

# Перераспределение ионов кислорода в монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ , обусловленное внешним гидростатическим давлением

Ю.И. Бойко, В.В. Богданов, Р.В. Вовк, Г.Я. Хаджай, С.В. Савич

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина  
E-mail: rvovk2017@gmail.com; gkhadjai@univer.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 8 июня 2017 г., после переработки 31 июля 2017 г.,  
опубликована онлайн 28 ноября 2017 г.

Исследовано влияние высокого гидростатического давления на температурные зависимости электро-сопротивления в базисной плоскости монокристаллов  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  с дефицитом кислорода. Установлено, что внешнее гидростатическое давление  $P \approx 7$  кбар существенно интенсифицирует процесс диффузионной коалесценции кислородных кластеров, т.е. обуславливает рост их среднего размера. Это, в свою очередь, приводит к увеличению числа отрицательных  $U$ -центров, наличие которых приводит к появлению фазы, способной генерировать спаренные носители электрического заряда и, соответственно, характеризующейся большей температурой перехода  $T_c$ . В рамках этой же гипотезы о механизме диффузионной коалесценции кислородных кластеров обсуждается изменение вида температурных и временных зависимостей электросопротивления в условиях действия внешнего гидростатического давления.

Досліджено вплив високого гідростатичного тиску на температурні залежності електроопору у базисній площині монокристалів  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  з дефіцитом кисню. Встановлено, що зовнішній гідростатичний тиск  $P \approx 7$  кбар істотно інтенсифікує процес дифузійної коалесценції кисневих кластерів, тобто зумовлює зростання їх середнього розміру. Це, в свою чергу, призводить до збільшення числа від'ємних  $U$ -центрів, наявність яких призводить до появи фази, здатної генерувати спарені носії електричного заряду та, відповідно, що характеризується більшою температурою переходу  $T_c$ . В рамках цієї ж гіпотези про механізм дифузійної коалесценції кисневих кластерів обговорюється зміна виду температурних та часових залежностей електроопору в умовах дії зовнішнього гідростатичного тиску.

PACS: 74.72.-h Купратные сверхпроводники.

Ключевые слова: монокристаллы  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ , гидростатическое давление, коалесценция, дефицит кислорода, однофайловая диффузия.

## Введение

Как известно, присутствие лабильного кислорода [1,2] в высокотемпературных купратах (ВТСП соединениях) может способствовать возникновению неравновесного состояния, которое может проявляться в результате приложения высокого давления [3,4], скачкообразного изменения температуры [5,6] и длительного хранения [7–9] и, в свою очередь, приводит к фазовому расслоению [10,11], восходящей диффузии [12,13] и возникновению разного рода сверхструктур [14–16]. Все эти процессы оказывают существенное влияние на физические свойства ВСТП в нормальном и сверхпроводящем состоя-

ниях и наиболее ярко проявляются в случае образцов нестехиометрического по кислороду состава [17–20].

Кристалл  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  — широко известное и наиболее исследованное ионное соединение, характеризующееся «высокотемпературной» сверхпроводимостью [21]. Важным параметром, изменение которого существенно сказывается на основных константах, описывающих проводимость этого кристалла (температуру перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c$ , электрическое сопротивление  $R$ , плотность критического тока  $J_c$  и др.), является параметр  $x$ , который характеризует степень наполнения данного соединения ионами кислорода. Например, при изменении величины этого параметра от

минимального значения  $x \approx 0$  до  $x \approx 0,4$  наблюдается уменьшение температуры перехода от  $T_c \approx 92$  К до  $T_c \approx 45$  К, а при  $x > 0,6$ , т.е. при большом дефиците ионов кислорода, сверхпроводимость этого кристалла вообще исчезает [22]. Кроме того, по мере насыщения кристалла  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  кислородом, т.е. при  $x \rightarrow 0$ , одновременно происходит трансформация его структурного состояния: тетрагональная кристаллическая решетка превращается в орторомбическую перовскитоподобную решетку. При этом характерное время, необходимое для формирования орторомбической структуры, зависит от температуры и величины парциального давления кислорода в процессе термообработки [23]. Указанное структурное превращение сопровождается изменением параметров кристаллической решетки, что, в свою очередь, обуславливает появление механических напряжений, релаксация которых приводит к пластической деформации кристалла механизмом двойникового [24,25].

