МЕТАЛЛЫ, №2 · 2023
с. 39—44 **DOI:** 10.31857/S0869573323020052, **EDN:** favlnl

УДК 661.61:669.85/86

КРИТИЧЕСКИЕ ПЛОТНОСТИ ТОКА В МАГНИТНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКАХ $Dy_{1-x}Er_xRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (x = 0,2; 0,4)[1]

©2023 г. **С.А. Лаченков[1*], В.А. Власенко[2*], В.М. Кириллова[1*], В.А. Дементьев[1*], В.В. Сдобырев[1*]**

[1]ФГБУН Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, Москва*
E-mail:slachenkov@imet.ac.ru
[2]ФГБУН Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва*

Поступила в редакцию 30 ноября 2022 г.
После доработки19 декабря 2022 г. принята к публикации 23 декабря 2022 г.

На основе соединения $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ посредством частичного замещения диспрозия (Dy) эрбием (Er) синтезированы бориды родия составов $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ со структурой типа $LuRu_4B_4$. Для этих соединений исследованы зависимости $\chi^{-1}(T)$, $M(B)$ и $B_{c2}(T)$. Установлено, что соединения $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ являются магнитными сверхпроводниками с критической температурой $T_c \approx 5{,}1$ и 5,8 К соответственно; при $T \approx 3$ К магнитная подсистема этих соединений переходит в антиферромагнитное состояние. На основе измерений магнитного момента от поля ($M(B)$) для образцов соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, с использованием модели Бина получены зависимости от поля критической плотности тока $j_c(B)$ и приведенной силы пиннинга $f_p(h)$. Величина j_c у исследованных образцов не превышала 400 А/см^2 при $T \approx 2$ К. Установлено, что в случае магнитных сверхпроводников с антиферромагнитным упорядочением ($Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$) при $h > 0{,}4$ наблюдается существенное отклонение от закона подобия.

Ключевые слова: сверхпроводимость; магнитные сверхпроводники; магнитные свойства; антиферромагнетизм; ферримагнетизм; критическая плотность тока; модель Бина; сила пиннинга; центры пиннинга; закон подобия.

Проблема взаимовлияния сверхпроводимости и магнетизма в своем развитии прошла сложный путь от первоначального отрицания самой возможности сосуществования этих двух кооперативных явлений в одном и том же веществе [1] до систематического изучения новых химических соединений, сочетающих одновременно магнитные и сверхпроводящие свойства [2]. Эти вещества получили название — магнитные сверхпроводники.

К магнитным сверхпроводникам относятся некоторые сложные бориды родия с общей химической формулой RRh_4B_4, где R — редкоземельный металл. У таких соединений в зависимости от входящего в их состав редкоземельного элемента наряду со сверхпроводящей системой может быть сформирована магнитная подсистема [3, 4]. Оказалось, что кристаллическая структура типа $LuRu_4B_4$ наиболее благоприятна для формирования сложных боридов RRh_4B_4, сочетающих сверхпроводимость и магнетизм в пределах одного фазового состояния. Соединения RRh_4B_4 с такой структурой могут быть получены либо обычной аргонно-дуговой плавкой при частичном замещении родия (Rh) рутением (Ru), либо синтезом при высоком давлении (~8 ГПа) в условиях квазигидростатического сжатия [5].

Магнитная подсистема соединения RRh_4B_4 влияет на его сверхпроводящую систему, приводя к ряду аномалий: нарушению параболического хода кривой верхнего критического магнитного поля ($B_{c2}(T)$); парамагнитному эффекту Мейснера; отклонению величины энергетической щели $\Delta(0)$ от значений, предсказываемых теорией БКШ (Бардин, Купер, Шриффер), и др. [6].

[1]Работа выполнена по государственному заданию № 007-00715-22-00 и № 0023-2019-0005. Измерения проведены с использованием оборудования Центра коллективного пользования ФИАН.

Известно, что критическая плотность тока сверхпроводников j_c — одна из важнейших характеристик сверхпроводимости, которая является структурно-чувствительной величиной [7, 8]. Для достижения высоких значений j_c в сверхпроводнике должна быть сформирована система центров пиннинга, т.е. областей, за которые могут закрепляться вихри Абрикосова. В качестве центров пиннинга могут выступать дефекты, межзеренные границы, неоднородности.

