

ELECTRONIC STRUCTURE AND PROPERTIES

PACS numbers: 73.40.-c, 74.45.+c, 74.50.+r, 74.70.-b, 75.75.-c

Вплив електромагнетного ефекту близькості на транспортні характеристики джозефсонівських переходів феромагнетик/надпровідник–бар'єр–надпровідник

Е. М. Руденко, А. О. Краковний, І. В. Короташ,
М. В. Дякін, М. О. Білоголовський

*Інститут металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Академіка Вернадського, 36,
03142 Київ, Україна*

Проникнення куперівських пар з надпровідного шару до феромагнетного у контактах надпровідник–феромагнетик, відоме як ефект близькості, є предметом інтенсивних досліджень протягом декількох останніх десятиліть. На початку цього сторіччя стало зрозумілим, що ефект близькості супроводжується зворотною дією магнетного матеріялу на електронну підсистему надпровідника, яка проявляє себе у дифузії намагнетченості через інтерфейс двох металів. Згідно із тодішньою теорією зворотного ефекту близькості глибина такого проникнення мала бути порядку довжини когерентності у надпровіднику. Цей феномен спостерігався експериментально, проте детальні експерименти, зокрема, за допомогою нейтронного і мюонного розсіювання виявили магнетні кореляції на суттєво більших відстанях. Для їх пояснення запропоновано теорію електромагнетного ефекту близькості, згідно якої диспропорція між електронами з різними напрямками спінів поширюється у надпровідник другого роду на відстані порядку лондонівської глибини проникнення. У даній роботі наведено експериментальні виміри вольт-амперних характеристик джозефсонівських переходів феромагнетик/надпровідник–бар'єр–надпровідник, які підтверджують

Corresponding author: Eduard Mykhaylovych Rudenko
E-mail: emrudenko@ukr.net

*G. V. Kurdyumov Institute for Metal Physics N.A.S. of Ukraine,
36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine*

Citation: E. M. Rudenko, A. O. Krakovny, I. V. Korotash, M. V. Dyakin, and M. O. Belogolovskii, Influence of Electromagnetic Proximity Effect on Transport Characteristics of Josephson Junctions Ferromagnet/Superconductor–Barrier–Superconductor, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **42**, No. 10: 1431–1439 (2020) (in Ukrainian), DOI: [10.15407/mfint.42.10.1431](https://doi.org/10.15407/mfint.42.10.1431).

існування електромагнетного ефекту близькості у контактах надтонкої плівки свинцю — надпровідника другого роду з ферромагнетним нікелем. Крім того, ми вперше спостерігали коливну залежність критичного струму переходу Ni/Pb/Sn-оксидний бар'єр-Pb від товщини Ni, яка свідчить про наявність у плівці Pb просторових коливань параметра надпровідного порядку, передбачених FFLO-теорією ще у середині 60-х років минулого сторіччя.

Ключові слова: контакти надпровідного і ферромагнетного металів, ефект близькості, переходи Джозефсона, магнетне поле.

Penetration of Cooper pairs from a superconducting layer to a ferromagnetic one in superconductor-ferromagnet contacts, known as a proximity effect, has been a subject of intensive research over the past few decades. At the beginning of the century, it became clear that the proximity effect is supplemented by a reverse influence of the magnetic material on the electronic subsystem of a superconductor, which manifests itself in the diffusion of magnetization through the interface of two metals. According to the former theory of the inverse proximity effect, the depth of such penetration is to be of the order of the coherence length in the superconductor. This phenomenon has been indeed observed, but detailed experiments, in particular neutron and muon scatterings, have revealed magnetic correlations at significantly greater distances. To explain the findings, a theory of the electromagnetic proximity effect is proposed, according to which the disproportion between electrons with different spin directions extends into a type-II superconductor at distances of the order of the London penetration depth. In this paper, we present experimental measurements of current-voltage characteristics of Josephson ferromagnet/superconductor-barrier-superconductor junctions confirming existence of the electromagnetic proximity effect in contacts formed by an ultrathin lead film—a type-II superconductor with a ferromagnetic nickel. Moreover, we first observed an oscillating dependence of the critical current of a Ni/Pb/Sn-oxide barrier-Pb junction on the Ni thickness, which indicates the presence of spatial oscillations of the superconducting order parameter in the Pb film predicted by the FFLO theory in mid-1960s.

