

## Триpletные сверхпроводящие корреляции в оксидных гетероструктурах с композитной ферромагнитной прослойкой

Г. А. Овсянников<sup>+\*1)</sup>, А. Е. Шейрман<sup>+×</sup>, А. В. Шадрин<sup>+\*</sup>, Ю. В. Кислинский<sup>+</sup>, К. И. Константианян<sup>+</sup>,  
А. Калабухов<sup>\*</sup>

Институт радиотехники и электроники им. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

<sup>\*</sup> Chalmers University of Technology, Department of Microtechnology and Nanoscience, S-41296 Gothenburg, Sweden

<sup>+</sup> Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 29 декабря 2012 г.

В мезагетероструктурах на основе оксидных купратных сверхпроводников  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  и двухслойных пленок Au/Nb с композитной оксидной прослойкой из ферромагнитных пленок манганита ( $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ) и рутената ( $\text{SrRuO}_3$ ) при толщинах прослойки, существенно превышающих длину корреляций, определяемую обменным полем, обнаружен сверхпроводящий ток, вызванный проникновением дальнедействующей tripletной компоненты сверхпроводящих корреляций в прослойку. Измерено отклонение от синусоидальной ток-фазовой зависимости сверхпроводящего тока мезагетероструктуры с долей второй гармоники 13%, которое также может быть вызвано генерацией tripletной компоненты сверхпроводящих корреляций в ферромагнетике.

DOI: 10.7868/S0370274X13030065

Известно, что в неоднородно намагниченной ферромагнитной прослойке (F) между двумя синглетными сверхпроводниками (S) возможны дальнедействующие tripletные сверхпроводящие корреляции (ДТСК) [1, 2]. Ранее tripletный тип спаривания рассматривался для объяснения возникновения А-фазы в сверхтекучем гелии  $^3\text{He}$  [3]. В SFS-структурах с однородной намагниченностью сохраняется проекция спина сверхпроводящей пары на направление намагниченности и в F-прослойке возбуждаются синглетные и tripletные сверхпроводящие корреляции с нулевой проекцией спина [2, 4], которые проникают в F-прослойку и осциллируют в ней с характерной длиной  $\xi_F$ , определяемой магнитной обменной энергией  $E_{ex}$ . В частности, для грязного предела имеем  $\xi_F = \sqrt{(\hbar D/E_{ex})}$ , где  $D = v_F l/3$  – коэффициент диффузии,  $v_F$  – фермиевская скорость,  $l$  – длина свободного пробега. В случае генерации ДТСК с ненулевой ( $\pm 1$ ) проекцией спина обменное взаимодействие не подавляет сверхпроводимости [2], а длина корреляций (например, в грязном пределе) определяется температурой  $T$ , как для контактов с прослойкой из нормального металла (N):  $\xi_N = \sqrt{(\hbar D/k_B T)}$ . Поскольку в экспериментах обычно выполняется условие  $k_B T \ll E_{ex}$ , возникновение ДТСК в ферромагнетике приводит к аномально

большому эффекту близости и существованию сверхпроводящего тока в SFS-структурах при достаточно больших расстояниях между сверхпроводниками.

Первые экспериментальные указания на наличие аномально большого эффекта близости, объясняемого генерацией ДТСК в ферромагнетике, были получены при изучении андреевского интерферометра с перемычкой из пленки гольмия (Ho), имеющего спиральную намагниченность [5], и SFS-структур с прослойкой из оксида хрома ( $\text{CrO}_2$ ), который является полуметаллическим ферромагнетиком, обладающим 100-процентной поляризацией [6, 7]. Эти экспериментальные данные были подтверждены при изучении монокристаллических нанопроволок из кобальта (Co) [8] и SFS-структур с прослойками из сплава Гейслера [9], ферромагнетика со спиральной намагниченностью [10], а также “синтетическими” прослойками, состоящими из чередующихся слоев PdNi и Ho [11]. В последнее время появились сообщения об изменении сверхпроводящей критической температуры трехслойной структуры SFF', состоящей из сверхпроводящей пленки S, нанесенной поверх двухслойной структуры из ферромагнетиков с неколлинеарными векторами намагниченности [12].

