Письма в ЖЭТФ, том 97, вып. 3, с. 165 – 169 © 2013 г. 10 февраля

Триплетные сверхпроводящие корреляции в оксидных гетероструктурах с композитной ферромагнитной прослойкой

*Г. А. Овсянников[+*1)], А. Е. Шейерман[+×], А. В. Шадрин[+*], Ю. В. Кислинский[+], К. И. Константинян[+], А. Калабухов[*]*

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

[*] *Chalmers University of Technology, Department of Microtechnology and Nanoscience, S-41296 Gothenburg, Sweden*

[×] *Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия*

Поступила в редакцию 29 декабря 2012 г.

В мезагетероструктурах на основе оксидных купратных сверхпроводников $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и двухслойных пленок Au/Nb с композитной оксидной прослойкой из ферромагнитных пленок манганита ($La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$) и рутената ($SrRuO_3$) при толщинах прослойки, существенно превышающих длину корреляций, определяемую обменным полем, обнаружен сверхпроводящий ток, вызванный проникновением дальнодействующей триплетной 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 триплетной компоненты сверхпроводящих корреляций в ферромагнетике.

DOI: 10.7868/S0370274X13030065

Известно, что в неоднородно намагниченной ферромагнитной прослойке (F) между двумя синглетными сверхпроводниками (S) возможны дальнодействующие триплетные сверхпроводящие корреляции (ДТСК) [1, 2]. Ранее триплетный тип спаривания рассматривался для объяснения возникновения A-фазы в сверхтекучем гелии ^{3}He [3]. В SFS-структурах с однородной намагниченностью сохраняется проекция спина сверхпроводящей пары на направление намагниченности и в F-прослойке возбуждаются синглетные и триплетные сверхпроводящие корреляции с нулевой проекцией спина [2, 4], которые проникают в F-прослойку и осциллируют в ней с характерной длиной ξ_{F}, определяемой магнитной обменной энергией E_{ex}. В частности, для грязного предела имеем $\xi_{\mathrm{F}} = \sqrt{(\hbar D/E_{ex})}$, где $D = v_{\mathrm{F}} l/3$ – коэффициент диффузии, v_{F} – фермиевская скорость, l – длина свободного пробега. В случае генерации ДТСК с ненулевой (± 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): $\xi_{\mathrm{N}} = \sqrt{(\hbar D/k_{\mathrm{B}}T)}$. Поскольку в экспериментах обычно выполняется условие $k_{\mathrm{B}}T \ll E_{ex}$, 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 (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-

1) 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 $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ [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 $YBa_2Cu_3O_x$) с композитной магнитной оксидной прослойкой M, состоящей из двух тонких слоев ферромагнетиков $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ и $SrRuO_3$, 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)$NdGaO_3$ [21]. Нижний электрод представлял собой эпитаксиальную пленку из купратного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, а верхний сверхпроводящий электрод – двухслойную структуру Nb/Au. Прослойка M состояла из двух ферромагнетиков: F_1 – $SrRuO_3$ (SRO) и F_2 – $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ (LSMO), с толщинами от 5 до 30 нм (см. вставку к рис. 1). Вектор намагниченности эпи-

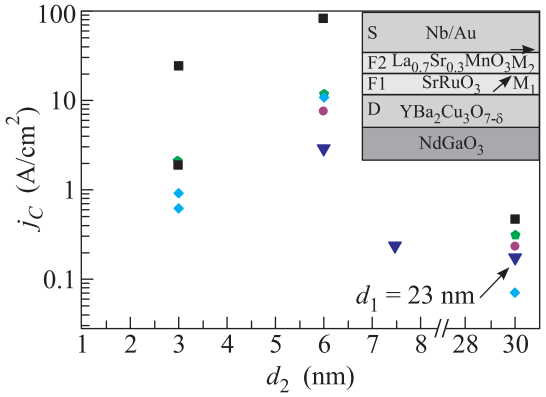

Рис. 1. Зависимость плотности сверхпроводящего тока МГС от толщины LSMO-прослойки d_2 при $T = 4.2$ К. Толщина SRO-прослойки d_1 изменялась в диапазоне 4–5 нм. Переходы с размерами в плоскости подложки 10×10 мкм^2 обозначены квадратами, 20×20 – кружками, 30×30 – пятиугольниками, 40×40 – треугольниками, 50×50 – 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 $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ лежал в плоскости подложки [21], в то время как для пленки $SrRuO_3$ он обычно направлен под углом примерно 23° 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 ξ_F, определяемых обменным полем (см. таблицу).

