

ТУННЕЛЬНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ С ВАРИАЦИЕЙ СТЕПЕНИ ДОПИРОВАНИЯ В СВЕРХПРОВОДЯЩЕМ И НОРМАЛЬНОМ СОСТОЯНИЯХ

И. А. Никитченков^{a,b}, С. А. Кузьмичев^{a,b}, А. Д. Ильина^b, К. С. Перваков^b,
В. А. Власенко^b, Т. Е. Кузьмичева^b*

^a Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет
119991, Москва, Россия

^b Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,

после переработки 2 августа 2024 г.

Принята к публикации 3 августа 2024 г.

Методами туннельной спектроскопии исследованы монокристаллы пнктидов $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ недодопированного состава ($x = 0.08$) и передодированных составов ($x = 0.12, 0.14$) в сверхпроводящем и нормальном состояниях. На полученных $I(V)$ - и $dI(V)/dV$ -характеристиках туннельных контактов воспроизводимо наблюдалась сильная нелинейность как ниже, так и выше критической температуры T_c , не связанная напрямую со сверхпроводящими свойствами. Исследована ее эволюция с температурой и T_c вдоль фазовой диаграммы допирования, обсуждаются возможные причины возникновения этой нелинейности.

Статья представлена в рамках публикации материалов 39-го Совещания по физике низких температур (НТ-2024), Черноголовка, июнь 2023 г.

DOI: 10.31857/S0044451024120071

1. ВВЕДЕНИЕ

Среди представителей класса железосодержащих высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [1, 2] ферропникиды структурного семейства 122 были наиболее тщательно изучены как теоретически, так и экспериментально. Интерес исследователей к данному типу соединений был в первую очередь обусловлен свойственными семейству 122 значительными критическими магнитными полями при умеренных критических температурах T_c , а также высокой доступностью качественных монокристаллов соединения — факторами, определившими развитие технических применений Ba-122 для производства сверхпроводящих (СП) магнитов и проводов [3, 4].

Кристаллическая структура соединений семейства Ba-122 содержит отвечающие за сверхпроводимость блоки Fe–As, чередующиеся с учетом зеркальной симметрии и разделенные вдоль c -направления плоскостями бария. В стехиометрическом составе BaFe_2As_2 демонстрирует упорядочение в антиферромагнитное (АФМ) состояние с волной спиновой плотности. Немного выше температуры Нееля при $T_N \approx T_s \approx 138\text{ K}$ происходит структурный фазовый переход от орторомбической сингонии к тетрагональной. При частичном замещении железа на никель АФМ-фаза постепенно подавляется, возникает СП-область в форме «колокола» допирования с максимальной $T_c \approx 21\text{ K}$, достигающейся при оптимальной степени замещения в составе $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$ [5].

Электронные свойства системы 122 определяются 3d-орбиталлями железа и обладают явно выраженным квазидвумерным характером. Для данных соединений свойственна анизотропия проводимости между ab - и c -направлениями кристалла [5]. На поверхности Ферми присутствуют дырочные цилин-

* E-mail: kuzmichev@mig.phys.msu.ru

дры вблизи Г-точки зоны Бриллюэна, а также электронные зоны вблизи X-точки, образующие пропеллеры или цилиндры в зависимости от химического состава, причем вдоль k_z -направления квазимпульса все цилиндры оказываются гофрированы [6–8]. Непосредственно для $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ исследование зонной структуры методом фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES) не проводились, тем не менее для родительского соединения и $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ семейства 122 была показана близость перехода Лифшица, а также наличие «плоской зоны» и пиков плотности электронных состояний $N(E)$ вблизи уровня Ферми [7, 8]. В отдельных ARPES-исследованиях для системы Ba-122 [9] также сообщалось об аномальном движении зонной структуры при повышении температуры вплоть до комнатной.

При изучении соединений $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$ ниже T_c исследователи в основном обнаруживают два СП-конденсата с различными параметрами порядка, Δ_L и Δ_S , называемыми большой и малой СП-щелями соответственно. Нашей группой ранее были определены характеристические отношения теории БКШ для этих щелей в монокристаллах $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$ с разными уровнями дипирования: $2\Delta_L(0)/k_B T_c \approx 4 - 6$ для большой СП-щели (диапазон значений вызван ее предположительной анизотропией в k -пространстве) и $2\Delta_S(0)/k_B T_c \approx 2$ для малой СП-щели, причем характеристические отношения оказались практически не зависящими от степени замещения никелем в широком диапазоне T_c [10–12]. Аналогичные значения были получены с использованием ТГц- и инфракрасной фурье-спектроскопии [13, 14]. Тем не менее не все экспериментальные методы хорошо согласуются при изучении щелевой структуры BaFe_2As_2 . Квазидвумерная структура соединения делает систему чрезвычайно чувствительной к условиям измерений. Отсюда может возникать расхождение данных, полученных при исследовании поверхностными, объемными и локальными методами; в частности, исследования ARPES, проведенные различными группами, плохо согласуются при определении величины характеристического отношения большой СП-щели, разброс которого составил $2\Delta_L(0)/k_B T_c \approx 4.5 - 7.5$ для BaFe_2As_2 с различной степенью дипирования (в качестве обзора см. [7, 15]).

Вопрос ведущего механизма спаривания в ферропниктидах до сих пор является актуальной темой. Помимо спиновых флуктуаций, обусловленных нестингом разделенных в импульсном пространстве листов поверхности Ферми [16], исследователи вы-

двигают на эту роль орбитальные флуктуации 3d-орбиталей Fe [17]. Однако орбитальные степени свободы приобретают дополнительное значение при обсуждении свойств в нормальном состоянии, например, нематической фазы, определяемой как спонтанное нарушение вращательной симметрии C_4 без нарушения трансляционной. Такое нарушение симметрии проявляется в анизотропии электронных свойств, в частности, при исследовании соединения $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$ методом ARPES были обнаружены признаки нематического порядка в виде энергетического расщепления d_{xz}/d_{yz} -орбиталей, происходящего при температуре даже выше T_s и T_N [18–20]. Еще одной обсуждаемой особенностью нормального состояния ферропниктидов является псевдощель [20–22], наблюдавшаяся ранее в ВТСП-купратах [23, 24]. В качестве одного из основных механизмов образования псевдощели в купратах исследователи выделяют остаточную диэлектризацию спектра, связанную со спиновым/зарядовым упорядочением в системе [25]. Однако в то время как родительское соединение купрата является АФМ-изолятором, родительское соединение пниктидов BaFe_2As_2 имеет металлическое основное АФМ-состояние [5]. Псевдощель все еще остается загадочным состоянием электронной подсистемы, единого мнения о природе которого так и не было достигнуто [23–25]. В целом, несмотря на интенсивные исследования физики железосодержащих пниктидов, остается дискуссионным вопрос о связи между сверхпроводимостью и особенностями нормального состояния, такими как магнитный порядок, нематическая фаза, зонная структура и псевдощель [8, 16, 17, 22, 26, 27].

