05.4

## Немонотонная температурная зависимость критического тока в сверхпроводящем $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$

© А.Н. Ионов, Б.А.-Т. Мелех

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург E-mail: ionov@tuch.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 27 августа 2012 г.

В слоистом кристаллическом сверхпроводнике на основе железа  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$  обнаружено немонотонное поведение критического тока в зависимости от температуры в поперечном к слоям направлении, которое обусловлено сменой знака сверхпроводящего тока вследствие взаимодействия спина электрона в куперовской паре с обменным магнитным взаимодействием, связанным с подрешеткой атомов междуузельного железа. Обнаружен эффект усиления джозефсоновского тока при смене направления сверхпроводящего тока.

В последнее время большой интерес вызывают сверхпроводящие материалы на основе железа в связи с возможным широким их практическим применением, поскольку они обладают большими значениями критического тока и магнитного поля. Этот новый класс сверхпроводников, открытый сравнительно недавно с температурой перехода  $T_c$  до 55 K, сразу же привлек внимание исследователей своим необычным механизмом сверхпроводимости [1]. Дело в том, что в обычных сверхпроводниках, свойства которых хорошо описываются классической теорией Бардина-Купера-Шифера, сверхпроводимость и магнитное упорядочение одновременно сосуществовать не могут. В новых железосодержащих сверхпроводниках наблюдается флуктуационный магнитный порядок, который, как полагают, может быть ответственен за высокие значения  $T_c$ . Среди этих новых магнитных сверхпроводников сплав  $FeSe_{1-x}$  имеет простейшую структуру, поскольку состоит из большого количества сложенных слоев FeSe с  $T_c \sim 8 \, \mathrm{K}$  [2]. Критическую температуру  $T_c$  можно изменять, если замещать атомы селена на атомы теллура. Так, например, в твердом растворе  $FeSe_{1-x}Te_x$ 

при x=0.5 критическая температура  $T_c\sim 14\,\mathrm{K}$ . Однако при полной замене Se на Те сверхпроводимость исчезнет, а в сплаве FeTe установится дальнодействующее антиферромагнитное упорядочение. При замещении Se атомами Те происходит еще один важный процесс: между узлами кристаллической решетки появляются атомы железа [3]. Причем чем больше атомов Те, тем больше концентрация междуузельного Fe. Несмотря на то что такие атомы железа локализованы и магнитным образом взаимодействуют с атомами железа, находящимися в плоскости решетки, они также участвуют в проводимости. Таким образом, при  $T < T_c$  между сверхпроводящими слоями  $\mathrm{FeSe}_{1-x}\mathrm{Te}_x$  будут находиться магнитные моменты, принадлежащие магнитной примеси междуузельного Fe. Причем при определенной их концентрации возможно установление короткодействующего ферромагнитного упорядочения, так что в поперечном к слоям направлении твердый раствор FeSe<sub>1-x</sub>Te<sub>x</sub> можно представить как гибридную структуру  $S-F_1-S-F_2-\dots F_n-S$  (здесь S — сверхпроводник, а F — ферромагнетик).

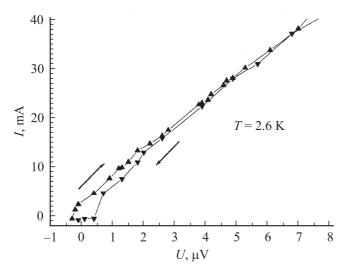
Большой интерес к гибридным структурам сверхпроводник—ферромагнетик—сверхпроводник (SFS) связан, прежде всего, с возможной практической реализацией структур SFS в качестве элементной базы для квантового компьютера [4]. Как известно, величина свехпроводящего тока, перетекающего через переход типа SNS (здесь N — нормальный металл), описывается джозефсоновским выражением