До недавнего времени проблема критической плотности токов магнитных сверхпроводников была слабо разработана. Однако этот вопрос стал особенно актуальным с появлением сведений о том, что магнитная подсистема может влиять на критическую плотность тока магнитных сверхпроводников и даже формировать дополнительные центры пиннинга [9].

В работе [10] на примере сложного борида $HoRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, сверхпроводимость которого существует на фоне ферримагнетизма, при исследовании приведенной силы пиннинга j_p установлено существенное ее отклонение от закона подобия при $h > 0{,}2$, где h — величина приведенного магнитного поля.

Настоящая работа — продолжение исследования критической плотности токов j_c в сложных боридах родия. В качестве объектов исследования выбраны магнитные сверхпроводники системы Dy-Er-Rh-Ru-B, сверхпроводящее состояние которых сосуществует с антиферромагнетизмом магнитной подсистемы.

Материалы и методика эксперимента. Сложные бориды родия синтезировали из смеси порошков эрбия, диспрозия, родия, рутения и бора с чистотой не хуже 99,93%. Размер частиц порошка не превышал 40 мкм. Необходимые порошки, взятые в требуемых количествах, тщательно перемешивались в агатовой ступке с добавлением ацетона и затем из них прессовали цилиндры. Синтез проводился прямым сплавлением исходных компонентов в контролируемой аргоновой среде под давлением. Рентгенографические исследования образцов выполнены на дифрактометре ДРОН 3М при отфильтрованном CuK_α-излучении. Температурные зависимости намагниченности и магнитного момента образцов были измерены на универсальном приборе PPMS-9 фирмы Quantum Design.

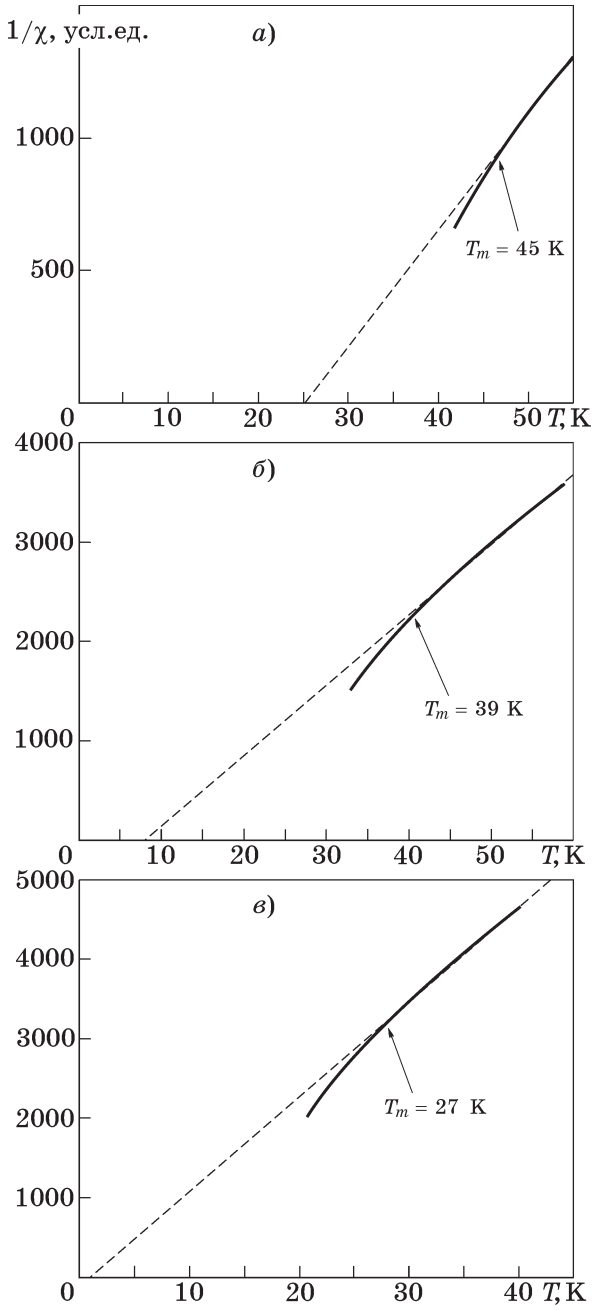
Оценка критической плотности тока сверхпроводящих соединений выполнена в приближении модели Бина [11, 12] на основе данных, полученных при измерении магнитного момента $M(B)$ на цилиндрических образцах диаметром 3 и длиной 4 мм. Для цилиндрических образцов значение плотности критического тока можно получить из соотношения $j_c(B) = 30\Delta M/D$, где D — диаметр цилиндра; ΔM — ширина петли гистерезиса.

