

Границы раздела в сверхпроводниковых гибридных гетероструктурах с антиферромагнитной прослойкой

© К.И. Константианян¹, Ю.В. Кислинский¹, Г.А. Овсянников^{1,2}, А.В. Шадрин^{1,2}, А.Е. Шейерман¹, А.Л. Васильев³, М.Ю. Пресняков³, Ф.В. Комиссинский^{1,4}

¹ Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

² Чалмерский технологический университет, Гётеборг, Швеция

³ НИЦ „Курчатовский институт“, Москва, Россия

⁴ Дармштадтский университет, Дармштадт, Германия

E-mail: karen@hitech.cplire.ru

(Поступила в Редакцию 29 августа 2012 г.)

Проведены структурные, рентгеновские и электрофизические исследования гибридных сверхпроводниковых гетероструктур с прослойкой из купратного антиферромагнетика $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$ (CSCO), где верхним электродом был Nb/Au, нижним — $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO). Экспериментально показано, что при эпитаксиальном росте двух купратов YBCO и CSCO образуется граница раздела, на которой происходит обогащение носителями прослойки CSCO на глубину порядка 20 nm. При этом проводимость обогащенной области CSCO, оказывается близкой к металлической, в то время как пленка CSCO, осажденная на подложку из NdGaO₃ является моттовским изолятором с прыжковой проводимостью.

Работа выполнена при поддержке ОФН РАН, Министерством образования и науки РФ, грантом Президента России: Ведущая научная школа НШ-2456.2012.2, проектами РФФИ № 11-02-01234а и 12-07-31207мол_а, программой Висби Шведского института.

1. Введение

В последнее время большой интерес вызывают процессы электронного транспорта, происходящие на границе сверхпроводника (S) с магнетиком (M), где вследствие взаимодействия сверхпроводящих и магнитных корреляций возникает ряд нетривиальных физических явлений [1–4]. Следует заметить, что значительная часть экспериментальных исследований S/M -границ проводилась на металлических или поликристаллических пленках [3–5], в которых нивелируется влияние кристаллической структуры контактирующих материалов. Существенно меньшая по сравнению с металлами длина когерентности оксидных материалов значительно усложняет изготовление оксидных сверхпроводниковых структур с магнитными прослойками. Тем не менее аномальный эффект близости в купратных сверхпроводниках наблюдался в лантановых структурах [6], а в гибридных мезагетероструктурах с антиферромагнитной прослойкой был экспериментально измерен сверхпроводящий ток, имеющий джозефсоновскую природу [7,8]. Определяющее значение для наблюдения перечисленных выше явлений отводится кристаллическим и электрофизическим характеристикам границ раздела контактирующих материалов. В настоящей работе приводятся результаты структурных исследований на просвечивающем электронном микроскопе, рентгеновском дифрактометре, а также электрофизические характеристики гибридных

$S-M-S'$ мезагетероструктур (МГС), в которых в качестве S выступал сверхпроводник с s -симметрией параметра порядка — тонкопленочная двухслойная структура Nb/Au, в качестве S' -электрода использовался купратный сверхпроводник $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) с доминирующей d -симметрией параметра порядка, M -прослойкой служил антиферромагнетик $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$ (CSCO) ($x = 0.15$ или 0.5).

2. Мезагетероструктуры, структурные измерения

Сверхпроводниковая пленка YBCO эпитаксиально осаждалась методом лазерной абляции при температуре 700–800° С на подложку (110)NdGaO₃ (NGO). Критическая температура YBCO составляла $T_c = 88–89$ К. Магнитная M -прослойка изготавливалась из купрата $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$ ($x = 0.15$ или 0.5), являющегося гейзенберговским антиферромагнетиком. Тонкая (5–50 nm) пленка M -прослойки эпитаксиально выращивалась поверх YBCO в той же вакуумной камере при высокой температуре, а потом покрывалась тонким (20–30 nm) слоем золота после охлаждения до комнатной температуры [7]. Купратные пленки YBCO и CSCO обладают близкими кристаллическими параметрами и хорошей химической совместимостью. В YBCO параметр базовой плоскости $a = 0.3859$ nm близок к a -параметру CSCO $a = b = 0.385$ nm. Параметр $c = 0.318–0.323$ nm

Кристаллические параметры и ширины кривых качания (a_{\perp} — межплоскостное расстояние в направлении оси c ; $\Delta\omega$ — ширина кривой качания на уровне полувысоты).