В то же время результаты по исследованию ДТСК в SFS-структурах с манганитной ферромагнитной прослойкой со 100-процентной поляризацией, где не может возникнуть синглетных сверхпроводя-

<sup>1)</sup> e-mail: gena@hitech.cplire.ru

щих корреляций, достаточно противоречивы. С одной стороны, сообщается о влиянии ДТСК на андреевское отражение в структурах с прослойкой из манганита  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  [13, 14], а с другой – в них не обнаруживается сверхпроводящего тока, за исключением случаев проколов F-прослойки [15, 16].

В настоящей работе представлены результаты экспериментального исследования гибридных гетероструктур S/M/ $S_d$  (где S – двухслойная структура Nb/Au,  $S_d$  – купратный сверхпроводник  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ) с композитной магнитной оксидной прослойкой M, состоящей из двух тонких слоев ферромагнетиков  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  и  $\text{SrRuO}_3$ , имеющих неколлинеарные направления намагниченностей. Теоретически подобные структуры были рассмотрены в работах [17–20].

Мезагетероструктуры (МГС) в плане квадратной формы со стороной  $L$  от 10 до 50 мкм изготавливались на подложках из (110) $\text{NdGaO}_3$  [21]. Нижний электрод представлял собой эпитаксиальную пленку из купратного сверхпроводника  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , а верхний сверхпроводящий электрод – двухслойную структуру Nb/Au. Прослойка M состояла из двух ферромагнетиков:  $F_1$  –  $\text{SrRuO}_3$  (SRO) и  $F_2$  –  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (LSMO), с толщинами от 5 до 30 нм (см. вставку к рис. 1). Вектор намагниченности эпи-

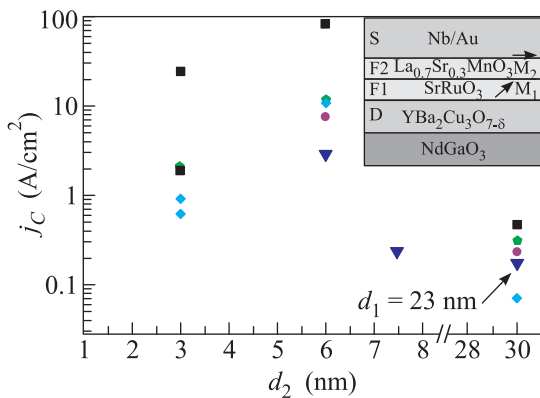


Рис. 1. Зависимость плотности сверхпроводящего тока МГС от толщины LSMO-прослойки  $d_2$  при  $T = 4.2$  К. Толщина SRO-прослойки  $d_1$  изменялась в диапазоне 4–5 нм. Переходы с размерами в плоскости подложки  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup> обозначены квадратами,  $20 \times 20$  – кружками,  $30 \times 30$  – пятиугольниками,  $40 \times 40$  – треугольниками,  $50 \times 50$  – ромбами. Отдельно показаны данные для МГС с толщиной SRO  $d_1 = 23$  нм. На вставке приведено поперечное сечение гибридной гетероструктуры с композитной прослойкой. Стрелками схематически указано направление векторов намагниченности

таксиальной пленки  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  лежал в плоскости подложки [21], в то время как для пленки  $\text{SrRuO}_3$

он обычно направлен под углом примерно  $23^\circ$  к плоскости подложки [22]. Исследование ферромагнитного резонанса в гетероструктуре LSMO/SRO на частоте 10 ГГц показало наличие одноосной магнитной анизотропии, характерной для LSMO-пленок [21]. Однако влияния ферромагнетизма SRO-прослойки обнаружено не было, что вызвано большим (порядка 1 Т) полем насыщения SRO. На рентгеновских спектрах гетероструктуры LSMO/SRO/YBCO наблюдались пики трех материалов гетероструктуры, YBCO, LSMO и SRO. Это указывает на эпитаксиальный рост пленок в гетероструктуре и отсутствие перемешивания материалов на границах раздела. Форма мезаструктуры и подводящие линии, обеспечивающие задание постоянного тока, формировались с помощью фотолитографии, плазмохимического и ионного травлений [16].

