровідності [93] (і посилання там). Розуміння механізму НП спарювання має першочергове значення для пошуку нових ВТНП, які мають надпровідні властивості при кімнатній температурі. На жаль, на момент написання диссертаційної роботи, цей механізм досі залишається до кінця невизначеним. Вважається, що дослідження іншої незвичайної властивості ВТНП, відомої як псевдощілина (ПЩ), яка, як зазначено у Вступі та розділах 1.1, 1.3.1 і 1.3.3, відкривається в недодопованих купратних ВТНП при характерній температурі *T*\*>> *T*<sub>c</sub> [16, 18, 20, 22], має пролити світло на цю проблему [93]. Було показано, що у купратах нижче  $T^*$  не тільки зменшуєть ся  $\rho(T)$ , але й починає поступово зменшуватися щільність станів на рівні Фермі [27, 109], що і називається псевдощілиною [18, 20-23]. В результаті в ПЩ стані спостерігаються численні аномалії електронних властивостей, які пов'язані зі зменшенням щільності одночастинкових збуджень та анізотропною перебудовою спектральної густини носіїв заряду, швидше за все, за рахунок перебудови поверхні Фермі [16, 18, 22, 80] Однак фізика цього процесу також до кінця не визначена та залишається під великим питанням [93].

Частина дослідників вважає, що псевдощілина зумовлена флуктуаціями надпровідної фази [24, 77], антиферомагнітними спіновими флуктуаціями [18, 19, 79], хвилями спінової густини [162, 163], хвилями зарядової густини [82, 164], упорядкування зарядів [16, 84] і навіть хвилями парної щільності [85, 86], які не мають нічого спільного з парними ферміонами вище  $T_c$ . Однак саме розмаїття запропонованих моделей викликає певні сумніви щодо їх висновків [81]. Крім того, жодна з цих моделей не пояснює спостережуване відхилення  $\rho(T)$  від лінійності за температур  $T \le T^*$  і, що більш важливо, не може пояснити відсутність ПЩ у режимі надмірного допування купратів, незважаючи на те, що  $T_c$  все ще дуже висока. Як було зазначено вище, ми поділяємо точку зору іншої частини дослідників, які вважають, що ПЩ виникає внаслідок утворення спарених ферміонів нижче  $T^*$ , так званих локальних пар (ЛП) або попередньо сформованих куперівських пар [22, 30, 88, 110-112] і, таким чином, є передвісником переходу ВТНП у надпровідний стан [30, 113, 114]. У дисертації вважається, що ЛП з'являються в купратах у вигляді так званих сильно зв'язаних бозонів (СЗБ) саме при  $T < T^*$ , але змінюють свої властивості зі зменшенням T і поводяться як незв'язні куперівські пари поблизу  $T_c$ [30, 88]. Такий підхід дозволяє пояснити майже всі експериментальні факти, що спостерігаються у ВТНП [93], але досі він не є загальновизнаним.

### 4.1. Дефекти у ВТНП

Ще однією проблемою ВТНП є дефекти. Монокристали ВТНП (купратів), таких як REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-6</sub> (RE = Y та інші лантаноїди) без домішок, можуть містити дефекти у вигляді двійникових границь, які виникають на «тетра-орто-переході» в процесі виробництва для того, щоб мінімізувати пружну енергію кристала [115] (рис. 2.1). Точкові дефекти (вакансії кисню) також можуть бути присутніми в зразках YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-6</sub>, що пов'язано з нестехіометричним вмістом кисню ([63, 65] і посилання в них). Допування YBCO різними домішками, яке зараз широко вивчається з метою пошуку нових властивостей ВТНП, зазвичай створює додаткові дефекти в зразках [91, 116]. Як правило, різноманітні структурні дефекти істотно впливають на поведінку ВТНП, збільшуючи питомий опір  $\rho$ , але зменшуючи температуру надпровідного переходу  $T_c$  і збільшуючи його ширину  $\delta T_c$  [60, 66, 117].

Однак дефекти описані вище, виникають неконтрольованим і розподіляються випадковим чином. Тобто здатність створювати дефекти контрольованим способом становить значний інтерес ([60, 117, 118] і посилання в

них). Однією з таких можливостей є опромінення високоенергетичними електронами, що є відповідним методом для вивчення впливу певних дефектів гратки на властивості надпровідності (НП), оскільки, змінюючи енергію електронів, ми можемо вибірково створювати дефекти на різних підґратках [69, 70, 118, 119]. Цей метод представляє особливий інтерес, оскільки пристрої ВТНП іноді повинні працювати за таких умов [63]. Він дозволяє контрольовано змінювати ступінь безладу в зразку, поступово збільшуючи дозу опромінення. Тобто, електронне опромінення може бути контрольованим і високоефективним способом створення значної кількості дефектів без зміни складу опроміненого зразка [63, 69, 70, 117-119].

Видається цілком розумним припустити, що опромінення може призвести до розриву флуктуаційних куперівських пар вище  $T_c$ , що вплине на параметри флуктуаційної провідності (ФЛП) та ПЩ. Проте, на фоні величезної кількості робіт з ВТНП, кількість робіт, присвячених впливу електронного опромінення на ФЛП та ПЩ, винятково мала. Можна сказати, що робота [63] фактично є єдиною, в якій вивчався вплив електронного опромінення на ФЛП і ПЩ [58]. Однак дози опромінення були відносно невеликими, і, найголовніше, було доведено, що досліджувані монокристали містили численні внутрішні дефекти у вигляді двійників і двійникових границь. Це призвело до зміни резистивних властивостей зразка порівняно з наявними літературними даними [69, 70], зокрема до порушення правила Матіссена та, мабуть, до специфічної поведінки ФЛП і ПЩ.

У цьому розділі дисертаційної роботи розглянуто результати вимірювань питомого опору  $\rho(T)$ , флуктуаційної провідності  $\sigma'(T)$  та псевдощілини  $\Delta^*(T)$  на оптимально допованих (ОД) монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (YBCO), які, що важливо, не містять двійників та двійникових границь, опромінених при низьких температурах електронами з енергією 2,5 MeB. Що дало змогу досліджувати вплив радіаційних дефектів на властивості ВТНП у широкому діапазоні доз (флюенсів) опромінення, зростаючих від  $\varphi_1 = 0$  до  $\varphi_{12} = 23 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>. Найважливійшим
результатом цього розділу є те, що вперше для ФЛП і ПЩ були отримані дуже цікаві, але дещо несподівані результати, які детально розглянуто нижче.

## 4.2. Дослідження питомого опору та критичної температури

Температурні залежності питомого опору  $\rho(T) = \rho_{ab}(T)$  досліджуваного оптимально допованого монокристалу YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> з  $T_c = 92,5$  K (при  $\varphi_I = 0$ ) та кисневим індексом  $(7 - \delta) \sim 6.96$ , виміряним від  $\varphi_I = 0$  до  $\varphi_{I2} = 23 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>, показано на рис. 4.1. Видно, що зі збільшенням дози опромінення  $\varphi$  критична температура  $T_c$  швидко зменшується до  $T_c = 0$  при  $\varphi \ge 10 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (що видно на рис. 4.2), тоді як питомий опір зростає, як і очікувалося, та демонструє перехід метал-ізолятор вище  $\varphi_{I0} \approx 11, 2 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>.



Рис. 4.1. Температурні залежності питомого опору оптимально допованого монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (7– $\delta \sim 6,96$ ) при різних дозах опромінення від  $\varphi_1 = 0$  до 1.3, 2.5, 3.9, 5.6, 6.9, 7.9, 8.7, 10.0, 11.2, 15.5 та  $\varphi_{12} = 23 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$ . Блакитною лінією позначено  $\rho_N(T)$  при  $\varphi_6 = 6,9 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$ , вище якого з'являються ознаки переходу метал-ізолятор та ПЩ зникає.

На перший погляд, виявлені температурні залежності питомого опору такі ж самі, як ті, що спостерігаються при зменшенні вмісту кисню, а отже, і густини носіїв заряду  $n_f$  в YBCO [15, 46]. Проте детальний аналіз показує, що є помітні відмінності. Вище  $\varphi_6 \approx 6.9 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> питомий опір при низьких температурах починає відхилятися вгору від екстрапольованої лінійної залежності (блакитна пряма лінія на рис. 4.1), що вказує на початок переходу метал-ізолятор і зникнення псевдощілини. Крім того, нахил  $d\rho/dT$  у нормальному стані вище  $T^*$  залишається майже постійним, температура відкриття псевдощілини  $T^*$  залишається низькою і немонотонно зменшується зі збільшенням  $\varphi$  (вставка на рис. 4.2), крім того, відсутні так звані S-подібні криві опору, які зазвичай спостерігаються в YBCO зі зниженим допування киснем [15, 46].



Рис. 4.2. Площинний питомий опір  $\rho(300 \text{ K})$  (1),  $\rho(100 \text{ K})$  (2) та  $T_c$  (3) оптимально допованого монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> при різних дозах опромінення від  $\varphi_1 = 0$  до 1.3, 2.5, 3.9, 5.6, 6.9, 7.9, 8.7, 10.0, 11.2, 15.5 і  $\varphi_{12} = 23 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$ . Вставка: дозова залежність T\* для досліджуваного кристала.

Очевидно, така дещо незвичайна поведінка є типовою для монокристалів YBCO, які не містять двійників [69]. З рис. 4.2 видно, що обидва  $\rho(300 \ K)$ та  $\rho(100 \text{ K})$  зростають майже лінійно зі збільшенням  $\varphi$ . Вважається, що питомий опір зростає за рахунок збільшення безладу, викликаного радіаційними дефектами [63, 69]. У рамках простого релятивістського кінематичного співвідношення для електрон-атомного розсіювання було виявлено, що мінімальна енергія електронів, необхідна для зміщення О, Си, Y і Ва, становить 129, 413, 532 та 730 кеВ відповідно, припускаючи поріг 20 еВ енергії віддачі [70]. Таким чином, безперечно, що опромінення електронами з енергією 2,5 МеВ ефективно зміщує всі атоми в кристалі, що призводить до появи багатьох переважно точкових дефектів у площинах CuO<sub>2</sub> [63, 69, 70]. Залежно від розташування початкових дефектів в елементарній комірці, а також від розміру та концентрації точкових або малих кластерних дефектів, викликаних опроміненням, властивості матеріалу будуть змінюватися. Дійсно, спостережувані варіації в залежності від дози  $\rho$ ,  $d\rho/dT$ ,  $J_c/J_{c0}$ тощо, від кристала до кристала [68-70, 117-119] можна пояснити тим, що кожен різний передопромінювальний дефектний кристал має стан. Викликані опроміненням точкові дефекти реагують з передопромінювальними дефектами та змінюють їх [63].

Постійний нахил  $d\rho/dT$  кривих питомого опору в нормальному стані, що свідчить про постійну швидкість розсіювання нормальних носіїв заряду зі збільшенням  $\varphi$ , здається, є першою головною особливістю поведінки питомого опору монокристалів YBCO, що не містять двійників [69]. Нахил кривих питомого опору в нормальному стані  $d\rho/dT = (0,60 \pm 0,05)$  мкОм/К був ретельно розрахований за допомогою програми OriginPro за допомогою комп'ютерної лінійної підгонки експериментальних кривих вище  $T^*$  та підтвердив лінійну поведінку  $\rho(T)$  у нормальному стані із середньоквадратичною похибкою 0,0018 ± 0,0002 у зазначеному діапазоні температур для всіх зразків. Однак, як не дивно, ретельний аналіз показав, що нахил все ж таки незначно змінюється, і в абсолютно несподіваний «квантований» спосіб (рис. 4.3). Яскраво виражена ступінчаста залежність  $d\rho/dT$  чітко спостерігається при всіх  $\varphi$  до моменту переходу металізолятор. Результат досить цікавий, але поки що не було знайдено теоретичного пояснення цього явища.

Постійний нахил означає, що правило Маттіссена (ПМ) добре працює при високих температурах [69]. ПМ означає, що  $\rho = \rho_0 + \rho_{id}$ , де  $\rho_0$  – залишковий питомий опір (див. 1.3.2) [22], а  $\rho_{id}$  – питомий опір ідеального кристала, тобто, в нашому випадку, питомий опір кристала YBCO при  $\varphi = 0$ . Чітко видно, що еволюція питомого опору, показана на рис. 4.1, добре описується формулою ПМ, оскільки  $\rho_0$ змінюється від  $\rho_0 = -0.6$  мкОм·см при  $\varphi_1 = 0$  до  $\rho_0 = 112,0$  мкОм·см при  $\varphi_{12} = 23 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$  (табл. 4.1), тоді як  $d\rho/dT$  залишається майже постійним. Впровадження ПМ вже давно широко обговорюється у літературі [70]. Цікаво, що ПМ не виконується, коли питомий опір УВСО змінюється в широкому діапазоні через зміни допування киснем [15]. Він також не спостерігався в наших попередніх дослідженнях опромінення монокристала ҮВСО, що містить численні двійники та двійникові границі (ДГ) [63]. Вважається, що ступінь зміни параметрів кристала залежить від домішкового та дефектного складу вихідних зразків [63, 69, 70, 117-119], а також від енергії налітаючих частинок [120]. Таким чином, ми припускаємо, що кількість ДГ у досліджуваному монокристалі від початку мінімізована, що остаточно визначає спостережувану форму кривих питомого опору та інших властивостей кристала під впливом опромінення.

Іншою досить незвичайною, але дуже цікавою особливістю недвійникованих монокристалів YBCO є відсутність S-подібних кривих питомого опору при малому рівні допування, тобто при низьких  $T_c$  (рис. 4.1), які, як відомо, являються типовою особливістю поведінки питомого опору в слабодопованному YBCO [15, 46]. Спочатку було зроблено припущення, що псевдощілина в слабодопованних купратах призводить до "S-подібної" поведінки  $\rho_{ab}(T)$ , яка була інтерпретована як наслідок швидкого зменшення швидкості непружного розсіювання електронів у ПЩ фазі нижче  $T^*$  при зниженні температури [121].



Рис. 4.3. Нахил dp/dT монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> як функція дози опромінення φ. Вертикальна пунктирна лінія вказує на початок переходу метал-ізолятор зі збільшенням φ.

Пізніше було висловлено припущення [122], що *S*-подібну форму електричного опору краще розглядати з точки зору поступової участі квазічастинок поблизу ( $\pi$ , 0) зони Бріллюена при зниженні температури. Іншими словами, при  $T < T^*$ , мабуть, має відбутися часткове перетворення поверхні Фермі [16, 18, 93, 123], що є причиною особливої поведінки  $\rho_{ab}(T)$  у ПЩ фазі.

Якщо ми візьмемо *S*-форму як ознаку псевдощілини в транспорті постійного струму, то її відсутність, а також спостережуване зменшення  $T^*$  з  $\varphi$ , чітко припускають, що опромінення електронами ефективно запобігає утворенню парних ферміонів (ймовірно, через розриви пар) у ПЩ стані недвійникових монокристалів YBCO, що, очевидно, призводить до зменшення  $T^*$ . Проте відкритим залишається питання: який механізм спостережуваного зниження  $T_c$  і як у цьому випадку поводяться ФЛП та ПЩ, оскільки вміст кисню і  $n_f$  у зразках вважається незмінним, незважаючи на досить високий вміст дефектів ( $x_d \ge 9\%$  у

площинах [69] (і посилання там)). Для отримання відповіді необхідно проаналізувати температурні залежності надлишкової провідності при різних *q*.

Як надлишкова провідність i ПШ зазначалося вище, зникають при  $\varphi_6 \approx 6.9 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$ . Таким чином, в рамках моделі локальних пар [22, 93] за допомоги обраного методу можливо проаналізувати лише п'ять резистивних кривих, як детально показано на рис. 4.4. На рисунку наведено температурні залежності питомого опору  $\rho(T) = \rho_{ab}(T)$ , виміряний до опромінення ( $\varphi_I = 0$ , сірі крапки) та для чотирьох доз опромінення:  $\varphi_2 = 1,3 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (сині крапки),  $\varphi_3 = 2,4 \cdot 10^{19}$  e/см<sup>2</sup> (жовті крапки),  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  e/см<sup>2</sup> (бірюзові крапки), а  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (пурпурові крапки). Фактично ми досліджуємо п'ять різних зразків, параметри яких визначаються дозою опромінення  $\varphi$  (рис. 4.4 і табл. 4.1 і 4.2). Як зазвичай, Т<sub>с</sub> наших зразків визначається шляхом екстраполяції лінійної частини  $\rho(T)$  при НП переході до її перетину з віссю T (див. вставку (а) на рис. 4.4), що дає  $T_c$  з точністю ~ 0,05 К [66] ширина НП переходу  $\delta T_c$  фактично визначається як ширина цієї лінійної області. Цей підхід до визначення  $\delta T_c$  замість звичайного критерію  $0,1\rho_n - 0,9\rho_n$  використовувався через неоднозначність визначення питомого опору в нормальному стані над переходом,  $\rho_n$ , а також деяку розмитість резистивних кривих нижче  $T_c$  при великих дозах опромінення  $\varphi$ . Як і очікувалося з рис. 4.4, значення  $\delta T_c$ , виміряні таким чином для всіх зразків, є дуже вузькими ( $\delta T_c < 2.5$  K), що вказує на хорошу якість досліджуваних монокристалів і відсутність додаткових фаз з різними Т<sub>с</sub>. Однак варто зазначити, що незважаючи на те, що  $\delta T_c(\varphi)$  певним чином зростає під час опромінення і має максимум при  $\varphi_4 = 3.9 \cdot 10^{19} \,\text{e/cm}^2$  (табл. 4.1), резистивний перехід все одно залишається досить різким, що свідчить про рівномірний розподіл індукованих дефектів (безладу) у всьому обсязі зразка [63, 69].

