

Визуализация структуры магнитного потока в допированных фосфором монокристаллах EuFe_2As_2

И. С. Вещунов^{a,b}, Л. Я. Винников^{c,1}, В. С. Столяров^{a,c}, Н. Чжоу^{d,2}, Ч. С. Ши^{d,2}, С. Ф. Сю^{e,2},
С. Ю. Гребенчук^a, Д. С. Баранов^{a,c,f}, И. А. Головчанский^{a,g}, С. Пион^{b,2}, Ю. Сун^{b,h,2}, В. Джао^{i,2}, Г. Цао^{i,2},
Т. Тамегай^{b,2}, А. А. Голубов^{a,j}

^aМосковский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

^bDepartment of Applied Physics, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

^cИнститут физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^dDepartment of Physics and Key Laboratory of MEMS of the Ministry of Education, Southeast University, 211189 Nanjing, China

^eDepartment of Physics, Hangzhou Normal University, 310036 Hangzhou, China

^fLaboratoire de physique et d'étude des matériaux, LPEM-UMR8213/CNRS-ESPCI ParisTech-UPMC, 75005 Paris, France

^gНациональный исследовательский технологический университет "МИСиС", 119049 Москва, Россия

^hInstitute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 277-8581 Kashiwa, Japan

ⁱDepartment of Physics, Zhejiang University, 310027 Hangzhou, China

^jMESA+ Institute for Nanotechnology, University of Twente, 7500 AE Enschede, The Netherlands

Поступила в редакцию 30 ноября 2016 г.

Методами низкотемпературной магнитно-силовой микроскопии и декорирования ферромагнитными наночастицами исследована структура магнитного потока на поверхности монокристаллов $\text{EuFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ с близким к оптимальному уровню допирования фосфором $x = 0.20$ и 0.21 . Исследования проведены в широком диапазоне температур. Для монокристалла с уровнем допирования фосфором $x = 0.21$ в интервале температур между сверхпроводящим $T_{SC} = 22$ К и ферромагнитным $T_C = 18 \pm 0.3$ К фазовыми переходами показана типичная для сверхпроводников второго рода вихревая структура замороженного магнитного потока. Ниже температуры ферромагнитного перехода в сверхпроводящем состоянии обнаружена магнитная доменная структура, природа которой обсуждается.

DOI: 10.7868/S0370274X17020060

Сосуществование сверхпроводимости и магнитного упорядочения является объектом пристального внимания последних лет [1]. В настоящее время достаточно хорошо исследованы электронно-транспортные и магнитные свойства монокристаллов так называемых магнитных сверхпроводников в целом ряде соединений: борокарбидах [2], соединениях с ураном [3], купратных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [4], железосодержащих сверхпроводниках [5].

Как в теории [6, 7], так и в эксперименте [8], одним из важных аспектов сосуществования сверхпроводимости и магнетизма является микроструктура

магнитного потока, а также ее динамика при изменении температуры и внешнего магнитного поля. До последнего времени доступность экспериментальных методов визуализации структуры магнитного потока, таких как магнитно-силовая микроскопия (МСМ) [9], декорирование магнитными наночастицами [10], ограничивалась как низкими температурами сверхпроводящих и магнитных фазовых переходов известных монокристаллов, так и необходимостью высокого пространственного разрешения. Относительно недавно были синтезированы новые железосодержащие соединения $\text{AFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ (где $\text{A} = \text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca}, \text{Eu}$). Допирование таких соединений фосфором приводит к появлению сверхпроводимости [11]. В монокристаллах $\text{EuFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ сверхпроводимость существует в узком интервале допирования $x = 0.14 \div 0.25$ (или концентраций фосфора $7.0 \div 12.5$ ат. %) с

¹)email: vinnik@issp.ac.ru

²)N. Zhou, Z. X. Shi, X. F. Xu, S. Pyon, Yue Sun, Wenhe Jiao, Guanghan Cao, T. Tamegai

