

Вихревая структура в монокристаллах сверхпроводящих пниктидов железа

Л. Я. Винников⁺¹⁾, Т. М. Артемова^{+*}, И. С. Вещунов⁺, Н. Д. Жигadlo[∇], Я. Карпински[∇], П. Попович[□],
Г. Л. Сун[□], Ч. Т. Лин[□], А. В. Борис^{□△}

⁺ Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

^{*} Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Московская обл., Россия

[∇] Laboratory for Solid State Physics, ETH Zürich, 8093 Zürich, Switzerland

[□] Max Planck Institute for Solid State Research, D-70569 Stuttgart, Germany

[△] Department of Physics, Loughborough University, Loughborough, LE11 3TU, United Kingdom

Поступила в редакцию 14 июля 2009 г.

Исследована методом декорирования вихревая структура в монокристаллах пниктидов железа типов 122 : $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$, $Sr_{1-x}K_xFe_2As_2$ и 1111 – $SmFeAsO_{1-x}F_x$. Во всех исследованных кристаллах обнаружено отсутствие регулярной вихревой решетки в исследованном интервале полей до 200 Э. Разупорядоченная вихревая структура обсуждается в связи с проблемой пиннинга вихрей в монокристаллах.

PACS: 74.25.Qt, 74.70.–b, 74.72.–h

Интерес к сверхпроводящим слоистым соединениям на основе железа как к новому классу ВТСП уже нашел отражение в ряде обзоров [1–4], в которых проводятся сравнения с купратными сверхпроводниками [2, 3]. Как и купраты, сверхпроводящие пниктиды являются слоистыми соединениями, в которых слой Fe-As условно считается “сверхпроводящим”, в то время как остальные элементы в разделительных слоях поставляют носители в Fe-As слой. Однако анизотропия в этих соединениях не столь высока [5], чтобы считать их квазидвумерными, как семейство BSCCO, и по этому параметру они ближе к семейству YBCO. Кроме того, степень анизотропии сверхпроводящих пниктидов железа уменьшается при замене кислородсодержащих $R(O_{1-x}F_x)$ ($R=La, Sm, Nd \dots$) разделительных слоев на моноатомные $(A_{1-x}B_x)$ ($A=Ba, Sr, Ca, B=K, Cs, Na$). При этом кристаллическая структура семейства 1111 – $RFeAs(O_{1-x}F_x)$ соответствует тетрагональной симметрии и пространственной группе $P4/nmm$ (типа $ZrCuSiAs$), семейства 122 – $A_{1-x}B_xFe_2As_2$ – пространственной группе $I4/mmm$ (решетка типа $ThCr_2Si_2$). Исходные “родительские” соединения типа 122 и 1111 являются антиферромагнитными металлами в отличие от купратов [2]. Замещение в разделительных слоях приводит к электронному и дырочному допированию Fe-As

слоев в 1111 и 122 соединениях, соответственно, что подавляет антиферромагнетизм и способствует проявлению сверхпроводимости [1–4]. Сверхпроводимость также возникает в обеих структурах при электронном допировании непосредственным замещением кобальтом или никелем позиций железа в Fe-As слоях. К отличительным свойствам, которые указаны в [2], можно добавить необычно высокие критические токи (J_c), то есть сильный пиннинг в монокристаллах [6]. Так, например, $J_c = 10^6$ А/см² в поле 60 кГс на монокристаллах $SmFeAsO_{1-x}F_x$ [7]. Сообщения о высоких критических токах в монокристаллах на основе железосодержащих соединений [6, 7] и наблюдение разупорядоченной вихревой структуры в монокристаллах $Ba(Fe_{0.93}Co_{0.07})_2As_2$ в широком интервале магнитных полей от единиц мТл до 9 Тл, выполненных тремя независимыми методами (декорирование, нейтронная дифракция [8] и сканирующая туннельная микроскопия [9]) ставят вопрос о возможном необычном механизме пиннинга вихрей в пниктидах. Как известно, сильный пиннинг связан с неоднородностями кристалла размером порядка длины когерентности (ξ) сверхпроводника [10, 11]. Возникает вопрос, связана ли эта неоднородность собственно со сложной электронной структурой пниктидов, которая характеризуется многозонностью и влиянием магнитного Fe-3d момента, или носит несобственный характер и зависит от условий роста и качества кристаллов. В частности, од-

¹⁾e-mail: vinnik@issp.ac.ru

ной из возможных причин сильного пиннинга наблюдаемого в $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ [8, 9], могли бы быть дефекты кристаллического строения, связанные с Co замещением непосредственно в сверхпроводящих Fe-As плоскостях. В связи с этим представляет значительный интерес исследование вихревой структуры в кристаллах $\text{RFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ и $\text{A}_{1-x}\text{B}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$, в которых допирование Fe-As плоскостей не нарушает их структуру. Кроме того, аномальный пиннинг вихрей мог бы быть обусловлен фазовым расслоением с включением второй фазы размером $\sim \xi$. Действительно, на фазовое расслоение в недодопированных $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ кристаллах указывают недавние исследования методом мюонной спиновой релаксации (μSR) [12] и методом фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES) [13]. Однако следует ожидать, что такое фазовое расслоение сильно зависит от степени допирования.