Останнім, але не менш важливим фактом є дозова залежність  $T_c$ , яка зменшується досить лінійно до нуля зі збільшенням  $\varphi$  (лінія 3, темно-сині крапки) та дорівнює нулю при  $\varphi > 10 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>. На вставці (b) до рис. 4.4 показано точне визначення  $T^*$  за критерієм  $(\rho(T) - \rho_0)/\alpha T = 1$ , де  $\alpha = d\rho/dT$  [71], на прикладі

зразка  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>. Такий підхід використовується для всіх зразків і дозволяє визначати *T*\* з точністю ± 0,3 К. Стрілки на рис. 4.4 позначають температури *T*\*. На відміну від *T<sub>c</sub>*, *T*\* зменшується дуже немонотонно з великим розкидом крапок (вставка на рис. 4.2), можливу причину цього буде обговорено нижче.



Рис. 4.4 (в кольорі) Температурні залежності питомого опору оптимально допованого монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (7 –  $\delta \sim 6,93$ ) при різних дозах опромінення  $\varphi_1 = 0$  (сірі крапки),  $\varphi_2 = 1,3\cdot10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (сині крапки),  $\varphi_3 = 2,4\cdot10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (жовті крапки),  $\varphi_4 = 3,9\cdot10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (бірюзові крапки) і  $\varphi_5 = 5,6\cdot10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (пурпурові крапки). Червоними лініями позначено  $\rho_N(T)$ . Стрілки позначають температуру T\*. Вставка (а) – резистивні переходи в надпровідний стан при різних  $\varphi$ , які визначають T<sub>c</sub>. Вставка (б) – більш точне визначення T\* за критерієм ( $\rho(T) - \rho_0$ )/ $\alpha T = 1$  [71] для  $\varphi_5 = 5,6\cdot10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>.

Лінійна зміна  $T_c$  з  $\varphi$ , зі зростанням числа дефектів, аж до нуля, є наступною надзвичайною особливістю поведінки монокристалу що досліджується (рис. 4.1 і 4.4). Лінійна залежність  $T_c(\varphi)$  була детально проаналізовано в роботі [69] шляхом

порівняння експериментальних результатів з теорією розриву пар Абрикосова-Горькова (АГ), модіфіковану для *d*-wave надпровідників [124] та теорією Емері-Ківельсона (ЕК) [125], яка пропонує враховувати флуктуації фази параметра порядку у ВТНП, які збільшують зі зменшенням так званої "фазової жорсткості" хвильової функції [31]. Було показано, що теорією АГ не вдається описати  $T_c(\varphi)$ при низьких  $T_c$ , швидше за все, через дуже короткі довжини когерентності  $\xi(T)$  у ВТНП, що не дозволяє припустити наявність рівномірної надпровідної щілини, усередненої по безладу. Відповідно, квантові фазові флуктуації, передбачені ЕК, виявилися важливими для визначення фактичної *T*<sub>c</sub> для області з великою кількістю дефектів (при низькій  $T_c$ ), але навряд чи можуть бути застосовні при високих  $T_c$ , особливо в ОД купратах з високою надплинною густиною *n<sub>s</sub>*. Головний висновок полягає в тому, що існує перехід від розриву пари до режиму флуктуації фази для високого рівня безладу [69]. Таким чином, досі не існує суворої теорії ефекту опромінення у ВТНП та, строго кажучи, причини лінійного зниження Т<sub>с</sub> в монокристалах ҮВСО досі залишаються невизначеними. Щоб отримати додаткову інформацію, яку неможливо отримати з експериментів з питомим опором, ми дослідили залежності ФЛП та ПЩ від  $\varphi$  в бездвійниковому монокристалі YBCO, як буде описано нижче.

φ,	ρ(300 K),	ρ(100 K),	dp/dT,	$ ho_{0,}$	Τс,	$T_c^{mf}$ ,	$T_{G}$ ,	То,	<i>T</i> 01,	$\delta T_{c}$ ,
$10^{19} e/cm^2$	$\mu\Omega$ ·cm	$\mu\Omega$ ·cm	$\mu \Omega \cdot cm/K$	$\mu\Omega$ ·cm	K	K	K	K	K	K
0	157.8	41.8	0.55	-6.0	92.5	92.90	93.0	93.2	96.0	0.7
1.3	187.2	68.9	0.59	15.0	83.6	84.45	84.6	85.0	90.0	1.0
2.5	218.8	96.2	0.59	41.6	74.5	75.37	75.7	79.0	88.7	4.3
3.9	257.0	133.5	0.62	72.0	58.0	59.12	59.9	63.5	71.2	2.2
5.6	297.5	175.0	0.62	112.0	43.5	44.77	45.1	46.1	51.0	2.0

Таблиця 4.1. Параметри резистивної та флуктуаційної провідності монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> при різних дозах опромінення

#### 4.3. Вплив електронного опромінення на надлишкову провідність

Надлишкова (флуктуаційна) провідність (ФЛП)  $\sigma(\varepsilon)$  у купратних ВТНП виникає внаслідок відхилення  $\rho(T)$  при  $T^* >> T_c$  вниз від лінійної залежності при високих температурах і може бути задана простою формулою (1.1). Як зазначено у Розділі 1.3.2,  $\rho_N(T) = \alpha T + \rho_0$  – питомий опір зразка в нормальному стані, екстратрополірований в область низьких температур,  $\alpha = d\rho/dT$  визначає нахил лінійної залежності  $\rho_N(T)$ , а  $\rho_0$  – залишковий опір. Також нагадаємо, що при  $T \leq T^*$ не тільки  $\rho(T)$  починає відхилятися від лінійності, але також щільність станів на рівні Фермі починає поступово зменшуватися, що вказує на відкриття ПЩ [20, 27, 93, 109]. Крім того, вважається, що поверхня Фермі також змінюється (див. 1.3.2), швидше за все, через утворення локальних пар (ЛП) нижче  $T^*$ , як згадувалося вище. Добре встановлено, що поблизу Т<sub>с</sub> ЛП в купратах поводяться як флуктуаційні куперівські пари [31, 40, 93], але без дальнього порядку (так звані «короткодіючі фазові кореляції» [30, 35-38, 88, 126, 127]. Це досить специфічний стан ВТНП, який характеризується помітним діапазоном НП флуктуацій  $\Delta T_{fl}$ , який може виникати через коротку довжину когерентності  $\xi(T)$  у поєднанні з квазішаровою структурою купратів (рис. 1.1) (див. Розділ 1).

Багато експериментів [52, 93, 79] переконливо показали, що в тривимірному (3D) стані поблизу  $T_c$ , де довжина когерентності вздовж осі  $c \xi_c(T) > d$ , де d то розмір елементарної комірки ВТНП (у YBCO d = 11,68 Å [41]), надлишкову провідність можна добре описати 3D теорією Асламасова-Ларкіна (3D-АЛ) [17], рівняння (1.2). Нагадаємо, що  $\varepsilon$  - зведена температура, а  $T_c^{mf}$  – критична температура в наближенні середнього поля.

Оскільки довжина когерентності ВТНП вище  $T_c$  задається як  $\xi(T) = \xi(0)\varepsilon^{-1/2}$ [43, 52, 84], вона помітно зменшується зі збільшенням T. Зрештою, вище температури кроссовера  $T_0$  (таблиця 4.1)  $\xi_c(T) < d$ , і тривимірний флуктуаційний стан знакає. Але все ж у певному діапазоні температур  $\xi_c(T) > d_{01}$ , де  $d_{01}$  ( $\approx$  3,6 Å для YBCO [41]) – відстань між провідними площинами CuO<sub>2</sub> у ВТНП. Таким чином, до  $T_{01}$  (Таблиця 4.1)  $\xi_c(T)$  все ще з'єднує площини джозефсонівською взаємодією, утворюючи двовимірний (2D) флуктуаційний стан. У добре структурованих зразках (тонкі плівки [46] та монокристали [59]) це описується 2D теорією Макі-Томпсона (2D-MT), модифікованою Хікамі та Ларкіним (ХЛ) для ВТНП [43], рівняння (1.5). Це, та всі інші рівняння, необхідні для аназізу ФЛП, а також алгоритм аналізу, наведено у Розділах 1.3.2 та 3.

Як зазначено в (1.3.2), двовимірний стан підтримується до тих пір, поки при  $T_{01}$ , вище якої  $\xi_c(T) < d_{01}$ , експериментальні дані повністю відхиляться від теорії [52, 59, 64]. Це відбувається тому, що в цьому випадку будь-яка кореляційна взаємодія між шарами втрачається, а локальні пари (ЛП) обмежені в провідних площинах CuO<sub>2</sub>. Це призводить до вираженої анізотропії довжини когерентності у ВТНП, а саме  $\xi_{ab} \approx 10 \cdot \xi_c$ , де  $\xi_c(0) = \xi_c(T^*) \sim 1$  Å [42, 46, 59]. Таким чином,  $T_{01}$  – це температура, яка обмежує зверху діапазон НП флуктуацій  $\Delta T_{f1} = T_{01} \cdot T_G$ , де  $T_G$  – температура Гінзбурга, до якої діє теорія середнього поля [21, 39, 128]. Отже, виявляється, що флуктуаційна провідність є лише частиною повної надлишкової провідності  $\sigma'(T)$ , заданого рівнянням (1.1) і реалізується у відносно вузькому (~ 15K) діапазоні НП флуктуацій вище  $T_c$ .

Очевидно, що при  $T = T_0$ ,  $\xi_c(T_0) = \xi_c(0)\varepsilon_0^{-1/2} = d$  і  $\xi_c(0)$  легко визначити за простою формулою (1.9). У свою чергу, при  $T = T_{0l}$ ,  $\xi_c(T_{0l}) = \xi_c(0)\varepsilon_{0l}^{-1/2} = d_{0l}$ . Оскільки  $\xi_c(0)$  вже було визначено  $T_0$  (рівняння 1.9),  $d_{0l}$  тепер можна визначити за допомогою простого співвідношення  $d_{01} = d\sqrt{\varepsilon_0}\sqrt{\varepsilon_{01}}$  (див. рів. 1.10) (Таблиця 4.2). Слід підкреслити, що всі розглянуті вище особливості поведінки ФЛП у ВТНП, які виглядають несподівано з точки зору традиційної надпровідності, можливі лише завдяки дуже короткому  $\xi_c(T)$ , який виявляється порівнянним до характерних розмірів кристалічної структури  $d_{0l}$  і d вздовж осі c.

Нагадаємо, що в сполуках з поганою структурою (кераміка [12] і перші тонкі плівки [42]) дефекти усувають усі особливості поведінки ФЛП. У цьому випадку ФЛП описується моделлю Лоуренса – Доніаха (ЛД) [90], як зазначено у Розділі 3, розробленою для шаруватих надпровідників (див рів. (3.2). У цьому випадку  $\sigma'$  буде розходитися як  $\varepsilon^{-1/2}$  (3D-поведінка), коли температура близька до  $T_c^{nf}$ , і як  $\varepsilon^{-1}$  (2D-поведінка) при досить високій температурі, де  $\alpha = 2[\xi_c(0)/d]^2 \varepsilon^{-1} < 1$ . Таким чином, рівняння (3.2) дає тривалий плавний перехід від 3D до 2D поведінки без будь-яких яскраво виражених особливостей [42], що не дозволяє визначити будь-які параметри структури зразка.

Зрозуміло, що опромінення електронами з високою енергією 2.5 МеВ, яке ефективно зміщює всі атоми в YBCO [63, 69, 70] призведе до утворення багатьох дефектів у вихідному кристалі (див. рис. 4.1 і 4.4), що повинно якимось чином змінити температурні залежності ФЛП. Для оцінки впливу дефектів необхідно простежити, яка з розглянутих вище теорій описує ФЛП і як цей опис змінюється зі збільшенням дози опромінення  $\varphi$ . Слід ще раз підкреслити, що вплив опромінення високоенергетичними електронами на  $\sigma'(T)$  у недвійникових монокристалах досі не досліджено.



Рис. 4.5 (a, b) Залежність  $\sigma'^{-2}(T)$  для монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> при двох дозах опромінення  $\varphi_1 = 0$  (a) і  $\varphi_3 = 2, 4 \cdot 10^{19} \text{ e/cm}^2$  (b), яка підкреслює різну поведінку ФЛП вище  $T_0$  через вплив дефектів. Стрілки вказують  $T_c$ ,  $T_c^{mf}$ , температуру Гінзбурга  $T_G$  та температуру 3D-2D кроссовера  $T_0$ . Пряма лінія відповідає діапазону флуктуацій 3D АЛ.

Нагадаємо, що зведена температура, задана рівнянням (1.3) є одним із основних параметрів моделі ЛП [22, 30, 31, 34-38], оскільки вона входить до всіх рівнянь. У свою чергу,  $\varepsilon = (T/T_c^{mf}-1)$  залежить від  $T_c^{mf}$ , тому важливо починати аналіз з визначення  $T_c^{mf}$  для кожного зразка. Нагадаємо, що  $T_c^{mf}$  — це критична температура в наближенні середнього поля, яка обмежує діапазон критичних флуктуацій навколо  $T_c$ , де параметр НП порядку  $\Delta < k_B T$  [39, 42, 128, 129]. Температура  $T_c^{mf}$  визначається шляхом екстраполяції лінійної тривимірної (3D) області графіка  $\sigma^{'-2}(T)$  до перетину з віссю температур, оскільки коли T наближається до  $T_c^{mf}$ ,  $\sigma'$  має розходитися як  $(T - T_c^{mf})^{-1/2}$ . Зверніть увагу, що  $T_c^{mf} > T_c$ , і зазвичай зсув становить 1 - 2 K, що є приблизною мірою розміру критичної області вище  $T_c$  [42, 129].

Відповідні графіки  $\sigma^{-2}$  від T для  $\varphi_1 = 0$  і  $\varphi_3 = 2,4 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>, як приклад, показані на (рис. 4.5.) Крім  $T_c^{mf} = 92,9$  К ( $\varphi_1$ ) і  $T_c^{mf} = 75,37$  К ( $\varphi_3$ ), також показані всі інші характеристичні температури, включаючи  $T_c$ ,  $T_G$  і температуру 3D–2D кроссовера  $T_0$ . Використовуючи той самий підхід,  $T_c^{mf}$  було отримано для всіх  $\varphi$  (див. табл. 4.1). На обох графіках (рис. 4.5) чітко видно спадаючу лінійну частину  $\sigma^{-2}(T)$ , позначену суцільною лінією, що відповідає 3D ФЛП. Але вище  $T_0$  є несподівана різниця.

Для  $\varphi_1$  дані відхиляються вправо від лінії, що вказує на наявність флуктуацій 2D MT [52, 59, 66], тоді як для  $\varphi_3$  дані відхиляються вліво [42], що вказує на повне придушення флуктуацій 2D MT через дефекти. Цікаво, що при  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> 3  $T_c^{mf} = 44,77$  K дані знову відхиляються вправо від лінії, вказуючи на відновлення флуктуацій 2D MT, незважаючи на величезну кількість дефектів.

Щоб деталізувати спостережувану несподівану поведінку, необхідно побудувати графік  $ln\sigma'$  як функцію  $ln\varepsilon$  для кожної дози опромінення та порівняти результати з флуктуаційними теоріями. Тепер це цілком можливо, оскільки  $\varepsilon$  було визначено шляхом вимірювання  $T_c^{mf}$ . Результати для всіх п'яти зразків, показані на рис. 4.6(а, б). Зауважимо, щоб уникнути накладання даних, осі x на обох рисунках зміщено. Відповідні параметри всіх зразків при різних  $\varphi$  наведені в таблицях 4.1-

4.3. По-перше, з рисунка видно, що зі збільшенням дози опромінення (збільшення  $\rho(T)$  і зменшення  $T_c$  або просто збільшення кількості дефектів пов'язаних з опроміненням) абсолютна величина  $\sigma'(T)$  помітно зменшується. Однак, як і очікувалося, у тривимірному стані поблизу  $T_c$  експериментальні дані добре описуються теорією 3D AЛ [рівняння (1.2)] незалежно від дози опромінення. У подвійному логарифмічному масштабі це червоні суцільні лінії з нахилом  $\lambda = -1/2$ , позначені як 3D AЛ на обох рисунках.



