Письма в ЖЭТФ, том 121, вып. 10, с. 833 – 838

Влияние нестехиометриии сверхпроводящих ВТСП состава $Gd_{1+x}Ba_{2-y}Cu_3O_{7-\delta}$ на пиннинг вихрей и фазовый переход вихревая жидкость–стекло

Б. И. Массалимов[+1)], *В. А. Власенко*[+], *А. Р. Прищепа*[+], *П. Н. Дегтяренко*[*], *Е. М. Иванова*[+], *А. В. Садаков*[+]

[+]*Центр высокотемпературной сверхпроводимости и квантовых материалов им. В. Л. Гинзбурга ФИАН, 119991 Москва, Россия*

[+]*Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 25 марта 2025 г.
После переработки 15 апреля 2025 г.
Принята к публикации 16 апреля 2025 г.

В работе приведены результаты систематического исследования образцов пленок ВТСП (высокотемпературных сверхпроводников) нестехиометрического состава $Gd_{1+x}Ba_{2-y}Cu_3O_{7-\delta}$. В результате проведенных измерений семейства кривых $R(T)$ в магнитных полях обнаружено резкое изменение характера пиннинга с полем, которое указывает на возможный фазовый переход пиннингованной вихревой системы из трехмерного в квазидвумерное состояние. Описание пиннинга вихревой структуры проведено в приближении флуктуационной модели TAFF. На основании проведенного анализа зависимости энергии активации вихрей $U_0(B)$ от магнитного поля сделан вывод, что в нестехиометрических ВТСП $Gd_{1+x}Ba_{2-y}Cu_3O_{7-\delta}$ влияние термических флуктуаций оказывает меньшее влияние на вихревую систему, чем в стехиометрических сверхпроводниках аналогичного состава.

DOI: 10.31857/S0370274X25050198, EDN: UBBKAE

Введение. Открытие высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) в купратах в 1986 г. [1–3] стимулировало активное внедрение ВТСП-материалов в практические приложения. Наиболее значимые современные достижения включают создание мощных магнитных систем для ускорителей частиц [4, 5] и термоядерных реакторов [6, 7]. Эти проекты требуют однородных и сильных магнитных полей при токах свыше 1000 А в собственном поле. Создание ВТСП лент с более высокой токонесущей способностью в больших внешних магнитных полях является актуальной и перспективной задачей.

Основной путь решения данной проблемы состоит в использовании различных внедренных дефектов (центров пиннинга). В работах [8, 9] были предложены добавки $BaZrO_3$, $BaSnO_3$ для создания искусственных несверхпроводящих центров пиннинга в лентах. Выбор данных соединений обусловлен хорошей совместимостью параметров кристаллической решетки. В исследованиях [10, 11] использовались мишени нестехиометрического состава. Показано, что избыток Gd порядка +15 % по стехиометрии в составе пленок $Gd_{1+x}Ba_{2-y}Cu_3O_{7-\delta}$ (далее – (Gd, B)CO) приводит к значительному повышению критического тока вследствие образования нитевидных дефектов в виде несверхпроводящей фазы Gd_2CuO_4 [11]. На данный момент значения плотности критического тока в 700 до 1000 А/мм^2 в поле 20 Тл и температуре 20 К [12] являются рекордными. Кроме этого, внедренные нитевидные дефекты должны приводить к увеличению силы пиннинга вихрей Абрикосова и токонесущей способности сверхпроводника.

К настоящему моменту отсутствуют работы, посвященные исследованию влияния избытка Gd в образцах сверхпроводящих лент на динамику и пиннинг вихрей Абрикосова. В работах [13, 14] на ВТСП материалах стехиометрического состава было показано, что в полевой зависимости активационной энергии $U_0(B) \sim B^{-\alpha}$ показатель α степени варьируется от 0.76 до 0.8. Это свидетельствует о достаточно слабом закреплении вихрей Абрикосова на дефектах.

В данной работе впервые экспериментально исследовались особенности вихревой структуры и фазовые переходы типа вихревая жидкость-вихревое стекло на образцах (Gd, B)CO с избытком Gd, показано, что $U_0(B)$ спадает значительно слабее за счет сформированных дефектов фазы Gd_2CuO_4, что позволяет применять данные ленты в более высоких магнитных полях.

