

УДК 538.945

## ОСОБЕННОСТИ МНОГОЦЕЛЕВОЙ СВЕРХПРОВОДИМОСТИ В NaFeAs, ДОПИРОВАННОМ КОБАЛЬТОМ

А. И. Шилов<sup>1</sup>, А. С. Усольцев<sup>2</sup>, А. В. Садаков<sup>2</sup>

*Проведено исследование поведения плотности критического тока в собственном поле монокристаллического образца состава  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  ( $T_c = 21.1$  K) в температурном диапазоне от 4 K до  $T_c$ . В рамках модели Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) были получены зависимости плотности сверхпроводящих носителей  $\rho_s(T)$  в предположении двухзонного случая. Показано, что в случае двухщелевой сверхпроводимости экспериментальные данные хорошо описываются теорией, а полученные из аппроксимации значения сверхпроводящих щелей  $\Delta(0)$  согласуются со значениями, определенными из исследования спектров андреевского отражения.*

**Ключевые слова:** высокотемпературная сверхпроводимость, железосодержащие сверхпроводники, пниктиды, сверхпроводящий параметр порядка.

*Введение.* Сверхпроводящие пниктиды щелочных металлов с общей формулой  $\text{AFeAs}$  ( $A = \text{Na}, \text{Li}$ ) – это одно из наиболее интересных семейств среди железосодержащих сверхпроводников (СП). Это редкий представитель железосодержащих сверхпроводников, который сверхпроводит даже в стехиометрическом составе [1]. При частичном замещении атомов Fe на Co критическая температура возрастает более чем в два раза с максимальным значением  $T_c = 22$  K [2], которое увеличивается до 31 K, если приложить небольшое гидростатическое давление [3]. Такая гибкость электронной подсистемы напоминает о другом, наиболее популярном железосодержащем сверхпроводнике семейства 11 – FeSe, у которого критическая температура под давлением вырастает с 9 K до 37 K [4]. Но в отличие от FeSe, по которому уже проведено множество исследований и

<sup>1</sup> МГУ им. М. В. Ломоносова, Химический факультет, 119991 Россия, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 3.

<sup>2</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: TANKNBP@live.com.

опубликовано более тысячи статей, в системе 111 осталось еще много загадок, особенно в вопросе структуры сверхпроводящего параметра порядка. Из-за наличия щелочно-металла в структуре монокристаллы 111 очень быстро деградируют на воздухе и предъявляют особые требования при монтаже образцов и проведении экспериментов. Тем не менее, на данный момент методом фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (angle-resolved photoemission spectroscopy – ARPES) определено, что поверхность Ферми состоит по крайней мере из двух квазидвумерных поверхностей: из электронного пакета в точке М первой зоны Бриллюэна, и дырочного пакета в точке Г [5]. Также из данных ARPES было установлено наличие двух сверхпроводящих щелей, которые открываются на разных пакетах поверхности Ферми [5, 6]. При этом стоит отметить, что данные по величине энергетических щелей в приведенных работах отличаются более чем в два раза! В работе [6] щель, измеренная в дырочной зоне в точке Г, равна  $\Delta_1(0) = 3.3 \text{ meV}$ , а в электронной зоне в точке М  $\Delta_2(0) = 2.9 \text{ meV}$ , в то время как в работе [5] величины щелей в дырочной и электронной зонах равны  $\Delta_1(0) = 6.8 \text{ meV}$  и  $\Delta_2(0) = 6.5 \text{ meV}$ , соответственно, но в последней работе особенности, которые интерпретируются как щелевые, остаются в спектрах выше критической температуры, что означает, что они могут не относиться к сверхпроводимости. Достаточно подробно о несоответствиях и нестыковках в исследовании сверхпроводящей щели в системе  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  можно ознакомиться в обзоре [2]. Кроме того, в работе [7] проведены исследования температурной зависимости плотности сверхпроводящих носителей. Эта методика является надежным инструментом для детектирования структуры параметра порядка и позволяет определить количество щелей и их угловую зависимость в  $k$ -пространстве (смотри, напр., [8, 9] или обзор [10]). Тем не менее, в исследованиях  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  авторам [7] не удалось получить удовлетворительную аппроксимацию зависимости  $\rho_s(T)$  ни в рамках однощелевых моделей ( $s$ -wave и  $d$ -wave), ни в рамках модели двухщелевой сверхпроводимости (две  $s$ -wave щели). Это стало мотивацией для независимого исследования температурной зависимости плотности сверхпроводящих носителей  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ , полученной из экспериментов по плотности критического тока в собственном поле. Из этих исследований нам удалось получить не только хорошее качественное согласие с двухщелевой  $s$ -wave моделью, но и количественно получить значения  $\Delta(0)$  щелей, сравнимые с полученными из исследований андреевских спектров туннельных SnS контактов [11].