Результаты эксперимента и их обсуждение. Ранее в работе [5] было синтезировано и исследовано соединение $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, в котором при температуре $T \approx 45$ K установлен переход в ферримагнитное состояние; при $T \approx 4{,}5$ K произошел переход в сверхпроводящее состояние с сохранением ферримагнитного, а при $T \approx 2{,}8$ K магнитная подсистема перешла из ферримагнитного в антиферромагнитное состояние с сохранением сверхпроводимости.

При исследовании температурной зависимости верхнего критического поля ($B_{c2}(T)$) соединения $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ выявлен перегиб кривой при $T \approx 3$ K, связанный с антиферромагнитным упорядочением.

В настоящей работе на базе соединения $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ синтезировали твердые растворы замещения составов $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ ($T_c \approx 5{,}1$ K) и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ ($T_c \approx 5{,}8$ K) со структурой типа $LuRu_4B_4$ по методике, изложенной выше. Можно предположить, что при замещении диспрозия (Dy) эрбием (Er) в соединении $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ магнитная подсистема сохраняется, но несколько трансформируется. Это предположение подтверждено исследованиями температурных зависимостей обратной магнитной восприимчивости $\chi^{-1}(T)$, представленных на фиг. 1, согласно которым для соединений $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ начало ферримагнитного упорядочения магнитной подсистемы смещается в сторону более низких температур по мере увеличения содержания эрбия в твердом растворе.

На фиг. 2 приведены графики зависимости $B_{c2}(T)$, построенные для соединений $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$. Из данных работы [5] известно, что отклонение кривой $B_{c2}(T)$ от параболического хода и ее перегиб при температуре ~3 K связаны с антиферромагнитным упорядочением в соединении $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$. Подобный ход кривых $B_{c2}(T)$ наблюдался и

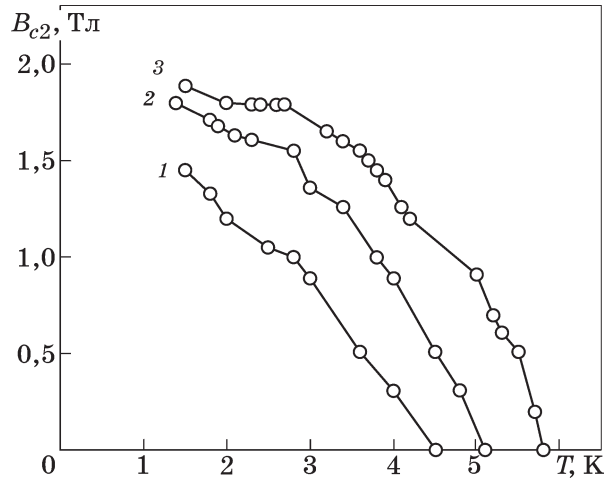


Фиг. 1. Зависимость обратной магнитной восприимчивости (1/χ) от температуры для боридов родия: *а* — $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$; *б* — $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$; *в* — $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$; T_m — температура магнитного перехода

для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$.

Из анализа кривых, представленных на фиг. 1 и 2, следует, что магнитная подсистема соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ аналогична магнитной подсистеме борида $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, но несколько трансформирована.