Экспериментальная часть. В данной работе использовались образцы ВТСП лент 2-го поколения

1)e-mail: massalimovbi@lebedev.ru

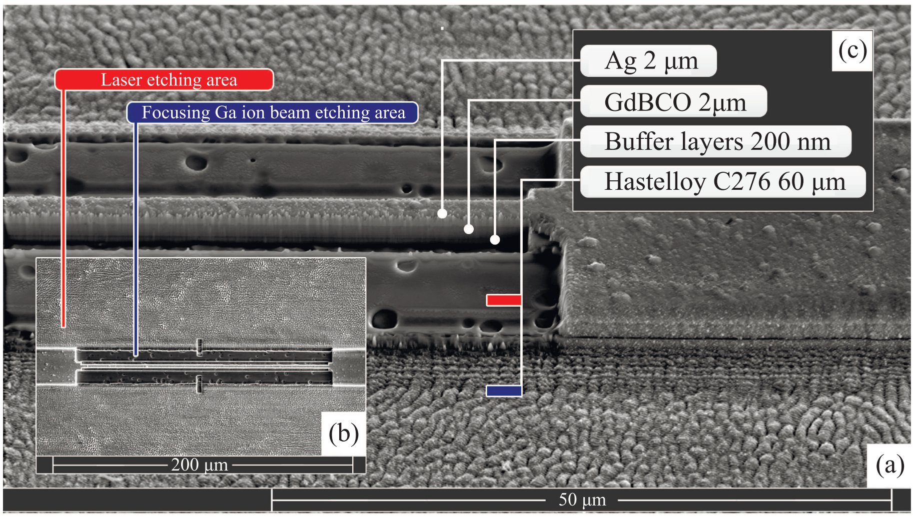

Рис. 1. (Цветной онлайн) Фотография микромостика, вырезанного из сверхпроводящей ленты. (a) – увеличенное изображение мостика под углом 45 градусов к поверхности; (b) – вид сверху на мостик; (c) – состав слоев ВТСП ленты

шириной 12 мм на основе (Gd, B)CO с избытком Gd порядка +15 % по стехиометрии, полученные на промышленном оборудовании.

Сверхпроводящий слой напылялся на подложку из сплава Хастеллой C-276, с буферными подслоями $LaMnO_3$, IBAD-MgO, a-Y_2O_3 и a-Al_2O_3. Для нанесения использовался метод импульсного лазерного осаждения с применением Xe-Cl эксимерного лазера с длиной волны 308 нм и энергией импульса около 700 мДж и температурой подложки порядка 1000 °C [9].

Для измерения транспортных и вольт-амперных (ВАХ) характеристик ВТСП лент второго поколения ранее использовали прямые транспортные измерения при большом токе, пропускаемом через образец. В данной работе для создания большой плотности тока эксперименты проводились с микромостиками, которые вырезали из ленты с толщиной ВТСП слоя 2 мкм. Вначале лазером вырезался мостик размером в плоскости 1000×40 мкм^2. Затем мостики уменьшали до 150×5 мкм^2 фокусированным пучком ионов Ga (с помощью SEM-FIB Helios Nanolab 660). Микрофотография мостика представлена на рис. 1.

Магнитотранспортные измерения зависимости сопротивления и ВАХ от температуры и от поля ($R(T, B)$ и $I(V)$) проводились на подготовленных мостиках на установке Cryogenic CFMS-5T в магнитных полях до 5 Тл по стандартной четырехточечной методике. Магнитное поле B было приложено перпендикулярно плоскости ленты. На рисунке 2 представлены температурные зависимости сопротивления мостиков из ленты (Gd, B)CO в зависимости от приложенного внешнего магнитного поля. Возможные критерии определения критической температуры сверхпроводящего перехода представлены на графике, в дальнейших расчетах мы использовали критерий $T_c^{50\,\%} = (T_c^{\mathrm{onset}} + T_c^{\mathrm{offset}})/2$ аналогично работе [15].

Известно, что в купратных ВТСП флуктуационная TAFF [16] модель и модель вихревого стекла (VG) [17] хорошо описывают поведение вихревой структуры [18]. В частности, модель вихревого стекла описывает фазовый переход из вихревого жидкого состояния в твердое в магнитных полях, меньших второго критического поля B_{c2}. В этой модели предполагается наличие зависимости между сопротивлением и температурой фазового перехода (T_g) типа вихревая жидкость–вихревое стекло вида $R \sim (T - T_g)^s$, где $s = \nu(z + 2 - D)$, D – размерность фазового перехода, а ν и z – статический и динамический показатели степени. Используя соотношение $(d \ln \rho / dT)^{-1} \propto (T - T_g)/s$ из данных магнитотранспортных измерений $R(T, B)$, можно получить температуру плавления вихревой структуры T_g, из линейной части графика, построенного в координатах Аррениуса ($\ln \rho \, vs \, 1/T$), представленного на рис. 2.