*Методика эксперимента и расчётов.* Монокристаллы  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  ( $x = 0.045$ ) выращены методом кристаллизации из раствора в расплаве собственных компонентов,

детали роста и характеризацию образцов можно найти в [11].

Экспериментальная методика измерения вольт-амперных характеристик (ВАХ) и дифференциального кондактанса, на базе которой были проведены измерения плотности критического тока в собственном поле, подробно описана в [12]. Во избежание деградирования образца, монтаж проводился в аргоновой атмосфере в перчаточном боксе. Для измерений критического тока от монокристалла были отшелушены тонкие флейки толщиной 10–20 мкм и длиной порядка 1 мм. Далее образец заливался водонепроницаемым компаундом (Ariezon), который, в свою очередь, не препятствовал последовательному подпилу образца до момента, когда измерительный ток установки не переводил образец из СП состояния в нормальное без паразитного перегрева контактных областей образца. Размер итогового сужения был оценен под оптическим микроскопом МБС-10 в 50–70 мкм. Измерения проводились по 4-точечной схеме.

Магнитные измерения проводились на СКВИД магнитометре Quantum Design MPMS-XL-7.

Для расчёта температурной зависимости плотности критического тока и получения информации о структуре параметра порядка мы воспользовались методикой, описанной в [13] для тонких пленок и [14] для макроскопических образцов. Согласно этим работам в сверхпроводнике второго рода прямоугольного сечения критический ток в собственном поле описывается соотношениями:

$$J_c(T) = \frac{\hbar}{4e\mu_0\lambda^3(T)} (\ln(\kappa) + 0.5) \cdot \left( \frac{\lambda(T)}{a} \tanh\left(\frac{a}{\lambda(T)}\right) + \frac{\lambda(T)}{b} \tanh\left(\frac{b}{\lambda(T)}\right) \right), \quad (1)$$

$$\frac{\lambda(T)}{\lambda(0)} = \sqrt{1 - \frac{1}{2k_B T} \int_0^\infty \cosh^{-2}\left(\frac{\sqrt{\varepsilon^2 + \Delta^2(T)}}{2k_B T}\right) d\varepsilon}, \quad (2)$$

$$\Delta(T) = \Delta(0) \cdot \tanh\left(\frac{\pi k_B T}{\Delta(0)} \sqrt{\eta \left(\frac{\Delta C}{C}\right) \left(\frac{T_C}{T} - 1\right)}\right), \quad (3)$$

где  $2a$  – ширина образца,  $2b$  – толщина образца,  $\mu_0$  – магнитная проницаемость свободного пространства,  $e$  – заряд электрона,  $\kappa = \lambda/\xi$  – параметр Гинзбурга–Ландау, который под логарифмом практически не зависит от температуры,  $\Delta(T)$  – формула Гросса [15] для сверхпроводящей щели,  $\eta = 2/3$  для  $s$ -волновой сверхпроводимости,  $\Delta C/C$  – скачок удельной теплоемкости при сверхпроводящем переходе. В таком представлении величины  $T_C$ ,  $\Delta(0)$ ,  $\lambda(0)$ ,  $\Delta C/C$  являются свободными параметрами при аппроксимации. В случае, если предполагается двузонная сверхпроводимость и наличие двух конденсатов,

тогда плотность сверхпроводящих носителей представляется как:

$$\rho_s(T) = \frac{\lambda^{-2}(T)}{\lambda^{-2}(0)} = \alpha\rho_{s1}(T) + (1 - \alpha)\rho_{s2}(T), \quad (4)$$

здесь,  $\alpha$  – весовой вклад одной зоны.