При анализе магнитных свойств соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и



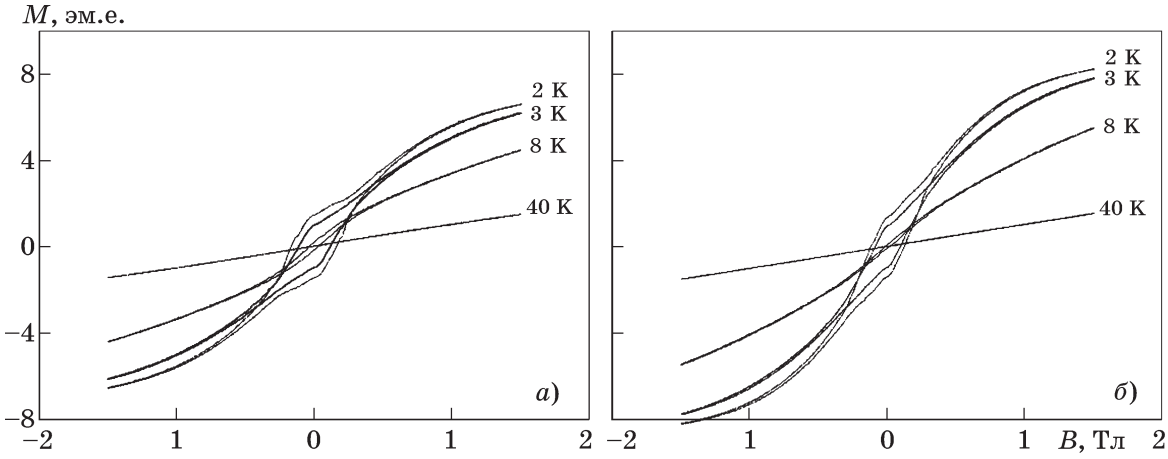
Фиг. 2. Зависимость верхнего критического поля от температуры ($B_{c2}(T)$) для магнитных сверхпроводников: *1* — $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$; *2* — $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$; *3* — $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$

$Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B$ можно воспользоваться известной моделью [13], согласно которой магнитные ионы соединения будучи локализованы в узлах решетки могут взаимодействовать между собой, приводя к упорядоченному состоянию. В случае боридов родия RRh_4B_4 со структурой типа $LuRu_4B_4$ характер взаимодействия ионов существенно зависит от конкретного редкоземельного металла R и может приводить как к ферримагнитному, так и антиферромагнитному упорядочению магнитной подсистемы.

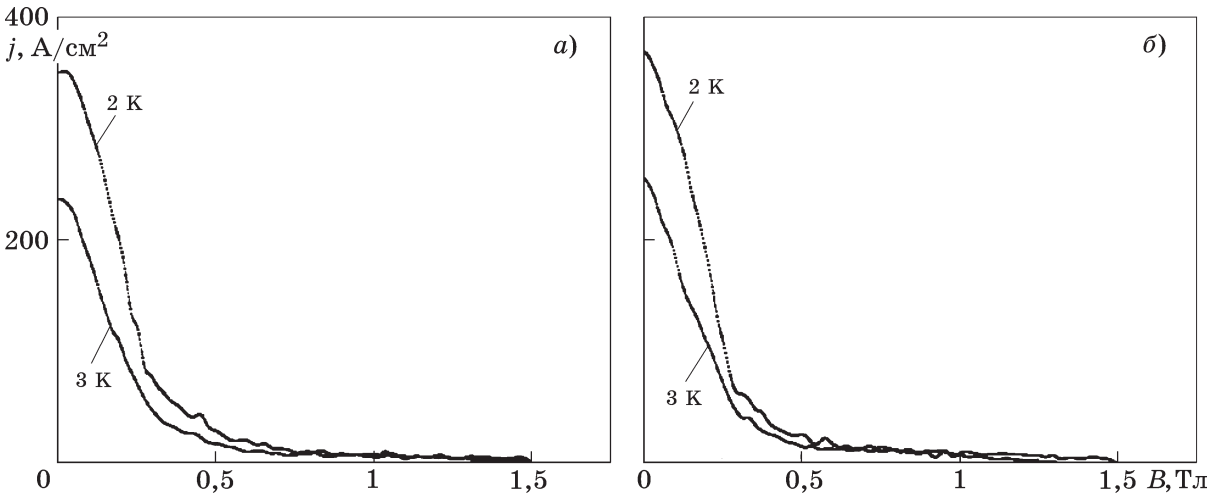
Для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ исследованы зависимости магнитного момента от поля ($M(B)$) при температурах 2; 3; 8 и 40 K. Результаты представлены на фиг. 3, а, б.