В настоящей работе проведено тщательное исследование свойств ферропниктидов $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ методами туннельной спектроскопии. Изучены три состава: с содержанием никеля $x = 0.08$, принадлежащий недодопированной области фазовой диаграммы, и два передодипированных состава с $x = 0.12, 0.14$. Ранее в процессе исследования щелевой структуры для туннельных контактов в $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ и $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$ нашей группой были обнаружены воспроизводящиеся особенности спектров динамической проводимости $dI(V)/dV$, нехарактерные для классического случая и проявляющиеся в СП в нормальном состоянии [11]. Более подробно температурное поведение данных особенностей было исследовано для системы $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ [28], однако окончательно их происхождение остается неизвестным. Настоящая работа раскрывает поведение указанных особенностей нормального состояния при вариации степени дипирования, охватыва-

ющей недо- и передопированную области фазовой диаграммы. На основе полученных экспериментальных данных проводится анализ возможных причин исследуемой нелинейности нормального состояния и обсуждается природа наблюдаемого эффекта.

2. ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследуемые в работе монокристаллы $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с номинальной концентрацией донорного никеля $x = 0.08, 0.12, 0.14$ были выращены с использованием техники «раствор в расплаве» [15, 29–31]. Синтезированные монокристаллы прошли характеризацию методом рентгеновской дифракции, подтвердившим соответствие образца 122-фазе. Энергодисперсионная спектроскопия выявила отношение присутствующих в монокристалле элементов, согласующееся с шихтовым составом. В результате измерения температурных зависимостей сопротивления и магнитной восприимчивости в образцах был обнаружен фазовый переход в СП-состояние и определена критическая температура перехода $T_c \approx 18, 19, 12 \text{ K}$ для монокристаллов с содержанием никеля $x = 0.08, 0.12, 0.14$ соответственно [10–12, 15, 29–31].

Для получения туннельных контактов типа сверхпроводник–барьер–сверхпроводник (ScS) использовалась техника планарного «break-junction», заключающаяся в создании контакта на микротрещине путем механического раскалывания слоистого образца при низких температурах [32, 33]. При подготовке исследуемый образец монокристалла, имеющий форму вытянутой пластинки с размерами порядка $3 \times 1 \times 0.1 \text{ mm}^3$, с помощью жидкого при комнатной температуре капель In–Ga-припоя фиксируется по четырехконтактной схеме подключения на массивных медных электродах, расположенных на П-образном пружинящем столике, оборудованном концентратором напряжений. Степень прогиба столика в процессе эксперимента регулируется механически и прецизионно. Слоистый образец монтируется таким образом, чтобы ab -плоскость кристалла располагалась параллельно плоскости столика. После монтажа столик с образцом охлаждается до температуры 4.2 K. К этому моменту застывший In–Ga-припой жестко фиксирует образец. При прогибе столика под направленным контролируемым воздействием поступательного смещения микрометрического винта монокристалл расслаивается вдоль ab -плоскостей кристаллографической решетки, образуя при этом туннельный

контакт на естественных ступеньках и террасах, разделяющих два криогенных скола вдоль c -направления. В результате туннельный ток всегда протекает в c -направлении кристалла. Момент возникновения криогенного скола контролируется объективно по появлению конечного наклона ВАХ в реальном времени. Массивные СП-берега полученного ScS-контакта обеспечивают эффективный отвод тепла от контактного интерфейса. Отметим, что механическая перестройка контакта остается доступной на протяжении всего процесса измерений, открывая возможность прямого локального исследования объемных энергетических параметров в различных областях скола, т.е. набор статистики с одного образца в течение серии измерений.

Строго говоря, получаемые контакты на микротрещине представляют собой структуру типа S–n–I–n–S (I — изолятор, роль барьера играет nIn), в которых прозрачность барьера описывается безразмерным параметром Z [34, 35]. В монокристаллах семейства BaFe_2As_2 скол обычно проходит вдоль металлических плоскостей бария [36]. Отметим также, что поскольку в процессе эксперимента микротрещина остается в объеме образца (берега контакта не разводятся), это естественным образом защищает место криогенного скола от деградации и попадания примесей. Таким образом, в используемой конфигурации «break-junction» наиболее вероятно получение ScS-контактов высокой прозрачности более 80% ($Z < 0.5$), что подтверждается видом ВАХ и $dI(V)/dV$ -спектров (см. ниже).

Хотя техника планарного «break-junction» может создавать единичные контакты, зачастую полученные в эксперименте туннельные структуры представляют собой естественный массив из m штук (где m — натуральное число) эквивалентных ScS-контактов, образующих стопку в силу объективных геометрических особенностей слоистых соединений. Более детально конфигурация и характерные особенности нашего эксперимента по созданию планарных механически регулируемых контактов на микротрещине обсуждаются в обзоре [33].

В SnS-контакте с режимом пролета квазичастиц, близком к баллистическому (диаметр контакта d много меньше длины свободного пробега квазичастиц $d \ll l$), при температурах ниже T_c реализуется эффект многократных андреевских отражений [34, 35, 37]. В общем случае, в режиме «длинного» SnS-контакта (с некогерентным $d \gg \xi$ транспортом) наблюдается эффект некогерентных многократных андреевских отражений (ЭНМАО). Эффект вызывает избыточный ток на

BAX SnS-контакта при любых напряжениях смещения (относительно BAX при $T > T_c$). При смещениях $eV \rightarrow 0$ на $dI(V)/dV$ -спектре появляется область повышенной (по сравнению с характеристиками нормального состояния) проводимости (так называемый «пьедестал»), а при $|eV_{i,n}| = 2\Delta_i/n$ — щелевые особенности (минимумы). Число n наблюдаемых минимумов уменьшается при небольших отношениях l/d [37, 38], а также при увеличении силы барьера Z [34, 35] и параметра размытия Г. Локальная T_c контакта (соответствующая переходу контактной области размером 10–50 нм в нормальное состояние) была определена как температура, при которой на $dI(V)/dV$ -спектре исчезали все особенности, вызванные ЭНМАО-транспортом.

На $dI(V)/dV$ -спектре стопки из m контактов положение всех особенностей, вызванных объемными свойствами, увеличивается в m раз, в частности, для андреевских структур $|eV_{i,n}| = m \cdot 2\Delta_i/n$. Для монокристаллов каждого состава, число m определяется путем сравнения полученных $dI(V)/dV$ -спектров стопок с различным m (детали нормировки приведены в приложении к работам [11, 39]). Преимущество стопочных контактов заключается в превалировании объемных свойств материала, что позволяет минимизировать влияние поверхностных дефектов [33]. Для приведенных ниже BAX и $dI(V)/dV$ -спектров ось смещений нормирована на соответствующие m ($V_{norm} \equiv V/m$).