Работоспособность такого подхода для исследования плотности сверхпроводящих носителей была апробирована на десятках независимых экспериментов, проведенных на обыкновенных, сверхпроводниках, купратных, железосодержащих и гидридных высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) [13, 14, 16, 17].

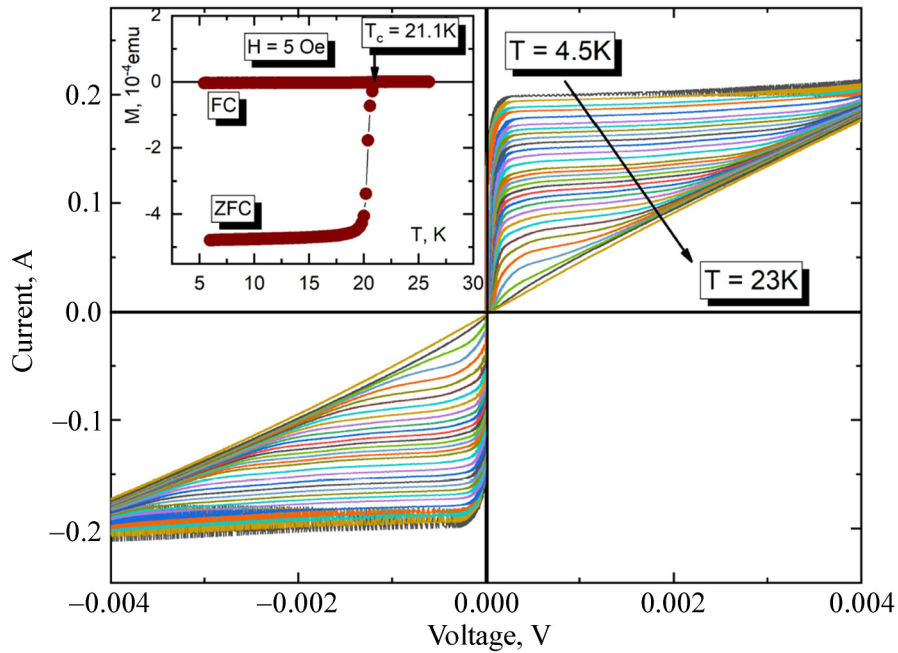


Рис. 1: Основная панель: вольт-амперные характеристики образца  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  в температурном диапазоне 4.5 К–23 К. Вставка: сверхпроводящий переход, измеренный в режимах охлаждения в поле  $H = 5$  Oe (FC) и охлаждения в нулевом поле (ZFC). Определенная из магнитных измерений критическая температура  $T_c = 21.1$  К.

*Результаты и обсуждение.* На рис. 1 (основная панель) представлен набор вольт-амперных характеристик образца  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ , измеренных в температурном диапазоне от 4.5 К до 23 К. Критерием определения критического тока был выбран ток, который соответствует началу резкого роста напряжения на ВАХ. Для оценки величины плотности критического тока были использованы размеры сужения  $50 \times 10$  мкм. Ошибка в оценке абсолютной величины плотности критического тока в данном исследовании

довании не так страшна, поскольку она влияет только на итоговую оценку величины глубины проникновения  $\lambda(0)$  и не влияет на определение величины параметра порядка.