Из приведенных на фиг. 3, *а*, *б* графиков следует, что при $T \approx 40$ K образцы соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ находятся в парамагнитном состоянии, тогда как при $T \approx 8$ K заметен гистерезис, связанный с ферримагнитным упорядочением. При температурах 3 и 2 K формирование петель гистерезиса происходит под влиянием как сверхпроводящей системы, так и магнитной подсистемы, но вклад последней мал. Поэтому при расчете критической плотности тока можно исходить из установленных петель гистерезиса и воспользоваться моделью Бина [11, 12].

Зависимости значений критической плотности токов от магнитного поля для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ приведены на фиг. 4, *а*, *б*. Видно, что значе-



Фиг. 3. Зависимости магнитного момента от поля ($M(B)$) для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*а*) и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*б*)



Фиг. 4. Плотность критического тока для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*а*) и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*б*) при температурах T = 2 и 3 K

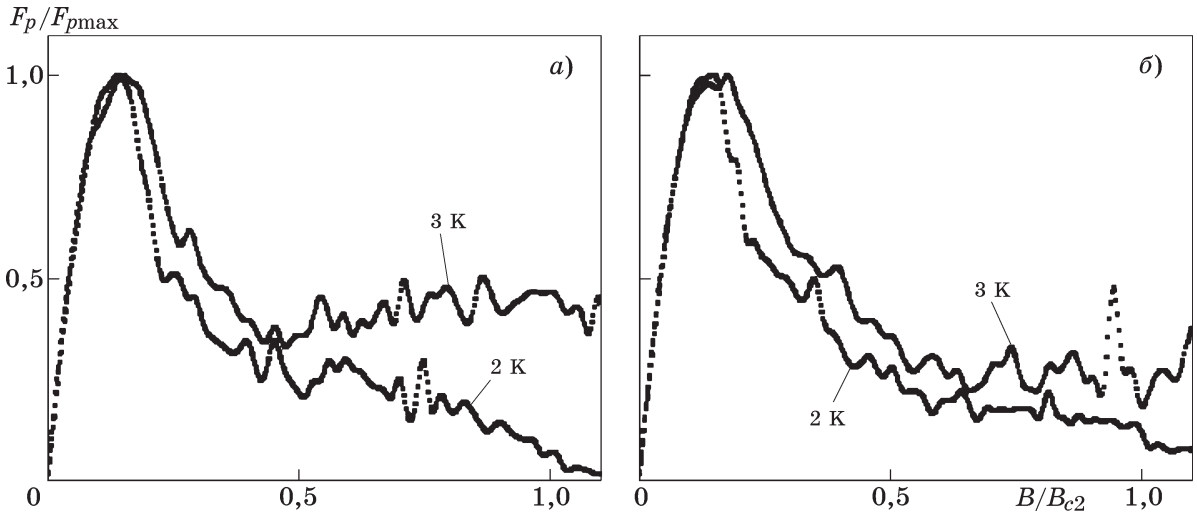
ния j_c соединений невысоки: до 400 А/см^2 при $T \approx 2$ K. Согласно теории [8] предельная величина критической плотности токов сверхпроводников существенно связана с их критической температурой T_c, поскольку $j_c \sim \Delta$ (Δ — величина энергетической щели), а $\Delta \sim T_c$. Как отмечалось выше, у соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ значения T_c небольшие (менее 6 K). В то же время для достижения предельных величин критической плотности токов сверхпроводников 2-го рода должна быть сформирована система центров пиннинга, которая будет закреплять вихри Абрикосова. Способность таких центров фиксировать вихревые нити зависит от силы пиннинга, которая является структурно-чувствительным параметром. Согласно теории [7, 8] величина силы пиннинга может быть рассчитана из соотношения:

$$F_p = j_c B,$$

где j_c — плотность критического тока; B — величина приложенного внешнего магнитного поля.