Для описания температурной зависимости сопротивления в модели TAFF [16] постулируется связь между активационной энергией и сопротивлением, которая определяется следующим соотношением:

$$\ln \rho(T, H) = \ln \rho(H) - U_0(H)/T, \qquad (1)$$

где U_0 – энергия активации вихрей Абрикосова. Следовательно, согласно формуле (1), из линейной

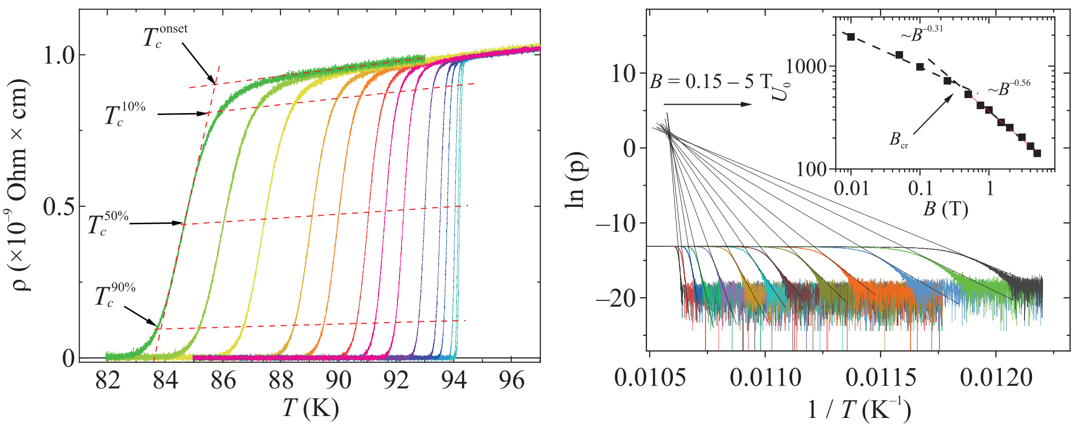

Рис. 2. (Цветной онлайн) (Слева) Температурная зависимость сопротивления (Gd, B)CO в полях до 5 Тл. Штриховыми линиями обозначены различные критерии определения величины верховного критического поля. (Справа) Температурная зависимость сопротивления от приложенного магнитного поля, построенная в координатах Аррениуса (зависимость $\ln(\rho)$ от $1/T$). Вставка: зависимость активационной энергии от внешнего магнитного поля $U_0 = -d(\ln\rho)/d(1/T)$ в логарифмическом масштабе

интерполяции данных сопротивления в координатах $\ln p$ от T^{-1} можно получить значение энергии активации. Зависимость энергии активации от приложенного магнитного поля представлена на вставке рис. 2. На этом рисунке видно, что $U_0 \sim B^{-\alpha}$, причем параметр α изменяется при увеличении магнитного поля. В полях ниже 0.4 Тл $U_0 \sim B^{-0.31}$, а в полях выше 0.4 Тл показатель степени возрастает: $U_0 \sim B^{-0.56}$, что указывает на возможный фазовый переход в динамике вихрей Абрикосова. Отметим, что оба показателя степени значительно ниже, чем в стехиометрических системах $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [13, 14]. Это значит, что сопротивляемость вихревой системы термическим флуктуациям в наших лентах значительно выше. Кроме этого, более слабая зависимость $U_0(B)$ ниже 0.2 Тл указывает на преобладание в низких полях пиннинга уединенных вихрей. При увеличении магнитного поля расстояние между вихрями уменьшается и происходит переход в режим коллективного пиннинга вихрей Абрикосова. Аналогичное поведение наблюдалось как в купратных ВТСП [19], так и в железосодержащих сверхпроводниках [20]. На рисунке 3 представлены ВАХ изготовленных мостиков в зависимости от приложенного внешнего магнитного поля при температуре 85 К. На данном рисунке выделены области ВАХ, описываемые различными теоретическими моделями. В частности, отчетливо видны режимы динамического и бездиссипативного пиннинга вихрей. Плотность критического тока J_c достигает $9.2 \cdot 10^4$ А/см^2 при температуре 85 К и в поле 2 Тл. Режим TAFF заканчивается при плотности тока $1.8 \cdot 10^5$ A/cm^2. При дальнейшем увеличении тока система переходит в режим flux flow (FF) [21].