максимальной температурой сверхпроводящего перехода $T_{SC}^{\max} = 27$ К [12, 13]. Магнитный переход в подсистеме Eu^{2+} наблюдается при температурах $T_C \sim 17 \div 20$ К и слабо зависит от содержания фосфора (степени допирования) в указанном интервале концентраций [12, 13]. Ранее визуализация магнитного потока была реализована методом МСМ на искусственных тонкопленочных гибридных структурах сверхпроводник/ферромагнетик (Nb/FeNi) [8], где одновременно наблюдалась и доменная структура, и вихри Абрикосова, замороженные в сверхпроводнике. При этом температура Кюри T_C ферромагнитных слоев была выше критической температуры сверхпроводящего перехода T_{SC} в ниобиевых пленках. Также, в объемных пространственно однородных сверхпроводящих монокристаллах $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ($T_{SC} = 10.5$ К) с помощью метода декорирования нами наблюдались вихревые структуры, которые интерпретировали как следы существования доменных границ слабо ферромагнитной фазы с $T_C = 2.3$ К [14].

В настоящей работе исследована структура магнитного потока методами МСМ и декорирования в монокристаллах $\text{EuFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ с уровнем допирования фосфором $x = 0.20$ и 0.21 в широком диапазоне температур, где, в отличие от гибридных систем, отсутствует поверхность раздела, а сосуществование сверхпроводимости и магнетизма реализуется на атомном масштабе.

Монокристаллы $\text{EuFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ были синтезированы методом роста из расплава собственных компонентов “self-flux” [15]. Фактический состав монокристаллов был определен с помощью локального рентгеноспектрального микроанализа на растровом микроскопе Carl Zeiss Supra 50 VP, с разрешением по энергии (EDX). Монокристаллы $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.80}\text{P}_{0.20})_2$ и $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$ размером $1 \times 1 \times 0.012$ мм с атомно-гладкой поверхностью, использованные для декорирования и МСМ исследований соответственно, были получены путем механического отщепления. Температурная зависимость намагниченности и кривая намагничивания измерялись на СКВИД-магнетометре Quantum Design MPMSXL5 в полях до 5 Тл. Исследования поверхности и структуры магнитного потока проводились с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) AttoCube AttoDry 1000 с криогенной системой замкнутого цикла, обеспечивающей базовую температуру 4 К. В качестве зондов применялись кремниевые магнитные кантилеверы фирмы Bruker марки MESP, покрытые слоем CoCr , со следующими характеристиками при 4.2 К: резонансная частота кантилевера – 87 кГц, констан-

та жесткости – 2.8 Н/м, коэрцитивная сила около 1400 Э. АСМ/МСМ измерения проводили в атмосфере обменного газа (гелия) при давлении $P \sim 0.5$ мбар в диапазоне температур от 4 до 30 К, изменение которых контролировали с высокой точностью (± 0.001 К). Перед сканированием МСМ зонды были намагничены в поле 2 кЭ при температуре выше температуры $T_{SC} = 22$ К сверхпроводящего перехода образца $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$. Исследование топографии поверхности проходило в полуконтактном режиме, а структуры магнитного потока – в режиме МСМ с выключенной обратной связью на высоте 110 нм над поверхностью образца, с направлением быстрого сканирования по оси Y . Для получения МСМ изображений измеряли сдвиг фазы колебаний магнитного кантилевера. Декорирование поверхности монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.80}\text{P}_{0.20})_2$ магнитными частицами железа (~ 10 нм) выполняли в режиме замороженного потока (FC) при гелиевых температурах [10].

