

## c-axis Transport Properties of SmFeAsO<sub>0.85</sub> Single Crystals

Jae-Hyun Park<sup>a</sup>, Yong-Joo Doh<sup>a</sup>, Hyun-Sook Lee<sup>a</sup>, B. K. Cho<sup>b</sup>, Hu-Jong Lee<sup>\*,a</sup>

<sup>a</sup> Pohang University of Science and Technology, Pohang, Korea

<sup>b</sup> Gwangju Institute of Science and Technology, Gwangju, Korea

(Received 8 March 2010 revised or reviewed 22 March 2010 accepted 23 March 2010)

### SmFeAsO<sub>0.85</sub> 단결정의 c-축 전도 특성

박재현<sup>a</sup>, 도용주<sup>a</sup>, 이현숙<sup>a</sup>, 조병기<sup>b</sup>, 이후종<sup>\*,a</sup>

#### Abstract

Electrical transport properties were measured on SmFeAsO<sub>0.85</sub> single crystals along the *c*-axis for various temperatures and magnetic fields. For the measurements a mesa structure was fabricated on the surface of the single crystals. Samples showed a metallic temperature dependence of resistance and current-voltage curves without hysteretic multiple branch splitting that is usually observed in tunneling Josephson junctions. In addition, in *ab*-planar magnetic fields, samples did not show the Fraunhofer-type field modulation of the critical current. All these features indicate that the *c*-axis transport characteristics of SmFeAsO<sub>0.85</sub> single crystals are explained by the anisotropic bulk superconductivity rather than Josephson tunneling.

*Keywords* : iron -based superconductor, *c*-axis transport, anisotropic bulk superconductor

#### I. 서론

최근에 발견된 철 기반 초전도체는 [1] 임계 온도가 55 K까지 이르는 것으로 알려져 [2], 고온 초전도체의 연구에 새로운 시각을 제공하며 많은 관심을 끌고 있다. 철 기반 초전도체는 초전도성을 갖는 Fe-As 층과 전하 저장층이 교대로 이루어진 층상 구조를 갖고 있는 점과, 반강자성의 원물질 상태에 전자 또는 정공을 도핑함으로써 초전도성이 나타나기 시작한다는 점, 그리고 돔 모양의 도핑에 따른 임계온도 변화의 상도표를 갖고 있다는 점에서 구리 산

화물 초전도체와 유사한 특성을 보이고 있다 [3]. 그러나 구리 산화물 초전도체와 달리 철 기반 초전도체에서는 등방성의 다중 초전도 에너지 간격과 서로 다른 부호를 갖는 질서매개 변수가 [4] 나타나고 있어 구리 산화물 고온초전도체와는 다른 고온 초전도의 새로운 특성을 제시하고 있다.

층상 구조를 가지는 철 기반 초전도체의 특성을 고려해보면, 구리 산화물 초전도체의 대표적인 물질인 Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+x</sub> (Bi-2212) 단결정과 같이 [5], 각 층들 사이에 자연적으로 형성되는 선천성 조셉슨 접합의 존재를 기대할 수 있다. 하지만, 윗임계자장(H<sub>c2</sub>)의 측정을 통해 [6-10] 철 기반 초전도체의 비등방성(γ<sub>tt</sub>)이 Bi-2212 단결정의 비등방성(γ<sub>p</sub> = ρ<sub>c</sub>/ρ<sub>ab</sub> > 1000)보다

