

# Вихревая структура в монокристаллах $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$

**Л. Я. Винников<sup>+1)</sup>, А. Г. Трошина<sup>+×</sup>, И. С. Вещунов<sup>+</sup>, Д. Аналитис\*, И. Фишер\*, Ю. Лиу<sup>○</sup>, Ч. Т. Лин<sup>○</sup>, Л. Фанг<sup>▽</sup>, Ю. Уэлл<sup>▽</sup>, В. К. Квук<sup>▽</sup>**

<sup>+</sup> Институт физики твердого тела, 142432 Черноголовка, Россия

<sup>\*</sup>Stanford University, Stanford, CA 94305, USA

<sup>×</sup>МГУ им. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

<sup>○</sup>Max Planck Institute for Solid State Research, 70569 Stuttgart, Germany

<sup>▽</sup>Argonne National Laboratory, IL 60439, USA

Поступила в редакцию 11 октября 2012 г.

Исследованы монокристаллы железосодержащих сверхпроводников  $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ , легированных фосфором. Вихревая структура изучалась с помощью метода декорирования. Для железосодержащих сверхпроводников на допированных фосфором монокристаллах наблюдались крупные домены треугольной вихревой решетки. Обсуждается влияние допирования на пиннинг в монокристаллах железосодержащих сверхпроводников.

**1.** Открытие в 2008 г. высокотемпературные сверхпроводники – пникиды, в состав которых входили ионы железа [1], вызвали большой интерес рядом необычных свойств. Кроме того, их открытие стимулировало интерес к другим сверхпроводникам, содержащим ионы железа, в частности к халькогенидам [2]. Исследование вихревой структуры стало возможным после синтеза пникидов в монокристаллическом состоянии. Одними из первых были выращены монокристаллы в системе  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  [3], достаточно совершенные и крупные для того, чтобы можно было изучать их вихревую структуру с помощью нейтронографии, метода декорирования [4], и туннельной микроскопии [5]. Неожиданным результатом этих исследований оказалось отсутствие регулярной треугольной вихревой решетки в широком диапазоне магнитных полей (от единиц мТ до 9 Т). Этот результат для монокристаллов соединений  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  был подтвержден и в других работах [6], использующих иные методики, в частности магнитосиловой микроскопии (МСМ) [7]. Далее круг исследований был распространен на широкий класс монокристаллов железосодержащих сверхпроводников:  $\text{RFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  и  $\text{A}_{1-x}\text{B}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ , где  $\text{R} = \text{Sm}$ ,  $\text{A} = \text{Ba}$ ,  $\text{Sr}$  и  $\text{B} = \text{K}$ , типов 122 ( $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ,  $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ), 1111 ( $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  [8]) и 11 ( $\text{FeSeTe}$  [9]). Упомянутые сверхпроводники отличаются большим разнообразием структурных типов и химического состава. При исследовании вихревой структуры в подавляющем

большинстве исследованных монокристаллов не обнаруживается регулярной вихревой решетки [6–9], за редким исключением [10]. Эти наблюдения коррелируют с достаточноенным пиннингом для монокристаллов [11], природа которого остается неясной. Недавно в работах [12] и [13] было высказано предположение о важной роли зарядового состояния допирующего элемента в механизме коллективного пиннинга [14]. Оно было основано на экспериментальном факте резкого уменьшения пиннинга (уменьшение плотности критического тока  $J_c$  на несколько порядков) в монокристаллах, допированных фосфором. Ранее в работах [8] и [9] также высказывалось предположение о возможности внутренне присущего (*intrinsic*) механизма пиннинга в монокристаллах железосодержащих сверхпроводников. Вместе с тем монокристаллы содержат обычные (“*extrinsic*” по терминологии [12] и [13]) центры пиннинга (химические неоднородности, ростовые дислокации, малоугловые границы и т.п.), которые трудно поддаются регулированию и контролю в процессе синтеза. Чтобы выяснить природу пиннинга, важно исследовать кристаллы, изготовленные в разных условиях.