На рис. 1 представлены типичные результаты измерений магнитных свойств одного из исследуемых монокристаллов $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$. Рис. 1а демонстрирует зависимости намагниченности монокристалла от температуры, измеренные в режиме замороженного потока (FC) и в нулевом магнитном поле (ZFC). Температура сверхпроводящего перехода показана правой стрелкой и соответствует $T_{SC} = 22$ К. Особенности вблизи ступенек на ZFC и FC температурной зависимости намагниченности связываются с ферромагнитным переходом. Отметим, что переход в сверхпроводящее состояние также сопровождается появлением остаточной намагниченности при охлаждении во внешнем поле 10 Э. На рис. 1b показана зависимость намагниченности от приложенного магнитного поля, параллельного оси c кристалла. (Для образца с уровнем допирования фосфором $x = 0.20$ температурная зависимость намагниченности и кривая намагничивания при 4 К имеют аналогичный вид, только с более высокой температурой сверхпроводящего перехода и более широкой петлей гистерезиса.)

На рис. 2 отображены результаты АСМ/МСМ исследований. Рис. 2а демонстрирует рельеф исследуемой области монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$ размером 8×8 мкм в режиме АСМ. Высота ступеньки составляет ~ 100 нм. Рис. 2b представляет распределение магнитного потока над поверхностью, показанной на рис. 2а, при температуре $T = 17.27$ К. Такая структура характерна для всего исследованного интервала температур ниже температуры Кюри и исчезает после отогрева выше T_C . Таким образом, наблюдаемый знакопеременный контраст свя-

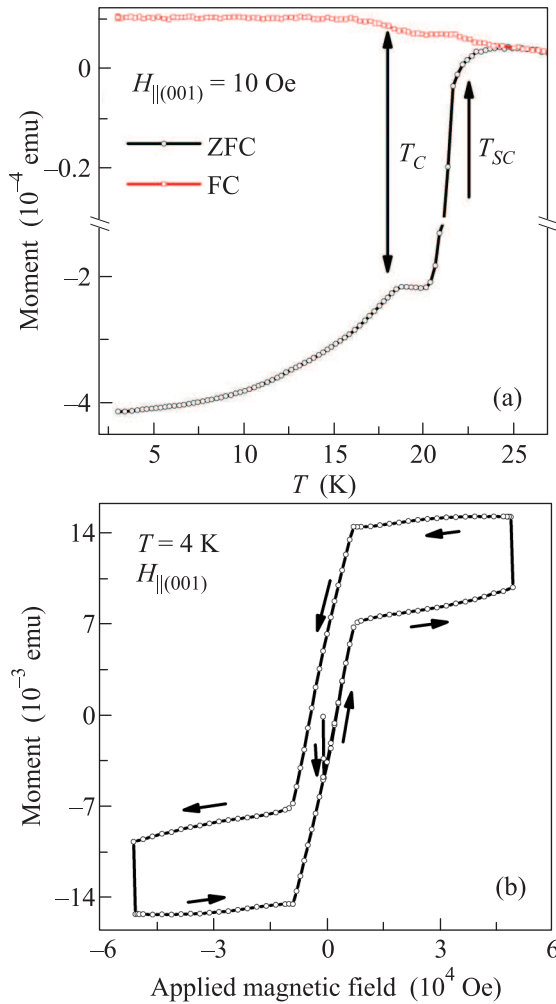


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость намагниченности и кривая намагничивания для образца $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$. (a) – Зависимость намагниченности от температуры, измеренная в режиме замороженного потока (FC) в поле, параллельном оси с кристалла, и в нулевом магнитном поле (ZFC). Переходы в сверхпроводящее и ферромагнитное состояние наблюдаются при $T_{SC} = 22$ К и $T_C = 18 \pm 0.3$ К соответственно (отмечены стрелками). (b) – Зависимость намагниченности монокристалла от поля при температуре $T = 4$ К

зывается с магнитной доменной структурой. Важно отметить, что доменная структура наблюдалась не только без приложения внешнего магнитного поля, но и при охлаждении в малых полях $H < 100$ Э. На рис. 2с представлено распределение магнитного потока в сверхпроводящем состоянии, в небольшом интервале температур выше T_C . Наблюдаемый контраст (светлые пятна) соответствует изображению абрикосовских вихрей с индукцией $\Phi_0/a^2 \sim 6$ Гс, где Φ_0 – квант магнитного потока, a – среднее расстояние между вихрями.