Рис. 4.6 (а). Залежність  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (7 -  $\delta = 6.96$ ) при  $\varphi_1 = 0$  (крива 1, сірі крапки) та  $\varphi_2 = 1, 3 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (крива 2, сині крапки) у порівнянні з флуктуаційними теоріями: 3D АЛ (червоні пунктирні лінії), 2D МТ (суцільні сині криві) та модель ЛД (зелений пунктир). Усі характеристичні температури позначені стрілками.  $ln(\varepsilon_G)$  визначає температуру Гінзбурга  $T_G$ ,  $ln(\varepsilon_0)$  визначає температуру кроссовера 3D-2D  $T_0$ , а  $ln(\varepsilon_{01})$  визначає  $T_{01}$ , яка обмежує область НП флуктуацій зверху. Масштаби осі X зміщені для зручності читання.

Відповідно до вищеописаного (див. рис. 4.5), при  $T = T_0$  (*ln* $\varepsilon_0$  на рисунках), що обмежує діапазон 3D флуктуацій зверху, спостерігається чіткий кроссовер в область 2D флуктуацій. У випадку  $\varphi_1=0$  (сірі крапки 1) і  $\varphi_2=1,3 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (сині крапки 2) (рис. 4.6(a)) вище  $T_0 \sigma'(\varepsilon)$  добре описується флуктуаційним внеском 2D MT, розрахованим за допомогою рівняння 1.5 (рис. 4.6(а), суцільні сині криві), що характерно для добре структурованих ВТНП [46, 52, 59, 64]. Слід зазначити, що при  $\varphi_2$ , незважаючи на те, що кількість дефектів, як вважається, помітно зростає, внесок 2D MT навіть більш виражений, ніж при  $\varphi_1=0$ , що є дещо дивним. Однак такий же результат спостерігався для двійникових монокристалів при пропорційній дозі опромінення [63]. Як також видно на рисунку, модель ЛД (зелені криві) зовсім не узгоджується з експериментом, що вказує на те, що зразок все ще має досить хорошу структуру навіть після опромінення. Як і очікувалося, при  $T_{01}$ , позначеному як *lnɛ<sub>01</sub>* на рис. 4.6, експериментальні дані повністю відхиляються від теорії. Усі характеристичні температури, позначені стрілками, чітко видно на рисунку, що дає змогу з достатньою точністю визначити такі параметри зразка, як  $\Delta T_{fl}$ ,  $\xi_c(0)$  та  $d_{0l}$ (табл. 4.1 та 4.2).

Як і очікувалося, значні зміни в поведінці ФЛП фактично з'являються при  $\varphi > 2 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (рис. 4.6 (б)). Два верхні набори даних переконливо показують, що при  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (жовті крапки 3) і  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (бірюзові крапки 4) флуктуації 2D МТ повністю пригнічуються дефектами опромінення. Однак модель ЛД (суцільні зелені криві), як і раніше, не відповідають експерименту, припускаючи, що кристалічна структура якимось чином зберігається. Крива ЛД для  $\varphi_4$  не показана, щоб уникнути захаращення рисунка, але вона також не відповідає експерименту. Замість 2D МТ тепер, дещо несподівано, 2D флуктуації добре описуються відомим рівнянням (1.4) 2D АЛ для двовимірних надпровідників [17], які являють собою прямі фіолетові суцільні лінії з нахилом  $\lambda = -1$ , позначені на рисунку 2D АЛ. У теорії [17] d – товщина зразка. Однак у нашому випадку, швидше за все, це можна вважати відстанню між провідними шарами, тобто між площинами CuO<sub>2</sub>. Як видно на рис. 4.6 (б), рівняння (1.4) досить добре описує експеримент у широкому діапазоні температур від  $T_0$  до  $T_{01}$  ( $ln\varepsilon_{01}$  на рисунку). Це призводить до помітного підвищення діапазону НП флуктуацій  $\Delta T_{fl}$ , який збільшується більш ніж у 4 рази. (Таблиця 4.2). Наскільки відомо на момент написання роботи, флуктуації 2D АЛ, особливо в такому широкому діапазоні температур, раніше в купратах не спостерігалися. Цікаво, що в той же час як  $\xi_c(0)$ , так і  $d_{01}$  також сильно зростають (див. табл. 4.2), швидше за все, через зменшення товщини шарів Ва-О (Cu<sub>1</sub> - Cu<sub>2</sub> [41]).



Рис. 4.6 (б). Залежність  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (7- $\delta$ =6.96) при  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (крива 3, жовті крапки),  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (крива 4, бірюзові крапки) і  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (крива 5, пурпурові крапки) у порівнянні з флуктуаційними теоріями: 3D АЛ (червоні лінії), 2D МТ (сині криві) та модель ЛД (зелений пунктир). Характеристичні температури, такі ж, як на рис. 4.6 (а), також позначені стрілками. Масштаби осі X зміщені для зручності читання. Нижня вісь X використовується для  $\varphi_5$ .

Особливо сильно зросла довжина когерентності більш ніж у 4,6 рази, а  $d_{01}$ збільшився в ~ 1,8 рази. Логічно припустити, що  $\xi_{ab}(T)$  ~ 10 ·  $\xi_c(T)$  також збільшується приблизно в 4,6 рази (табл. 4.2), і може бути дуже великою поблизу  $T_c$ . Цe може призвести до виконання умови лвовимірності:  $W >> \xi_{ab}(T) \ge d_{01}$ , де W – ширина зразка. Як зазначено, у нашому випадку це може бути відстань між площінами CuO<sub>2</sub>. Цілком ймовірно, що саме з цієї причини поведінка 2D АЛ ФЛП спостерігається при цих дозах опромінення. Слід зазначити, що такий вплив опромінення на кристал дуже незвичний. Дійсно, з одного боку, випромінювання сильно змінює параметри кристалічної комірки. З іншого, кристалічна структура не руйнується повністю, про що свідчить відсутність поведінки, яку описує модель ЛД, яка характерна для систем з дуже поганою структурою [89]. Але, відверто кажучи, фізика, що стоїть за виникненням 2D АЛ флуктуацій під час опромінення, залишається невизначеною.

при різних дозах опромінення $arphi, \qquad \Delta T fl, \qquad d_{0l}, \qquad \xi_c(0) \qquad \xi_{ab}(0)$ 

Таблиця 4.2. Параметри флуктуаційної провідності монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

$\varphi$ ,	$\Box I J l,$	<i>ci</i> 01,	50(0)	Sub( C)
$10^{19}  e/cm^2$	K	Å	Å	Å
0	3.0	3.9	$0.71\pm0.02$	10.0
1.3	5.4	4.1	$1.05\pm0.02$	14.8
2.5	13.0	6.1	$2.57\pm0.02$	36.2
3.9	11.3	7.1	$3.19\pm0.02$	44.9
5.6	5.9	5.3	$1.98\pm0.02$	27.9

Проте залежність ФЛП при  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> виявилася ще більш незвичайною (рис. 4.6 (б), пурпурові крапки). Оскільки значення ФЛП послідовно зменшується зі збільшенням  $\varphi$ , можна було б очікувати, що при максимальній дозі  $\varphi_5$  спостерігатиметься ще більш виражена поведінка 2D АЛ. Але досить несподівано в цьому випадку спостерігається залежність  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  з вираженим флуктуаційним внеском 2D МТ. Дійсно, вище  $T_0$  експериментальні крапки відхиляються вгору від екстрапольованої залежності 3D АЛ (червона лінія) і добре описуються 2D МТ (синя крива). Перше, що спадає на думку, це те, що якимось чином структура зразка відновлюється. На це також вказує різке зниження всіх параметрів ФЛП-аналізу:  $\Delta T_{fl}$ ,  $\zeta_c(0)$  та  $d_{0l}$  (див. табл. 4.2). Власне кажучи, щоб зробити остаточний висновок, необхідно розглянути еволюцію ПЩ в кристалі при різних дозах опромінення.

### 4.4. Температурна залежність псевдощілини YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

Численні дослідження показують, що величина і температурна залежність ПЩ однозначно визначаються якістю структури зразків, густиною носіїв заряду, тобто рівнем допування [46], наявністю домішок [116], у тому числі магнітних [52, 91], а також наявністю дефектів [66]. Як зазначалося вище, опромінення електронами високої енергії створює численні дефекти через зміщення атомів кристала. Очевидно, що величина і температурна залежність ПЩ також повинні змінюватися зі збільшенням  $\varphi$  [63]. На сьогоднішній день нами отримано великий набір даних, а саме: відповідних температурних і концентраційних залежностей ПЩ для різних ВТНП [46, 66, 93], а саме: тонких плівок, монокристалів з різними рівнями допування, а також магнітних надпровідників, у тому числі під тиском [66, 107] або опроміненням [63]. Видавалося доцільним порівняти очікувані температурні залежності ПЩ при різних  $\varphi$  з уже наявними даними.

Під час вимірювання питомого електричного опору ВТНП (рис. 4.1, 4.4), ПЩ проявляється у зменшенні поздовжнього питомого опору  $\rho_N(T)$  при  $T \leq T^*$  від його лінійної поведінки при температурах вище  $T^*$ , як було зазначено вище (Розділ 1.3.2). Це призводить до появи надлишкової провідності  $\sigma'(T)$ , заданої рівнянням (1.1). Якби не було процесів у ВТНП, що призводять до відкриття ПЩ при  $T^*$ ,  $\rho_N(T)$  залишався б лінійним приблизно аж до  $T_c$ . Таким чином, очевидно, що надлишкова

провідність  $\sigma'(T)$  виникає внаслідок відкриття ПЩ, отже,  $\sigma'(T)$  має містити інформацію про величину та температурну залежність ПЩ [22, 46, 52, 66, 93].

Через відсутність суворої фундаментальної теорії для визначення  $\sigma'(\varepsilon)$  в ВТНП використовуємо рівняння (1.11) [46], як зазначено у Розділах 1.3.2 та 3, де  $A_4$  — числовий коефіцієнт, такий самий, як *C-factor* у теорії ФЛП, а  $\Delta^*$  значення ПЩ параметра при  $T=T_G$  [101, 102]. Значення  $T^*$ ,  $\varepsilon$  (за рівнянням (1.3)) і  $\xi_c(0)$  (за рівнянням (1.9)) вже були визначені за допомогою аналізу питомого опору та ФЛП і зведені в таблицю 4.1.



Рис. 4.7. Залежність  $ln\sigma'$  від 1/Т для монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (7- $\delta$ =6.96) при  $\varphi_1 = 0$  (сірі крапки),  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (жовті крапки) та  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (пурпурові крапки), нанесені на весь діапазон температур від T\* до  $T_c^{mf}$ . Червона та чорна криві-апроксимація експериментальних даних за допомогою рівняння (1.11). Найкраще підходить, коли рівняння (1.11) обчислюється за  $D^*=2\Delta^*(T_G)/k_BT_c = 5.3 \ (\varphi_1), D^* = 5.0 \ (\varphi_3)$  та  $D^* = 5.4 \ (\varphi_4)$ . Масштаби осі X зміщені для зручності читання. Верхня вісь X використовується для  $\varphi_5$ .

Інші необхідні параметри, такі як  $\Delta^*(T_G)$ , теоретичний параметр  $\varepsilon^*_{c0}$  [96] та коефіцієнт  $A_4$  тепер можуть бути безпосередньо отримані з експерименту. Алгоритм визначення необхідних параметрів ПЩ у ВТНП розглянуто у деталях у Розділі 3.3 (див. рис. 3.7 і 3.8). Таким чином, щоб знайти  $\Delta^*(T_G)$ , ми будуємо графік експериментальних даних надлишкової провідності в координатах  $ln\sigma'$  від l/T [46, 52, 66] та апроксимуємо їх  $ln\sigma'(1/T)$ , розрахованим за рівнянням (1.11). На рис. 4.7 показано три такі графіки для  $\varphi_1 = 0$  (сірі крапки),  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (жовті крапки) і  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (пурпурові крапки). Оскільки різниця між  $T_c$  для різних  $\varphi$  дуже велика, для  $\varphi_5$  використовується верхня вісь X.



Рис. 4.8. Залежності  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (7- $\delta$ =6.96)  $npu \varphi_1 = 0$  (сірі крапки),  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19} e/cm^2$  (жовті крапки) та  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19} e/cm^2$  (крива 5, пурпурові крапки), на температурному інтервалі від T\* до  $T_c^{mf}$  в порівнянні з теоретичною моделлю (Рівняння 4.9) (червоні та чорна криві). Стрілками позначені діапазони залежностей  $\sigma'^{-1} \sim exp(\varepsilon)$ . Вставка:  $ln\sigma'^{-1}$  як функція  $\varepsilon$  для  $\varphi_1$ . Суцільна лінія вказу $\varepsilon$  на лінійну частину кривої між  $\varepsilon_{c01} = 0,12$ та  $\varepsilon_{c02} = 0,25$ . Її нахил  $\alpha^* = 8.5$  визнача $\varepsilon$  параметр  $\varepsilon^*_{c0} = 1/\alpha^* \approx 0,12$ .

При такій побудові форма теоретичних кривих виявляється дуже чутливою до величини  $\Delta^*(T_G)$  (також див. рис. 9 у [52]). Слід також мати на увазі, що в купратах  $\Delta^*(T_G) = \Delta(0)$ , що є енергетичною НП щілиною при T = 0 [101, 102]. Враховуючи цей факт, можна визначити відношення теорії Бардіна-Купера-Шріффера (БКШ)  $D^* = 2\Delta(0)/k_BT_c = 2\Delta^*(T_G)/k_BT_c$ , а отже, і значення  $\Delta^*(T_G)$  при всіх дозах опромінення. При різних *ф* найкраще наближення досягається при значенні  $D^* = 5.3$  (для  $\varphi_1$ ),  $D^* = 5.0$  (для  $\varphi_3$ ) і  $D^* = 5.4$  (для  $\varphi_5$ ) (табл. 4.3) (червоні криві на рис. 4.7 для  $\varphi_1$  і  $\varphi_3$  і чорна крива для  $\varphi_5$ ).  $D^* = (5, 2 \pm 0, 2)$  є типовим значенням для YBCO [103], що свідчить про межу сильного зв'язку для наших зразків, незважаючи на сильний вплив дефектів. Криві для  $\varphi_2 = 1,3 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> та  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> не показані, щоб не захаращувати графік. Відповідно, щоб знайти параметр  $\varepsilon_{c0}^*$  ми використовуємо той факт, що, в усіх купратах  $\sigma^{-1} \sim exp(\varepsilon)$  у певному інтервалі температур  $ln(\varepsilon_{c01}) < ln(\varepsilon) < ln(\varepsilon_{c02})$  вище  $T_{01}$  [96] (рис. 4.8). Отже, в діапазоні температур  $\varepsilon_{c01} < \varepsilon < \varepsilon_{c02}$  (103,8 K < T < 116,1 K)  $ln(\sigma^{-1})$  є лінійною функцією  $\varepsilon$  з кутом нахилу  $\alpha^* = 8,4$ , який визначає параметр  $\varepsilon_{c0}^* = 1/\alpha^* \approx 0,12$  при  $\varphi_l = 0$  (вставка на рис. 4.8). На головній панелі відповідні  $ln(\varepsilon_{c01})$  та  $ln(\varepsilon_{c02})$  для різних зразків позначені стрілками різної довжини. Такий підхід дозволяє визначити надійні значення  $\varepsilon_{c0}^*$  для всіх зразків (див. табл. 4.3), які суттєво впливають на кривизну теоретичних кривих, наведених на (рис. 4.7-4.9) за високих температур [46, 93, 66].

Щоб знайти числовий коефіцієнт  $A_4$ , побудуємо графік експериментальних даних  $\sigma'(T)$  для всіх зразків у діапазоні температур від  $T^*$  до  $T_c^{mf}$  (рис. 4.8) і апроксимуємо їх за допомогою рівняння (1.11) з урахуванням уже знайдених параметрів [46, 52, 93]. Тепер єдиний параметр підгонки –  $A_4$ . Вибираючи  $A_4$ , ми поєднуємо теоретичні криві з експериментом в області флуктуацій 3D AЛ, де  $ln\sigma'$  є лінійною функцією  $ln\varepsilon$  з нахилом  $\lambda = -1/2$  [46] (рис. 4.8, червона та чорна криві). Як видно з рисунку, для всіх  $\varphi$  спостерігається дуже хороша узгодженість між даними та нашою теоретичною моделлю. У випадку  $\varphi_3$  теоретична червона крива в діапазоні 2D-флуктуацій лежить трохи вище даних, оскільки 2D МТ повністю пригнічуються, як було зазначено вище. Криві для  $\varphi_2 = 1,3 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> і  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> не показані, щоб уникнути перевантаження графіка. Значення  $A_4$ , знайдені для всіх доз опромінення, наведені в таблиці 4.3. Як і очікувалося,  $A_4$  помітно зростає зі збільшенням  $\varphi$ , демонструючи найвище значення яке дорівнює 82 при  $\varphi_4$ , оскільки неможливо врахувати всі розбіжності між теорією та експериментом, особливо при наявності дефектів. Але несподівано при  $\varphi_5$  коефіцієнт  $A_4$  різко зменшується, показуючи мінімальне значення 20,5. Відповідно, гарна форма експериментальної кривої, що спостерігається при  $\varphi_5$ , з вираженим флуктуаційним внеском від 2D МТ, а також надзвичайно хороша узгодженість з теорією (чорна крива) також виглядають дивовижними, оскільки в цьому випадку кількість дефектів опромінення повинна бути дуже великою.