**2.** В настоящей работе приводятся результаты исследования вихревой структуры в монокристаллах  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  методом декорирования [15]. Монокристаллы размером в несколько сот микрон в базисной плоскости и толщиной в несколько десятков микрон с разным уровнем допирования фосфором были выращены в лабораториях Стенфордского университета, США (SU), Института Макса Планка, Штутгарт, Германия (MPI) и Аргонской националь-

<sup>1)</sup> e-mail: vinnik@issp.ac.ru

ной лаборатории, США (ANL). Монокристаллы выращивались из нестехиометрического расплава исходных компонентов в тиглях или ампулах из  $Al_2O_3$  в вакууме или в атмосфере аргона при температурах 1050–1190 °С и медленно охлаждались до 900 °С (детали см. в [16, 17]). Оптимально допированные образцы имели максимальную критическую температуру сверхпроводящего перехода  $T_c \simeq 30$  К, а передопированные – до  $T_c \simeq 7$  К. Декорирование проводилось при температурах  $T_d \simeq 6$  К в режиме замороженного потока (*field cooling, FC*) в магнитном поле до 300 Э, перпендикулярном базисной плоскости. Визуализировались картины декорирования после отогрева образцов до комнатной температуры в сканирующем электронном микроскопе.

3. На рис. 1а представлена вихревая структура в монокристалле передопированного образца  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  с  $T_c \simeq 18$  К в магнитном поле 80 Э. На вставке показан фурье-образ с явно выраженным шестью максимумами, свидетельствующими о наблюдении регулярной треугольной вихревой решетки на значительной части картины. На рис. 1б эта же структура показана после компьютерной обработки с помощью делоне-триангуляции. Светлые области соответствуют ситуации, когда каждый вихрь имеет шесть ближайших соседей, а темные (“дефектные”) – когда координационное число отличается от шести. При этом серые области соответствуют координационному числу 5 или 7, а черные – остальным случаям.

Дефекты в решетке вихрей чаще всего расположены по границам доменов (рис. 2), что позволяет оценить их размер. В случае принятия за меру совершенства вихревой решетки отношения площади светлых областей к общей площади для картин декорирования с делоне-триангуляцией тенденции увеличения совершенства (размера доменов) с ростом концентрации фосфора в передопированных образцах не наблюдалось. Так, это отношение составляло 0.3 и 0.45 для образцов с  $T_c = 14$  и 18 К, соответственно. Для оптимально допированных образцов с  $T_c \simeq 30$  К это отношение оказалось менее 0.3. Заметного увеличения размера доменов не наблюдалось и с ростом магнитного поля как в оптимально допированных, так и передопированных монокристаллах. Не обнаружено монотонной зависимости изменения размера доменов с ростом концентрации фосфора для передопированных образцов. Качественно результаты наблюдения вихревой структуры на монокристаллах с одинаковым уровнем допирования фосфором, синтезированных в трех лабораториях (MPI, SU, ANL), аналогичны. Наиболее крупные домены с треуголь-