Key words: contacts of superconducting and ferromagnetic metals, proximity effect, Josephson junctions, magnetic field.

(Отримано 22 липня 2020 р.)

1. ВСТУП

Детальний аналіз взаємного впливу надпровідного (S) та ферромагнетного (F) упорядкувань має принципове значення для спітроніки, галузі сучасної електроніки, що використовує квантові властивості електронних спінів [1, 2]. Завдяки співіснуванню двох конкуруювальних параметрів порядку виникає унікальна можливість створення низьковимірних об'єктів з принципово новими власти-

востями, відмінними від фізичних і хемічних властивостей базових матеріалів. Ця задача є важливим елементом реалізації новітніх концепцій електронних та спінтронних пристроїв, основу яких складають гібридні матеріали з різним електронним та магнетним упорядкуванням [3]. Зокрема, це стосується багат шарових контактів надпровідних, нормальних і магнетних металів, здатних значно підвищити енергетичну ефективність, швидкість роботи і ступінь інтеграції кріогенних пристроїв мікро- і наноелектроніки [4].

Добре відомо, що за достатньо низьких температур надпровідні кореляції можуть поширюватись в нормальні метали на відстані порядку мікрону. У разі, коли ненадпровідний метал є магнетним, слід очікувати швидке згасання просторового впливу ефекту близькості через обмінну взаємодію, яка руйнує надпровідні куперовські пари. Проте на початку цього сторіччя групою теоретиків [2] показано, що такий результат не є універсальним, принаймні, для феромагнетиків, неоднорідних з магнетної точки зору, оскільки у даному випадку можливе виникнення спін-триплетних парних кореляцій, здатних поширюватися вглиб магнетного матеріалу на такі ж відстані, що і у нормальному металі, реалізуючи так званий ефект «далекої близькості». Експериментальні дослідження у цьому напрямку зосереджені насамперед на контактах Джозефсона, які містять феромагнетні матеріали як бар'єрний прошарок. Виявилось, що у таких гетероструктурах навіть сильні феромагнетні метали можуть переносити спін-триплетні надструми на відстані щонайменше декількох десятків нанометрів, тоді як спін-синглетний надструм у подібних зразках мав би згасати вже на масштабах декількох нанометрів [5]. Як зазначено в огляді [5], майже всі докази існування ефекту «далекої близькості» базуються на результатах досліджень гібридних структур надпровідник–магнетний матеріал–надпровідник, порівняно з котрими кількість робіт, у яких феромагнетик знаходиться із зовнішнього боку, було незначним, наприклад, публікація [6]. Однією з перших таких робіт була наша стаття [7], у якій досліджено тунельний контакт на основі F/S електроду з феромагнетною плівкою саме із зовнішнього боку тунельного контакту. У роботі [7] наведено аналіз залежності щільності квазічастинкових станів плівки Pb, традиційного надпровідника з синглетним спаровуванням електронів, від товщини нанорозмірного шару феромагнетного Ni у безпосередньому контакті з Pb. Було виявлено, що глибина проникнення надпровідних кореляцій у феромагнетний нікель має той самий порядок величини, що і у контактах свинцю з нормальним металом. Таку поведінку можна пояснити виникненням на інтерфейсі неоднорідного обмінного поля, яке має своїм наслідком конверсію спін-синглетних куперівських пар у спін-триплетні пари, які є стійкими щодо обмінної взаємодії і тому поширюються на відстані, значно більші ніж це дають стандар-

ртні розрахунки для магнетного матеріалу [7].

У даній роботі ми реалізуємо подібну конфігурацію, а саме, гетероструктуру, яка складається з п'яти плівок — ферромагнетного нікелю, надпровідного свинцю, надтонкого олова, оксидного бар'єру SnO_x та протилежної плівки свинцю у надпровідному стані. Але на відміну від попередньої публікації [7] перехідний шар дозволяв куперівським парам тунелювати крізь нього квантово-механічним чином. Таким чином, створений перехід був джозефсонівським з надвисокою чутливістю до наявності магнетного упорядкування в одному з надпровідних електродів, що дозволило нам виявити ефект проникнення ферромагнетного порядку з ферромагнетної плівки Ni у надпровідний Pb на відстані, які суттєво перевищують довжину когерентності у цьому металі. Далі ми наводимо основні експериментальні результати і порівнюємо їх з останніми теоретичними передбаченнями щодо електромагнетного ефекту близькості у контактах магнетного і надпровідного металів.

2. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ

На вставці до рис. 1 зображено хрестоподібну структуру $F/S-I-S'$, де $F = \text{Ni}$, $S = \text{Pb/Sn}$, бар'єр $I = \text{SnO}_x$, $S' = \text{Pb}$, яку досліджено у даній роботі. Монокристалічне сапфірове підложжя дозволяло одержувати гладку поверхню плівки нікелю та відводити від вузьких плівок питому потужність до 9 Вт/см^2 за гелієвих температур, завдяки чому вдалося уникнути ефектів розігріву під час виміру вольт-амперних характеристик надпровідних тонких плівок. Чистота підложжя відіграла важливу роль у забезпеченні хорошої адгезії плівки Ni, тому його ретельно обробляли перед використанням. Спочатку підложжя поміщали на 15–20 хвилин у розчин хромової суміші, після чого його промивали у дистильованій воді та в ультразвуковій мийці (30–40 хвилин). Помите підложжя висувували на повітрі та розміщували у сушильну шафу на 30 хвилин за температури 120°C . Щоб створити плівкову структуру, ми використовуємо спеціальні металеві маски.

Формування плівки нікелю товщиною до 60 нм проводили методом магнетронного розпорошення за постійного струму нікелевої мішені, виготовленої з нікелевої смуги, зі швидкістю напорошення 50 нм/хв , плівки Pb і Sn одержано методом термічного напорошення. Оксидний бар'єр SnO_x формували шляхом контрольованого окислення поверхні плівки Sn у лабораторних умовах. Оскільки сандвічі Pb–Sn напорошували без розриву вакууму, то можна було очікувати, що імовірність транспорту крізь інтерфейс між шарами Pb та Sn дорівнювала одиниці. У такому випадку надпровідні властивості плівки Sn, товщина якої була набагато меншою за свинцеву, практично збігалися з відповідними характеристиками плівки

Pb. Площа сформованого таким чином тунельного контакту становила $A = 200 \text{ мкм} \times 200 \text{ мкм}$, а питомий опір контактів R_{NA} , де R_N — опір тунельного контакту за нормального стану, варіювався від $10^{-6} \text{ Ом}\cdot\text{см}^2$ до $10^{-5} \text{ Ом}\cdot\text{см}^2$. Для вимірів вольт-амперних характеристик таких $F/S-I-S$ переходів ми використовували чотиритермінальну схему.

Ефект надпровідності у парі двох металів — нікелю і свинцю товщини $d_{Ni} = 15 \text{ нм}$ і $d_{Pb} = 100\text{--}400 \text{ нм}$ відповідно вперше проаналізовано у роботі [8]. Встановлено, що взаємна дифузія у контакті Ni з Pb є незначною, і тому така система може слугувати модельним об'єктом для визначення впливу магнетного матеріалу на надпровідник у безпосередньому контакті з ним. Зауважимо, що такий аналіз не є тривіальним, оскільки довжина вільного пробігу електронів у плівках свинцю товщиною від 100 до 50 нм змінювалась від 58 до 18 нм відповідно. Такі плівки Pb слід було вважати «брудними» [8]. Ще одна важлива обставина полягала в тому, що у разі зменшення товщини свинцевої плівки вона переходить зі стану надпровідника першого роду у надпровідник другого роду. Ця критична товщина для Pb становить приблизно 250–300 нм [9], тобто у наших експериментах ми мали справу саме з надпровідником другого роду, що має дуже важливе значення для визначення природи «далекої надпровідності» у нашому випадку.