\*Corresponding author. Fax : +82 54 279 5564  
e-mail : hjlee@postech.ac.kr

훨씬 작다는 것이 밝혀져 [11] 철 기반 초전도체에서 *c*-축 방향으로의 조셉슨 효과에 의한 특성이 나타나기 보다는 비등방적인 삼차원 덩치(bulk) 특성이 나타날 것으로 예측되어 왔다. 게다가, AEF<sub>2</sub>As<sub>2</sub>(AE = alkaline-earth elements) 계열의 초전도체인 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 단결정(x=0.74)에 대해 이루어진 *c*-축으로의 전류-전압 특성 측정 결과에서는 이력특성과 다중 가지 갈라지기(multiple-branch splitting)와 같은 조셉슨 효과의 특성은 나타나지 않았다 [7]. 본 연구에서는 AEF<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 초전도체보다는 큰 비등방성을 갖는 REFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>(RE=rare-earth elements) 계열의 초전도체인 SmFeAsO<sub>0.85</sub> 단결정에 대해 [6-10] 다양한 온도와 전도평면 방향의 자기장에 대해 *c*-축 전도 특성을 측정하였다. 그 결과 SmFeAsO<sub>0.85</sub> 초전도체는 층상 결정구조에도 불구하고 투과전도 특성 대신 3차원 덩치 초전도체의 특성을 가짐을 확인하였다.

## II. 실험방법

SmFeAsO<sub>0.85</sub> 단결정은 고온, 고압하에서 자체 플럭스 방법(self-flux method)으로 SmAs, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 그리고 Fe를 기반 물질로 사용하여 성장되었다. 3.3 GPa의 압력과 1350-1450 °C의 온도에서 8-10 시간 동안 열처리를 한 후 상온으로 급속도로 냉각시켰다. 단결정의 합성에 대한 자세한 내용은 저자들의 선행 연구 보고 [12]를 참조할 수 있다. 압력을 내리고 얻어진 덩어리를 물리적으로 깬 후에 플럭스 사이에 박혀 있는 판상의 단결정을 골라내었다. 이들은 대략 5-200 μm의 평면 길이와 0.5-20 μm의 두께를 가졌다. 또한 판상의 표면이 *ab*-평면과 평행하며 표면과 수직한 방향이 *c*-축 방향임을 싱크로트론 쪼임을 이용한 x-선 회절을 통해 알 수 있었다.

본 연구에서는 표면이 깨끗하고 편평한 모양으로 평면길이와 두께가 각각 7-10 μm, 0.5-2 μm인 비교적 작은 단결정을 골라내어 시료를 제작하였다. Fig. 1의 상단에 있는 삽화에 시료의 모양을 도식적으로 나타내었다. 전자선 리토그래피와 알곤-이온 식각을 이용하여 1×4 μm<sup>2</sup>의 면적과 40 nm 정도의 두께를 갖는 단상

구조를 만들었다 [13]. 그리고, 단상구조의 윗 표면과 단결정의 나머지 부분을 격리하기 위해 음의 전자-빔 레지스트를 패터닝하여 절연층을 만들었다. 온도와 자기장을 변화시키면서 4 단자법을 이용하여 전류 바이어스의 상태에서 저항-온도 곡선과 전류-전압 곡선을 측정하였다.

## III. 결과 및 토의

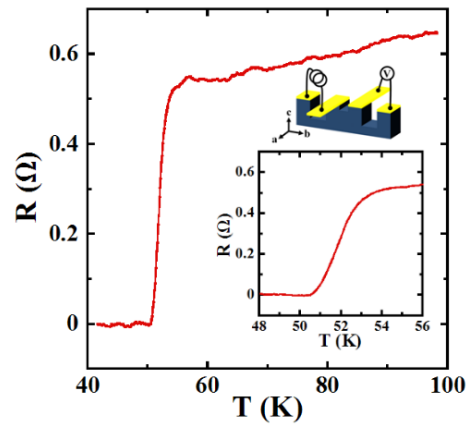


Fig. 1. Resistance vs temperature (*R*-*T*) curve along the *c*-axis of SmFeAsO<sub>0.85</sub> single crystal in zero magnetic field. The upper inset shows a schematic diagram of the four-terminal measurement configuration and the lower inset shows a close-up view of *R*-*T* curve near the superconducting transition temperature.

