ХАРКІВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
імені В. Н. КАРАЗІНА

САМОЙЛОВ Олексій Вікторович

УДК 538.945

ЕЛЕКТРОТРАНСПОРТ ТА СТРУКТУРА ШАРУВАТИХ СПОЛУК НА ОСНОВІ МОНОКРИСТАЛІВ СИСТЕМИ 1-2-3, ДІСЕЛЕНІДУ НІОБІЮ ТА СУПУТНІХ ОКСИДІВ

01.04.07 – фізика твердого тіла

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Харків – 2011

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Українській державній академії залізничного транспорту Міністерства транспорту та зв'язку України.

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, доцент **Вовк Руслан Володимирович**, Українська державна академія залізничного транспорту Міністерства транспорту та зв'язку України, завідувач кафедри фізики;

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник **Кордюк Олександр Анатолійович**, Інститут металофізики імені Г. В. Курдюмова НАН України, провідний науковий співробітник відділу надпровідності;

доктор фізико-математичних наук, професор **Гвоздіков Володимир Михайлович**, Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти і науки, молоді та спорту України, професор кафедри теоретичної фізики імені академіка І. М. Ліфшиця.

Захист відбудеться «*15*» *квітня* 2011 р. о *16^{00}* годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.051.03 у Харківському національному університеті імені В. Н. Каразіна (61077, м. Харків, пл. Свободи, 4, ауд. ім. академіка К. Д. Синельникова).

З дисертацією можна ознайомитись у Центральній науковій бібліотеці Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна за адресою: 61077, м. Харків, пл. Свободи, 4.

Автореферат розісланий «*14*» *березня* 2011 р.

Вчений секретар

спеціалізованої вченої ради Д 64.051.03_____О.В. Шеховцов

Актуальність теми.

Анізотропні квазідвовимірні провідні сполуки є великим класом твердих тіл, що мають унікальні фізичні властивості. До таких провідників, зокрема, належать дихалькогеніди перехідних металів (ДПМ) $NbSe_2$ та нестехіометричні купрати, найбільш відомими представниками яких є сполуки системи 1-2-3 – $Re_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Y або інший рідкоземельний іон). Дослідження їхніх різноманітних фізичних властивостей має важливе фундаментальне і прикладне значення. Так, наприклад, важливим аспектом у встановленні механізмів електротранспорту цих сполук є експериментальне виявлення подібних та відмінних рис між різними представниками таких квазідвовимірних провідників, що може бути основою для перевірки адекватності існуючих та створення нових теоретичних моделей. При цьому особливого значення набувають експериментальні методи, що дозволяють виявити ті структурні властивості, які найістотніше впливають на їх провідні характеристики. Це, в свою чергу, дозволяє визначити емпіричні шляхи для створення нових функціональних матеріалів з високими електро-транспортними параметрами. Одним з таких найважливіших методів є використання високого гідростатичного тиску. Важливу роль, при цьому, відіграє варіювання складу досліджуваних сполук, зокрема шляхом повної або часткової заміни їх компонент ізоелектронними аналогами. Так, наприклад, в зразках системи 1-2-3, нестехіометричного по кисню складу, рідкоземельний іон може відігравати роль датчика, чутливого до локальної симетрії його оточення і розподілу густини заряду, оскільки їх зміна впливає на кристалічне поле, яке формує електронну структуру такого іона.

Не зважаючи на істотний прогрес, досягнутий останнім часом у розумінні механізмів впливу структурного стану і високого тиску на електротранспортні параметри вищезазначених шаруватих провідників, низка питань в цій галузі все ще лишається остаточно нез'ясованою. До числа останніх можна віднести такі як вплив тиску на перехід метал-діелектрик і псевдощілинний стан, перенесення заряду і характер перерозподілу вакансійної кисневої підсистеми, розширення резистивного переходу в нормальний стан і деякі інші. Таким чином, встановлення фізичних закономірностей еволюції електротранспортних характеристик шаруватих сполук на основі системи 1-2-3 і ДПМ $NbSe_2$ та супутніх оксидів у процесі зміни їх структурного складу і дії високого гідростатичного тиску, що складає зміст даної роботи, є актуальною задачею фізики твердого тіла.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами і темами.

Робота виконана на кафедрі фізики Української державної академії залізничного транспорту. Результати, представлені в дисертаційній роботі, були отримані при проведенні досліджень в рамках програми Міністерства транспорту та зв'язку України і ДФФД України: «Дослідження електрофізичних властивостей монокристалічних зразків

високотемпературних надпровідних сполук з метою їх подальшого використання для створення новітніх зразків електрообладнання на залізничному транспорті» (№ ДР 0107U000344). Здобувач брав участь у виконанні даної НДР як виконавець – аспірант кафедри.

Мета і завдання досліджень.

Метою роботи було розв'язання наукової задачі щодо встановлення фізичних закономірностей еволюції електротранспортних характеристик шаруватих монокристалічних сполук на основі системи 1-2-3 і ДПМ $NbSe_2$ з близьким параметром анізотропії і супутніх оксидів у процесі зміни їх структурного складу і дії високого гідростатичного тиску.

Об'єкт дослідження – динаміка перенесення заряду, перерозподіл лабільної компоненти і фазове розшарування в монокристалах $Y_{1-z}Re_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Pr, Ho) і $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$, допованих заміщаючими елементами при температурах вище критичної.

Предмет дослідження – індуковані всебічним тиском релаксаційні процеси і динамічні фазові переходи у нормальному стані в монокристалах $Y_{1-z}Re_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Pr, Ho) і $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$.

Для досягнення мети необхідно було вирішити *такі завдання*:

1. Отримати досконалі монокристалічні зразки системи 1-2-3 і $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$ заданого складу для резистивних вимірювань і провести їх структурні (рентгенівські, електронографічні і металографічні) дослідження.
2. Виміряти температурні залежності електро- і магнітоопору експериментальних зразків, зокрема в умовах прикладання гідростатичного тиску до 11 кбар, та провести аналіз отриманих експериментальних залежностей з урахуванням сучасних теоретичних моделей.
3. Обчислити низку структурних параметрів сполуки RBa_2Cu_3O (R = Y і інші рідкоземельні елементи) і супутніх рідкоземельних оксидів (РЗО) з використанням техніки «атомістичного імітаційного моделювання», основаної на методі мінімізації решіточної енергії, у широкому інтервалі як виду, так і концентрації заміщаючих елементів.
4. Встановити закономірності взаємовпливу структурних особливостей, фазового розшарування, переходів виду метал-діелектрик і псевдощілинної (ПЩ) аномалії в монокристалах $Y_{1-z}Re_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Pr, Ho) з різним ступенем відхилення від кисневої стехіометрії.
5. Провести порівняльний аналіз особливостей поведінки баричних залежностей критичної температури і електроопору двох різновидів шаруватих монокристалічних сполук $Y_{1-z}Re_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Pr, Ho) і $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$ з близьким параметром анізотропії.

Методи досліджень.

1. Розчин-розплавна методика вирощування монокристалів системи 1-2-3 за наявності слабкого градієнта температури у золотому тиглі.

2. Рентгеноструктурний аналіз, електронна і оптична мікроскопія.
3. Метод Монтгомері та чотирьохконтактна методика вимірювання електроопору на постійному струмі.
4. Резистивні дослідження в постійному магнітному полі на містках з системою односпрямованих двійникових меж (ДМ).
5. Вимірювання в умовах прикладання високого гідростатичного тиску до 11 кбар у мультиплікаторі типу поршень-циліндр.
6. Моделювання взаємодії кристалічної решітки здійснювали із застосуванням коду GULP і моделі парної потенціальної взаємодії.