В настоящей работе исследована методом декорирования [14] вихревая структура монокристаллов как электроннодопированных сверхпроводников $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ (Sm-1111), так и дырочнодопированных $\text{Ba}(\text{Sr})_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ (Ba(Sr)-122) с разной степенью допирования. Монокристаллы $\text{Ba}(\text{Sr})_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ были выращены в Институте Макса Планка (Штутгарт, Германия) в запаянной кварцевой ампуле, наполненной азотом, с использованием олова в качестве флюса или без него. Избыточное содержание калия около 30 вес.% добавлялось в шихту, чтобы компенсировать потери при высокой температуре плавления. Охлаждение проводилось со скоростью $3^\circ/\text{ч}$ до температуры 550°C . Выращенные кристаллы извлекались из флюса. Методика роста монокристаллов, составы и кристаллическая структура ранее детально описаны в [15]. Химический состав исследуемых монокристаллов контролировался с помощью локального рентгеноспектрального анализа, а температура сверхпроводящего перехода T_c – по резистивным измерениям или измерениям магнитной восприимчивости. Важно отметить, что монокристаллы Ba122#1 и #3 и Sr122 (см. таблицу) выращивались в оловянном флюсе, в то время как оптимально допированные монокристаллы Ba122#2 с максимальным значением $T_c = 38.5\text{ K}$ выращены без использования олова. Монокристаллы семейства 1111 $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ были выращены в ЕТН (Цюрих, Швейцария). Детали синтеза монокристаллов приведены в [7]. Монокристаллы типа 1111 синтезировать достаточно сложно, и в настоящее время они получаются очень мелкие, $\leq 250\text{ мкм}$ [7, 16] при синтезе под высоким давлением.

Образцы	Формула	T_c , К	λ^* , мкм
Ba122#1	$\text{Ba}_{0.8}\text{K}_{0.2}\text{Fe}_2\text{As}_2$	30	0.28 ± 0.03
Ba122#2	$\text{Ba}_{0.65}\text{K}_{0.35}\text{Fe}_2\text{As}_2$	38.5	0.2 ± 0.02
Ba122#3	$\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$	25	-
Sm1111	$\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$	45-53	0.2 ± 0.05
Sr122	$\text{Sr}_{0.85}\text{K}_{0.15}\text{Fe}_2\text{As}_2$	32	0.18 ± 0.03
BSCCO	$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-x}$	84	0.2 ± 0.03

Вихревая структура исследовалась на монокристаллах с оптически гладкой (блестящей) поверхностью на базисной плоскости, как ростовой, так и очищенной путем отслаивания поверхностного слоя с помощью скотча. Декорирование проводилось в режиме замороженного потока в магнитном поле, перпендикулярном базисной плоскости (параллельном оси c) в интервале $10 \div 200\text{ Э}$ при температуре $\sim 5\text{ K}$. В каждом эксперименте в качестве контрольного образца использовались монокристаллы BSCCO, которые размещались в камере декорирования рядом с исследуемым монокристаллом пниктида. При исследовании вихревой структуры на одном и том же образце в разных полях магнитные частицы от предыдущего декорирования удалялись промывкой изопропиловым спиртом или с помощью отщепления скотчем поверхностного слоя.

На рис.1a,c,d на одном и том же оптимально допированном монокристалле Ba122#2 (см. таблицу) ясно видно отсутствие порядка в расположении вихрей во всем исследованном интервале магнитных полей, в то время как на контрольном монокристалле BSCCO даже в самых малых полях наблюдается регулярная треугольная вихревая решетка (рис.1b). Такая картина для монокристалла Ba122#2 сохранялась до поля 200 Э , выше которого отдельные вихри уже плохо разрешаются, хотя на BSCCO отчетливо наблюдалась вихревая решетка. Аналогичная структура наблюдалась и для монокристаллов состава Ba122#1 и #3, но для Ba122#1 только до поля $\sim 80\text{ Э}$. На рис.2a показана вихревая структура на монокристалле Sm1111, где также не наблюдается регулярности в расположении вихрей. Из-за малого размера образцов и трудностей закрепления на подложке не удалось исследовать их вихревую структуру в разных магнитных полях. Вихревая структура в монокристаллах Sr122 наблюдалась только на отдельных участках поверхности (рис.2b).

