

Наблюдение нескольких сверхпроводящих щелей в инфракрасных спектрах отражения $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$

Ю. А. Алещенко⁺¹⁾, А. В. Муратов⁺, В. М. Пудалов⁺, Е. С. Жукова^{*×}, Б. П. Горшунов^{*×}, Ф. Курт^{°2)}, К. Айда^{°2)}

⁺ Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{*} Институт общей физики им. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

[×] Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

[°] IFW Dresden, Institute for Metallic Materials, D-01171 Dresden, Germany

Поступила в редакцию 20 октября 2011 г.

Представлены результаты измерений спектров инфракрасного отражения пленки высокотемпературного сверхпроводника на основе железа состава $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$. Близость к единице коэффициента отражения на частотах ω , меньших $2\Delta/\hbar$ (2Δ – сверхпроводящая щель, \hbar – постоянная Планка), свидетельствует о том, что в этом соединении реализуется $s^{+/-}$ или $s^{+/+}$ симметрия сверхпроводящего параметра порядка. Продемонстрировано формирование нескольких сверхпроводящих щелей в спектрах инфракрасного отражения $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ при температурах ниже T_c .

Исследования свойств недавно открытых высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) на основе железа [1] и их сравнение со свойствами купратных ВТСП дают информацию, необходимую для понимания механизмов высокотемпературной сверхпроводимости. Энергетическая щель 2Δ в спектре квази-частичных возбуждений является одной из важнейших характеристик сверхпроводника. В соединениях на основе железа экспериментальные исследования этого параметра, а также механизмов сверхпроводимости затрудняются многозонностью их энергетического спектра. В этих материалах имеются две дырочные зоны в точке Γ зоны Бриллюэна и две электронные зоны в точках $X(0, \pm\pi)$. Поэтому можно ожидать существования нескольких типов сверхпроводящих (СП) конденсатов с различными величинами щелей [2–4].

Сложностью энергетического спектра сверхпроводников на основе железа, отличием качества и фазового состава исследованных ранее образцов, значительными экспериментальными погрешностями, а также разной чувствительностью различных методов к различным щелям можно объяснить большой разброс в полученных к настоящему времени экспериментальных значениях отношения величины сверхпроводящей щели к критической температуре: $2\Delta/k_B T_c = 1.6\text{--}10$ (k_B – постоянная Больцмана) [5–12]. До сих пор нет также надежных данных о типе симметрии параметра порядка в

этих материалах. В наиболее широко обсуждаемой $s^{+/-}$ -модели сверхпроводимости [13] считается, что СП-конденсаты электронных и дырочных зон железосодержащих ВТСП обладают сверхпроводящими параметрами порядка s -типа с температурной зависимостью, описываемой теорией Бардина–Купера–Шриффера (БКШ), и фазами противоположного знака. В различных экспериментальных работах сообщалось о наблюдении СП-щели как с симметрией s -типа [14, 15], так и с полюсами на поверхности Ферми, в которых фаза параметра порядка меняет знак, т.е. с симметрией d -типа [8, 16–18].

Спектроскопия в инфракрасном (ИК) диапазоне является прямым методом получения информации об энергетическом спектре носителей заряда в сверхпроводниках. В отличие от фотоэмиссии с угловым разрешением и туннельной спектроскопии вклад в ИК-отражение вносит относительно более толстый слой материала, приближая наблюдаемые свойства к свойствам объемного материала. Однако при исследовании этим методом пикетидов железа возникают трудности, связанные с тем, что характерные значения СП-щелей (при $T_c \sim 20\text{--}55$ К) лежат в далеком ИК и терагерцовом диапазонах, где эффективность ИК фурье-спектрометров резко падает. Нами выполнены исследования ИК-спектров отражения для пленки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ в широком диапазоне длин волн и температур. Высокая светосила используемого в наших исследованиях фурье-спектрометра Bruker IFS 125HR и высокая чувствительность приемников излучения позволили преодолеть указанные трудности

¹⁾ e-mail: yuriale@sci.lebedev.ru

²⁾ F. Kurth, K. Iida.

и провести измерения спектров ИК-отражения, в том числе и в далекой ИК-области.

Пленка площадью $4 \times 9 \text{ мм}^2$ осаждалась на подложку $(\text{La,Sr})(\text{Al,Ta})\text{O}_3$ путем распыления мишени $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ излучением KrF лазера с длиной волны 248 нм в условиях сверхвысокого вакуума [19]. Пленка имела зеркальную поверхность. По данным атомно-силовой микроскопии ее шероховатость характеризовалась среднеквадратичным отклонением менее 12 нм. Толщина пленки составляла $d = 90 \text{ нм}$. Она контролировалась кварцевыми весами в процессе напыления и впоследствии определялась с помощью атомно-силовой микроскопии и эллипсометрии. Фазовый состав пленки определялся с помощью рентгеноструктурного анализа и энергодисперсионной спектроскопии.