Из общих соображений ясно, что изучение влияния различных воздействий, в частности влияния внешнего гидростатического давления на структурное состояние и стехиометрический состав кристалла  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ , является источником важной информации, необходимой для выяснения микроскопического механизма «высокотемпературной» сверхпроводимости, который до настоящего времени остается невыясненным [26]. С учетом этого факта, особое значение получили экспериментальные методы, позволяющие выявить параметры сверхпроводников, которые существенно влияют на их физические характеристики в нормальном и сверхпроводящем состояниях. Одним из важнейших методов в этом аспекте является использование высокого давления, поскольку это не только позволяет прояснить роль и влияние

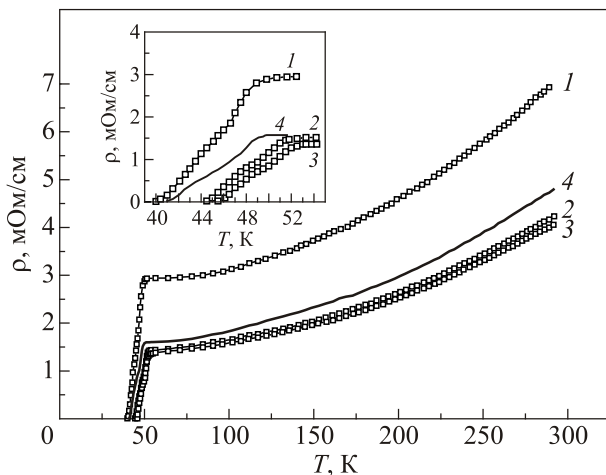


Рис.1. Температурные зависимости удельного электрического сопротивления  $\rho(T)$  при различных давлениях  $P$ , кбар: 0 (1), 4,2 (2), 6,3 (3) и непосредственно после снятия давления (4). Вставка: резистивные переходы в сверхпроводящее состояние при тех же давлениях.

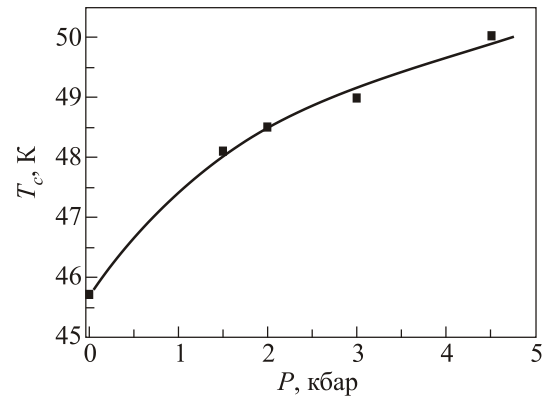


Рис. 2. Зависимость температуры перехода  $T_c$  от величины приложенного внешнего гидростатического давления  $P$ .

структурных особенностей системы на формирование сверхпроводящего состояния, но и дает возможность моделирования проводящих характеристик и критических параметров сверхпроводника.

В данной работе обсуждаются результаты исследований, полученные нами в разные годы [27,28], в которых изучалось влияние внешнего гидростатического давления  $P$  на величину температуры перехода  $T_c$ , а также на параметры зависимостей электрического сопротивления от температуры  $R(T)$  в интервале температур от комнатной вплоть до температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Изучались кристаллы  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ , характеризующиеся существенным дефицитом ионов кислорода ( $x \approx 0,4$ ).

Обнаружено (см. рис. 1, 2), что внешнее гидростатическое давление  $P \approx 7$  кбар обуславливает увеличение температуры перехода  $T_c$ , уменьшает величину электрического сопротивления  $R(T)$  и изменяет параметры кривой, описывающей изменение сопротивления  $R$  от времени  $t$  при постоянной температуре ( $T = 300$  К).

