

Верхнее критическое поле двузонного сверхпроводника $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ ¹⁾

Е. И. Мальцев, В. А. Власенко²⁾, О. А. Соболевский, А. В. Садаков, Б. И. Массалимов, К. С. Перваков

Центр высокотемпературной сверхпроводимости и квантовых материалов им. В. Л. Гинзбурга,

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 марта 2020 г.

После переработки 5 марта 2020 г.

Принята к публикации 5 марта 2020 г.

Впервые экспериментально измерено верхнее критическое поле монокристалла железосодержащего сверхпроводника $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ в продольном и поперечном магнитном поле до 16 Т, направленном в базисной плоскости ab и по нормали к ней, вдоль оси c . Значения $H_{c2}(0)$ составили 18 и 25 Т для $H\parallel c$ и $H\parallel ab$, соответственно. Анизотропия верхнего критического поля $\gamma(T) = H_{c2}^{ab}/H_{c2}^c$ монотонно снижается с уменьшением температуры до 1.4 при низких температурах. Температурная зависимость H_{c2} не описывается полностью моделью Вертхаммера, Хелфанда и Хохенберга с учетом влияния орбитальных и спин парамагнитных эффектов, однако эффективная двузонная модель хорошо воспроизводит измеренную температурную зависимость. На основании этого сделан вывод о двузонной природе данного сверхпроводника, причем одна из зон практически изотропна. Согласно двузонному модельному приближению сделан вывод о том, что вблизи T_c доминирует вклад от анизотропной зоны, а с понижением температуры основной вклад вносит изотропная зона с меньшим коэффициентом диффузии.

DOI: 10.31857/S0370274X20070097

Железосодержащие сверхпроводники были открыты в 2008 г. [1]; к настоящему времени известно более 100 соединений этого класса сверхпроводников, которые разделяют на несколько различных семейств [2, 3]. Общим для этих материалов является наличие в элементарной ячейке слоев в форме тетраэдров, где атомы железа окружены четырьмя атомами Se или As. Разнообразие физических свойств, в том числе ряда уникальных, характерных только для железосодержащих сверхпроводников, делает их до сих пор предметом интенсивных исследований. Примерами уникальных свойств являются многократное возрастание критической температуры в соединении класса 11 (FeSe) при высоком давлении, химическом или электрохимическом легировании [4, 5], нематическое состояние в системах 11 и 122, порождающее анизотропию сверхпроводящих свойств в плоскости ab [6], и вероятная трансформация симметрии параметра порядка от типа $s \pm$ к d -типу в системе 122 [7, 8]. Причиной такого богатого набора интереснейших свойств, вне сомнений, является сложная многозонная электронная структура с несколькими вложенными электронными и дыроч-

ными карманами с достаточно сильным межзонным взаимодействием, которые при определенном воздействии на материал могут появляться или исчезать на уровне Ферми. Соединения класса 122 (AFe_2As_2 , где А – щелочной или щелочноземельный элемент) привлекают также внимание возможностью индуцирования сверхпроводимости при помощи химического допирования (электронами [9], дырками [10] и изовалентным легированием [11]). Дырочное и изовалентное легирование в системе 122 позволяет достичь критической температуры до 36–38 К [12], электронное – до 25 К [13]. Соединения на основе стронция $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ и $\text{SrFe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{As}_2$ выделяются из этого ряда невысокими значениями критической температуры $T_c < 10$ К [14, 15] и второго критического поля, по сравнению с другими представителями этого класса сверхпроводников [16].

Известно, что в родительском соединении SrFe_2As_2 наблюдается структурный переход при температуре 200 К, который подавляется с увеличением степени легирования никелем. При $x = 0.15$ температура магнитоструктурного перехода уменьшается до 40 К, а при $x = 0.16$ переход исчезает. Сверхпроводимость наблюдается до температур порядка 9.5 К в интервале легирований от $x = 0.1$ до $x = 0.22$ [17]. Соединения $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$, принадлежащие семейству 122, на текущий момент

¹⁾См. дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾e-mail: vlasenkovlad@gmail.com

малоизучены. Благодаря их невысоким значениям T_c и T_{c2} возможно экспериментально измерить зависимость $H_{c2}(T)$ в широком интервале температур и сделать выводы о характере сверхпроводимости в этих соединениях.

