

# Низкотемпературная теплоемкость магнитных сверхпроводников $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ и $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$

А.В. Терехов<sup>1,2,3</sup>, И.В. Золочевский<sup>1</sup>, Л.А. Ищенко<sup>1</sup>, А. Залеский<sup>2</sup>, Е.П. Хлыбов<sup>3,4</sup>,  
С.А. Лаченков<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: terekhov1977@yandex.ru

<sup>2</sup>W. Trzebiatowski Institute for Low Temperatures & Structure Research PAS  
Box 1410, 50-950, Wroclaw, Okolna, 2, Poland

<sup>3</sup>Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур ПАН  
ул. Гайовицкая, 95, г. Вроцлав, 53-421, Польша

<sup>4</sup>Институт физики высоких давлений им. Л.Ф. Верещагина РАН  
Калужское шоссе, 14, г. Троицк, 142190, Россия

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

Статья поступила в редакцию 27 ноября 2015, опубликована онлайн 26 января 2016 г.

Впервые исследована теплоемкость  $C_M(T)$  поликристаллов  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  и  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$  в интервале температур 0,5–9 К в магнитных полях 0–10 кЭ. Показано наличие сверхпроводящей  $\lambda$ -аномалии на  $C_M(T)$  с  $T_c \approx 6$  К для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  и  $T_c \approx 6,6$  К для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ .  $\lambda$ -аномалия подавляется в магнитном поле и смещается в область более низких температур. Показано, что частичная замена Rh на Ru усиливает сверхпроводимость, что может быть обусловлено более сильным внутренним магнетизмом подрешетки диспрозия в  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$ , чем в  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ . Обнаружено, что при  $T < 4$  К наблюдается рост молярной теплоемкости  $C_M(T)$  с понижением температуры для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ . В  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  увеличение  $C_M(T)$  с понижением температуры сопровождается возникновением максимума при  $T_{\max} \approx 1,5$  К. Последний может быть проявлением происходящего при этой температуре магнитного фазового превращения в подсистеме диспрозия.

Вперше досліджено теплоємність  $C_M(T)$  полікристалів  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  та  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$  в інтервалі температур 0,5–9 К в магнітних полях 0–10 кЕ. Показано наявність надпровідної  $\lambda$ -аномалії на  $C_M(T)$  з  $T_c \approx 6$  К для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  та  $T_c \approx 6,6$  К для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ .  $\lambda$ -аномалія пригнічується в магнітному полі та зміщується в область більш низьких температур. Показано, що часткова заміна Rh на Ru підсилює надпровідність, що може бути обумовлено більш сильним внутрішнім магнетизмом підґратки диспрозію в  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$ , ніж в  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ . Виявлено, що при  $T < 4$  К спостерігається зростання молярної теплоємності  $C_M(T)$  зі зниженням температури для  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_{3,85}Ru_{0,15}B_4$ . В  $Du_{0,6}Y_{0,4}Rh_4B_4$  збільшення  $C_M(T)$  зі зниженням температури супроводжується виникненням максимуму при  $T_{\max} \approx 1,5$  К. Останній може бути проявом магнітного фазового перетворення, що відбувається при цій температурі у підсистемі диспрозію.

PACS: **74.25.-q** Свойства сверхпроводников;  
74.25.Na Магнитные свойства, включая вихревые структуры и подобные явления;  
74.25.N- Отклик на электромагнитные поля;  
74.70.Ad Металлы; сплавы и бинарные соединения (включая Al5, MgB<sub>2</sub> и т.д.).

Ключевые слова: подсистема диспрозия, магнетизм, сверхпроводимость, теплоемкость.

## Введение

Детальные исследования транспортных, магнитных и тепловых свойств редкоземельных боридов родия  $\text{Dy}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_4\text{B}_4$  ( $x = 0, 0,2, 0,4, 1$ ) показали, что в этих материалах магнитное упорядочение появляется выше температуры сверхпроводящего перехода и не исчезает с появлением сверхпроводимости вплоть до самых низких температур [1,2]. Это делает данные объекты удобными для изучения сосуществования сверхпроводимости и магнетизма. Позднее в магнитных сверхпроводниках  $\text{Dy}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_4\text{B}_4$  ( $x = 0, 0,2, 0,4, 1$ ) и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  были обнаружены парамагнитный эффект Мейсснера [3,4] и немонотонное поведение зависимостей  $H_{c2}(T)$  и  $\Delta(T)$  [5–7]. Недавно нами в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  была выявлена сильная зависимость  $H_{c2}(T)$  и  $R(T)$  от наклона внешнего магнитного поля относительно образца [8]. При определенных углах наклона внешнего магнитного поля на  $R(T)$  появлялась возвратная сверхпроводимость.

