

УДК 621.315.55/.58:538.945

ВОЗВРАТНАЯ СВЕРХПРОВОДИМОСТЬ В БИСЛОЯХ СВЕРХПРОВОДНИК – ФЕРРОМАГНИТНЫЙ СПЛАВ

© 2008 г. В. И. Здравков¹, А. С. Сидоренко¹, Г. Обермайер², Ш. Гзель², М. Шрек²,
К. Мюллер², В. В. Рязанов³, З. Хорн², Р. Тидекс², Л. Р. Тагиров⁴, М. Ю. Куприянов⁵

E-mail: Lenar.Tagirov@ksu.ru

Сообщаются результаты наблюдения осциллирующего поведения сверхпроводимости в ультратонких бислоях ниобий – ферромагнитный сплав $\text{Cu}_{41}\text{Ni}_{59}$. Наиболее яркое явление наблюдалось при толщине слоя Nb порядка 7.3 нм: температура сверхпроводящего перехода T_c сначала резко падала при увеличении толщины ферромагнитного сплава до полного подавления сверхпроводимости при толщине ферромагнитного сплава $d_{\text{CuNi}} \approx 4$ нм. При дальнейшем увеличении толщины сверхпроводимость вновь восстанавливалась при $d_{\text{CuNi}} \geq 13$ нм. Мы связываем сильно немонотонное и возвратное поведение сверхпроводимости в бислоях Nb/ $\text{Cu}_{41}\text{Ni}_{59}$ с реализацией в ферромагнитном сплаве состояния, подобного квазиодномерному состоянию Фульде-Феррелла-Ларкина-Овчинникова.

Сосуществование сверхпроводимости S и ферромагнетизма F в однородном материале, предложенное Фульде-Ферреллом [1], и Ларкиным-Овчинниковым [2] (FFLO), ограничено чрезвычайно узким и трудно достижимым диапазоном параметров [3], поэтому до сих пор не было получено убедительных экспериментальных свидетельств реализации состояния FFLO. Однако эту проблему можно обойти, разделив сверхпроводимость и ферромагнетизм пространственно, например, в искусственных слоистых наноструктурах сверхпроводник/ферромагнетик (S/F) (см., например, [4]). Два антагонистических дальних порядка влияют друг на друга путем проникновения электронов через их общий интерфейс (поверхность соприкосновения). Сверхпроводимость в таком контакте может выжить, даже если энергия обменного расщепления зоны проводимости в ферромагнитном металле, препятствующая сверхпроводящему спариванию в однородном материале, значительно больше щели в спектре возбуждений сверхпроводника. Электроны со спином вверх и спином вниз, составляющие куперовскую пару, попадают в разные спиновые подзоны зоны проводимости ферромагнитного металла, в которых они имеют существенно различающиеся фермиевские импульсы. В результате суммарный импульс куперовской пары становится отличным от нуля и волновая функция пар осцил-

лирует в пространстве. Наличие фазы у волновой функции приводит к интерференционным явлениям, и плоскопараллельный слой ферромагнитного материала исполняет роль интерферометра Фабри-Перо. Если толщина слоя ферромагнитного металла меняется, то меняются условия интерференции парной волновой функции на S/F -интерфейсе. Соответственно модулируется поток куперовских пар из сверхпроводника в ферромагнетик, т.е. связь между слоями S и F и температура сверхпроводящего перехода T_c становится зависящей от толщины ферромагнитного слоя.

Наиболее необыкновенное явление, предсказанное теорией, это возвратное поведение сверхпроводимости [5–7]. Вопреки ожиданию, что подавление сверхпроводимости будет монотонно усиливаться с ростом толщины ферромагнитного слоя d_F , расчет дает начальное подавление T_c до нуля, а затем, при дальнейшем росте d_F , сверхпроводимость восстанавливается. Есть единственное сообщение о наблюдении возвратной сверхпроводимости в трислоях Fe/V/Fe [8]. Из-за очень малой толщины слоев железа, при которых ожидается возвратное поведение сверхпроводимости (0.7–1.0 нм, т.е. 3–6 монослоев железа), число экспериментальных точек мало, и разброс их велик. Дело в том, что в элементных ферромагнетиках (Fe, Co, Ni) энергия обменного расщепления зоны проводимости E_{ex} велика (0.1–1.0 эВ), и длина волны осцилляций парной волновой функции очень мала: $\xi_{F0} \approx \hbar v_F / E_{ex} \approx 0.6$ –1.0 нм. Здесь v_F – скорость Ферми в F материале и $\hbar$ – постоянная Планка. Ферромагнитные сплавы, имеющие на порядок меньшее расщепление зоны проводимости, позволили бы наблюдать эффект возвратной сверхпроводимости на толщинах 5–10 нм, которые значительно легче получать и контролировать. Растянутая по

¹ Институт электронной инженерии и промышленных технологий АНМ, Кишинев, Молдова.