Нами проведены измерения зависимости сопротивления от температуры и магнитного поля $R(T, H)$ монокристалла $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ и показано влияние двузонной структуры поверхности Ферми и соответствующей двухкомпонентности сверхпроводящего конденсата на температурную зависимость верхнего критического поля. Для уменьшения T_c нами были синтезированы и выращены монокристаллы с уровнем легирования меньше оптимального.

Монокристаллы $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ были синтезированы при помощи раствор-расплавного метода с использованием в качестве флюса раствор-расплава $\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x\text{As}$. Синтезированный заранее прекурсор $\text{Fe}_{1.87}\text{Ni}_{0.13}\text{As}_2$ и металлический Sr высокой чистоты общей массой около 4 г смешивали в пропорции 1 : 2, помещали в корундовый тигель, размещенный в Nb-контейнере с аргоновой атмосферой при остаточном давлении аргона около 0.3 атм. Контейнер герметизировали сваркой и помещали в трубчатую печь с аргоновой атмосферой; рост кристаллов был проведен аналогично описанному в работе [18]. Выращенные монокристаллы $\text{SrFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ имели форму пластин с гладкой блестящей поверхностью с поперечными размерами до 3-4 мм и толщиной примерно 0.1–0.2 мм. Кристаллы оказались нечувствительны к кислороду и влаге и на протяжении нескольких недель оставались на воздухе без каких-либо признаков деградации.

Синтезированные монокристаллы были охарактеризованы на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM 7001FA методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDX – *Energy-dispersive X-ray spectroscopy*), при помощи которой был определен уровень легирования выращенных кристаллов. В результате усреднения нескольких измерений EDX было установлено, что концентрация Ni вблизи поверхности образцов соответствует легированию $x = 0.12 \pm 0.003$. В дальнейшем этот образец будет обозначен в соответствии с измеренной концентрацией Ni как $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$.

На рисунке 1 представлена зависимость АС магнитной восприимчивости от температуры для монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$, измеренная на установке Physical Property Measurement System (PPMS-9). Критерием определения критической температуры $T_c \approx 9$ К выбрано начало сверхпроводящего перехода на действительной части (χ') АС

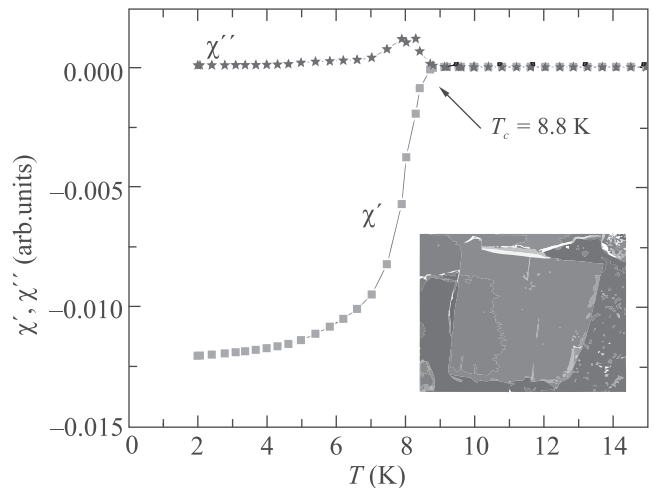


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость АС магнитной восприимчивости монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$, измеренная в переменном магнитном поле амплитудой $H_{ac} = 5$ Э. На вставке: микрофотография выращенного монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ с размерами 1.5×1.5 мм

магнитной восприимчивости. Полученное значение критической температуры сравнимо со значениями, полученными ранее в работах [14, 17]. Сверхпроводящий переход в восприимчивости довольно резкий, что говорит о хорошем качестве исследуемого монокристалла и равномерном распределении легирующего элемента по объему образца. На вставке на рис. 1 представлена микрофотография выращенного слоистого монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$.

