

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД

УДК 538.945

МНОГОЩЕЛЕВАЯ СВЕРХПРОВОДИМОСТЬ В $DyFeAsO_{1-x}F_x$

А. Т. Даниярходжаев, Е. М. Иванова, А. С. Усольцев

Проведено исследование сверхпроводящего параметра порядка методом спектроскопии многократных андреевских отражений и анализа поведения плотности критического тока в собственном поле поликристаллического образца состава $DyFeAsO_{0.88}F_{0.12}$ ($T_c = 42K$) в температурном диапазоне от 1.54 K до T_c . В рамках модели Бардина–Купера–Шриффера были получены зависимости плотности критических токов в двухзонном случае. Показано, что в случае двухщелевой сверхпроводимости экспериментальные данные хорошо описываются теорией, а полученные из аппроксимации значения сверхпроводящих щелей согласуются со значениями, определенными из исследования спектров андреевских отражений.

Ключевые слова: высокотемпературная сверхпроводимость, железосодержащие сверхпроводники, семейство 1111, пникиды, сверхпроводящий параметр порядка.

Введение. Сверхпроводящие пникиды семейства 1111 с общей формулой $ReFeAsO_{1-x}F_x$ ($Re = La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho$) – это одно из наиболее интересных семейств среди железосодержащих сверхпроводников (СП). А именно, в системе 1111 наблюдается наибольшая критическая температура, высокая плотность критического тока порядка $J_c \sim 10^6 – 10^7 A \cdot cm^{-2}$ [1, 2] и рекордно высокие значения второго критического поля до 100–200 Тл [3]. Родительское соединение $ReFeAsO$ не проявляет сверхпроводящих свойств, однако испытывает структурный переход ($P4/nmm \rightarrow Cmme$) в диапазоне температур 140–180 K с последующим магнитным упорядочением в районе 130–150 K [4]. Для возникновения сверхпроводящего состояния необходимо либо дырочное, либо электронное легирование. Например, электронное легирование реализуется путем частичной замены кислорода фтором или водородом ($O \rightarrow F, H$). Наибольшее

ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: a.s.usoltsev@ya.ru.

значение критической температуры наблюдается при замещении кислорода на фтор в соединении Sm-1111 [5].

На текущий момент хорошо изучены такие соединения семейства 1111, как $\text{GdFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$, $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$, $\text{NdFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$, $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ [6, 7]. Большая часть исследований проведена на поликристаллических образцах ввиду сложности процесса роста монокристаллических соединений семейства 1111, требующего одновременно высоких температур (1150–1350 К) и давлений (3–5 ГПа) для формирования кристалла [8].

Известно, что железосодержащие сверхпроводники системы 1111 относятся к высокотемпературным сверхпроводникам (ВТСП) с нетрадиционным типом спаривания [9], для которых характеристическое отношение $2\Delta/k_B T_c$ больше, чем для традиционных Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) соединений, но меньше, чем для ВТСП на основе оксидов меди. Согласно литературным данным, в большинстве соединений 1111 реализуется многощелевая сверхпроводимость. Отвечает за сверхпроводимость в данных соединениях конденсат, которому соответствует параметр порядка с величиной большей щели, и для $\text{GdFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ составляет порядка 4.8 мэВ [10–12], для $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ – 4.3 мэВ [13–15], для $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ – 6 мэВ [15, 16], для $\text{PrFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ – 6.3 мэВ [17, 18].

Соединение системы 1111 $\text{DyFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ является малоизученным. К настоящему моменту существует всего лишь несколько работ, посвященных данному сверхпроводнику. Однако авторам не известно ни одной публикации, посвященной исследованию параметра порядка в соединении $\text{DyFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$. Поэтому исследование данного сверхпроводника представляет собой значительный научный интерес.

Методика эксперимента и расчётов. Поликристаллические образцы $\text{DyFeAsO}_{0.88}\text{F}_{0.12}$ были выращены в камерах высокого давления CONAC и “тороид” [3] при давлении 5 ГПа и температуре 1350 °C в течение 30–240 мин. Подробности роста описаны в работе [3]. Образец представляет собой параллелепипед с размерами $2 \times 1.5 \times 0.1$ мм³. Образец был смонтирован на эластичную плату с помощью серебряного проводящего клея. В центре образца было сформировано сужение порядка 50 мкм шириной. Измерения намагниченности проводились в постоянном поле с амплитудой 10 Гс на установке MPMS XL-7 SQUID. Андреевская спектроскопия проводилась на самосборной установке с минимальной температурой 1.5 К.