Измерения удельного сопротивления на постоянном токе четырехзондовым методом показали, что T_c образца составляет 20 К. При этом ширина перехода равна 2 К (начало перехода при 22 К). Спектры ИК-отражения с разрешением 1 см^{-1} измерялись в диапазоне $14000\text{--}8 \text{ см}^{-1}$ при использовании золотого зеркала в качестве образца сравнения. В качестве детекторов в зависимости от регистрируемого диапазона применялись охлаждаемые жидким азотом фотоприемники InSb (ближняя ИК-область), HgCdTe (средняя ИК-область) и охлаждаемый жидким гелием кремниевый болометр (дальний ИК-диапазон). Для измерений в интервале температур 5–300 К образец помещался в криостат $\text{Optistat}^{\text{CF-V}}$ фирмы Oxford Instruments с окнами из ZnSe и полиэтилена. В измерениях в далеком ИК-диапазоне использовались клиновидные окна из пластика TPX . Для улучшения соотношения сигнал/шум для каждого спектрального диапазона и температуры проводилось до 120 серий измерений по 10 сканирований с последующим усреднением.

На рис.1 представлены спектры ИК-отражения пленки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$, измеренные при температурах 300, 200, 100, 20 и 5 К. Малая толщина пленки и ее невысокая проводимость не позволили применить для анализа спектров процедуру Крамерса–Кронига с целью расчета оптической проводимости и диэлектрической проницаемости. Тем не менее некоторые важные выводы можно сделать и непосредственно из анализа спектров отражения.

В целом полученные спектры хорошо согласуются с полученными ранее ИК-спектрами пленок $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ из той же партии [20], в том числе и в далекой ИК-области, для которой в работе [20] спектры отражения были рассчитаны из данных прямых измерений терагерцовых спектров оп-

тической проводимости и диэлектрической проницаемости. В области волновых чисел выше 1000 см^{-1} проявляется широкая полоса, обусловленная межзонными переходами с максимумами в области 4400 и 20800 см^{-1} [20]. Провал в области 1000 см^{-1} может быть объяснен резонансным поглощением. Аналогичная особенность наблюдалась и ранее в спектрах ИК-отражения $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ [12, 21, 22], а также нелегированного BaFe_2As_2 [23, 24]. Она может быть связана с внутризонным переходом [25, 26]. Ряд относительно узких пиков в области $100\text{--}1000 \text{ см}^{-1}$ обусловлен фоновыми полосами в подложке $(\text{La,Sr})(\text{Al,Ta})\text{O}_3$.

Наши измерения позволили выявить дополнительную особенность в спектрах отражения при $\sim 900 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1), природа которой пока не ясна. В об-

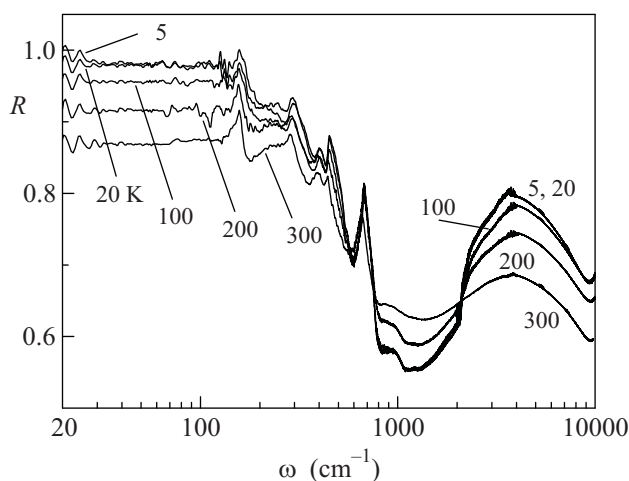


Рис. 1. Спектры ИК-отражения пленки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$

ласти ниже 30 см^{-1} в спектрах видны интерференционные осцилляции, возникающие вследствие переотражений внутри окон криостата. Этот аппаратный эффект, однако, не мешает анализу спектров.

Рост коэффициента отражения $R(\omega)$ при волновых числах, меньших 1000 см^{-1} , вызван коллективизированными электронами и дырками в различных зонах $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$. Из рис. 1 следует сильная температурная зависимость коэффициента отражения $R(\omega)$ при изменении температуры от 300 до 100 К. В то же время спектры, измеренные при 30–5 К, оказались практически совпадающими в области больших волновых чисел (выше 300 см^{-1}). Различие между ними проявляется только в области малых волновых чисел. Видно, что при температурах ниже температуры перехода $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ в сверхпроводящее состояние наблюдается увеличение коэф-

коэффициента отражения пленки до величин, весьма близких к 100%. Это является убедительным свидетельством формирования сверхпроводящей энергетической щели вследствие образования СП-конденсата.