Результаты магнитотранспортных измерений монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ в магнитных полях до 16 Т с помощью установки CFMS-16 представлены на рис. 2.

В нулевом магнитном поле сверхпроводящий переход в транспортных измерениях также довольно резкий и его ширина $\Delta T_c \sim 0.5$ К. В магнитном поле 15 Т сверхпроводящий переход уширяется до $\Delta T_c \sim 1$ К, причем для $H \parallel c$ критическая температура подавляется быстрее, чем для $H \parallel ab$ при том же приложенном магнитном поле. Зависимость анизотропии $H_{c2}(T)$ представлена на вставке рис. 3, где видно, что γ монотонно спадает и стремится к 1.4 при понижении температуры.

В модели Вертхаммера, Хелфанда и Хохенберга (ВНН – *Werthamer–Helfand–Hohenberg*) [19] для сверхпроводников II рода с учетом возможного парамагнетизма Паули и спин-орбитального рассеяния предполагается универсальная зависимость $H_{c2}(T)$. В “грязном” пределе, когда длина свободного пробега носителей l меньше или порядка длины когерентно-

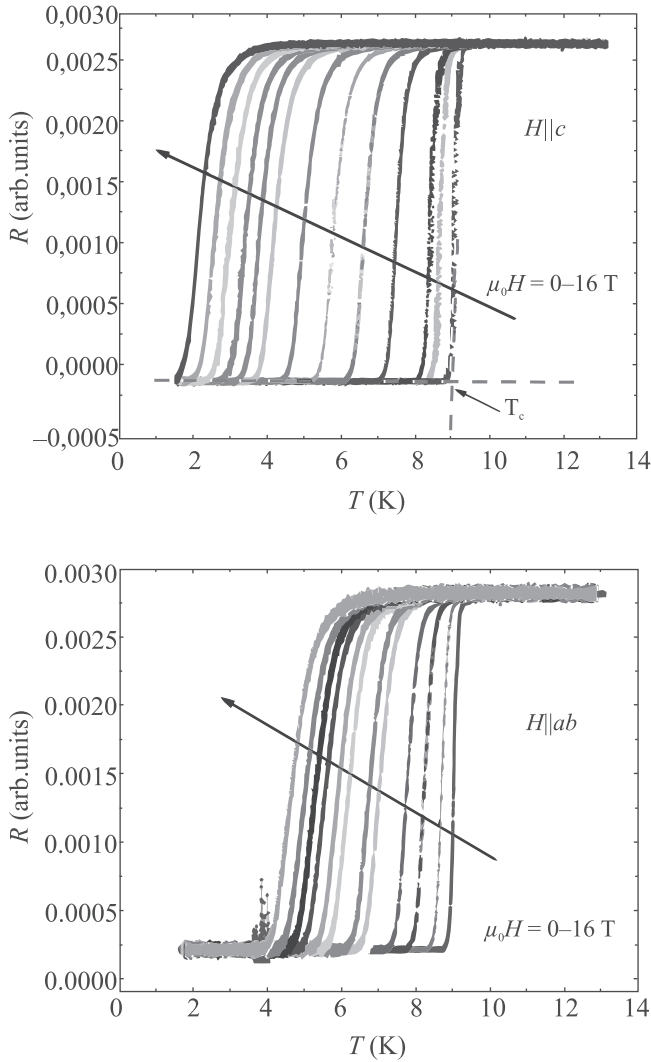


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурная зависимость сопротивления, измеренная при двух различных ориентациях полей: $H||c$ и $H||ab$. Штриховые линии иллюстрируют критерий определения $H_{c2}(T)$. Значения поля: 0, 0.5, 1, 3, 5, 7, 9, 11, 12, 13, 14, 15, 16 Т на верхней панели и 0, 1, 3, 5, 7, 8, 9, 11, 12, 13, 14, 15, 16 Т на нижней панели