Основной причиной указанных изменений, наблюдавшихся нами в условиях действия давления, по нашему мнению, является интенсификация процесса перераспределения ионов кислорода в объеме исследуемого кристалла, что способствует формированию дополнительного количества специфических структурных образований (отрицательных  $U$ -центров), способных генерировать спаренные носители заряда [29].

Обсуждается механизм перераспределения ионов кислорода в исследуемом монокристалле, а также роль давления в этом процессе.

## 1. Эксперимент и его результаты

В работе приведены и обсуждены результаты экспериментального исследования влияния внешнего гидростатического давления до 7 кбар на температурные зависимости электрического сопротивления  $R(T)$  в  $ab$ -плоскости монокристаллов  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $x \approx 0,4$ ) в

интервале температур от 300 К до температуры перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c$ .

Кристаллы выращивали по технологии «раствор–расплав» в золотом тигле по методике, описанной в работе [30]. Образцы имели форму параллелепипеда с размерами  $\approx 2 \times 1,5 \times 0,2$  мм. Наибольшая площадь образца соответствовала кристаллографической плоскости  $ab$ . Первоначально образцы подвергали термообработке в потоке кислорода при  $T = 400$  °С в течение пяти суток для их полного насыщения кислородом, т.е. уменьшали параметр  $x$  до значения  $\approx 0 - 0,1$ .

Температурные зависимости электрического сопротивления  $R(T)$  измеряли стандартным четырехзондовым методом при постоянном токе. Температура перехода в сверхпроводящее состояние образцов, прошедших первоначальную термообработку в потоке кислорода, достигала значения  $\approx 92$  К. Для того чтобы уменьшить содержание кислорода в исследуемых образцах, проводили их дополнительный отжиг в течение двух суток в атмосфере воздуха при температуре 500 °С. Температура  $T_c$  для образцов с дефицитом кислорода понижалась до значения  $\approx 45$  К. Согласно литературными данными, такая температура перехода соответствует величине параметра  $x \approx 0,4$  [31]. Образцы именно такого стехиометрического состава были предметом наших исследований в условиях действия внешнего гидростатического давления на электрическую проводимость изучаемого кристалла [27,28].

Давление создавали с помощью мультипликатора по методике, описанной в работе [32]. Величину прикладываемого давления  $P$  измеряли с помощью манганинового манометра и варьировали в интервале 0–7 кбар. Температуру  $T_c$  определяли по середине резистивного перехода в сверхпроводящее состояние, т.е. на уровне  $R = R_n / 2$ , где  $R_n$  — величина электрического сопротивления образца в нормальном (несверхпроводящем) состоянии.

Температурные зависимости  $R(T)$  вначале измеряли в процессе нагрева мультипликатора при атмосферном давлении. Затем давление постепенно повышали при комнатной температуре. При достижении желаемой величины давления мультипликатор охлаждали до температуры  $T < T_c$  и уже после этого проводили измерения  $R(T)$ . После измерения при максимальном давлении его понижали до величины атмосферного давления и повторно проводили измерение зависимости  $R(T)$ .

Кроме зависимостей  $R(T)$ , были проведены изотермические измерения изменения величины электрического сопротивления  $R$  при температуре 300 К как функции времени  $t$  при действии давления 4,3 кбар, а также после его снятия. В этом эксперименте время максимальной выдержки достигало  $\approx 80$  часов.

На рис. 1 представлены зависимости  $R(T)$ , наблюдающиеся при различных давлениях  $P$  (0–6,3 кбар). Сплошная кривая соответствует измерениям, проведенным не-

посредственно после снятия давления. На вставке рис. 1 изображены резистивные переходы в сверхпроводящее состояние при различных давлениях.