На наш взгляд, наличие особенностей на температурных и магнитополевых зависимостях некоторых физических величин  $\text{Dy}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  соединений в сверхпроводящей области температур может быть тесно связано с превращениями в магнитной подсистеме атомов диспрозия при низких температурах. Измерения низкотемпературной теплоемкости  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  могли бы дать информацию о наличии ниже температуры сверхпроводящего перехода какого-нибудь магнитного превращения, чему и посвящена настоящая работа. Параллельно с этим проведено изучение влияния на низкотемпературные аномалии теплоемкости частичного замещения атомов родия на рутений.

## Образцы и методика эксперимента

Синтез образца  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  проходил под высоким (порядка 8 ГПа) давлением. Образец  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  был приготовлен методом аргоно-дуговой плавки исходных компонентов. Частичная замена Rh на Ru в этом образце позволила получить образец с необходимым типом кристаллической структуры при нормальном давлении, что было неосуществимо без такой замены. Полученные поликристаллы отжигались в течение нескольких дней. В результате были получены поликристаллические образцы со структурой типа  $\text{LuRu}_4\text{B}_4$  (space group  $I4/mmm$ ), о чем свидетельствовали результаты рентгенофазового и рентгеноструктурного анализов.

Измерения теплоемкости проводили на автоматизированном комплексе Quantum Design PPMS-9 релаксационным методом в интервале температур 0,5–9 К. Постоянное магнитное поле  $H$  создавалось сверхпроводящим соленоидом. Температурные зависимости теплоемкости исследовали в магнитных полях до 10 кЭ.

## Результаты эксперимента и их обсуждение

На рис. 1. представлены температурные зависимости молярной теплоемкости  $C_M(T)$  соединений  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  (а) и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  (б).

Измерение теплоемкости  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  проводили в интервале температур 0,4–8 К в магнитных полях 0, 2, 4, 5 и 10 кЭ (см. рис. 1(а)). Видно, что на зависимости  $C_M(T)$  в отсутствие магнитного поля при  $T_c \approx 6$  К наблюдается максимум, типичный для перехода в сверхпроводящее состояние ( $\lambda$  — аномалия, которая представлена в увеличенном масштабе на вставке). С ростом поля температура сверхпроводящего перехода сдвигается в область более низких температур, а следовательно, и температура максимума зависимости  $C_M(T)$  ведет себя таким же образом, что и видно на рисунке. При этом величина максимума уменьшается, и он исчезает в поле 10 кЭ. При температурах  $T < 4$  К начинается рост теплоемкости с максимумом при  $T_{\text{max}} \approx 1,5$  К, который подавляется магнитным полем, а при  $H = 10$  кЭ исчезает.

Измерение теплоемкости  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  проводили в интервале температур 1,8–9 К и в магнитных полях 0, 1, 2, 3, 4, 5 и 8 кЭ (см. рис. 1(б)). Как и в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  на  $C_M(T)$ , наблюдается максимум, типичный для перехода в сверхпроводящее состояние, но при более высокой температуре  $T_c \approx 6,6$  К. С ростом поля температура максимума сдвигается в область более низких температур по той же причине, что и в предыдущем случае, а величина максимума уменьшается, но он еще виден в поле 8 кЭ.