Согласно методике, предложенной в работе [19], из температурной зависимости плотности критического тока возможно извлечь величины сверхпроводящих парамет-

ров порядка (Δ) и лондоновскую глубину проникновения (λ). Показано, что данный способ даёт хорошее согласие оцененных параметров как для классических сверхпроводников [19], так и для ВТСП на основе оксида меди [20], железосодержащих ВТСП [21] и для недавно открытых гидридных ВТСП [22]. Согласно модели для сверхпроводников второго рода с прямоугольным сечением плотность критического тока описывается формулой [20]:

$$J_c(T) = \frac{\Phi_0(\ln(\kappa) + 0.5)}{4\pi\mu_0\lambda^3(T)} \left(\frac{\lambda(T)}{a} \tanh\left(\frac{a}{\lambda(T)}\right) + \frac{\lambda(T)}{b} \tanh\left(\frac{b}{\lambda(T)}\right) \right), \quad (1)$$

где Φ_0 – квант магнитного потока, μ_0 – магнитная проницаемость вакуума, κ – параметр Гинзбурга–Ландау, логарифм которого практически не зависит от температуры, $2a$ и $2b$ – толщина и ширина прямоугольного сечения образца. В то же время, из теории БКШ для изотропного сверхпроводника со сферической поверхностью Ферми, плотность сверхпроводящих носителей определяется:

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

В случае сверхпроводящего параметра, зависящего от угла, выражение для $\rho_s(T)$ принимает вид:

$$\rho_s(T) = 1 - \frac{1}{2\pi k_B T} \int_0^{2\pi} d\theta \cos^2(\theta) \times \int_0^\infty \cosh^{-2}\left(\frac{\sqrt{\varepsilon^2 + \Delta^2(T, \theta)}}{2k_B T}\right) d\varepsilon. \quad (3)$$

Для сверхпроводника с двумя сверхпроводящими конденсатами плотность сверхпроводящих носителей может быть представлена в виде:

$$\rho_s(T) = w_1 \cdot \rho_{s,1}(T) + w_2 \cdot \rho_{s,2}(T), \quad w_1 + w_2 = 1, \quad (4)$$

где w_n – вклады от первого и второго конденсатов.

В случае исследования поликристаллических образцов невозможно точно определить геометрию протекания тока в сужении. Поэтому, экспериментальную зависимость плотности критического тока следует аппроксимировать формулой $J_c(T) = J_c(0) \cdot \rho_s(T)$, где $J_c(0)$ – плотность критического тока при нулевой температуре. Для расчётов использовалась феноменологическая БКШ формула для температурной зависимости щели [23]:

$$\Delta(T) = \Delta(0) \tanh\left(\frac{\pi k_B T_c}{\Delta(0)} \sqrt{\eta C(T_c/T - 1)}\right), \quad (5)$$

где T_c , $2\Delta(0)/k_B T_c$ и C – подгоночные параметры (параметр C имеет смысл скачка электронной теплоёмкости при $T = T_c$ [20]), а константа η равна $2/3$ для модели с s -симметрией и $7/5$ для случая d -симметрии. Аппроксимируя экспериментальную температурную зависимость критического тока формулами (1)–(5), можно получить оценку величины сверхпроводящих щелей.

Другим методом изучения параметра порядка сверхпроводников, в том числе и на поликристаллических образцах, является андреевская спектроскопия симметричных контактов сверхпроводник–нормальный металл–сверхпроводник (С–н–С). В работах [24, 25] показано, что на вольт–амперных характеристиках (ВАХ) симметричных контактов С–н–С формируется субгармоническая щелевая структура (СГС) – серия особенностей при смещениях [26]:

$$V_n = \frac{2\Delta}{en}, \quad (6)$$

где 2Δ – удвоенное значение сверхпроводящего параметра порядка, e – элементарный заряд электрона, n – порядковый номер андреевского отражения ($1, 2, 3, \dots$). На спектрах дифференциальной проводимости СГС проявляется в виде серии минимумов на смещениях V_n . При наличии в материале нескольких конденсаторов для каждого из них будут формироваться независимые СГС-структуры, что особенно актуально при изучении многозонных сверхпроводников.