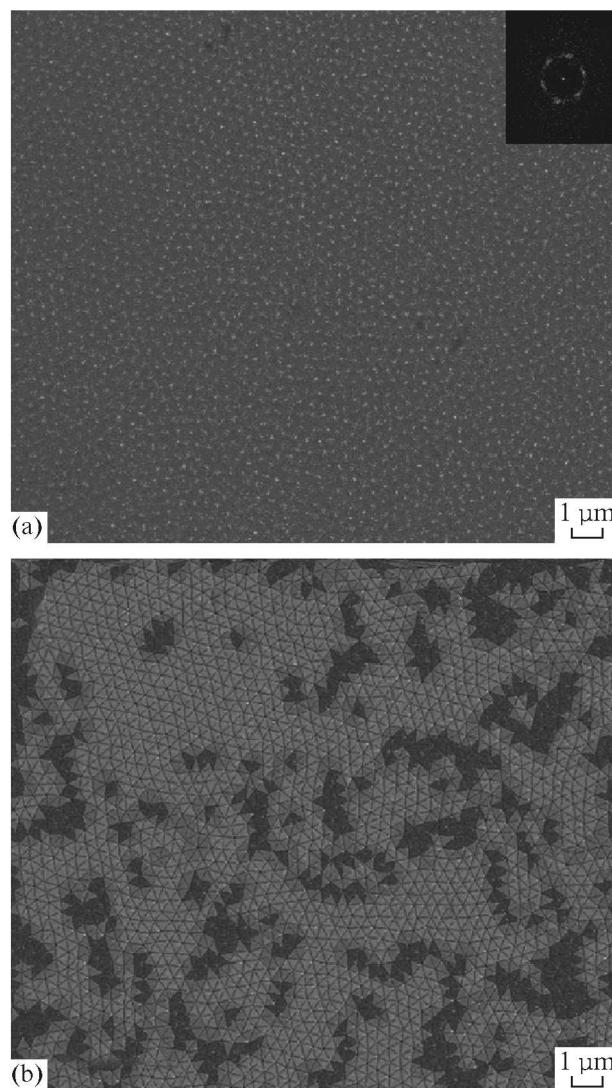


Рис. 1. (а) – Вихревая структура в монокристалле  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  ( $T_c = 18$  К) в магнитном поле 120 Э. (б) – Делоне триангуляция

ной вихревой решеткой наблюдались в передопированных кристаллах с  $T_c \simeq 18$  К, в то время как для оптимально допированных монокристаллов размер доменов составлял только несколько периодов вихревой решетки (рис. 3). Помимо типичных картин вихревой структуры (рис. 1–3), часто, особенно в оптимально допированных кристаллах, наблюдались “цепочки” вихрей (рис. 4) и другие неоднородности в вихревой структуре, реже – “майсснеровские” домены (рис. 5).

Основным результатом настоящей работы следует считать наблюдение достаточно больших упорядоченных областей (доменов) с регулярной треугольной решеткой. В монокристаллах, допированных фосфо-

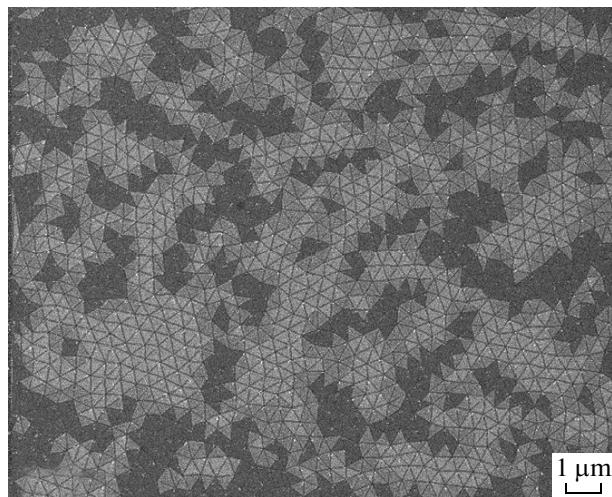


Рис. 2. Вихревая структура (делоне-триангуляция) передопированного монокристалла  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  ( $T_c \approx 14$  К) в магнитном поле 100 Т

ром, линейные размеры таких доменов составляют несколько десятков периодов вихревой решетки (см. рис. 1). В других монокристаллах пникидов [4, 6–8] и халькогенидах с ионами железа [9] этот размер составлял только несколько периодов вихревой решетки.

**4.** Возможное объяснение особенностей вихревой структуры в монокристаллах железосодержащих сверхпроводников лежит в природе механизма пиннигга в этих соединениях. Согласно представлениям, развивающимся в работах [12, 13], пиннинг в монокристаллах обусловлен флюктуациями плотности додирующего иона на масштабах параметра кристаллической решетки, соизмеримых с длиной когерентности в этих сверхпроводниках. При этом важную роль играет зарядовое состояние ионов. Действительно, изовалентное замещение ионов мышьяка фосфором приводит к уменьшению критического тока на несколько порядков по сравнению с монокристаллами других пникидов (в которых, например, ион двухвалентного бария замещается одновалентным ионом калия или двухвалентный ион кислорода замещается одновалентным ионом фтора). Оценки величины критической плотности тока в рамках модели коллективного пиннигга хорошо согласуются с экспериментальными данными как для электронно-допированных  $\text{PrFeAsO}_{1-y}$ ,  $\text{NdFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  и  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ , так и для дырочно-допированных  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  [18] монокристаллов. При этом вычисленная плотность центров пиннигга близка к концентрации додирующих ионов [12]. Можно полагать, что неупорядоченная вихревая структура в пник-