Наукова новизна отриманих результатів.

У результаті виконання дисертаційної роботи були отримані такі нові наукові результати:

1. Вперше показано, що при зростанні концентрації празеодиму в інтервалі $0,0 \le z \le 0,5$ відбувається істотне зміщення температурних ділянок, що відповідають переходам виду метал-діелектрик і режиму реалізації псевдощілинної аномалії. При цьому надлишкова провідність $\Delta\sigma(T)$ монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ у широкому інтервалі температур описується експоненціальною температурною залежністю.
2. Вперше встановлено, що зниження вмісту кисню у монокристалах $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ приводить до його нерівномірного розподілу в об'ємі кристала. При цьому заміна ітрію на гольмій істотно впливає на розподіл заряду і ефективну взаємодію в CuO-площинах, тим самим, стимулюючи розупорядкування в кисневій підсистемі. Індукований високим тиском перерозподіл лабільного кисню приводить до посилення фазового розшарування в об'ємі монокристалів $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з дефіцитом кисню і стимуляції в них процесів висхідної дифузії між провідними фазами з різним ступенем відхилення від кисневої стехіометрії.
3. Вперше експериментально показано, що особливості поведінки залежності електроопору від температури у сполуки $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$, пов’язані з виникненням хвилі зарядової густини (ХЗГ) переходу, відсутні для всіх досліджених концентрацій домішок олова. Це свідчить про те, що ХЗГ-перехід у досліджених зразках або повністю відсутній, або значною мірою пригнічений, і, таким чином, його вплив на температуру переходу до нормального стану позначатися не повинен. Основний внесок у збільшення T_c при дії високого гідростатичного тиску на сполуку $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$ вносить зміна густини станів на рівні Фермі. При цьому фононний спектр зміщується у бік високих частот.

Практичне значення отриманих результатів.

Основні результати роботи були отримані вперше і їх основне практичне значення полягає в тому, що вони можуть бути надійною основою

для подальших експериментальних і теоретичних досліджень в галузі фізики твердого тіла, створення нових функціональних матеріалів з високими електротранспортними властивостями для електрообладнання (чутливі датчики, струмопроводи тощо), а також можуть бути використані при викладанні спецкурсів при підготовці студентів старших курсів фізичних спеціальностей.

Публікації. За темою дисертаційної роботи опубліковано 15 наукових праць, зокрема 9 статей у фахових виданнях, а також 6 тез доповідей, у збірниках праць міжнародних наукових конференцій.

Особистий внесок автора.

У наукових працях [2,5,8,9,14,15] авторові належить формулювання теми і мети дослідження, обгрунтування більшості завдань, вирішених при виконанні роботи, ним проведена абсолютна більшість експериментальних досліджень, а також обробка і аналіз експериментальних даних. У працях [3,6,7,12] автору належить вся експериментальна частина. У працях [1,4] здобувач брав безпосередню участь у аналізі і інтерпретації отриманих результатів моделювання. У працях [10,11,13] здобувач брав участь у проведенні експериментальних досліджень та аналізі і інтерпретації отриманих результатів. Таким чином, особистий внесок автора у даній роботі є визначальним.

Апробація результатів роботи.

Матеріали і результати досліджень доповідали і обговорювали на наступних конференціях: 9-ій міжнародній конференції "Фізичні явища в твердих тілах" (ХНУ імені В. Н. Каразіна, Україна, м. Харків, 2009 р.); 5-й, 7-й, 8-й щорічних міжнародних конференціях ІВТН-2006, 2008, 2009 «Інформаційно-обчислювальні технології у фундаментальних і прикладних фізико-математичних дослідженнях» (Російська академія наук, м. Москва, 2006, 2008, 2009 рр.); Міжнародній конференції «Актуальні питання теоретичної та прикладної біофізики, фізики і хімії» (БФХХ) м. Севастополь, 2010 р.; Міжнародній конференції «Magnetic Phenomena in Micro- and Nano-Structures 2010» International Workshop. Donetsk, 2010.

Структура і об'єм роботи. Дисертація складається зі вступу, 4 розділів, висновків і списку використаних джерел. Повний об'єм роботи складає 148 сторінок і містить перелік умовних позначень і скорочень, 43 рисунка, 11 таблиць, а також список використаних джерел із 184 найменувань.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

Вступ містить обгрунтування актуальності теми і доцільності досліджень електротранспорту та структурного стану шаруватих сполук на

основі системи 1-2-3 і дихалькогенидів перехідних металів в умовах екстремальних зовнішніх впливів.

У ньому сформульовані мета і задачі досліджень, стисло описані експериментальні методики досліджень, показана наукова новизна отриманих результатів, а також їх наукове і практичне значення, визначений особистий внесок здобувача, наведено дані про апробацію результатів роботи, список публікацій і структура дисертації.

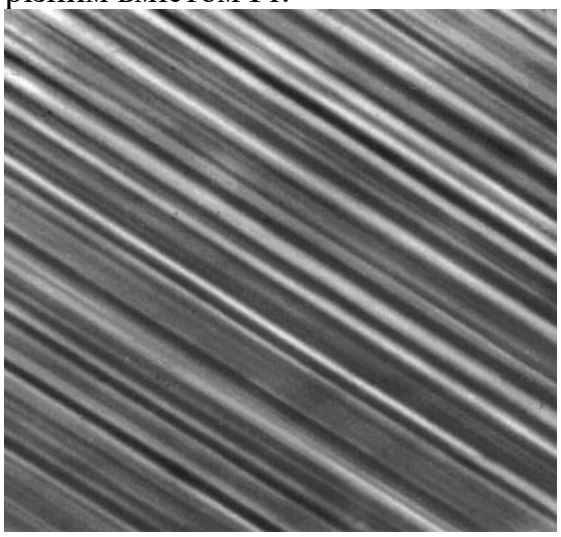
У **першому розділі** «Структурні та електрорезистивні властивосі шаруватих сполук системи 1-2-3 і дихалькогенидів перехідних металів в умовах екстремальних зовнішніх впливів (огляд літератури)» наведено опис кристалічної структури сполук YBaCuO з різним значенням кисневого індексу і дихалькогенидів перехідних металів, розглянуто вплив різних видів структурних дефектів на властивості електротранспорту цих сполук. Наведено короткий огляд основних сучасних теоретичних моделей, що описують механізми електротранспорту в шаруватих сполуках на основі системи 1-2-3 і дихалькогенидів перехідних металів в умовах екстремальних зовнішніх впливів. Також аналізуються результати попередніх експериментальних досліджень процесів перерозподілу атомів кисню у кристалічній решітці вищезазначених сполук у процесі їх термообробки і прикладання до них високого тиску. Сформульовано висновки за результатами проведеного аналізу, а також перераховано основні задачі, які до теперішнього часу не знайшли свого остаточного експериментального і теоретичного розв'язання.

У **другому розділі** «Об’єкти та методи досліджень» описана розчин-розплавна технологія вирощування монокристалів системи 1-2-3, методика отримання монокристалічних зразків високого ступеня досконалості і зразків з різним ступенем відхилення від стехіометрії із заданою топологією площинних дефектів, а також кристалів, легованих різними заміщаючими елементами. Крім цього, стисло описані методи структурного аналізу кристалів, що застосовувалися, технологія виготовлення містків з односпрямованими двійниками (рис. 1) для проведення транспортних досліджень і нанесення струмових і потенційних контактів.

Наведено схематичні описи експериментальних установок і пристроїв, що використовувалися при проведенні вимірювань, зокрема установки для резистивних досліджень анізотропії повздовжнього і поперечного транспорту, установки для транспортних досліджень у магнітних полях до 15 кЕ, мультиплікатора високого тиску і методики проведення вимірювань в умовах прикладання високого гідростатичного тиску до 12 кбар. Також наведено основні метрологічні характеристики приладів і устаткування, яке використовували у процесі експериментальних досліджень.