На рисунку 1 наведено типову вольт-амперну $I-V$ характеристику одного з джозефсонівських Ni/Pb/Sn-SnO_x-Pb переходів. Вона наочно демонструє, навіть за товщини $d_{Ni} = 60 \text{ нм}$, наявність надпровідного струму за $I < I_c$ і перехід з надпровідного стану в резис-

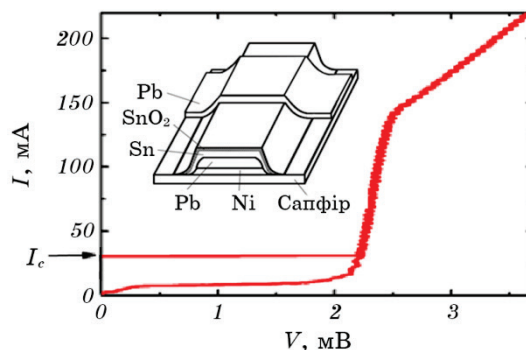


Рис. 1. Вольт-амперна характеристика типового Ni/Pb/Sn-SnO_x-Pb джозефсонівського переходу з товщиною нікелевого шару $d_{Ni} = 60 \text{ нм}$, I_c — критичний струм. На вставці зображено зовнішній вигляд цієї структури.

Fig. 1. Current-voltage characteristic of a typical Ni/Pb/Sn-SnO_x-Pb Josephson junction with a nickel layer thickness $d_{Ni} = 60 \text{ nm}$, I_c is the critical current. The insert shows schematic of the structure.

тивний з кінцевим опором за $I > I_c$ (I_c — критичний струм). Зауважимо, що I – V крива має гістерезисний характер, що, зазвичай, притаманно джозефсонівським гетероструктурам з оксидним проміжком між двома надпровідними електродами.

Рисунок 2 демонструє залежність добутку критичного струму I_c та опору за нормального стану R_N джозефсонівських переходів Ni/Pb/Sn–SnO_x–Pb від товщини шару Ni d_{Ni} , штрихова лінія — результат підгонки методом найменших квадратів під експериментальні точки. Добуток $I_c R_N$ згідно з теорією ефекту Джозефсона є пропорційним величині надпровідного параметра порядку в прилеглих до бар'єру ділянках надпровідних електродів і тому зменшується з ростом товщини нікелевого шару. Незвичайним є збільшення цього добутку для малих товщин d_{Ni} , а також невелике зростання $I_c R_N$ для порівняно великих товщин d_{Ni} , що буде обговорюватись нижче. Нарешті, все це відбувається за товщини свинцю $d_{Pb} = 150$ нм, що значно перевищує довжину когерентності ξ_0 у цьому металі в об'ємному стані, яка згідно із табличними даними дорівнює 83 нм.

3. АНАЛІЗ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДАНИХ

Наведені на рис. 2 результати демонструють ряд незвичайних фактів, які, на перший погляд, протирічають загально відомим висновкам щодо надпровідності в гетероструктурах, створених надпровід-

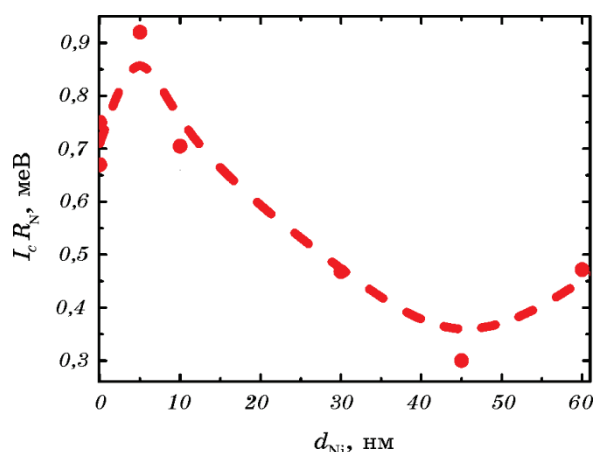


Рис. 2. Залежність добутку критичного струму та опору в нормальному стані джозефсонівського переходу Ni/Pb/Sn–SnO_x–Pb від товщини шару Ni за сталої величини $d_{Pb} = 150$ нм.

Fig. 2. Dependence of a product of the critical current and the normal-state resistance of the Josephson Ni/Pb/Sn–SnO_x–Pb junction on the Ni layer thickness for a constant value $d_{Pb} = 150$ nm.