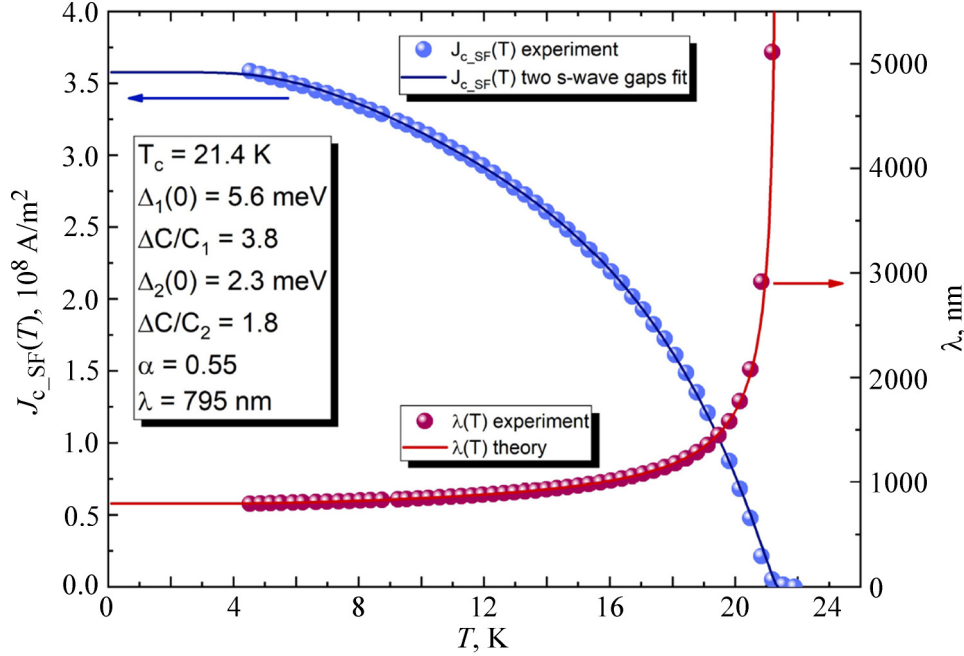


Рис. 2: Экспериментальная температурная зависимость плотности критического тока на монокристаллическом флейке с сужением  $50 \text{ мкм} \times 10 \text{ мкм}$  (синие символы). Сплошная синяя линия показывает ход теоретической зависимости, полученной в рамках двухщелевой  $s$ -wave модели. Посчитанные значения  $\lambda(T)$  по формуле (1) для экспериментальных точек (красные символы) и теоретической кривой (красная сплошная линия).

Итоговая зависимость плотности критического тока показана на рис. 2 (синие символы). Синей линией показана наилучшая аппроксимация в рамках двухзонной модели для изотропного  $s$ -wave сверхпроводника. Полученные значения всех параметров показаны на вставке к рис. 2. Значения сверхпроводящих щелей  $\Delta_1(0) = 5.6 \pm 0.6 \text{ meV}$  и  $\Delta_2(0) = 2.3 \pm 0.3 \text{ meV}$ . Значения щелей хорошо соотносятся с полученными в работе [11].

Структура параметра порядка сверхпроводника является важнейшим вопросом для понимания нетрадиционной сверхпроводимости, которую демонстрируют железосодержащие сверхпроводники. Поэтому планомерное и тщательное исследование параметра порядка с применением высокоточных объемных методик является очень важным. Нами показано, что поведение плотности сверхпроводящих носителей очень хорошо описывается двухщелевой  $s$ -wave моделью, а значения щелей при нулевой темпера-

туре находятся в хорошем согласии с данными по туннельным исследованиям. Наш результат контрастирует с работой [7], что на наш взгляд связано с тем, что авторы для описания поведения плотности сверхпроводящих носителей использовали значения  $\lambda(0) = 354$  nm, взятые из работы [18]. Значение взято для номинально аналогичного состава, но имеющего критическую температуру ниже на 3 К (смотри рис. 2 в работе [7] и рис. 2 в работе [18]). Это означает, что образцы были существенно различными и что взятая величина глубины проникновения, скорее всего не верна, что безусловно повлияло на результат аппроксимации.