У т**ретьому розділі** «Еволюція структурных та електрорезистивних властей монокристалів системи 1-2-3 при допуванні заміщуючими елементами» представлені оригінальні експериментальні результати серії вимірювань температурних залежностей повздовжньої провідності

монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з різним ступенем кисневої нестехіометрії і різним вмістом Pr.



1 мкм

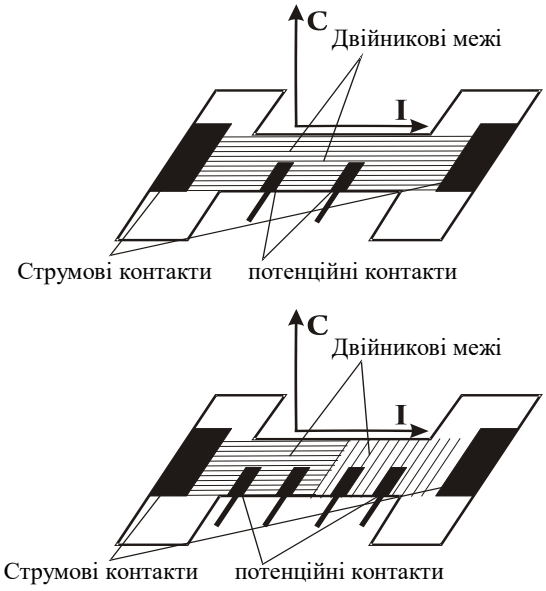


Рис. 1 Мікрофотографія ділянки монокристала $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з односпрямованими двійниками та схематичне зображення містків для резистивних досліджень.

Встановлено, що по мірі збільшення вмісту празеодиму, електроопір зразків зростає, а критична температура знижується (рис. 2). При цьому відбувається істотне звуження лінійної ділянки залежності $\rho_{ab}(T)$ в області відносно високих температур. Це відображається у підвищенні величини температури T*, при якій починається систематичне відхилення даних вниз від лінійної залежності і появі так званої надлишкової провідності. Температурну залежність надлишкової провідності $\Delta\sigma$ при $T<T^*$ можна отримати із співвідношення:

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_0, \qquad (1)$$

де $\sigma_0=\rho_0^{-1}=(A+BT)^{-1}$ – провідність, що визначається екстраполяцією лінійної ділянки у нульове значення температури, а $\sigma=\rho^{-1}$ – експериментально вимірюване значення провідності у нормальному стані.

Як було показано у праці [1], експериментальні дані $\Delta\sigma(T)$ можуть бути добре описані за допомогою співвідношення:

$$\Delta\sigma \sim (1-T/T^*)\exp(\Delta^*_{ab}/T). \qquad (2)$$

У цьому випадку, надлишкова провідність виявляється пропорційною густині флуктуаційних носіїв $n_s\sim(1-T/T^*)$ і обернено пропорційною числу пар $\sim\exp(-\Delta^*/kT)$, зруйнованих тепловим рухом. При цьому T* розглядається як середньопольова температура переходу до нормального стану, а температурний інтервал $T_f<T<T^*$, у якому існує псевдощілинний стан, визначається жорсткістю фази параметра порядку, яка знижується по мірі зростання дефіциту кисню або концентрації допуючого елемента. Таким чином, використовуючи методику, запропоновану в [1] по

експериментальній залежності $\ln\Delta\sigma$, можна побудувати температурну залежність $\Delta^*_{ab}(T)$ безпосередньо до T*.

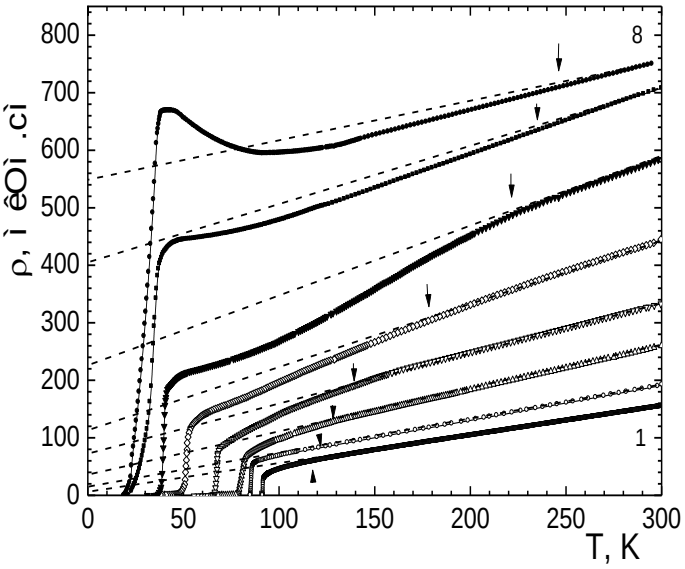


Рис. 2 Температурні залежності надлишкової провідності $\rho_{ab}(T)$ монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ для **z** = 0,0, 0,05, 0,19, 0,23, 0,34, 0,43, 0,48, 0,5 – криві 1-8. Стрілками показані температури переходу в псевдощілинний режим T*. Пунктирними лініями зображена екстраполяція лінійної ділянки в нульове значення температури T.

Температурні залежності псевдощілини були отримані у теоретичній праці [2] для випадків сильного і слабкого спаровування:

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \Delta(0)\sqrt{2\pi\Delta(0)T}\,\exp\left[-\frac{\Delta(0)}{T}\right], \tag{3}$$

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \frac{8}{\sqrt{\pi}}\sqrt{-x_0}\left(\frac{\Delta(0)}{T}\right)^{3/2}\exp\left[-\frac{\sqrt{\mu^2+\Delta^2(0)}}{T}\right]. \tag{4}$$

Залежності $\Delta^*(T)/\Delta(0)$ від T/T^*, розраховані згідно (3), (4) у наближенні середнього поля в рамках теорії кросовера БКШ-БЕК для різних значень параметра кросовера показані на рис. 3.

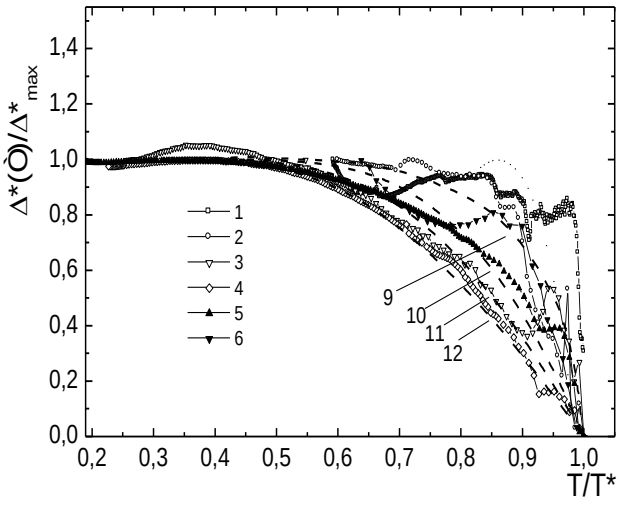


Рис. 3 Температурні залежності псевдощілини кристалів у зведених координатах $\Delta^*(T)/\Delta^*_{max}$ – T/T^* (Δ^*_{max} – значення Δ^* на плато оддалік від T*). Пунктирними лініями показані залежності $\Delta^*(T)/\Delta(0)$ від T/T^*, розраховані для значень параметра кросовера $\mu/\Delta(0)$=10 (межа БКШ), -2, -5, -10 (межа БЕК) - показані пунктирними лініями 9-12 відповідно.