Полученные экспериментальные данные свидетельствуют о том, что уменьшение содержания кислорода, кроме понижения температуры перехода от  $T_c \approx 92$  К до  $T_c \approx 45$  К и увеличения абсолютного значения электрического сопротивления от  $R \approx 0,1$  Ом до  $R \approx 3,2$  Ом ( $T = 300$  К), приводит также к изменению характера зависимостей  $R(T)$  при  $T > T_c$ . При этом линейные зависимости  $R(T)$ , характерные для металлической проводимости, превращаются в зависимости, имеющие специфический термоактивационный прогиб. Уменьшение содержания кислорода в образце сопровождается также увеличением ширины резистивного перехода в сверхпроводящее состояние от значения  $\Delta T_c \leq 0,3$  К при  $x \approx 0$  до  $\Delta T_c \approx 10$  К при  $x \approx 0,4$ . При этом сам переход приобретает ступенчатую форму (см. вставку на рис. 1). С увеличением величины давления увеличивается также и температура перехода  $T_c$  (см. рис. 2).

Вся совокупность полученных экспериментальных результатов хорошо согласуется, если предположить, что внешнее гидростатическое давление интенсифицирует появление в исследуемых образцах нескольких (как минимум двух) фаз, характеризующихся различным значением температуры перехода  $T_c$ . По нашему мнению, это связано с процессом перераспределения ионов кислорода в объеме кристалла  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  ( $x = 0,4$ ). Давление ускоряет процесс диффузионной коалесценции микроскопических скоплений кислородных вакансий различного размера, образующихся в исследуемом кристалле в связи с дефицитом кислорода. В результате коалесценции происходит перераспределение ионов кислорода в кристалле, что приводит к увеличению количества достаточно больших по размерам упорядоченных одномерных скоплений ионов кислорода (кластеров). Одновременно происходит уменьшение параметра  $x$ . Соответственно, увеличивается число специфических структурных образований — отрицательных  $U$ -центров, способных генерировать спаренные носители заряда [29]. При этом большей концентрации  $U$ -центров соответствуют более высокие значения  $T_c$  сверхпроводящей фазы.

Обоснованию правомерности использования выдвинутой гипотезы для объяснения полученных экспериментальных результатов посвящен следующий параграф данной статьи.

## 2. Перераспределение ионов кислорода в кристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ ( $x = 0,4$ ) и интенсификация этого процесса внешним гидростатическим давлением

Как уже отмечалось, кристалл  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  с существенным дефицитом ионов кислорода ( $x > 0,4$ ) является соединением с ионно-ковалентной связью и характеризуется дефектной по кислороду тетрагональной

кристаллической решеткой. В процессе термообработки, по мере насыщения кристалла ионами кислорода, происходит превращение исходной решетки в орторомбическую перовскитоподобную решетку. Для этой кристаллической структуры характерным является «слоистое» строение в виде медно-кислородных плоскостей  $\text{CuO}_2$ , а также наличие упорядоченных цепочек ионов кислорода (кластеров), ориентированных в определенных кристаллографических направлениях [33]. Именно эта структура, реализующаяся при значении величины параметра  $x \approx 0$ , определяет сверхпроводимость кристалла  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  с максимальной температурой перехода  $T_c \approx 92$  К.

Нами изучались кристаллы, характеризующиеся значением параметра  $x \approx 0,4$  и температурой перехода  $T_c \approx 45$  К. Естественно, что в структуре этих кристаллов в связи с дефицитом ионов кислорода присутствовало определенное количество кластеров, не полностью укомплектованных до оптимального стехиометрического состава. По существу, исследуемый кристалл представлял собой термодинамически неравновесную систему, имеющую в своей структуре дефекты в виде различных по размерам микроскопических скоплений кислородных вакансий. Поведение такой системы на пути к установлению равновесного состояния можно описать в рамках теории диффузионной коалесценции выделений посторонней фазы из пересыщенного раствора [34]. Применительно к рассматриваемому нами случаю посторонней фазой является пустота, связанная с наличием скоплений, образованных кислородными вакансиями. При этом реализуется ситуация, соответствующая заключительной стадии процесса эволюции двухфазной системы, когда выделения посторонней фазы (скопления вакансий) уже сформировались, и происходит лишь изменение их размеров.