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлены BAX и спектры дифференциальной проводимости туннельных контактов, полученные для монокристаллов $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с различной степенью додирования и T_c . Ось смещений нормирована на число контактов в стопке $m = 14, 7, 20$ на рис. 1 *a*, *b*, *c* соответственно. В СП-состоянии при температуре 4.2 К при малых eV спектры демонстрируют характерные андреевские особенности, а на BAX отсутствует сверхтоковая ветвь. Таким образом, исходя из вида BAX и $dI(V)/dV$ -спектров, можно установить, что контакты на рис. 1 являются «длинными» и находятся в некогерентном SnS-режиме в соответствии с предсказаниями [34, 35, 37]. На рис. 1 *a* показан $dI(V)/dV$ -спектр SnS-контакта, полученного в слабо недодированном монокристалле $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ при $T = 4.2$ К (красная кривая) и выше T_c при $T = 19$ К (темно-желтая кривая). В СП-состоянии спектр содержит щелевые минимумы ($n_i = 1$), отвечаю-

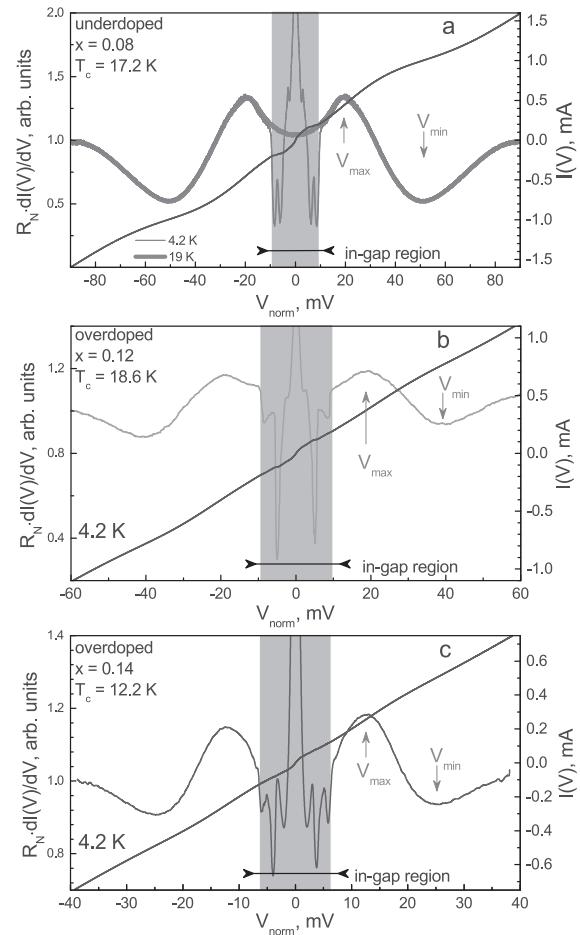


Рис. 1. BAX (синяя линия, правая ось) и соответствующий ей $dI(V)/dV$ -спектр (левая ось), измеренные при $T = 4.2$ К для SnS-контакта в соединении $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$, где: *a* — $x = 0.08$ ($m = 14$ контактов в стопке), *b* — $x = 0.12$ ($m = 7$), *c* — $x = 0.14$ ($m = 20$). Для сравнения на рис. *a* приведен $dI(V)/dV$ -спектр, измеренный при температуре $T = 19$ К $> T_c$ (темно-желтая кривая, левая ось). Серым цветом отмечены внутрищелевые области смещений, содержащие андреевские особенности от СП-параметров порядка. Вертикальными стрелками отмечены положения особенностей $dI(V)/dV$, сохраняющихся в нормальном состоянии — максимумов V_{max} и минимумов V_{min} . Все спектры динамической проводимости нормированы на нормальную проводимость при большом смещении $G_N \equiv 1/R_N (eV \gg \Delta(0))$

щие трем СП-параметрами порядка: $\Delta_L^{out} \approx 4.4$ мэВ, $\Delta_L^{in} \approx 3$ мэВ (предположительно, относящимся к одному и тому же, анизотропному в k -пространстве СП-конденсату) и $\Delta_S \approx 1.1$ мэВ при $T \ll T_c$, ранее определенным для данного соединения [10] (внутрищелевая область отмечена серым цветом), а также пик андреевской проводимости при нулевом смещении (пьедестал). Помимо андреевских особенно-

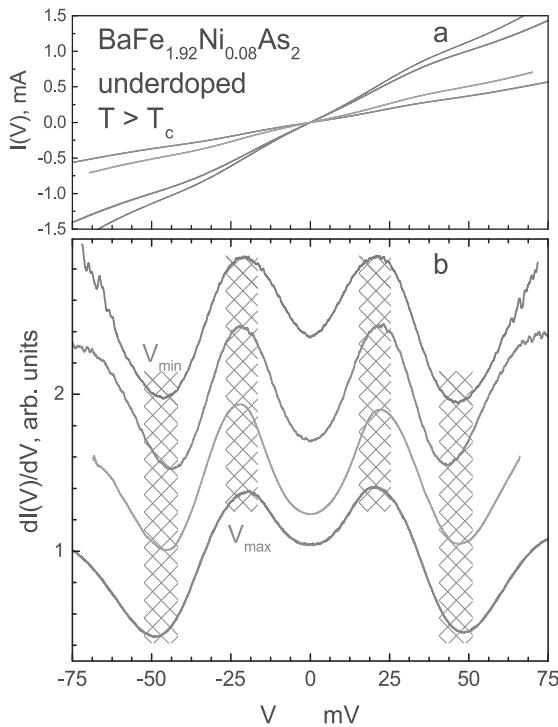


Рис. 2. Измеренные при $T > T_c$ BAX (a) и соответствующие им спектры динамической проводимости (b) SnS-контактов, полученные в различных монокристаллах недодопированного состава $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ из одной закладки. Штриховкой отмечены области, в которых воспроизводимо наблюдаются максимумы V_{max} и минимумы V_{min} нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния. $dI(V)/dV$ -спектры нормированы на $G_N \equiv 1/R_N$ и смещены по вертикали для удобства

стей, $dI(V)/dV$ -спектр содержит общую нелинейность — структуру максимум-минимум при смещениях $eV_{max} \approx 20$ мэВ и $eV_{min} \approx 50$ мэВ — в большом диапазоне напряжений. Данные смещения значительно превышают амплитуды СП-параметров порядка $2\Delta_i(0)$. Хорошо видно, что при $T = 19 > T_c$ андреевские особенности исчезают, при этом форма нелинейности и положения eV_{max} и eV_{min} сохраняются: красная и темно-желтая кривые на рис. 1 a при $eV > 2\Delta_L^{out}$ практически совпадают. Отметим, что неизменность динамической проводимости данного контакта с температурой при $eV > 2\Delta(0)$ указывает на баллистический характер транспорта в соответствии с [40, 41].

