

## Анизотропия магнитных свойств сверхпроводника

### $\text{FeTe}_{0,65}\text{Se}_{0,35}$

С.И. Бондаренко<sup>1</sup>, А.Н. Блудов<sup>1</sup>, А. Вишневский<sup>2</sup>, Д. Гаврилюк<sup>2</sup>, И.С. Дударь<sup>1</sup>,  
В.П. Коверя<sup>1</sup>, В.Ю. Монарха<sup>1</sup>, А.Г. Сиваков<sup>1</sup>, В.П. Тимофеев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: bondarenko@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup>Institute of Physics, Polish Academy of Sciences, Aleja Lotnikow 32/46, Warsaw PL-02-668, Poland

Статья поступила в редакцию 6 июля 2015 г., опубликована онлайн 25 сентября 2015 г.

Экспериментально измерена анизотропия намагниченности образца слоистого сверхпроводника  $\text{FeTe}_{0,65}\text{Se}_{0,35}$  в магнитном поле, направленном либо вдоль плоскости слоев, либо перпендикулярно им. Для этих направлений определена величина потенциала пиннинга вихрей в слабом магнитном поле и соотношение плотностей критического тока. Обсуждение результатов проведено в рамках представления образца в виде слоев малоразмерных монокристаллитов, разделенных межслоевыми сверхпроводящими слабыми связями с магнитными включениями.

Експериментально виміряно анізотропію намагніченості зразка шаруватого надпровідника  $\text{FeTe}_{0,65}\text{Se}_{0,35}$  у магнітному полі, яке спрямовано або уздовж площини шарів, або перпендикулярно їм. Для цих напрямків визначено величину потенціалу пінінгу вихорів в слабкому магнітному полі і співвідношення щільності критичного струму. Обговорення результатів проведено в рамках представлення зразка у вигляді шарів малорозмірних монокристалітів, які розділені міжшаровими надпровідними слабкими зв'язками з магнітними включеннями.

PACS: 74.25.Na Магнитные свойства;  
74.25.F– Транспортные свойства;  
74.70.Xa Пнектиды и халькогениды.

Ключевые слова: железосодержащий сверхпроводник, магнитный момент, потенциал пиннинга, критический ток, анизотропия свойств.

### 1. Введение

Монокристаллы железосодержащего сверхпроводника  $\text{FeTe}_{0,65}\text{Se}_{0,35}$  относятся к семейству халькогенидов и имеют слоистую структуру. В работах различных авторов исследовались сверхпроводящие свойства монокристаллов Fe–Te–Se с данным или близким составом элементов [1–5]. При этом, как правило, их транспортные свойства изучали при пропускании тока вдоль плоскости слоев  $a$ – $b$ , а магнитные при подаче магнитного поля перпендикулярно этой плоскости, т.е. вдоль оси  $c$  монокристаллов. Основная часть опубликованных результатов получена при исследованиях магнитных характеристик данной группы сверхпроводников в сильных постоянных полях (до десятков Тл). Показана

возможность достижения высокого значения плотности транспортного критического тока ( $\approx 10^5$  А/см<sup>2</sup>) и конкуренции  $\text{FeTeSe}$  лент с широко используемыми проводниками  $\text{Nb}_3\text{Sn}$  при техническом применении в полях свыше 20 Тл [5].

Цель настоящей работы — определение влияния направления магнитного поля относительно плоскости  $a$ – $b$  монокристалла на его магнитные свойства как в сверхпроводящем, так и в нормальном состоянии, изучение изотермической релаксации захваченного магнитного поля в данном монокристалле, позволяющей определить анизотропию потенциала пиннинга вихрей в слабом магнитном поле.