сти ξ_0 , формула для аппроксимации H_{c2} принимает вид:

$$\ln\left(\frac{1}{t}\right) + \psi\left(\frac{1}{2}\right) = \left(1 + \frac{i\lambda_{\text{so}}}{4\gamma}\right) \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{h + \frac{\lambda_{\text{so}}}{2} + i\gamma}{2t}\right) + \text{c.c.}, \quad (1)$$

где с.с. означает комплексно сопряженную часть уравнения, $\gamma = \sqrt{(\alpha h)^2 - \lambda_{\text{so}}^2}/4$, ψ – дигамма функция, $\alpha = 3/2mv_F^2\tau$ – параметр Маки [20], $\lambda_{\text{so}} = 1/3T\tau_2$ – константа спин-орбитального взаимодействия, $h = -4H_{c2}/\pi^2(dH/dt)_{t \rightarrow 1}$. Параметр Маки

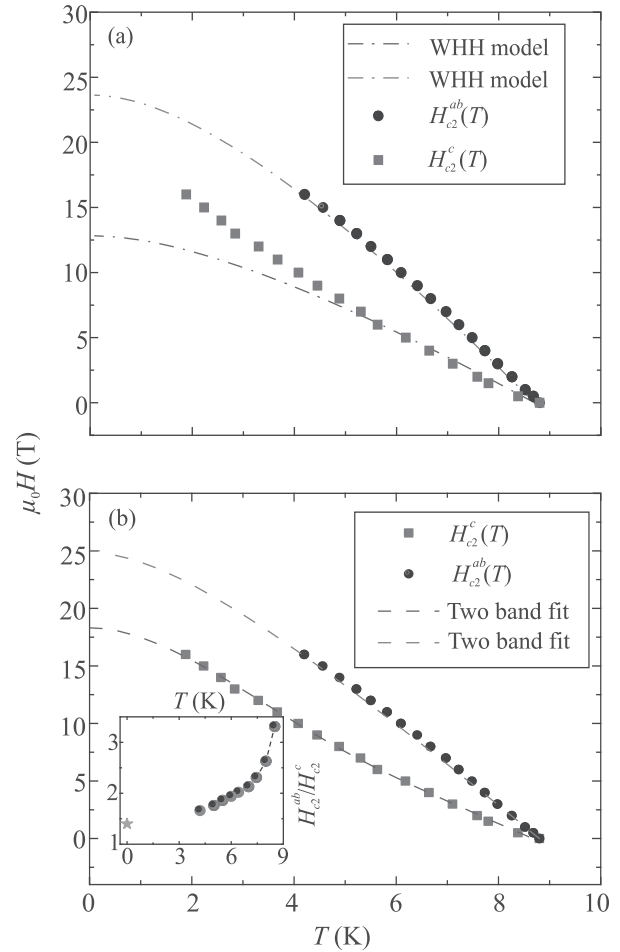


Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость H_{c2} монокристалла $\text{SrFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ полученная из магнитотранспортных измерений в ориентациях поля $H||ab$ и $H||c$. (а) – Штрихпунктирными линиями показана аппроксимация экспериментальных данных моделью WHH (см. (1)) с параметрами $\alpha = 0$ и $\lambda_{\text{so}} = 0$. (б) – Аппроксимация экспериментальных данных двузонной моделью (см. Дополнительные материалы). Вставка: анизотропия верхнего критического поля $\gamma = H_{c2}^{ab}/H_{c2}^c$, звездочкой обозначена оценка значения $\gamma(0) = H_{c2}^{ab}(0)/H_{c2}^c(0)$, полученная из аппроксимации двузонной моделью

и константа спин-орбитального взаимодействия используются при аппроксимации данных в качестве свободных параметров.