Параметр	CSCP ($x = 0.15$)	CSCO/YBCO ($x = 0.15$)		CSCO ($x = 0.5$)	CSCO/YBCO ($x = 0.5$)	
	(002) CSCO	(002)CSCP	(007)YBCO	(002)CSCP	(002)CSCO	(007)YBCO
a_{\perp} , nm	0.321	0.322	1.169	0.333	0.336	1.177
$\Delta\omega$	0.07	0.2*	0.2*	0.4	0.5*	0.5*

*Оценка $\Delta\Omega$ из $2\theta/\omega$ -скана без учета толщины пленки.

в M -прослойке изменяется в зависимости от содержания Sr ($x = 0.15$ или 0.5) [9]. Данные по межплоскостному (в направлении оси c) расстоянию a_{\perp} приведены в таблице. Осаждение поверх M -прослойки сверхпроводниковой двухслойной структуры Nb/Au позволяет получить джозефсоновские переходы, СВЧ- и магнитные свойства которых исследовались ранее [10,11]. Топология джозефсоновских переходов в МГС в виде квадрата с линейными размерами $L = 10-50 \mu\text{m}$ формировалась методами ионно-лучевого и реактивного травления.

Образцы для исследования поперечного сечения гетероструктуры изготавливались в электронно-ионном микроскопе Helios фирмы FEI (США) с помощью фокусированного ионного пучка энергией 30 kV в начале и 2 kV в конце процесса. Электронно-микроскопические исследования проводились на просвечивающем сканирующем электронном микроскопе ТИТАН 80-300, оборудованном энергодисперсионным рентгеновским микроанализатором (ЭДРМА), EDAX (США), энергетическим фильтром GIF (Gatan, США) и высокоугловым темнопольным детектором электронов (Fischione, США)

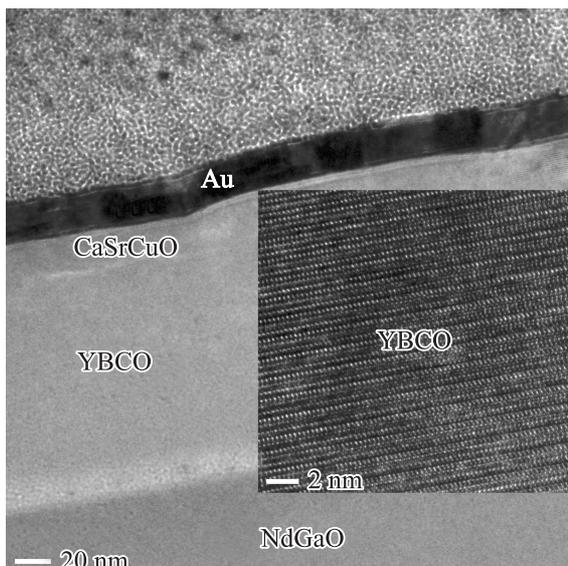


Рис. 1. Светлопольное изображение поперечного сечения гетероструктуры Au/CSCO/YBCO/NGO, полученное на просвечивающем электронном микроскопе. На вставке в увеличенном виде показан участок YBCO-пленки.