Встановлено, що для зразків з середнім вмістом празеодиму $0{,}23 \le z \le 0{,}39$ (криві 4-7) узгодження експерименту з теорією можна вважати задовільним.

Наведено результати атомістичного моделювання кристалічної структури сімейства сполук виду $RBa_2Cu_3O_{6,5}$ і $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ (R= Y і лантаноїди). Великою перевагою даної моделі є можливість урахування

взаємодії дуже великого числа атомів, а також симуляції дефектної структури цих матеріалів.

Техніка атомного моделювання, грунтується на класичній моделі Борна. Міжатомні функції потенційної взаємодії визначали для симуляції далекодіючих сил притяжіння і короткодіючих сил відштовхування між іонами у кристалічному осередку. Закон Кулона описує далекодіючі сили, тоді як короткодіючі сили апроксимуються за допомогою потенціальних пар Букінгема. Енергія решітки E_L, визначається з рівняння:

$$E_L = \sum_{j>i}\sum_{i}\left[\frac{q_i q_j}{4\pi\varepsilon_0 r_{ij}} + A_{ij}\exp\left(-\frac{r_{ij}}{\rho_{ij}}\right) - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6}\right], \qquad (5)$$

де A_{ij}, ρ_{ij} і C_{ij} - тензори потенціальних параметрів ближньої взаємодії, r_{ij} - міжйонна відстань, між зарядами q_i і q_j

У цьому співвідношенні, кулонівські сили обчислюються за методикою Евальда, тоді як пари потенціалів Букінгема обчислюються прямим способом до величини відсічки 20 Å. Для описання ефектів іонної поляризації використовували оболонкову модель Діка-Оверхаузера. У цій моделі електронна поляризація описується зміщенням невагомої зарядженої оболонки, пов'язаної з масивним зарядженим ядром (керном) і гармонійною силовою сталою k [eB $Å^{-2}$]. O^2-іони мають заряд оболонки – 2,04 е, керн – 0,04 е, силова стала дорівнює 6,3 eB $Å^{-2}$.

Для розширення застосування, потенціальна модель, розроблена для $RBa_2Cu_3O_{6,5}$ і $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$, була також використана для аналізу структури рідкоземельних оксидів (R_2O_3).

Прогноз для параметрів решітки Y-O і Cu-O відстаней для $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ порівнювали з експериментальними і теоретичними дослідженнями. Отримані параметри знаходяться у доброму узгодженні з модельованими величинами. Об'єм, що доводиться на комірку $YBa_2Cu_3O_{6,5}$, передбачений з точністю до 0,05 %.

Співвідношення структура-властивість $PrBa_2Cu_3O_7$ є важливими, зважаючи на наявність "аномалії празеодиму". Порівняння експериментальної структури $PrBa_2Cu_3O_{6,54}$ з прогнозованими величинами, показує, що отриманий об'єм, який доводиться на осередок, недооцінений на 1,13 %, що може частково пояснюватися відмінностями в концентрації кисню між експериментальним і розрахунковим осередком. Pr-O і Cu-O відстані були передбачені з розбіжністю в межах 0,7 %. Систематично вивчена залежність параметрів решітки, а також R^{3+}-O(2) і Cu (1)-O(1) відстаней від радіуса рідкоземельного іона і вмісту Pr для ряду сполук $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ (рис. 4).

Показано, що середній рідкоземельний іонний радіус є важливим чинником для структурного і енергетичного стану сполук $RBa_2Cu_3O_{6,5}$ і $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$. Різниця у величині параметрів решітки у сполуках $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ зменшується зі збільшенням вмісту Pr. «Закон стиснення лантаноїдів» підтверджується для всіх досліджених сполук. Методи мінімізації енергії дозволяють отримувати структурні дані зіставні з

експериментальними значеннями, і дають можливість прогнозувати основні структурні параметри решітки. Ці методи також дають можливість для систематичного аналізу складної поведінки і хімії дефектів у цих матеріалах на атомарному рівні.

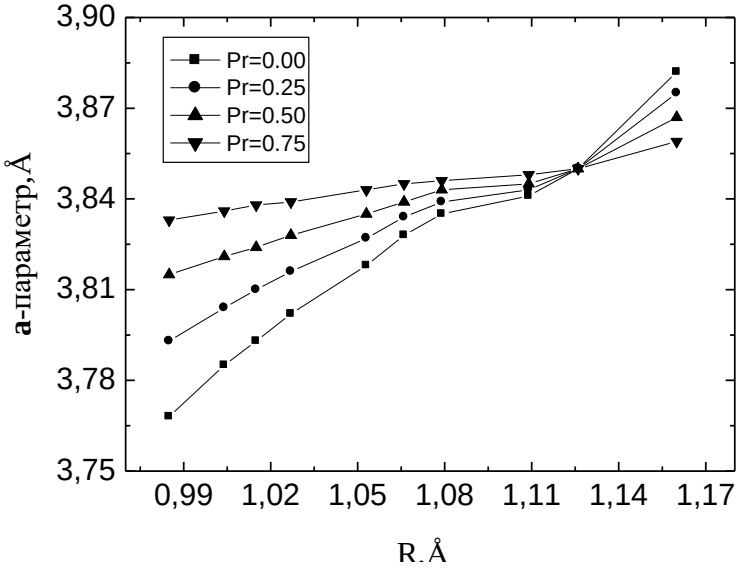


Рис. 4 Залежність параметра решітки **a** для $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ сполук від радіусу Шенона (восьмикратна координація (згладжування)) при різному вмісті Pr.

Наведено результати дослідження магнітоопору і 2D-3D кросовера в легованих алюмінієм монокристалах $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ з системою односпрямованих двійникових меж. Показано, що двійникові межі є ефективними центрами розсіювання флуктуаційних носіїв. Прикладання магнітного поля призводить до істотної нестійкості температурного інтервалу існування тривимірних флуктуацій.

У **четвертому розділі** «Дифузія та вплив високого тиску на електрорезистивні властивості шаруватих сполук $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$, $Ho_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ та супутніх оксидів» наведені результати досліджень впливу високого тиску і меж двійникування на фазове розшарування в недодопованих киснем монокристалах $Ho_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Досліджено температурні залежності електроопору в базисній ab-площині $\rho_{ab}(T)$, отримані після прикладання-знімання високого гідростатичного тиску для зразка К1 (транспортний струм **I** || ДМ, рис. 5 (a)) і К2 (кут між транспортним струмом **I** та ДМ склав 45°, рис. 5 (b)).

Як видно з рис. 5, витримка зразка при кімнатних температурах у процесі прикладання-знімання високого тиску чинить істотний вплив на ширину і форму резистивного переходу до нормального стану. Характерною особливістю впливу такої витримки впродовж 3-5 діб є істотне зміщення піків на залежностях $d\rho_{ab}(T)/dT$ вгору-вниз по температурі, яке вказує на зміну шляхів протікання транспортного струму. Це, у свою чергу, можливо у разі посилення фазового розшарування нестехіометричних по кисню зразків. Останнє вимагає дифузійного переміщення кисню між фазами з різним ступенем відхиленнями від кисневої стехіометрії.