Известно, что в качестве центров пиннинга могут быть межзеренные границы, дислокации, точечные дефекты, а также мелкодисперсные примесные фазы [7, 8]. В случае магнитных сверхпроводников в качестве таких центров могут выступать «магнитные области» [9]. Магнитные центры пиннинга могут формироваться как вблизи нескомпенсированных отдельных магнитных ионов, так и на базе их скоплений. В нашем случае магнитными дефектами (дополнительными центрами пиннинга) могут служить упомянутые магнитные ионы соединения, локализованные в узлах решетки.

На основе данных по $j_c(B)$, представленных на фиг. 4, рассчитана приведенная сила пиннинга ($f_p = F_p/F_{p\max}$) и построены зависимости $f_p(h)$, где $h = B/B_{c2}$ — величина приве-



Фиг. 5. Зависимости приведенной силы пиннинга от приведенного магнитного поля при температурах T = 2 и 3 K для сверхпроводников $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*а*), $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ (*б*)

денного поля. На фиг. 5 показаны зависимости приведенной силы пиннинга от величины приведенного поля для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$.

Согласно теории [14, 15] для приведенной силы пиннинга выполняется закон «подобия», т.е. все зависимости f_p нормируются в единую кривую и могут быть рассчитаны по формуле:

$$f_p \sim (h)^p(1-h)^q.$$

Значения параметров p и q зависят от характера центров пиннинга: точечные, двухмерные или объемные. Отметим, что теоретически описаны шесть основных функций $f(h)$, каждая из которых соответствует определенному механизму пиннинга [16].

Из приведенного на фиг. 5 следует, что в случае соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ закон подобия выполняется, по крайней мере, до $h = 0{,}4$, причем более точно для образца соединения $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$. Если сравнить эти данные с ранее опубликованными в [10] для соединения $HoRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, то можно отметить, что в случае борида с гольмием закон подобия справедлив только при $h < 0{,}2$.

Из изложенного следует, что закон подобия, который, как правило, выполняется для обычных сверхпроводников, в случае магнитных сверхпроводников нарушается, что связано с дополнительным вкладом в пиннинг магнитных дефектов. Важно, что отклонение от закона подобия в большей степени проявляется в случае соединения $HoRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$, у которого магнитная подсистема находится в ферримагнитном состоянии, тогда как для боридов $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ характерна антиферромагнитно упорядоченная магнитная подсистема.

Выводы. 1. На основе соединения $DyRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ посредством частичного замещения диспрозия эрбием синтезированы два новых магнитных сверхпроводника: $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ ($T_c \approx 5{,}1$ K) и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ ($T_c \approx 5{,}8$ K) с антиферромагнитным упорядочением при $T \approx 3$ K.

2. Исходя из модели Бина, по кривым зависимости магнитного момента от поля ($M(B)$) для соединений $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ рассчитаны зависимости критической плотности тока j_c(B), а также приведенной силы пиннинга $f_p = F_p/F_{p\max}$ от величины приведенного поля $h = B/B_{c2}$. Для исследованных материалов величина критической плотности тока j_c не превышала 400 А/см^2 (при $T \approx 2$ K).

3. Установлено, что отклонение от закона подобия в случае сверхпроводящих боридов $Dy_{0,8}Er_{0,2}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ и $Dy_{0,6}Er_{0,4}Rh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ наиболее заметно проявляется при $h > 0{,}4$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Гинзбург, В.Л.* О ферромагнитных сверхпроводниках / В.Л. Гинзбург // ЖЭТФ. 1956. Т.31. В.2. С.202—210.
2. *Буздин, А.И.* Магнитные сверхпроводники / А.И. Буздин, Л.Н. Булаевский, М.Л. Кулич, С.В. Панюков // УФН. 1984. Т.144. В.4. С.597—641.
3. *Chevrel, R.* Sur de nouvelles phases sulfurées ternaires du molybdène / R. Chevrel, M. Sergent, J. Prigent // Solid State Chem. 1971. V.3. №4. P.515—519.