Для определения линии плавления вихревой структуры был построен график обратной производной логарифма сопротивления $(d\ln\rho/dT)^{-1}$ от температуры. Из его линейного участка определены температура фазового перехода из вихревой жидкости в вихревое стекло (T_g) и температура верхнего предела области существования фазы закрепленных вихрей (T_{cr}) [21, 22] для данного магнитного поля. Наклон прямой определяет величину $1/s$, значения которой показаны на вставке рис. 3. Показатель степени s при увеличении магнитного поля уменьшается с 5 ± 0.5 в полях порядка 0.1 Тл до 3 ± 0.4 в полях выше 4 Тл. Согласно теоретическим оценкам, значения параметра s, находящиеся в диапазоне 2.7–8.5, соответствуют трехмерному случаю фазового перехода вихревая жидкость-вихревое стекло [23–25]. В то же время, учитывая устойчивую тенденцию к уменьшению показателя s, можно предположить возможный переход от трехмерного случая пиннинга к квазидвумерному [26, 27]. Этот переход связан с нарушением закона подобия корреляционной длины вихревого стекла ($\xi_g^2 = \xi_\perp\xi_\parallel$) $\propto |T - T_g|$. Аналогичное поведение вихревой жидкости наблюдается не только в высокоанизотропных купратах, но и в сверхпроводниках FeSe [28], MgB_2 [29].

Модель вихревого стекла (VG) [24] в случае неизменного механизма фазового перехода предполагает существование закона подобия (скейлинг) в координатах $\rho/\rho_n = [T(T_c - T_g)]/[T_g(T_c - T) - 1]$. Величина показателя s оценивается из наклона линейной интерполяции скейлинговых кривых, как показано на рис. 4. Из этого рисунка видно, что закон подобия хорошо выполняется вплоть до 3 Тл и нарушается

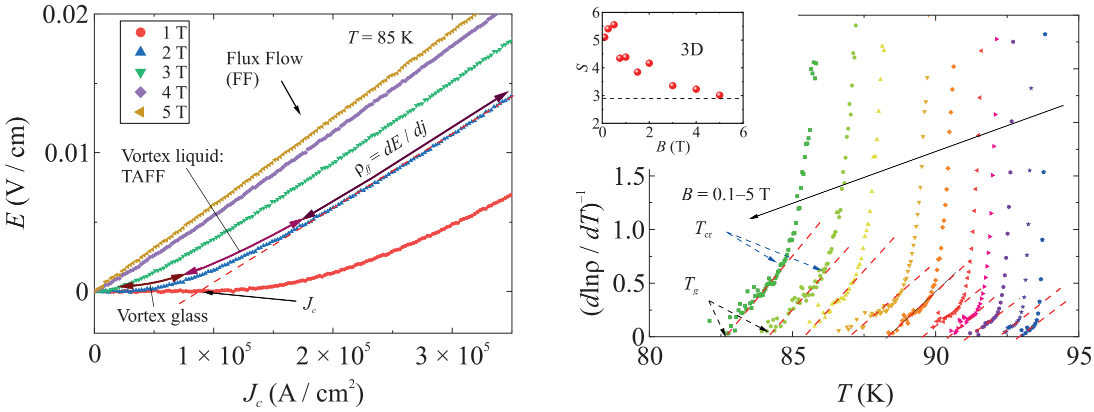

Рис. 3. (Цветной онлайн) (Слева) Вольтамперные характеристики образца в магнитных полях 1–5 Тл при температуре 85 K с выделенными областями вихревой динамики. (Справа) Магнитотранспортные данные, перестроенные в координатах $(d\ln p/dT)^{-1}$ от T, и определение величин T_g и $T_{\rm cr}$. Штриховые линии – экстраполяции линейной части графика. Вставка: Зависимость параметра s от приложенного магнитного поля

с дальнейшим повышением магнитного поля. Усредненный показатель степени s до 3 Тл включительно составляет 3.1 ± 0.5, что указывает, как было сказано выше, на трехмерный случай пиннинга. В купратных и железосодержащих ВТСП похожее снижение с полем показателя степени наблюдалось в работах [30, 31], и в качестве возможной причины такого поведения предполагался переход от "квазидвумерного" поведения вихревой жидкости к трехмерному.