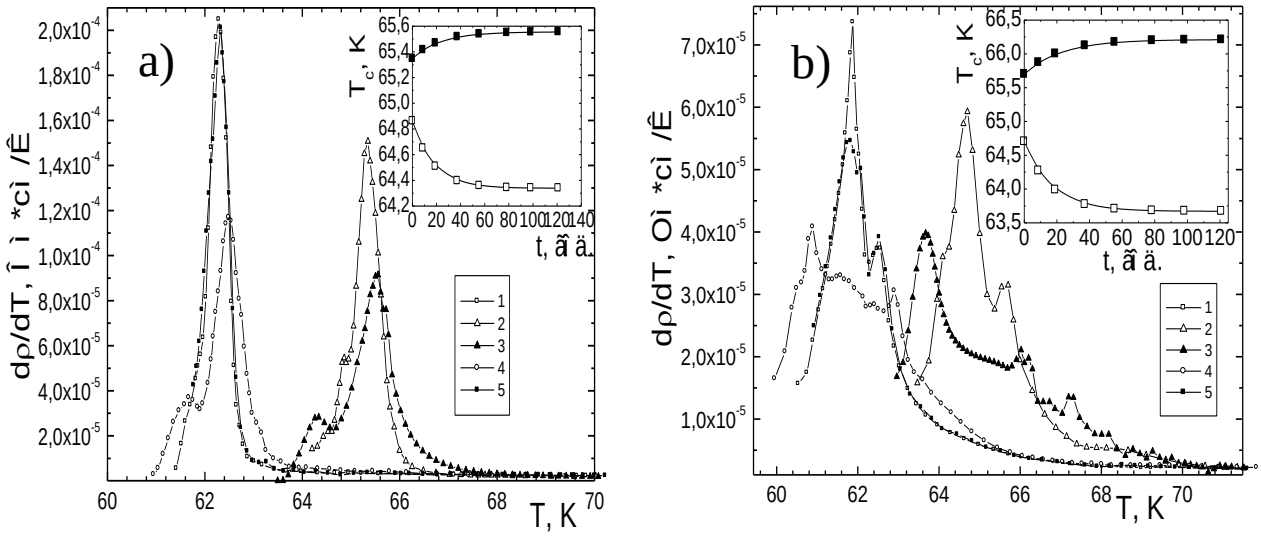


Рис. 5 Залежності $d\rho_{ab}(T)/dT$ від температури монокристалів $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ для різної геометрії експерименту.

Крива 1 відповідає залежності отриманій до прикладання тиску, крива 2 була отримана безпосередньо після прикладання тиску в 4,8 кбар, крива 3 - після витримки зразка при кімнатній температурі під тиском 4,8 кбар протягом п'яти діб; крива 4 отримана безпосередньо після знімання тиску і крива 5 - після витримки зразка при атмосферному тиску впродовж трьох діб. Як видно з рисунка, витримка зразка при кімнатній температурі у процесі прикладання-знімання тиску окрім абсолютної зміни величини T_c приводить до істотних якісних змін ширини і форми резистивного переходу до нормального стану. Це дає підставу припустити, що при збільшенні тиску частина кисню з фази з меншою T_c мігрує у фазу з більшою критичною температурою, а при зменшенні тиску відбувається зворотний перерозподіл. Подібне явище можливе, наприклад, у разі реалізації процесу висхідної дифузії, суть якого полягає у тому, що у неоднорідному полі механічного напруження (зокрема унаслідок зовнішнього стиснення) в результаті різниці об'ємів атомів домішок і власних атомів кристалічної решітки, на домішкові атоми діє сила пропорційна цій різниці. Унаслідок цього атоми з великим іонним радіусом дифундують в область розтягування і навпаки, атоми меншого об'єму – в область стиснення. Згідно з існуючими уявленнями, у процесі висхідної дифузії можуть брати участь і власні дефекти, у нашому випадку – кисневі вакансії. Важлива особливість цього ефекту – його зворотність. Так, наприклад, при зніманні зовнішньої дії повинно відбуватися зворотне вирівнювання концентрації точкових дефектів в об'ємі зразка, що спостерігалося і в нашому випадку.

Аналіз релаксаційних кривих $T_c(t)$ (вставки до рис. 5) здійснювали за допомогою формули Йоргенсена [3]

$$T_c(t) = T_c(\infty) + [T_c(0) - T_c(\infty)]\exp[-(t/\tau)^{1/2}], \qquad (6)$$

де $T_c(\infty)$ і $T_c(0)$ – рівноважне і початкове значення критичної температури, відповідно; τ – характерний час релаксаційного процесу

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_A}{k_B T}\right), \qquad (7)$$

де τ_0=1,4 10^{-12} с – характерний період, який не залежить від тиску. Показано, що характерний час релаксаційного процесу складає τ = 8-10 годин. Енергія активації, визначена згідно з законом Арреніуса [4] (7), складає $E_A \approx 0{,}94$ *eB*, що дещо нижче за характерні значення, отримані для сполук $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Однією з можливих причин фазового розшарування у зразках може бути зародження низькотемпературної фази на ДМ, про що свідчить відмінність форми переходів до нормального стану для геометрії експерименту **I**‖ДМ і коли кут між **I** і ДМ складав 45°.

Розглянуто атомістичне моделювання дифузії Li^+ в Y_2O_3 та супутніх оксидах**.** Основні експериментальні дослідження структури РЗ оксидів з сімейства лантаноїдів були проведені для трьох поліморфних форм: гексагональної А-типу (просто-рова група $P\bar{3}m1$), моноклінної В-типу (просторова група *C2/m*) і кубічної С-типу (просторова група *Ia3).* Теоретичні функціональні розрахунки густини також були застосовані для визначення параметрів решітки ряду РЗ оксидів.

Метою нашої роботи було систематичне моделювання структурних параметрів цих матеріалів за допомогою набору так званих «переносних» міжатомних потенціалів і порівняння отриманих структур з наявними в літературі експериментальними і теоретичними даними. Виявилось, що методика атомного моделювання дає добрі результати для раніше вивчених РЗ-оксидів, а також ряду феромагнітних матеріалів і інших систем (наприклад, гідроксидів). Міграція іонів літію Li^+ в оксиді ітрію (Y_2O_3) розглядається для ілюстрації застосовності таких моделей для вирішення проблем технологічного характеру.

Методика моделювання основана на описанні решітки в термінах ефективних потенціалів. При цьому кулонівські сили підсумовуються методом Евальда, а короткодіючі сили моделюються за допомогою парних потенціалів, що параметризуються. Моделювання решітки проводиться за допомогою метода мінімізації її загальної енергії з урахуванням значень векторів елементарної комірки і положень іонів у ній.

Для моделювання впливу структурних дефектів, решітку послідовно розділяли на концентричні сферичні області відповідно до процедури Мотта-Літтлтона [5] з урахуванням деформації решітки навколо дефектів і вимоги мінімізації енергії. Також було проведено порівняння об'ємної енергії, що доводиться на молекулу (одиницю стехіометричної формули) РЗ оксидів для А- і С- типів. При цьому результати атомного масштабного моделювання для РЗ оксидів А- типу за своїми абсолютними значеннями виявилися значно ближчими до експериментальних результатів, ніж початкові дані, отримані у

теоретичних розрахунках. Для РЗ оксидів С- типу спостерігається повне узгодження результатів нашого дослідження з експериментальними даними.

У роботі проведено моделювання міграції Li^+ в Y_2O_3. Міжвузлові іони в bixbyite структурах формуються двома способами. Вважається, що шлях від 8b до 16c енергетично вигідніший, ніж від 16c до 24d - шлях для міграції іонів літію в Y_2O_3. Щоб упевнитися в тому, що іони літію рухаються по прямій лінії від 8b до 16c, був побудований контурний графік, що є площиною, яка проходить через точку осідлості перпендикулярно міграційному вектору (рис. 6).