На рис. 3 показана типичная структура магнитного потока, наблюдаемая методом декорирования, на поверхности (001) монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.80}\text{P}_{0.20})_2$ с температурой сверхпроводящего перехода $T_{SC} = 24$ К. При низкотемпературных МСМ измерениях исследовали только небольшой участок поверхности образца $\sim (8 \times 8)$ мкм, тогда как методом декорирования наблюдали магнитную структуру практически на всей поверхности образца. В соответствии с принципом формирования контраста для ферромагнитных доменов в методе декорирования [16, 17] область скопления магнитных частиц (светлая) трактуется как домен одного направления намагниченности, в то время как темная область (без частиц или со значительно меньшей их плотностью) – как домен с противоположным знаком намагниченности. Можно видеть, что при совмещении масштабов доменная структура аналогична показанной на рис. 2b. Период доменной структуры составляет около 0.9 мкм. Вместе с тем, разрешаются и более тонкие детали доменной структуры (рис. 3b). Результаты магнитных измерений и наблюдений магнитной структуры с помощью МСМ и декорирования однозначно показывают, что монокристаллы $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$ и $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.80}\text{P}_{0.20})_2$ представляют собой сверхпроводники с ферромагнитным упорядочением, температура сверхпроводящего перехода T_{SC} которых превышает температуру Кюри T_C .

Полученные экспериментальные результаты можно интерпретировать следующим образом. Из зависимостей, представленных на рис. 1а, следует, что при охлаждении в режиме ZFC намагниченность принимает отрицательные значения ниже температуры перехода в сверхпроводящее состояние $T_{SC} = 22$ К. При дальнейшем охлаждении диамагнитный эффект ослабляется после ферромагнитного перехода в подсистеме Eu^{2+} . Точное определение температуры Кюри по наблюдению особенностей на температурных зависимостях намагниченности, измеренных в ZFC и FC режимах, затруднительно в связи с действием конкурирующих механизмов сверхпроводящего и ферромагнитного упорядочения. Так, в работах [12] положение максимумов на FC и ZFC температурных зависимостях намагниченности наблюдается при $T \sim 17.7$ К, в то время как по измерениям теплоемкости температура Кюри составляет $T_C = 19$ К. В нашем случае температура перехода в ферромагнитное состояние T_C связывается с температурой, при которой впервые обнаруживается доменная структура: $T_C = 17.7$ К. Зависимость намагниченности от внешнего маг-

