

Магнитные фазовые превращения и сверхпроводимость в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$

В.М. Дмитриев^{1, 2}, А. Залеский³, Е.П. Хлыбов⁴, Л.Ф. Рыбальченко¹,
Е.В. Христенко¹, Л.А. Ищенко¹, А.В. Терехов¹, И.Е. Костылева⁴,
С.А. Лаченков⁵

¹ Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: dmitriev@ilt.kharkov.ua

² Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур
ул. Гайовицкая, 95, г. Вроцлав, 53-421, Польша

³ W. Trzebiatowski Institute for Low Temperature and Structure Research, Polish Academy of Sciences
P.O. Box 1410, 50-950, Wroclaw, Poland

⁴ Институт физики высоких давлений им. Л.Ф. Верещагина РАН, Калужское шоссе, стр. 14, г. Троицк, 142190, Россия

⁵ Институт металлургии и металловедения им. А.А. Байкова РАН, Ленинский пр., 49, г. Москва, 119991, Россия

Статья поступила в редакцию 7 июля 2008 г., после переработки 10 июля 2008 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований магнитных и сверхпроводящих свойств соединения $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ с тетрагональной объемноцентрированной кристаллической структурой перовскитного типа LuRu_4B_4 . Показано, что при температуре Кюри $T_C \approx 30,5$ К соединение претерпевает фазовый переход парамагнетик–ферромагнетик и имеет температуру магнитной компенсации $T_{\text{comp}} \approx 17$ К. По резистивным измерениям, при температуре $T_C^{\text{onset}} \approx 5,9$ К соединение становится ферромагнитным сверхпроводником, который при температуре $T_N \approx 2,7$ К испытывает фазовый переход ферромагнетик–антиферромагнетик, оставаясь сверхпроводником. При этой температуре теплоемкость демонстрирует острый максимум. С помощью метода микроконтактной спектроскопии андреевского отражения измерены температурные и полевые зависимости параметра порядка $\Delta(T, H)$ и температурная зависимость верхнего критического поля $H_{c2}(T)$. Полученные зависимости радикально отличаются от общепринятых для традиционных сверхпроводников. Совокупность полученных результатов обсуждается в связи с возможностью триплетного спаривания в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$.

Представлено результати експериментальних досліджень магнітних і надпровідних властивостей сполуки $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ з тетрагональною об'ємноцентрованою кристалічною структурою перовскітного типу LuRu_4B_4 . Показано, що при температурі Кюрі $T_C \approx 30,5$ К сполука перетерплює фазовий перехід парамагнетик–феримагнетик і має температуру магнітної компенсації $T_{\text{comp}} \approx 17$ К. Згідно з резистивними вимірами, при температурі $T_C^{\text{onset}} \approx 5,9$ К сполука стає феримагнітним надпровідником, що при температурі $T_N \approx 2,7$ К випробовує фазовий перехід феримагнетик–антиферромагнетик, залишаючись надпровідником. При цій температурі теплоємність демонструє гострий максимум. За допомогою методу мікроконтактної спектроскопії андріївського відбиття виміряно температурні та польові залежності параметра порядку $\Delta(T, H)$ і температурна залежність верхнього критичного магнітного поля $H_{c2}(T)$. Отримані залежності радикально відрізняються від загальноприйнятих для традиційних надпровідників. Сукупність отриманих результатів обговорюється у зв'язку з можливістю триплетного спарювання в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$.

PACS: 74.70.Ad Металлы, сплавы и бинарные соединения (включая A15, MgB_2 и т.д.).

Ключевые слова: магнетизм, сверхпроводимость, андреевское отражение, триплетное спаривание.

Введение

Начиная с 60-х годов прошлого столетия, когда в 1957 году была построена теория, как теперь говорят, традиционной сверхпроводимости БКШ [1], не ослабевает интерес к проблеме нетрадиционной сверхпроводимости. Нетрадиционность последней связана с возможным участием внутреннего магнетизма некоторых соединений в формировании сверхпроводящего состояния, что, в принципе, противоречит теории БКШ. О том, что сосуществование магнитного и сверхпроводящего упорядочения в одних и тех же микроскопических областях образцов в достаточно широкой области температур является энергетически невыгодным, указывалось и в более поздней работе [2].

Тем не менее уже в 1958 году были опубликованы две первые, по нашему мнению, важные в этом отношении работы [3,4]. В этих работах впервые на примере однопроцентных твердых растворов редких земель в лантане показано, что именно спины, а не эффективный магнитный момент, влияют на критическую температуру растворов. Также было показано, что в образцах твердого раствора $(\text{Ce-Gd})\text{Ru}_2$ температуры сверхпроводящего T_C и магнитного T_C упорядочения становятся равными примерно при 6% гадолиния ($T_C \approx T_C \approx 3,5$ К). При уменьшении содержания Gd T_C возрастает примерно до 5 К, а T_C снижается до нуля. При увеличении содержания Gd до 8% T_C снижается до 3 К, а T_C возрастает до примерно 5,5 К. В этом случае при снижении температуры сначала происходит магнитное упорядочение, а потом на его фоне — сверхпроводящее.

С открытием тройных редкоземельных соединений серий REMo_6X_8 и RERh_4B_4 (RE — редкоземельный элемент, X — халькогенид) значительно расширился круг объектов, в которых оба типа упорядочения в той или иной мере экспериментально сосуществуют. Во многих антиферромагнитных (АФМ) представителях этих соединений сверхпроводимость вполне уживается с АФМ порядком, что неудивительно, поскольку в этом случае магнитные моменты оказываются в достаточной мере скомпенсированными на расстояниях, сопоставимых со сверхпроводящей длиной когерентности.

Что же касается так называемых ферромагнитных (ФМ) сверхпроводников, то уже давно предполагалось, что дальний магнитный порядок может не только сосуществовать со сверхпроводимостью, но и способствовать ее возникновению, если последняя будет иметь триплетный характер, т.е. когда электроны с одинаковым направлением спинов могут образовывать куперовские пары [5]. Поиск таких сверхпроводников велся непрерывно в течение нескольких десятилетий и наконец привел к успеху. Многочисленные эксперименты, проведенные на таких соединениях,

как UGe_2 , URhGe_2 , ZrZn_2 и Sr_2RuO_4 , показали с высокой степенью надежности, что эти вещества следует отнести к классу истинных ФМ сверхпроводников, в которых сверхпроводимость появляется только в ФМ фазе [6–9].

Согласно нашим исследованиям [10–12], пополнить класс таких сверхпроводников могут представители системы $\text{Dy}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_4\text{B}_4$ с тетрагональной объемно центрированной кристаллической структурой перовскитного типа LuRu_4B_4 , описание которой можно найти в работе [13]. Предварительные эксперименты показывают, что система $\text{Dy}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_4\text{B}_4$ является ферримагнетиком при температуре $T_C < 40$ К, ферримагнитным сверхпроводником при $T_C < 10$ К и антиферромагнитным сверхпроводником при $T_N < 3$ К. Никаких возвратных явлений не было обнаружено вплоть до $T = 0,32$ К. Температура ферримагнитного упорядочения T_C зависит от x и с его увеличением уменьшается от ≈ 37 К при $x = 0$ до ≈ 7 К при $x = 0,8$. Соединение YRh_4B_4 является парамагнетиком. Критическая температура сверхпроводящего перехода T_c почти линейно возрастает от ≈ 5 К для $x = 0$ до ≈ 10 К для $x = 1$. Для образцов DyRh_4B_4 и $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ измерения теплоемкости показывают, что при температуре около 3 К, находясь в сверхпроводящем состоянии, они испытывают фазовый переход ферримагнетик–антиферромагнетик, который существенным образом влияет на температурную зависимость верхнего критического магнитного поля H_{c2} , нарушая ее монотонный ход.