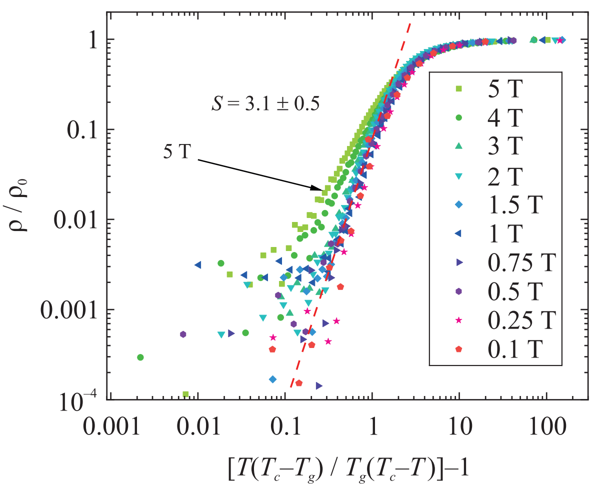

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость нормированного сопротивления ρ/ρ_0 от нормированной температуры $Tsc = [T(T_c - T_g)/T_g(T_c - T)] - 1$ в различных магнитных полях

На рисунке 5 на основании полученных экспериментальных данных построена фазовая диаграмма вихревого состояния для сверхпроводящей ленты второго поколения (Gd, B)CO с рекордной токонесущей способностью. На рисунке 5 представлена область существования фазы вихревой жидкости, типы вихревой жидкости, а также фазовые линии перехода в закрепленное вихревое состояние и верхнее критическое поле.

Известно, что фазовый переход от вихревого жидкого состояния к твердому хорошо описывается эмпирической формулой $B(T) = B(0) \times (1 - T/T_c)^n$ [32]. Из теоретических оценок, в приближении модели TAFF показатель степени n должен быть порядка 1.5 [33], но экспериментально было обнаружено, что значение n может варьироваться от 1 до 4, и его величина зависит от свойств сверхпроводника [34]. Показатель степени n для нашего исследуемого образца равен 1.75, что близко к теоретическим предсказаниям. В то же время n связан с уширением резистивного перехода при приложении внешнего магнитного поля соотношением вида:

$$\delta T = CB^m + \delta T_0, \qquad (2)$$

где $m = 1/n$, а $\delta T = T^{90\,\%} - T^{10\,\%}$, δT_0 – ширина резистивного перехода при нулевом магнитном поле, а параметр C зависит от критического тока при нулевом магнитном поле и от критической температуры. Из экспериментальных данных зависимости сопротивления от температуры и внешнего магнитного поля было рассчитано уширение перехода. Полученные значения, представленные на рис. 5, хорошо описываются соотношением (2). Учитывая, что значения показателя степени m меньше, чем теоретически предсказанное $2/3$, можно сделать вывод о сильном пиннинге вихрей Абрикосова в данной системе. Полученные результаты аналогичны полученным в других работах на монокристаллах купратных ВТСП и сверхпроводящих лентах 2-го поколения [35, 36].