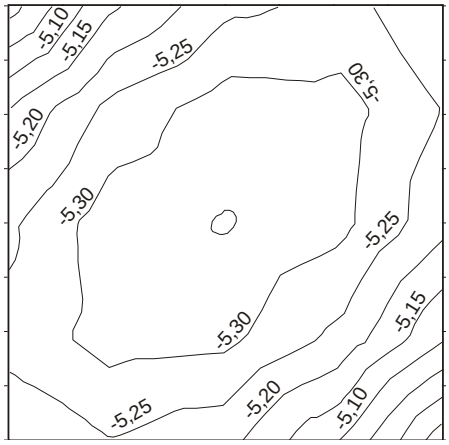


Рис. 6 Контурний графік енергетичних поверхонь для площини, яка проходить через точку осідлості перпендикулярно міграційному вектору, що містить міжвузлові позиції 16c-8b в Y_2O_3. Графік отриманий за допомогою переміщення міжвузлових іонів літію в 25 точок контурної сітки. Інтервал між контурами 0,05 еВ.

Цей малюнок грунтується на 25 розрахунках, що описують можливе розташування Li^+ на еквідистантних позиціях сітки 5x5 в Y_2O_3. Точка найнижчої ентальпії розташована на середині графіка, що вказує на те, що іон літію рухається по прямій від 8b до 16c.

Таким чином, атомне масштабне моделювання адекватно відтворює структурні характеристики 17 РЗ - оксидів. Отримані значення короткодіючих міжатомних потенціалів також можуть бути використані для систематичного дослідження комплексної поведінки і хімії дефектів у цих матеріалах на атомному рівні. Використання техніки моделювання взаємодії кристалічної решітки, так званої «Atomic scale techniques», дозволяє не тільки успішно визначати емпіричні шляхи поліпшення фізико-технічних параметрів різних РЗО-сполук, але і перевіряти адекватність числених теоретичних досліджень, що проводяться в даний час.

Розглянуто електрорезистивні властивості монокристалів $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$: вплив високого тиску і допування оловом. На рис. 7 показані результати вимірювання електроопору від температури при різному тиску для сполук $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$. Видно, що особливості поведінки *R(T),* пов'язані з виникненням ХЗГ-переходу, відсутні для всіх досліджених концентрацій домішок олова. Це свідчить про те, що ХЗГ-перехід у досліджених зразках або повністю відсутній, або в значній мірі пригнічений, і, таким чином, його вплив на температуру переходу до нормального стану позначатися не повинен. Як видно зі вставки до рис. 7, при P = 0 збільшення концентрації олова приводить до зменшення T_c. Прикладання гідростатичного тиску приводить

до різкого збільшення T_c, з баричною похідною для зразка з x = 0,1, що дорівює 0,2 К/кбар при P < 4 кбар і 0,04 К/кбар - в інтервалі 4 < P < 12 кбар. При збільшенні концентрації олова до x = 0,15 точка перегину на кривій T_c(P) зміщується в область нижчого тиску. Значення dT_c/dP стає рівним 0,22 К/кбар в інтервалі 0 < P < 3 кбар і 0,08 К/кбар при P > 3 кбар.

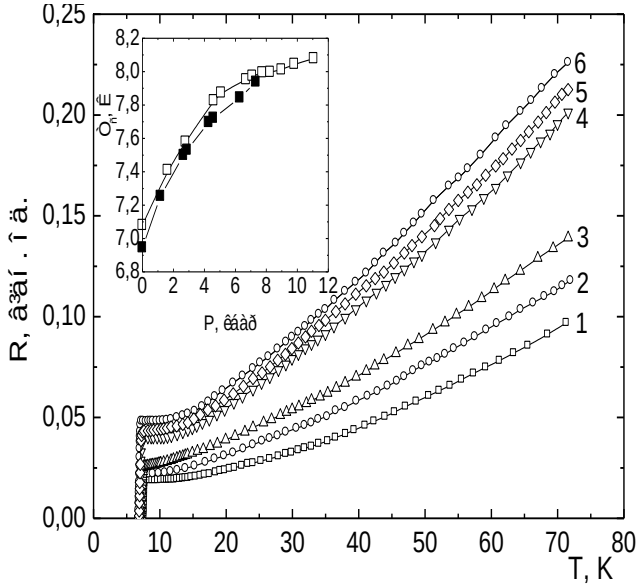


Рис. 7 Температурні залежності зведеного електроопору сполук $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$ при x= 0,1 і P= 0 (1); 4,5 (2); 8,5 (3) кбар, при x =0,15 і P= 0 (4); 5,7 (5); 12,8 (6) кбар. На вставці приведені баричні залежності критичної температури при x= 0,1 (світлі символи) x = 0,15 (темні символи).

Якісний аналіз залежності T_c(P) за допомогою відомої формули Макміллана [6] :

$$T_C = \frac{\theta_D}{1.45}\exp\left[-\frac{1.04(1+\lambda)}{\lambda-\mu^*(1+0.62\lambda)}\right] \qquad (8)$$

показав, що зміна температури Дебая θ_D очевидно не є основним чинником, який визначає залежність T_c(P).

Величина λ, у свою чергу, залежить від параметрів електронного і фононного спектру металу:

$$\lambda = \frac{N(E_F)\langle I^2(\vec{k}-\vec{k}')\rangle}{M\theta_D^2}, \qquad (9)$$

де $N(E_f)$ - густина станів на рівні Фермі, I - усереднений по поверхні Фермі матричний елемент електрон-фононної взаємодії, M - маса іона.

Відносна зміна густини станів на рівні Фермі дуже сильно змінюється в області тиску до 3 кбар, що, очевидно, і зумовлює швидке зростання T_c. У області тиску 3 < P < 12 кбар відносна величина зміни густини станів зменшується, і зростання T_c сповільнюється. Таким чином, зростання T_c в основному визначається зміною густини станів на рівні Фермі, а зміна фононного спектру відіграє незначну роль. При цьому фононний спектр стає «жорсткішим», тобто зміщується у бік високих частот.

ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі вирішена поставлена наукова задача щодо встановлення фізичних закономірностей еволюції характеристик

електротранспорту шаруватих монокристалічних сполук на основі системи 1-2-3 і ДПМ $NbSe_2$ з близьким параметром анізотропії і супутніх оксидів у процесі зміни їх структурного складу і дії високого гідростатичного тиску.

У роботі були синтезовані досконалі монокристали і отримані експериментальні зразки системи 1-2-3 і $Nb_{1-x}Sn_xSe_2$ заданого складу для резистивних вимірювань. Проведено вимірювання температурних залежностей електро- і магнітоопору даних експериментальних зразків, зокрема в умовах гідростатичного стискання до 11 кбар, і проведено аналіз отриманих експериментальних залежностей з урахуванням сучасних теоретичних моделей.