Согласно работе [35], диффузионный поток вещества пересыщенной фазы (в нашем случае поток вакансий) на единичную поверхность скопления, описывается выражением

$$J_v = D_v (dc/dr)_{r=L} \approx (D_v/L) (C - C_L). \quad (1)$$

Здесь  $D_v$  — коэффициент диффузии вакансий,  $L$  — эффективный размер скопления\*,  $C$  — концентрация вакансий в кристалле,  $C_L$  — концентрация вакансий непосредственно вблизи скопления,  $r$  — координата.

Величина  $C_L$  определяется известной формулой:  $C_L \approx C_0(1 + \alpha/L)$ , где  $C_0$  — равновесная концентрация вакансий,  $\alpha = 2\gamma\Omega/kT$  ( $\gamma$  — удельная поверхностная энергия,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура). Учитывая соотношение (1), а также то, что в нашем случае «пересыщение» вакансиями в кристалле харак-

теризуется параметром  $x = (C - C_0)/C_0$ , изменение размера скопления со временем  $t$  может быть описано следующим образом:

$$dL/dt \approx (D/L) (x - \alpha/L), \quad (2)$$

где  $D = D_v/C_0$  — коэффициент диффузии ионов кислорода.

Из соотношения (2) следует, что при каждой величине «пересыщения» кристалла неравновесными (нестехиометрическими) вакансиями, т.е. при каждом значении параметра  $x > 0$ , существуют скопления вакансий, которые находятся в равновесном состоянии. Для них выполняется условие:  $dL/dt = 0$ . Эти скопления вакансий характеризуются некоторым критическим размером  $L^*$ :

$$L^* = \alpha/x. \quad (3)$$

Существование критического размера  $L^*$  означает, что при  $L > L^*$  в связи со стремлением системы установить равновесное состояние скопление вакансий увеличивает свой размер, а при  $L < L^*$  уменьшает его, т.е. растворяется. Заметим, что величина «пересыщения», характеризующая параметром  $x$ , и, соответственно, величина  $L^*$  изменяются со временем и по мере приближения к равновесию, когда  $x \rightarrow 0$ ,  $L^* \rightarrow \infty$ . Таким образом, в равновесном состоянии все имеющиеся в кристалле скопления нестехиометрических вакансий кислорода должны исчезнуть диффузионным путем, объединившись с самым большим «скоплением пустоты» — поверхностью кристалла.

Если к кристаллу приложено всестороннее (гидростатическое) давление  $P$ , то в связи с уменьшением концентрации вакансий вблизи скопления  $C_L$  величина «пересыщения» кристалла вакансиями уменьшается. Соответственно, увеличивается величина критического размера скопления  $L^*$ . Легко показать, что между критическим размером скопления в отсутствие давления  $L^*$  и при его наличии  $L_p^*$  существует связь:

$$(L_p^*) = L^* / (1 - \beta P), \quad (4)$$

где  $\beta = L^*/2\gamma$ . Отсюда следует, что под влиянием давления скопления вакансий «надкритического» размера ( $L > L_p^*$ ) переходят в разряд «подкритических» ( $L < L_p^*$ ), т.е. растворяющихся. Таким образом, давление интенсифицирует процесс растворения скоплений вакансий в кристалле.

Теперь учтем тот факт, что поток вакансий в любом направлении обуславливает поток ионов кислорода в противоположном направлении:  $J_v = -J_0$ . Следовательно, процесс коалесценции скоплений вакансий (про-

\* Величина  $L$  имеет смысл некоторого эффективного размера скопления вакансий:  $L \approx (3V/4\pi)^{1/3} \approx (3N\Omega/4\pi)^{1/3}$ , где  $V$  — объем скопления, образованного  $N$  вакансиями,  $\Omega$  — объем, приходящийся на одну вакансию.