Рис. 4.9. Температурні залежності псевдощілини  $\Delta^*$  для монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (7-δ=6.96) при  $\varphi_1 = 0$  (сірі крапки),  $\varphi_2 = 1,3 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (сині крапки),  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (жовті крапки),  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (бірюзові крапки) і  $\varphi_5 = 5,6 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup> (пурпурові крапки), розраховані за допомогою рівняння (1.12) з параметрами, наведеними в тексті. Стрілки вказують відповідні характеристичні температури. На вставці показано залежність  $\Delta^*(T_G)$  від  $\varphi$  в діапазоні від  $\varphi_1$  до  $\varphi_5$ .

Щоб прояснити цей несподіваний результат, дослідження ПЩ виявляється дуже корисним. Розв'язавши рівняння (1.11) для  $\Delta^*(T)$  отримуємо рівняння (1.12) для ПЩ [46], де  $\sigma'(\varepsilon)$  – експериментально виміряна надлишкова провідність. Усі інші параметри, необхідні для аналізу ПЩ всіх зразків при різних  $\varphi$ , наведені в таблицях 4.1-4.3. Чудова апроксимація даних рівнянням (1.11) (рис. 4.8) дає підстави вважати, що рівняння (1.12) зі знайденими наборами параметрів дадуть правильні значення та температурні залежності ПЩ для всіх  $\varphi$ . Наприклад, криву  $\Delta^*(T)$  для  $\varphi_1 = 0$  обчислюють із таким набором параметрів:  $T^* = 139.3$  К,  $T_c^{mf} = 92.9$  К,  $\zeta_c(0) = 0.71$  Å,  $\varepsilon^*_{c0} = 0.117$ ,  $A_4 = 34$ . Результат представлений сірими крапками на рис. 4.9. Результати аналізу ПЩ, розраховані із відповідними наборами знайдених параметрів для доз  $\varphi_2 - \varphi_5$ , також показані на рис. 4.9. Як і очікувалося з аналізу ФЛП, виявлено досить незвичайну еволюцію форми та значень  $\Delta^*(T)$  зі збільшенням дози опромінення (рис. 4.9).

Таблиця 4.3. Параметри псевдощілини монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> при різних дозах опромінення

$\varphi$ , $10^{19} e/cm^2$	Т*, К	T <sub>pair</sub> , K	$\varepsilon^*_{c0}$	$A_4$	$D^{*}$	$\Delta^*(T_G),$ K	$\Delta^*(T_{pair}),$ K
0	139.3	114.0	0.12	34	5.3	245.8	246.7
1.3	120.6	99.8	0.14	39	5.0	209.3	199.5
2.5	132.5	91.3	0.15	74	5.0	184.2	220.5
3.9	94.7	73.6	0.14	82	5.4	152.5	160.8
5.6	90.6	68.6	0.20	20.5	5.4	117.5	118.4

Форма  $\Delta^*(T)$  при  $\varphi_1 = 0$  з  $T^* \sim 139$  К, а саме: широкий максимум при  $T_{pair} = 114$  К, добре виражений мінімум при  $T \approx T_{01} = 96,0$  К, максимум навколо  $T_0 \approx 93,2$  К та невеликий мінімум при  $T = T_G = 93,0$  К (табл. 4.2) характерна для оптимально допованих (ОД) тонких плівок YBCO [46] і монокристалів без

двійників [59]. Характерний приклад такої поведінки  $\Delta^*(T)$  поблизу  $T_c$  показано на рис. 7 у роботі [107]. Як зазначалося вище (Розділ 1), ми вважаємо, що ПЩ виникає при  $T \leq T^*$  в результаті утворення ЛП у формі так званих сильнозв'язаних бозонів (СЗБ), які підкоряються теорії Бозе-Ейнштейнової конденсації (БЕК) [30].

Поблизу  $T^*$  довжина когерентності в площині *ab* в YBCO,  $\xi_{ab}(T) = \xi_{ab}(0) \cdot \varepsilon^{-1/2}$ , що визначає розмір СЗБ, становить  $\xi_{ab}(T^*) \sim 10$  Å, що дуже мало, але збільшується зі зниженням температури. Поблизу  $T_c \ \xi_{ab}(T)$  дуже велика, і ЛП поводяться як куперівські пари, які підкоряються теорії БКШ [22, 30, 79, 93]. Показано, що  $T_{pair} \in$ температурою БЕК-БКШ кроссоверу, який відбувається в купратах зі зниженням температури [30], який вперше був виявлений експериментально в [46]. Слід підкреслити, що в досліджуваному монокристалі немає сильного стрибка  $\Delta^*(T)$ при  $T \leq T_{01}$ , який зазвичай спостерігається в монокристалах YBCO, що містять двійники та двійникові границі [107]. Це спостереження додатково наголошує на передбачуваній відсутності двійників у наших зразках.

При  $\varphi_2 = 1,3 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (сині крапки на рисунку) вплив дефектів опромінення стає вже помітним. Дійсно,  $\rho(100K)$  збільшився на ~ 65%, а  $T_c$  зменшився приблизно на 9 К. Усі інші характеристичні температури також помітно знизилися, тоді як  $\Delta T_{fl}, d_{0l}$  і  $\xi_c(0)$  трохи зросли (табл. 4.2). У цьому випадку максимум на  $T_{pair}$  набагато більш виражений. Крім того, при  $\Delta^*(T)$  в діапазоні між  $T_{pair}$  і  $T_{0l}$  з'явилася лінійна область з нахилом  $\alpha \sim 1,5$ , позначена прямою лінією, за якою слідував стрибок приблизно на ~30 К нижче  $T_{0l}$ . Таким чином,  $\Delta^*(T)$  тепер демонструє поведінку, типову для монокристалів YBCO з помірною кількістю дефектів [107]. Це підтверджується спостереженням вираженого флуктуаційного внеску 2D МТ (рис. 4.6(а)), що є типовим для добре структурованого YBCO, як зазначено вище. Дійсно, форма  $\Delta^*(T)$  виглядає досить рівномірною, і ретельний аналіз показує, що характерний максимум при  $T_0$  і мінімум при  $T_G$  дуже виражені, що свідчить про те, що вплив дефектів, на диво, все ще відносно невеликий. Але при  $\varphi_3 = 2,6\cdot10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (жовті крапки на рисунку) вплив дефектів опромінення стає дуже помітним і несподіваним. Замість очікуваного зниження параметрів зразка, вся крива  $\Delta^*(T)$  помітно зміщується в область більших температур із збільшенням  $T^*$  на ~ 12 К і збільшенням  $\Delta^*(T_{pair})$  на ~20 К (табл. 4.3). Крім того, крива  $\Delta^*(T)$  стала приблизно в 1.2 рази ширшою, ніж навіть при  $\varphi_1$  з найширшим  $T^*$ -  $T_G = 56,8$  К. В результаті експериментальні дані  $\Delta^*(T)$  лежать над синіми крапками, отриманими при  $\varphi_2$ . Це свідчить про несподіваний незвичайний вплив дефектів на кристалічну структуру зразка в цьому випадку. Враховуючи помітне збільшення  $\Delta T_{fl}$ ,  $d_{0l}$  і  $\xi_c(0)$ , що спостерігалося при дослідженні ФЛП (табл. 4.2), що призвело до різкого зниження  $\sigma'(\varepsilon)$  (рис. 4.6(б)), можна припустити, що саме це зменшення, призводить до незвичного збільшення  $\Delta^*(T)$ , оскільки саме  $\sigma'(\varepsilon)$  визначає величину та форму  $\Delta^*(T)$ (див. рів. (1.12)) [46, 59, 93]. Однак слід підкреслити, що справжнє значення  $\Delta^*(T_G)$ як функція  $\varphi$  продовжує лінійно зменшуватися незалежно від дози опромінення (вставка на рис. 4.9). Проте при  $\varphi_4 = 3,9 \cdot 10^{19}$  e/см<sup>2</sup> (бірюзові крапки на рисунку) усі характеристичні температури (табл. 4.1), а також і  $\Delta^*(T)$  загалом, як і очікувалося, різко зменшуються. Крім того, ширина  $T^*$ -  $T_G = 34.8$  К є найменшою в нашому експерименті. Власне кажучи, це не дивно, оскільки в цьому випадку ми спостерігаємо дуже сильний ефект опромінення, що призводить до найбільших  $\xi_c(0), \xi_{ab}(0)$  та відстані між CuO<sub>2</sub> провідними площинами  $d_{01} = 7,1$  A (табл. 4.2), що приблизно вдвічі більше, ніж повідомляється для неопроміненого добре структурованого YBCO [41]. Єдине, що дивує, це дуже вузька форма  $\Delta^*(T)$ , яка ніколи раніше не спостерігалась.

Безсумнівно, очікувалося, що при  $\varphi_5 = 5,6\cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (пурпурові крапки на рисунку) з подальшим зростанням дефектів опромінення форма  $\Delta^*(T)$  буде ще меншою і вужчою. Але результат був досить несподіваним. Максимальне значення  $\Delta^*(T_{pair})$  дійсно дещо зменшилось (Таблиця 4.3), оскільки діапазон ПЩ, отриманий із вимірювань питомого опору (рис. 4.1) при дозі  $\varphi_5$ , очевидно, дуже звужений. Але ширина кривої  $\Delta^*(T) = (T^* - T_G) = 45,5$  К (табл. 4.1) явно зросла (рис. 4.9). В той же час, дуже дивно, але крива моделі ЛД при  $\varphi_5 = \varphi_5$  (рис. 4.6 (б)), також лежить дуже далеко від експерименту ФЛП, незважаючи на очікувану величезну кількість індукованих дефектів. Крім того, при гарному узгодженні з результатами ФЛП аналізу, спостерігається дуже однорідна та плавна крива  $\Delta^*(T)$  з вираженим максимумом при  $T_{pair}$ , вираженим мінімумом при  $T_{01}$ , максимумом поблизу  $T_0$  та мінімумом у  $T_G$ . Крім того, спостережувана крива є типовою для ОД монокристалів YBCO з лінійною ділянкою, позначеною прямою лінією, між  $T_{pair} = 68,6$  К та  $T_{01} = 51,0$  К. Цікаво, що нахил цієї лінійної ділянки  $\alpha = 0.55$  майже такий самий ( $\alpha = 0.53$ ), як і в роботі з монокристалами YBCO, що містять дефекти (двійники) [107]. Але дуже суттєвою відмінністю є відсутність будь-якого стрибка  $\Delta^*(T)$  нижче  $T_{01}$  у нашому випадку. Останній факт підтверджує зроблене раніше припущення, що монокристали у цьому експерименті дійсно не містять двійників.

Зрештою, було б дуже непогано узагальнити всі незвичайні результати, які спостерігалися під час нашого аналізу, щоб отримати самоузгоджену картину поведінки монокристала YBCO під опроміненням електронами високої енергії.

Перш за все, варто підкреслити, що всі особливості спостерігаються лише на дозових залежностях ФЛП (рис. 4.6(а, б), 4.8) та ПЩ (рис. 4.9). Як не дивно, але питомий опір і  $T_c$  лінійно залежать від дози опромінення (рис. 4.2), не виявляючи особливостей при  $\varphi_3 = 2,6\cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup> (жовті крапки на всіх рисунках), яка відповідає АГ-ЕК кросоверу. Таким чином, можна зробити висновок, що взаємодія дефектів опромінення з нормальними носіями заряду, відповідальними за питомий опір, і з ЛП, відповідальними за ФЛП та ПЩ, істотно відрізняється.

Лінійна залежність  $T_c$  від  $\varphi$  була ретельно проаналізована в роботі [69]. Було показано, що при відносно низьких дозах опромінення лінійна  $T_c$  визначається теорією розриву пар Абрикосова-Горькова (АГ), модифікованої для d-хвильових надпровідників в [124], оскільки розрив пари в d-хвильовому надпровідному стані все ж може сприяти початковому зниженню  $T_c$ . Але він не може описати  $T_c$  у сильно пошкодженій області, оскільки вплив безладу полягає в збільшенні квантових флуктуацій фази, передбачених теорією Емері-Ківельсона (ЕК), які відповідають за  $T_c$  при високих  $\varphi$ . У свою чергу ЕК навряд чи можна застосовувати при високих  $T_c$  [125]. Таким чином, має бути перехід від розриву пари до режиму флуктуації фази за високого ступеня безладу [69]. Деталі такого перехіду будуть обговорюватися нижче.

Дослідження ФЛП, а особливо ПЩ, дозволило отримати низку нових, цікавих і дещо несподіваних результатів. На відміну від монотонної зміни  $\rho$  (рис. 4.1, 4.4) i  $T_c$  (рис. 4.2) зі збільшенням дози опромінення, форма і величина  $\Delta^*(T)$ змінюються немонотонно (рис. 4.9). Це вказує на те, що формування різноманітних ансамблів дефектів в ҮВСО під впливом електронів високих енергій також є немонотонним процесом і має свою специфіку. У цьому випадку специфіка, швидше за все, полягає в тому, що при  $\varphi \sim 2,0.10^{19}$  е/см<sup>2</sup> відбувається перехід від пригнічення Т<sub>с</sub> за рахунок режиму розриву пар АГ до режиму ЕК квантових фазових флуктуацій, які ефективно зменшують  $T_c$  при високих  $\varphi$ , тобто в області з високим ступенем безладу. У результаті, після очікуваного зменшення всіх параметрів ПЩ при відносно невеликому  $\varphi_2$ , спостерігається несподіване зростання  $T^*$ ,  $\Delta^*(T_{pair})$  і, загалом, всього  $\Delta^*(T)$ , при  $\varphi_3$  (Рис. 4.9), а флуктуаційний внесок 2D МТ несподівано змінюється на 2D АЛ (рис. 4.6 (б)). Крім того, при  $\varphi_3$ різко зростає відстань між провідними площинами  $d_{0l}$ , а також  $\xi_c(0)$  і  $\xi_{ab}(0)$  (табл. 4.3), що призводить до помітного збільшення області НП флуктуацій  $\Delta T_{fl}$ . Усі отримані зміни дозволяють припустити, що дефекти, які індукують посилення квантових фазових флуктуацій [125], можуть призводити до вираженого зменшення густини носіїв заряду і, цілком імовірно, до зміни поверхні Фермі, що може бути причиною різкого збільшення форми ПЩ  $\Delta^*(T)$  при високих температурах під час переходу АГ-ЕК. Дивним фактом є те, що модель ЛД, як характерна для ВТНП із пошкодженою структурою [42, 89, 90], не апроксимує експеримент, що вказує на те, що кристалічна структура якимось чином зберігається. Це може бути особливістю недвійникових монокристалів ҮВСО.

Однак, починаючи з  $\varphi_3$ , при подальшому збільшенні дози опромінення процес йде вже в одному напрямку. При  $\varphi_4$  всі параметри ПЩ та його розміри сильно зменшуються та спостерігається незвичайна форма  $\Delta^*(T)$  (рис. 4.9, бірюзові крапки). Здавалося б, ще трохи і ПЩ зруйнується при черговому підвищенні  $\varphi$ . Незважаючи на те, що  $\varphi_5$  збільшується майже в півтора рази, цього не відбувається. Досить несподівано спостерігається інший ефект, а саме: і ФЛП, і ПЩ демонструють типову для YBCO поведінку без дефектів. І площа під кривою ПЩ навіть трохи збільшується. Власне кажучи, це найцікавіший, але остаточно незрозумілий результат, який потребує додаткового вивчення.

## Висновки до розділу 4

- 1. Вперше досліджено вплив опромінення високоенергетичними електронами на температурні залежності флуктуаційної провідності та псевдощілини монокристала YBCO, який майже не містить двійників.
- 2. Вперше показано, що  $\rho(\varphi)$  і  $T_c(\varphi)$  лінійно залежать від дози опромінення  $\varphi$  та ніяких особливостей на залежностях  $\rho(\varphi)$  і  $T_c(\varphi)$  при АГ-ЕК кроссовері не спростерігається.
- 3. Вперше виявлено несподіване зростання  $T^*$ ,  $\Delta^*(T_{pair})$  і в цілому всієї кривої  $\Delta^*(T)$  при середньому значенні  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  е/см<sup>2</sup>, що відповідає переходу АГ-ЕК, що свідчить про можливе зниження щільності станів на рівні Фермі через дефекти.
- 4. Вперше з'ясовано, що при збільшенні дози опромінення до φ<sub>5</sub>= 5,6·10<sup>19</sup> е/см<sup>2</sup> як ФЛП, так і Δ\*(T) демонструють криві, типові для добре структурованого YBCO, тобто показано, що "Чим більше дефектів, тим більш ізотропним є зразок". І саме з цього "ізотропного" стану монокристал YBCO під впливом електронного опромінення починає перехід метал-ізолятор.
- 5. Вперше доведено, що аналіз як ФЛП, так і ПЩ виявився більш чутливим до змін внутрішніх електронних підсистем під впливом дефектів ніж інші дослідження.