Для всех исследованных образцов, где хорошо разрешалась вихревая структура, оценка величины кванта магнитного потока совпадала с теоретической, $2 \cdot 10^{-7}\text{ Гс}\cdot\text{см}^2$. В малых магнитных полях, когда хорошо разрешаются отдельные вихри, видимый “диаметр” изображения вихря может служить

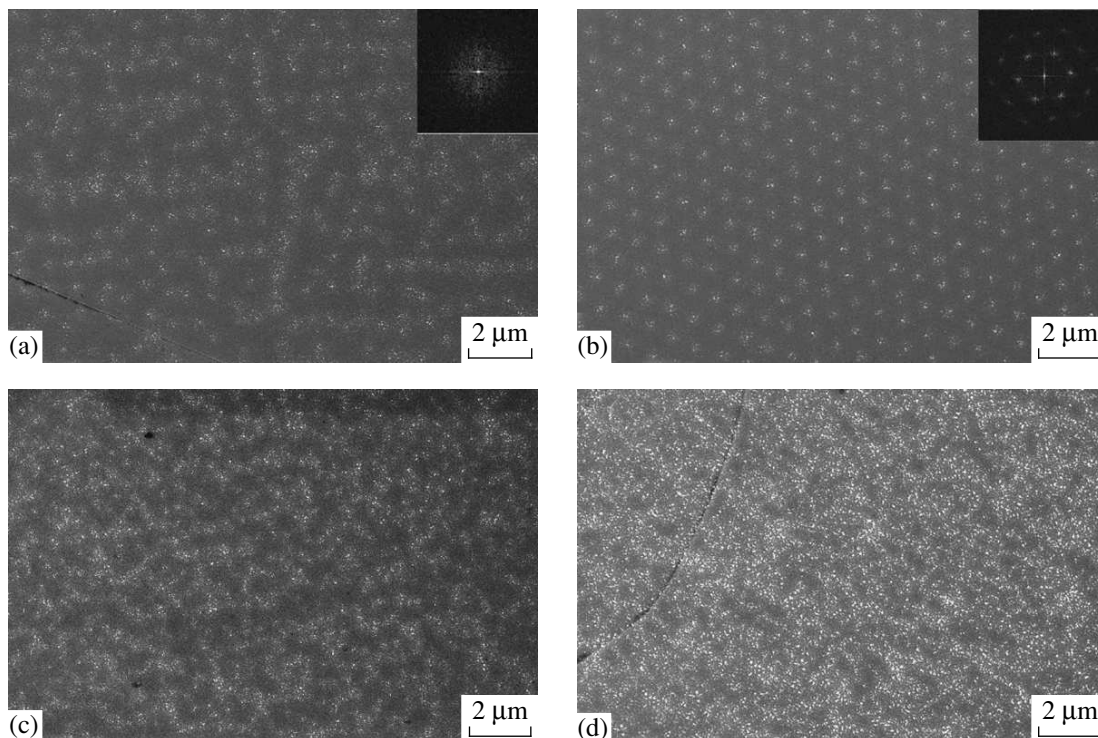


Рис.1. Вихревая структура в монокристаллах $\text{Ba}_{0.65}\text{K}_{0.35}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($T_c = 38.5$ K) и BSCCO – 2212 в магнитных полях: 30 Э (a) и (b), соответственно; (c) 80 Э и (d) 160 Э для $\text{Ba}_{0.65}\text{K}_{0.35}\text{Fe}_2\text{As}_2$. На вставках – фурье-картины в произвольном, но одинаковом для (a) и (b) масштабе

для верхней оценки величины лондоновской глубины проникновения магнитного поля λ^* [17]. Такая оценка, полученная из измерений в полях ниже 30 Э, дает для всех исследованных образцов значение $\lambda^* = 0.21 \pm 0.03$ мкм, кроме Ba122#1, для которого $\lambda^* = 0.28 \pm 0.03$ мкм. Заметное увеличение глубины проникновения для монокристаллов Ba122#1 объясняет невозможность разрешения вихревой структуры в полях выше 80 Э. Эти же данные, при известном значении параметра Гинзбурга-Ландау, могут дать нижнюю оценку для первого критического поля. Хотя точность таких измерений невысока, принимая во внимание сложность экспериментального определения величин абсолютных значений λ и H_{c1} , такие оценки не лишены смысла.