В настоящей работе исследовано соединение $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ с температурой Кюри $T_C \approx 30$ К, критической температурой сверхпроводящего перехода $T_c \approx 6$ К по началу сверхпроводящего перехода и температурой антиферромагнитного упорядочения около 3 К.

Образцы и техника измерений

Рентгеновский, электронно-дифракционный и оптический анализы показали, что исследуемые поликристаллические образцы являются однофазными конгломератами тесно связанных между собой (без промежуточных включений) хорошо ограненных кристаллитов со структурой LuRu_4B_4 . Размеры кристаллитов варьировались в пределах 3–10 мкм. Поскольку эти размеры намного превышают типичный размер микроконтакта (МК), который не больше, чем несколько сотен ангстрем, вполне разумно ожидать, что микроконтактные спектры всегда формируются монокристаллической областью.

Магнитные измерения проводились на магнитометрической системе Quantum Design SQUID. Резистивные измерения выполнялись в автоматическом режиме с использованием стандартной четырехзондовой схемы. Теплоемкость измерялась коммерческим

прибором системы Quantum Design PPMS, а также с помощью терморелаксационной техники на изготовленном нами калориметре. В микроконтактных измерениях использовались контакты между заостренной перед погружением в гелиевый криостат химическим травлением серебряной иглой $\varnothing 0,15$ мм и S -электродом (сверхпроводник $Du_{0,8}Y_{0,2}Rh_4B_4$). Для регистрации МК спектров ($dV/dI(V)$ -характеристик) при различных температурах и значениях магнитных полей использовалась стандартная модуляционная техника, работающая на частоте 437 Гц. Система управления электродами вне криостата позволяла многократно создавать контакты на поверхности сверхпроводника в течение одного цикла охлаждения криостата. В качестве S -электрода использовались небольшие, 2–3 мм, кусочки $Du_{0,8}Y_{0,2}Rh_4B_4$, отломанные от массивного кристаллита, полученного при сплавлении исходных элементов. Непосредственно перед помещением в криостат сканируемая поверхность S -электрода подвергалась механической очистке с целью предотвращения возможных загрязнений. Необходимо отметить, что приемлемая электрическая стабильность контактов могла быть достигнута только на контактах с сопротивлением меньшим 10 Ом. Процедура определения параметра порядка Δ основывалась на теории Блондера–Тинкхама–Клапвейка (БТК) [14–16], которая адекватно описывает процессы андреевского отражения в N – S МК.

Значения верхнего критического магнитного поля $H_{c2}(T)$ измерялись различными методами: магнитным, резистивным в магнитном поле и МК методом измерения $dV/dI(V)$ -характеристик в магнитных полях при различных температурах. Магнитное поле создавалось с помощью сверхпроводящего соленоида, питаемого от источника постоянного тока в непрерывном режиме.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлена идеализированная тетрагональная объемноцентрированная кристаллическая структура перовскитного типа $LuRu_4B_4$ [13]. Тетраэдры Ru_4B_4 имеют две различные ориентации и изображены для наглядности в увеличенном виде. В системе $Du_{1-x}Y_xRh_4B_4$ атомы Du и Y занимают позиции Lu . Характерными геометрическими параметрами решетки при этом являются: $a = 7,454 \text{ \AA}$, $c = 14,994 \text{ \AA}$ для YRh_4B_4 и $a = 7,453 \text{ \AA}$, $c = 14,983 \text{ \AA}$ для $DuRh_4B_4$. Цифры могут незначительно меняться в зависимости от технологии приготовления образцов. В отличие от известных литературных данных [13], нам удалось изготовить образцы системы $Du_{1-x}Y_xRh_4B_4$ с более высокими критическими температурами сверхпроводящего перехода T_c , о чем свидетельствуют приведен-

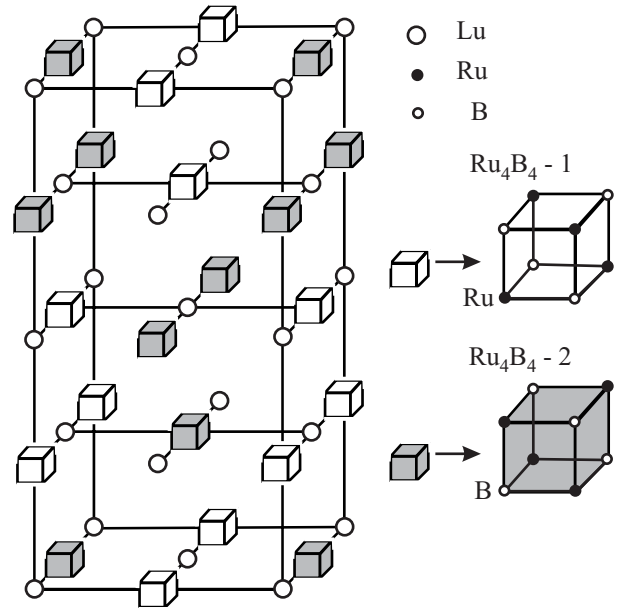


Рис. 1. Идеализированная тетрагональная объемноцентрированная кристаллическая структура перовскитного типа $LuRu_4B_4$ [13].

ные выше значения T_c . К настоящему времени кристаллография и кристаллохимия рассматриваемой решетки и их связь с физическими свойствами соединений $Du_{1-x}Y_xRh_4B_4$ изучены недостаточно. К тому же, в твердых растворах Du – Y образуются геликоидальные и спиральные магнитные структуры [17], что также усложняет понимание происходящих фазовых превращений. Возможно, по этой причине эти соединения ранее ошибочно относили к классу ферромагнетиков [13]. В работах [11,12] мы уже указывали на это обстоятельство, и в настоящей работе продемонстрируем характерные признаки ферромагнитного поведения конкретного соединения $Du_{0,8}Y_{0,2}Rh_4B_4$.

Прежде всего, на рис. 1 видно, что атомы Lu в плоскостях окружены неэквивалентными тетраэдрами Ru_4B_4 , так как расстояния между атомами Ru в тетраэдрах, ориентированных различным образом, заметно отличаются: 2,98 и 3,10 \AA . Как известно [17], это уже является предпосылкой к образованию нескольких (как минимум, двух) магнитных подрешеток магнитоактивного атома с противоположным направлением магнитных моментов. В нашем случае на позициях Lu находится магнитоактивный Du , а позиции Ru занимает Rh . Ферромагнетики, у которых условия возникновения ферромагнетизма обусловлены самой кристаллической структурой, принято называть веществами с собственным ферромагнетизмом. Если Du разбавляется иттрием, то последний, в зависимости от позиции, на которой он оказывается, может как умень-

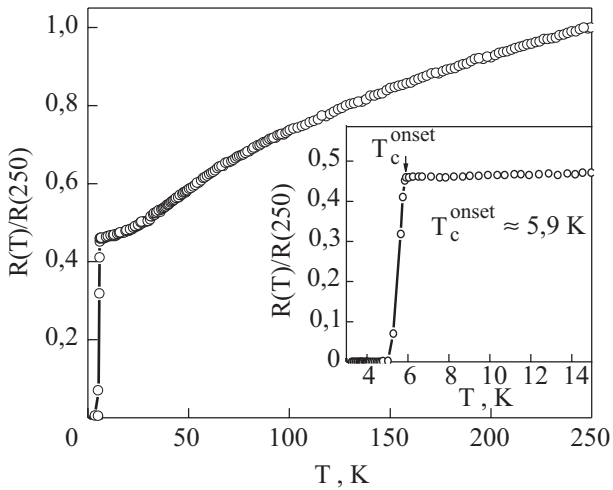


Рис. 2. Температурная зависимость электросопротивления $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ в двух масштабах.