# РОЗДІЛ 5. ВПЛИВ ДОВГОТРИВАЛОГО ЗБЕРІГАННЯ (СТАРІННЯ) НА ВЛАСТИВОСТІ МОНОКРИСТАЛІВ УВа<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>

Як неодноразово було вказано, у цій роботи поділяється думка, що ЛП виникають у формі так званих сильно зв'язаних бозонів (СЗБ) [22, 30] (див. Розділ 3), механізм спарювання яких також не зовсім зрозумілий. У моделі попередньо сформованих пар  $T_c$  буде контролюватися фазовою жорсткістю пар [31]. Ця ідея підтверджується багатьма експериментами [25, 32, 33], включаючи результати ARPES [40, 130-132], тунелювання [101, 113] та скануючої тунельної мікроскопії [133–135] і підтримується відповідними теоріями [26, 30, 88, 103, 127]. У результаті виявляється, що в широкому діапазоні температур нижче  $T^*$  локальні пари не є справжніми куперівськими парами, а змінюють свої властивості зі зменшенням температури і вже поблизу  $T_c$  поводяться як некогерентні куперівські пари [22, 30, 93]. Власне кажучи, можна стверджувати, що завдяки зусиллям багатьох наукових груп фізика ВТНП, не дивлячись на різні підходи, певною мірою стала більш зрозумілою.

Однак, залишається багато питань щодо практичного застосування купратів. Одним із таких питань є дослідження ефекту довготривалого зберігання (старіння) купратів при нормальному тиску та кімнатній температурі [136–138]. Найбільший інтерес, з ряду причин, викликає сполука Y123(YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub>). По-перше, системи 1–2–3 є найбільш технологічно досконалими з усіх купратів і не змінюють фазовий склад під впливом різних чинників [63, 139]. Крім того, ці сполуки мають критичну температуру  $T_c \approx 90$  К, що вище температури рідкого азоту, при оптимальному допуванні. Можливість зміни рівня допування киснем в системі 1 – 2 – 3 сприяє виникненню процесів структурної релаксації, що дає змогу керувати електротранспортними характеристиками системи. Однак кількість робіт, присвячених ефекту довготривалого старіння купратів на повітрі, напрочуд мала [136–138], а наведені експериментальні дані є дещо суперечливими. Швидше за все, це пов'язано з тим, що дані були отримані на зразках з різною технологічною передісторією, наприклад на кераміці, тонких плівках, текстурованих полікристалах тощо. Але недоліком монокристалів ҮВСО є наявність у них протяжних плоских дефектів, таких як двійники та двійникові границі (див. рис. 2.1), які необхідно враховувати [63, 64]. Вплив старіння на флуктуаційну провідність (ФЛП) та псевдощілину може надати додаткову інформацію про процеси утворення локальних пар вище критичної температури Т<sub>с</sub>. Однак, вплив старіння на ФЛП та ПЩ ще досі не вивчався. У цьому розділі описується вплив довготривалого зберігання (старіння) (до 17 років) при нормальних умовах (кімнатна температура та нормальний тиск) на питомий опір, ФЛП та ПЩ оптимально допованих (ОД) монокристалів УВа<sub>2</sub>Си<sub>3</sub>О<sub>7-б</sub> з двійниками і температурою надпровідного переходу Т<sub>с</sub> близько 90 К.

## 5.1. Дослідження питомого опору та критичної температури

ефекту старіння перші Для визначення вимірювання питомого опору  $\rho(T) = \rho_{ab}(T)$  монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> (рис. 5.1.) проводили одразу після відокремлення кристалів від розплаву та насичення їх киснем до оптимального значення  $\delta \leq 0,1$  (зразок S1). Після чого зразки зберігали в скляній тарі та піддавали повторним вимірюванням через 6 (зразок S2) та 17 (зразок S3) років. Температурні залежності питомого опору  $\rho(T)$  вихідного монокристала з  $T_c = 91,66$  К (зразок S1), виміряні на різних стадіях старіння, показані на рис. 5.1. Як і очікувалося, S1 має найвищий  $T_c$ , найнижчий питомий опір 3 найменшим але нахилом  $a = d\rho/dT \approx 0,51$  мкОм·см/К у нормальному стані вище  $T^*= 164$  К та найменшою шириною резистивного переходу  $\Delta T_c \approx 1$  К. Після 6 років зберігання параметри питомого опору істотно не змінилися. Зразок S2 має дещо нижчу T<sub>c</sub>, але помірно підвищений питомий опір і нахил  $a = d\rho/dT \approx 0.56$  мкОм·см/К (табл. 5.1), що добре узгоджується з літературними даними [15]. Більш вражаючий результат отримано після 17 років зберігання. Питомий опір  $\rho(300K)$  збільшився більш ніж у 3 рази за рахунок збільшення нахилу  $a=d\rho/dT \approx 2,1$  мкОм·см/К більш ніж у 4 рази. Однак, температура НП переходу не сильно змінилася, як можна було очікувати.

Було визначено критичну температуру  $T_c = 90,2$  К, якщо виміряти стандартним методом показаним чорною суцільною лінією на вставці до рис. 5.1. Тим не менш, вставка також показує, що резистивний перехід S3 є дуже широким ( $\Delta T_c \approx 7$  K) і вказує на появу іншої низько-температурної фази з  $T_c(\rho=0) \approx 84$  К. Таким чином, загальна  $\Delta T_c \approx 16$  К.



Рис. 5.1. Температурні залежності питомого опору оптимально допованого монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $T_c \approx 91,7 \text{ K}$ ) на різних стадіях старіння. Зразки: після вирощування (S1), через 6 (S2) та 17 років зберігання (S3). Стрілки позначають  $T^*$ . На вставці показано резистивні переходи в надпровідний стан для всіх зразків, які визначають  $T_c$ .

Така форма  $\rho(T)$  помітно відрізняється від «класичної» поведінки  $\rho(T)$  з подібним нахилом і  $\rho(300K)$ , яку отримано шляхом зменшення густини носіїв заряду  $n_f$  в YBCO зі зменшенням рівня допування киснем [15, 46]. В останньому випадку критична температура зменшується до  $T_c \sim 60$  K, але ширина резистивного переходу залишилась малою з  $\Delta T_c < 4$  K.

Таким чином, можна зробити висновок, що форма  $\rho(T)$ , яка спостерігається після 17 років зберігання, обумовлена не лише зменшенням  $n_f$ , що призводить до помітного зростання питомого опору, але також свідчить про виникнення значних структурних спотворень у кристалі. Цей висновок підтверджується результатами аналізу флуктуаційної провідності і особливо псевдощілини, що показано у наступному підрозділі.

## 5.2. Вплив довготривалого зберігання на надлишкову провідність

Відхилення  $\rho(T)$  від лінійності нижче температури  $T^*$  (рис. 5.1) призводить надлишкової провідності  $\sigma'(T)$ , яка визначається за простою появи ДО формулою (1.1) (див. Розділ 1.3.2). Як завжди,  $\rho(T) = \rho_{ab}(T)$  та  $\rho_N = aT + \rho_0$ , де  $\rho_0$  – залишковий опір, а  $a = d\rho/dT$ . Цей спосіб визначення  $\rho_N(T)$ , який широко використовується для розрахунку надлишкової провідності  $\sigma'(T)$  у купратах [93], моделі майже антиферомагнітної знайшов підтвердження В рідини більш точного Фермі (NAFL) [19]. Для визначення  $T^*$ використовуємо критерій  $[\rho(T) - \rho_0] = aT$  [71]. Температура надпровідного переходу  $T_c$ визначається екстраполяцією лінійної частини резистивного переходу до  $\rho(T) = 0$ (вставка на рис. 5.1).

 $T_c^{mf}$ ,  $\rho(100K),$ *T*<sub>0</sub>,  $T_c$ ,  $\xi_{c}(0),$ Зразок,  $\rho(300K),$  $T_{G}$  $T_{01}$ ,  $C_{3D}$  $d_{01}$ , роки K K K K K Å Å  $\mu\Omega \cdot cm$  $\mu\Omega \cdot cm$ S1(0)155 44.87 91.66 91.72 81.7 91.8 92.4 0.3 4.1 0.36 90.77 90.9 91.4 94.5 S2(6)67.2 90.5 1.05 4.2 209.8 0.87 S3(17) 491.4 73.22 90.2 95.3 96.1 98.0 101.7 2.1 6.7 2.0

Таблиця 5.1. *Резистивні та параметри ФЛП монокристала YBa*<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> на різних стадіях зберігання.

Далі проводиться аналіз ФЛП та ПЩ, отриманих із виміряної надлишкової провідності, в рамках моделі локальних пар (ЛП) (див. Розділи 1.3.2, 3 і 4). Параметри, визначені з аналізу зразків, наведені в таблиці 5.1 та таблиці 5.2. Очевидно, що першим кроком для початку аналізу є визначення критичної температури середнього поля  $T_c^{mf} > T_c$  [96, 114]. Нагадаємо, що правильне визначення  $T_c^{mf}$  є вирішальним у аналізі ФЛП та ПЩ, бо вона визначає зведену температуртуру є (див. рів. 1.3). Добре відомо [46, 52, 93], що у ВТНП ФЛП біля *T*<sub>c</sub> 3D-рівнянням завжди екстраполюється стандартним теорії Асламазова-Ларкіна (АЛ) (див. рів. 1.2), яке визначає ФЛП у будь-якій 3D-системі. Це означає, що звичайна 3D ФЛП реалізується у ВТНП при  $T \rightarrow T_c$  [22, 66, 93]. 3 рівняння (1.2) можна легко отримати  $\sigma'^{-2} \sim \varepsilon \sim (T - T_c^{mf})/T_c^{mf}$ . Очевидно, що  $\sigma'^{-2} = 0$ , при  $T_c^{mf} = T_c$ , як показано на рис. 5.2 на прикладі зразка S1.



Рис. 5.2. Температурна залежність оберненого квадрата надлишкової провідності  $\sigma'^{-2}(T)$  для зразка S1, що визначає  $T_c^{mf} = 91,72$  К. Стрілки також вказують критичну температуру  $T_c$ , температуру Гінзбурга  $T_G$  і температуру кроссовера 3D-2D  $T_0$ .

Такий спосіб визначення  $T_c^{mf}$  був запропонований в [42] і обґрунтований у різних експериментах ФЛП [22, 46, 66, 93]. Крім  $T_c^{mf} = 91,72$  К та  $T_c$ , на рисунку показано температуру Гінзбурга  $T_G$ , до якої теорії флуктуацій працюють, коли температура зменшується, і температуру кроссовера 3D-2D  $T_0$ , яка обмежує область 3D-AЛ флуктуацій зверху.



Рис 5.3. Залежності ln σ' від ln ε для зразка S1, S2 та S3 в діапазоні НП флуктуацій поблизу T<sub>c</sub> у порівнянні з теоріями флуктуацій 3D-AЛ (червоні прямі лінії 1) та 2D-MT (сині криві 2). Усі характеристичні температури T<sub>G</sub>, T<sub>0</sub> і T<sub>01</sub> позначені стрілками. Стрілки для S2 не позначені, а вісь Y для S3 було зміщено, щоб зробити рисунок більш читабельним.

Але все ще  $\xi_c(T) > d_{01} \approx 4$  Å,  $d_{01}$ - це відстань між провідними площинами CuO<sub>2</sub> [46, 52, 93], і  $\xi_c(T)$  все ще з'єднує площини CuO<sub>2</sub> джозефсонівською взаємодією.

Після визначення  $T_c^{mf}$ , будуємо графік залежності  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  для зразків S1, S2 та S3, як показано на рис. 5.3. Як завжди, поблизу  $T_c$  ФЛП ідеально апроксимується флуктуаційним внеском теорії АЛ для 3D-систем (рівняння 1.2). У подвійних логарифмічних координатах це червоні прямі (1) з нахилом  $\lambda = -1/2$ . Це підтверджує висновок про те, що класичний флуктуаційний режим 3D-АЛ завжди

реалізується у ВТНП поблизу  $T_c$  (див. Розділи 1.3.2, 3 і 4), оскільки  $\xi_c(T) >> d$ , і флуктуаційні куперівські пари (ФКП) можуть взаємодіяти. по всьому об'єму зразка. Вище температури  $T_0$  ( $ln\varepsilon_0$  на рисунку 5.3), де  $\xi_c(T) < d$ , тривимірний(3D) режим закінчується. В інтервалі температур від  $T_0$  до  $T_{01} \approx 92,4$  К ( $ln\varepsilon_{01}$  на рисунку) (S1) реалізується 2D флуктуаційний режим, який описується флуктуаційним внеском Макі–Томпсона (МТ) теорії Хікамі–Ларкіна (ХЛ) (рів. 1.5) [43], сині криві (2) на рис 5.3. Всі параметри, якы входять до (1.5), обговорено в деталях у Розділах 1.3.2, 3 і 4. Таким чином, при температурі  $T = T_0$  відбувається кроссовер 3D-2D (АЛ-МТ). Очевидно, що при  $T_0 \xi_c(T_0) = \xi_c(0)\varepsilon_0^{-1/2} = d$ , що дає змогу визначити довжину когерентності вздовж осі  $c: \xi_c(0) = d \sqrt{\varepsilon_0}$  (рів. 1.9).

Визначивши  $T_0$  і  $ln\varepsilon_0$  (за рівнянням 1.9).) знаходимо  $\xi_c(0) = (0,36 \pm 0,01)$  Å, для зразка S1(табл. 5.1), що є типовим значенням  $\xi_c(0)$  для монокристалів ОД YBCO з двійниками та однаковою  $T_c = 91,7$  К [107]. Відповідно  $\xi_c(T_{0I}) = \xi_c(0) \varepsilon_{0I}^{-1/2} = d$ , що дає змогу оцінити відстань між провідними площинами CuO<sub>2</sub> [22, 46, 93]. Отже, виконується умова  $\xi_c(0) = d \sqrt{\varepsilon_0} = d_{01} \sqrt{\varepsilon_{01}} = (0.36 \pm 0.01)$  Å (для зразка S1). Оскільки d = c = 11,68 Å, то отримуємо:  $d_{01} = d\sqrt{\varepsilon_0}\sqrt{\varepsilon_{01}} = (4.14 \pm 0.05)$  Å для зразка S1, що, і є міжплощинною відстанню в YBCO [41]. Таким же чином були знайдені відповідні значення  $d_{01}$  для всіх інших зразків (табл. 5.1). З рис. 5.3 простежується наступна еволюція ФЛП: для зразка S1 залежність  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  є типовою для ОД монокристалів, що містять двійники та ДГ з сильно вираженими 2D-МТ флуктуаціями. Тут сильно виражені флуктуації означають, що відхилення флуктуацій 2D-МТ вище екстрапольованої червоної лінії 3D-АЛ, яке зазвичай позначається як  $\Delta ln\sigma'$  [52, 93], є досить великим (див. рис. 6 і 7 в [52]). Як можно побачити з рисунку 5.3, після 6 років зберігання, несподіванно, зразок S2 демонструє поведінку ФЛП характерну для систем Y123 зі зменшеною кількістью дефектів, а саме діапазон 3D флуктуацій помітно збільшився, а  $\Delta ln\sigma'$ , навпаки, зменшився, але абсолютне значення  $ln\sigma'$  практично не змінилось. Цікаво, що S2 має коефіцієент масштабування  $C_{3D} \approx 1$  (табл. 5.1), що є типовим значенням для добре структурованих тонких плівок YBCO [46]. А зразок S3, як і очікувалось, має

найменше абсолютне значення ФЛП. Власне кажучи, в цьому випадку експериментальна крива виглядає дещо спотвореною, а флуктуації 2D-МТ майже повністю пригнічені. Така залежність  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  з найбільшим  $C_{3D} \approx 2,1$  (табл. 5.1) є характерною ознакою поведінки ФЛП в системах Y123 з дефектами [89]. За розрахункам можемо також побачити, що  $d_{01}$  збільшилась більш ніж у 1.6 рази в S3 (табл. 5.1). Ці дані дозволяють зробити висновок, що S3 має підвищену кількість дефектів, що узгоджується з результатами вимірювань питомого опору. Було б цікаво знайти підтвердження цих результатів у поведінці ПЩ, яку буде розглянуто нижче.

# 5.3. Температурна залежність псевдощілини YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> під впливом довготривалого зберігання

За визначенням псевдощілина  $\Delta^*(T)$  – це пригнічення щільності станів на рівні Фермі за температур  $T < T^*$ , де  $T^* >> T_c$ , як було зазначено вище. У вимірюваннях питомого опору ПЩ проявляється як відхилення питомого опору  $\rho(T)$  від лінійної поведінки при температурах нижче  $T^*$  у недодопованих отримання інформації про ПЩ з купратах. Для аналізу надлишкової провідоності  $\sigma'(T)$ , по-перше необхідне належне рівняння, яке б визначало  $\sigma'(T)$  у всьому температурному інтервалі від  $T^*$  до  $T_c$  та явно включало ПЩ параметр  $\Delta^*(T)$ . Це рівння (1.11), яке було отпимано в моделі локальних пар [46], де  $\left(1 - \frac{T}{T^*}\right)$  – визначає скільки пар виникає при температурі  $T \leq T^*$ , а  $\left(exp\left(-\frac{\Delta^*}{T}\right)\right)$  – описує динаміку руйнування ЛП тепловими флуктуаціями при наближенні Т до Т<sub>с</sub>. Розв'язавши рівняння (1.11) щодо  $\Delta^*(T)$ , отримуємо рівняння (1.12) для псевдощілини,  $\sigma'(\varepsilon)$  експериментально ле виміряна надлишкова електропровідність у всьому інтервалі температур від  $T^*$  до  $T_G$ ,  $\varepsilon^*_{c0}$  – параметр теорії [96] і А<sub>4</sub>-коефіцієнт масштабування. Важливо, що всі параметри, які входять у рів. (1.11) та (1.12), в рамках розвиненого в [46] аналізу, можна визначити з експерименту, як розглянуто в деталях у Розділах 3 та 4.
Як видно з рис. 5.4(a) і 5.4(b), залежності  $ln\sigma'(T)$ , розраховані за рівнянням (1.11) (суцільні червоні криви на рисунках), яке добре описує експериментальні дані зразків S1(a), S2 (не показано на рисунку) і S3(b).