Нелинейность схожего вида, связанная с особенностями нормального состояния, наблюдается и в монокристаллах $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с различным содержанием донорного никеля (рис. 1 b, c). В передодированных составах при увеличении

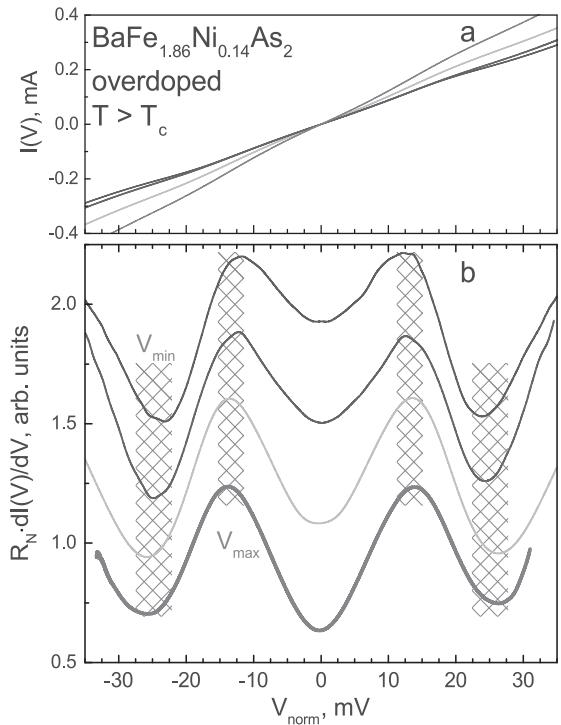


Рис. 3. Измеренные при $T > T_c$ BAX (a) и соответствующие им спектры динамической проводимости (b) SnS-контактов, полученные в различных монокристаллах передодированного состава $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ из одной закладки. Штриховкой отмечены области, в которых воспроизводимо наблюдаются максимумы V_{max} и минимумы V_{min} нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния. $dI(V)/dV$ -спектры нормированы на $G_N \equiv 1/R_N$ и смещены по вертикали для удобства

$x = 0.12 - 0.14$ амплитуды СП-параметров порядка уменьшаются примерно пропорционально T_c [10–12], а положения V_{min} и V_{max} также сдвигаются в сторону меньших смещений: $V_{max} \approx 20$ мВ, $V_{min} \approx 40$ мВ для состава с $x = 0.12$, $V_{max} \approx 12$ мВ; $V_{min} \approx 25$ мВ для $x = 0.14$.

Для проверки воспроизводимости наблюдаемой нелинейности в нормальном состоянии была собрана значительная статистика $I(V)$ - и $dI(V)/dV$ -характеристик туннельных контактов. Примеры BAX и соответствующих спектров дифференциальной проводимости при $T > T_c$ для стопок с различным числом контактов m , полученных в монокристаллах $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ и $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$, приведены на рис. 2 и 3 соответственно; аналогичные данные для $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ показаны на рис. 2 в [28]. Для каждого состава BAX имеют различающиеся наклоны, следовательно, не совпадает нормальное сопротивление R_N представленных

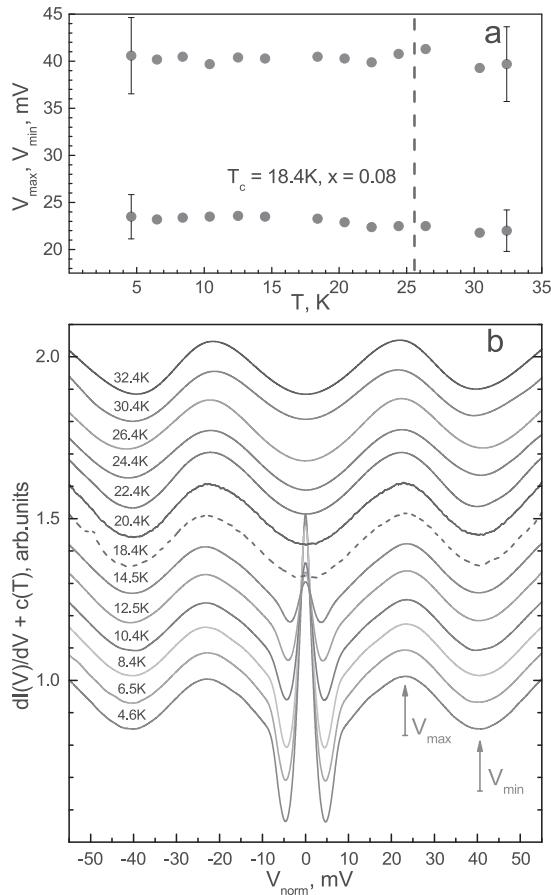


Рис. 4. Температурная эволюция положений максимума V_{max} и минимума V_{min} нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния (а) и соответствующего $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в монокристалле $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ (б). Штриховая линия соответствует локальной критической температуре контакта $T_c \approx 18.4$ К. Кривые вручную сдвинуты по вертикали постоянную величину для удобства, $R_N(T) \approx \text{const}$

контактов, которое, в свою очередь, определяется геометрическими параметрами и площадью контакта. Тем не менее общая форма нелинейности спектра и смещения V_{min} и V_{max} воспроизводятся. Таким образом, наблюдаемая нелинейность связана с внутренними, объемными свойствами нормального состояния $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ и не может быть обусловлена случайными эффектами или геометрическими резонансами.

Температурная эволюция нелинейных $dI(V)/dV$ -спектров и положений особенностей V_{min} и V_{max} была исследована для туннельных контактов на базе $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ и $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ и представлена на рис. 4, 5. Для приведенных контактов $R_N(T) \approx \text{const}$. На рис. 5 б и 6 б для удобства рассмотрения спектры вручную сме-