шить, так и увеличить общую намагниченность системы [17], что и было показано нами в [11,12].

На рис. 2 представлена температурная зависимость электросопротивления одного из образцов $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$. Температура начала сверхпроводящего перехода $T_c^{\text{onset}} \approx 5,9$ К.

На рис. 3 приведена температурная зависимость намагниченности $M(T)$ $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, измеренная в режимах ZFC (охлаждение в нулевом поле и отогрев в поле 20 Э) и FC (охлаждение в поле 20 Э). В этих измерениях температура $T_c^{\text{onset}} \approx 5,5$ К, что не намного отличается от данных резистивных измерений. Как известно, в режиме измерений ZFC проявляется свойство сверхпроводника, следствием которого является возникновение диамагнитного экранирования. Как результат, внешнее магнитное поле не проникает в объем сверхпроводника. В режиме измерений FC прояв-

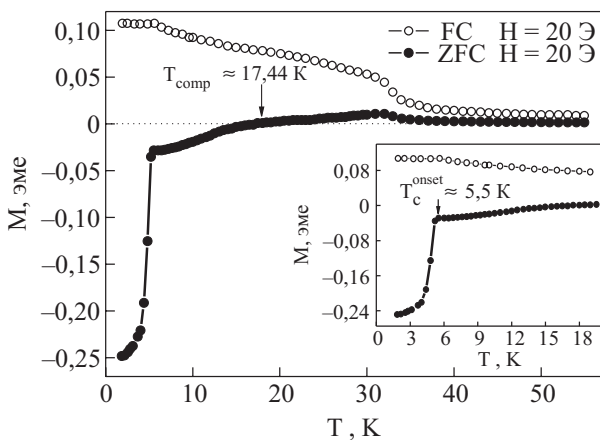


Рис. 3. Температурная зависимость намагниченности $M(T)$ $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ в двух масштабах, измеренная в поле 20 Э в режиме ZFC (●) и в режиме FC (○).

ляется другое важное свойство, которое обуславливает выталкивание из объема сверхпроводника внешнего магнитного поля, в котором он охлаждается (эффект Мейсснера). Видно, что при наличии диамагнитного экранирования в поле 20 Э традиционный эффект Мейсснера не наблюдается. При понижении температуры ниже критической намагниченность $M(T)$ практически перестает зависеть от температуры. Такое поведение $M(T)$ типично для так называемого парамагнитного эффекта Мейсснера (ПМЕ) [18–20]. (Предварительные исследования в малых полях указывают на то, что мы действительно наблюдаем ПМЕ.) При этом важно отметить, что в отличие от многочисленных наблюдений этого необычного эффекта в различных сверхпроводниках [20] мы впервые наблюдаем его в магнитном сверхпроводнике, находящемся в ферромагнитном состоянии. Это может оказаться важным аргументом при обсуждении проблем нетрадиционного спаривания и при этом нетрадиционного поведения параметра порядка, как это отмечалось, например, в [20]. Нам представляется, что детальные измерения $M(T,H)$ в области сверхпроводящего перехода в режиме FC в различных магнитных полях заслуживают специального внимания в дальнейшем.

Для области температур выше критической в представленных на рис. 3 зависимостях главное заключается в их существенном отличии от стандартной зависимости $M(T)$ Кюри–Вейсса для ферромагнетика [21]. Остановимся подробнее на режиме ZFC. Измеренная нами зависимость $M(T)$ имеет все признаки зависимости N -типа Нееля для ферромагнетика, включая точку магнитной компенсации [22] при $T_{\text{comp}} \approx 17$ К. При этой температуре величины противоположно направленных («вверх» и «вниз») магнитных моментов подрешеток оказываются равными в силу их различной температурной зависимости. Ниже этой температуры значение $M(T)$ становится отрицательным, что, однако, не означает появление диамагнитного отклика. Это лишь отражает тот факт, что амплитуда магнитных моментов, направленных «вниз» (слабая подрешетка по терминологии [23]), становится больше, чем амплитуда магнитных моментов, направленных «вверх» (сильная подрешетка). И только при дальнейшем снижении температуры до $T \approx 5,5$ К появляется реальный диамагнитный отклик, обусловленный возникновением сверхпроводимости. Таким образом, сверхпроводимость возникает на фоне нескомпенсированного ферромагнитного момента, связанного с преобладающей ролью слабой подрешетки. То, что мы имеем дело с двухподрешеточным (как минимум) ферромагнетиком, следует также из температурной зависимости обратной магнитной восприимчивости $\chi^{-1}(T)$, показанной на рис. 4. Совершенно очевидно,

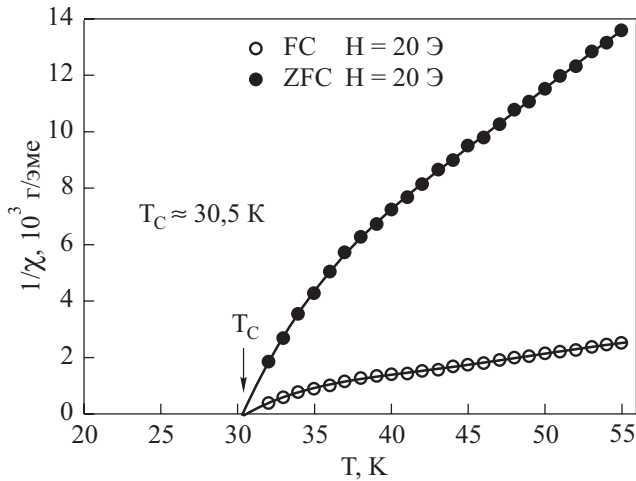


Рис. 4. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости $\chi^{-1}(T)$ $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, измеренная в двух режимах: ZFC (●) и FC (○).

что эти зависимости имеют типичный для ферримагнетиков гиперболический характер [21], дают одну и ту же температуру T_C и описываются зависимостью

$$\chi^{-1} = \frac{T}{C} + \chi_0^{-1} - \frac{\sigma}{(T - T_C)}, \quad (1)$$

где χ_0^{-1} , σ — сложные функции параметров обменных взаимодействий, C — постоянная величина. Зависимость (1) при возрастании температуры асимптотически приближается к линейной зависимости Кюри–Вейсса. Последнее слагаемое в (1), определяющее гиперболическую зависимость вблизи фазового перехода, по мнению авторов [23], отражает подрешеточное взаимодействие. Это взаимодействие выражается в однонаправленном влиянии сильной подрешетки на слабую, вызывая однонаправленную анизотропию обменного взаимодействия, которая убывает по мере роста температуры. Как видно на рис. 4, температура фазового перехода парамагнетик–ферримагнетик $T_C \approx 30,5$ К и достаточно хорошо совпадает с температурой максимума на зависимости $M(T)$ на рис. 3.