цесс их растворения вплоть до полного исчезновения) одновременно означает коалесценцию кислородных кластеров, т.е. по мере приближения кристалла к равновесному состоянию кислородные кластеры должны увеличивать свои размеры (расти). Таким образом, при достижении равновесного стехиометрического состояния, т.е. при достижении величины параметра  $x \approx 0$ , исчезает дефицит ионов кислорода и одновременно все упорядоченные цепочки ионов кислорода (кластеры) становятся полностью укомплектованными. Соответственно, установление равновесного состояния в кристалле должно способствовать формированию дополнительного количества отрицательных  $U$ -центров, так как именно полностью укомплектованные кислородные кластеры являются основным составляющим звеном этих центров [29]. Естественно, в этом состоянии кристаллы  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  должны характеризоваться максимальной температурой перехода в сверхпроводящее состояние.

Таким образом, в соответствии с приведенными выше рассуждениями, внешнее гидростатическое давление способствует процессу коалесценции кислородных кластеров и, следовательно, должно интенсифицировать процесс формирования фазы, обладающей более высокой температурой перехода  $T_c$ . Именно это мы наблюдали в наших экспериментах (см. рис. 2).

Заметим, что в процессе установления равновесного состояния параметр  $x$ , характеризующий степень «пересыщения» кристалла вакансиями кислорода, а также средний размер скоплений  $L_{\text{mid}}$  зависят не только от температуры, но и от времени:  $x \approx \lambda t^{-1/3}$ , где  $\lambda \approx (\alpha^{2/3} D^{-1/3})$ ;  $L_{\text{mid}} \approx (D\alpha)^{1/3} t^{1/3}$  [34]. Кроме того, диффузия ионов кислорода в исследуемом кристалле на разных этапах установления равновесного состояния может реализовываться как обычным классическим механизмом, так и более ускоренным механизмом «однофайловой» диффузии [35].

Указанное обстоятельство усложняет характер кинетических зависимостей  $x(t)$  и  $L_{\text{mid}}(t)$ , которые в конечном итоге определяют характер релаксационных кривых  $R(T)$ . В условиях действия давления процесс заполнения кластеров ионами кислорода ускоренным механизмом «однофайловой» диффузии реализуется только на начальном этапе, а в дальнейшем этот процесс и, соответственно, уменьшение электрического сопротивления лимитируются более медленным механизмом классической диффузии. После снятия же давления процесс более интенсивного увеличения размеров кислородных кластеров приостанавливается. При этом с течением времени увеличивается число не полностью укомплектованных кластеров и, соответственно, происходит релаксация сопротивления  $R$ . В этих условиях перемещение ионов кислорода реализуется на значительно меньшие расстояния и может осуществляться в режиме «однофайловой» диффузии практи-

чески до полного установления равновесного значения  $R(t \rightarrow \infty)$ . Определенную роль при этом может играть присутствие в системе структурной и кинематической анизотропии [36–39].

В заключение приведем некоторые количественные оценки, подтверждающие действенность предлагаемого нами механизма коалесценции (увеличения размеров) кислородных кластеров в исследуемом кристалле, а также роль давления в этом процессе.

В соответствии с формулой (3), величину критического размера скопления вакансий можно оценить с помощью соотношения  $L^* \approx 2\gamma\Omega/kTx$ . Подставляя в это соотношение значения констант  $\gamma \approx 10^{-1}$  Дж/м<sup>2</sup>,  $\Omega \approx 3 \cdot 10^{-29}$  м<sup>3</sup>,  $kT \approx 3 \cdot 10^{-21}$  Дж ( $T \approx 300$  К), а также  $x \approx 0,4$ , получаем  $L^* \approx 5 \cdot 10^{-9}$  м, что разумно.

Кроме того, из соотношения (4) следует, что при давлении  $P^* \approx 2\gamma/L_p^*$  величина  $L^*$  обращается в бесконечность, т.е. все имеющиеся в кристалле скопления нестехиометрических вакансий должны раствориться диффузионным механизмом, превратившись в кислородные кластеры. Полагая  $L_p^* \approx L^*$  (начальная стадия процесса коалесценции) и подставив это значение в формулу для  $P^*$ , имеем  $P \approx 10^8$  Н/м<sup>2</sup>  $\approx 1$  кбар. Сделанная грубая оценка означает, что давление в несколько килобар может повлиять на процесс коалесценции кислородных кластеров в исследуемом кристалле. Именно этот эффект мы и наблюдали экспериментально.