## 2. Постановка экспериментов

Исследовавшийся образец  $\text{FeTe}_{0,65}\text{Se}_{0,35}$  был изготовлен по методу Бриджмена. Технология его выращивания описана в [1]. Размеры образца составили  $1,7 \times 1,6$  мм (по осям  $a$  и  $b$ ) при толщине (вдоль оси  $c$ )  $\sim 0,3$  мм. Масса образца — 5,19 мг. Рентгеноструктурный анализ образца показал, что он имеет совершенную тетрагональную кристаллографическую структуру. Геометрическая структура образца представляет собой многослойный сэндвич из плоских кристаллитов со средним размером в плоскости  $a$ – $b$  около 30 мкм, каждый из которых является мономолекулярным слоем данного соединения. Кристаллиты соединены между собой в направлении оси  $c$  механически и электрически. Механическая прочность соединения слоев невелика, что подтверждается возможностью отделения слоев скотч-методом [5].

Магнитные свойства монокристаллов исследовали на установке MPMS-5 Quantum Design. Были получены зависимости намагниченности образца от температуры в области сверхпроводящего перехода в слабом магнитном поле ( $H = 5$  Э) и в области температур 5–300 К в больших магнитных полях (до 500 Э). Кроме того, была зарегистрирована релаксация магнитных потоков в образце, захваченных в слабом (на уровне 5 Э) постоянном поле, а также петли перемагничивания образца ( $H$  до  $\pm 0,5$  Тл) при разных температурах. Все указанные зависимости получены для двух положений образца относительно постоянного прикладываемого магнитного поля  $H$ : при направлении поля вдоль плоскости  $a$ – $b$  ( $H \parallel a, b$ ) и при направлении поля перпендикулярно этой плоскости ( $H \parallel c$ ). До проведения магнитных измерений на микромостике, вырезанном из подобного монокристалла одной технологической серии, резистивным четырехзондовым методом были сняты температурные зависи-

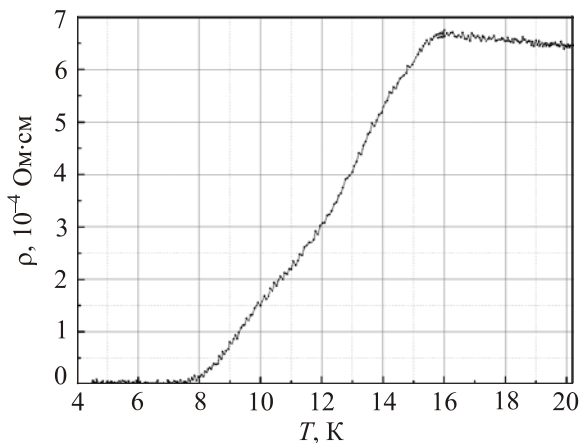


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления ( $\rho$ ) образца. Транспортный ток направлен вдоль плоскостей  $a, b$ .

мости удельного сопротивления образца в области сверхпроводящего фазового перехода (рис. 1). При взаимно ортогональных направлениях транспортного тока оценки величины плотностей критического тока поперек слоев кристаллитов и вдоль слоев показали, что  $J_c(\parallel c)/J_c(\parallel a, b) \approx 10$ .

На рис. 2 показаны температурные зависимости намагниченности образца  $M(T)$  в области сверхпроводящего перехода при различной ориентации образца относительно направления постоянного магнитного поля, равного 5 Э.

Магнитный момент создавался бесконтактным методом с помощью возбуждения внешним магнитным полем в сверхпроводящем образце диамагнитного тока (режим ZFC—zero field-cooling). Из приведенных кривых видно, что начало сверхпроводящего перехода ( $T_c^{\text{onset}}$ ) дает величину около 12 К. Что касается изменения абсолютного значения намагниченности  $dM$  при увеличении температуры от 5 до 15 К в поле 5 Э, то оно заметно отличается для указанных двух ориентаций образца:  $dM(H \parallel c)/dM(H \parallel a, b) \approx 3$ . Это можно объяснить особенностью вида возможных сверхпроводящих контуров с диамагнитными токами, существующих в образце. В случае  $H \parallel c$ , часть этих контуров существует в кристаллитах образца, расположенных параллельно друг другу в слоях образца. Совершенная микроструктура образца позволяет предполагать, что кристаллиты имеют высокие значения критического тока. Другая часть контуров состоит из тех же кристаллитов и слабых межслоевых связей с ферромагнитными включениями S–N–S типа [6,7], имеющих в силу этого более низкие значения критического тока. Предполагается, что плоскости этих контуров перпен-