На рис. 5 в двух масштабах представлены температурные зависимости реальной χ' (а) и мнимой χ'' (б) частей восприимчивости, измеренных на частоте 1 кГц в поле 10 Э. Видно, что значение температуры Кюри T_C , определяемое по пику зависимости $\chi'(T)$ на вставке рис. 5,а и небольшому максимуму на зависимости $\chi''(T)$ на вставке рис. 5,б, находится в хорошем соответствии со значением T_C , определенным из рис. 4. Температуры сверхпроводящего перехода, определяемые из рис. 5,а и б, также хорошо согласуются с данными, полученными другими методами.

Параметры и свойства сверхпроводящего состояния изучались нами с помощью метода микроконтактной спектроскопии андреевского отражения.

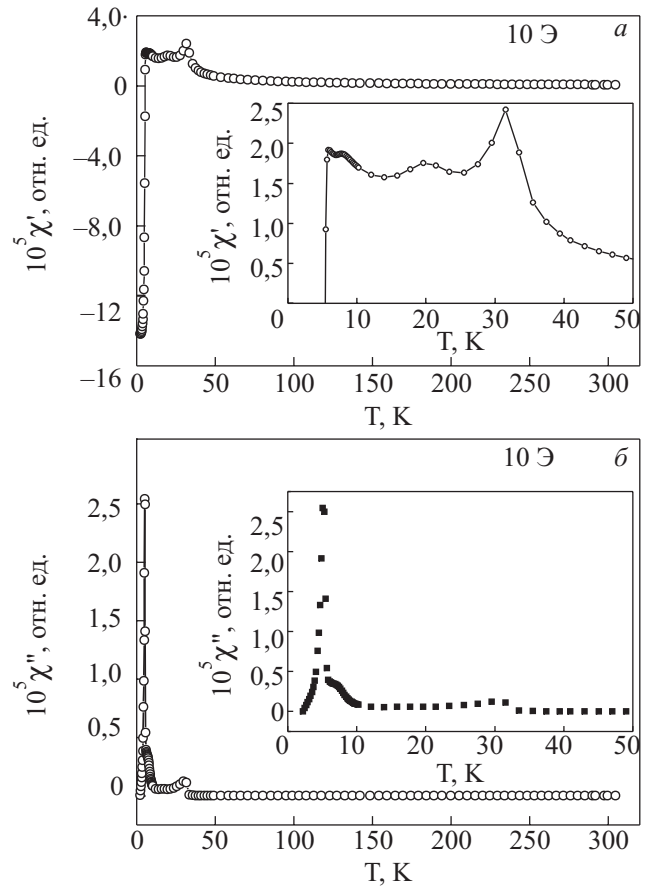


Рис. 5. Температурные зависимости реальной χ' (а) и мнимой χ'' (б) частей восприимчивости $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, измеренные в переменном поле частотой 1 кГц.

Микроконтактная спектроскопия — один из эффективных методов исследования неоднородности сверхпроводника, что позволяет локально контролировать главный параметр — критическую температуру сверхпроводящего перехода T_C , который имеет место вне зависимости от механизма спаривания. Если T_C остается неизменной во всех измеряемых точках, это однозначно указывает на однородность образца. Известно, что присутствие примесей, загрязнений, посторонних фаз и искажений решетки изменяет величину T_C .

Таким образом, стабильность T_C в различных точках образцов гарантирует их однородность и повышает надежность выводов относительно их свойств. Для всех исследованных нами образцов значения T_C оставались неизменными в каждой измеряемой точке в пределах 7%. При этом важно подчеркнуть, что именно в каждой точке, в которой измерялась T_C , одновременно измерялись и другие параметры, такие как $H_{c2}(T)$ и $\Delta(T, H)$. Практически при каждом касании Аг-иглой S-электрода обнаруживалась сверхпроводимость с критической температурой близкой к 5,7 К, подтверждая, таким образом, высокую однородность

исследуемых образцов на макроскопических масштабах. Однако на субмикронных расстояниях, которые сопоставимы с типичным размером микроконтактов, наблюдалась незначительная вариация сверхпроводящих свойств. Последняя проявлялась в виде дополнительных особенностей на микроконтактных спектрах в области напряжений, превышающих щелевые. Избыточный ток I_{exs} , обусловленный андреевским отражением на N - S -границе, составлял 20–30% от теоретического значения, рассчитанного в рамках теории БТК [14], справедливой для обычных сверхпроводников при отсутствии иных типов рассеяния на этой границе. Поскольку наличие дополнительного рассеяния в исследуемой системе никак нельзя исключить, наблюдаемый избыточный ток следует считать весьма значительным. В таком случае концепция синглетной сверхпроводимости не может быть применена к $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ вследствие существования в этом ферромагнитном веществе нескомпенсированных внутренних магнитных полей. Поэтому разумно предположить, что в данном случае мы наблюдаем проявление триплетной сверхпроводимости.

На рис. 6 представлен типичный набор микроконтактных спектров, измеренных при различных температурах на одном и том же контакте в нулевом магнитном поле.

Особенностью данного и многих аналогичных контактов, в том числе с намного меньшим сопротивлением, является неизменность величины I_{exs} до напряжений, превышающих щелевые напряжения не менее чем в 10 раз. Это свидетельствует о полном отсутствии эффектов нагрева в микроконтактной области. Большой пик вблизи 3 мВ, по-видимому, обусловлен неравновесными процессами, связанными с релаксацией разбаланса заряда, протекающими в микроконтактной зоне. Упомянутое выше неоднородное распределение сверхпроводящих свойств в этой зоне проявляется в виде дополнительных максимумов в области $V > 2$ мВ. Постепенное перемещение этих максимумов с ростом температуры в сторону меньших напряжений указывает на их связь с кластерами с частично подавленными критическими параметрами.

Для определения величины параметра порядка Δ использовалась теория БТК, адекватно описывающая электрические характеристики N - S -контактов. В исходной теории форма МК спектров полностью описывалась только двумя параметрами Δ и Z , где барьерный параметр Z характеризует прозрачность границы раздела электродов. Однако в большинстве реальных ситуаций для более точной подгонки теоретических спектров к экспериментальным необходимо включать и так называемый параметр уширения Γ , который характеризует уширение МК спектров, обусловленное конечным временем жизни квазичастичных возбуж-