Fig. 1의 상단에 있는 삽화는 시료의 4 단자법에 의한 측정 방식을 개략적으로 보여주고 있다. Fig. 1은 *I*=1 μA의 전류를 흘려 4-100 K 사이의 온도에서 측정한 저항-온도 곡선이다. 하단에 있는 이의 확대된 삽화에서 자세히 알 수 있듯이 초전도 임계온도는 52 K에 가깝다. 저항이 온도에 따라 단조 감소하는 것으로부터 이 물질은 *c*-축으로 급속성입의 전도 특성을 가지는 것을 알 수 있다. 초전도 상태로 전이될 때의 저항내림을 통해 단결정의 *c*-축으로의 비저항( $\rho_c$ )을 계산하면 5.5 mΩ이 되어, 다른 그룹에서 얻어진 철 기반 초전도체의 *ab*-평면으로의 비저항( $\rho_{ab}$ )이나 SmFeAsO<sub>0.85</sub> 단결정에서의 비저항( $\rho_{ab}\sim 0.08$  mΩ·cm) [12], SmFeAsO<sub>0.7</sub>F<sub>0.25</sub> 단결정에서의 비저항( $\rho_{ab}\sim 0.17$  mΩ·cm) [10] 값의

약 30-70 배 정도 크게 나온다. 이 값은 윗임계자장의 측정에서 얻어진 비등방성 비율의 [8, 10] 제곱에 해당하는 값에 근접하는 것처럼 보인다. 그러나, 이것은  $\text{SmFeAsO}_{0.85}$  단결정이 가지는 비교적 작은 비등방성 비율과 시료의 비대칭적 구조에 기인한 전류의 불균일한 분포에 의해 물질이 고유하게 가지는 실제 비저항 값보다 작게 측정되었기 때문으로 판단된다. 이러한 전류의 불균일성은 Fig. 2에 보인 전류-전압 곡선의 비대칭적인 전이특성에서도 확인된다.

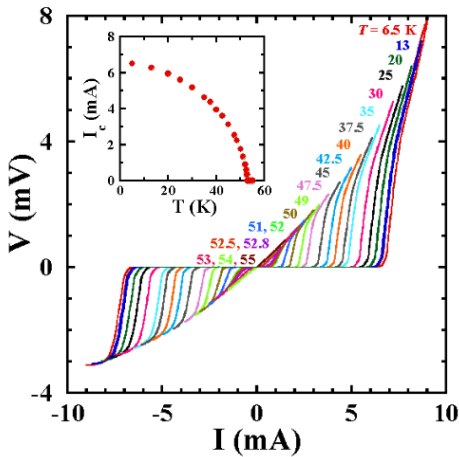


Fig. 2. Current-voltage ( $I$ - $V$ ) curves along the  $c$ -axis of a single crystal at different temperatures. Inset: temperature dependence of the  $c$ -axis critical current ( $I_c$ - $T$ ).

6.5-55 K의 온도에서 측정한 전류-전압 곡선에서는 단결정의 평면 방향 초전도 임계온도 이하에서  $c$ -축으로의 초전류를 확인할 수 있었다.  $I = 10$  mA에 이르는 높은 전류에 의한 줄발열 효과 때문에 전류의 쓸기(sweep) 방향에 따른 작은 이력특성 나타나지만 전체적인 전류-전압 곡선의 모양은 단일가 함수의 특성을 나타낸다. 임계전류 ( $I_c$ ) 값은 각각  $V = \pm 0.1$  mV의 전압강하가 일어나는 양의 전류 바이어스 값과 음의 전류 바이어스 절대값의 평균값으로 취하였다.  $c$ -축 임계전류밀도( $J_{c,c}$ )는 6.5 K의 온도에서  $J_{c,c} = 1.65 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup>에 이르고 이것은 다른 종류의 철 기반 초전도체에서 자기 이력 곡선으로부터 얻어진  $ab$ -평면의 임계전류밀도( $J_{c,ab}$ )와  $\text{SmFeAsO}_{0.8}\text{F}_{0.2}$  단결정의  $J_{c,ab} \sim 1 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup> [10],