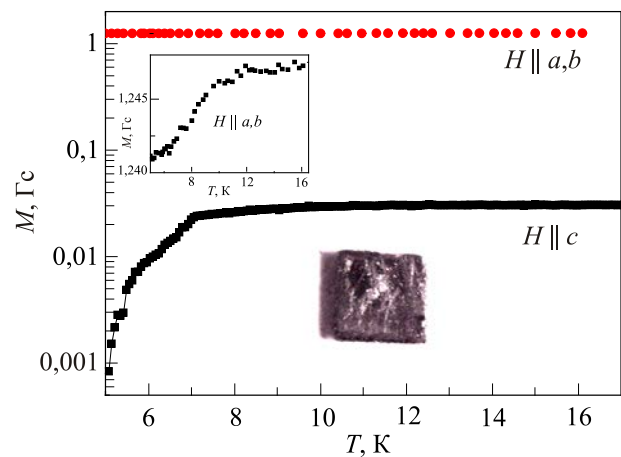


Рис. 2. Температурная зависимость намагниченности исследуемого образца в области сверхпроводящего фазового перехода при двух различных ориентациях постоянного магнитного поля ( $H = 5$  Э) и фото кристалла (для иллюстрации). На вставке в увеличенном масштабе показан начальный участок кривой  $M(T)$ , когда поле параллельно слоистой структуре монокристалла.

дикулярны плоскости  $a$ - $b$  и соответственно параллельны направлению магнитного поля. В связи с этим в них не могут возбуждаться диамагнитные токи и возникать соответствующий магнитный момент.

В случае  $H \parallel a, b$  поле направлено параллельно плоскостям мономолекулярных кристаллитов и размер диамагнитных контуров в кристаллитах пренебрежимо мал в сравнении со случаем  $H \parallel c$ . Поэтому их вклад в диамагнитный момент мал. В отличие от этого в другой части контуров (со слабыми связями и существенно больших по размерам) при  $H \parallel a, b$  возникает диамагнитный ток, создающий магнитный момент образца. Величина этих случайно возникающих в процессе выращивания образца контуров, их количество и критический ток слабых связей определяют величину возникающего магнитного момента. В результате можно ожидать полученное в эксперименте соотношение между наблюдаемыми значениями моментов при разных направлениях поля.

На рис. 3 показаны зависимости нормированного на начальное значение намагниченности образца, обусловленной захваченными вихрями в магнитном поле ( $H = 5$  Э) в режиме FC (field-cooling), от времени для одной из температур в эксперименте. Как видно из представленных кривых, скорость релаксации поля в случае  $H \parallel a, b$  значительно меньше, чем для случая  $H \parallel c$ .

Для объяснения наблюдаемого различия вначале опишем состояние замороженного (захваченного) магнитного поля в слоистой структуре сверхпроводника второго рода, каким является исследуемый материал. За основу рассуждений выберем опять модель образца,

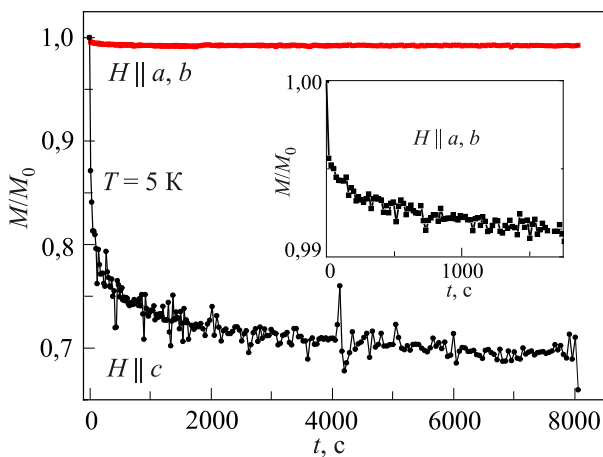


Рис. 3. Типичный пример релаксации намагниченности, обусловленной захваченными магнитными потоками, исследуемого образца для одной из температур ( $T = 5$  К). Кривые  $M(T)$  нормированы на величину начального значения  $M_0 = M(t = 0)$  для двух его ориентаций. На вставке в увеличенном масштабе показан начальный участок кривой  $M(t)/M_0$  при  $H \parallel a, b$ .