Для получения микроконтактов была использована методика “break-junction” – формирование микротрешины в объёме исследуемого материала путём механической деформации вплоть до разлома образца в криогенной среде [27, 28]. В случае формирования цепочки из m таких контактов, подключённых последовательно (С–н–С–н–С…), характерные смещения будут описываться следующей формулой:

$$V_{n,m} = \frac{2\Delta}{en}m, \quad (7)$$

где m – количество последовательно включенных контактов в стопке. Так как имеется экспериментальная возможность изменять размер стопки и количество включенных С–н–С–н… контактов, то путем набора и анализа статистики можно однозначно определить величины щелей и количество сверхпроводящих конденсаторов в исследуемом материале.

Результаты и обсуждение. На рис. 1(а) представлены данные Energy-Dispersive X-ray (EDX), показывающие элементный состав исследуемого образца. Согласно EDX исследованию оценка сверхпроводника в образце дает значение порядка 60% Dy-1111. На рис. 1(б) представлена температурная зависимость сопротивления образца. Отчётливо

наблюдается сверхпроводящий переход с началом в температуре $T_c^{\text{onset}} = 47.8$ К и полным обращением в ноль сопротивления при температуре $T_c^{\text{zero}} = 42.7$ К, что согласуется с измерениями работы [3]. Измерения температурной зависимости DC-намагниченности $M(T)$ в слабом магнитном поле выявили диамагнитный отклик в сверхпроводящем состоянии (рис. 1(b), вставка). Видно, что диамагнитный сигнал появляется при температуре $T = 42.8$ К, что согласуется с резистивными измерениями.

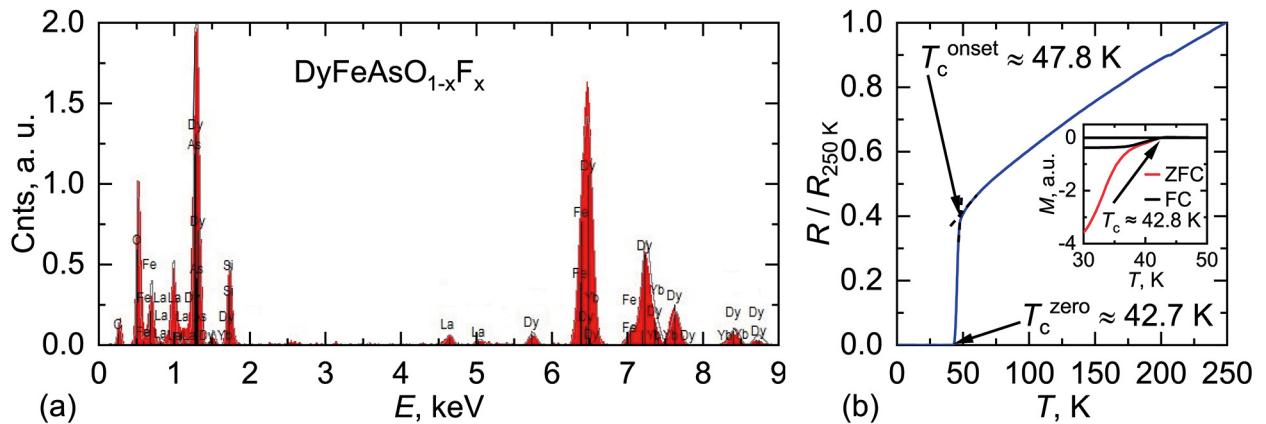


Рис. 1: (a) EDX спектроскопия; (b) температурная зависимость сопротивления образца. На вставке представлено температурное поведение намагниченности $M(T)$.

На рис. 2(а) приведена эволюция ВАХ для сужения до формирования микротрещины, сделанного на образце, в температурном диапазоне 1.5 К до 42 К. На рис. 2(б) представлена полученная из ВАХ рис. 2(а) по критерию отгиба до смещения $V = 10$ мкВ температурная зависимость плотности критического тока и аппроксимирующие ее кривые. Аппроксимация проводилась по формулам (1)–(5) и учитывает различные возможные варианты типа симметрии параметра порядка. Можно видеть, что однощелевая модель с s -волновым типом симметрии не может описать экспериментальную зависимость, особенно в области низких температур. Для случая d -волновой симметрии типа $\Delta(\theta) \cos(2\theta)$ было получено неплохое согласие при $2\Delta_{\max}/k_B T_c = 7.3 \pm 0.7$. Стоит отметить, что столь высокое характеристическое отношение заметно превышает значение, свойственное железосодержащим сверхпроводникам.