*Заключение.* Были выращены и охарактеризованы сверхпроводящие монокристаллы  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$  высокого качества. Из транспортных измерений на специально созданных чешуйках с сужением были получены зависимости плотности критического тока в собственном поле. Из аппроксимации этой зависимости в рамках двухщелевой *s*-wave модели получены значения сверхпроводящих щелей в  $\Delta_1(0) = 5.6 \pm 0.6$  meV и  $\Delta_2(0) = 2.3 \pm 0.3$  meV. Характеристическое соотношение для большой щели  $2\Delta_1/k_B T_c = 6.6$ , для малой щели  $2\Delta_2/k_B T_c = 2.7$ .

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 22-43-02020.

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] G. Tan, P. Zheng, X. Wang, et al., *Physical Review B* **87**(14), 144512 (2013). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.144512>.
- [2] T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, *Jetp Lett.* **114**, 630 (2021). <https://doi.org/10.1134/S0021364021220070>.
- [3] A. F. Wang, Z. J. Xiang, J. J. Ying, et al., *New Journal of Physics* **14**(11), 113043 (2012). <https://doi.org/10.1088/1367-2630/14/11/113043>.
- [4] S. Medvedev, T. M. McQueen, I. A. Troyan, et al., *Nature materials* **8**(8), 630 (2009). <https://doi.org/10.1038/nmat2491>.
- [5] Z. H. Liu, P. Richard, K. Nakayama, et al., *Physical Review B* **84**(6), 064519 (2011). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.064519>.
- [6] S. Thirupathiah, D. V. Evtushinsky, J. Maletz, et al., *Physical Review B* **86**(21), 214508 (2012). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.214508>.
- [7] K. Cho, M. A. Tanatar, N. Spyrison, et al., *Physical Review B* **86**, 020508(R) (2012). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.020508>.

- [8] H. Kim, M. A. Tanatar, Y. J. Song, et al., *Physical Review B* **83**(10), 100502 (2011).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.100502>.
- [9] K. Cho, M. A. Tanatar, H. Kim, et al., *Physical Review B* **85**(2), 020504 (2012).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.020504>.
- [10] R. Prozorov, V. G. Kogan, *Reports on Progress in Physics* **74**(12), 124505 (2011).  
<https://doi.org/10.1088/0034-4885/74/12/124505>.
- [11] L. Morgun, S. Kuzmichev, I. Morozov, et al., *Materials* **16**(19), 6421 (2023).  
<https://doi.org/10.3390/ma16196421>.
- [12] T. K. Kim, K. S. Pervakov, D. V. Evtushinsky, et al., *Physical Review B* **103**(17), 174517 (2021). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.174517>.
- [13] E. F. Talantsev, J. L. Tallon, *Nature communications* **6**(1), 7820 (2015).  
<https://doi.org/10.1038/ncomms8820>.
- [14] E. Talantsev, W. P. Crump, J. L. Tallon, *Ann. Phys.* **529**, 1700197 (2017).  
<https://doi.org/10.1002/andp.201700197>.
- [15] F. Gross, B. S. Chandrasekhar, D. Einzel, et al., *Z. Physik B – Condensed Matter* **64**, 175 (1986). <https://doi.org/10.1007/BF01303700>.
- [16] I. A. Troyan, D. V. Semenok, A. G. Ivanova, et al., *Adv. Sci.* **10**, 2303622 (2023).  
<https://doi.org/10.1002/advs.202303622>.
- [17] A. V. Sadakov, V. A. Vlasenko, I. A. Troyan, et al., *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 6666 (2023). <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.3c01577>.
- [18] D. R. Parker, M. J. P. Smith, T. Lancaster, et al., *Physical Review Letters* **104**(5), (2010). <https://doi.org/10.1103/physrevlett.104.05700>.

Поступила в редакцию 22 ноября 2023 г.

После доработки 30 ноября 2023 г.

Принята к публикации 1 декабря 2023 г.