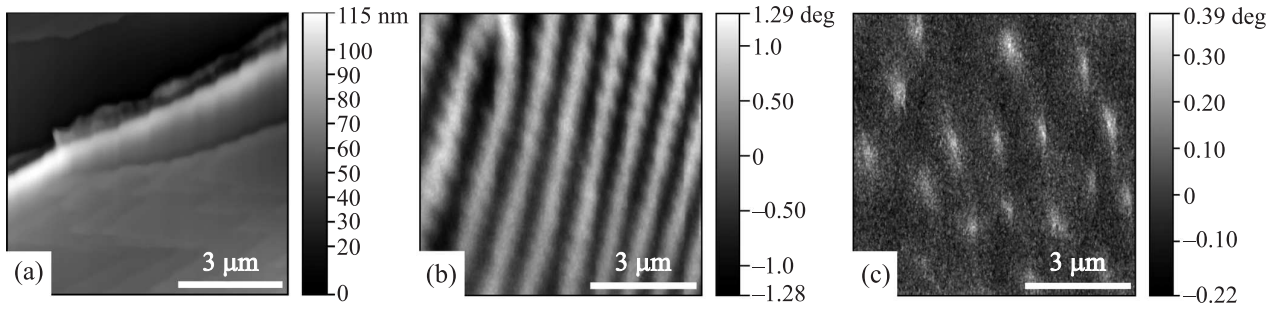


Рис. 2. Изображение топографии и магнитной структуры на поверхности монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$. (a) – Топография поверхности в состоянии магнитного насыщения ферромагнитной подсистемы Eu^{2+} в поле $H = -0.9$ Т, параллельном оси c . (b) – Доменная магнитная структура после охлаждения в режиме ZFC до минимальной температуры $T_{\min} = 4.16$ К с последующим отогревом до $T = 17.27$ К. (c) – Вихревая структура, полученная после охлаждения при $T = 18.15$ К и с остаточной индукцией $\Phi_0/a^2 \sim 6$ Гс

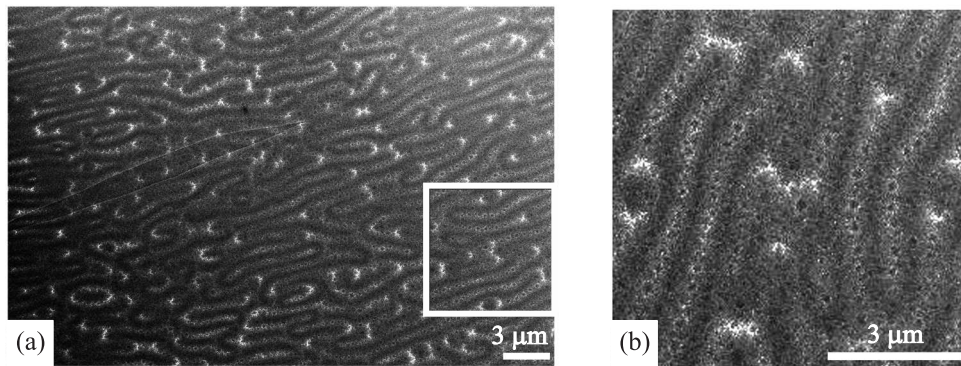


Рис. 3. (a) – Структура магнитного потока на поверхности (001) монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.80}\text{P}_{0.20})_2$ в магнитном поле 10 Э, при температуре декорирования $T_d \sim 8$ К. (b) – Увеличенное изображение участка, выделенного белым квадратом на рис. 3а, с аналогичным масштабом и ориентацией доменной структуры, показанной на рис. 2b

нитного поля (см. рис. 1b) является результатом наложения типичной петли гистерезиса сверхпроводника второго рода (плотность критического тока J_c в приближении модели Бина пропорциональна ширине петли гистерезиса) и кривой намагничивания ферромагнитной подсистемы Eu^{2+} [12].

Магнитная природа контраста доменной структуры (см. рис. 2b и рис. 3a) подтверждается отсутствием чувствительности МСМ зонда к мелким деталям рельефа поверхности, например, ступеньке высотой порядка 100 нм. Знакопеременный (фазовый) контраст на доменах свидетельствует о перпендикулярной магнитной анизотропии и соответствует антипараллельному направлению намагниченности в соседних доменах.

При декорировании отдельные вихри не могли быть разрешены, поскольку ожидаемая индукция внутри доменов порядка 0.9 Тл ($M_s 714$ СГСМ/см³) при гелиевых температурах [12], а разрешение метода декорирования по индукции меньше 0.2 Тл [18]. Пространственное разрешение МСМ также не поз-

