Письма в ЖЭТФ, том 111, вып. 7, с. 475 – 479

Верхнее критическое поле двузонного сверхпроводника $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$[1)]

Е. И. Мальцев, В. А. Власенко[2)]*, 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 $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ в продольном и поперечном магнитном поле до 16 T, направленном в базисной плоскости ab и по нормали к ней, вдоль оси c. Значения $H_{c2}(0)$ составили 18 и 25 T для $H\|c$ и $H\|ab$, 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 дырочными 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 A – 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 K [12], электронное – до 25 K [13]. Соединения на основе стронция $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ и $SrFe_{2-x}Pd_xAs_2$ выделяются из этого ряда невысокими значениями критической температуры $T_c < 10$ K [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 K, который подавляется с увеличением степени легирования никелем. При $x = 0.15$ температура магнитоструктурного перехода уменьшается до 40 K, а при $x = 0.16$ переход исчезает. Сверхпроводимость наблюдается до температур порядка 9.5 K в интервале легирований от $x = 0.1$ до $x = 0.22$ [17]. Соединения $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$, 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 $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ 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 $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ были синтезированы при помощи раствор-расплавного метода с использованием в качестве флюса раствор-расплава $Fe_{1-x}Ni_xAs$. Синтезированный заранее прекурсор $Fe_{1.87}Ni_{0.13}As_2$ 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 $SrFe_{2-x}Ni_xAs_2$ 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 $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$.

На рисунке 1 представлена зависимость AC магнитной восприимчивости от температуры для монокристалла $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$, измеренная на установке Physical Property Measurement System (PPMS-9). Критерием определения критической температуры $T_c \approx 9$ K выбрано начало сверхпроводящего перехода на действительной части (χ') AC

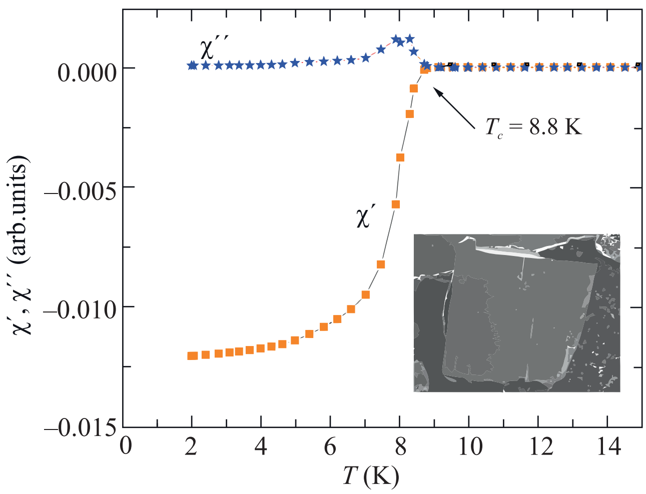

Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость AC магнитной восприимчивости монокристалла $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$, измеренная в переменном магнитном поле амплитудой $H_{ac} = 5$ Э. На вставке: микрофотография выращенного монокристалла $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$ с размерами 1.5×1.5 мм

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 $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$.

Результаты магнитотранспортных измерений монокристалла $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$ 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 $\Delta T_c \sim 0.5$ K. В магнитном поле 15 T сверхпроводящий переход уширяется до $\Delta T_c \sim 1$ K, причем для $H \| c$ критическая температура подавляется быстрее, чем для $H \| ab$ 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 (WHH – *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-