Параметры мезагетероструктур при $T = 4.2$ К$^{*)}$

Образец	d_1, нм	d_2, нм	L, мкм	$R_N A$, мкОм·см^2	j_C, А/см^2
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

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

Для вычисления длины когерентности ξ_{LSMO} в пленке LSMO использовалась величина обменной энергии $E_{ex} = 2.3$ мВ, найденная из измерений электронной теплоемкости [23]. В грязном пределе получаем оценку $\xi_{LSMO} = 7$ нм при $v_F = 2 \cdot 10^7$ см/с и длине свободного пробега $l_{LSMO} = 0.4$ 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 $l_{SRO} = 1$ нм это дает величину $\xi_{SRO} = 2$ нм, близкую к оценке [26]. Контрольные измерения МГС с прослойками только из LSMO [16] либо только из SRO [27] показали 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 $j_C = 9\,\text{А/см}^2$ (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 $d \approx \xi_{\rm F}$ 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 увеличивается 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 направления 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].

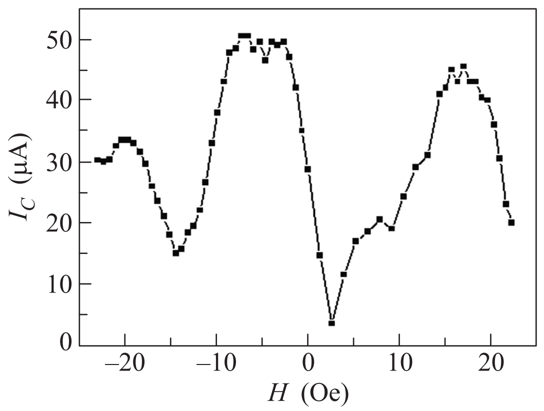

Рис. 2. Магнитополевая зависимость критического тока МГС с размерами $L = 50$ мкм, $d_1 = 4.5$ нм и $d_2 = 3$ нм в диапазоне полей, меньших полей насыщения ферромагнитной прослойки ($T = 4.2$ K)

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

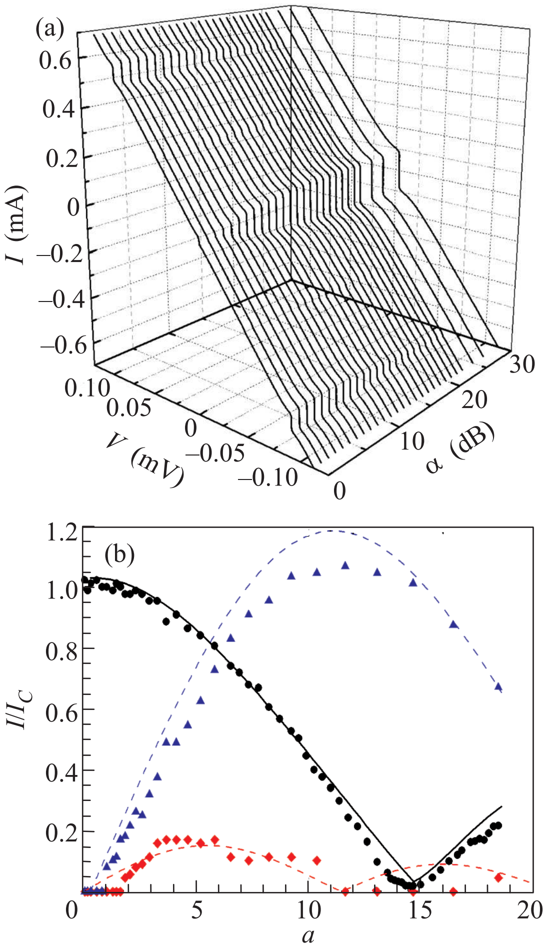

Рис. 3. СВЧ-свойства МГС с $d_1 = 6$ нм, $d_2 = 5.5$ нм, $L = 10$ мкм при $T = 4.2$ К. (a) – Семейство ВАХ МГС под СВЧ-воздействием с частотой 41 ГГц; α – вносимое в тракт внешней электродинамической системы затухание (в дВ). (b) – Зависимости от нормированной амплитуды СВЧ-излучения $a = I_{RF}/I_C$ 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 дальнодействующей триплетной компоненты сверхпроводящего параметра порядка в магнитную прослойку. Обнаружено отклонение ток-фазовой зависимости мезагетероструктуры от синусоидальной с высокой долей второй 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, Министерствам 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. B. Efetov, Phys. Rev. Lett. **86**, 4096 (2001).
2. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. 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. B. 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).