$$I_s = I_c \sin \varphi \tag{1}$$

и изменяется с периодом  $2\pi$ . Здесь  $I_c$  — критический или, другими словами, максимальный сверхпроводящий ток, который может протекать через переход,  $\varphi$  — разность фаз между двумя когерентными ансамблями куперовских пар, принадлежащих двум сверхпроводникам. Однако если джозефсоновский переход содержит магнитные примеси, то тогда из-за взаимодействия спина электрона в куперовской паре с магнитным моментом примеси изменяется знак у сверхпроводящего тока в (1). Так, например, если в джозефсоновском переходе типа SNS разность фаз между двумя сверхпроводниками, находящихся в основном состоянии, равна нулю, то в джозефсоновском переходе, содержащем магнитные примеси, происходит сдвиг фазы на  $\pi$ , т.е. разница между сверхпроводящими фазами в основном состоянии становится равной  $\pi$ , так называемое  $\pi$ -состояние [5]. Если диамагнитный металл (N) заменить на ферромагнитный (F), то в таком модифицированном

джозефсоновском переходе также возникает  $\pi$ -состояние как следствие осцилляции параметра порядка в ферромагнитном слое за счет обменного поля, создаваемого ферромагнетиком [5]. В эксперименте это проявляется в том, что в структурах SFS критический ток  $I_c$  осциллирует и обращается в нуль в зависимости от таких параметров, как температура и толщина ферромагнитного слоя F [6], что обусловлено изменением знака  $I_c$  в джозефсоновском переходе. Таким образом, если у твердых растворов  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  в поперечном слоям направлении междуузельное железо действительно влияет на механизм транспорта куперовских пар, то мы должны наблюдать эффект немонотонной зависимости критического тока от температуры.

В качестве объектов исследований были выбраны образцы твердых растворов Fe(Se<sub>0.3</sub>Te<sub>0.7</sub>)<sub>0.82</sub> [7]. Данная формула подразумевает вакансии халкогенида, но отражает избыточное междуузельное железо. Технология приготовления образцов твердых растворов, использованных нами, ранее была подробно описана в работе [7]. Наблюдаемый в этой работе рост сопротивления с понижением температуры при  $T>T_{c}$  в диапазоне 0.4 < x < 0.8 согласуется с результатом работы [8], где оно объясняется тем, что избыточное железо изменяет поверхность Ферми сплава  $FeSe_{1-x}Te_x$  так, что это приводит к уменьшению длины пробега (1) свободного носителя, переводя металл из "чистого", где  $k_{\rm F}1\gg 1$ , в "грязный", когда  $k_{\rm F}1\sim 1$ . При малом значении x и, следовательно, при небольшой концентрации междуузельного железа при  $T > T_c$  транспорт носителей тока обусловлен эффектом слабой локализации. В этом случае в эксперименте наблюдается отрицательное магнитосопротивление с поправками к магнитосопротивлению Маки-Томсона при приближении температуры к  $T_c$  [9]. С дальнейшим увеличением концентрации междуузельного железа появляется новый канал рассеяния, связанный с взаимодействием спина электрона и локализованного магнитного момента на междуузельном железе (эффект Кондо), который приводит к росту сопротивления с понижением температуры до  $T = T_c$ . Однако здесь следует иметь в виду то, что высокая концентрация междуузельного железа может полностью подавить сверхпроводимость вследствие обменного магнитного взаимодействия между междуузельным избыточным железом и железом, расположенным в подрешетке FeSeTe. Поэтому исследование зависимости критического тока от температуры необходимо проводить при таких концентрациях избыточного железа, где одновременно наблюдается и сверхпроводимость, и флуктуационный

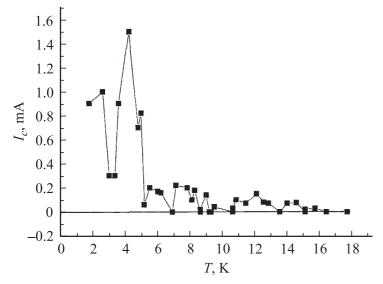


**Рис. 1.** Характерная ВАХ слоистого сверхпроводника  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$  при протекании тока в направлении поперечно слоям ( $T=2.6\,\mathrm{K}$ ).