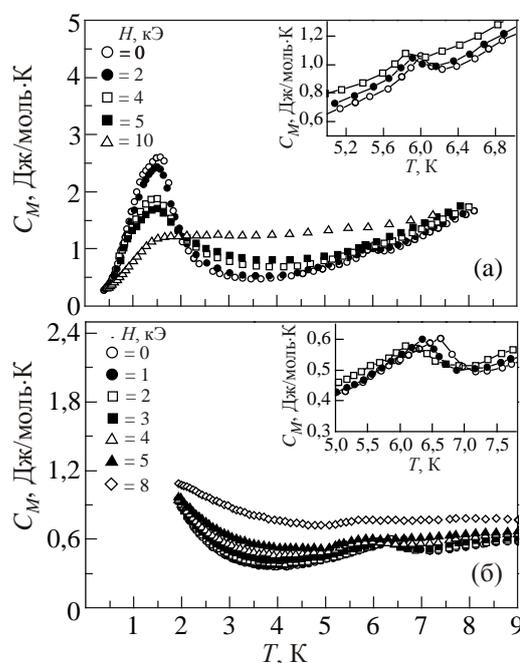


Рис. 1. Температурные зависимости молярной теплоемкости  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  (а) и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  (б) как в отсутствие, так и при наличии различных магнитных полей. На вставках приведена часть этих зависимостей в увеличенном масштабе.

## Выводы

При температурах  $T < 4$  К в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$ , как и в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$ , (вплоть до минимальной температуры в данном эксперименте 1,8 К) наблюдается рост теплоемкости. Очевидно, как и в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$ , в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  при более низкой температуре на  $C_M(T)$  также существует максимум.

Анализируя результаты экспериментальных исследований зависимостей  $C_M(T)$  для  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$ , можно отметить следующее. Прежде всего температура сверхпроводящего перехода в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  ниже, чем в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$ . Это может быть обусловлено тем, что магнитоупорядоченное состояние в первом соединении сильнее подавляет сверхпроводимость. О том, что магнетизм в этих соединениях существенно зависит от замены родия на рутений, было показано в работе [9]. Такая замена оказывает влияние на электронную структуру и параллельно влияет на внутренний магнетизм. Последний в этих соединениях обусловлен РККИ — обменным взаимодействием (косвенным обменным взаимодействием между магнитными ионами Dy через электроны проводимости ионов Rh и Ru) [1]. В  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  суммарный магнитный момент подсистемы Dy может оказаться выше, чем в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  и сверхпроводимость будет сильнее подавлена.

Появляющийся на  $C_M(T)$  рост теплоемкости  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$ , который сопровождается появлением максимума при 1,5 К в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$ , может быть связан с тем, что при этой температуре в подсистеме Dy происходит магнитное фазовое превращение. На рис. 1(а) хорошо видно, что максимум заметно уменьшается по величине в магнитном поле и исчезает в поле 10 кЭ. Вместе с тем температура перехода практически не смещается в магнитном поле. Из предыдущих работ известно, что в нескольких других составах компаундов этого класса ( $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$ ) выше температуры сверхпроводящего перехода наблюдается фазовый переход парамагнетик–ферримагнетик [5]. При этом сверхпроводимость и ферримагнетизм сосуществуют ниже  $T_c$ , в то же время ниже 2,7 К в  $\text{Dy}_{0,8}\text{Y}_{0,2}\text{Rh}_4\text{B}_4$  наблюдается еще один магнитный переход, предположительно, ферримагнетик–антиферромагнетик. Возможно, такой переход имеет место и в исследуемых в настоящей работе соединениях. Чтобы подтвердить это предположение, необходимы дополнительные исследования магнитных свойств, а также вычисление магнитного вклада в теплоемкости (путем вычитания из теплоемкости магнитных соединений теплоемкости немагнитных изоструктурных компаундов). Такие исследования планируется провести в ближайшее время.

1. Впервые проведены измерения теплоемкости поликристаллов  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  в интервале температур 0,5–9 К в магнитных полях 0–10 кЭ.

2. Обнаружена  $\lambda$ -аномалия с максимумом при 6 и 6,6 К для  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  соответственно. Данная особенность связана с переходом в сверхпроводящее состояние, и под действием магнитного поля она смещается в область более низких температур.

3. Выявлено, что при  $T < 4$  К на зависимости  $C_M(T)$  наблюдается рост теплоемкости с понижением температуры для  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$ . В  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  мы также наблюдаем увеличение  $C_M(T)$  с понижением температуры, которое сопровождается возникновением максимума при  $T_{\text{max}} \approx 1,5$  К. В магнитном поле температура максимума не изменяется, однако величина теплоемкости при  $T_{\text{max}}$  заметно снижается с ростом поля вплоть до исчезновения максимума в поле 10 кЭ.