$\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$  단결정의  $J_{c,ab} \sim 4 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup> [9], 그리고  $\text{FeSe}_{0.61}\text{Te}_{0.39}$  단결정의  $J_{c,ab} \sim 1 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup> [14]와 비슷한 크기의 값을 갖는다. 이러한 방법으로 결정된 임계전류는 Fig. 2의 삽화와 같이 온도의 감소에 따라 단조 증가하는 행태를 보인다. 임계온도 근처에서는 선형으로 증가하다가 이후에 0 K에서의 임계전류의 값으로 수렴하는 것을 볼 수 있다. 이러한 임계전류의 온도 의존성은 점 접합 안드레브 반사 실험에 의해 밝혀진 초전도 에너지 간격의 온도 의존성과 유사성을 보이고 있다 [15-17]. 이것은  $\text{SmFeAsO}_{0.85}$  단결정의  $c$ -축 방향으로의 결맞음 길이( $\xi_c$ )가 0 K에서  $\xi_c = 3.6$  Å으로 [8] Fe-As 층 사이의 거리인  $c = 8.4$  Å과 [12] 비슷한 크기를 가짐으로써 Fe-As 층 사이에 있는 Sm-O 층에 초전도성이 근접효과에 의해 완전히 침투될 수 있어 덩치 초전도성이 나타날 수 있다는 사실로 해석할 수 있다.

Fig. 3 (a)는 임계전류의 자기장에 따른 변화를 특정 온도에 따라 나타낸 것이다. 고정된 온도에서 자기장은 단결정의  $ab$ -평면 방향으로 -6 T와 6 T의 사이에서 점진적으로 변화시키며 걸어주었다. 각각의 온도와 자기장에서 전류-전압 곡선을 측정함으로써 임계전류의 자기장에 따른 변화를 측정하였다. 50 K 이하의 온도에서는 철 기반 초전도체의 높은 윗임계자장의 영향으로 임계전류의 변화가 20% 미만으로 크지 않지만, 임계 온도의 바로 아래에서는 임계전류가 자기장이 커짐에 따라 빠른 속도로 줄어드는 것을 알 수 있다. 임계전류의 자기장의 크기에 따른 변화는 선천성 조셉슨 접합에서 보이는 프라운호퍼 패턴의 [18] 모습과는 달리 선형으로 변함을 알 수 있다. 또한 선천성 조셉슨 접합에서 조셉슨 침투 깊이( $\lambda_J$ )가 메사구조의 평면 길이보다 매우 작은 한계일 때 성립하는  $1 - I_c/I_{c0} = (H/H_0)^{1/2}$ 의 관계에 대한 [19] 맞춤을 통해  $H_0$ 의 값을 얻었다. 그 결과 이 값은 윗임계자기장의 값보다 훨씬 큰 100-1000 T의 값을 가지는 것으로 나타나, 위 식과 같은 관계를 갖는 것은 물리적 의미가 없으며 따라서 자장에 따른 임계전류 특성이 조셉슨접합 특성을 따르지 않음을 다시 확인할 수 있다.

Fig. 3 (b)는 임계전류의 자기장에 따른 주기

적인 변화를 검증하기 위하여 [20] 전류-전압 곡선상의  $I=1$  mA의 고정된 전류에서 연속적인 자기장의 쓸기를 통한 미분저항(differential resistance)의 변화의 측정 결과를 보이고 있다. 이에서도 미분저항의 자기장에 대한 주기적인 변동이 관측되지 않으므로 자기장에 의한 주기적인 임계전류의 변동이 나타나지 않음을 보여 주고 있어 단결정의 *c*-축 방향으로 선천성 조셉슨 접합이 형성되지 않음을 보여주는 근거라 할 수 있다.