## Выводы

На основании обработки полученных экспериментальных результатов и их обсуждения можно сделать следующие выводы.

Внешнее гидростатическое давление  $P \approx 7$  кбар существенно интенсифицирует процесс диффузионной коалесценции кислородных кластеров, т.е. обуславливает рост их среднего размера. В свою очередь, увеличение размеров кислородных кластеров приводит к увеличению числа отрицательных  $U$ -центров, наличие которых приводит к появлению фазы, способной генерировать спаренные носители электрического заряда и, соответственно, характеризующейся большей температурой перехода  $T_c$ .

Все другие полученные в наших экспериментах результаты, а именно изменение параметров зависимостей  $R(T)$  и  $R(t)$ , также объясняются в рамках гипотезы о механизме диффузионной коалесценции кислородных кластеров в кристалле  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  в условиях действия внешнего гидростатического давления.

1. J. Kircher, M. Cardona, A. Zibold, K. Widder, and H.P. Geserich, *Phys. Rev. B* **48**, 9684 (1993).
2. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, I.L. Goulatis, and A.I. Chronos, *J. Mater. Sci.: Mater Electron* **22**, 20 (2011).
3. S. Sadewasser, J.S. Schilling, A.P. Paulicas, and B.M. Veal, *Phys. Rev. B* **61**, 741 (2000).

4. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, S.N. Kamchatna, and A. Chroneos, *Mod. Phys. Lett. B* **30**, 1650188 (2016).
5. J.D. Jorgencen, Pei Shiyu, P. Lightfoot, H. Shi, A.P. Paulikas, and B.M.W. Veal, *Physica C* **167**, 571 (1990).
6. R.V. Vovk, N.R. Vovk, and O.V. Dobrovolskiy, *J. Low Temp. Phys.* **175**, 614 (2014).
7. B. Martinez, F. Sandiumenge, S. Pinol, N. Vilalta, J. Fontcuberta, and X. Obradors, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 772 (1995).
8. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Oleksandr V. Dobrovolskiy, and Z.F. Nazzyrov, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron* **25**, 5226 (2014).
9. D.A. Lotnyk, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, J. Kováč, M. Kaňuchová, M. Šefčíková, V. Antal, P. Diko, A. Feher, and A. Chroneos, *J. Low Temp. Phys.* **161**, 387 (2010).
10. R. Menegotto Costa, F.T. Dias, P. Pureu, and X. Obradors, *Physica C* **495**, 202 (2013).
11. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, O.V. Dobrovolskiy, S.N. Kamchatna, and V.M. Pinto Simoes, *Phys. B: Cond. Matter* **518**, 47 (2017).
12. R.V. Vovk, Z.F. Nazzyrov, M.A. Obolenskii, I.L. Goulatis, A. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *Philos. Mag.* **91**, 2291 (2011).
13. A. Solovjov, M. Tkachenko, R. Vovk, and A. Chroneos, *Physica C* **501**, 24 (2014).
14. M. Sarikaya, R. Kikuchi, and I.A. Aksay, *Physica C* **152**, 161 (1988).
15. А.В. Бондаренко, В.А. Шкловский, Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, А.А. Продан, *ФНТ* **23**, 1281 (1997) [*Low Temp. Phys.* **23**, 962 (1997)].
16. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, D.A. Lotnyk, and K.A. Kotvitskaya, *Physica B* **404**, 3516 (2009).
17. W.H. Fietz, R. Quenzel, K. Grube, J. Metzger, T. Weber, and H.A. Ludwig, *Physica C* **235–240**, 1785 (1994).
18. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica B* **436**, 88 (2014).
19. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, I.L. Goulatis, A.I. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron* **20**, 858 (2009).
20. R.V. Vovk, G.Y. Khadzhai, Z.F. Nazzyrov, and S.N. Kamchatnaya, *Solid State Commun.* **255–256**, 20 (2017).
21. A.L. Solovyov, L.V. Omelchenko, V.B. Stepanov, R.V. Vovk, H.-U. Habermeyer, P. Przyslupski, and K. Rogacki, *Phys. Rev. B* **94**, 224505 (2016).
22. G. Fuchs, A. Gladun, R. Mueller, M. Ritschel, G. Krabbes, P. Verges, and H. Vinzelberg, *J. Less-Common Metals* **151**, 103 (1989).
23. H. Krebs, *J. Less-Common Metals* **150**, 269 (1989).
24. А.М. Косевич, *Дислокации в теории упругости*, Наукова думка, Киев (1978).
25. Ju. Boyko, H. Jaeger, M. Aslan, K. Schulze, and G. Petzow, *Mater. Lett.* **11**, Nos. **5, 6, 7**, 207–211 (1991).
26. J.G. Bednorz and K.A. Muller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
27. D.D. Balla, A.V. Bondarenko, R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, and A.A. Prodan, *Fiz. Nizk. Temp.* **23**, 1035 (1997) [*Low Temp. Phys.* **23**, 777 (1997)].
28. Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, А.В. Бондаренко, *ФНТ* **33**, 126 (2007) [*Low Temp. Phys.* **33**, 94 (2007)].
29. К.В. Мицен, О.М. Иваненко, *УФН* **174**, 545 (2004).
30. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, and O.V. Dobrovolskiy, *Appl. Phys. A* **117**, 997 (2014).
31. *Physical Properties High-temperature Superconductors I*, D.M. Ginsberg (ed.), Singapore: World Scientific, Singapore (1989).
32. A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, R. Vovk, O.V. Dobrovolskiy, Z.F. Nazzyrov, S.N. Kamchatnaya, and D.M. Sergeyev, *Physica B* **493**, 58 (2016).
33. Р. Эванс, *Введение в кристаллохимию*, Госхимиздат, Москва (1948).
34. I.M. Lifshitz and V.V. Slezov, *Sov. Phys. JETP* **35**, 331 (1959).
35. R.V. Vovk, Yu.I. Boyko, V.V. Bogdanov, S.N. Kamchatnaya, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica C* **536**, 26 (2017).
36. A. Chroneos and R.V. Vovk, *Solid State Ionics* **274**, 1 (2015).
37. R.V. Vovk, C.D.H. Williams, and A.F.G. Wyatt, *Phys. Rev. B* **68**, 134508 (2003).
38. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, and O.V. Dobrovolskiy, *Mod. Phys. Lett. B* **28**, 1450245 (2014).
39. R.V. Vovk, C.D.H. Williams, and A.F.G. Wyatt, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 235302 (2003).

#### Redistribution of oxygen ions in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals due to external hydrostatic pressure

Yu.I. Boiko, V.V. Bogdanov, R.V. Vovk,  
G.Ya. Khadzhai, and S.V. Savich

The effect of high hydrostatic pressure on the temperature dependences of the electrical resistivity in the basal plane of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  single crystals with oxygen deficiency is studied. It is established that the external hydrostatic pressure  $P \approx 7$  kbar substantially intensifies the process of diffusion coalescence of oxygen clusters, that is, it causes the growth of their average size. This, in turn, leads to an increase in the number of negative  $U$ -centers, the presence of which leads to the appearance of a phase capable of generating paired carriers of electric charge and, accordingly, characterized by a higher transition temperature  $T_c$ . Within the framework of the same hypothesis on the mechanism of diffusion coalescence of oxygen clusters, a change in the form of the temperature and time dependences of the electrical resistivity under the action of external hydrostatic pressure is discussed.

PACS: 74.72.-h Cuprate superconductors.

Keywords: single crystals  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ , hydrostatic pressure, coalescence, oxygen deficiency, single-file diffusion.