4. Высказано предположение, что рост теплоемкости с понижением температуры при  $T < 4$  К в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_{3,85}\text{Ru}_{0,15}\text{B}_4$  и  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$ , а также наличие максимума при  $T_{\text{max}} \approx 1,5$  К в  $\text{Dy}_{0,6}\text{Y}_{0,4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  обусловлены магнитным превращением в подсистеме диспрозия.

1. M.B. Maple and O. Fischer, *Superconductivity in Ternary Compounds II, Superconductivity and Magnetism*, Springer-Verlag-Berlin-Heidelberg-New York (1982).
2. V.M. Dmitriev, A.J. Zaleskii, E.P. Khlybov, L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, and A.V. Terekhov, *Acta Phys. Polon. A* **114**, 83 (2008).
3. В.М. Дмитриев, А.В. Терехов, А. Залеский, Е.Н. Хацько, П.С. Калинин, А.И. Рыкова, А.М. Гуревич, С.А. Глаголев, Е.П. Хлыбов, И.Е. Костылева, С.А. Лаченков, *ФНТ* **38**, 191 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 154 (2012)].
4. А.В. Терехов, *ФНТ* **39**, 827 (2013) [*Low Temp. Phys.* **39**, 640 (2013)].
5. В.М. Дмитриев, А. Залеский, Е.П. Хлыбов, Л.Ф. Рыбальченко, Е.В. Христенко, Л.А. Ищенко, А.В. Терехов, И.Е. Костылева, С.А. Лаченков, *ФНТ* **34**, 1152 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 909 (2008)].
6. В.М. Дмитриев, А. Залеский, Е.П. Хлыбов, Л.Ф. Рыбальченко, Е.В. Христенко, Л.А. Ищенко, А.В. Терехов, *ФНТ* **35**, 537 (2009) [*Low Temp. Phys.* **35**, 424 (2009)].
7. L.F. Rybaltchenko, E.V. Khristenko, L.A. Ishchenko, A.V. Terekhov, I.V. Zolochevskii, T.V. Salenkova, E.P. Khlybov, and A.J. Zaleski, *Fiz. Nizk. Temp.* **38**, 1403 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 1106 (2012)].
8. А.В. Терехов, И.В. Золочевский, Е.В. Христенко, Л.А. Ищенко, Е.В. Безуглый, А. Залеский, Е.П. Хлыбов, С.А. Лаченков, *ФНТ* **41**, 350 (2015) [*Low Temp. Phys.* **41**, 270 (2015)].
9. H.C. Hamaker and M.B. Maple, *Physica B+C* **108**, 757 (1981).

Low-temperature specific heat of magnetic superconductors  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_{3.85}\text{Ru}_{0.15}\text{B}_4$  and  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_4\text{B}_4$

A.V. Terekhov, I.V. Zolocheskii, L.A. Ishchenko, A. Zaleski, E.P. Khlybov, and S.A. Lachenkov

The heat capacity  $C_M(T)$  of the  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  and  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_{3.85}\text{Ru}_{0.15}\text{B}_4$  polycrystals in the temperature range 0.5–9 K and magnetic fields 0–10 kOe has been studied for the first time. The  $\lambda$ -anomaly is suppressed in the magnetic field and is shifted to lower temperatures. It is shown that the partial replacement of Rh on Ru enhances superconductivity that may be due to stronger internal magnetism sublattice dysprosium in  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_4\text{B}_4$  than  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_{3.85}\text{Ru}_{0.15}\text{B}_4$ . It is found that in  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_{3.85}\text{Ru}_{0.15}\text{B}_4$  the molar

heat capacity  $C_M(T)$  increases with decreasing temperature at  $T < 4$  K. The increase in  $C_M(T)$  with a decreasing temperature is accompanied by the appearance of a maximum at  $T_{\text{max}} = 1.5$  K in  $\text{Dy}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Rh}_4\text{B}_4$ . The maximum may be a manifestation of the magnetic phase transition in the subsystem dysprosium at this temperature.

PACS: **74.25.-q** Properties of superconductors;  
74.25.Ha Magnetic properties including vortex structures and related phenomena;  
74.25.N- Response to electromagnetic fields;  
74.70.Ad Metals; alloys and binary compounds (including A15,  $\text{MgB}_2$ , etc.).

Keywords: subsystem dysprosium, magnetism, superconductor, heat capacity.