ними і феромагнетними плівками. Насправді ж, як вже відзначалося вище, властивості об'ємних і плівкових Pb зразків суттєво відрізняються один від одного і це визначає наявність неочікуваної поведінки добутку $I_c R_N$.

Як було визначено раніше [9], такі елементарні надпровідники першого роду як олово, індій чи свинець з параметром Гінзбурга-Ландау $\kappa < 1/\sqrt{2}$ можуть перетворюватись у надпровідники другого роду ($\kappa > 1/\sqrt{2}$) у плівковому стані. Згідно із табл. 1 у роботі [9], наші плівки товщиною $d_{\text{Pb}} = 150$ нм відповідають останній нерівності. Одним із факторів, які ведуть до збільшення параметра $\kappa > \lambda/\xi$, де λ — лондонівська глибина проникнення магнетного поля, є зменшення довжини вільного пробігу l у тонких плівках свинцю, що призводить до появи нової довжини $\xi^* \approx \sqrt{\xi_0} l$, яка згідно з оцінками [8] не перевищує 60 нм. З елементарної теорії ефекту близькості у контактах надпровідної і феромагнетної плівки випливає, що характерна глибина проникнення магнетних кореляцій у надпровідник за достатньо низьких температур дорівнює приблизно $\pi\xi^*/2$, див. формулу (4) в статті [8], тобто у нашому випадку має бути меншою за 100 нм. Водночас, як випливає з рис. 2, вплив магнетизму відчувається і для більших величин $d_{\text{Pb}} = 150$ нм, тобто у досліджених нами зразках має місце ефект «далекої близькості», природу якого можна зрозуміти, виходячи з сучасного погляду на розподіл магнетних полів і надпровідних кореляцій в F/S контактах [10, 11].

Раніше вважалося, що в планарних F/S системах існує лише два основні механізми, що відповідають за проникнення магнетного впорядкування від F плівки до S шару. Перший з них є результатом наявності зовнішнього магнетного поля, яке індукує відповідні незгасні струми у надпровіднику, екрануючи магнетний вплив (орбітальний ефект). Другий, так званий зворотний ефект близькості, є наслідком спінової поляризації електронів, що утворюють куперовські пари і виникає поблизу F/S інтерфейсу на відстані ξ^* від нього [12]. Наочне пояснення цього ефекту полягає у наступному. У F/N системі феромагнетне впорядкування проникає у нормальний метал на короткі відстані, оскільки обмінна взаємодія є локальною. Навпаки, в F/S структурі магнетний момент може проникнути в надпровідник на порівняно великі відстані порядку ξ^* . Зрозуміло, що пари, повністю розташовані у надпровіднику, не впливають на його намагнетченість, оскільки їх сумарний магнетний момент дорівнює нулю. Однак існують куперовські пари, в яких один із електронів знаходиться у феромагнетику і його спін направлений уздовж намагнетченості F шару, тоді як інший з антипаралельним спіном — у надпровідник. Саме вони і створюють намагнетчування приповерхневої ділянки надпровідника з шириною порядку розміру куперовської пари ξ^* , яке направлено протилежно напрямку обмінного поля у F шарі.

Проте експерименти на основі мюонного і нейтронного розсіювання, див. [13, 14], і відповідні посилення у цих статтях, а також тунельні експерименти [7], свідчать про ще більші, тобто аномально великі відстані проникнення намагнетченості, паралельної площині F шару у надпровідник, які жодним чином не відповідають теорії зворотного ефекту близькості. У роботах [10, 11] цей феномен пояснений як результат запропонованого авторами електромагнетного ефекту близькості, який полягає у генерації надпровідних струмів у феромагнетику внаслідок звичайного (прямого) ефекту близькості і у відповідь мейснерівських струмів у надпровіднику.

Останні згасають у S плівці на відстані порядку λ , яка у надпровідниках другого роду суттєво перевищує ξ^* . Оскільки саме така нерівність має місце у наших плівках Pb, то появу магнетних кореляцій на відстанях, які помітно перевищують ефективну довжину когерентності ξ^* , можна пояснити електромагнетним ефектом близькості [10, 11].