В случае $\alpha = 0$ основным механизмом разрушения сверхпроводимости является орбитальный, что характерно для обычных сверхпроводников. В случае значений $\alpha \geq 1$ сверхпроводимость в магнитном поле подавляется вследствие того, что энергия спиновой поляризации превышает энергию конденсации пары. Для однозонного сверхпроводника в “грязном”

пределе орбитальное ограничение на верхнее критическое поле в нулевой температуре задается выражением вида: $H_{c2}(0) = -0.693(dH_{c2}/dT)T_c$, а предел Паули: $H_p(0) = 1.84 T/K \times T_c$.

Аппроксимация экспериментальных данных согласно модели WHN представлена на рис. 3а. Учитывая $-dH_{c2}^{ab}/dT_c = 3.91 T/K$ и $-dH_{c2}^c/dT_c = 2.1 T/K$ получена оценка верхних критических полей $H_{c2}^c(0) \approx 13 T$, $H_{c2}^{ab}(0) \approx 23 T$ и $H_p(0) \approx 16.2 T$. Оценка величины H_{c2} из экстраполяции по однозонной модели WHN ниже экспериментально полученных значений, особенно для H_{c2}^c . Очевидно, что однозонная модель WHN не может корректно описать данные $H_{c2}^c(T)$, что указывает на многозонный тип сверхпроводимости.

Двухзонная модель в “грязном” пределе с учетом орбитального взаимодействия, предполагая малое межзонное взаимодействие [21], хорошо описывает экспериментальные данные во всем интервале температур (см. Дополнительный материал).

Наилучшая аппроксимация экспериментальных данных $H_{c2}(T)$, предполагая $\lambda_{12} = \lambda_{21}$, представлена на рис. 3б. Всего для аппроксимации используется пять свободных параметров λ_{11} , λ_{22} , $\lambda_{12} = \lambda_{21}$, D_1 и η . В результате были получены следующие параметры: при $H\|c$ $D_1^c = 2.06$ и $\eta^c = 0.1$, и при $H\|ab$ $D_1^{ab} = 0.17$, $\eta^{ab} = 1.23$. Найденные значения η схожи со значениями, полученными ранее для $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$ [22], $(Li_{1-x}Fe_x)OHFe_{1-y}Se$ [23].

Из экстраполяции данных $H_{c2}(T)$ с помощью двухзонной модели получены оценки верхнего критического поля $H_{c2}^c(0) \approx 18 T$ и $H_{c2}^{ab}(0) \approx 25 T$. По значениям $H_{c2}(0)$ можно оценить длину когерентности, воспользовавшись формулами $\xi^{ab} = \sqrt{\phi_0/2\pi H_{c2}^c}$ и $\xi^c = \phi_0/2\pi \xi^{ab} H_{c2}^{ab}$. Для длины когерентности получена оценка 4.2 и 3.2 нм для ξ^{ab} и ξ^c , соответственно. Значения длины когерентности для обоих направлений значительно больше параметров кристаллической структуры, что указывает на трехмерный характер сверхпроводимости. Следует отметить, что уравнение двухзонной модели в пределе $\eta = 1$ упрощается до однозонной формулы Де Жена–Маки [24], поэтому, учитывая малое различие коэффициентов диффузии D при $H\|ab$, однозонная модель WHN довольно хорошо описывает поведение кривой $H_{c2}(T)$.

Известно, что значения матрицы λ_{jk} слабо влияют на форму кривой аппроксимации [25], поэтому желательно использовать значения λ_{jk} , определенные экспериментально или рассчитанные из первых принципов. Пока значения параметров связи были измерены лишь для небольшого числа железосодержащих сверхпроводников, таких как