состоящую из набора кристаллитов с взаимно параллельными плоскостями, связанными между собой слабыми межслоевыми сверхпроводящими связями, протяженными в направлении, перпендикулярном к плоскости  $a$ - $b$  кристаллитов. При замораживании поля в режиме FC в случае  $H \parallel c$  в кристаллитах возникают вихри Абрикосова (ВА). При этом контуры со слабыми связями не могут содержать замороженное поле в силу того, что их плоскости параллельны направлению поля. Вихри в монокристаллах могут перемещаться (в виде течения потока или скачков) под действием силы Лоренца и тепловых флуктуаций. Этот процесс называется крипом магнитного потока, захваченного в кристаллитах. В частности, скорость перемещения ВА, т.е. скорость релаксации захваченных потоков при их наличии, определяется силой пиннинга. В свою очередь, сила пиннинга пропорциональна потенциалу пиннинга  $U$ . Чем выше наблюдаемая скорость релаксации, тем меньше усредненный потенциал пиннинга  $U$ . В частности, для линейной модели Андерсона-Кима для скорости релаксации ( $S$ ) имеем [8]:

$$S = \frac{1}{M_0} \frac{dM}{d \ln t} = -\frac{kT}{U}, \quad (1)$$

где  $M_0$  — начальное значение магнитного момента образца,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура образца,  $t$  — время.

В случае  $H \parallel a, b$  размагничивающий фактор кристаллитов близок к нулю в силу их малой толщины, и вклад кристаллитов в захваченное поле мал. В отличие от этого вклад в захваченные потоки магнитного состояния центров пиннинга и контуров со слабыми свя-

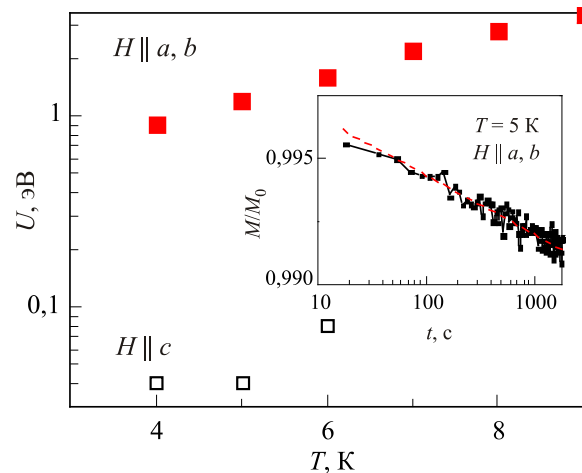


Рис. 4. Усредненный по объему монокристалла эффективный потенциал пиннинга  $U$  в диапазоне экспериментальных температур для двух ориентаций образца ( $H \parallel c$  и  $H \parallel a, b$ ). На вставке в полулогарифмическом масштабе приведены экспериментальные данные  $M(t)/M_0$  для одной из температур. Наблюдается хорошая линейная зависимость, которая позволяет использовать модель Андерсона-Кима для расчета  $U$ .

зьями является определяющими. В этом случае возникают как вихри Абрикосова в областях с подавленным параметром порядка, так и гипервихри и джозефсоновские вихри в самих слабых связях. Предполагая, что движение этого типа вихрей также может быть приближенно описано формулой (1) были рассчитаны значения  $U$  для обоих направлений замороженного магнитного поля (рис. 4). Как видно на рисунке потенциал пиннинга данного соединения в случае  $H \parallel a, b$  более чем на порядок превышает потенциал, рассчитанный для случае  $H \parallel c$ . Таким образом, за счет слоистой структуры данного типа сверхпроводника для вихрей образуются эффективные распределенные плоскостные центры пиннинга. Возможно, это связано с присутствием атомов железа в межслоевом пространстве образца.