Для модели с двумя сверхпроводящими конденсатами получается хорошее согласие с экспериментальной зависимостью при $2\Delta_L/k_B T_c = 5.2 \pm 0.6$, $\Delta_L = (8.9 \pm 0.6)$ мэВ,

весовой вклад $w_L = 0.8 \pm 0.1$ и $2\Delta_S/k_B T_c = 1.6 \pm 0.2$, $\Delta_S = (1.9 \pm 0.3)$ мэВ, $w_S = 0.2 \pm 0.1$, что неплохо согласуется с результатами эксперимента “break-junction” для большой щели.

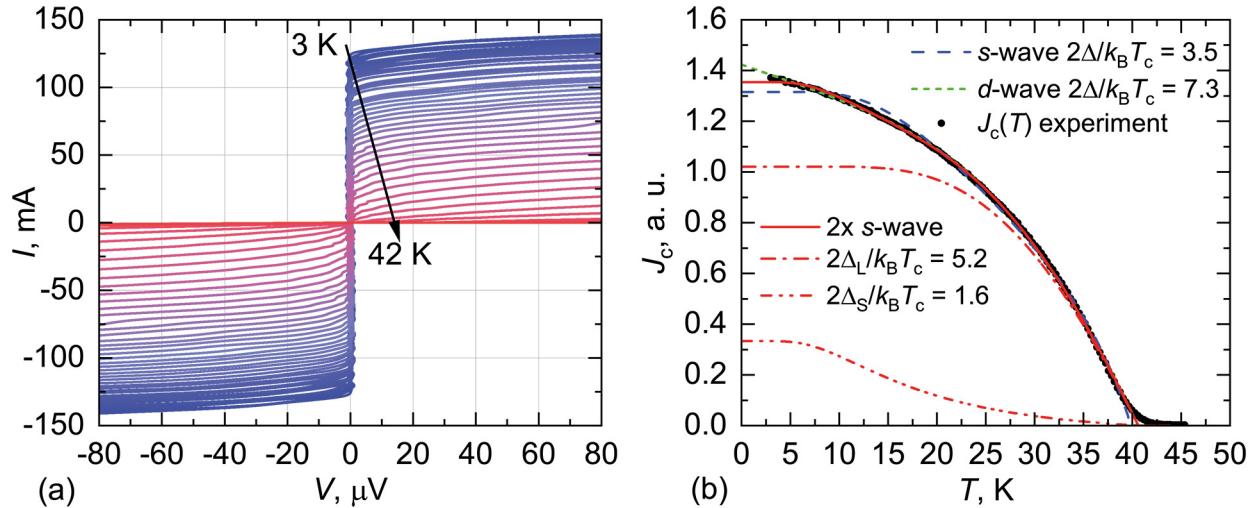


Рис. 2: (a) температурная зависимость ВАХ; (b) температурная зависимость критического тока, полученная из (a) (изображена точками). Фиты различными моделями приведены линиями.

После того, как на сужении были сняты зависимости критического тока, образец ломался при температуре 1.54 К с помощью механической подвижки. В результате ВАХ подобного контакта приобретала S -образную форму. На рис. 3(а) изображена типичная ВАХ подобного контакта, нормализованная на количество контактов в стопке – m . В области малых смещений виден избыточный ток, характерный для андреевского контакта, а также особенности на смещениях в области 17.4 мВ и 9.4 мВ. Ещё лучше данные особенности проявляются на спектрах дифференциальной проводимости (рис. 3(а), чёрная кривая). Чтобы убедиться, что нормировочный коэффициент m подобран корректно и соответствует формуле (7), была собрана обширная статистика, часть которой приведена на рис. 3(б). Можно наблюдать серию особенностей, ведущую себя согласно формуле (6). Для некоторых контактов можно наблюдать андреевские отражения для большой щели вплоть до $n = 3$ (вертикальные красные полосы), а для малой щели до $n = 2$ (вертикальные синие полосы). Приведённая статистика позволяет однозначно определить нормировочные коэффициенты m , а следовательно и величины большой и малой щелей: $\Delta_L(0) = 8.7 \pm 0.3$ мэВ и $\Delta_S(0) = 4.7 \pm 0.2$ мэВ. Различие в полученных величинах малой щели, вероятно, вызвано ограниченной применимостью

α -модели при описании нетрадиционных сверхпроводников, к которым относятся железосодержащие сверхпроводники семейства 1111. Также это может быть объяснено различным направлением протекания тока во время эксперимента ввиду поликристалличности исследуемых образцов.