воляет различить отдельные вихри, если локальная индукция в доменах значительно превышает 100 Гс [19]. Вместе с тем, тонкую структуру доменов, представленную на рис. 3b, можно объяснить в рамках картины ветвления доменов ферромагнетиков [20]. Альтернативным вариантом является так называемое промежуточно-смешанное состояние [21], реализуемое при толщине кристалла, много большей ширины доменов, и характеризующееся чередованием сверхпроводящих (мейсснеровских) доменов и доменов в смешанном состоянии (с абрикосовскими вихрями). В отличие от структуры промежуточно-смешанного состояния, в рамках картины ветвления доменов, поля вихрей в соседних доменах в наблюдаемых структурах должны быть направлены в противоположные стороны. Теоретически такая возможность рассмотрена в работе [7]. Согласно этой модели, тип и характер доменной структуры, образующейся в ферромагнитном сверхпроводнике, зависят от соотношения конкретных параметров (магнитных и сверхпроводящих): спонтанной намагниченности в

домене (M_s), лондоновской глубины проникновения поля (λ), нижнего критического поля (H_{c1}) и ширины доменной стенки w . Дальнейшие измерения этих параметров и изучение тонкой структуры доменов позволят прояснить механизм сосуществования и взаимовлияния сверхпроводимости и ферромагнетизма в исследуемых монокристаллах.

Основным результатом настоящей работы является наблюдение магнитной доменной структуры в сверхпроводящих объемных монокристаллах $\text{EuFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ с уровнем допирования фосфором: $x = 0.20$ и 0.21 , при охлаждении в нулевом магнитном поле, а также наблюдение исчезновения указанной структуры для монокристалла $\text{EuFe}_2(\text{As}_{0.79}\text{P}_{0.21})_2$ при нагреве выше температуры Кюри $T_C = 17.7\text{K}$. Таким образом, впервые в объемных монокристаллах, температура сверхпроводящего перехода T_{SC} которых превышает температуру Кюри T_C , обнаружена доменная структура, что однозначно указывает на сосуществование магнетизма и сверхпроводимости в исследуемом материале.

Наблюдение структуры магнитного потока с помощью метода АСМ/МСМ и декорирования в реальном пространстве (в отличие от рентгенографических и нейтронографических исследований), несут важную информацию о топологии, реальных масштабах и форме доменов. Вместе с тем, только дальнейшие комбинированные исследования, включающие как дифракционные, так и сканирующие методики, в особенности, высокоразрешающий метод СТМ, а также декорирование в широком интервале температур и магнитных полей, помогут прояснить детальный механизм сосуществования сверхпроводимости и ферромагнетизма в ферромагнитных сверхпроводниках.

Авторы И.С.В., Л.Я.В. и В.С.С. благодарят В.В.Рязанова, Л.С.Успенскую, С.И.Божко и А.И.Буздина за плодотворные дискуссии. Авторы выражают благодарность В.В.Дремову, Е.Ю.Постновой, А.Г.Шишкину и Л.Г.Исаевой за помощь в работе. Авторы Н.Ч., Ч.С.Ш., С.Ф.С., В.Д., Г.Ц. благодарят Национальный Научный Фонд Китая (#11474252, 1611140101 и U1432135) за финансовую поддержку при изготовлении образцов. В.С.С., Д.С.Б. и И.А.Г. выражают благодарность РФФИ (гранты #16-32-60133 мол-а-дк и #16-32-00309 мол-а). В.С.С., И.С.В. и А.А.Г. выражают благодарность Минобрнауки (грант #14.Y26.31.0007) за поддержку при проведении МСМ исследований.