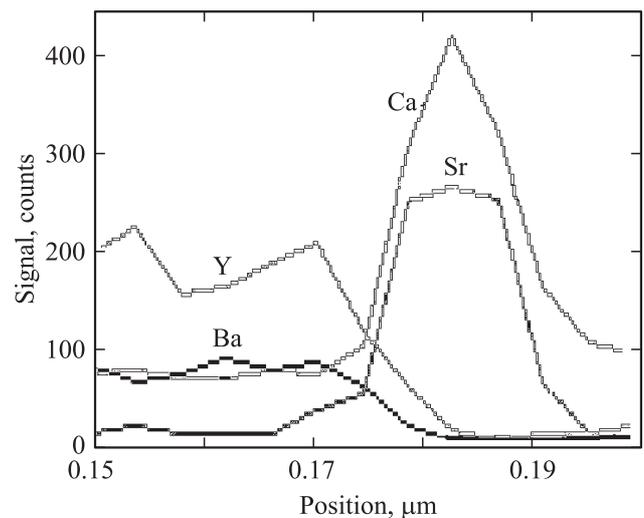


Рис. 2. Результаты энергодисперсионного рентгеновского микроанализа поперечного сечения участка МГС вблизи границы CSCO/YBCO.

при ускоряющем напряжении 300 kV. Светлопольное изображение поперечного сечения гетероструктуры, полученное с помощью просвечивающего электронного микроскопа, показано на рис. 1. Четко видны границы разделов YBCO/NGO и Au/CSCO. На вставке к рисунку в увеличенном виде показан участок пленки YBCO. Результаты микроанализа состава (ЭДРМА), приведенные на рис. 2, свидетельствуют о наличии Ca и Sr в интервале 175–195 nm, т.е. в диапазоне толщин M -прослойки, оцененной по числу импульсов лазерной абляции с помощью калибровки скорости роста пленки CSCO.

3. Электрофизические характеристики

На рис. 3 показаны зависимости удельного сопротивления ρ от температуры пленок CSCO с $x = 0.15$ и 0.5 , осажденных на подложку NGO. Зависимости $\rho(T)$ соответствуют трехмерной прыжковой проводимости с показателем степени при обратной температуре $1/4$

$$\ln \rho(T) = \ln \rho_0 + (T_0/T)^{1/4}, \quad (1)$$

где $T_0 = 24/(\pi k_B N_F a^3)$ — экспериментальный параметр [12], N_F — плотность состояний на уровне Ферми,

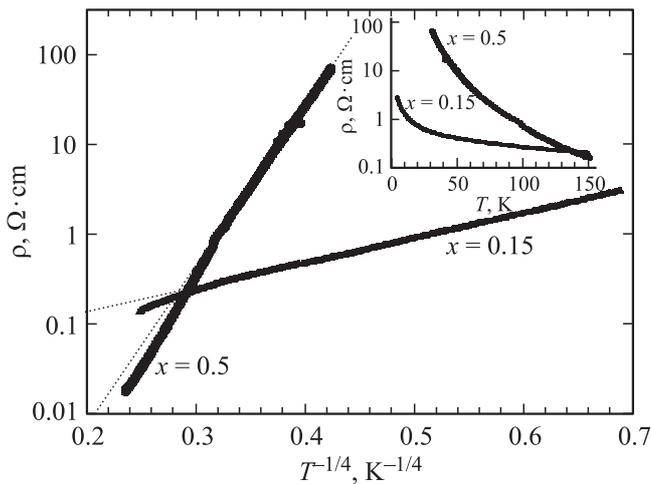


Рис. 3. Температурные зависимости удельного сопротивления пленок CSCO ($x = 0.5$ и $x = 0.15$). Пунктиром показаны экстраполяции $\rho \sim T^{1/4}$. На вставке те же зависимости приведены в линейном масштабе по температуре.