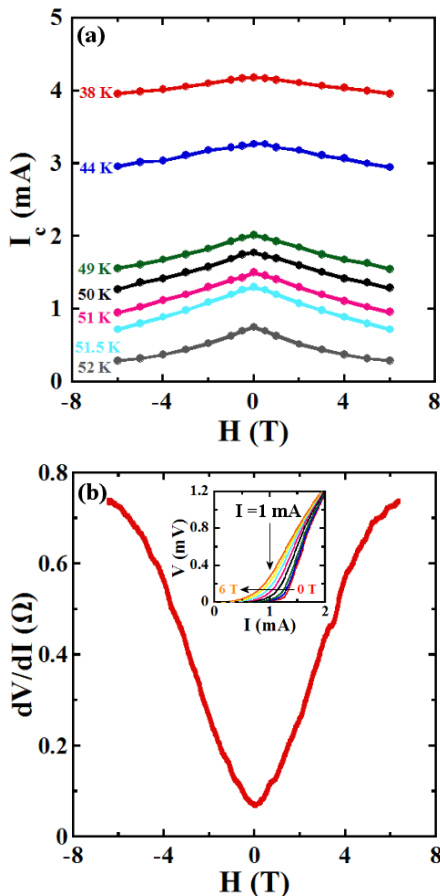


Fig. 3. (a) Field dependence of the critical current ( $I_c$ - $H$ ) at various temperatures in a magnetic field ranging from -6 T to 6 T. The magnetic field is applied along the *ab*-planar direction of a single crystal. (b) Magnetic field dependence of the differential resistance in  $I = 1$  mA at  $T = 51$  K while sweeping the magnetic field continuously. Inset shows the positive current bias region of  $I$ - $V$  curves for various magnetic fields ( $H = 0, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 6$  T) at  $T = 51$  K.

#### IV. 결론

최근의 실험결과들로 볼 때, 철 기반 초전도체는 유사한 층상 구조를 가지는 구리 산화물 초전도체와는 달리 매우 등방적인 특성을 가지고 있다. 각분해 광분출 분광(angle-resolved photo-emission spectroscopy)의 측정을 통해 철 기반 초전도체가 구리 산화물 초전도체에서 나타나는 축약된 전자 구조나 페르미 평면과는 달리 3 차원의 전자 구조와 페르미 평면을 가진다는 것이 밝혀져 [21-24] 이것이 철 기반 초전도체의 작은 비등방성과 연관되어 있을 것이라고 판단된다. 철 기반 초전도체의 *c*-축 결맞음 길이가 초전도성을 갖는 Fe-As 층 사이의 거리와 비슷하다는 점 또한 이 물질들이 초전도 덩치의 특징을 보임의 근거를 제공한다 [8, 12].

본 실험에서는  $\text{SmFeAsO}_{0.85}$  단결정의 *c*-축 방향의 전도 특성에서 보이는 금속성의 저항-온도 곡선과 이력특성이 없는 단일가 함수의 특성을 가지는 전류-전압 곡선특성, 그리고 자기장에 따라 주기적인 변화 없이 선형적으로 감소하는 임계전류의 변화로부터 철 기반 초전도체인  $\text{SmFeAsO}_{0.85}$  단결정이 작은 비등방성을 가지는 3차원 덩치 초전도체의 특성을 가진다는 결론을 내리게 된다.

#### Acknowledgments

This work was supported by the National Research Foundation through Acceleration Research Grant R17-2008-007-01001-0 and by POSCO through Steel Science Program.

#### References

- [1] Y. Kamihara *et al.*, “Iron-based layered superconductor  $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$  ( $x=0.05-0.12$ ) with  $T_c=26$  K”, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
- [2] Z. A. Ren *et al.*, “Superconductivity at 55K in iron-based F-doped layered quaternary compound  $\text{SmO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ ”, *Chin. Phys. Lett.* **25**, 2215 (2008).