На рис. 5 приведены кривые перемагничивания сверхпроводящего образца при  $T = 5 \text{ K}$  для диапазона изменения внешнего магнитного поля  $\pm 500 \text{ Э}$  и двух направлений относительно плоскости  $a-b$ .

Видно проявление сильной анизотропии магнитных свойств кристалла и некоторое отличие от классических кривых перемагничивания сверхпроводников второго рода [9]. Это отличие может быть связано с наличием и пространственным распределением магнитных включений в сверхпроводящем образце, существующих в данном и в подобном ему соединениях [10]. Такими включениями могут быть  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  и  $\text{Fe}_7\text{Se}_8$  [6], располагающиеся в межслоевом пространстве образца. В результате, полную намагниченность образца  $M$  можно представить в виде двух составляющих:

$$M \approx M_f - M_d, \quad (2)$$

где  $M_f$  и  $M_d$  — соответственно ферромагнитная и диамагнитная составляющие. Величина составляющих зависит не только от величины внешнего поля  $H$ , но и

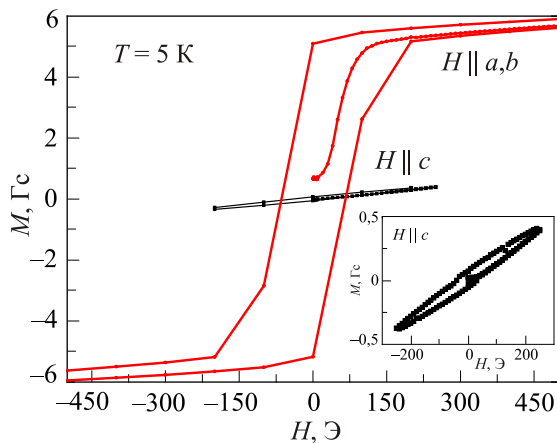


Рис. 5. Петли намагниченности  $M(H)$  для двух ориентаций образца для одной из температур в ходе проведенных измерений. На вставке в увеличенном масштабе показана экспериментальная кривая для случая, когда  $H \parallel c$ .

от фактора размагничивания (коэффициента формы), зависящего от положения образца по отношению к направлению магнитного поля. Из анализа составляющих полной намагниченности можно получить дополнительную информацию о сверхпроводящих и магнитных свойствах образца. Начнем с составляющей  $M_d$ . В интересующем нас диапазоне изменений  $H$  (малые поля, порядка земного) вклад ферромагнитной составляющей в полную намагниченность можно экстраполировать линейной зависимостью  $M(H)$ . После обработки по такой методике экспериментальных кривых можно проводить оценку ширины петли намагничивания сверхпроводника, которая обусловлена, в основном, диамагнитным вкладом.

Ширина петли перемагничивания сверхпроводника  $\Delta M$ , соответствующая прямому и обратному ходу  $H$  при снятии  $M(H)$ , пропорциональна усредненной по объему образца эффективной глубине потенциала пиннинга  $U$ . Согласно модели критических состояний Бина величина плотности критического тока сверхпроводника  $J_c$  связана с геометрическими параметрами исследуемого образца и  $\Delta M$ . Плотность критического тока  $J_c$  можно оценить по известной формуле  $J_c = 20 \Delta M / [a(1 - a/3b)]$ , где  $a, b$  ( $a < b$ ) — размеры поперечного сечения образца [11]. Отношение экспериментально полученных таким методом величин  $\Delta M(H \approx 0)$  при взаимно перпендикулярных ориентациях монокристалла,  $\Delta M \approx 1,2 \text{ Гс}$  ( $H \parallel a, b$ ) и  $\Delta M \approx 0,13 \text{ Гс}$  ( $H \parallel c$ ), дает соотношение

$$\frac{J_c(H \parallel a, b)}{J_c(H \parallel c)} \approx 20, \quad (3)$$

которое качественно согласуется с данными, приведенными на рис. 4 для эффективного потенциала пиннинга.