Сверхпроводящий ток наблюдался во всех МГС с суммарной толщиной  $d$  композитной прослойки до 53 нм, что значительно больше длин когерентности ферромагнетиков прослойки  $\xi_F$ , определяемых обменным полем (см. таблицу).

#### Параметры мезагетероструктур при $T = 4.2$ К<sup>\*)</sup>

Образец	$d_1$ , нм	$d_2$ , нм	$L$ , мкм	$R_{NA}$ , мкОм·см <sup>2</sup>	$j_C$ , А/см <sup>2</sup>
912	14	0	20	0.12	0
666	0	2	20	1200	0
932	5.5	3	30	0.11	2
930	5.5	6	20	0.15	9
978	4.5	3	50	0.45	0.75
934	23	30	30	350	0.3

<sup>\*)</sup> $d_1$  – толщина SRO-прослойки,  $d_2$  – толщина LSMO-прослойки,  $L$  – линейный размер мезагетероструктуры в плоскости подложки,  $R_{NA}$  – характерное сопротивление мезагетероструктуры,  $A = L^2$ ,  $j_C = I_C/A$  – плотность сверхпроводящего тока

Для вычисления длины когерентности  $\xi_{\text{LSMO}}$  в пленке LSMO использовалась величина обменной энергии  $E_{ex} = 2.3$  мэВ, найденная из измерений электронной теплоемкости [23]. В грязном пределе получаем оценку  $\xi_{\text{LSMO}} = 7$  нм при  $v_F = 2 \cdot 10^7$  см/с и длине свободного пробега  $l_{\text{LSMO}} = 0.4$  нм, вычисленной из перепада сопротивлений автономной пленки LSMO при комнатной и гелиевой температурах [24]. Для SRO использовалось значение  $E_{ex} = 13$  мэВ, полученное из измерений эффекта близости на границе SRO/YBCO [25]. В грязном пределе при  $v_F = 10^7$  см/с и длине свободного пробега  $l_{\text{SRO}} = 1$  нм это дает величину  $\xi_{\text{SRO}} = 2$  нм, близкую к оценке [26]. Контрольные измерения МГС с прослойками только из LSMO [16] либо только из SRO [27] пока-

зали отсутствие критического тока для мезагетероструктур, у которых толщина прослойки составляла 14 нм и более для SRO и 2 нм и более для LSMO (см. таблицу).

С ростом суммарной толщины прослойки  $d = d_1 + d_2$  от 8.5 до 53 нм плотность тока  $j_C$  измеренных МГС уменьшается на порядок. В то же время для образца 930 ( $d = 11.5$  нм,  $L = 10$  мкм) наблюдалось достаточно высокое значение  $j_C = 9$  А/см<sup>2</sup> (см. таблицу). Значения плотности критического тока  $j_C$  показали немонотонную зависимость от толщины LSMO-прослойки  $d_2$  (см. рис. 1). Низкая плотность критического тока при малых  $d_2$  (1.5 и 3 нм) объясняется образованием так называемого мертвого (немагнитного) слоя на границе, когда происходит подавление ферромагнитных свойств с уменьшением толщины прослойки. Видно, что увеличение суммарной толщины прослойки  $d$  за счет удвоения  $d_2$  привело к примерно четырехкратному росту среднего значения  $j_C$  для образца с изначально практически одинаковыми значениями  $d_1$  и  $d_2$ . Заметим, что немонотонная зависимость критического ДТСК от толщины одного из ферромагнетиков с максимумом при  $d \approx \xi_F$  была теоретически предсказана в [20], но для более сложной структуры. Дальнейшее значительное увеличение  $d$  в эксперименте привело к спаду критического тока в соответствии с теоретическими расчетами [17–20].