- [3] A. Cho, “Physics - The hot question: How new are the new superconductors?”, *Science* **320**, 870 (2008).
- [4] Mazin, II *et al.*, “Unconventional superconductivity with a sign reversal in the order parameter of  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 057003 (2008).
- [5] R. Kleiner *et al.*, “Intrinsic Josephson effects in high- $T_c$  superconductors”, *Phys. Rev. B* **49**, 1327 (1994).
- [6] H. Q. Yuan *et al.*, “Nearly isotropic superconductivity in  $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ ”, *Nature* **457**, 565 (2009).
- [7] M. A. Tanatar *et al.*, “Anisotropy of the iron pnictide superconductor  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  ( $x=0.074$ ,  $T_c=23$  K)”, *Phys. Rev. B* **79**, 094507 (2009).
- [8] H. S. Lee *et al.*, “Effects of two gaps and paramagnetic pair breaking on the upper critical field of  $\text{SmFeAsO}_{0.85}$  and  $\text{SmFeAsO}_{0.8}\text{F}_{0.2}$  single crystals”, *Phys. Rev. B* **80**, 144512 (2009).
- [9] A. Yamamoto *et al.*, “Small anisotropy, weak thermal fluctuations, and high field superconductivity in Co-doped iron pnictide  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ”, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 062511 (2009).
- [10] J. Karpinski *et al.*, “Single crystals of  $\text{LnFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Gd}$ ) and  $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ : Growth, structure and superconducting properties”, *Physica C* **469**, 370 (2009).
- [11] D. E. Farrell *et al.*, “Giant superconducting anisotropy in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 782 (1989).
- [12] H. S. Lee *et al.*, “High-pressure growth of fluorine-free  $\text{SmFeAsO}_{1-x}$  superconducting single crystals”, *Supercond. Sci. Technol.* **22**, 075023 (2009).
- [13] Y. J. Doh *et al.*, “Progressive evolution of tunneling characteristics of *in situ* fabricated intrinsic Josephson junctions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  single crystals”, *Phys. Rev. B*, **61**, 3620 (2000).
- [14] T. Taen *et al.*, “Superconductivity at  $T_c$  similar to 14 K in single-crystalline  $\text{FeTe}_{0.61}\text{Se}_{0.39}$ ”, *Phys. Rev. B*, **80**, 092592 (2009).
- [15] T. Y. Chen *et al.*, “A BCS-like gap in the superconductor  $\text{SmFeAsO}_{0.85}\text{F}_{0.15}$ ”, *Nature* **453**, 1224 (2008).
- [16] L. Shan *et al.*, “Point-contact spectroscopy of iron-based layered superconductor  $\text{LaO}_{0.9}\text{F}_{0.1}\text{FeAs}$ ”, *Europhys. Lett.* **83**, 57004 (2008).
- [17] R. S. Gonnelli *et al.*, “Coexistence of two order parameters and a pseudogap-like feature in the iron-based superconductor  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, *Phys. Rev. B*, **79**, 184526 (2009).
- [18] M. Tinkham, Introduction to superconductivity, 2<sup>nd</sup> ed., New York, Dover publications, 2004.
- [19] M. V. Fistul *et al.*, “Magnetic field dependence of the critical current of a layered superconductor”, *Physica C* **230**, 9 (1994).
- [20] D. C. Ling *et al.*, “Experimental Evidence for Intra- and Inter-Unit-Cell Josephson Junctions in a  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Single Crystal”, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2011 (1995).
- [21] P. Vilmercati *et al.*, “Evidence for three-dimensional Fermi-surface topology of the layered electron-doped iron superconductor  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ”, *Phys. Rev. B*, **79**, 220503 (2009).
- [22] F. Bondino *et al.*, “Evidence for strong itinerant spin fluctuations in the normal state of  $\text{CeFeAsO}_{0.89}\text{F}_{0.11}$  iron-oxypnictide superconductors”, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 267001 (2008).
- [23] D. H. Lu *et al.*, “Electronic structure of the iron-based superconductor  $\text{LaOFeP}$ ”, *Nature* **455**, 81 (2008).
- [24] W. Malaeb *et al.*, “Electronic structure and electron correlation in  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  and  $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 093714 (2008).