Рис. 5.4. (В кольорі). Залежності  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  ОД монокристала  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  у всьому діапазоні температур від  $T^*$  до  $T_G$  на різних стадіях старіння. (a) S1 (сірі крапки) у вирощеному стані, (b) S3 (сині крапки) після 17 років зберігання. Червоні криві – апроксимація експериментальних даних теоритичним рівнянням (1.11.) з набором параметрів, наведеним у тексті. Підгонка дозволяє визначити коєфіциент A<sub>4</sub>. Вставка:  $ln(1/\sigma')$  як функція  $\varepsilon$  для S3. Пряма червона лінія позначає лінійну частину кривої між  $\varepsilon_{c01} = 0,15$  та  $\varepsilon_{c02} = 0,45$ . Відповідні значення  $ln(\varepsilon_{c01})$  і  $ln(\varepsilon_{c02})$  позначені стрілками на головних панелях для обох зразків. Нахил  $\alpha^* = 3,4$  визначає параметр  $\varepsilon^*_{c0} = 1/\alpha^* = 0.29$  для зразка S3.

Це дає можливість визначити коефіціент  $A_4$  та свідчить про можливість застосування прийнятої в даній роботі моделі ЛП. Процедура підгонки призводить до визначення важливих параметрів, таких як теоретичний параметр  $\varepsilon_{c0}^*$  (вставка до рис. 5.4 (b)), числовий коефіцієнт  $A_4$  (рис. 5.4) і псевдощілина  $\Delta^* = \Delta^*(T_G)$  (рис. 5.5), які наведено в таблиці 5.2.

На рис 5.5. зображено варіації  $\ln\sigma'(T)$  як функції 1/T для зразків S1 і S3, які виявилися надчутливими до значення  $\Delta^*(T_G)$  [46, 93]. З цього рисунка можливо оцінити значення  $\Delta^*(T_G)$  шляхом підгонки даних відповідно до рівняння (1.11). Найкращу відповідність було отримано, коли  $\Delta^*(T_G)/k_BT_c \approx 2.5$  для обох зразків S1 і S3 (суцільні червоні криві на рисунку). Отже  $D^* = 2\Delta(0)/k_BT_c =$  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c \sim 5.0$  для всіх зразків (табл. 5.2). Зауважте, що  $D^* = (5,0\pm0,2)$  є типовим значенням для YBCO, яке означає режим сильного зв'язку для d-wave надпровідників [103].

Таблиця 5.2. Параметри псевдощілини монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> на різних стадіях старіння.

Зразок,	Τ*,	α	$\mathcal{E}_{c0}^{*}$	$A_4$	$D^*$	$\Delta^*T_G,$	T <sub>pair</sub> ,	$\Delta^* T_{pair},$
роки	K					K	K	K
<i>S1(0)</i>	164	6.7	0.15	8.4	5.0	229.3	115.2	202.5
S2(6)	232	4	0.25	23	2.5	225.2	143.0	266.2
S3(17)	199	3.4	0.29	41	2.5	225.8	163.3	249.4

Визначивши  $\varepsilon_{c0}^*$  і  $\Delta^*(T_G)$  і використовуючи раніше визначені  $T^*$  та  $\xi_c(0)$ , можна знайти масштабний коефіцієнт  $A_4$ . Для цього ми опишемо дані  $ln\sigma'$  від  $ln\varepsilon$  за допомогою рівняння (1.11) з набором знайдених параметрів і використовуваємо  $A_4$ як підгоночний параметр (рис. 5.4). Результати апроксимації представлені суцільними червоними кривими на основних панелях рис. 5.4 як для S1 (а), так і для S3 (b). Видно, що формула (1.11) добре описує експеримент. Відхилення теорії від експерименту в області 2D-флуктуацій (S1) на нашу думку пов'язано з виявленим посиленям 2D-МТ флуктуацій (рис. 5.3), які не були враховані в моделі ЛП [32, 33].

Отримані значення  $A_4$  також наведено в таблиці 5.2. Тепер ми маємо повний набір параметрів для побудови температурної залежності ПЩ для всіх досліджуваних зразків. На рис 5.6 зображено відповідні залежності  $\Delta^*(T)$  для зразків S1 (a), S2 (b) та S3 (c). Як і в інших Розділах, псевдощілину  $\Delta^*(T)$  було визначено за допомогою рівняння (1.12), враховуючи значення параметрів  $\sigma'(T)$ ,  $T^*$ ,  $T_c^{mf}$ ,  $\varepsilon^*_{c0}$ ,  $\zeta_c(0)$ , та  $A_4$ , які були отримані під час аналізу данних (див. таблиці 5.1, 5.2).



Рис 5.5. (В кольорі)  $ln\sigma'$  як функція 1/Т для зразків S1 (сірі крапки, основний рис.) і S3 (сині крапки, вставка) у всьому діапазоні температур від T<sup>\*</sup> до T<sub>G</sub>. Червоні криві – апроксимація експериментальних даних за рівнянням (1.11) з набором параметрів, наведеним у тексті. Найкраще наближення досягається при значенні БКШ співвідношення D<sup>\*</sup> =  $2\Delta^*(T_G)/k_BT_c = 5.0$  для обох зразків.

Криві, зображені на рис. 5.6, демонструють певну форму з максимумами та мінімумами при певних температурах. На рисунку 5.6 (а) показано  $\Delta^*(T)$  для S1,

розраховане за допомогою рівняння (1.12) з наступним набором параметрів, отриманих з експерименту в рамках моделі ЛП:  $T^* = 164 \ K, \ T_c^{mf} = 91,72 \ K, \ \xi_c(0) = 0,36 \ \text{Å}, \ \varepsilon_{c0}^* = 0.15, \ A_4 = 8,4.$ 



Рис 5.6. (В кольорі) Температурні залежності псевдощілини  $\Delta^*(T)$  ОД монокристалу YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> одразу після виготовлення (зразок S1) [(а), сірі крапки], після 6 років зберігання (зразок S2) [(b),фіолетові крапки], після 17 років зберігання (зразок S3) [(с), сині крапки]. Кожна вставка показує  $\Delta^*(T)$  в інтервалі тимператур від  $T_G$  до  $T_{01}$ . Стрілки вказують відповідні характеристичні температури.

Як і очікувалося, отримана форма  $\Delta^*(T)$  з відносно вузьким та низьким максимумом при  $T_{pair} \approx 115$  К, мінімумом при  $T_{01} = 92,4$  К і з наступним різким збільшенням  $\Delta^*(T)$  до  $\Delta^*(T_G) \approx 229$  К у дуже вузькому інтервалі НП флуктуацій, є

типовим для ОД ВТНП монокристалів, що містять двійники та ДГ [107]. Найбільш ймовірно, таке різке підвищення  $\Delta^*(T)$  при наближенні T до  $T_c$  може бути пов'язане зі специфікою формування флуктуаційних куперівських пар в монокристалах YBCO, що містять велику кількість двійників. На вставці показано деталі низькотемпературної поведінки  $\Delta^*(T)$  в S1 з мінімумом при  $T_{01}$ , і максимумом приблизно при  $T_0$  і остаточним мінімумом при  $T_G$ , що також характерно для всіх ВТНП (див. рис. 7 в [107]). Діапазон НП флуктуацій  $\Delta T_{fl} = T_{0l} - T_G \approx 0,7$  К дуже малий, але схожий з  $\Delta T_{fl}$ , отриманим для ОД монокристалів YBCO з ДГ [107]. На рисунку 5.6 (b) показано  $\Delta^*(T)$  для S2, розраховане за рівнянням. (1.12) з відповідним набором параметрів, наведених у таблицях 5.1 і 5.2. Як і очікувалося, тепер отримана форма  $\Delta^*(T)$  із широким максимумом при  $T_{pair} \approx 143$  K і мінімумом при  $T_{01} = 94,5$  K, за яким спостерігається збільшення  $\Delta^*(T)$  до  $\Delta^*(T_G) \approx 225$  K, характерне для добре структурованих ВТНП, як тонких плівок [46], так і монокристалів [59]. На вставці показано низькотемпературну поведінку  $\Delta^*(T)$  у S2 з мінімумом у  $T_{01}$ , максимумом приблизно в  $T_0$  та остаточним мінімумом у  $T_G$ , що є типовою для всіх ВТНП, як було зазначено вище. Діапазон НП флуктуацій, збільшився до  $\Delta T_{fl} = T_{0l} - T_G \approx 3,6$  К. Дивлячись на цей ПЩ результат, можна дійти дещо несподіваного висновоку про те, що кристалічна структура зразка якимось чином покращилася після 6 років зберігання, найбільш вірогідно за рахунок впорядкування дефектів з часом. І, нарешті, на рис. 5.6 (с) показано  $\Delta^*(T)$  для S3, що також було розраховано за рівнянням (1.12) з відповідним набором параметрів, наведених у таблицях 5.1 і 5.2. Як і очікувалося, у цьому випадку виявлено досить своєрідну залежність  $\Delta^*(T)$ , для якої не можна знайти прямого аналога в наших роботах по вивченню  $\Delta^*(T)$ . Нахил  $\Delta^*(T)$  різко змінюється кілька разів, що вказує на значну зміну механізму взаємодії ЛП у зразку, спричинену, швидше за все, дефектами. Лінійна частина  $\Delta^*(T)$ , яка спостерігається від  $T_{pair}$  приблизно до  $T_{01}$ , характерна для ОД монокристалів ҮВСО з дефектами [107], або утвореними, наприклад, опроміненням високоенергетичними електронами, як показано у [63] або у попередньому розділі (див. рис. 4.9). Але, на відміну від опромінення, максимальна величина  $\Delta^*(T_{pair})$  (таблиця 5.2) сильно не змінилася, а  $\Delta^*(T_G)$  не 113

змінилася зовсім. Це свідчить про різні механізми формування дефектів при опроміненні і старінні. Також додамо, що у S3 інтервал надпровідних флуктуацій  $\Delta T_f = T_{01} - T_G \approx 5,6$  К відносно великий, але форма  $\Delta^*(T)$  поблизу критичної температури  $T_c$  повністю спотворена дефектами, як можно побачити на вставці. Виходячи з усього вище сказаного, можна зробити висновок, що скоріше за все псевдощілинний стан  $\Delta^*(T)$ , виявлений у нашому експерименті після 17 років зберігання монокристала YBCO, безперечно утворений дефектами та може розглядатися як типова форма  $\Delta^*(T)$  після довготривалого зберігання (старіння). Очевидно, що використання приладів із такими елементами ВТНП неможливе.

### Висновки до розділу 5

- Вперше досліджено та проаналізовано вплив довготривалого зберігання (старіння) на флуктуаційну провідність та псевдощілину в монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> з двійниками.
- 2. Вперше доведено, що дефекти які виникають під час старіння, суттєво впливають як на питомий опір, так і на ФЛП та псевдощілину.
- 3. Вперше виявлено, що після 6 років зберігання дефекти, які виникли під час старіння, практично повністю усувають вплив двійників і двійникових границь у зразку. Як наслідок, температурна поведінка як ФЛП, так і ПЩ нагадує типову для добре структурованих монокристалів YBCO.
- 4. Вперше з'ясовано, що велика кількість структурних дефектів, які виникають у зразку після 17 років зберігання, призводить до сильної деградації структури та перерозподілу заряду в кристалі, які, швидше за все, відповідають за спостережувану незвичайну форму ПЩ. Доведено, що такі ВТНП більше не можна використовувати.

#### ВИСНОВКИ

- Вперше виявлено несподіваний перехід від класичної залежності ФЛП 2D МТ до залежності 2D АЛ вище температури 3D-2D кроссовера *T*<sub>0</sub>, а також незвичну залежність довжини когерентності від *T<sub>c</sub>* у магнітному полі вище ~ 3 Тл у плівці YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>.
- 2. Вперше спостерігалося помітне зміщення залежності ПЩ  $\Delta^*(T)$  в бік нижчих температур, а також інтенсивне зменшення  $\Delta^*(T)$  в області НП флуктуацій поблизу  $T_c$  під впливом магнітного поля швидше за все за рахунок впливу створеної магнітним полем двовимірної вихрової ґратки.
- 3. Вперше виявлено несподіване зростання  $T^*$ ,  $\Delta^*(T_{pair})$  та ПЩ  $\Delta^*(T)$  монокристала YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> опроміненного електронами, при  $\varphi_3 = 2,5 \cdot 10^{19}$  e/cm<sup>2</sup>, що відповідає переходу АГ-ЕК та свідчить про можливе зниження щільності станів на рівні Фермі під впливом опромінення.
- Вперше з'ясовано, що при збільшенні дози опромінення до φ<sub>5</sub> = 5,6 · 10<sup>19</sup> e/см<sup>2</sup> як ФЛП, так і Δ\*(T) демонструють криві, типові для добре структурованого YBCO, тобто показано, що велика кількість індукованих дефектів призводить до ізотропізації зразка перед переходом метал-ізолятор.
- 5. Вперше проведено порівняльний аналіз температурних залежностей питомого опору *ρ(T)*, флуктуаційної провідності σ'(T) та псевдощілини Δ\*(T) в монокристалах YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> з двійниками одразу після виготовлення, а також після 6 та 17 років зберігання за нормальних умов.
- 6. Вперше показано, що після 6 років зберігання дефекти, які виникли під час зберігання, практично повністю усувають вплив двійників та двійникових границь, а температурна поведінка як ФЛП, так і ПЩ нагадує типову для добре структурованих YBCO. Але структурні дефектів, які виникають у зразку після 17 років зберігання, призводять до сильної деградації структури та перерозподілу заряду в кристалі, які, швидше за все, відповідають за виявлену незвичну форму *Д*\*(*T*).

### ПЕРЕЛІК ЛІТЕРАТУРИ

- P. Drozdov, P. P. Kong, V. S. Minkov, S. P. Besedin, M. A. Kuzovnikov, S. Mozaffari, L. Balicas, F. F. Balakirev, D. E. Graf, V. B. Prakapenka, E. Greenberg, D. A. Knyazev, M. Tkacz and M.I. Eremets, Superconductivity at 250 K in lanthanum hydride under high pressures, Nature, 569, 528-531 (2019).
- 2. F. Foong, B. Bedard, Q. L. Xu, and S. H. Liou, C-axis oriented (Hg,Ti)based superconducting films with  $T_c = 125$  K, Applied Physics Letters, **68**, 1153-1155, (1996).
- Y. Moriwaki, T. Sugano, C. Gasser, A. Fukuoka, K. Nakanishi, S. Adachi, and K. Tanabe, Epitaxial HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O y films on SrTiO<sub>3</sub> substrates prepared by spray pyrolysis technique, Applied Physics Letters, 69, 3423- 3425, (1996).
- R. L. Meng, B. Hickey, Y. Q. Wang, Y. Y. Sun, L. Gao, Y. Y. Xue, and C. W. Chu, Processing of highly oriented (Hg<sub>1-x</sub>Re<sub>x</sub>)Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8+δ</sub> tape with x = 0.1, Applied Physics Letters, 68, 3177-3179, (1996).
- L. Gao, Y. Y. Xue, F. Chen, Q. Xiong, R. L. Meng, D. Ramirez, C. W. Chu, J. H. Eggert and H. K. Mao, Superconductivity up to 164 K in HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>m-1</sub>Cu<sub>m</sub>O<sub>2m+2+δ</sub>(m=1, 2 and 3) under quasihydrostatic pressures, Physical Review B, 50, 4260-4263, (1994).
- A. P. Drozdov, M. I. Eremets, I. A. Troyan, V. Ksenofontov and S. I. Shylin, Conventional superconductivity at 203 kelvin at high pressures in the sulfur hydride system, Nature, 525, 73-67, (2015).
- Maddury Somayazulu, Muhtar Ahart, Ajay K. Mishra, Zachary M. Geballe, Maria Baldini, Yue Meng, Viktor V. Struzhkin, and Russell J. Hemley, Evidence for Superconductivity above 260 K in Lanthanum Superhydride at Megabar Pressures, Physical Review Letters, 122, 027001, (2019).
- 8. R. J. Cava, Structural chemistry and the local charge picture of copper oxide superconductors, Science, **243**, 656-662, (1990).