Основным результатом наблюдения вихревой структуры во всех исследованных в настоящей работе монокристаллах Fe-содержащих пниктидов является отсутствие вихревой решетки. Отметим, что на всех контрольных образцах BSCCO в каждом эксперименте всегда наблюдалась регулярная вихревая решетка. В совокупности с данными о высоких критических токах в исследованных монокристаллах $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2 - J_c = 10^5$ А/см² [6], Sm1111 – $J_c = 10^6$ А/см² (при температуре 5 K)

[7] наши результаты свидетельствуют о сильном пиннинге [8].

В настоящее время причина сильного пиннинга в монокристаллах пниктидов железа не выяснена. Эффективными центрами пиннинга могли бы служить наноразмерные частицы Co в монокристаллах $\text{Ba}(\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_2\text{As}_2$, обнаруженные с помощью сканирующего туннельного микроскопа, однако не наблюдалось никакой корреляции в распределении вихрей и этих частиц [9]. Вероятной причиной разупорядочения вихревой структуры в монокристаллах пниктидов могло бы быть электронное фазовое расслоение. Действительно, в нашей работе мы исследовали недодопированные монокристаллы Ba122#1 из той же серии образцов, сосуществование сверхпроводящей и магнитной фаз в которых экспериментально подтверждено [12, 13]. Однако мы не наблюдаем качественного отличия вихревой структуры для образцов Ba122#1 – 3 с разным уровнем допирования. Более того, согласно оценке, выполненной на основе низкотемпературных измерений теплоемкости, объем сверхпроводящей фазы в Ba122#2 не менее 98.5%, что указывает на отсутствие фазового расслоения в этих образцах. Тем не менее, вихревая решетка отсутствует (рис.1a,c,d).

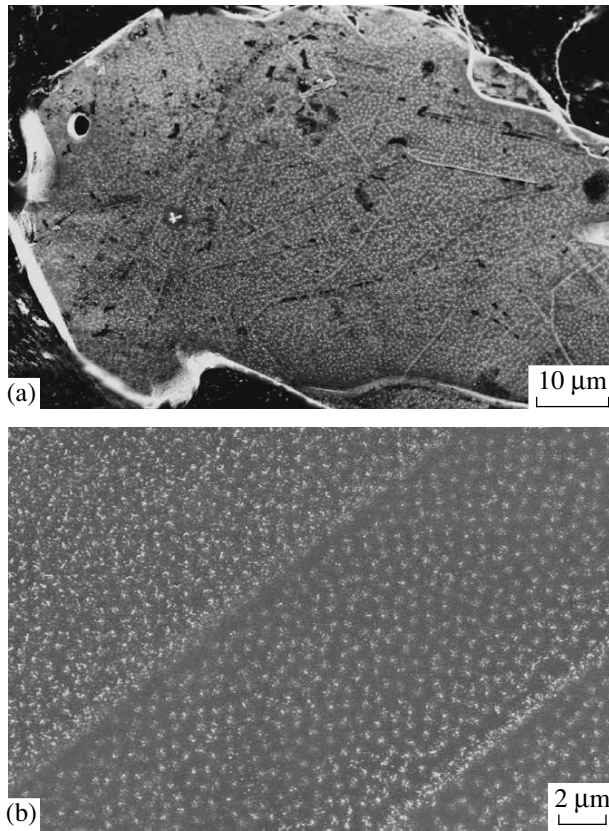


Рис.2. Вихревая структура в магнитном поле 46 Э в монокристаллах (a) $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ и (b) $\text{Sr}_{0.85}\text{K}_{0.15}\text{Fe}_2\text{As}_2$

Такие особенности не наблюдались в других многокомпонентных системах, как, например, в бездвойниковых YBCO(124) [18] или BSCCO(2212)[19], где в монокристаллах четко наблюдались вихревые решетки, а критические токи были на несколько порядков меньше. В то же время на монокристаллах MgB_2 , которые близки по условиям синтеза к соединению – Sm1111 [7], наблюдалась регулярная вихревая решетка [17]. Общим структурным элементом во всех исследованных монокристаллах является ”сверхпроводящий” Fe-As слой. Для кристаллов типа 122 в соединениях $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ замена Fe на Co может вносить нарушения в структуру самого сверхпроводящего Fe-As слоя, в то время как при допировании калием семейства 122 искажения вносятся в несверхпроводящую прослойку. Поскольку допирование приводит к нестехиометрии и возможным пространственным искажениям на атомном масштабе, меньшем длины когерентности сверхпроводника, оно само по себе не может приводить к сильному пиннингу вихрей, как это и наблюдается в случае ВТСП купратов. А именно, в монокристаллах YBCO и BSCCO