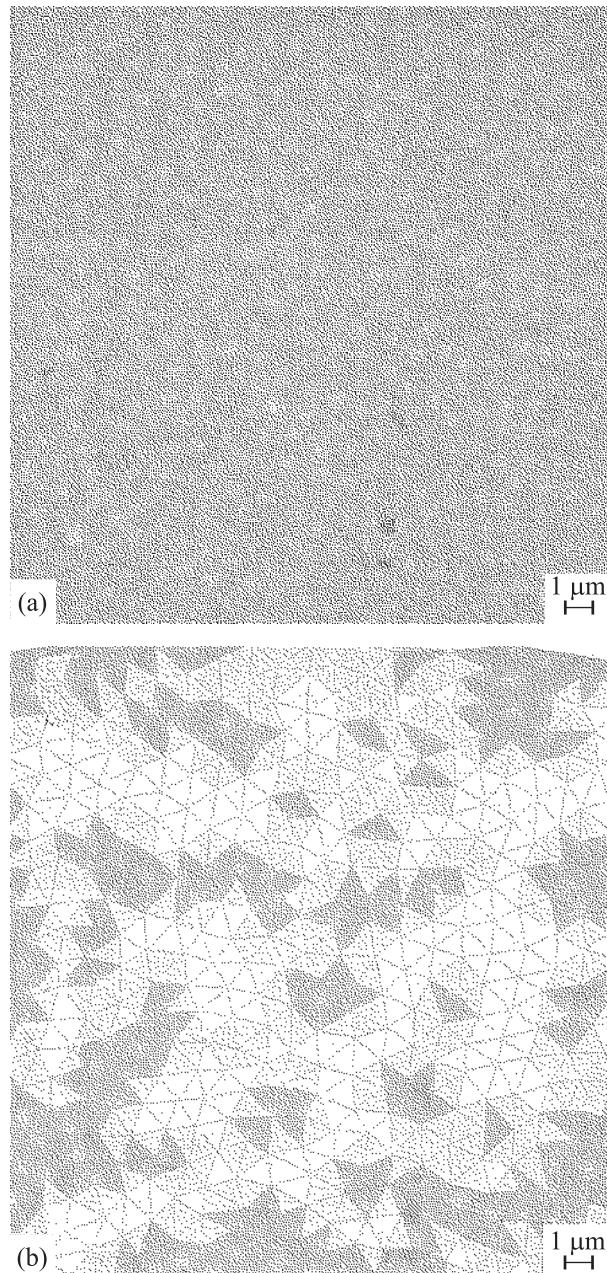


Рис. 3. Вихревая структура (а) и делоне-триангуляция (б) в оптимально допированном монокристалле  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  ( $T_c = 30$  К) в магнитном поле 20 Т

тидах обусловлена внутренне присущим (*intrinsic*) механизмом пиннигга вихрей на атомного масштаба пространственных флюктуациях заряженных додирующих ионов, которые представляют основной вклад в рассеяние носителей. Это так называемый  $\delta I$  (или  $\delta \kappa$ ) механизм пиннигга, связанный с пространственными флюктуациями длины свободного пробега носителей заряда  $I$  [13]. В изовалентно же додированных фосфором монокристаллах  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  пре-

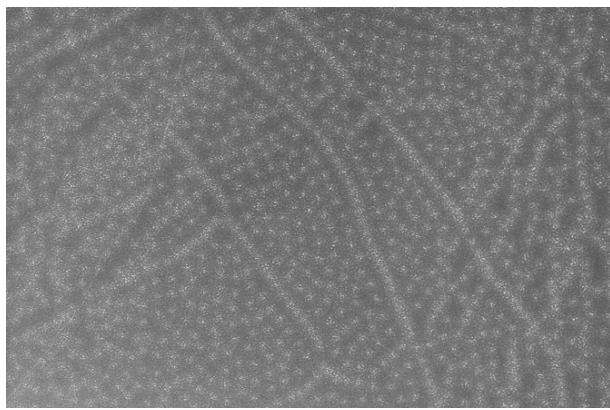


Рис.4. Вихревая структура в оптимально допированном монокристалле  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  в магнитном поле  $H = 60$  Т (участок с цепочками вихрей)