Измерения зависимостей критического тока  $I_C$  от магнитного поля  $H$  (рис. 2) показали, что он уве-

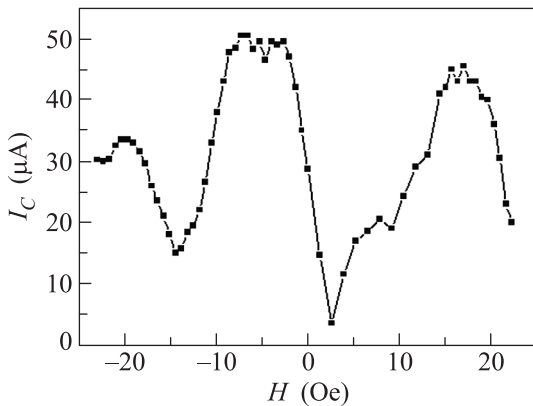


Рис. 2. Магнитолевая зависимость критического тока МГС с размерами  $L = 50$  мкм,  $d_1 = 4.5$  нм и  $d_2 = 3$  нм в диапазоне полей, меньших полей насыщения ферромагнитной прослойки ( $T = 4.2$  К)

личивается при возрастании слабого магнитного поля от 5 до 15 Э. Конкретная величина магнитного поля, при которой наблюдается максимум критического тока, зависит от параметров МГС и направле-

ния этого поля. Подобные зависимости  $I_C(H)$  наблюдались для SFS-переходов, в которых возбуждается ДТСК-компонента сверхпроводящего тока [6, 11], как и в случае ферромагнитной прослойки с синглетной компонентой [28]. При большом диапазоне изменения внешнего магнитного поля наблюдается гистерезис при убывании его амплитуды, что свидетельствует [28] о наличии ферромагнетизма в прослойке. На рис. 2 гистерезиса на зависимости  $I_C(H)$  не наблюдается из-за того, что полный диапазон изменения магнитного поля значительно ниже магнитного поля насыщения ферромагнитной прослойки [28].

Теоретические расчеты [17, 18] предсказывают значительное (на несколько порядков) увеличение второй гармоники ток-фазовой зависимости сверхпроводящего тока  $I_S(\varphi) = I_{C1} \sin(\varphi) + I_{C2} \sin(2\varphi)$  для случая несимметричной прослойки ( $d_1 \neq d_2$ ) при изменении угла между направлениями намагниченностей пленок прослойки,  $I_{C2} \gg I_{C1}$ . При измерении динамики изменения ступенек Шапиро МГС было обнаружено отклонение от синусоидальности ток-фазовой зависимости. На ВАХ МГС с  $L = 10$  мкм,  $I_C = 88$  мкА и нормальным сопротивлением  $R_N = 0.16$  Ом при воздействии монохроматического СВЧ-излучения на частоте  $f_e = 41$  ГГц наряду с целочисленными наблюдаются дробные ступени Шапиро (рис. 3а). Для критической частоты  $f_C = (2e/h)I_C R_N = 6.8$  ГГц отношение  $f_e/f_C = 6$  хорошо соответствует условию высокочастотного предела. В эксперименте это подтверждается величиной максимума первой ступени Шапиро  $I_1 = 94$  мкА и, соответственно, отношением  $I_1/I_C = 1.1$ . При этом максимальная высота полуцелой ступени Шапиро составляла  $I_{1/2} = 15$  мкА. Последнее в рамках модифицированной резистивной модели [29] с учетом несинусоидальной ток-фазовой зависимости указывает на то, что доля второй гармоники  $q = I_{C2}/I_{C1}$  оказывается порядка 13%. Отметим, что непосредственное сравнение эксперимента с теорией [17–19] затруднено из-за наличия барьера между манганитом и сверхпроводящим электродом. В работе [20] указывается, что в структуре с двумя ферромагнитными слоями практически невозможно возбудить ДТСК. По-видимому, в нашем случае один из S/M-барьеров является магнитоактивным и выполняет необходимую функцию “третьей компоненты”. Не исключено, что функцию “третьей компоненты” играет антиферромагнитный слой, образующийся на границе SRO/LSMO [30].