магнитный порядок. Именно таким условиям соответствует выбранный нами твердый раствор  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$ . Необходимо также отметить, что кроме междуузельного Fe небольшое количество форромагнитной примеси  $Fe_3O_4$  может присутствовать между кристаллическими слоями [10], что также должно благоприятствовать наблюдению эффекта  $\pi$ -состояния в слоистом сверхпроводнике.

Измерения вольт-амперных характеристик (BAX) проводились стандартным 4-зондовым методом на постоянном токе на образце толщиной  $360\,\mu\mathrm{m}$ . Направление тока было перпендикулярно слоям FeSeTe. Критический ток слоистого сверхпроводника определялся из BAX.

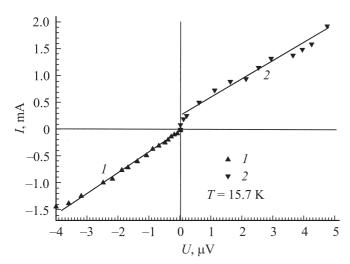
На рис. 1 представлена ВАХ для слоистого сверхпроводника  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$  при протекании тока в направлении поперечно слоям. Как видно из рисунка, на ВАХ наблюдается гистерезис, характерный для сверхпроводников типа SIS, где слой изолятора (I) является слабой связью между двумя сверхпроводниками. В нашем случае туннельнопрозрачный изолирующий слой возможен между ближайшими сверхпроводящими монокристаллическими слоями  $FeSe_{1-x}Te_x$ , которые свя-



**Рис. 2.** Немонотонная зависимость критического тока слоистого сверхпроводника  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$  от температуры.

заны друг с другом только за счет слабого ван-дер-ваальсовского взаимодействия. При этом транспорт сверхпроводящего тока между слоями происходит за счет резонансного туннелирования куперовских пар. Таким образом, исследуемый образец можно представить как структуру  $[(SFS)_i-I-(SFS)_k]_n$ , где I — область резонансного туннелирования куперовских пар между сверхпроводящими монокристаллическими областями.

На рис. 2 представлена температурная зависимость критического тока  $I_c$  для слоистого сверхпроводника  $\mathrm{Fe}(\mathrm{Se}_{0.3}\mathrm{Te}_{0.7})_{0.82}$ . Как видно из рисунка, в эксперименте наблюдается осциллирующее поведение  $I_c$  от температуры. Ранее для одиночных джозефсоновских переходов SFS было показано, что глубина проникновения куперовской пары в слой F зависит от величины энергии магнитного обменного взаимодействия  $E_{ex}$  [6]. Чем больше  $E_{ex}$ , тем меньше длина когерентности куперовской пары в ферромагнитном слое  $\xi_{\mathrm{F}}$ , так как  $E_{ex}$  стремится выстроить спины в определенном направлении и тем самым разрушить куперовскую пару.



**Рис. 3.** ВАХ слоистого сверхпроводника при  $T=15.7\,\mathrm{K}$ : I — линейное поведение ВАХ; 2 — сверхпроводящий ток при смене направления тока.

При этом энергия электрона со спином, параллельным магнитному обменному взаимодействию, возрастает на величину  $E_{ex}$ , а энергия электрона с противоположным спином в куперовской паре уменьшается на ту же величину. Немонотонное поведение критического тока  $I_c$  в зависимости от температуры связано с тем, что параметр порядка сверхпроводимости осциллирует в ферромагнитном слое структуры SFS в отличие от структуры SNS, где он плавно спадает [6]. Наблюдаемое в слоистом сверхпроводнике осциллирующее поведение критического тока в зависимости от температуры указывает на существование  $\pi$ -состояний в  $F_n$ -слоях, а также на пространственную неоднородность магнитных областей в слоистом кристалле [6].