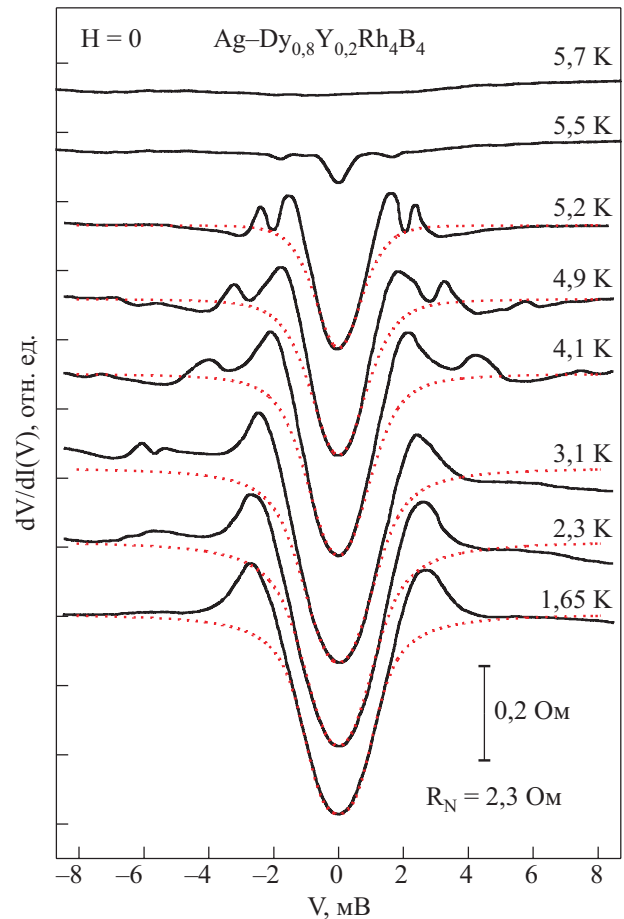


Рис. 6. Типичный температурный набор микроконтактных спектров $dV/dI(V, T)$ для одного из образцов $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$. Для наглядности кривые смещены по вертикали на произвольную величину. Значение температуры указано возле каждой кривой. Пунктиром показаны расчетные зависимости по теории БТК.

дений в различного рода процессах рассеяния [15]. В действительности Γ включает в себя и другие факторы, в первую очередь такие, как неравномерное распределение Δ по области контакта, спин-флип процессы и некоторые другие. Впоследствии [16] параметр Γ был включен в БТК формулы, и в данной работе мы используем именно такие модифицированные формулы для обработки экспериментальных данных.

Следует подчеркнуть, что подгонка по всем трем параметрам Δ , Z и Γ выполнялась только для одной или двух наиболее низкотемпературных кривых из полного их набора, тогда как для остальных кривых параметр Z сохранялся неизменным. Для контакта, представленного на рис. 6, рассчитанные спектры показаны пунктиром. Сравнивая расчетные и экспериментальные спектры, представленные на рис. 6, необходимо отметить нетипичное для обычных сверхпроводников сужение центральных минимумов на

экспериментальных спектрах по сравнению с расчетными, обнаруживаемое при повышении температуры. Ранее такое же явление наблюдалось в сверхпроводнике Mo_3Sb_7 [24]. Причина этого явления пока не находит объяснения.

Полученные при подгонке значения параметра порядка Δ от T для контакта, представленного на рис. 6, показаны на рис. 7 (квадраты). Сравнение с теорией БКШ (сплошная линия) показывает, что набор экспериментальных данных можно с приемлемой точностью описать этой теорией. Критическая температура, определенная по точке пересечения теоретической зависимости $\Delta(T)$ с осью температур, на несколько десятых кельвина меньше температуры, которая следует из анализа непосредственно измеренных МК спектров. Такое расхождение может быть связано с несколькими причинами. Во-первых, с возможностью существования бесщелевого состояния вблизи критической температуры в связи с наличием внутреннего магнитного поля, и это может проявиться в виде сдвижки вычисленных значений Δ в сторону меньших температур. Во-вторых, критическая температура, определенная непосредственно из МК спектров, отвечает началу сверхпроводящего перехода, тогда как из сравнения экспериментальных и теоретических зависимостей $\Delta(T)$ выводится температура, соответствующая, скорее всего, середине этого перехода. Возможна еще одна, пока необъяснимая, причина, связанная с упомянутым выше сужением МК спектров при увеличении температуры, которое не наблюдается в обычных сверхпроводниках.

Максимальная величина параметра порядка, найденная в настоящей работе, $\Delta(1,6 \text{ K}) \approx 0,98 \text{ мЭВ}$, что дает отношение $2\Delta(0)/k_B T_c \approx 4,0$, которое превышает значение 3,52, вытекающее из теории БКШ для син-

глетных сверхпроводников со слабой связью. Этот факт позволяет предположить, что $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ является триплетным, а не обычным синглетным сверхпроводником, поскольку в последнем случае внутреннее магнитное поле привело бы к существенному подавлению Δ , что в действительности не наблюдается. Для подавляющего большинства контактов величина параметра порядка $\Delta(1,6 \text{ K})$ варьировалась в пределах $\sim 0,9-1,0 \text{ мЭВ}$.

Наблюдаемый ниже 2,8 К небольшой минимум Δ имеет систематический характер. Причину этого минимума мы связываем с АФМ переходом в указанной области температур, который хорошо виден на рис. 8. На этом рисунке показана температурная зависимость теплоемкости образца $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$. Видно, что теплоемкость достигает максимального значения при температуре $T_N \approx 2,7 \text{ K}$, которая может быть определена как температура антиферромагнитного упорядочения. Следует отметить, что этот переход является фазовым переходом от ферромагнитного состояния к антиферромагнитному при понижении температуры. Отметим также, что по сравнению с величиной АФМ максимума особенность, связанная со сверхпроводящим переходом (СП), имеет гораздо меньшую величину и размывается началом АФМ перехода.

Характер представленной на рис. 7 зависимости $\Delta(T)$ дает основание предполагать, что выше точки АФМ перехода $T_N \sim 3 \text{ K}$ сверхпроводящее состояние не может быть синглетным. Действительно, если даже предположить, что ферромагнетизм (в нашем случае ферримагнетизм) сосуществует с синглетной сверхпроводимостью, как, например, в ErRh_4B_4 , то сразу же возникают два противоречия. Во-первых, интервал сосуществования оказывается необъяснимо большим (приблизительно 3 К) по сравнению с тем, который

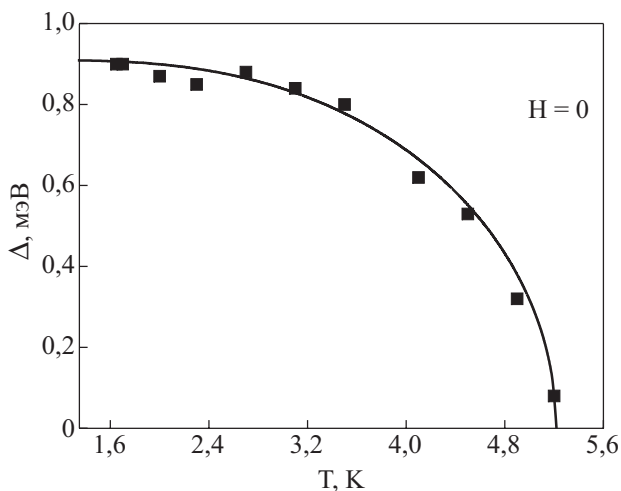


Рис. 7. Температурная зависимость параметра порядка $\Delta(T)$ образца $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$: эксперимент (■) и расчет по теории БКШ (—).

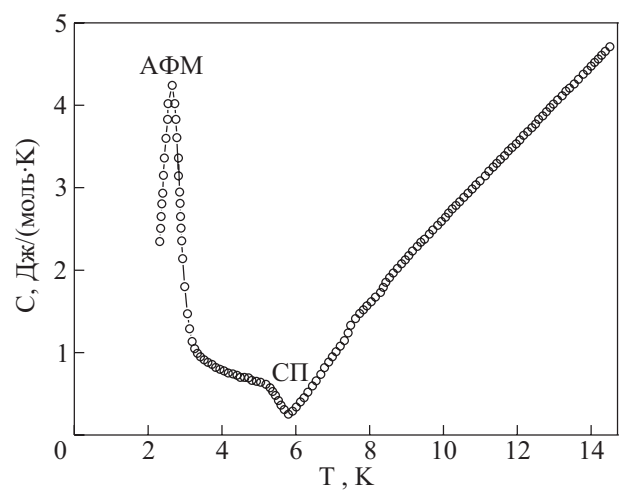


Рис. 8. Температурная зависимость теплоемкости $C(T)$ образца $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$.