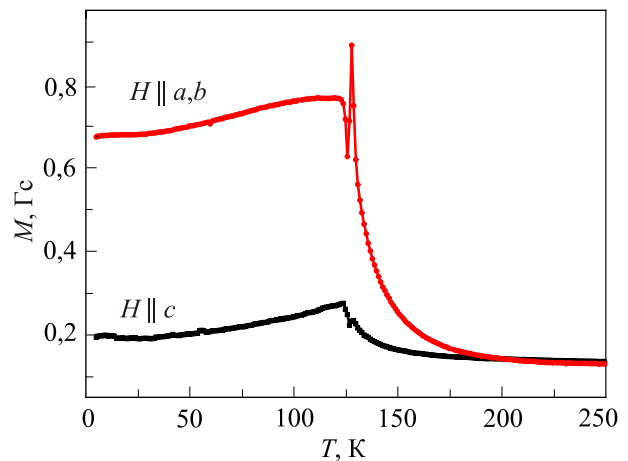


Рис. 6. Намагниченность экспериментального монокристаллического образца для двух его ориентаций в магнитном поле  $H = 5 \text{ Э}$  в расширенном диапазоне температур, которая демонстрирует влияние магнитоструктурного перехода кристаллической решетки.

Теперь рассмотрим составляющую  $M_f$ . Если предположить, что примеси избыточного железа и его окислов образуют между кристаллитами что-то подобное магнитным слоям, то обнаруженные кривые перемагничивания можно объяснить за счет различных коэффициентов размагничивания этих слоев для магнитного поля вдоль и поперек плоскости  $a$ - $b$  образца. Вдоль слоев этот коэффициент близок к нулю, а поперек наоборот близок к единице. В результате, направление вдоль плоскости  $a$ - $b$  является осью легкого намагничивания образца с соответствующей узкой кривой перемагничивания в отличие от направления поля поперек этой плоскости.

На рис. 6 показаны температурные зависимости магнитного момента образца в широком диапазоне температур (в том числе при нормальном состоянии кристалла) при двух направлениях магнитного поля.

Зарегистрировано ожидаемое различие в амплитуде намагниченности и совпадение положения скачка  $M$  при  $T \approx 125$  К. Скачок наблюдался ранее другими исследователями в значительно более сильных полях и связывается с наличием магнитоструктурного перехода в слоях магнитной примеси  $Fe_3O_4$  [6]. Амплитудное различие может быть объяснено аналогично различию в составляющей  $M_f$  полной намагниченности, рассмотренному выше.

#### 4. Выводы

Проведенные измерения магнитного момента образца сверхпроводящего халькогенида  $FeTe_{0,65}Se_{0,35}$  в магнитном поле, направленном вдоль его слоев и поперек их, свидетельствуют о существенной зависимости его магнитных свойств как в сверхпроводящем, так и в нормальном состоянии, от направления поля. Установлено, что решающую роль в возникновении этой зависимости играют особенности кристаллической структуры образца. Исследованный кристалл состоит из малоразмерных (около 30 микрон в плоскостях  $a$ - $b$  слоев) плоских монокристаллитов  $FeTe_{0,65}Se_{0,35}$ , расположенных параллельно друг другу, разделенных межслоевыми сверхпроводящими слабыми связями S-N-S типа. Особенностью этих связей является сложный состав нормальной (N) прослойки, предположительно содержащий магнитные фазы  $Fe_3O_4$  и  $Fe_7Se_8$ .

Измеренные значения диамагнитного и парамагнитного моментов и их зависимость от направления поля определяются сверхпроводящими и магнитными свойствами двух типов сверхпроводящих токовых контуров: токового контура, возникающего в самих монокристаллитах (в виде вихрей Абрикосова), и токового контура, образованного монокристаллитами и слабыми связями между ними. При этом, по нашим представле-

ниям, плоскости этих двух типов контуров взаимно перпендикулярны. Поэтому при одном направлении поля определяющим величину магнитного момента образца является совокупность контуров одного типа, а при другом направлении магнитный момент определяется свойствами совокупности контуров другого типа.