$Sm_{1-x}Th_xOFeAs$ [26] и $NdFeAsO_{0.6}H_{0.36}$ [27], и неизвестны для большинства других сверхпроводников, включая исследуемый здесь $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$. Кроме того, вследствие симметричности двухзонной модели относительно знаков λ_{12} , λ_{21} невозможно различить случаи $\lambda_{12}, \lambda_{21} > 0$ (характерно для s -волнового спаривания) и $\lambda_{12}, \lambda_{21} < 0$ (характерно для $s\pm$ спаривания) [28]. Очевидно, что определенные в процессе аппроксимации абсолютные значения компонентов матрицы λ_{jk} имеют значительную погрешность, однако возможно проанализировать произведение диагональных элементов. Соразмерность произведений диагональных элементов ($\lambda_{11}\lambda_{22} \approx \lambda_{12}\lambda_{21}$), полученная в нашем случае, можно интерпретировать как сопоставимый вклад внутризонных и межзонных механизмов спаривания электронов, т.е. зоны в сверхпроводнике $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$ существенно взаимодействуют между собой. Возможность такого поведения предсказывалась для железосодержащих сверхпроводников [16] и экспериментально выявлена для нескольких соединений [26, 27].

Согласно модели Гуревича [21] поведение зависимости $H_{c2}(T)$ при температуре вблизи T_c определяется зоной с наибольшим значением коэффициента диффузии, а вблизи $T = 0 K$ – с меньшим. Полученные значения коэффициентов диффузии D предполагают наличие на Ферми поверхности двух зон с разной анизотропией, причем одна из зон практически изотропна. Анизотропная зона обладает большим коэффициентом диффузии и вносит основной вклад в поведение $H_{c2}(T)$ вблизи T_c . А при низких температурах доминирует изотропная зона с меньшим коэффициентом диффузии, и она же определяет $H_{c2}(0)$. Схожее поведение наблюдалось в соединении $Sr_{1-x}Eu_x(Fe_{0.89}Co_{0.11})_2As_2$ [22] и $NbSe_2$ [29].

Заключение. В данной работе впервые экспериментально оценено верхнее критическое поле монокристалла железосодержащего сверхпроводника $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ в магнитном поле до 16 Т, приложенном вдоль оси c и в плоскости ab . Полученные путем экстраполяции значения $H_{c2}(0)$ составили 18 и 25 Т для $H\|c$ и $H\|ab$, соответственно. Температурная зависимость $H_{c2}(T)$ не описывается полностью однозонной моделью Вертхаммера–Хелфанда–Хохенберга. Показано, что эффективная двухзонная модель хорошо воспроизводит измеренную температурную зависимость. На основании этого сделан вывод о двухзонной природе данного сверхпроводника, причем одна из зон практически изотропна. Значения коэффициентов диффузии D и констант связи λ , полученные путем аппроксимации измеренных данных $H_{c2}(T)$ двухзонной моделью, указывают на то,

что вблизи T_c доминирует вклад анизотропной зоны, а с понижением температуры основной вклад вносит изотропная зона с меньшим коэффициентом диффузии.

Исследования выполнены в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ # 0023-2019-0005. Измерения были проведены на оборудовании ЦКП ФИАН.

1. Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
2. H. Hosono, A. Yamamoto, H. Hiramatsu, and Y. Ma, *Mater. Today* **21**(3), 278 (2018).
3. K. V. Frolov, I. S. Lyubutin, D. A. Chareev, and M. Abdel-Hafez, *JETP Lett.* **110**, 562 (2019).
4. J. P. Sun, G. Z. Ye, P. Shahi, J.-Q. Yan, K. Matsuura, H. Kontani, G. M. Zhang, Q. Zhou, B. C. Sales, T. Shibauchi, Y. Uwatoko, D. J. Singh, and J.-G. Cheng, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 147004 (2017).
5. B. Lei, J. H. Cui, Z. J. Xiang, C. Shang, N. Z. Wang, G. J. Ye, X. G. Luo, T. Wu, Z. Sun, and X. H. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 077002 (2016).
6. H.-H. Kuo and I. R. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 227001 (2014).
7. J.-P. Reid, A. Juneau-Fecteau, R. T. Gordon et al. (Collabotation), *Supercond. Sci. Technol.* **25**(8), 084013 (2012).
8. T. E. Kuzmicheva, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev, A. V. Sadakov, Yu. A. Aleshchenko, V. A. Vlasenko, V. P. Martovitsky, K. S. Pervakov, Yu. F. Eltsev, and V. M. Pudalov, *Phys.-Uspekhi* **60**, 419 (2017).
9. V. A. Vlasenko, O. A. Sobolevskiy, A. V. Sadakov, K. S. Pervakov, S. Yu. Gavrilkin, A. V. Dik, and Yu. F. Eltsev, *JETP Lett.* **107**, 119 (2018).
10. H. Q. Luo, P. Cheng, Z. S. Wang, H. Yang, Y. Jia, L. Fang, C. Ren, L. Shan, and H. H. Wen, *Physica C* **469**, 477 (2009).
11. L. Y. Vinnikov, I. S. Veshchunov, M. S. Sidel'nikov, V. S. Stolyarov, S. V. Egorov, O. V. Skryabina, W. Jiao, G. Cao, and T. Tamegai, *JETP Lett.* **109**, 521 (2019).
12. M. Rotter, M. Tegel, and D. Johrendt, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 107006 (2008).
13. B. Shen, P. Cheng, Z. Wang, L. Fang, C. Ren, L. Shan, and H.-H. Wen, *Phys. Rev. B* **81**, 014503 (2010).
14. E. Arushanov, S. Levchenko, G. Fuchs, B. Holzapfel, S.-L. Drechsler, and L. Schultz, *Physica C* **471**, 237 (2011).
15. F. Han, X. Zhu, P. Cheng, G. Mu, Y. Jia, L. Fang, Y. Wang, H. Luo, B. Zeng, B. Shen, L. Shan, C. Ren, and H.-H. Wen, *Phys. Rev. B* **80**, 024506 (2009).
16. A. Gurevich, *Rep. Prog. Phys.* **74**, 124501 (2011)
17. N. P. Butch, S. R. Saha, X. H. Zhang, K. Kirshenbaum, R. L. Greene, and J. Paglione, *Phys. Rev. B* **81**, 024518 (2010).
18. Yu. F. Eltsev, K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko, S. Yu. Gavrilkin, E. P. Khlybov, and V. M. Pudalov, *Phys.-Uspekhi* **57**, 827 (2014).
19. N. R. Werthamer, E. Helfand, and P. C. Hohemberg, *Phys. Rev.* **147**, 295 (1966).
20. G. Fuchs, S.-L. Drechsler, N. Kozlova et al. (Collaboration), *New J. Phys.* **11**(7), 075007 (2009).
21. A. Gurevich, *Phys. Rev. B* **67**, 184515 (2003).
22. Z. Wang, T. Xie, E. Kampert, T. Förster, X. Lu, R. Zhang, D. Gong, S. Li, T. Herrmannsdörfer, J. Wosnitza, and H. Luo, *Phys. Rev. B* **92**, 174509 (2015).
23. Z. Wang, J. Yuan, J. Wosnitza, H. Zhou, Y. Huang, K. Jin, F. Zhou, X. Dong, and Z. Zhao, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 025701 (2017).
24. R. Hu, E. D. Mun, M. M. Altarawneh, C. H. Mielke, V. S. Zapf, S. L. Bud'ko, and P. C. Canfield, *Phys. Rev. B* **85**, 064511 (2012).
25. F. Hunte, J. Jaroszynski, A. Gurevich, D. C. Larbalestier, R. Jin, A. S. Sefat, M. A. McGuire, B. C. Sales, D. K. Christen, and D. Mandrus, *Nature* **453**, 903 (2008).
26. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, V. M. Pudalov, and N. D. Zhigadlo, *Phys. Rev. B* **95**, 094507 (2017).
27. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, and N. D. Zhigadlo, *Phys. Rev. B* **100**, 144504 (2019).
28. S. Ghannadzadeh, J. D. Wright, F. R. Foronda, S. J. Blundell, S. J. Clarke, and P. A. Goddard, *Phys. Rev. B* **89**, 054502 (2014).
29. M. Zehetmayer and H. W. Weber, *Phys. Rev. B* **82**, 014524 (2010).