4. *Matthias, B.T.* High-temperature superconductors, the first ternary system / B.T. Matthias, M. Marezio, E. Corenzwit, A.S. Cooper, H.E. Barz // Science. 1972. V.175. №4029. P.1465, 1466.
5. *Бурханов, Г.С.* Влияние магнитной подсистемы на усиление сверхпроводимости в тройных боридах родия / Г.С. Бурханов, С.А. Лаченков, Е.П. Хлыбов // ДАН. 2011. Т.438. №5. С.619—622. — (*Burkhanov G.S., Lachenkov S.A., Khlybov E.P.* Effect of the magnetic subsystem on the rise of superconductivity in ternary rhodium borides // Doklady Physics. 2011. V.56. №6. P.334—337. DOI : 10.1134/S1028335811060061.)
6. *Бурханов, Г.С.* Особенности фазовых переходов магнитного сверхпроводника $Dy_{0,8}Y_{0,2}Rh_4B_4$ / Г.С. Бурханов, С.А. Лаченков, Е.П. Хлыбов // Металлы. 2010. №3. С.79—83. — (*Burkhanov G.S., Lachenkov S.A., Khlybov E.P.* Phase transitions in the magnetic superconductor $(Dy_{0,8}Y_{0,2})Rh_4B_4$ // Russian Metallurgy (Metally). 2010. №5. P.437—441. DOI : 10.1134/S0036029510050149).
7. *Буккель, В.* Сверхпроводимость / В. Буккель. — М. : Мир. 1975. С.366. — (*Buckel W.* Supraleitung Grundlagen and Anwendungen, Weinheim : Physic. 1972. 305 p.)
8. *Шмидт, В.В.* Введение в физику сверхпроводников / В.В. Шмидт. — М. : МЦНМО, 2000. 402 с.
9. *Jung, S.-G.* Enhanced critical current density in the pressure-induced magnetic state of the high-temperature superconductor FeSe / S.-G. Jung, J.-H. Kang, E. Park [et al.] // Sci. Rep. 2015. V.5. Art.16385.
10. *Бурханов, Г.С.* Особенности магнитных свойств и критических токов сверхпроводящих боридов родия YRh_4B_4 и $HoRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ / Г.С. Бурханов, С.А. Лаченков, В.А. Власенко, Е.П. Хлыбов, С.Ю. Гаврилкин // Неорган. материалы. 2021. Т.57. №7. С.720—726. DOI : 10.31857/S0002337X21070022. — (*Burkhanov G.S., Lachenkov S.A., Vlasenko V.A., Khlybov E.P., Gavrilkin S.Yu.* Magnetic properties and critical currents of the superconducting rhodium borides YRh_4B_4 and $HoRh_{3,8}Ru_{0,2}B_4$ // Inorg. Mater. 2021. V.57. №7. P.687—692. DOI : 10.1134/S0020168521070025.)
11. *Bean, C.P.* Magnetization of hard superconductors / C.P. Bean // Phys. Rev. Lett. 1962. V.8. P.250—253.
12. *Bean, C.P.* Magnetization of high-field superconductors / C.P. Bean // Rev. Mod. Phys. 1964. V.36. P.31—39.
13. *Ашкрофт, Н.* Физика твердого тела : в 2 т. Т.2. / Н. Ашкрофт, Н. Мермин. — М. : Мир, 1979. 422 с. — (*Ashcroft N., Mermin N.* Solid State Physics. New York : Holt Rinehart and Winston. 1976. 826 p.)
14. *Edward, J.K.* Scaling laws for flux pinning in hard superconductors / J.K. Edward // J. Appl. Phys. 1973. V.44. P.1360—1370.
15. *Dew-Hughes, D.* Flux pinning mechanisms in type II superconductors / D. Dew-Hughes // Philos. Mag. 1974. V.30. P.293—305.
16. *Michael, R.* Pinning force-scaling analysis of Fe-based high-T_c superconductors / R. Michael, M.R. Koblischka, M. Muralidhar // Intern. J. Modern Phys. B. 2016. V.30. №32. Art.1630017.