наблюдается регулярная вихревая решетка и доменная структура, обусловленная слабым коллективным пиннингом, в том числе и на кислородных вакансиях. Предположительно, именно взаимодействие неоднородности магнитного потока, создаваемого вихрями, с магнитной структурой Fe-As слоя [20] могло служить причиной необычной для монокристаллов вихревой структуры. Однако против такого соображения говорят наблюдения в малых полях, где поле в коре вихря слишком мало, чтобы говорить о его влиянии на магнитную структуру. Можно также предположить, что сильный пиннинг связан с необычным π - π -электронным упорядочением, обнаруженным в [21]. Чтобы дать объяснение сильному пиннингу в монокристаллах сверхпроводящих пниктидов, следует провести детальные структурные (рентгеновские и электронномикроскопические) исследования, в том числе и низкотемпературные с целью обнаружения неоднородностей размером порядка ξ , которые могли бы служить эффективными центрами пиннинга.

Таким образом, обнаружена разупорядоченная вихревая структура в монокристаллах нового семейства высокотемпературных сверхпроводников на основе слоистых соединений – пниктидов железа, которая не зависит от типа кристаллической структуры, допирования и методов синтеза. Это приводит к заключению о существовании внутренне присущего (intrinsic) механизма пиннинга вихрей в монокристаллах пниктидов железа, природа которого остается неясной. Принимая во внимание относительно слабую по сравнению с купратами анизотропию в пниктидах железа, следует ожидать сильный пиннинг и в поликристаллических образцах, что может оказаться перспективным для их практического применения.

Авторы Л.Я.В., Т.М.А. и И.С.В. выражают благодарность Е.Ю.Постновой за помощь в электронномикроскопическом исследовании, В.Н.Звереву и В.А.Гаспарову за измерение T_c . Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 07-02-00174). Работа швейцарской группы выполнена в рамках проекта MaNEP.

1. Kenji Ishida, Yusuke Nakai, and Hideo Hosono, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 062001 (2009).
2. М. В. Садовский, *УФН* **178**, 1243 (2008).
3. Ю. А. Изюмов, Э. З. Курмаев, *УФН* **178**, 1307 (2008).
4. А. Л. Ивановский, *УФН* **178**, 1273 (2008).
5. S. Weyeneth, R. Puzniak, N. D. Zhigadlo et al., *J. Supercond. Nov. Magn.* **22**, 347 (2009).
6. R. Prozorov, N. Ni, M. A. Tanatar et al., *Phys. Rev. B* **78**, 224506 (2008).

7. N. D. Zhigadlo, S. Katrych, Z. Bukowski et al., J. Phys.: Condens. Matter **20**, 342202 (2008).
8. M. R. Eskildsen, L. Ya. Vinnikov, T. D. Blasius et al., Phys. Rev. B **79**, 100501(R) (2009); Physica C **469**, 529 (2009).
9. Yi Yin, M. Zech, T. L. Williams et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 097002 (2009).
10. В. В. Шмидт, Г. С. Мкртчян, УФН **112**, 460 (1974).
11. А. Кемпбелл, Дж. Иветс, *Критические токи в сверхпроводниках*, Пер. с англ. М.: Мир, 1975.
12. J. T. Park, D. S. Inosov, Ch. Niedermayer et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 117006 (2009).
13. D. V. Evtushinsky, D. S. Inosov, V. B. Zabolotnyy et al., Phys. Rev. B **79**, 054517 (2009).
14. L. Ya. Vinnikov, I. V. Grigor'eva, and L. A. Gurevich, *The Real Structure of high-Tc Superconductors*, Ed. V. Sh. Shekhtman, Springer Series in Materials Science, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, vol. **23**, 1993, p.89.
15. G. L. Sun, D. L. Sun, M. Konuma et al., Cond-Mat. 0901.2728
16. J. Karpinski, N. D. Zhigadlo, S. Katrych et al., Physica C **469**, 370 (2009).
17. L. Ya. Vinnikov, J. Karpinski, S. M. Kazakov et al., Phys. Rev. B **67**, 092512 (2003).
18. Л. Я. Винников, Д. Э. Бойнагров, В. Н. Зверев и др., ЖЭТФ **136**, вып.8 (2009), в печати.
19. L. Ya. Vinnikov, L. A. Gurevich, G. A. Emel'chenko et al., Solid State Commun. **70**, 1145 (1989).
20. I. I. Mazin and M. D. Joannes, Nature Physics **5**, 141 (2009).
21. V. B. Zabolotnyy, D. S. Inosov, D. V. Evtushinsky et al., Nature **457**, 569 (2009).