наблюдается в обычных магнитных сверхпроводниках (например, в ErRh_4B_4 он составляет всего несколько десятых кельвина). Во-вторых, совсем необъяснимым становится факт роста Δ при понижении температуры от T_c до T_N , так как увеличение степени упорядочения магнитных подрешеток должно было бы привести к противоположному эффекту в случае синглетной сверхпроводимости.

Еще одно подтверждение возможности необычного (триплетного) сверхпроводящего состояния в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ можно найти, если проанализировать результаты МК исследований борокарбидного магнитного сверхпроводника $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ с синглетным куперовским спариванием [25]. В этом веществе сверхпроводящий переход ($T_c \approx 8,5$ К) происходит на фоне геликоидальной магнитной структуры, проявляющей заметный нескомпенсированный магнитный момент. С понижением температуры это соединение переходит в АФМ состояние ($T_N \approx 6$ К). Как хорошо известно, в АФМ сверхпроводниках влияние магнетизма на сверхпроводимость оказывается не очень сильным вследствие практически полной компенсации магнитных моментов на расстояниях, сопоставимых с длиной сверхпроводящей когерентности. Именно так и происходит в $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$: ниже T_N МК спектры контактов на его основе оказываются полностью аналогичны тем, которые характерны для обычных немагнитных сверхпроводников, а определенная через процедуру БТК подгонки зависимость $\Delta(T)$ хорошо совпадает с теорией БКШ. Однако выше T_N МК спектры этого соединения претерпевают принципиальные изменения, резко отличаясь от классических. Соответственно, не было никакой возможности определить Δ в интервале $T_N - T_c$ традиционным способом с применением БТК теории. Поэтому в [25] было высказано предположение о возможности существования в этом интервале температур бесщелевого состояния, где, по определению, величина параметра порядка не может быть высокой.

В нашем случае в интервале температур $T_N - T_c$ МК спектры $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ резко отличаются от тех, которые свойственны соединению $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$. Спектры $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ проявляют явные щелевые особенности, характерные для сверхпроводников без значительных эффектов распаривания, что позволяет вполне надежно находить значения Δ , используя БТК теорию. Эти факты служат основанием для вполне обоснованного предположения о возможности существования триплетного спаривания в области температур $T_N - T_c$. Однако для температурной области ниже точки АФМ перехода пока достаточно обоснованных предположений о характере сверхпроводящего состояния сделать нельзя. Возможно, что и ниже T_N сохраняется триплетный тип спаривания или вблизи T_N в

$\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ происходит переход из триплетного в синглетное состояние.

Микроконтактные спектры $dV/dI(V,H)$ соединения $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, измеренные в магнитном поле (рис. 9), не проявляют заметных отличий по сравнению со спектрами обычных сверхпроводников. Однако полевая зависимость параметра порядка $\Delta(H)$ радикально отличается от обычной. Примером этого может быть рис. 10, на котором представлена типичная зависимость $\Delta(H)$, полученная с помощью БТК подгонки для одного из контактов, МК спектры которого представлены на рис. 9. Отличительная особенность этой зависимости — наличие минимума в области значений магнитного поля 2–3 кЭ. Важно подчеркнуть, что указанный минимум проявлялся на всех исследуемых контактах. Во всех случаях амплитуда минимума значительно превышала погрешность в определении Δ . Зависимость $\Delta(H)$ измерена при температуре 1,6 К, т.е. когда образец находится в АФМ со-

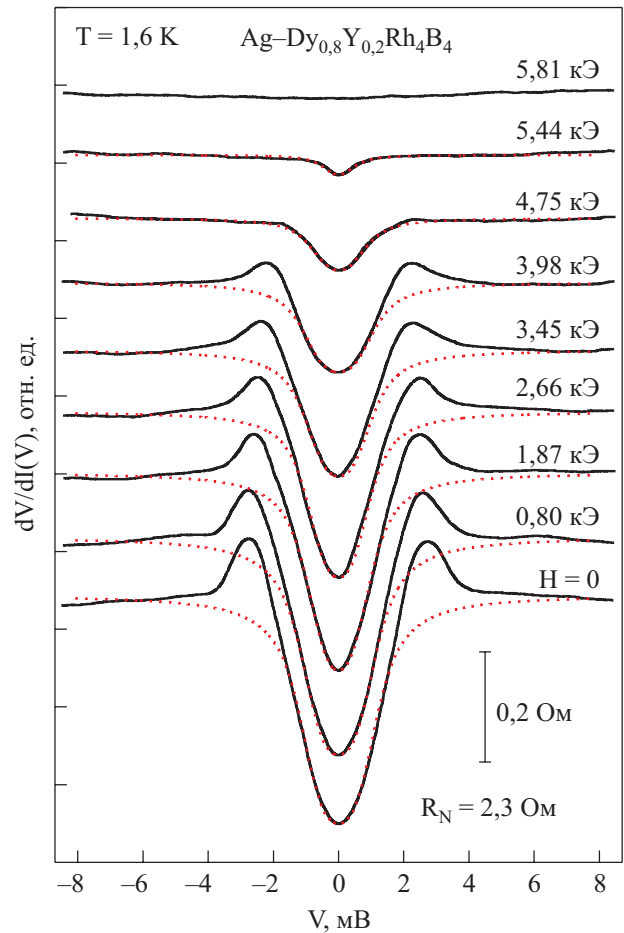


Рис. 9. Зависимость микроконтактных спектров $dV/dI(V,H)$ $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ от магнитного поля при температуре $T = 1,6$ К. Для наглядности кривые смещены по вертикали на произвольную величину. Значение магнитного поля указано возле каждой кривой. Пунктиром показаны расчетные зависимости по теории БТК.

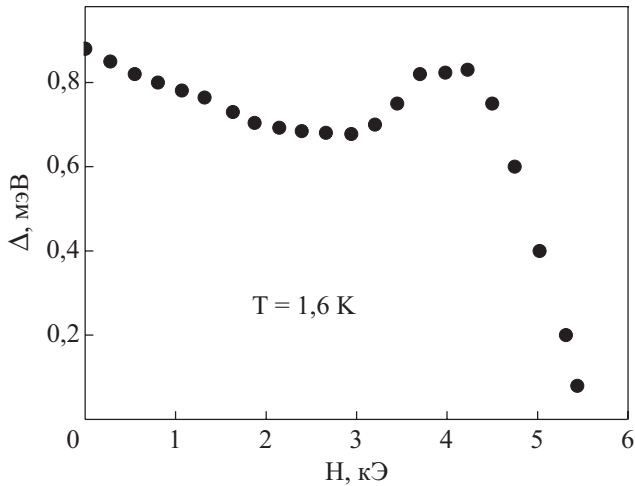


Рис. 10. Зависимость от магнитного поля параметра порядка $\Delta(H)$ в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ при $T = 1,6$ К, которая ниже температуры АФМ упорядочения.