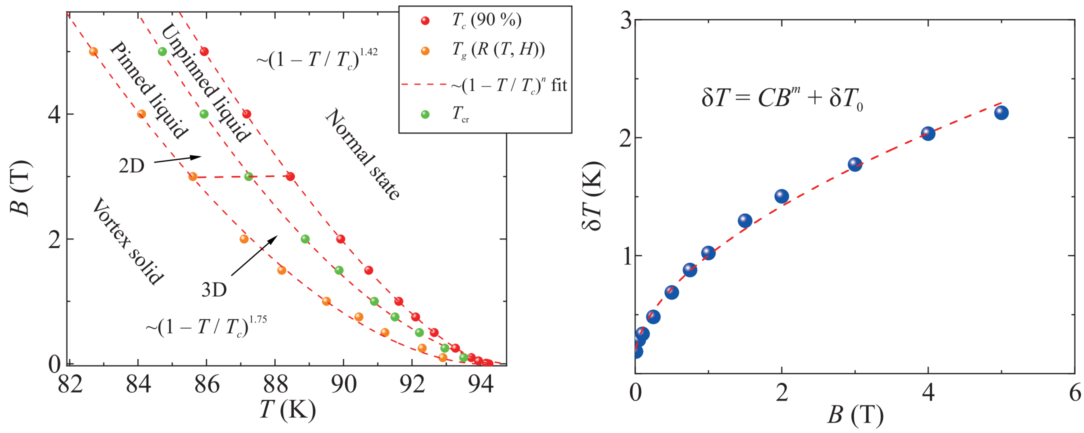

Рис. 5. (Цветной онлайн) (Слева) Фазовая диаграмма сверхпроводника (Gd, B)CO, полученная из магнитранспортных измерений. (Справа) Ширина сверхпроводящего перехода по сопротивлению как функция приложенного магнитного поля. Штриховая линия изображает зависимость (2)

Выводы. В работе исследованы образцы ВТСП лент на основе системы (Gd, B)CO с рекордной плотностью критического тока от 700 до 1000 А/мм^2 в поле 20 Тл. Из систематических транспортных измерений на микромостиках показано, что перестройка вихревой структуры наблюдается в полях около 0.5 Тл. Обнаружен возможный фазовый переход в поведении вихревой жидкости из трехмерного в квазидвумерное состояние при увеличении внешнего магнитного поля выше 3 Тл. Показано, что уширение сверхпроводящего перехода на кривых $R(T)$ с ростом магнитного поля хорошо описывается в приближении флуктуационной модели TAFF. На основании проведенного анализа полевой зависимости $U_0(B)$ сделан вывод, что энергия активации вихрей с увеличением магнитного поля спадает значительно медленнее в нестехиометричных ВТСП (Gd, B)CO по сравнению со стехиометрическими. Исходя из этого, можно сделать вывод о том, что контролируемое изменение стехиометрии позволяет создавать ВТСП ленты 2-го поколения для строго определенных магнитных полей и температур будущих сверхпроводящих магнитных систем.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант #24-72-10109). Измерения проводились на оборудовании Центра коллективного пользования "Исследование сильно-коррелированных электронных систем" Физического института имени П. Н. Лебедева.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. J. G.Bednorz and K. A. Muller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986).
2. Н. В. Аншукова, А. И. Головашкин, О. М. Иваненко, К. В. Крайская, К. В. Мицен, Письма в ЖЭТФ **47**, 381 (1988).
3. M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **58**, 908 (1987).
4. A. Godeke, M. C. Jewell, C. M. Fischer, A. A. Squitieri, P. J. Lee, and D. C. Larbalestier, J. Appl. Phys. **97**, 9 (2005).
5. K. I. Sasaki, T. Nakamoto, N. Kimura, T. Tomaru, T. Ogitsu, N. Higashi, and T. Ichihara, IEEE Trans. Appl. Supercond. **17**, 1083 (2007).
6. Z. Hartwig, SPARC: The High-field Path to Fusion Energy. Presented at ICMC, Hartford, CT, USA, July 21-25 (2019); https://indi.to/RFCjk.
7. G. Brittles, Stability and quench -dynamic behaviour of Tokamak Energy REBCO QA coils. Presented at WAMHTS-5, Budapest, Hungary, April 11–13 (2019); https://indi.to/cQgZH.
8. J. L. MacManus-Driscoll, S. R. Foltyn, Q. X. Jia, H. Wang, A. Serquis, L. Civale, B. Maiorov, M. E. Hawley, M. P. Maley, and D. E. Peterson, Nat. Mater. **3**, 439 (2004).
9. V. Chepikov, N. Mineev, P. Degtyarenko, S. Lee, V. Petrykin, A. Ovcharov, A. Vasiliev, A. Kaul, V. Amelichev, A. Kamenev, A. Molodyk, and S. Samoilenkov, Supercond. Sci. Technol. **30**, 124001 (2017).
10. P. Degtyarenko, S. Gavrilkin, A. Markelov, A. Ovcharov, A. Molodyk, S. Samoilenkov, and A. Tsvetkov, *Influence of GdBCO stoichiometry on the superconducting properties of industrial 2G HTS wire in magnetic field*, in Abstract Book of MT-26, Vancouver, Canada (2019).
11. П. Н. Дегтяренко, А. В. Садаков, А. В. Овчаров, А. Ю. Дегтяренко, С. Ю. Гаврилкин, О. А. Соболевский, А. Ю. Цветков, Б. И. Массалимов, ЖЭТФ **118**, 590 (2023).