Следует также отметить, что вдоль слоев величину критического тока мы смогли определить только вблизи  $T_c$ , поскольку она была много больше, чем в поперечном направлении. При этом немонотонного поведения критического тока в зависимости от температуры замечено нами не было.

Еще один эффект влияния обменного взаимодействия на транспорт куперовских пар в поперечном направлении был обнаружен при смене направления тока  $I_c$  (рис. 3).

Наиболее ярко этот эффект проявляется вблизи  $T_c$ . Как это видно из рисунка, при первоначальном направлении тока (отмечено цифрой I) сверхпроводящий ток не регистрировался. При изменении полярности напряжения сверхпроводящий ток появлялся (2). Усиление джозефсоновского тока при смене направления намагниченности было предсказано в [11]. Мы полагаем, что проходящий через образец ток намагничивает своим магнитным полем подрешетку, состоящую из междуузельного железа. При смене направления тока сохраняется предыдущее направление остаточной намагниченности, что и обусловливает усиление джозефсоновского тока, наблюдаемого в нашем эксперименте.

Таким образом, проведенные исследования указывают на то, что транспорт куперовских пар в поперечном слоям направлении у слоистого сверхпроводника  $Fe(Se_{0.3}Te_{0.7})_{0.82}$  происходит через ферромагнитные последовательно расположенные слои, вследствие чего возникают немонотонное поведение критического тока в зависимости от температуры и эффект усиления джозефсоновского тока при смене его направления. Наличие слабой связи между монокристаллическими слоями приводит к анизотропии плотности критического тока, когда в поперечном направлении он намного меньше, чем в продольном.

В заключение выражаем благодарность проф. С.Л. Гинзбургу за полезное обсуждение.

## Список литературы

- [1] Tanabe K., Hosono H. // Japanese J. Applied Physics. 2012. V. 51. P. 010 005 (17).
- [2] Hsu F.-C., Luo J.-Y., Yeh K.-W., Chen T.-K., Huang T.-W., Wu P.M., Lee Y.-C., Huang Y.-L., Chu Y.-Y., Yan D.-C. Wu M.-K. // Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 2008. V. 105. N 38. P. 14262–14264.
- [3] Bao W., Qiu Y., Huang Q., Green M.A., Zajdel P., Fitzsimmons M.R., Zhernenkov M., Chang S., Fang M., Qian B., Vehstedt E.K., Yang J., Pham H.M., Spinu L., Mao Z.Q. // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102. P. 247 001(4).
- [4] Joffe L.B., Geshkenbein V.B., Feigelman M.V., Fauchere A.L., Blatter G. // Nature (London). 1999. V. 398. P. 679–681.
- [5] Буздин А.И., Булаевский Л.Н., Панюков С.В. // Письма ЖЭТФ. 1982. Т. 35. С. 147–152.

- [6] Ryazanov V.V., Oboznov V.A., Prokofiev A.S., Bolginov V.V., Feofanov A.K. // J. low Temp. Phys. 2004. V. 136. P. 385–400.
- [7] Волков М.П., Мелех Б.А.-Т., Бахарев В.И., Картенко Н.Ф. // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. В. 6. С. 8–14.
- [8] Fang M.H., Pham H.M., Qian B., Liu T.J., Vehstedt E.K., Liu Y., Spinu L., Mao Z.Q. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. P. 224 503 (5).
- [9] Chang H.H., Luo J.Y., Wu C.T., Hsu F.C., Huang T.W., Wu P.M., Wu M.K., Wang M.J. // Supercon. Sci. Technol. 2012. V. 25. P. 035 004(7).
- [10] Yang J., Matsui M., Kawa M., Ohta H., Michioka C., Dong C., Wang H., Yuan H., Fang M., Yoshimura K. // J. Phys. Soc. Japan. 2010. V. 79. P. 074 704– 074 711.
- [11] Sperstad I.B., Linder J., Sudbo A. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. P. 104 509(11).