Основні наукові результати такі:

1. Встановлено, що при зростанні концентрації празеодиму в інтервалі $0,0 \le z \le 0,5$ відбувається істотне зміщення температурних ділянок, що відповідають переходам виду метал-діелектрик і режиму реалізації псевдощілинної аномалії. При цьому ділянки кривих на температурному інтервалі, що відповідають переходу метал-діелектрик, добре описуються за допомогою асимптотичної залежності, яка відповідає реалізації в системі квантового критичного режиму - так званого закону «1/3».
2. Надлишкова провідність $\Delta\sigma(T)$ монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ у широкому інтервалі температур має експоненціальній вид температурної залежності.
3. Двійникові межі у монокристалах $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ ($z \le 0,5$) є ефективними центрами розсіювання флуктуаційних носіїв. Відхилення від лінійності залежностей $\rho_{ab}(T)$ при $T_c < T < 1,15\ T_c$ може бути задовільно пояснено в межах теорії флуктуаційної парапровідності. При цьому безпосередньо поблизу T_c ФП добре описується тривимірною моделлю Асламазова-Ларкіна. Прикладання магнітного поля приводить до істотної нестійкості температурного інтервалу існування тривимірних надпровідних флуктуацій.
4. Зниження ступеня допування киснем монокристалів $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ приводить до нерівномірного розподілу кисню в об'ємі кристала і утворення фаз з різними критичними температурами. При цьому заміна ітрію на гольмій істотно впливає на перерозподіл заряду і ефективну взаємодію в CuO-площинах, тим самим стимулюючи розупорядкування у кисневій підсистемі. Індукований високим тиском перерозподіл лабільного кисню приводить до посилення фазового розшарування у об'ємі монокристалів $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з дефіцитом кисню і стимуляції в них процесів висхідної дифузії між фазами з різним ступенем відхилення від кисневої стехіометрії.
5. Особливості поведінки температурних залежностей електроопору у сполуках $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$, пов'язані з виникненням ХЗГ-переходу, відсутні для всіх досліджених концентрацій домішок олова. Це свідчить про те, що ХЗГ-перехід у досліджених зразках або повністю відсутній, або в значній мірі пригнічений, і, таким чином, його вплив на температуру

переходу до нормального стану позначатися не повинен. Основний внесок в збільшення T_c при дії високого гідростатичного тиску вносить зміна густини станів на рівні Фермі. При цьому фононний спектр зміщується у бік високих частот.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Прокофьев Д.Д. Величина и температурная зависимость псевдощели в YBaCuO, полученные из резистивных измерений [Текст] / Д.Д. Прокофьев, М.П. Волков, Ю.А. Бойков // ФТТ. –2003. –Т.45, №7. – С.1168-1176.
2. Babaev E. Nonperturbative XY-model approach to strong coupling superconductivity in two and three dimenshions [Текст] / E. Babaev, H. Kleinert // Phys. Rev. B. –Vol.59, –1999. –P.12083-12089.
3. Tallon J.L. Generic superconducting phase behavior in high-T_c cuprates: T_c variation with hole concentration in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [Текст] / J.L. Tallon, C. Berhnard, Snaked H., R. L. Hitterman, J.D. Jorgensen, //Phys. Rev., –1995. –V.51. –P.12911-12914.
4. Sadewasser S. Pressure dependence of T_c to 17 GPa with and without relaxation effects in superconducting $Y_1Ba_2Cu_3O_x$ [Текст] / S. Sadewasser, J.S. Schilling, A.P. Paulicas, B.M. Veal // Phys. Rev. B. –2000. –V.61, №1. –P.741-749.
5. Mott N.F. Conduction in polar crystals, I. Electrolytic conduction in solid salts [Текст] / N.F. Mott, M.J. Littleton //Trans. Faraday Soc. 34 (1938) 485.
6. McMillan W.L. Transition temperature of strong-coupled superconductors [Текст] / W.L. McMillan // Phys. Rev. –1968. –V.167, №2. –P.331-344.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Chroneos A.I. Atomistic models for $R_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Y and lanthanides) and related oxides [Текст] / A.I. Chroneos, I.L. Goulatis, R.V. Vovk, A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, A.V. Samoilov//ФТВД. –т.19,№2.–2009.–С. 7-13.
2. Самойлов О.В. Перехід метал-діелектрик і температура відкриття псевдощілини в допованих празеодимом монокристалах $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. [Текст] / О.В. Самойлов, А.А. Завгородний, Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, В.Ю. Гресь // «Вісник Донецького національного університету», серія А «Природничі науки». Вип.2. –2009. –С.173-175.
3. Vovk R.V. Evolution of the pseudogap state in HTSC-single crystals $ReBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Re=Y, Ho) doped with Al and Pr [Текст] / R.V. Vovk, A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, A.V. Samoilov, E.V. Biletskiy // Functional materials. –16, №3. –2009. –P.258-265.

4. Chroneos I. Atomistic studies of Li^+ migration in Y_2O_3 and the structure of related oxides [Текст] / I. Chroneos, G. Busker, I.L. Goulatis, R.V. Vovk, A.A. Zavgorodniy, M.A. Obolenskii, A.G. Petrenko, V.M. Pinto Simoes, A.V. Samoilov // ФТВД, –т.19, №4. –2009. –С.18-25.
5. Самойлов О.В. Вплив допування празеодимом на температурну залежність псевдощілини монокристалів $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [Текст] / О.В. Самойлов, А.А. Завгородний, Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, К.А. Котвицька, В.Ю. Гресь // Вісник Харківського національного університету. Сер. Фізична. Ядра, частинки, поля. – 2009. –№880. – вип.4/44. – С. 109-112.
6. Завгородний А.А. Магнитосопротивление и 2D-3D кроссовер в легированных алюминием монокристалах $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ с системой однонаправленных двойниковых границ [Текст]/А.А. Завгородний, Р.В. Вовк, М.А.Оболенский, А.В.Самойлов // ФНТ. –36, №1. –2010. –С.143-147.
7. Zavgorodniy A.A. Metal-dielectric transition and temperature dependence of the pseudo-gap in $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals: effect of pressure and oxygen nonstoichiometry [Текст] / A.A. Zavgorodniy, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.V. Samoilov, E.V. Biletskiy, M.G. Revyakina, V.M. Pinto Simoes // Functional materials. –17, №2. –2010. –P.143-150.
8. Самойлов О.В. Електрорезистивні властивості монокристалів $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$: вплив високого тиску і допування оловом [Текст] / О.В. Самойлов, Д.Д. Балла, А.А. Завгородній, Р.В. Вовк, М.О. Оболенський // Вісник Харківського національного університету. Сер. Фізична. Ядра, частинки, поля. –2010. –№887. –вип.1/45. –С. 100-103.
9. Завгородний А.А. Индуцированное высоким давлением фазовое расслоение в недодопированных кислородом монокристаллах $Ho_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. [Текст] / А.А.Завгородний, Р.В.Вовк, А.В.Самойлов, М.А.Оболенский // «Вісник Донецького національного університету», серія А «Природничі науки». Вип.1. –2010. –С.112-117.
10. Вовк Р.В. Эволюция продольной проводимости в монокристаллах $YBa_2Cu_{3-y}Al_yO_{7-\delta}$ при внесении малых добавок алюминия [Текст] / Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, А.А. Завгородний, А.В. Бондаренко, И.Л. Гулатис, А.В. Самойлов // IVTN-2006, Collected scientific works, p.53.
11. Вовк Р.В. Эволюция псевдощелевого состояния в слабо легированных алюминием ВТСП-монокристаллах $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ [Текст] / Р.В. Вовк, И.Л. Гулатис, М.А. Оболенский, А.А. Завгородний, А.В. Самойлов // IVTN-2008. –Collected scientific works. –p.42.
12. Завгородний А.А. Продольное магнитосопротивление в монокристалах $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ [Текст]/А.А.Завгородний, Р.В. Вовк, М.А.Оболенский, А.В. Самойлов // Матеріали 9-ої Міжнародної конференції «Фізичні явища в твердих тілах». –м. Харків, 1-4 грудня 2009 р. Збірник матеріалів –С. 56-57.
13. Вовк Р.В. Структурная релаксация в монокристаллах $Ho_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ с

недостатком кислорода [Текст] / Р.В.Вовк, М.А.Оболенский, А.А. Завгородний, А.В. Самойлов // IVTN-2009. –Collected scientific works. – p.53.