стоянии в отсутствие внешнего магнитного поля. При увеличении магнитного поля приблизительно до 2 кЭ значение $\Delta(H)$ снижается. При дальнейшем возрастании магнитного поля снижение величины $\Delta(H)$ замедляется, и при полях больших 3 кЭ наблюдается возрастание $\Delta(H)$ до некоторого максимального значения, после чего магнитное поле окончательно подавляет сверхпроводящее состояние. Мы предполагаем, что при температуре измерения магнитное поле около 2 кЭ начинает разрушать АФМ состояние, в результате чего восстанавливается внутренний нескомпенсированный магнитный момент ферромагнитного состояния. При дальнейшем росте внешнего магнитного поля оно не в состоянии подавить сверхпроводимость, так как на этом этапе главную роль в усилении сверхпроводимости играет возрастающий внутренний магнитный момент. Только после того, как восстановится исходное ферромагнитное состояние, внешнее магнитное поле получает возможность разрушить сверхпроводимость. Для подтверждения высказанного предположения необходимо выполнить эксперименты по влиянию магнитного поля на АФМ состояние. Например, выяснить влияние магнитного поля на температурную зависимость теплоемкости и измерить зависимость $\Delta(H)$ при температурах как ниже, так и выше температуры АФМ перехода. В последнем случае эта зависимость, по-видимому, должна быть монотонной. Мы планируем проведение таких исследований. А на сегодняшний день существование представленной крайне нестандартной зависимости $\Delta(H)$ остается фактом.

Величина и температурная зависимость верхнего критического поля H_{c2} для $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ определялись из спектральных ($dV/dI(H)_{V=0}$) зависимостей, аналогичных представленным на рис. 9, но снятых

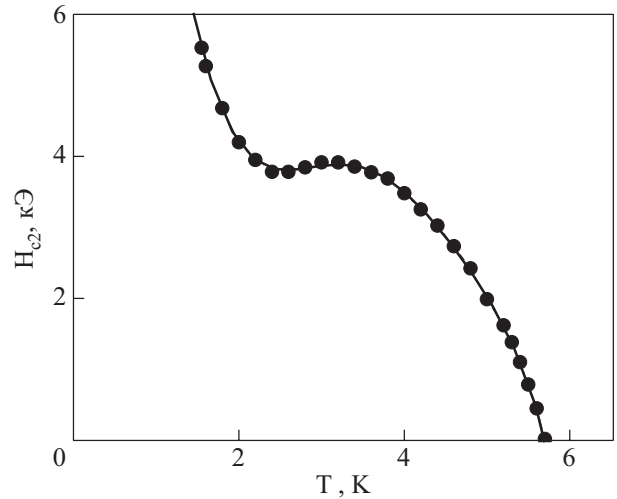


Рис. 11. Температурная зависимость $H_{c2}(T)$ $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, измеренная микроконтактным методом.

при различных температурах. Значение H_{c2} определяется как поле, при котором исчезает минимум $dV/dI(H)_{V=0}$ при данной температуре. Температурная зависимость $H_{c2}(T)$, полученная указанным выше способом для контакта, спектры которого представлены на рис. 9, показана на рис. 11. Она типична для большого числа измерений и хорошо соответствует аналогичным зависимостям, измеренным другими методами. Характерной особенностью этой и других подобных зависимостей, измеренных на аналогичных контактах, является нарушение монотонного хода вблизи температуры АФМ перехода $T_N \approx 3$ К. Для значительной части контактов на зависимостях $H_{c2}(T)$ вблизи этой температуры проявляется заметный минимум, как на рис. 11. В общем, представленная зависимость похожа на характерные для синглетных АФМ сверхпроводников, например редкоземельных халькогенидов, в которых $T_c > T_N$ (см., например, [26]). При снижении температуры именно вблизи точки Нееля проявляется минимум верхнего критического поля или существенное снижение темпа его роста, после чего рост поля возобновляется в согласии с теорией АФМ сверхпроводников [27] при условии ненулевого значения интеграла обменного взаимодействия. При внешней схожести представленной на рис. 11 зависимости $H_{c2}(T)$ с теми, которые проявляются в указанных халькогенидах, их формирование, по крайней мере в температурной области $T_N - T_c$, базируется на различных типах взаимодействия куперовских пар с магнитными моментами. Действительно, в высокотемпературной области, т.е. выше T_N , указанные халькогениды находятся в парамагнитном состоянии, где процессы распаривания не очень сильные, в связи с чем степень сверхпроводящего упорядочения увеличивается с понижением температуры, обуславливая и

соответствующее увеличение критического поля. Как отмечалось выше, совсем иная ситуация складывается в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$, который, как показано нами, выше $T_N \approx 3$ К является ферромагнетиком. В связи с этим физическая природа роста $\Delta(T)$ и $H_{c2}(T)$ в интервале температур $T_c - T_N$ в нашем случае иная и, возможно, связана с триплетным типом сверхпроводящего спаривания.

Еще одно подтверждение этого вывода можно найти, если проанализировать соотношение наблюдаемой в настоящих экспериментах величины критического поля с теми предельными значениями, которые вытекают из теоретических расчетов, как это было сделано в [28]. Так, в грубом приближении, орбитальное критическое поле в отсутствие взаимодействия внешнего поля со спинами электронов для «грязных» слабосвязанных сверхпроводников может быть вычислено по формуле $H_{c2}^*(0) = -0,693(dH_{c2}/dT)_{T=T_c}T_c$ [29]. Основываясь на данных, представленных на рис. 11, можно определить величину наклона зависимости $H_{c2}(T)$ к оси температур $(dH_{c2}/dT)_{T=T_c} \approx 4$ кЭ/К, а затем и орбитальное критическое поле $H_{c2}^*(0) \approx 15$ кЭ. Принципиально иной предел критического поля (парамагнитный предел) выражается через хорошо известную формулу Чандрасекхара–Клогстоуна, справедливую в пренебрежении орбитальными эффектами: $H_p(0) = 18,4T_c$ (кЭ). Для исследуемого материала находим $H_p(0) \approx 100$ кЭ. Сравнение обоих расчетных предельных полей с наибольшим измеренным в эксперименте критическим полем $H_{c2}(1,6) \approx 6$ кЭ дает следующее неравенство: $H_{c2}^*(0) \approx H_{c2}(0) < H_p(0)$, где для $H_{c2}(0)$ мы приняли значение, линейно экстраполированное к нулевой температуре. Аналогичное соотношение было получено в [28] для тяжелофермионного сверхпроводника UNi_2Al_3 , на основании чего авторы сделали вывод о триплетном характере сверхпроводимости в этом материале, когда поведение $H_{c2}(T)$ определяется орбитальными эффектами, тогда как воздействие магнитного поля на спины куперовских пар остается несущественным. Рассуждая подобным образом, можно прийти к заключению, что по крайней мере в области температур $T_c - T_N$ в $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ куперовские пары образуются из электронов с параллельными спинами.

Следует отметить, что величина наклона зависимости $(dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$ для исследуемого соединения в несколько раз меньше тех значений, которые присущи синглетным интерметаллическим сверхпроводникам типа A15, что также может быть одним из признаков триплетной сверхпроводимости. Зная $(dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$ и используя формулу из работ [29–31], можно оценить величину безразмерного параметра распаривания $\alpha \approx (5,28 \cdot 10^{-5})(-dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$ (наклон выражен в единицах Э/К). В результате получаем $\alpha \approx 0,2$, что свиде-

тельствует о незначительном вкладе спин-флип процессов в подавление сверхпроводимости внешним магнитным полем, как это, очевидно, и должно быть в триплетных сверхпроводниках.