Эта особенность контуров позволила провести диагностику свойств двух различных сред образца (слои монокристалла  $FeTe_{0,65}Se_{0,35}$  и межслоевые магнитные прослойки) с помощью измерения намагниченности образца при двух взаимно перпендикулярных внешних полях возбуждения токов в образце. В частности, в результате выполненных измерений релаксации намагниченности впервые рассчитана величина и показана температурная зависимость потенциал пиннинга вихрей в слабом магнитном поле (5 Э), установлена величина его анизотропии для двух направлений поля, а также рассчитано соотношение плотностей критического тока при этих направлениях поля.

1. D.J. Gawryluk, J. Fink-Finowski, A. Wisniewski, R. Puzniak, V. Domukhovski, R. Diduszko, M. Kozłowski, and M. Berkowski, *Supercond. Sci. Technol.* **24**, 065011 (2011).
2. B.C. Sales, A.S. Sefat, M.A. McGuire, R.Y. Jin, D. Mandrus, and Y. Mozharivskiy, *Phys. Rev. B* **79**, 094521 (2009).
3. S. Li, C. de la Cruz, Q. Huang, Y. Chen, J.W. Lynn, J. Hu, Yi-Lin Huang, Fong-Chi Hsu, Kuo-Wei Yeh, Maw-Kuen Wu, and P. Dai, *Phys. Rev. B* **79**, 054503 (2009).
4. C.L. Huang, C.C. Chou, K.F. Tseng, Y. L. Huang, F.C. Hsu, K.W. Yeh, M.K. Wu, and H.D. Yang, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 084710 (2009).
5. H. Okazaki, T. Watanabe, T. Yamaguchi, Y. Takano, and O. Miura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 088003 (2011); H. Hosono and K. Kuroki, *Physica C* **514**, 399 (2015).
6. A. Wittlin, P. Aleshkevych, H. Przybylinska, D. Gawryluk, P. Dłuzewski, M. Berkowski, R. Puzniak, M. Gutowska, and A. Wisniewski, *Supercond. Sci. Technol.* **25**, 065019 (2012).
7. C.H. Wu, W.C. Chang, J.T. Jeng, M.J. Wang, Y.S. Li, H.H. Chang, and M.K. Wu, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 222602 (2013).
8. В.Ю. Монарха, А.Г. Сиваков, В.П. Тимофеев, *ФНТ* **40**, 1102 (2014) [*Low Temp. Phys.* **40**, 861 (2014)]; В.Ю. Монарха, В.А. Пашенко, В.П. Тимофеев, *ФНТ* **39**, 145 (2013) [*Low Temp. Phys.* **39**, 107 (2013)].
9. Д. Сан-Жам, Г. Сарма, Е. Томас, *Сверхпроводимость второго рода*, Мир, Москва (1970).
10. K. Deduchi, Y. Takano, and Y. Mizuduchi, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **13**, 054303 (2012).
11. C.P. Bean, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 31 (1964); P.B. Vovk, M.A. Оболенский, А.А. Завгородний, А.В. Бондаренко, М.Г. Ревякина, *ФНТ* **33**, 546 (2007) [*Low Temp. Phys.* **33**, 408 (2007)].

Anisotropy of magnetic properties of superconductor  
FeTe<sub>0.65</sub>Se<sub>0.35</sub>

S.I. Bondarenko, O.M. Bludov, A. Wisniewski,  
D. Gawryluk, I.S. Dudar, V.P. Koverya,  
V.Yu. Monarkha, A.G. Sivakov, and V.P. Timofeev

Anisotropy of magnetization of the sample of layered superconductor FeTe<sub>0.65</sub>Se<sub>0.35</sub> is experimentally measured in a magnetic field directed along or across a plane of layers. The pinning potential value of vortices in a weak magnetic field and a ratio of densities of a

critical current are defined for both directions. The discussion of results is based on the sample representation as a sandwich of fine single crystals layers divided by superconducting interlayered weak links with magnetic inclusions.

PACS: 74.25.Ha Magnetic properties;  
74.25.F– Transport properties;  
74.70.Xa Pnictides and chalcogenides

Keywords: iron-based superconductor, magnetic moment, pinning potential, critical current, anisotropy of properties.