1. A. D. Huxley, *Physica C* **514**, 368 (2015); C. T. Wolowiec, B. D. White, and M. B. Maple, *Physica C* **514**, 113 (2015).
2. L. C. Gupta, *Adv. Phys.* **55**, 691 (2006).
3. N. T. Huy, A. Gasparini, D. E. deNijs, Y. Huang, J. C. P. Klaasse, T. Gortenmulder, A. de Visser, A. Hamann, T. Görlach, and H. V. Löhneysen, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 067006 (2007); D. Aoki, A. Huxley, E. Ressouche, D. Braithwaite, J. Flouquet, J. -P. Brison, E. Lhotel, and C. Paulsen, *Nature (London)* **413**, 613 (2001); D. J. Hykel, C. Paulsen, D. Aoki, J. R. Kirtley, and K. Hasselbach, *Phys. Rev. B* **90**, 184501 (2014).
4. A. N. Lavrov, L. P. Kozeeva, M. R. Trunin and V. N. Zverev, *Phys. Rev. B* **79**, 214523 (2009).
5. Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
6. T. K. Ng and C. M. Varma, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 330 (1997); E. I. Blount and C. M. Varma, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1079 (1979).
7. M. Fauré and A. I. Buzdin, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 187202 (2005); I. M. Khaymovich, A. S. Mel'nikov, and A. I. Buzdin, *Phys. Rev. B* **89**, 094524 (2014).
8. M. Iavarone, A. Scarfato, F. Bobba, M. Longobardi, G. Karapetrov, V. Novosad, V. Yefremenko, F. Giubileo, and A. M. Cucolo, *Phys. Rev. B* **84**, 024506 (2011); F. Bobba, C. Di Giorgio, A. Scarfato et al., *Phys. Rev. B* **89**, 214502 (2014).
9. D. Wulferding, I. Yang, J. Yang, M. Lee, H. C. Choi, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, H. W. Yeom, and J. Kim, *Phys. Rev. B* **92**, 014517 (2015).
10. L. Ya. Vinnikov, I. V. Grigor'eva, and L. A. Gurevich, in *The Real Structure in High-Tc superconductors*, ed. by V. Sh. Shekhtman, Springer Series in Material Science Springer-Verlag, Berlin (1993).
11. Z. Ren, Q. Tao, S. Jiang, C. M. Feng, C. Wang, J. H. Dai, G. H. Cao, and Z.-A. Xu, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 137002 (2009).
12. H. S. Jeevan, D. Kasinathan, H. Rosner, and P. Gegenwart, *Phys. Rev. B* **83**, 054511 (2011); S. Nandi, W. T. Jin, Y. Xiao, Y. Su, S. Price, D. K. Shukla, J. Stremper, H. S. Jeevan, P. Gegenwart, and Th. Bruckel, *Phys. Rev. B* **89**, 014512 (2014).
13. T. Adachi, Y. Nakamatsu, T. Kobayashi, S. Miyasaka, S. Tajima, M. Ichimiya, M. Ashida, H. Sagayama, H. Nakao, R. Kumai, and Y. Murakami, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 063705 (2016).
14. I. S. Veschunov, L. Ya. Vinnikov, S. L. Bud'ko, and P. C. Canfield, *Phys. Rev. B* **76**, 174506 (2007).
15. X. Xu, W. H. Jiao, N. Zhou, Y. K. Li, B. Chen, C. Cao, J. Dai, A. F. Bangura, and G. H. Cao, *Phys. Rev. B* **89**, 104517 (2014).
16. I. S. Veshchunov, V. A. Oboznov, A. N. Rossolenko, A. S. Prokofiev, L. Ya. Vinnikov, A. Yu. Rusanov, and D. V. Matveev, *Письма в ЖЭТФ* **88**(11), 791 (2008) [*JETP Lett.* **88**(11), 758 (2008)].

17. T. Sakurai and Y. Shimada, Jpn. J. Appl. Phys. **31**(6A), 1905 (1992).
18. L. Ya. Vinnikov, T. L. Barkov, P. C. Canfield, S. L. Bud'ko, J. E. Ostenson, F. D. Laabs, and V. G. Kogan, Phys. Rev. B **64**, 220508(R) (2001).
19. A. Volodin, K. Temst, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, M. I. Montero, and I. K. Schuller, Europhys. Lett. **58**(4), 582 (2002).
20. A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-N.Y. (1998), 720 p.; L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*, Pergamon Press, Oxford (1984).
21. A. O. Golubok and L. Ya. Vinnikov, JETP Lett. **35**, 642 (1982).