² Институт физики университета Аугсбурга, Германия.

³ Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка, Россия.

⁴ Казанский государственный университет, 420008 Казань, Россия

⁵ НИИ ядерной физики им. Д.В. Скобельцына Московского государственного университета, Москва, Россия им. М.В. Ломоносова.

толщине область полного подавления сверхпроводимости позволила бы “уместить” в ней значительное число экспериментальных точек, что сделало бы эксперимент доказательно убедительным. Другое преимущество использования ферромагнитных сплавов состоит в том, что для осцилляций с большой длиной волны шероховатость интерфейса атомного масштаба больше не имеет решающего влияния на интерференцию, поэтому можно ожидать значительно меньшего разброса результатов измерений сверхпроводящей T_c .

В настоящей работе в качестве материала сверхпроводящего слоя был выбран ниобий, а в качестве материала для ферромагнитного слоя – сплав $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$ с $x \approx 0.59$. Магнитный момент и температура Кюри в этом сплаве почти линейно зависят от концентрации никеля [9]. Концентрации $x \approx 0.59$ соответствует $\Theta_{\text{Curie}} \approx 170$ К в массивном материале.

Образцы были приготовлены магнетронным распылением на коммерческие кремниевые подложки при комнатной температуре. Остаточное давление в вакуумной системе “Leybold Z400” было $2 \cdot 10^{-6}$ мбар, в качестве плазмообразующего газа использовался чистый аргон (99.999 %, “Messer Griesheim”) при давлении $8 \cdot 10^{-3}$ мбар. После отработки системы все три мишени: кремния, ферромагнитного сплава и ниобия – подвергались предварительному распылению в течение 10–15 мин, чтобы удалить загрязнения и уменьшить давление остаточных газов за счет распыления Nb, геттерного материала. Нанесение слоев начиналось с буферного слоя высокоомного кремния для создания чистого интерфейса для последующего напыления слоя ниобия. Для получения высококачественных слоев Nb с необходимой толщиной в диапазоне 5–10 нм была применена методика движущегося магнетрона для уменьшения времени экспозиции. Моторизованный калиброванный привод равномерно двигал мишень над подложкой, обеспечивая скорость роста пленки Nb приблизительно $1.3 \text{ нм} \cdot \text{с}^{-1}$, в то время как скорость роста при неподвижном магнетроне была бы около $4 \text{ нм} \cdot \text{с}^{-1}$. Для получения серии образцов с изменяющейся толщиной ферромагнитного слоя $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$ была применена опробованная нами ранее методика напыления клиновидного слоя [10]. Чтобы подготовить этот клин, кремниевая подложка длиной 80 мм и шириной 7 мм была установлена на расстоянии 4.5 см от оси симметрии мишени. Клин получался в результате естественного пространственного градиента потока материала, движущегося с мишени. Чтобы предотвратить окисление бислоев Nb/ $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$, они были укрыты 5 нм высокоомного кремния. Схема образца помещена на вставку рис. 1. Образцы равной ширины для измерений T_c были получены распиливанием длинной подложки поперек клина на 30–35 полосок. Для измерений температуры сверхпроводящего перехода по сопротивле-

Толщины Nb и CuNi, нм

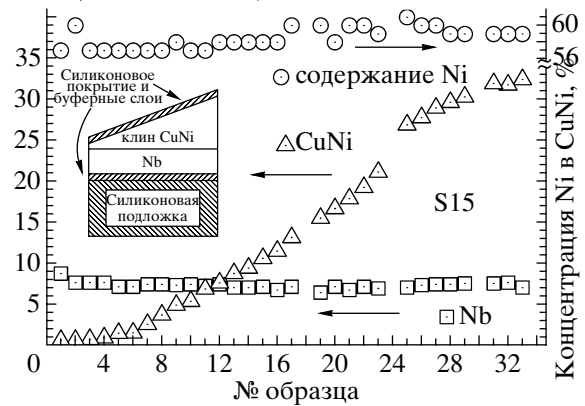


Рис. 1. Результаты спектроскопии обратного резерфордского рассеяния образцов серии S15. Нумерация полосок начинается с конца, удаленного от оси мишени магнетрона. На вставке приведена послойная схема клиновидного образца с переменной толщиной слоя ферромагнитного сплава.