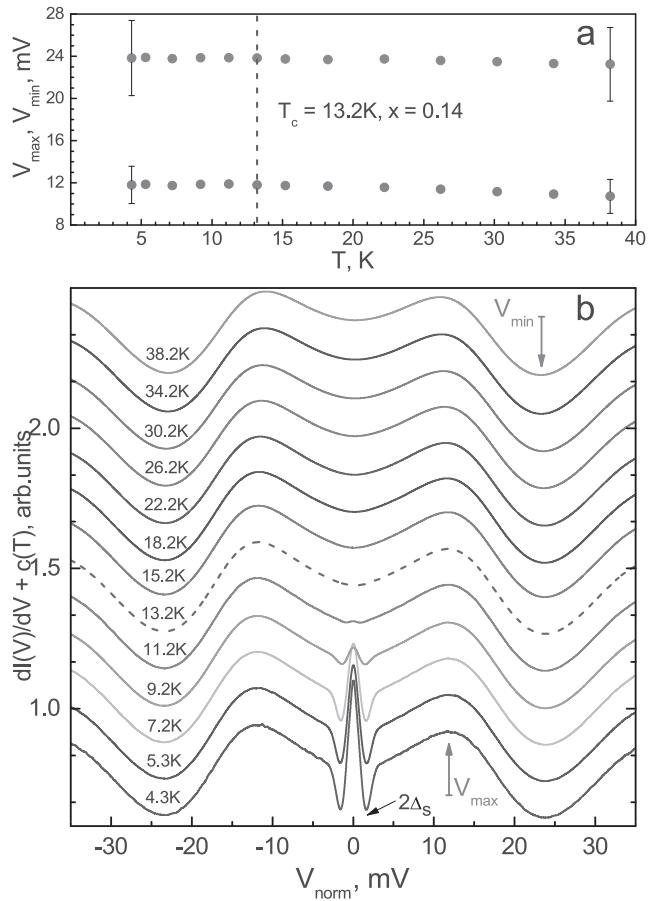


Рис. 5. Температурная эволюция положений максимума V_{max} и минимума V_{min} нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния (а) и соответствующего $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в монокристалле $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ (б). Штриховая линия соответствует локальной критической температуре контакта $T_c \approx 13.2$ К. Кривые вручную сдвинуты по вертикали постоянную величину для удобства, $R_N(T) \approx \text{const}$. Стрелками отмечены положения андреевских особенностей от малой СП-щели $2\Delta_s$ при 4.3 К

щены на постоянное значение по оси ординат. Характерные андреевские особенности спектров, связанные с эффектом ЭНМАО, исчезают при достижении локальной критической температуры контакта. Форма нелинейности, связанной с особенностями нормального состояния, при повышении температуры сохраняется, положения особенностей $dI(V)/dV$ в пределах погрешности остаются неизменными во всем исследованном диапазоне температур $T = 4.3\text{--}38.2$ К. Аналогичное практически не зависящее от температуры поведение особенностей нормального состояния в монокристаллах $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$ наблюдалось на рис. 4 в [28].

4. ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 6 представлена диаграмма положений максимума V_{max} и минимума V_{min} нелинейности на $dI(V)/dV$ -спектрах контактов с различной локальной T_c , полученных нами в недо- и передодицрованных образцах $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ (соответствие T_c и степени замещения x приведено согласно данным работы [31]). При повышении концентрации додицирующего никеля значения положений наблюдаемых особенностей уменьшаются практически линейно, в среднем проходя диапазон от $V_{max} \approx 22 \text{ мВ}$, $V_{min} \approx 49 \text{ мВ}$ при $x = 0.08$ до $V_{min} \approx 13 \text{ мВ}$, $V_{max} \approx 26 \text{ мВ}$ при $x = 0.14$. Таким образом, в отличии от СП-параметров порядка [5, 10–12], значения V_{min} и V_{max} реагируют на химическое додицрование монотонно и не описывают «колокол» вблизи области оптимального додицрования фазовой диаграммы. Это еще раз говорит о том, что обнаруженная особенность спектров не связана напрямую со СП-параметром порядка. Особенности при V_{min} и V_{max} сближаются при увеличении содержания никеля по мере удаления от родительского соединения BaFe_2As_2 и области фазовой диаграммы, содержащей магнитный и структурный фазовые переходы. Линейная аппроксимация предсказывает, что положение особенностей достигнет уровня Ферми ($V_{min}, V_{max} \rightarrow 0$) при уровне додицрования $x \rightarrow 0.22$, что соответствует сильно передодицрованному, несверхпроводящему составу.

Еще раз подчеркнем, что воспроизведенная нелинейность динамической проводимости, наблюдаемая на спектрах стопочных контактов, однознач-

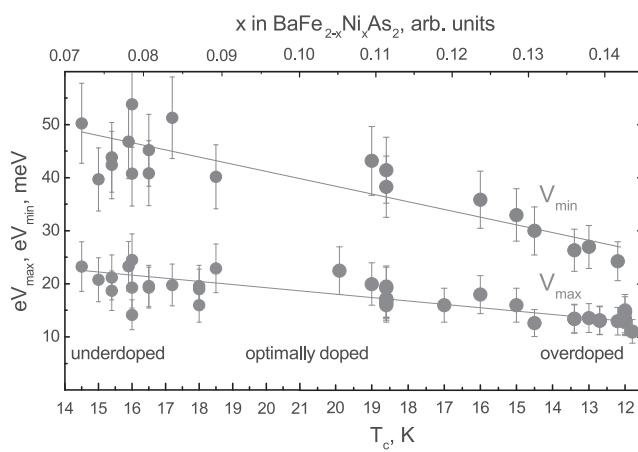


Рис. 6. Зависимость положений максимума V_{max} и минимума V_{min} нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния, от T_c и соответствующей ей степени додицрования x , рассчитанной из [31]

но указывает на объемную природу данного эффекта. Переходим к обсуждению возможных причин появления нелинейности $dI(V)/dV$ в нормальном состоянии.

1) Известно, что в туннельном контакте, находящемся в термическом режиме ($l \ll d$), квазичастичный транспорт является диссипативным: при пропускании измерительного тока температура внутри контакта T_{pc} растет относительно температуры окружающей среды T_{bath} при увеличении смещения eV как [42]

$$(k_B T_{pc})^2 = (k_B T_{bath})^2 + (eV)^2 / 4L, \quad (1)$$

где L — число Лоренца. На рис. 7 штриховыми линиями приведены модельные $dI(V)/dV$ -спектры для термических контактов, подверженных перегреву (сопротивление которых имеет температурную зависимость, соответствующую $R(T)$ объемного монокристалла). Кривые были рассчитаны для $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с $x = 0.08$ (a) и $x = 0.14$ (b) на основе формулы (1) и зависимости $T(R)$, полученной по данным экспериментальной резистивной кривой соответствующих объемных монокристаллов (на вставках). Различный вид модельных кривых для контактов на базе недо- и передодицрованного образца обусловлен особенностями $R(T)$: наличием структурного и магнитного переходов в кристалле с $x = 0.08$ при $T_s \approx 65 \text{ K}$, при которых наблюдается минимум $R(T)$, и их отсутствием в кристалле с $x = 0.14$, демонстрирующем монотонный рост сопротивления выше T_c . Видно, что для $x = 0.14$ (рис. 7 b) модельная кривая не соответствует динамической проводимости NcN-контакта (N — объемный нормальный металл), наблюдаемой в эксперименте выше T_c (сплошная линия), следовательно, нелинейность $dI(V)/dV$ не может быть вызвана перегревом контакта. Хотя для недодицрованного состава рассчитанный спектр термического контакта схож с экспериментальным (рис. 7 a), отметим, что получаемые нами туннельные контакты находятся в баллистическом режиме ($l > d$), что контролируется по неизменности нормальной проводимости при нулевом смещении G_{ZBC} с температурой выше T_c , в соответствии с инвариантностью ρl для шарнировского контакта (где ρ — удельное сопротивление материала). В качестве примера на левой вставке к рис. 7 a показана зависимость $G_{ZBC}(T)$ для туннельного контакта на базе $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$ (звезды) по сравнению с проводимостью объемного монокристалла $G_{bulk}(T)$ данного состава (линия). Хорошо видно, что в исследованном диапазоне тем-

ператур от 18.4 до 54 К изменение $G_{bulk}(T)$ составляет около 11%, в то время как $G_{ZBC}(T)$ остается примерно постоянным (разброс значений не превышает $\pm 2\%$). Таким образом, в получаемых нами туннельных контактах отсутствует выделение тепла при прохождении измерительного тока, и наблюдаемая нелинейность $dI(V)/dV$ также не может быть вызвана перегревом.