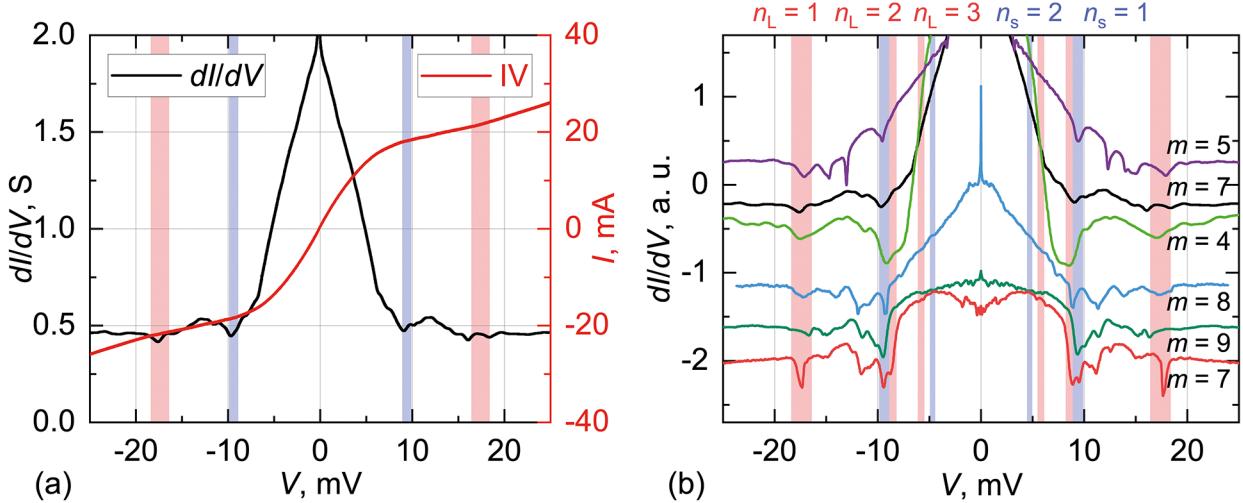


Рис. 3: (a) нормализованная ВАХ ($m = 7$) (красная кривая), измеренная при температуре 1.5 K, и дифференциальная проводимость (dI/dV , черная кривая) для одного из контактов; (b) серия контактов с различными коэффициентами нормировки m . Вертикальные красные и синие линии соответствуют СГС, сформированными большой и малой щелями.

Заключение. Были исследованы сверхпроводящие образцы $DyFeAsO_{0.88}F_{0.12}$. Из транспортных измерений на специально созданных мостиках сужением были получены зависимости плотности критического тока в собственном поле. Из аппроксимации этой зависимости и сопоставлении с результатами, полученными из андреевской спектроскопии, сделан вывод о двущелевой s -wave модели сверхпроводимости. Полученные значения сверхпроводящих щелей в исследуемом соединении составили $\Delta_L(0) = 8.9 \pm 0.6$ мэВ и $\Delta_S(0) = 2.7 \pm 0.3$ мэВ. Исследование спектров андреевской спектроскопии на $DyFeAsO_{0.88}F_{0.12}$ выявило наличие двух сверхпроводящих конденсаторов с параметрами: $\Delta_L(0) = 8.7 \pm 0.3$ мэВ и $\Delta_S(0) = 4.7 \pm 0.2$ мэВ. Получено хорошее согласие для величины большой щели между методиками.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РНФ № 23-12-00307.