12. A. Molodyk, S. Samoilenkov, A. Markelov et al. (Collaboration), Sci. Rep. **11**, 2084 (2021).
13. K. X. Xu, , X. D. Wu, and H. Fang, J. Phys. Conf. Ser. **234**(1), 012048 (2010).
14. M. J. Keshvani, M. Udeshi, S. Jethva, J. S. Rathod, B. T. Savalia, D. V. Venkateshwarlu Ganesan, P. S. Solanki, and D. G. Kuberkar, AIP Conf. Proc. **1591**(1), 1531 (2014).
15. V. A. Vlasenko, A. V. Sadakov, T. A. Romanova, S. Yu. Gavrilkin, A. V. Dik, O. A. Sobolevskiy, B. I. Massalimov, D. A. Chareev, A. N. Vasiliev, and E. I. AMaltsev, Supercond. Sci. Technol. **34**, 035019 (2021).
16. T. T. M. Palstra, B. Batlogg, R. B. van Dover, L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, Appl. Phys. Lett. **54**, 763 (1989).
17. G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994).
18. V. M. Pan and A. V. Pan, Low Temp. Phys. **27**, 732 (2001).
19. T. T. M. Palstra, B. Batlogg, L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, Phys. Rev. Lett. **61**, 1662 (1988).
20. X. Xing, Z. Li, X. Yi, J. Feng, C. Xu, N. Zhou, Y. Meng, Y. Zhang, Y. Pan, L. Qin, W. Zhou, H. Zhao, and Z. Shi, Sci. China Phys. Mech. Astron. **61**, 127406 (2018).
21. K. van der Beek and P. H. Kes, *Flux pinning*, in *Handbook of Superconductivity*, CRC Press., Boca Raton (2022), p. 110.
22. A. V. Sadakov, V. A. Vlasenko, D. V. Semenok, D. Zhou, I. A. Troyan, A. S. Usoltsev, and V. M. Pudalov, Phys. Rev. B **109**, 224515 (2024).
23. A. V. Sadakov, V. A. Vlasenko, I. A. Troyan, O. A. Sobolevskiy, D. V. Semenok, D. Zhou, V. M. Pudalov, The Journal of Physical Chemistry Letters **14**, 6666 (2023).
24. В. А. Власенко, О. А. Соболевский, А. В. Садаков, К. С. Перваков, С. Ю. Гаврилкин, А. В. Дик, Ю. Ф. Ельцев, Письма в ЖЭТФ **107**, 121 (2018).
25. G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994)
26. X. Shi, I. K. Dimitrov, T. Ozaki, G. Gu, and Q. Li, Phys. Rev. B **96**, 184519 (2017).
27. H. Yamasaki, K. Endo, S. Kosaka, M. Umeda, S. Yoshida, and K. Kajimura, Phys. Rev. B **50**, 12959 (1994).
28. W.-L. Zhao, X. Zhu, Z.-H. He, K.-H. Gao, and Z.-Q. Li, Supercond. Sci. Technol. **33**, 105010 (2020).
29. H. Yang, Y. Jia, L. Shan, Y. Zhang, H.-H. Wen, C. Zhuang, Z. Liu, Q. Li, Y. Cui, and X. Xi, Phys. Rev. B **76**, 134513 (2007).
30. M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **62**, 1415 (1989).
31. H.-S. Lee, M. Bartkowiak, J. S. Kim, and H.-J. Lee, Phys. Rev. B **82**, 104523 (2010).
32. P. Wagner, U. Frey, F. Hillmer, and H. Adrian, Phys. Rev. B **51**, 1206 (1995).
33. R. H. Koch, V. Foglietti, W. J. Gallagher, G. Koren, A. Gupta, and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **63**, 1511 (1989).
34. M. Tinkham, Phys. Rev. Lett. **61**, 1658 (1988).
35. Y. Z. Zhang and H. H. Wen, Phys. Rev. B **74**, 94521 (2006).
36. W. M. Woch, M. Kowalik, M. Giebultowski, R. Zalecki, A. Szeliga, J. Przewoznik, and Cz. Kapusta, J. Supercond. Nov. Magn. **30**, 569 (2017).