2) Один из возможных вариантов объяснения наблюданной нами нелинейности спектра динамической проводимости может заключаться в необычном взаимодействии измерительного тока с получаемой стопочной туннельной структурой. Предположим, например, что последняя состоит из двойников, причем имеется четное количество контактов, дающее одинаковое количество доменов, ориентированных как в одну, так и в другую сторону, а последовательность их двойниковых границ вдоль линии протекания тока электрически эквивалентна равному количеству $p - n$ - и $n - p$ -интерфейсов, подключенных последовательно. Схема подобной сборки для двух пар элементов приведена на рис. 7 снизу. Обычно симметрия ВАХ и ее $dI(V)/dV$ -спектра является доказательством отсутствия барьера шотткивского типа. Но из-за симметрии указанной сборки ее ВАХ будет также симметрична, однако будет иметь особенности, связанные не с внутренними свойствами материала, а со структурой образца, что не имеет фундаментального значения.

Рассмотрим исключительный случай, в котором симметрия ВАХ не может говорить об отсутствии шотткивских барьеров. В целом, спектры, напоминающие экспериментальные по форме, можно получить при рассмотрении полученной в эксперименте туннельной структуры в виде электрической схемы, состоящей из центрального резистора R_0 (отражающего нормальную «шариновскую» проводимость контакта), и совокупности $2i$ штук встречно-последовательных диодов Шоттки с идеальными вольт-амперными характеристиками $I_i(V) = d_i(e^{\beta_i V} - 1)$, шунтированных эквивалентными сопротивлениями r .

Мы провели расчет ВАХ и соответствующих $dI(V)/dV$ -спектров для вышеуказанной сборки из двух пар диодов (желтая кривая на рис. 7 с, $i = 1, 2$) и аналогичной сборки из четырех пар диодов (синяя кривая, $i = 1 - 4$). Случай трех диодов не рассматривается, поскольку при повышении напряжения смещения он дает не соответствующее эксперименту снижение проводимости туннельного контакта. Подгоночными параметрами служи-

ли величины d_i и β_i для получения минимумов–максимумов dI/dV на нужных смещениях. В результате, хотя общая форма расчетных кривых соответствует поведению dI/dV в исследуемом диапазоне смещений, амплитуда рассчитанной нелинейности $(G(V_{max}) - G(V_{min}))/G(V_{max})$ даже при подборе оптимальных (реализующих максимальную амплитуду) параметров диодной сборки не превышает 2–3%, в то время как экспериментальная зависимость дает значения на уровне примерно 40% (обратите внимание, что расчетные кривые относятся к правой оси рис. 7 с, масштаб которой увеличен в 5 раз относительно левой оси для наглядности). Вообще говоря, вариацией величин d_i и β_i можно добиться значительной амплитуды особенностей, но тогда их положение будет в разы отличаться от наблюдаемого экспериментально. Таким образом, не удается удовлетворительно подогнать расчетные спектры к экспериментальным, так как их амплитуды расходятся примерно на порядок, и мы исключаем эту возможность из рассмотрения.

3) В соответствии с общеизвестным феноменологическим подходом Живера и Мегерле [43] ВАХ симметричного NcN -контакта низкой прозрачности зависит от распределения плотности электронных состояний металла вблизи уровня Ферми E_F и описывается следующим выражением:

$$I(V) = A' \int_{-\infty}^{\infty} N(E)N(E + eV)(f(E) - f(E + eV))dE, \quad (2)$$

где A' — геометрический фактор, $N(E)$ — металлическая функция распределения плотности электронных состояний, $f(E)$ — равновесное распределение Ферми–Дирака.

В квазиклассическом случае в окрестностях E_F распределение $N(E) \approx N_0 = \text{const}$, и получившаяся ВАХ имеет классическую линейную (омическую) форму. Если же распределение $N(E)$ содержит нелинейности, обусловленные, например, особенностями зонной структуры соединения или перенормировкой плотности состояний на взаимодействие с характерными бозонными модами в системе, ВАХ может отклоняться от линейного закона, предоставляя экспериментальную информацию о поведении функции $N(E)$ вблизи уровня Ферми. К примеру, $dI(V)/dV$ -спектр, полученный на сканирующем туннельном микроскопе (СТМ), когда игла СТМ не соприкасается с поверхностью образца, отвечает случаю $\text{N}'\text{cN}$ -контакта низкой прозрачности и пропорционален распределению $N(E)$ в исследу-