Открытие при $T < T_c$ щели в электронной плотности состояний является фундаментальной особенностью сверхпроводящего состояния. Соответственно для сверхпроводящего состояния с изотропной СП энергетической щелью (s -тип симметрии параметра порядка) коэффициент отражения при температуре $5 \text{ K} \ll T_c$ достигает величин, близких к 100%, в области волновых чисел, меньших $2\Delta/hc$ (c – скорость света). Форма спектров $R(\omega)$ на рис.1 становится почти плоской в области волновых чисел, меньших 60 cm^{-1} , напоминая форму для сверхпроводника с s -типом спаривания. При волновых числах, больших $2\Delta/hc$, коэффициент отражения уменьшается, что приводит к формированию характерного пика на частотной зависимости отношения коэффициентов отражения в сверхпроводящем и нормальном состояниях, $R(T < T_c)/R(T \geq T_c)$. Спад амплитуды этого максимума в области малых волновых чисел обусловлен поглощением ВТСП при энергиях излучения, меньших величины сверхпроводящей щели. В многозонном сверхпроводнике соответствующие особенности, связанные с несколькими щелями, перекрываются, что затрудняет определение величин щелей.

На рис.2 в полулогарифмическом масштабе приведена частотная зависимость отношения

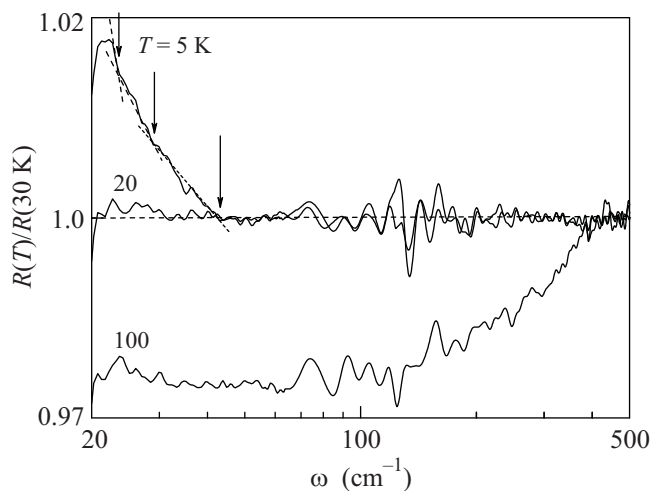


Рис.2. Спектры ИК-отражения пленки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ при различных температурах, нормированные на спектры, измеренные при 30 К

$R(T)/R(30 \text{ K})$, где R – коэффициенты отражения пленки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$, при температурах $T = 5, 20$ и 100 K . Проведенные для наглядности

пунктирные линии изображают кусочно-линейную аппроксимацию нормированного спектра в далекой ИК-области на правом пологом крыле пика. На частотной зависимости $R(5 \text{ K})/R(30 \text{ K})$ хорошо заметны изломы в областях $\sim 43 \text{ cm}^{-1}$ и 23.5 cm^{-1} , а также более слабая особенность при 29 cm^{-1} . На зависимостях $R(20 \text{ K})/R(30 \text{ K})$ и $R(100 \text{ K})/R(30 \text{ K})$ этот пик не проявляется, что позволяет связать найденные особенности с проявлением сверхпроводящих щелей 2Δ с энергиями 5.3 мэВ (43 cm^{-1}), 3.6 мэВ (29 cm^{-1}) и 2.9 мэВ (23.5 cm^{-1}). Подобные особенности на зависимости R_s/R_n для сверхпроводника с симметрией параметра порядка s -типа должны проявляться в виде ступенек. Однако конечная температура измерений и наложение особенностей, связанных с разными щелями, приводят к их размытию. Следует отметить, что в предыдущих измерениях авторов (БГ, ГК, КИ), выполненных методом терагерцовой спектроскопии [20] на образцах из той же партии, было обнаружено обращение оптической проводимости в нуль в области 30 cm^{-1} при температуре 5 K , свидетельствующее об открытии СП-щели. Поэтому слабая особенность при 29 cm^{-1} в спектре на рис.2 была интерпретирована нами как проявление СП-щели.