нию к полоскам были приварены с помощью ультразвука по четыре алюминиевых провода толщиной 50 мкм. Для контроля толщины слоя ниобия, слоя ферромагнитного сплава $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$ и его состава в каждой серии был использован метод обратного резерфордского рассеяния (см. рис. 1). Образцы с переменной толщиной слоя ниобия и постоянной толщиной слоя сплава приготавливались по аналогичной методике.

Измерения сопротивления были выполнены в ^3He -криостате и в рефрижераторе растворения. Применен стандартный четырехконтактный метод с измерительным током 10 мкА в температурном диапазоне 0.4–10 К и 2 мкА в диапазоне от 40 мК до 1.0 К соответственно. Температура сверхпроводящего перехода T_c была определена по середине кривой перехода $R(T)$. Ширина перехода определялась как температурный интервал, в котором сопротивление изменяется от $0.9R_n$ до $0.1R_n$, где R_n – сопротивление образца в нормальной фазе сразу выше T_c .

На рис. 2 приведены результаты измерений T_c для 3-х серий образцов с толщиной $d_{\text{Nb}} \approx 14.1, 8.3$ и 7.3 нм. В серии с толщиной сверхпроводящего слоя $d_{\text{Nb}} \approx 14.1$ нм температура перехода уменьшалась с ростом d_{CuNi} , выходя после неглубокого минимума на плато. Такое поведение $T_c(d_{\text{CuNi}})$ наблюдалось и ранее [11–14]. В серии с толщиной сверхпроводящего слоя $d_{\text{Nb}} \approx 8.3$ нм температура перехода уменьшалась почти до полутора градусов, затем T_c значительно возрастала, превышая 3 К при толщине $d_{\text{CuNi}} \sim 27$ нм. Наконец, в серии с толщиной сверхпроводящего слоя $d_{\text{Nb}} \sim 7.3$ нм меньшей, чем сверхпроводящая длина когерентности слоя Nb, наблюдалась возвратная сверхпроводимость: в диапазоне $d_{\text{CuNi}} \approx 0$ –4.7 нм T_c резко падала до нуля, затем при $d_{\text{CuNi}} > 13$ нм сверхпроводимость восста-

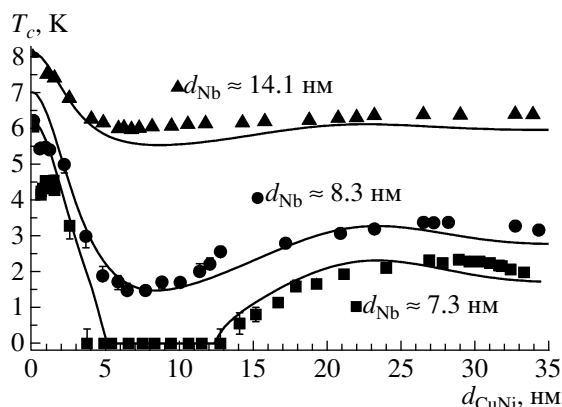


Рис. 2. Зависимость температуры сверхпроводящего перехода от толщины слоя ферромагнитного сплава. Если ширина перехода превышает размер точки, она дана за скобками. Сплошные линии – подгонка по теории из [6, 10].

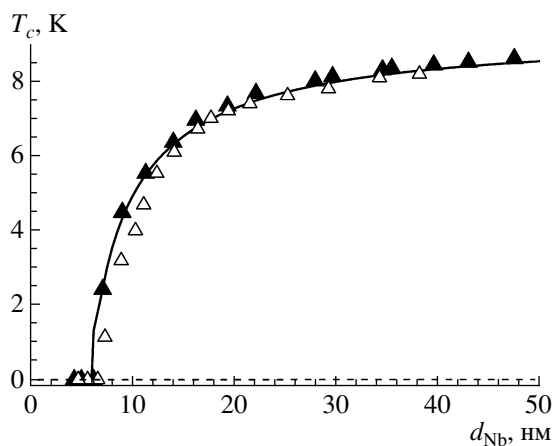


Рис. 3. Зависимость температуры сверхпроводящего перехода от толщины слоя ниобия: $\blacktriangle$ – $d_{\text{CuNi}} \approx 56$ нм, $\triangle$ – ~ 25 нм. Сплошная линия – подгонка по теории из [6, 10]. Расчетная критическая толщина $d_{\text{Nb}} = 6.2$ нм. ($T_c \rightarrow 0$ К).

навливалась, и T_c достигала 2 К и больше в диапазоне толщин $d_{\text{CuNi}} \approx 27\text{--}30$ нм.