- K.W.Wong, W.Y.Ching, Wong K.W. Theory of simultaneous excitonicsuperconductivity condensation II: Experimental evidence and stoichiometric interpretations, Physica C: Superconductivity, **158**, 15-31, (1989).
- M. Asta, D. de Fontaine, G. Ceder, E. Salomons, M. Kraitchman, One- and twodimensional oxygen ordering in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub>, J. Less. Common Metals, 168, 39-51, (1991).
- M.R. Norman, D. Pines and C. Kallin, The pseudogap: friend or foe of high T<sub>c</sub>?, Adv. Phys., 54, 715, (2005).
- Y.Iye, Y. Transport properties of high-T<sub>c</sub> cuprates, Phys. Properties of High– Temp. Superconductors. – Ed. D. M. Ginsberg. – Singapore: World Scientific, 3, 285-361, (1992).
- Ed. K. H. Bennemann and J. B. Katterson, The Physics of Superconductors, Conventional and High-Tc superconductors. – Berlin: Springer, 1, 96, (2003).
- J. Paul Attfield, Chemistry and high temperature superconductivity, Journal of Materials Chemistry, 21, 4756, (2011).
- Y. Ando, S. Komiya, K. Segawa, S. Ono, and Y. Kurita, Electronic Phase Diagram of High-T<sub>c</sub> Cuprate Superconductors from a Mapping of the In-Plane Resistivity Curvature, Phys. Rev. Lett., 93, 267001, (2004).
- S. Badoux, W. Tabis, F. Laliberté, G. Grissonnanche, B. Vignolle, D. Vignolles, J. Béard, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, N. Doiron-Leyraud, Louis Taillefer, Cyril Proust, Change of carrier density at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor, Nature, 531, 210-214, (2016).
- 17. L.G. Aslamazov and A. L. Larkin, The influence of fluctuation pairing of electrons on the conductivity of the normal metal, Phys. Lett., **26A**, 238-239, (1968).
- L. Taillefer, Scattering and Pairing in Cuprate Superconductors, Annual Rev. of Condens. Matter Phys., 1, 51-70, (2010).
- B.P. Stojkovic, D. Pines, Theory of the longitudinal and Hall conductivities of the cuprate superconductors, Phys. Rev. B., 55, 8576 – 8595, (1997).
- 20. A. A. Kordyuk, Pseudogap from ARPES experiment: three gaps in cuprates and topological superconductivity, Low Temp. Phys. **41**, 417–444 (2015).

- Rui-Hua He, M. Hashimoto, H. Karapetyan, J. D. Koralek, J. P. Hinton, J. P. Testaud, V. Nathan, Y. Yoshida, Hong Yao, K. Tanaka, W. Meevasana, R. G. Moore, D. H. Lu, S.-K. Mo, M. Ishikado, H. Eisaki, Z. Hussain, T. P. Devereaux, S. A. Kivelson, J. Orenstein, A. Kapitulnik, Z.-X. Shen, From a single-band metal to a high-temperature superconductor via two thermal phase transitions, Science, 331, 1579-1583, (2011).
- 22. A. L. Solovjov, Superconductors Materials, Properties and Applications. Chapter
  7: Pseudogap and local pairs in high-T<sub>c</sub> superconductors, Ed. A.M. Gabovich,
  Rijeka, 137, (2012).
- 23. T. Timusk and B. Statt, The pseudogap in high-temperature superconductors: an experimental survey, Rep. Prog. Phys., 62, 161 122, (1999).
- A. A. Abrikosov, Properties of the pseudogap phase in high-T<sub>c</sub> superconductors, Phys. Rev. B, 64, 104521 (2001).
- 25. J. L. Tallon, F. Barber, J. G. Storey, et al., Coexistence of the superconducting energy gap and pseudogap above and below the transition temperature of cuprate superconductors, Phys. Rev. B., **87**, 140508, (2013).
- 26. I. Esterlis, S. A. Kivelson, and D. J. Scalapino, Pseudogap crossover in the electronphonon system, Phys. Rev. B, **99**, 174516 (2019).
- H. Alloul T. Ohno, P. Mendels, 89Y NMR evidence for a Fermi-liquid behavior in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>, Phys. Rev. Lett., 63, 1700, (1989).
- 28. Ed. H. Yasuoka, T. Imai, and T. Shimizu, Strong Correlation and Superconductivity.
  Berlin Heidelberg New York: SpringerVerlag, Solid State Science, 89, 254, (1989).
- 29. B. Bucher, P. Steiner, J. Karpinski, E. Kaldis, and P. Wachter, Influence of the spin gap on the normal state transport in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub> Influence of the spin gap on the normal state transport in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub>, Phys. Rev. Lett., **70**, 2012, (1993).
- M. Randeria, Ultracold Fermi gases: Pre-pairing for condensation, Nature Phys., 8, 561-562, (2010).
- 31. V.J. Emery, S.A. Kivelson, Importance of phase fluctuations in superconductors with small superfluid density, Nature (London), 374, 434-437, (1995).

- J. Corson, R. Mallozzi, J. Orenstein, et al., Vanishing of phase coherence in underdoped Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, Nature, **398**, 221 – 223, (1999).
- 33. K. Kawabata, S. Tsukui, Y. Shono, et al., Detection of a coherent boson current in the normal state of a high – temperature superconductors YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> film patterned to micrometer – sized rings, Phys. Rev. B, 58, 2458, (1998).
- В.М. Локтев, Механизмы высокотемпературной сверхпроводимости медных оксидов, ФНТ, 22, 3-45, (1996).
- J.R. Engelbrecht, A. Nazarenko, M. Randeria, et al., Pseudogap above T<sub>c</sub> in a model with d<sub>x2-y2</sub> pairing, Phys. Rev B, 57, 13406, (1988).
- R. Haussmann, Properties of a Fermi liquid at the superfluid transition in the crossover region between BCS superconductivity and Bose-Einstein condensation, Phys. Rev. B, 49, 12975, (1994).
- 37. C.A.R. Sa de Melo, M. Randeria, and J.R. Engelbrecht, Sa de Melo C.A.R. Crossover from BCS to Bose superconductivity: Transition temperature and timedependent Ginzburg-Landau theory, Phys. Rev. Lett., **71**, 3202, (1993).
- J.R. Engelbrecht, M. Randeria, C.A.R. Sade Melo, BCS to Bose crossover: Brokensymmetry state, Phys. Rev. B, 55, 15153, (1997).
- P. G. de Gennes, Superconductivity of Metals and Alloys (W. A. Benjamin, Inc., New York, Amsterdam), Сверхпроводимость металлов и сплавов, Мир, 280 (1968).
- T. Kondo, Y. Hamaya, A. D. Palczewski1, et al., Disentangling Cooper-pair formation above the transition temperature from the pseudogap state in the cuprates, Nat. Phys., 7, 21 25, (2011).
- 41. G. D. Chryssikos, E. I. Kamitsos, J. A. Kapoutsis, A. P. Patsis, V. Psycharis, A. Koufoudakis, Ch. Mitros, G. Kallias, E. Gamari-Seale, and D. Niarchos, X-ray diffraction and infrared investigation of RBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> and R<sub>0.5</sub>Pr<sub>0.5</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> compounds (R=Y and lanthanides), Physica C, **254**, 44 (1995).
- B. Oh, K. Char, A.D. Kent, et al., Upper critical field, fluctuation conductivity, and dimensionality in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>, Phys. Rev. B, **37**, 7861- 7864, (1988).

- S. Hikami and A. I. Larkin, Magnetoresistance of high temperature superconductors, Mod. Phys. Lett. B, 2, 693 (1988).
- 44. J. B. Bieri, K. Maki, and R. S. Thompson, Nonlocal effect in magnetoconductivity of high-T<sub>c</sub> superconductors, Phys. Rev. B, **44**, 4709 (1991).
- 45. R. Peters, J. Bauer, Local origin of the pseudogap in the attractive Hubbard modeland, Phys. Rev. B, **92**, 014511, (2015).
- A. L. Solovjov, V. M. Dmitriev, Resistive studies of the pseudogap in YBCO films with consideration of the transition from BCS to Bose–Einstein condensation, Low. Temp. Phys., 32, 99-108, (2006).
- 47. R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, G. Ya. Khadzhai, V. M. Pinto Simoes, and V. V. Kruglyak, Effect of transverse and longitudinal magnetic field on the excess conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-z</sub>Al<sub>z</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals with a given topology of plane defects, Funct. Mater. 20, 208 (2013).
- 48. B. A. Malik, G. H. Rather, K. Asokan, and M. A. Malik, Study on excess conductivity in YBCO + xAg composites, Appl. Phys. A, **127**, 294 (2021).
- R. I. Rey, C. Carballeira, J. M. Doval, J. Mosqueira, M. V. Ramallo, A. Ramos-Álvarez, D. Sóñora1, J. A. Veira, J. C. Verde, and F. Vidal, The conductivity and the magnetization around T<sub>c</sub> in optimally-doped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> revisited: quantitative analysis in terms of fluctuating superconducting pairs, Supercond. Sci. Technol. **32**, 045009 (2019).
- J. L. Tallon and J. W. Loram, The doping dependence of T\* what is the real high-T<sub>c</sub> phase diagram, Physica C, 349, 53 – 68, (2001).
- P. Przyslupski, I. Komissarov, W. Paszkowicz, P. Dluzewski, R. Minikayev, and M. Sawicki, Structure and magnetic characterization of La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>/YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> superlattices, J. Appl. Phys. **95**, 2906 (2004).
- A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, V. B. Stepanov, R. V. Vovk, H.-U. Habermeier, H. Lochmajer, P. Przysłupski, and K. Rogacki, Specific temperature dependence of pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> nanolayers, Phys. Rev. B, **94**, 224505 (2016).

- H.-U. Habermeier, Pulsed laser deposition a versatile technique only for hightemperature superconductor thin-film deposition?, Applied Surface Science, 69, 204 – 211, (1993).
- 54. J. Hauck, K. Bickmann, F. Zucht, Phase relations in pseudobinary  $Ba_2MCu_3O_{6.5 + x}$ (M = Y, Gd), J. Mater. Research, **2**, 762–764, (1987).
- 55. A. Ono, T. Tanaka, A. Preparation of single crystals of the superconductor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub>, Jap. J. Appl. Phys., **26**, 825 827, (1987).
- 56. М. А. Оболенский, С. В. Чистяков, О. А. Миронов, А. И. Смирнов, А. С. Панфилов, И. Н. Чеботаев, В. П. Попов, В. Н. Моргун, В. И. Белецкий, А. В. Бондаренко, И. Ю. Скрылев, Синтез и физические свойства монокристаллов YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, Fiz. Nizk. Temp., **16**, 1103 (1990).
- 57. K. Segawa and Y. Ando, Transport anomalies and the role of pseudogap in the 60k phase of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Phys. Rev. Lett., 86, 4907-4910 (2001).
- 58. Y. Ando, S. Komiya, K. Segawa, S. Ono, and Y. Kurita, Electronic phase diagram of high-T<sub>c</sub> cuprate superconductors from a mapping of the in-plane resistivity curvature, Phys. Rev. Lett., **93**, 267001 (2004).
- A. L. Solovjov, E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, R. V. Vovk, I. L. Goulatis, and A. Chroneos, Effect of annealing on a pseudogap state in untwinned YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Sci. Rep. 9, 9274 (2019).
- R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, and A. Chroneos, Electro-transport and structure of 1-2-3 HTSC single crystals with different plane defects topologies, J. Mater. Science: Materials in Electronics, 23, 1255 (2012).
- R. V. Vovk, N. R. Vovk, and O. V. Dobrovolskiy, Effect of structural relaxation on the in-plane electrical resistance of oxygen-underdoped ReBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (Re = Y, Ho) single crystals, J. Low Temp. Phys. **175**, 614 (2014).
- M. A. Obolensky, A. V. Bondarenko, R. V. Vovk, and A. A. Prodan, Resistive relaxation processes in oxygen deficient single crystals YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Low Temp. Phys., 23, 882, (1997).

- A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, E. V. Petrenko, G. Ya. Khadzhai, D. M. Sergeyev, A. Chroneos, and R. V. Vovk, Influence of electron irradiation on fluctuation conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Low Temp. Phys., 48, 700 (2022).
- 64. A. L. Solovjov, M. A. Tkachenko, R. V. Vovk, and A. Chroneos, Fluctuation conductivity and pseudogap in HoBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals under pressure with transport current flowing under an angle 45° to the twin boundaries, Physica C, 501, 24 (2014).
- 65. Quantum Design. Physical Property Measurement System, Heat Capacity Option User's Manual, Quantum Design, San Diego, (1999).
- R.V. Vovk and A.L. Solovjov, Electric transport and pseudogap in high-temperature superconducting compounds of system 1-2-3 under conditions of all-round compression (Review Article), Low Temp. Phys., 44, 111-153, (2018).
- 67. G. Ya. Khadzhai, V. V. Sclyar, R. V. Vovk, Ya. V. Dovhopolova, and O.O. Chornovol-Tkachenko, The effect of high pressure on critical temperature of Y<sub>0.95</sub>Pr<sub>0.05</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals with a given topology of planar defects, Low Temp. Phys, **40**, 900-903, (2014).
- Y. T. Petrusenko, A. V. Bondarenko, A. M. Kozyrenko, and S. M. Shkirida, Anisotropic character of the defects and recovery processes in twinned YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> crystals irradiated with 0.5–2.5 MeV electrons, Problems of Atomic Science and Technology (VANT), Physics of Radiation Effect and Radiation Materials Science 1, 42 (2010).
- F. Rullier-Albenque, H. Alloul, and R. Tourbot, Influence of pair breaking and phase fluctuations on disordered high-T<sub>c</sub> cuprate superconductors, Phys. Rev. Lett., **91**, 047001, (2003).
- J. Giapintzakis, W. C. Lee, J. P. Rice, D. M. Ginsberg, I. M. Robertson, R. Wheeler, M. A. Kirk, and M.-O. Ruault, Production and identification of flux-pinning defects by electron irradiation in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> single crystals, Phys. Rev. B, 45, 10677, (1992).

- E. V. L. de Mello, M. T. D. Orlando, J. L. González, E. S. Caixeiro, and E. Baggio-Saitovich, Pressure studies on the pseudogap and critical temperatures of a high-T<sub>c</sub> superconductor, Phys. Rev. B, 66, 092504, (2002).
- 72. A. L. Solovjov and V. M. Dmitriev, Fluctuation conductivity and pseudogap in YBCO high-temperature superconductors, Low Temp. Phys., **35**, 169, (2009).
- 73. A. L. Solovjov, H.-U. Habermeier, and T. Haage, Fluctuation conductivity in  $YBa_2Cu_3O_{7-y}$  films of various oxygen content. II. YBCO films with  $T_c >> 80$  K, Low Temp. Phys., **28**, 99 (2002).
- E. Nazarova, N. Balchev, K. Nenkov, K. Buchkov, D. Kovacheva, A. Zahariev, and G. Fuchs, Improvement of the superconducting properties of polycrystalline FeSe by silver addition, Supercond. Sci. Technol., 28, 025013, (2015).
- E. Nazarova, A. Zaleski, and K. Buchkov, Doping dependence of irreversibility line in Y<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Physica C, 470, 421, (2010).
- 76. W. M. Woch, M. Kowalik, M. Giebułtowski, R. Zalecki, A. Szeliga, J. Przewoznik, and Cz. Kapusta, Magnetoresistance, irreversibility fields, and critical currents of superconducting 2G tape, J. Supercond. Nov. Magn., **30**, 569, (2017).
- 77. J. Hänisch, N. Kozlova, C. Cai, K. Nenkov, G. Fuchs and B. Holzapfel, Determination of the irreversibility field of YBCO thin films from pulsed high-field measurements, Supercond. Sci. Technol., 20, 228, (2007).
- 78. F. Rullier-Albenque, H. Alloul, and G. Rikken, High-field studies of superconducting fluctuations in high-T<sub>c</sub> cuprates: Evidence for a small gap distinct from the large pseudogap, Phys. Rev. B, 84, 014522, (2011).
- W. Lang, G. Heine, P. Schwab, X. Z. Wang, and D. Bauerle, Paraconductivity and excess Hall effect in epitaxial YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> films induced by superconducting fuctuations, Phys. Rev. B, 49, 4209, (1994).
- Y. Y. Peng, R. Fumagalli, Y. Ding, M. Minola, S. Caprara, D. Betto, M. Bluschke,
   G. M. De Luca, K. Kummer, E. Lefrançois, M. Salluzzo, H. Suzuki, M. Le Tacon,
   X. J. Zhou, N. B. Brookes, B. Keimer, L. Braicovich, M. Grilli, and G. Ghiringhelli,

Re-entrant charge order in overdoped  $(Bi,Pb)_{2.12}Sr_{1.88}CuO_{6+\delta}$  outside the pseudogap regime, Nature Mater., **17**, 697, (2018).