Таким образом, нами экспериментально обнаружен сверхпроводящий ток в мезагетероструктурах с композитной двухслойной оксидной прослойкой с

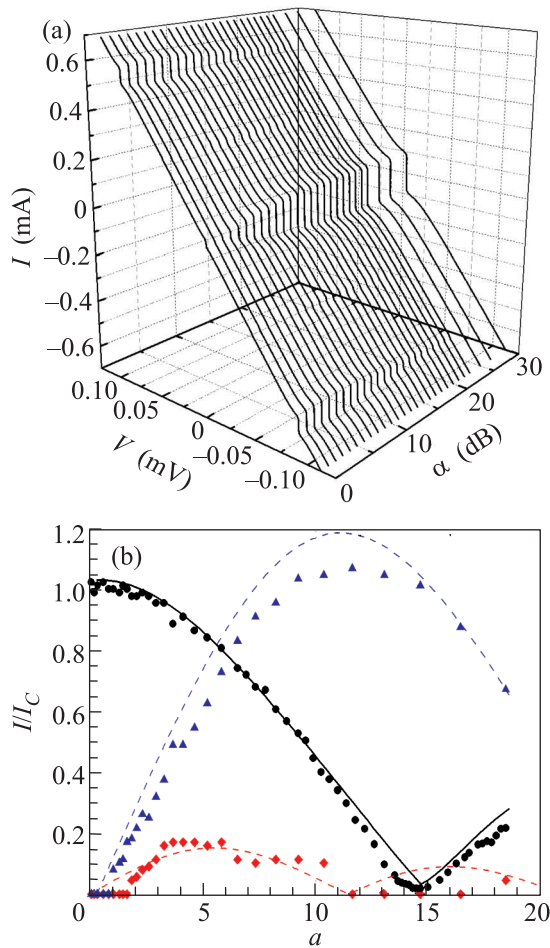


Рис. 3. СВЧ-свойства МГС с  $d_1 = 6$  нм,  $d_2 = 5.5$  нм,  $L = 10$  мкм при  $T = 4.2$  К. (a) – Семейство ВАХ МГС под СВЧ-воздействием с частотой 41 ГГц;  $\alpha$  – вносимое в тракт внешней электродинамической системы затухание (в дБ). (b) – Зависимости от нормированной амплитуды СВЧ-излучения  $a = I_{RF}/I_c$  нормированных на автономное значение критического тока величин критического тока (кружки), амплитуд первой (треугольники) и полуцелой (ромбы) ступеней Шапиро. Линиями показаны теоретически рассчитанные по модифицированной резистивной модели амплитуды второй гармоники ток-фазовой зависимости сверхпроводящего тока с  $q = 0.13$

неколлинеарными направлениями намагниченностей в слоях. Показано, что суммарная толщина прослойки существенно превышает длину ферромагнитных корреляций, определяемую обменным полем. Наблюдаемый в таких структурах эффект Джозефсона объясняется проникновением дальнедействующей триплетной компоненты сверхпроводящего параметра порядка в магнитную прослойку. Обнаружено отклонение ток-фазовой зависимости мезагетероструктуры от синусоидальной с высокой долей вто-

рой гармоники, что также может быть вызвано генерацией триплетной компоненты сверхпроводящего параметра порядка.