14. Вовк Р.В. Флуктуационная проводимость монокристаллов $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с различным содержанием празеодима [Текст] / Р.В. Вовк, М.А.Оболенский, А.А. Завгородний, А.В. Самойлов // Международная конференция «Актуальные вопросы теоретической и прикладной биофизики, физики и химии» (БФХХ) Сборник материалов. г. Севастополь, 2010г.
15. Vovk R. V. Magnetoresistance in $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ single crystals with a given topology of plane defects [Текст] / R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, A. A. Zavgorodniy, A.V. Samoylov, I.L. Goulatis, V.V. Kruglyak, A. Chroneos // Magnetic Phenomena in Micro- and Nano- Structures 2010, International Workshop, Collected scientific works, Donetsk – 2010.

АНОТАЦІЯ

Самойлов О.В. Електротранспорт та структура шаруватих сполук на основі монокристалів системи 1-2-3, діселеніду ніобію та супутніх оксидів. - *Рукопис.*

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти і науки, молоді та спорту України, Харків, 2011.

Представлено експериментальні результати, одержані при дослідженнях структурних параметрів, а також температурних, концентраційних, часових і баричних залежностей низки резистивних параметрів сполук системи 1-2-3, діселеніду ніобію та супутніх оксидів.

Одержані результати дали можливість встановити фізичні закономірності проходження динамічних фазових переходів і з'ясувати особливості взаємовпливу процесів локалізації носіїв, флуктуаційної і псевдощілинної аномалій в умовах дії зовнішніх чинників (низької температури, високого тиску і магнітного поля), а також структурної анізотропії і заданої топології дефектів кристалічної решітки у сполуках системи 1-2-3 та діселеніду ніобію.

Ключові слова: монокристали системи 1-2-3, діселенід ніобію, супутні оксиди, межі двійникування, анізотропія кристалічної структури, некогерентний електротранспорт, переходи метал-діелектрик, псевдощільовий стан, надлишкова провідність.

ABSTRACT

Samojlov A.V. Electrotransport and structure in layered compounds of the 1-2-3 single crystals system, diselenide of niobium and related oxides.. – ***Manuscript.***

Dissertation for the Doctor of Philosophy degree in physics and mathematics on the specialty 01.04.07 – solid state physics. V.N. Karazin Kharkov National University, Kharkov, Ukraine, 2011.

The experimental results presented in this study were obtained in investigations regarding the structural parameters, as well as temperature, concentration, time and pressure dependences of a number of resistive parameters of 1-2-3 system's compounds, niobium diselenide and related oxides.

The results gave us the opportunity to set up the physical trends regarding the dynamic phase transitions diffusion ad to explain the peculiarities of the interrelation of the carrier localization processes, the fluctuation and pseudo-gap anomalies. External factors such as: low temperature, high pressure and magnetic field, as well as the structural anisotropy with a given defects topology of the crystal lattice in 1-2-3 system's compounds and niobium diselenide were examined.

Keywords: 1-2-3 single crystals, niobium diselenide, related oxides, twin boundaries, anisotropy of the crystal structure, incoherent electrical-transport, metal-insulator transitions, pseudo-gap state, excess conductivity.

АННОТАЦИЯ

Самойлов А.В. Электротранспорт и структура слоистых соединений на основе монокристаллов системы 1-2-3, диселенида ниобия и сопутствующих оксидов. - ***Рукопись.***

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика твердого тела. Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина Министерства образования и науки, молодежи и спорта Украины, Харьков, 2011.

Представлены экспериментальные результаты, полученные при исследованиях структурных параметров, а также температурных, концентрационных, временных и барических зависимостей ряда резистивных параметров соединений системы 1-2-3, диселенида ниобия и сопутствующих оксидов.

Полученные результаты дали возможность установить физические закономерности прохождения динамических фазовых переходов и выяснить особенности взаимовлияния процессов локализации носителей, флуктуационной и псевдощелевой аномалий в условиях воздействия внешних факторов (низкой температуры, высокого давления и магнитного

поля), а также структурной анизотропии и заданной топологии дефектов кристаллической решетки в соединениях системы 1-2-3 и диселенида ниобия.

Установлено, что по мере роста концентрации празеодима в интервале $0,0 \le z \le 0,5$ происходит существенное смещение температурных участков, отвечающих переходам вида металл-диэлектрик и режиму реализации псевдощелевой аномалии. При этом участки кривых на температурном интервале, соответствующему переходу металл-диэлектрик, хорошо описываются посредством асимптотической зависимости, отвечающей реализации в системе квантового критического режима - так называемого закона «1/3».

Показано, что избыточная проводимость $\Delta\sigma(T)$ монокристаллов $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в широком интервале температур $T_f<T<T^*$ подчиняется экспоненциальной температурной зависимости $\Delta\sigma \sim (1-T/T^*)exp(\Delta^*_{ab}/T)$. Понижение степени допирования кислородом монокристаллов $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ приводит к неравномерному распределению кислорода по объему кристалла и образованию фаз с различными критическими температурами. При этом замена иттрия на гольмий существенно влияет на распределение заряда и эффективное взаимодействие в CuO-плоскостях, тем самым, стимулируя разупорядочение в кислородной подсистеме. Индуцируемое высоким давлением перераспределение лабильного кислорода приводит к усилению фазового расслоения в объеме монокристаллов $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с дефицитом кислорода и стимуляции в них процессов восходящей диффузии между сверхпроводящими фазами с различной степенью отклонения от кислородной стехиометрии.

Особенности поведения зависимостей *R(T)* у соединения $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$, связанные с возникновением перехода волны зарядовой плотности (ВЗП), отсутствующие для всех исследованных концентраций примесей олова. Это свидетельствует о том, что ВЗП-переход в исследованных образцах или полностью отсутствует, или в значительной степени подавленный, и, таким образом, влияние его на температуру сверхпроводящего перехода сказываться не должно. Основной вклад в увеличение T_c при действии высокого гидростатического давления на соединение $Nb_{1-x}Se_2Sn_x$ вносит изменение плотности состояний на уровне Ферми. При этом фононный спектр смещается в сторону высоких частот (становится жестче).

Проведено атомистическое моделирование кристаллической структуры семейства соединений вида $RBa_2Cu_3O_{6,5}$ и $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ (R= Y и Лантаноиды). Показано, что **с**редний редкоземельный ионный радиус является важным фактором для структурного и энергетического состояния соединений $RBa_2Cu_3O_{6,5}$ и $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$. Разность в величине параметров решётки в соединениях $R_{1-X}Pr_XBa_2Cu_3O_{6,5}$ уменьшается с увеличением содержании Pr. «Закон **с**жатия лантаноидов» подтверждается для всех рассматриваемых соединений. Проведено атомистическое моделирование диффузии Li^+ в Y_2O_3 и сопутствующих оксидах, а также систематическое моделирование ряда кристаллических параметров этих материалов с

помощью набора так называемых «переносных» межатомных потенциалов и сравнение полученных структур с имеющимися в литературе экспериментальными и теоретическими данными. Атомное масштабное моделирование адекватно воспроизводит 17 рассмотренных РЗ оксидов.

Двойниковые границы в монокристаллах $YBa_2Cu_{3-z}Al_zO_{7-\delta}$ ($z \leq 0,5$) являются эффективными центрами рассеивания флуктуационных носителей. Отклонение от линейности зависимостей $\rho_{ab}(T)$ при $T_c < T < 1,15\ T_c$ может быть удовлетворительно объяснено в пределах теории флуктуационной парапроводимости (ФП). При этом непосредственно вблизи T_c ФП хорошо описывается трехмерной моделью Асламазова-Ларкина. Приложение магнитного поля приводит к существенной неустойчивости температурного интервала существования трехмерных флуктуаций.

Ключевые слова: монокристаллы системы 1-2-3, диселенид ниобия, сопутствующие оксиды, границы двойникования, анизотропия кристаллической структуры, некогерентный электротранспорт, переходы металл-диэлектрик, псевдощелевое состояние, избыточная проводимость.