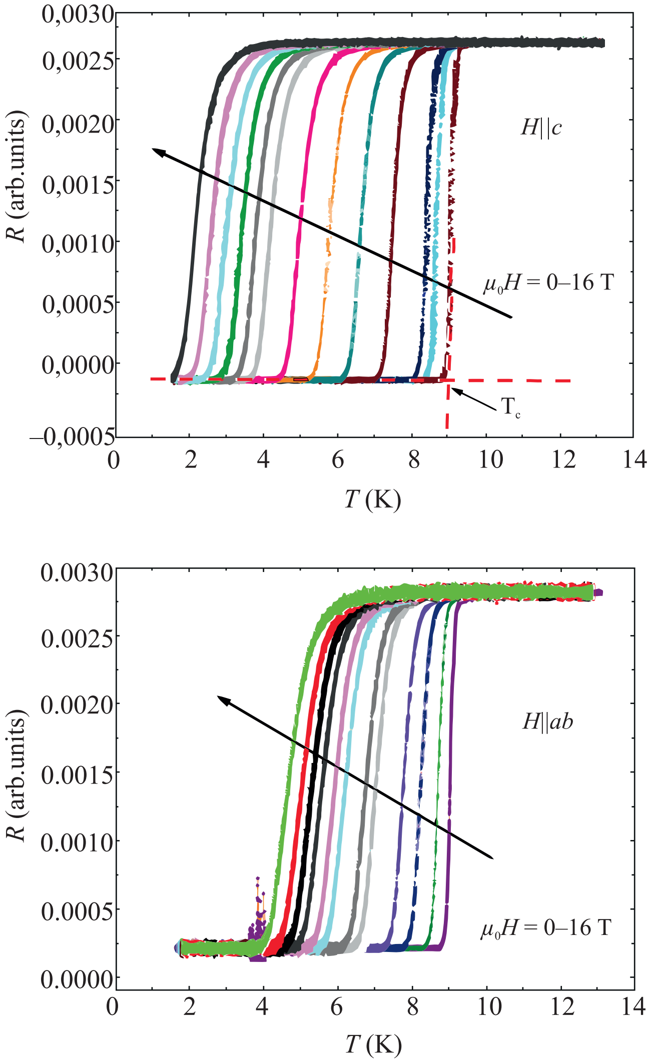

Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурная зависимость сопротивления, измеренная при двух различных ориентациях полей: $H\|c$ и $H\|ab$. Штриховые линии иллюстрируют критерий определения $H_{c2}(T)$. Значения поля: 0, 0.5, 1, 3, 5, 7, 9, 11, 12, 13, 14, 15, 16 T на верхней панели и 0, 1, 3, 5, 7, 8, 9, 11,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

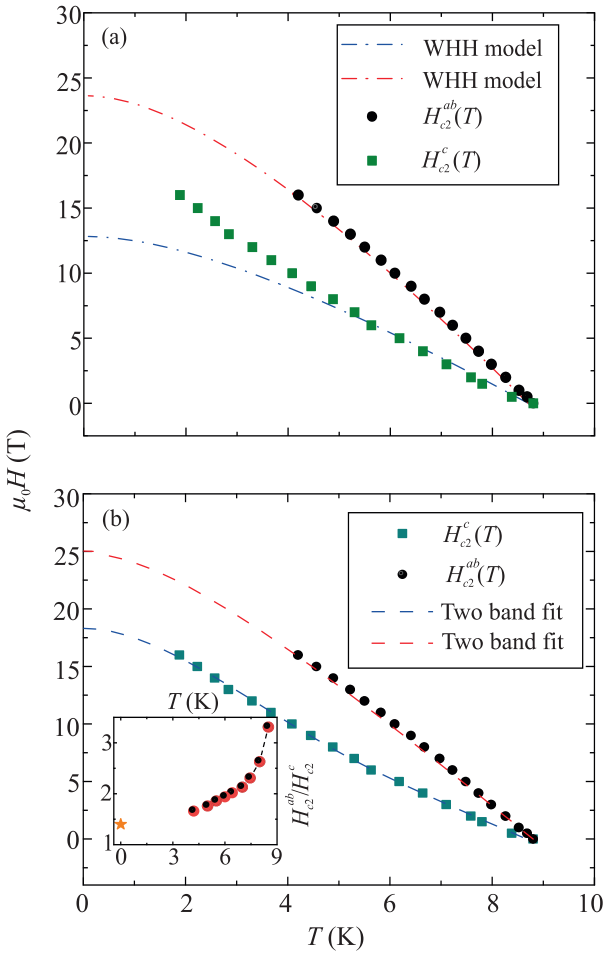

Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость H_{c2} монокристалла $SrFe_{1.88}Ni_{0.12}As_2$ полученная из магнитотранспортных измерений в ориентациях поля $H\|ab$ и $H\|c$. (a) – Штрихпунктирными линиями показана аппроксимация экспериментальных данных моделью WHH (см. (1)) с параметрами $\alpha = 0$ и $\lambda_{\text{so}} = 0$. (b) – 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

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 c.c. 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, $h = -4H_{c2}/\pi^2(dH/dt)_{t\to 1}$. Параметр Маки 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: $H_p(0) = 1.84\,\text{Т/К} \times T_c$.

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

Двузонная 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. 3b. 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 двузонной модели получены оценки верхнего критического поля $H_{c2}^{c}(0) \approx 18\,\text{Т}$ и $H_{c2}^{ab}(0) \approx 25\,\text{Т}$. 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 двузонной 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 WHH 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 двузонной модели относительно знаков λ_{12}, λ_{21} невозможно различить случаи λ_{12}, $\lambda_{21} > 0$ (характерно для s-волнового спаривания) и λ_{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 $T = 0\,\text{К}$ – 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 двузонная модель хорошо воспроизводит измеренную температурную зависимость. На основании этого сделан вывод о двузонной природе данного сверхпроводника, причем одна из зон практически изотропна. Значения коэффициентов диффузии D и констант связи λ, полученные путем аппроксимации измеренных данных $H_{c2}(T)$ двузонной 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-Hafiez, 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. Levcenko, 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).