Результаты измерений интерпретировались в рамках теории эффекта близости в “грязных” слоистых S/F -системах (длина свободного пробега электронов проводимости в ферромагнитном сплаве l_F значительно меньше длины когерентности ξ_{F0} , определенной выше) [15], и адаптации этой теории к обратному случаю [6]. Подгонка экспериментальных данных по теории [15] не позволила воспроизвести величину T_c на толщинах $d_{\text{CuNi}} \approx 17\text{--}30$ нм (и особенно после восстановления сверхпроводимости в серии с толщиной $d_{\text{Nb}} \approx 7.3$ нм) [16]. Теория [6, 10], хотя и полуколичественная, дает значительно лучшее согласие с экспериментом. Сплошные линии на рис. 2 и 3 получены совместной подгонкой всех кривых фактически с единым набором параметров: отношение шарвиновских проводимостей материалов $N_F v_F / N_S v_S = 0.17$, параметр прозрачности S/F интерфейса $T_F = 0.85$, отно-

шение длины пробега электронов к длине когерентности в ферромагнитном сплаве $l_F / \xi_{F0} = 1.2$, сверхпроводящая длина когерентности слоя ниобия $\xi_S = 10.2\text{--}11$ нм, длина когерентности в ферромагнитном сплаве $\xi_{F0} = 8.6$ нм. Из подгонки следует, что длина свободного пробега в ферромагнитном сплаве, $l_F \approx 10.3$ нм, больше длины когерентности $\xi_{F0} \approx 8.6$ нм, т.е. сплав не является “грязным” металлом. Длину свободного пробега можно оценить и по остаточному сопротивлению. Согласно [13], $l_F \approx 4.4$ нм в сплаве $\text{Cu}_{47}\text{Ni}_{53}$ с удельным сопротивлением $\rho_F = 57$ мкОм · см при температуре 10 К. Предполагая постоянство произведения $\langle \rho_F l_F \rangle \approx 2.5 \cdot 10^{-5}$ мкОм · см² при изменении концентрации примесей [17], и используя данные по удельному сопротивлению сплава $\text{Cu}_{41}\text{Ni}_{59}$ в наших экспериментах, $\rho_F \approx 25$ мкОм · см, мы получаем $l_F \approx 10.0$ нм, что хорошо согласуется с длиной пробега, извлеченной из подгонки $T_c(d_{\text{CuNi}})$ и $T_c(d_{\text{Nb}})$. Таким образом, необходимы более детальное теоретическое рассмотрение эффекта близости в случае, когда ферромагнитный слой не может считаться “грязным” (см., например, [18]), и обработка экспериментальных данных, которые позволят понять тонкие детали возвратного поведения сверхпроводимости. Работа проведена в рамках проектов РФФИ-Молдова № 06-02-90865-Мол а, № 16R, РФФИ № 07-02-00963-а и программы ОФН РАН “Спинтроника”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Fulde P., Ferrell R. // Phys. Rev. 1964. V. 135. P. A550.
2. Ларкин А.И., Овчинников Ю.Н. // ЖЭТФ. 1964. Т. 47. С. 1136.
3. Fulde P. // Adv. in Phys. 1972. V. 22. С. 667. Figure 22.
4. Buzdin A.I. // Rev. Mod. Phys. 1995. V. 77. С. 935.
5. Khusainov M.G., Proshin Yu.N. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. P. R14283; Erratum: Phys. Rev. B, 2000. V. 62. P. 6832.
6. Tagirov L.R. // Physica C. 1998. V. 307. С. 145.
7. Тагиров Л.Р., Водопьянов Б.П. // Письма в ЖЭТФ. 2003. Т. 78. С. 1043.
8. Garifullin I.A., Tikhonov D.A., Garif'yanov N.N. et al. // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. 020505(R).
9. Вонсовский С.В. Магнетизм. М.: Наука, 1971. С. 619.
10. Sidorenko A.S., Zdravkov V.I., Prepelitsa A. et al. // Ann. Phys. (Leipzig-Berlin). 2003. V. 12. P. 37.
11. Rusanov A., Boogaard R., Hesselberth M. et al. // Physica C. 2002. V. 369. P. 300.
12. Ryazanov V.V., Oboznov V.A., Prokofiev A.S., Dubonos S.V. // Письма в ЖЭТФ, 2003. Т. 77. С. 43.
13. Potenza A., Marrows C.H. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. 180503.
14. Kim J., Kwon Hyung J., Char K. et al. // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. P. 014518.
15. Fominov Ya.V., Chitchev N.M., Golubov A.A. // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. P. 014507.
16. Zdravkov V., Sidorenko A., Obermeier G. et al. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. P. 057004.
17. French R.A. // Cryogenics. 1968. V. 8. P. 301.
18. Гусакова Д.Ю., Голубов А.А., Куприянов М.Ю. // Письма в ЖЭТФ. 2006. Т. 83. С. 487.