Авторы благодарны И.В. Борисенко, Э.М. Голдобину, В.В. Демидову, А.В. Зайцеву, Д. Винклеру, А.С. Мельникову, Т. Лофвандеру и М. Фогельстрему за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке программ ОФН РАН, Министерством образования и науки РФ, гранта Президента России “Ведущая научная школа” #НШ-2456.2012.2, проектов РФФИ #11-02-01234а и 12-07-31207мол\_а, а также программы Висби Шведского института.

1. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. V. Efetov, Phys. Rev. Lett. **86**, 4096 (2001).
2. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. V. Efetov, Rev. Mod. Phys. **77**, 1321 (2005).
3. V. L. Berezinskii, JETP Lett. **20**, 287 (1974).
4. A. I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. **77**, 935 (2005).
5. I. Sosnin, H. Cho, V. T. Petrashov et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 157002 (2006).
6. R. S. Keizer, S. T. B. Goennenwein, T. M. Klapwijk et al., Nature (London) **439**, 825 (2006).
7. M. S. Anwar, F. Czeschka, M. Hesselberth et al., Phys. Rev. B **82**, 100501 (2010).
8. J. Wang, M. Singh, M. Tian et al., Nat. Phys. **6**, 389 (2010).
9. D. Sprungmann, K. Westerholt, H. Zabel et al., Phys. Rev. B **82**, 060505(R) (2010).
10. J. W. A. Robinson, J. D. S. Witt, and M. G. Blamire, Science **329**, 59 (2010).
11. T. S. Khaire, M. A. Khasawneh, W. P. Pratt et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 137002 (2010).
12. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, I. A. Garifullin et al., Phys. Rev. Lett. **109**, 057005 (2012).
13. Y. Kalcheim, T. Kirzhner, G. Koren, and O. Millo, Phys. Rev. B **83**, 064510 (2011).
14. C. Visani, Z. Sefrioui, J. Tornos et al., Nature Physics **2318**, 1 (2012).
15. M. Van Zalk, A. Brinkman, J. Aarts et al., Phys. Rev. B **82**, 134513 (2010).
16. А. М. Петржик, Г. А. Овсянников, А. В. Шадрин и др., ЖЭТФ **139**, 1 (2011).
17. L. Trifunovic, Z. Popovic, and Z. Radovic, Phys. Rev. B **84**, 064511 (2011).
18. A. S. Mel'nikov, A. V. Samokhvalov, S. M. Kuznetsova et al., Phys. Rev Lett. **109**, 237006 (2012).
19. I. B. Sperstad, J. Linder, and A. Sudbo, Phys. Rev. B **78**, 104509 (2008).
20. A. F. Volkov and K. V. Efetov, Phys. Rev. B **81**, 144522 (2010).

21. Г. А. Овсянников, А. М. Петржик, И. В. Борисенко и др., *ЖЭТФ* **135**, 56 (2009).
22. G. Koster, L. Klein, W. Siemons et al., *Rev. Mod. Phys.* **84**, 253 (2012).
23. B. F. Woodfield, M. L. Wilson, and J. M. Byers, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3201 (1997).
24. P. B. Allen, H. Berger, O. Chauvet et al., *Phys. Rev. B* **53**, 8 (1996).
25. I. Asulin, O. Yuli, G. Koren, and O. Millo, *Phys. Rev. B* **79**, 174524 (2009).
26. L. Méchin, S. Flament, A. Perry et al., *J. Appl. Phys.* **98**, 103902 (2005).
27. G. A. Ovsyannikov, A. E. Sheyerman, Y. V. Kislinskii et al., *Hybrid Superconducting Heterostructures with Magnetic Interlayer, 19th Workshop on Oxide Electronics*, Apeldoorn, The Netherlands, 2012.
28. В. В. Больгинов, В. С. Столяров, Д. С. Собанин и др., *Письма в ЖЭТФ* **95**, 408 (2012).
29. P. Komissinskiy, G. A. Ovsyannikov, K. Y. Constantinian et al., *Phys. Rev. B* **78**, 024501 (2008).
30. M. Ziese, I. Vrejoiu, E. Pippel et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 167203 (2010).