Само проявление СП-щелей в спектрах отражения в далекой ИК-области свидетельствует о том, что сверхпроводимость в исследованном образце $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ соответствует “грязному” пределу, т.е. частота рассеяния носителей заряда удовлетворяет соотношению $1/\tau \geq 2\Delta$ (τ – время релаксации). В этом случае спектральный вес коллективизированных носителей (конденсат) в спектрах ИК-отражения и оптической проводимости распределяется в широкой спектральной области, однако значительная часть конденсата сконцентрирована ниже энергий порядка 2Δ . В “чистом” пределе почти весь спектральный вес, обусловленный конденсатом, сосредоточен при энергиях, меньших 2Δ , поэтому в области 2Δ не наблюдается заметных изменений при переходе в сверхпроводящее состояние.

Полученными нами значениями СП-щели $2\Delta = 2.9, 3.6$ и 5.3 мэВ отвечают отношения $2\Delta/k_B T_c \approx 1.6, 2.0$ и 2.9 соответственно. Эти значения попадают в интервал данных $2\Delta/k_B T_c = 1.6\text{--}10$, приводимый в литературе для $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ [5–12]. Представленные результаты являются первым наблюдением нескольких сверхпроводящих щелей в соединении состава $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$.

В заключение отметим, что нами исследованы спектры ИК-отражения тонкой сверхпроводящей

пленки пниктида железа состава $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ с $T_c = 20$ К в широких спектральном и температурном диапазонах. Поведение спектров ИК-отражения $R(\omega)$ в дальнем ИК-диапазоне при $T < T_c$ указывает на спаривание s -типа в исследованном материале. Обнаружено проявление трех сверхпроводящих щелей в спектрах ИК-отражения при температурах ниже T_c : $2\Delta = 2.9, 3.6$ и 5.3 мэВ ($2\Delta/k_B T_c \approx 1.6, 2.0$ и 2.9). Возможность обнаружения СП-щелей в ИК-спектрах указывает на то, что в исследованном материале реализуется случай “грязного” предела.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Президиума Российской академии наук, Министерства образования и науки Российской Федерации, Немецкого исследовательского фонда (номер проекта HA 5934/3-1).

1. Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
2. D. J. Singh, *Physica C* **469**, 418 (2009).
3. K. Kuroki, H. Usui, S. Onari et al., *Phys. Rev. B* **79**, 224511 (2009).
4. D. V. Evtushinsky, D. S. Inosov, V. B. Zabolotnyy et al., *Phys. Rev. B* **79**, 054517 (2009).
5. K. Terashima, Y. Sekiba, J. H. Bower et al., *Proc. National Acad. Sci. U.S.A.* **106**, 7330 (2009).
6. H. Ding, P. Richard, K. Nakayama et al., *Europhys. Lett.* **83**, 47001 (2008).
7. F. Hardy, T. Wolf, R. Fisher et al., *Phys. Rev. B* **81**, 060501(R) (2010).
8. T. J. Williams, A. A. Aczel, E. Baggio-Saitovich et al., *Phys. Rev. B* **80**, 094501 (2009).
9. P. Szabó, Z. Pribulová, G. Pristáš et al., *Phys. Rev. B* **79**, 012503 (2009).
10. M. Yashima, H. Nishimura, H. Mukuda et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 103702 (2009).
11. K. Matano, Z. Li, G. L. Sun et al., *Europhys. Lett.* **87**, 27012 (2009).
12. K. W. Kim, M. Rössle, A. Dubroka et al., *Phys. Rev. B* **81**, 214508 (2010).
13. I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes, and M. H. Du, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 057003 (2008).
14. P. Samueli, Z. Pribylova, P. Szabo et al., *Physica C* **469**, 507 (2009).
15. Yi. Yin, M. Zech, T. L. Williams et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 097002 (2009).
16. R. T. Gordon, N. Ni, C. Martin et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 127004 (2009).
17. Y. Machida, K. Tomokuni, T. Isono et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 073705 (2009).
18. Y. Machida, K. Tomokuni, T. Isono et al., *Nature (London)* **459**, 64 (2009).
19. K. Iida, J. Hänish, R. Hühne et al., *Appl. Phys. Lett.* **95**, 192501 (2009).
20. B. Gorshunov, D. Wu, A. A. Voronkov et al., *Phys. Rev. B* **81**, 060509(R) (2010).
21. A. Dusza, A. Lucarelli, F. Pfuner et al., *Europhys. Lett.* **90**, 37005 (2010).
22. E. van Heumen, Y. Huang, S. de Jong et al., *Europhys. Lett.* **93**, 37002 (2011).
23. M. Nakajima, S. Ishida, K. Kihou et al., *Phys. Rev. B* **81**, 104528 (2010).
24. W. Z. Hu, J. Dong, G. Li et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 257005 (2008).
25. A. Kutepov, K. Haule, S. Y. Savrasov, and G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **82**, 045105 (2010).
26. Z. P. Yin, K. Haule, and G. Kotliar, *Nature Phys.* **7**, 1 (2010).