Заключение

В заключение отметим, что проведенные в настоящей работе исследования соединения $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ подтверждают полученные нами ранее сведения о том, что магнитный фазовый переход при температуре около 30 К является переходом парамагнетик–ферромагнетик, а само соединение принадлежит к классу так называемых веществ с собственным ферромагнетизмом. Полученный набор экспериментальных данных о необычных немонокотных температурных и полевых зависимостях параметра порядка $\Delta(T, H)$, полученная немонокотная зависимость $H_{c2}(T)$, их анализ и сопоставление с температурной зависимостью теплоемкости $C(T)$ указывают на возможность нетрадиционного механизма возникновения сверхпроводимости в соединении $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$. По нашему мнению, это может быть триплетный механизм спаривания, основанный на взаимодействии делокализованных d -электронов со спиновыми флуктуациями локализованных f -электронов. Впервые в ферромагнитном сверхпроводнике ниже температуры сверхпроводящего перехода наблюдается парамагнитный эффект Мейсснера.

Настоящие исследования частично поддержаны грантом 07-03-00368-а Российского фонда фундаментальных исследований.

1. J. Bardeen, L.N. Cooper, and J.R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **106**, 162 (1957).
2. A.A. Abrikosov, *Fundamentals of the Theory of Metals*, North Holland, New York (1988).
3. B.T. Matthias, H. Suhl, and E. Corenzwit, *Phys. Rev. Lett.* **1**, 92 (1958).
4. B.T. Matthias, H. Suhl, and E. Corenzwit, *Phys. Rev. Lett.* **1**, 449 (1958).
5. А.И. Ахизер, И.А. Ахизер, *ЖЭТФ* **43**, 2208 (1962).
6. S.S. Saxena, P. Agarwal, K. Ahilan, F.M. Grosche, R.K.W. Haselwimmer, M.J. Steiner, E. Pugh, I.R. Walker, S.R. Julian, P. Monthoux, G.G. Lonzarich, A. Huxley, I. Sheikin, D. Braithwaite, and J. Flouquet, *Nature* **406**, 587 (2000).
7. D. Aoki, Andrew Huxley, Eric Ressouche, Daniel Braithwaite, Jacques Flouquet, Jean-Pascal Brison, Elsa Lhotel, and Carley Paulsen, *Nature* **413**, 613 (2001).
8. C. Pfleiderer, M. Uhlarz, S.M. Hayden, R. Vollmer, H. v. Lohneysen, N.R. Bernhoeft, and G.G. Lonzarich, *Nature* **412**, 58 (2001).
9. K.D. Nelson, Z.Q. Mao, Y. Maeno, and Y. Liu, *Science* **306**, 1151 (2004).

10. A.J. Zaleski, A.V. Tswyashchenko, E.P. Khlybov, L.N. Fomichova, I.E. Kostyleva, S.A. Lachenkov, and O.G. Zamolodchikov, *Proceedings of 24 International Conference on Low Temperature Physics, Orlando, Florida, USA, August 10–17* (2005), p. 691.
11. V.M. Dmitriev, A.J. Zaleski, E.P. Khlybov, L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, and A.V. Terekhov, *Int. Conf. KSN 13, Abstract S16*, p. 43, Ladek Zdroj, November 6–10, 2007, Poland.
12. V.M. Dmitriev, A.J. Zaleski, E.P. Khlybov, L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, and A.V. Terekhov, *Acta Physica Polonica A114*, 83 (2008).
13. M.B. Maple and O. Fischer, *Superconductivity in Ternary Compounds II, Superconductivity and Magnetism*, Springer-Verlag-Berlin-Heidelberg-New York (1982).
14. G.E. Blonder, M. Tinkham, and T.M. Klapwijk, *Phys. Rev.* **B25**, 4515 (1982).
15. R.C. Dynes, V. Narayanamutri, and J.P. Carno, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1509 (1978).
16. Y. de Wilde, T.M. Klapwijk, A.G.M. Jansen, J. Heil, and P. Wyder, *Physica B218*, 165 (1996).
17. С. Крупичка, *Физика ферритов и родственных им магнитных окислов*, Т. 1. Перевод с немецкого, А.С. Пахомова (ред.), МИР, Москва (1976).
18. Mai Suan Li, *Phys. Rep.* **376**, 133 (2003).
19. Huseyin Sozeri, Lev Dorosinskii, Ugur Topal, and Ismail Ercan, *Physica C408–410*, 109 (2004).
20. Lianyi He, Meng Jin, and Pengfei Zhuang, *Phys. Rev.* **B73**, 024511 (2006).
21. С.В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
22. L. Neel, *Ann. Phys.* **3**, 137 (1948).
23. К.П. Белов, *Эффекты парапроцесса в ферромагнетиках и антиферромагнетиках*, Физматлит, Москва (2001).
24. V.M. Dmitriev, L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, Z. Bukowski, and R. Troć, *Fiz. Nizk. Temp.* **33**, 399 (2007).
25. L.F. Rybaltchenko, A.G.M. Jansen, P. Wyder, L.V. Tjutrina, P.C. Canfield, C.V. Tomy, and D. McK. Paul, *Physica C319*, 189 (1999).
26. J. Ashkenasi, C.G. Kuper, and A. Ron, *Phys. Rev.* **B28**, 418 (1983).
27. K. Machida, K. Nokura, and T. Matsubara, *Phys. Rev.* **B22**, 2307 (1980).
28. N. Sato, N. Koga, and T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1555 (1996).
29. H.R. Werthamer, E. Helfand, and P.C. Hohenberg, *Phys. Rev.* **147**, 295 (1966).
30. K. Maki, *Physics* **1**, 127 (1964).
31. K. Maki, *Phys. Rev.* **148**, 362 (1966).

Magnetic phase transitions and superconductivity in Dy_{0.8}Y_{0.2}Rh₄B₄

V.M. Dmitriev, A.J. Zaleski, E.P. Khlybov, L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, A.V. Terekhov, I.E. Kostyleva, and S.A. Lachenkov

The experimental data on magnetic and superconducting properties of the Dy_{0.8}Y_{0.2}Rh₄B₄ compound with a tetragonal body-centered structure of a LuRu₄B₄ perovskite type are presented. It is shown that at $T_C \approx 30.5$ K the compound undergoes a paramagnet–ferrimagnet phase transition and has a magnetic compensation temperature of about 17 K. The resistive measurements at $T_C^{\text{onset}} \approx 5.9$ K display that the compound becomes a ferrimagnetic superconductor that experiences a ferrimagnet–antiferromagnet transition at $T_N \approx 2.7$ K and remains a superconductor. The heat capacity at this temperature exhibits a sharp peak. The Andreev reflection point-contact spectroscopy was used to measure temperature and field dependences of the order parameter $\Delta(T, H)$ and a temperature dependence of the upper critical field $H_{c2}(T)$. The dependences obtained are fundamentally different from those commonly accepted for conventional superconductors. All the results are considered in the context of the possibility of triplet pairing in Dy_{0.8}Y_{0.2}Rh₄B₄.

PACS: 74.70.Ad Metals; alloys and binary compounds (including A15, MgB₂, etc.).

Keywords: magnetism, superconductivity, Andreev reflection, triplet pairing.