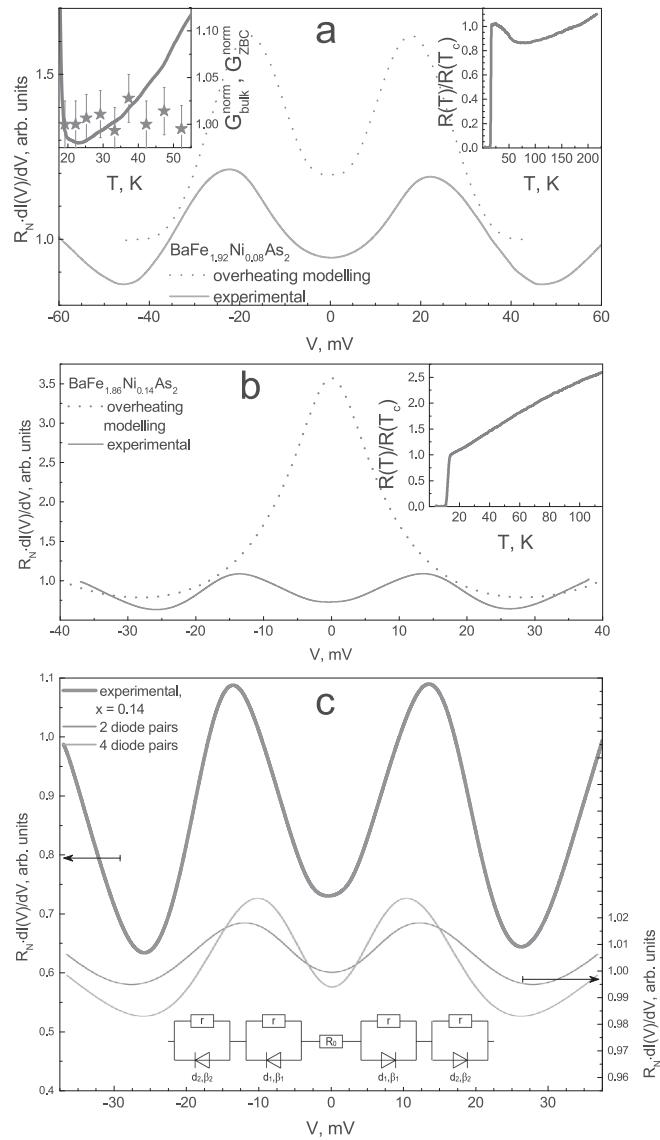


Рис. 7. *а* — Сравнение экспериментального $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при $T > T_c$ (сплошная линия) со спектром для NcN-контакта в термическом режиме, подверженного перегреву (штриховая линия), рассчитанного на основе формулы (1) и зависимости $R_{bulk}(T)$ объемного образца недодопированного состава с $x = 0.08$ (правая вставка). На левой вставке приведена зависимость объемной проводимости $G_{bulk} \equiv 1/R_{bulk}$ (линия) и проводимости при нулевом смещении туннельного контакта (звезды). $G_{norm} \equiv G(T)/G(T_c)$. *б* — Аналогичные данные для образца сильно передодированного состава с $x = 0.14$. *с* — Сравнение экспериментального $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при $T > T_c$ (левая ось, сплошная линия, аналогичен приведенному на рис. *б*) с динамической проводимостью сборок (правая ось), содержащих две пары диодов (показана снизу; желтая кривая) и четыре аналогичные пары диодов (синяя кривая)

емом материале «N» в предположении монотонной $N^*(E)$ для металла N'-иглы СТМ.

К сожалению, на данный момент авторам неизвестны теоретические расчеты для Ba-122 с замещением железа на Ni с достаточной детализацией плотности электронных состояний $N(E)$ вблизи уровня Ферми, которая бы позволила произве-

сти расчет BAX в рамках подхода Живера и Мегерле. Также нам неизвестны экспериментальные работы по исследованию $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с помощью СТМ-спектроскопии, в которых были бы получены $dI(V)/dV$ -спектры выше T_c в большом диапазоне смещений.

В качестве грубой оценки мы взяли $dI(V)/dV$ -спектр, полученный с помощью СТМ для родствен-

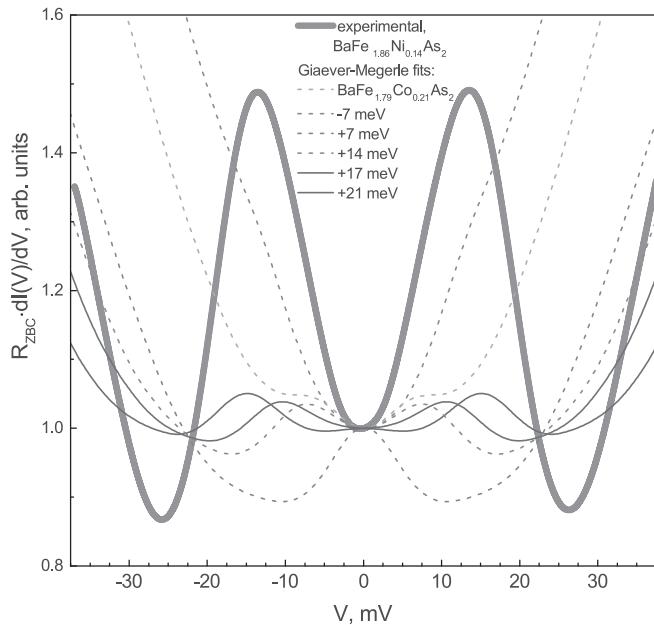


Рис. 8. Сравнение экспериментального $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при $T > T_c$ (жирная линия, аналогичен приведенному на рис. 7 *b, c*) с модельными $dI(V)/dV$ -спектрами, рассчитанными в рамках формулы (2) на основе данных СТМ для $\text{BaFe}_{1.79}\text{Co}_{0.21}\text{As}_2$ [44] (оранжевая штриховая линия) и со сдвигом уровня Ферми относительно данных [44]

ного $\text{BaFe}_{1.79}\text{Co}_{0.21}\text{As}_2$ передодированного состава с электронным замещением и $T_c \approx 13$ К (верхняя кричая выше T_c на рис. 3 *a* в [44]) в качестве $N(E)$ и рассчитали соответствующий $dI(V)/dV$ -спектр туннельного контакта в рамках формулы (2). Результат расчета приведен на рис. 8 штриховой оранжевой линией. Видно, что, хотя расчетная кривая содержит волнообразную структуру, она не может описать экспериментально наблюдаемую нами нелинейность в $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ с близкой T_c . Тем не менее, учитывая, что на положение уровня Ферми по энергии влияет не только степень замещения (количество донорирующих электронов на атом Fe), но и размер элементарной ячейки (химическое давление), связанный с радиусом атома-допанта, можно попытаться воспроизвести экспериментальный спектр путем небольшого сдвига уровня Ферми (нулевого смещения) на исходной кривой $N(E)$, взятой из [36]; соответствующее семейство расчетных спектров приведено на рис. 8 тонкими линиями, шаг сдвига $\Delta E = 7$ мэВ. Действительно, при поднятии E_F всего на 17 мэВ (сплошная темно-зеленая кривая на рис. 8) удается не только получить типичную форму минимум-максимум (хотя, меньшей амплитуды), но и с хорошей точностью воспроизвести их положения $eV_{max} \approx 14$ мэВ, $eV_{min} \approx 24$ мэВ (сплошная линия фиолетового цвета на рис. 8), наблюдаемые в эксперименте для состава $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$.

Интересно отметить, что наблюдаемая с помощью ARPES [18–20] как в нематической фазе, так и вне ее (см. рис. 5 *b* [20]) несимметричность зон, образованных d_{xz} - и d_{yz} -орбиталами Fe, может вызвать нелинейность $N(E)$: неэквивалентные положения потолка этих зон по энергии соответствуют двум максимумам $N(E)$. Согласно [18, 20], симметризация зонной структуры происходит при значительном удалении от нематической фазы. Можно ожидать появление структур максимум–минимум на $N(E)$ (следовательно, и на $dI(V)/dV$ -спектре туннельного контакта в нормальном состоянии) как в недо-, так и в передодированном составе, схожих с получаемыми в нашем эксперименте. Наблюданное нами «сближение» V_{max} и V_{min} при увеличении степени замещения (т.е. при удалении от нематической фазы) и их экстраполированное исчезновение в несверхпроводящем составе ($x \approx 0.22$) также качественно согласуется с рис. 5 в [20] и, соответственно, с данным предположением о природе нелинейности $dI(V)/dV$ -спектров в нормальном состоянии.