- M. S. Grbić, M. Požek, D. Paar, V. Hinkov, M. Raichle, D. Haug, B. Keimer, N. Barišić, and A. Dulčić, Temperature range of superconducting fluctuations above T<sub>c</sub> in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Phys. Rev. B, 83, 144508, (2011).
- V. M. Loktev, R. M. Quick, and S. G. Sharapov, Phase fluctuations and pseudogap phenomena, Phys. Rep., 349, 1, (2001).
- 83. E. Babaev and H. Kleinert, Nonperturbative xy-model approach to strong coupling superconductivity in two and three dimensions, Phys. Rev. B, **59**, 12083, (1999).
- 84. Y. B. Xie, Superconducting fluctuations in the high-temperature superconductors: theory of the dc resistivity in the normal state, Phys. Rev. B, **46**, 13997, (1992).
- R. V. Vovk, N. R. Vovk, G. Ya. Khadzhai, I. L. Goulatis, A. Chroneos, Effect of praseodymium on the electrical resistance of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Solid State Commun., **190**, 18, (2014).
- 86. R. V. Vovk, N. R. Vovk, G. Ya. Khadzhai, O. V. Dobrovolskiy, and Z. F. Nazyrov, Effect of high pressure on the fluctuation paraconductivity in Y<sub>0.95</sub>Pr<sub>0.05</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Curr. Appl. Phys., **14**, 1779, (2014).
- R. V. Vovk, G. Ya. Khadzhai, and O. V. Dobrovolskiy, Resistive measurements of the pseudogap in lightly Pr-doped Y<sub>1-x</sub>Pr<sub>x</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals under high hydrostatic pressure, Solid State Commun., **204**, 64, (2015).
- O. Tchernyshyov, Noninteracting Cooper pairs inside a pseudogap, Phys. Rev. B, 56, 3372, (1997).
- 89. A. L. Solovjov, Fluctuation conductivity in Y–Ba–Cu–O films with artificially produced defects, Low Temp Phys., **28**, 812, (2002).
- W. E. Lawrence and S. Doniach, Proc. of the Twelfth Int. Conf. on Low Temp. Phys., Kyoto, E. Kanda (ed.), Keigaku, 361, (1970).
- 91. A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, E. V. Petrenko, R. V. Vovk, V. V. Khotkevych, and A. Chroneos, Peculiarities of pseudogap in Y<sub>0.95</sub>Pr<sub>0.05</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals under pressure up to 1.7 GPa, Sci. Rep., **9**, 20424, (2019).

- 92. S. F. Kivelson and S. Lederer, Linking the pseudo-gap in the cuprates with local symmetry breaking: a commentary, PNAS, **116**, 14395, (2019).
- 93. A. L. Solovjov and K. Rogacki, Local pairs in high-temperature superconductors: the concept of pseudogap, Low Temp. Phys., **49**, 3, (2023).
- 94. E. Babaev and H. Kleinert, Nonperturbative xy-model approach to strong coupling superconductivity in two and three dimensions, Phys. Rev. B, **59**, 12083 (1999).
- 95. J. L. Tallon, J. G. Storey, J. R. Cooper, and J. W. Loram, Locating the pseudogap closing point in cuprate superconductors: Absence of entrant or reentrant behavior. Phys. Rev. B, **101**, 174512, (2020).
- 96. B. Leridon, A. Défossez, J. Dumont, J. Lesueur, and J. P. Contour, Conductivity of underdoped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>: Evidence for incoherent pair correlations in the pseudogap regime, Phys. Rev. Lett., 87, 197007, (2001).
- 97. V. L. Ginzburg and L. D. Landau, On the theory of superconductivity, in On Superconductivity and Superfluidity, (2009).
- 98. E. M. Lifshitz and L. P. Pitaevski, Statistical Physics, Nauka, (1978).
- 99. P. Pieri, G. C. Strinati, and D. Moroni, Phys. Rev. Lett., 89, 127003, (2002).
- 100. T. Shibauchi, L. Krusin-Elbaum, Ming Li, M. P. Maley, and P. H. Kes, Phys. Rev. Lett., 86, 5763, (2001).
- 101. Y. Yamada, K. Anagawa, T. Shibauchi, T. Fujii, T. Watanabe, A. Matsuda, and M. Suzuki, Interlayer tunneling spectroscopy and doping-dependent energy-gap structure of the trilayer superconductor Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub>. Phys. Rev. B, 68, 054533, (2003).
- 102. E. Stajic, A. Iyengar, K. Levin, B. R. Boyce, and T. R. Lemberger, Cuprate pseudogap: Competing order parameters or precursor superconductivity, Phys. Rev. B, 68, 024520, (2003).
- 103. K. W. Wang and W. Y. Ching, A structural-based microscopic theory on hightemperature cuprate superconductors, Physica C, **416**, 47, (2004).

- 104. D. S. Inosov, J. T. Park, A. Charnukha, Y. Li, A. V. Boris, B. Keimer, and V. Hinkov, Phys. Rev. B, 83, 214520, (2011).
- 105. Ø. Fischer, M. Kugler, I. Maggio-Aprile, and C. Berthod, Rev. Mod. Phys., 79, 353, (2007).
- 106. A. I. D'yachenko, V. Y. Tarenkov, V. V. Kononenko, E. M. Rudenko, Metallofiz. Noveishie Tekhnol., 38, 565, (2016).
- 107. A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, R. V. Vovk, O. V. Dobrovolskiy, S. N. Kamchatnaya, and D. M. Sergeev, Peculiarities in the pseudogap behavior in optimally doped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals under pressure up to 1 GPa, Curr. Appl. Phys., **16**, 931, (2016).
- 108. H. Alloul, F. Rullier-Albenque, B. Vignolle, D. Colson, and A. Forget, EPL, **91**, 37005, (2010).
- 109. T. Kondo, A. D. Palczewski, Yoichiro Hamaya, T. Takeuchi, J. S. Wen, Z. J. Xu, G. Gu, and A. Kaminski, Formation of Gapless Fermi Arcs and Fingerprints of Order in the Pseudogap State of Cuprate Superconductors. Phys. Rev. Lett., **111**, 157003, (2013).
- 110. T. Dubouchet, B. Sacépé, J. Seidemann, D. Shahar, M. Sanquer, and C. Chapelier, Collective energy gap of preformed cooper pairs in disordered superconductors, Nature Phys. Lett., 15, 233, (2018).
- 111. Lu Li, Y. Wang, S. Komiya, S. Ono, Y. Ando, G. D. Gu, and N. P. Ong, Diamagnetism and Cooper pairing above Tc in cuprates, Phys. Rev. B, 81, 054510, (2010).
- 112. J. Lee, K. Fujita, A. R. Schmidt, Chung Koo Kim, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis, Spectroscopic fingerprint of phase-incoherent superconductivity in the underdoped Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+d</sub>, Sci., **325**, 1099, (2009).

- 113. Ch. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki, and Q. Fischer, Pseudogap precursor of the superconducting gap in under- and overdoped Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, Phys. Rev. Lett., **80**, 149, (1998).
- 114. K. Lee, K. Kamiya, M. Nakajima, S. Miyasaka, and S. Tajima, Investigation of precursor superconducting state in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> through in-plane optical spectroscopy, J. Phys. Soc. Jpn., 6, 023701, (2017).
- 115. G. Lacayc, R. Hermann, and G. Kaestener, Twin to tweed transition in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> by substitution of Al for Cu, Physica C, **192**, 207-214, (1992).
- 116. E. Hannachi, Y. Slimani, M.A. Almessiere, S.A. Alotaibi, L.V. Omelchenko, E.V. Petrenko, U. Kurbanov, F. Ben Azzouz, A.L. Solovjov, A. Baykal, YBCO polycrystal co-added with BaTiO<sub>3</sub> and WO<sub>3</sub> nanoparticles: Fluctuation induced conductivity and pseudogap studies, Current Applied Physics, **48**, 70–78, (2023).
- 117. S. K. Tolpygo, J. Lin, M. Gurvitch, S. Y. Hou, and J. M. Phillips, Universal T<sub>c</sub> suppression by in-plane defects in high-temperature superconductors: Implications for pairing symmetry, Phys. Rev. B, 53, 12454, (1996).
- 118. R. V. Vovk, G. Ya. Khadzhai, and O. V. Dobrovolskiy, Effect of electron irradiation and Pr doping on the charge transport in YBCO single crystals, Solid State Commun., 282, 5-8, (2018).
- 119. R. Prozorov, M. Kończykowski, M. A. Tanatar, A. Thaler, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, V. Mishra, and P. J. Hirschfeld, Effect of electron irradiation on superconductivity in single crystals of Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> (x = 0.24), Phys. Rev. X, 4, 041032, (2014).
- 120. O. J. Bressan, A. E. Ridner, and F. de la Cruz, "T5 law and Matthiessen's rule," J. Phys. F: Metal Phys., 5, 481-486, (1975).
- 121. T. Ito, K. Takenaka, and S. Uchida, Systematic deviation from *T*-linear behavior in the in-plane resistivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-y</sub>: Evidence for dominant spin scattering Phys. Rev. Lett., **70**, 3995-3998, (1993).

- 122. Y. Ando, Y. Kurita, Seiki Komiya, S. Ono, and Kouji Segawa, Evolution of the Hall Coefficient and the Peculiar Electronic Structure of the Cuprate Superconductors, Phys. Rev. Lett., **92**, 197001, (2004).
- 123. M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, J. C. Campuzano, T. Yokoya, T. Takeuchi, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma & D. G. Hinks, Destruction of the Fermi surface in underdoped high-T<sub>c</sub> superconductors, Nature, **392**, 157-160, (1998).
- 124. Ye Sun and K. Maki, Impurity effects in d-wave superconductors, Phys. Rev. B, 51, 6059 6063, (1995).
- 125. V. J. Emery and S. A. Kivelson, Superconductivity in Bad Metals, Phys. Rev. Lett., 74, 3253, (1995).
- 126. D. Chakraborty, M. Grandadam, M. H. Hamidian, J. C. S. Davis, Y. Sidis, and C. Pépin, Fractionalized pair density wave in the pseudogap phase of cuprate superconductors, Phys. Rev. B, 100, 224511, (2019) and references therein.
- 127. Vivek Mishra, U. Chatterjee, J. C. Campuzano, and M. R. Norman, Effect of the pseudogap on the transition temperature in the cuprates and implications for its origin, Nature Phys., **10**, 357, (2014).
- 128. A. Kapitulnik, M. R. Beasley, C. Castellani, and C. Di Castro, Thermodynamic fluctuations in the high-T<sub>c</sub> perovskite superconductors, Phys. Rev. B, 37, 537 – 540, (1988).
- 129. L. M. Ferreira, P. Pureur, H. A. Borges, and P. Lejay, Effects of pressure on the fluctuation conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, Phys. Rev. B, **69**, 212505, (2004).
- 130. K. Nakayama, T. Sato, Y. Sekiba, K. Terashima, P. Richard, T. Takahashi, K. Kudo, N. Okumura, T. Sasaki, and N. Kobayashi, Evolution of a pairing-induced pseudogap from the superconducting gap of (Bi, Pb)<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6</sub>, Pys. Rev. Lett., **102**, 227006, (2009).
- 131. H.-B. Yang, J. D. Rameau, P. D. Johnson, T. Valla, A. Tsvelik, and G. D. Gu, Emergence of preformed Cooper pairs from the doped Mott insulating state in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, Nature Lett., **456**, 77, (2008).

- 132. A. Kanigel, U. Chatterjee, M. Randeria, M. R. Norman, G. Koren, K. Kadowaki, and J. C. Campuzano, Evidence for pairing above the transition temperature of cuprate superconductors from the electronic dispersion in the pseudogap phase, Phys. Rev. Lett., **101**, 137002, (2008).
- 133. Y. Kohsaka, C. Taylor, P. Wahl, A. Schmidt, Jhinhwan Lee, K. Fujita, J. W. Alldredge, K. McElroy, Jinho Lee, H. Eisaki, S. Uchida, D-H. Lee, J. C. Davis, How Cooper pairs vanish approaching the Mott insulator in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, Nature, **454**, 1072, (2008).
- 134. J. W. Alldredge, J. Lee, K. McElroy, M. Wang, K. Fujita, Y. Kohsaka, C. Taylor, H. Eisaki, S. Uchida, P. J. Hirschfeld, and J. C. Davis, Evolution of the electronic excitation spectrum with strongly diminishing hole density in superconducting Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, Nature Phys., 4, 319, (2008).
- 135. A. Yazdani, Visualizing pair formation on the atomic scale and the search for the mchanism of superconductivity in high-T<sub>c</sub> cuprates, J. Phys.: Condens. Matter, 21, 164214, (2009).
- 136. D. A. Lotnyk, R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, A. A. Zavgorodniy, J. Kovac, V. Antal, M. Kanuchova, M. Sefcikova, P. Diko, A. Feher, and A. Chroneos, Evolution of the Fishtail-Effect in Pure and Ag-doped MG-YBCO, J. Low Temp. Phys., 161, 387, (2010).
- 137. K. Schlesier, H. Huhtinen, S. Granroth, and P. Paturi, An aging effect and its origin in GdBCO thin films, J. Phys. Conf. Ser., **234**, 012036, (2010).
- 138. B. Martinez, F. Sandiumenge, S. P. Nol, N. Vilalta, J. Fontcuberta, and X. Obradors, Aging of critical currents and irreversibility line in melt textured YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, Appl. Phys. Lett., **66**, 772, (1995).
- 139. A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, E. V. Petrenko, Yu. A. Kolesnichenko, A. S. Kolesnik, S. Dzhumanov, and R. V. Vovk, Effects of annealing on the fluctuation conductivity and pseudogap in slightly doped HoBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystal, Low Temp. Phys., **49**, 108, (2023).

### ДОДАТОК А

## СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

 M. V. Shytov, E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, Yu. A. Kolesnichenko, K. Rogacki, D. M. Sergeyev, and A. L. Solovjov, Study of fluctuation conductivity in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films in strong magnetic fields, Low Temperature Physics, 47, № 12, 1150-1057, (2021), Q3.

DOI: 10.1063/10.0007080.

 M.V. Shytov, A.L. Solovjov, L.V. Bludova, S.N. Kamchatnaya, Z.F. Nazyrov, and R. V. Vovk, Evolution of the pseudogap and excess conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals in the course of long-term aging, Low Temperature Physics, 49, № 4, 477-485, (2023), Q3.

DOI: 10.1063/10.0017593.

- M. V. Shytov, E. V. Petrenko, K. Rogacki, A. V. Terekhov, L. V. Bludova, Y. A. Kolesnichenko, D. M. Sergeyev, E. Lähderanta, A. L. Solovjov, Evolution of the pseudogap temperature dependence in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films under the influence of a magnetic field, Low Temperature Physics, 50, № 4, 299-307, (2024), Q3. DOI: 10.1063/10.0025295.
- M.V. Shytov, E. V. Petrenko, L. V. Omelchenko, A. L. Solovjov, K. Rogacki, Magnetoresistive study of the excess conductivity in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> monolayers, II International Advanced Study Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2021", 6 - 12 June, 2021, Kharkiv, Ukraine, Poster, P. 9.
- 5. M. V. Shytov, A. L. Solovjov, L. V. Omelchenko, E. V. Petrenko, G. Ya. Khadzhai, D. M. Sergeyev, R. V. Vovk and K. Rogacki, "Effect of electron irradiation on fluctuation conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> twin single crystals", "PHOTON GRAPHENE INTERACTIONS: PHENOMENA AND APPLICATIONS-2", 9 10 September 2022, Wroclaw, Poland, Abstracts book, P. 45.

- M. V. Shytov, A.L. Solovjov, L. V. Bludova, S.N. Kamchatnaya, Z.F. Nazyrov, R. V. Vovk, "Evolution of the pseudogap and excess conductivity of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals in the course of long-term aging", III International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2023", 5 11 June 2023, Kharkiv, Ukraine, Abstracts book, P. 55.
- М. В. Шитов, Є. В. Петренко, Л. В. Блудова, Ю.А. Колесніченко, К. Рогацький, А. Л. Соловйов, "Аналіз флуктуаційної провідності плівок YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> у сильних магнітних полях", IV конференції молодих вчених "СУЧАСНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО: МАТЕРІАЛИ ТА ТЕХНОЛОГІЇ — СММТ-2023", 5 – 6 October 2023, Kyiv, Ukraine, Abstracts book, P. 9.
- M. V. Shytov, A. L. Solovjov, E. V. Petrenko, L. V. Bludova, R. V. Vovk, K. Rogacki, "Influence of strong electron irradiation on fluctuation conductivity and pseudogap in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals", IV International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2024", 3 – 7 June 2024, Kharkiv, Ukraine, Abstracts book, P. 58.

## **ДОДАТОК Б**

# ВІДОМОСТІ ПРО АПРОБАЦІЮ РЕЗУЛЬТАТІВ ДИСЕРТАЦІЇ

- II International Advanced Study Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2021", Kharkiv, Ukraine, 6 – 12 June, 2021.
- PHOTON GRAPHENE INTERACTIONS: PHENOMENA AND APPLICATIONS-2, Wroclaw, Poland, 9 – 10 September, 2022.
- III International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2023", Kharkiv, Ukraine, 5 – 11 June, 2023.
- ІV конференції молодих вчених "СУЧАСНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО: МАТЕРІАЛИ ТА ТЕХНОЛОГІЇ — (СММТ-2023)", Kyiv, Ukraine, 5 – 6 October, 2023.
- IV International Conference "CONDENSED MATTER & LOW TEMPERATURE PHYSICS 2024", Kharkiv, Ukraine, 3 – 7 June, 2024.