Що стосується другого локального максимуму у залежності I_c від d_{Ni} в області порівняно великих товщин нікелю, то ці осциляції виникають у результаті проникнення в надпровідник обмінного поля E_{ex} . Більш ніж 50 років тому Фулде і Феррель [15], а також Ларкін і Овчинников [16] (FFLO теорія) показали, що параметр надпровідного порядку у такому об'ємному зразку може коливатись зі зміною знаку у реальному просторі. Куперівська пара в синглетному стані отримує додатковий імпульс $Q = 2E_{ex}/(\hbar v_F)$, де v_F — швидкість Фермі, і тоді її фаза змінюється у просторі лінійним чином $\delta\phi = Q\delta x$. Коли $\delta x = \hbar v_F/(4E_{ex})$, то виникає зсув фази на π , який проявляє себе в осциляціях джозефсонівського струму I_c , які можна спостерігати на рис. 2.

4. ВИСНОВКИ

Виміри вольт-амперних характеристик $F/S-I-S'$ переходів з $F = Ni$, $S = Pb/Sn$, $I = SnO_x$, $S' = Pb$ дозволили експериментально перевірити основне передбачення нової концепції електромагнетного ефекту близькості, а саме, проникнення магнетного впорядкування у надпровідник другого роду на відстані, які суттєво перевищують довжину когерентності у ньому. До того ж, нами вперше показано, що проникнення магнетного упорядкування у надпровідну плівку має своїм наслідком коливання критичного струму I_c джозефсонівського Ni/Pb/Sn-SnO_x-Pb переходу зі зростанням товщини нікелевої плівки, яка, своєю чергою, визначає величину обмінного поля, що з'явився у надпровіднику.

Дану роботу виконано у рамках наукового проєкту «Квантова динаміка квазічастинкових збуджень в гібридних металевих нано-

структурах» за бюджетною програмою КПКВК 6541230 «Підтримка розвитку пріоритетних напрямів наукових досліджень».

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. A. I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.*, **77**: 935 (2005).
2. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.*, **77**: 1321 (2005).
3. I. Žutić, A. Matos-Abiague, B. Scharf, H. Dery, and R. Belashchenko, *Materials Today*, **22**: 85 (2019).
4. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, M. Yu. Kupriyanov, A. L. Gudkov, and A. S. Sidorenko, *Beilstein J. Nanotechnol.*, **8**: 2689 (2017).
5. N. O. Birge, *Phil. Trans. R. Soc. A*, **376**: 20150150 (2018).
6. A. Di Bernardo, S. Fiesch, Y. Gu, J. Linder, G. Divitini, C. Ducati, E. Scheer, M. G. Blamire, and J. W. A. Robinson, *Nat. Commun.*, **6**: 8053 (2015).
7. E. M. Rudenko, A. A. Krakovny, I. V. Korotash, and M. A. Belogolovskii, *Low Temp. Phys.*, **43**: 1435 (2017).
8. J. J. Hauser, *Phys. Rev. B*, **10**: 2792 (1974).
9. G. J. Dolan and J. Silcox, *Phys. Rev. Lett.*, **30**: 603 (1973).
10. S. V. Mironov, A. S. Mel'nikov, and A. I. Buzdin, *Appl. Phys. Lett.*, **113**: 022601 (2018).
11. Zh. Devizorova, S. V. Mironov, A. S. Mel'nikov, and A. Buzdin, *Phys. Rev. B*, **99**: 104519 (2019).
12. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Phys. Rev. B*, **69**: 174504 (2004).
13. M. G. Flokstra, N. Satchell, J. Kim, G. Burnell, P. J. Curran, S. J. Bending, J. F. K. Cooper, C. J. Kinane, S. Langridge, A. Isidori, N. Pugach, M. Eschrig, H. Luetkens, A. Suter, T. Prokscha, and S. L. Lee, *Nat. Phys.*, **12**: 57 (2016).
14. M. G. Flokstra, R. Stewart, N. Satchell, G. Burnell, H. Luetkens, T. Prokscha, A. Suter, E. Morenzoni, S. Langridge, and S. L. Lee, *Phys. Rev. Lett.*, **120**: 247001 (2018).
15. P. Fulde and A. Ferrel, *Phys. Rev.*, **135**: A550 (1964).
16. A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *Sov. Phys. JETP*, **20**: 762 (1965).