Для проверки вышеуказанного предположения о природе наблюдаемой нами нелинейности $dI(V)/dV$ -спектров туннельных контактов выше T_c требуются дополнительные исследования $N(E)$ вблизи E_F в $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ и ее эволюции вдоль фазовой диаграммы донорирования методами ARPES, а также туннельной и оптической спектроскопии.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На $I(V)$ - и $dI(V)/dV$ -характеристиках туннельных контактов, созданных в монокристаллах пниктидов $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ недо- и передопированного состава ($x = 0.08, 0.12, 0.14$) с $T_c \approx 12\text{--}19\text{ K}$, воспроизведимо наблюдалась сильная остаточная нелинейность как ниже, так и выше T_c , не связанная напрямую со сверхпроводящими свойствами. Показано, что нелинейная форма $dI(V)/dV$ -спектров, представляющая собой максимум–минимум при смещениях $eV_{max}, eV_{min} > 2\Delta(0)$, не может быть вызвана геометрическими резонансами или структурой конкретного монокристалла (например, образованием двойников), а имеет, напротив, объемную природу, обусловленную внутренними свойствами материала. В передопированных составах (при удалении от АФМ- и нематической фаз) положения eV_{max}, eV_{min} уменьшаются, при этом линейная экстраполяция в сторону увеличения степени замещения x предсказывает исчезновение данных особенностей и линеаризацию $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в несверхпроводящем составе при $x \approx 0.22$. В качестве наиболее вероятной причины возникновения нелинейности ВАХ и $dI(V)/dV$ -спектров предполагается наличие особенностей электронной плотности состояний $N(E)$ вблизи уровня Ферми. Одной из интересных причин возникновения таких особенностей $N(E)$ является наличие нематических флуктуаций и связанного с этим энергетического расщепления зон, образованных d_{xz}/d_{yz} -орбиталями железа, что было показано с помощью ARPES другими группами в Ba-122.

ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Kamihara, H. Hiramatsu, M. Hirano et al., *J. Am. Chem. Soc.* **128**, 10012 (2006).
2. J. Paglione and R. L. Greene, *Nature Phys.* **6**, 645 (2010).
3. J. D. Weiss, C. Tarantini, J. Jiang et al., *Nature Mater.* **11**, 682 (2012).
4. H. Hosono, A. Yamamoto, H. Hiramatsu, and Y. Ma, *Materials Today* **21**, 278 (2018).
5. X. Lu, *Phase Diagram and Magnetic Excitations of $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$: A Neutron Scattering Study*, Springer, Singapore (2017).
6. S. Ideta, T. Yoshida, I. Nishi et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 107007 (2013).
7. D. V. Evtushinsky, V. B. Zabolotnyy, L. Harnagea et al., *Phys. Rev. B* **87**, 094501 (2013).
8. A. A. Kordyuk, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky et al., *J Supercond. Nov. Magn.* **26**, 2837 (2013).
9. R. S. Dhaka, S. E. Hahn et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 067002 (2013).
10. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, *JETP Lett.* **118**, 514 (2023).
11. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, *Phys. Rev. B* **104**, 174512 (2021).
12. A. V. Sadakov, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev et al., *JETP Lett.* **116**, 708 (2022).
13. Yu. A. Aleshchenko, A. V. Muratov, G. A. Ummarino et al., *J. Phys.: Cond. Matter.* **33**, 045601 (2021).
14. G. A. Ummarino, A. V. Muratov, L. S. Kadyrov et al., *Supercond. Sci. Technol.* **33**, 075005 (2020).
15. T. E. Kuzmicheva, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev et al., *Physics-Uspekhi* **60**, 419 (2017).
16. I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes, M. H. Du, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 057003 (2008).
17. H. Kontani and S. Onari, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 157001 (2010).
18. M. Yi, D. Lu, J.-H. Chu et al., *PNAS* **108**, 6878 (2011).
19. T. Shimojima, T. Sonobe, W. Malaeb et al., *Phys. Rev. B* **89**, 045101 (2014).
20. T. Sonobe, T. Shimojima, A. Nakamura et al., *Sci. Rep.* **8**, 2169 (2018).
21. P. Szabó, Z. Pribulová, G. Pristáš, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, P. Samuely, *Phys. Rev. B* **79**, 012503 (2009).
22. S. Onari and H. Kontani, *Phys. Rev. Research* **2**, 042005(R) (2020).
23. T. Timusk, B. Statt, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
24. S. Hüfner, M. A. Hossain, A. Damascelli, G. A. Sawatzky, *Rep. Progr. Phys.* **71**, 062501 (2008).
25. M. V. Sadovskii, *Physics-Uspekhi* **44**, 515 (2001).

26. S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. B **100**, 020507(R) (2019).

27. A. E. Karakozov, M. V. Magnitskaya, L. S. Kadyrov, and B. P. Gorshunov, Phys. Rev. B **99**, 054504 (2019).

28. I. A. Nikitchenkov, A. D. Ilina, V. M. Mikhailov et al., Moscow Univ. Phys. Bull **78**, 521 (2023).

29. K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko, E. P. Khlybov et al., Supercond. Sci. Technol. **26**, 015008 (2013).

30. Yu. F. Eltsev, K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko et al., Physics-Uspekhi **57**, 827 (2014).

31. V. A. Vlasenko, O. A. Sobolevskiy, A. V. Sadakov et al., JETP Letters. **107**, 121 (2018).

32. J. Moreland and J. W. Ekin, J. Appl. Phys. **58**, 3888 (1985).

33. S. A. Kuzmichev and T. E. Kuzmicheva, Low. Temp. Phys. **42**, 1008 (2016).

34. M. Octavio, M. Tinkham, G. E. Blonder, and T. M. Klapwijk, Phys. Rev. B **27**, 6739 (1983).

35. D. Averin and A. Bardas, Phys. Rev. Lett. **75**, 1831 (1995).

36. F. Massee, S. de Jong, Y. Huang et al., Phys. Rev. B **80**, 140507(R) (2009).

37. R. Kümmel, U. Gunsenheimer, and R. Nicolsky, Phys. Rev. B **42**, 3992 (1990).

38. Z. Popović, S. Kuzmichev, and T. Kuzmicheva, J. Appl. Phys. **128**, 013901 (2020).

39. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, and N. D. Zhigadlo, Phys. Rev. B **100**, 144504 (2019).

40. Yu. V. Sharvin, Sov. Phys. JETP **21**, 655 (1965).

41. G. Wexler, Proc. Phys. Soc. **89**, 927 (1966).

42. Yu. G. Naidyuk and I. K. Yanson, *Point-Contact Spectroscopy*, Springer, New York (2005).

43. I. Giaever and K. Megerle, Phys. Rev. **112**, 1101 (1961).

44. F. Massee, Y. K. Huang, J. Kaas et al., EPL **92**, 57012 (2010).