Авторы выражают благодарность Е. П. Хлыбову, В. А. Власенко, Б. И. Массалимову и А. В. Садакову.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] N. D. Zhigadlo, S. Katrych, Z. Bukowski, et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**(34), 342202 (2008). DOI: 10.1088/0953-8984/20/34/342202.
- [2] P. Cheng, B. Shen, G. Mu, et al., *Europhys. Lett.* **85**(6), 67003 (2009). DOI: 10.1209/0295-5075/85/67003.
- [3] Е. П. Хлыбов, О. Е. Омельяновский, А. З. Залески и др., Перспективные Материалы **11**, 195 (2011).
- [4] A. Martinelli, F. Bernardini, S. Massidda, *C. R. Phys.* **17**(1-2), 5 (2016). DOI: 10.1016/j.crhy.2015.06.001.
- [5] Z. A. Ren, W. Lu, J. Yang, et al., *Chin. Phys. Lett.* **25**(6), 2215 (2008). DOI: 10.1088/0256-307X/25/6/080.
- [6] Y. J. Cui, Y. L. Chen, C. H. Cheng, et al., *J. Supercond. Novel Magn.* **23**(5), 625 (2010). DOI: 10.1007/s10948-010-0699-7.
- [7] M. R. Cimberle, F. Canepa, M. Ferretti, et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **321**(19), 3024 (2009). DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.04.084.
- [8] S. J. Singh, M. I. Sturza, *Cryst.* **12**(1), 20 (2021). DOI: 10.3390/crust12010020.
- [9] S. Maiti, M. M. Korshunov, T. A. Maier, et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**(14), 147002 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.147002.
- [10] Б. М. Пудалов, О. Е. Омельяновский, Е. П. Хлыбов и др., УФН **181**(6), 672 (2011). DOI: UFNe.0181.201106h.0672.
- [11] E. P. Khlybov, O. E. Omelyanovsky, A. Zaleski, et al., *JETP Lett.* **90**(5), 387 (2009). DOI: 10.1134/S0021364009170159.
- [12] T. E. Shanygina, Y. G. Ponomarev, S. A. Kuzmichev, et al., *JETP Lett.* **93**(2), 94 (2011). DOI: 10.1134/S0021364011020111.
- [13] T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, et al., *Phys. Rev. B* **95**(9), 094507 (2017). DOI: PhysRevB.95.094507.
- [14] L. Hai-Yun, J. Xiao-Wen, Z. Wen-Tao, et al., *Chin. Phys. Lett.* **25**(10), 3761 (2008). DOI: 10.1088/0256-307X/25/10/066.
- [15] R. S. Gonnelli, D. Daghero, M. Tortello, et al., *Phys. C* **469**(9-12), 512 (2009). DOI: 10.1016/j.physc.2009.03.039.
- [16] H. H. Wen, G. Mu, L. Fang, et al., *Europhys. Lett.* **82**(1), 17009 (2008). DOI: 10.1209/0295-5075/82/17009.

- [17] D. Daghero, E. Piatti, N. D. Zhigadlo, et al., Phys. Rev. B **102**(10), 104513 (2020). DOI: PhysRevB.102.104513.
- [18] A. V. Sadakov, V. A. Vlasenko, A. Y. Levakhova, et al., Phys. Rev. Mater. **9**(10), 104801 (2025). DOI: 10.1103/d4t9-gk9z.
- [19] E. F. Talantsev, J. L. Tallon, Nat. Commun. **6**(1), 7820 (2015). DOI: 10.1038/ncomms8820.
- [20] E. Talantsev, W. P. Crump, J. L. Tallon, Ann. Phys. **529**(12), 1700197 (2017). DOI: 10.1002/andp.201700197.
- [21] E. F. Talantsev, K. Iida, T. Ohmura, et al., Sci. Rep. **9**(1), 14245 (2019). DOI: 10.1038/s41598-019-50687-y.
- [22] E. F. Talantsev, W. P. Crump, J. G. Storey, J. L. Tallon, Ann. Phys. **529**(3), 1600390 (2017). DOI: 10.1002/andp.201600390.
- [23] F. Gross, B. S. Chandrasekhar, D. Einzel, et al., Z. Phys. B Con. Mat. **64**(2), 175 (1986). DOI: 10.1007/BF01303700.
- [24] T. M. Klapwijk, G. E. Blonder, M. Tinkham, Phys. B C **109**, 1657 (1982). DOI: 10.1016/0378-4363(82)90189-9.
- [25] R. Taboryski, J. Kutchinsky, J. B. Hansen, et al., Superlattices Microstruct. **25**(5-6), 829 (1999). DOI: 10.1006/spmi.1999.0712.
- [26] R. Kümmel, U. Gunzenheimer, R. Nicolsky, Phys. Rev. B **42**(7), 3992 (1990). DOI: 10.1103/PhysRevB.42.3992.
- [27] А. С. Усольцев, А. Т. Даниярходжаев, А. А. Гиппиус, А. В. Садаков, Письма в ЖЭТФ **120**(12), 961 (2024). DOI: 10.31857/S0370274X24120212.
- [28] E. M. Ivanova, A. T. Daniyarkhodzhaev, L. A. Morgun, et al., Pis'ma v ZhETF **122**(11), 761 (2025). DOI: 10.31857/S0370274X25120088.

Поступила в редакцию 10 декабря 2025 г.

После доработки 13 декабря 2025 г.

Принята к публикации 15 декабря 2025 г.