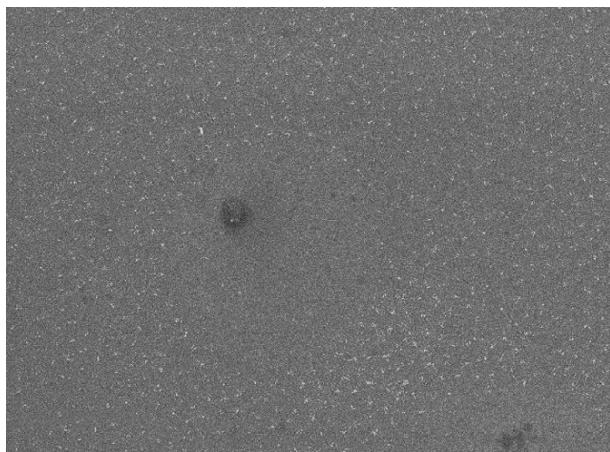


Рис.5. Вихревая структура в передодированном монокристалле  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  ( $T_c = 14$  К) с майсснеровскими областями в магнитном поле 100 Т

валирует “обычный” (extrinsic) механизм пиннинга на неоднородностях (дефектах кристалла, включени-ях, малоугловых границах и т.п.). Достаточно высокая плотность таких дефектов [9] может служить объяснением малого размера доменов вихревой решетки и наблюдавшихся неоднородностей вихревой структуры типа показанных на рис.3 и 4. Таким образом, роль допирования является ключевой для понимания особенности вихревой структуры в железосодержащих сверхпроводниках. Аргументом в пользу подобного влияния допирования может служить наблюдение методом нейтронной дифракции доменов регулярной треугольной вихревой решетки в монокристаллах  $KFe_2As_2$ , не допированных калием [10]. Дальнейшей проверкой этой гипотезы могло бы служить исследование вихревой структуры в дру-

гих пинктидах с изовалентным замещением (например, железа на рутений в соединениях  $BaFe_2As_2$  типа 122). Наличие регулярной вихревой решетки в соединении  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  можно считать достоверно установленным, так как недавно появилось сообщение о таких исследованиях на выращенных крупных монокристаллах методом нейтронной дифракции [19].

Работа поддержана грантом МНТИ-РФФИ # 11-02-92480.

1. Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano et al., *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
2. F. C. Hsu, J. Y. Lup, K. W. Yeh et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **105**, 14262 (2008).
3. N. Ni, M. E. Tilman, J.-Q. Yan et al., *Phys. Rev. B* **78**, 214515 (2008).
4. M. R. Eskildsen, L. Ya. Vinnikov, T. D. Blasius et al., *Phys. Rev. B* **79**, 100501(R) (2009); *Physica C* **469**, 529 (2009).
5. Y. Yin, M. Zech, T. L. Williams et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 097002 (2009).
6. S. Demidis, C. J. van der Beek, Y. Fazano et al., *Phys. Rev. B* **84**, 094517 (2011).
7. D. S. Inosov, S. Shapoval, S. Neu et al., *Phys. Rev. B* **81**, 014513 (2010).
8. Л. Я. Винников, Т. М. Артемова, И. С. Вещунов и др., Письма в ЖЭТФ **90**, 325 (2009).
9. Л. Я. Винников, А. В. Радаев, И. С. Вещунов, Письма в ЖЭТФ **93**, 317 (2011).
10. H. Kawano-Furukawa, C. J. Bowell, J. S. White et al., *Phys. Rev. B* **84**, 024507 (2011).
11. N. D. Zhigadlo, S. Katrych, Z. Bukowski et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 342202 (2008).
12. C. J. van der Beek, M. Konchukowski, S. Kasahara et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 267002 (2010).
13. C. J. van der Beek, G. Rizza, M. Konchukowski et al., *Phys. Rev. B* **81**, 174517 (2010).
14. A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *J. Low Temp. Rhys.* **34**,(3,4) 409 (1979).
15. L. Ya. Vinnikov, I. V. Grigor'eva, and L. A. Gurevich, *The Real Structure of high- $T_c$  Superconductors, Springer Series in Materials Science*, 23 (ed. by V. Sh. Shekhtman), Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1993, p. 89.
16. G. L. Sun, D. L. Sun, M. Konuma et al., *J. Supercond Nov Magn* **24**, 1773 (2011).
17. J. G. Analytis, J.-H. Chu, R. D. McDonald et al., *PRL* **105**, 207004 (2010).
18. S. R. Ghorbani, X. L. Wang, M. Shahbazi et al., *Appl. Phys. Lett.* **100**, 212601 (2012).
19. H. Kawano-Furukawa, A. S. Cameron, E. Blackburn et al., *III International Conference on Superconductivity and Magnetism, Book of Abstract.* , 2012, p. 641.