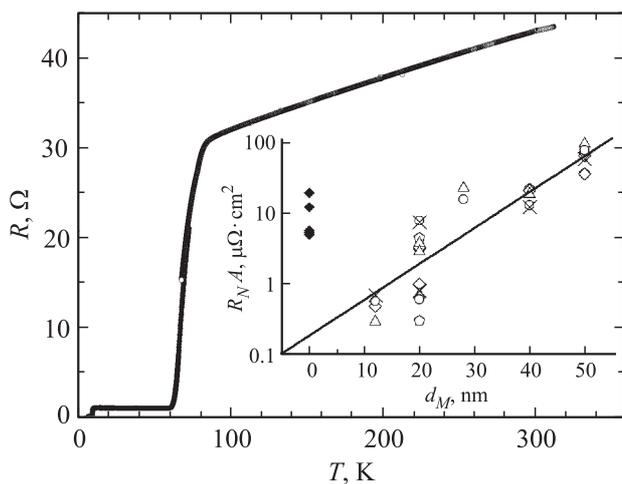


Рис. 4. Температурная зависимость сопротивления МГС с толщиной прослойки 20 nm и $L = 10 \mu\text{m}$. На вставке показана зависимость характерного сопротивления R_{NA} от толщины прослойки CSCO ($x = 0.5$) при $T = 4.2 \text{ K}$. Темные символы выделяют случай отсутствия магнитной прослойки. Крестики соответствуют МГС с $L = 10 \mu\text{m}$, кружки — с $L = 20 \mu\text{m}$, треугольники — с $L = 30 \mu\text{m}$, ромбы — с $L = 40 \mu\text{m}$, пентагоны — с $L = 50 \mu\text{m}$.

a — радиус локализации носителей, k_B — постоянная Больцмана. Для пленки CSCO с $x = 0.5$ получаем $T_0 = 3 \cdot 10^6 \text{ K}$, а удельное сопротивление ρ при низких температурах составляет $10^4 \Omega \cdot \text{cm}$. Следует отметить, что во всех исследованных пленках CSCO не было обнаружено металлического хода проводимости.

Сопротивление (R) МГС представляет собой сумму сопротивлений YBCO-электрода, M/YBCO-границы, M-прослойки, барьера между M-прослойкой и Au, электрода Nb/Au: $R_Y, R_{M/Y}, R_M, R_b, R_{\text{Nb/Au}}$ соответственно. На рис. 4 представлена температурная за-

висимость сопротивления $R(T)$ МГС с $d_M = 20 \text{ nm}$, $x = 0.5$, $L = 10 \mu\text{m}$. Удельное сопротивление металлического электрода Nb/Au при комнатной температуре составляет величину порядка $\rho_{\text{Nb/Au}} = 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$ при толщине $d_{\text{Nb/Au}} = 120 \text{ nm}$, поэтому при температурах ниже критической температуры YBCO-электрода ($T < T_C$) вклад сопротивления $R_{\text{Nb/Au}}$ мал. При температурах ниже критической температуры электрода Nb/Au $T_{C'} = 8-9 \text{ K}$ сопротивление $R_{\text{Nb/Au}} = 0$. При температурах $T > T_C$ зависимость $R(T)$ МГС аналогична зависимости $R_Y(T)$ YBCO-пленки, измеренной отдельно. Видно, что с уменьшением температуры после перехода YBCO в сверхпроводящее состояние (в приведенном случае при $T_C \cong 62 \text{ K}$) при $T_{C'} < T < T_C$ наблюдается участок $R(T)$ с практически неизменной величиной сопротивления $R = R_{M/Y} + R_M + R_b$. Принимая во внимание эпитаксиальный рост двух купратов CSCO/YBCO и близкие параметры их кристаллических решеток, полагаем, что сопротивление $R_{M/Y}$ мало по сравнению с R_b . Соответственно на светлоскопическом изображении (рис. 1) хорошо виден цветовой контраст границ CSCO/Au, в то время как граница YBCO/CSCO слабо отличима. На вставке к рис. 4 показана зависимость R_{NA} от толщины d_M для МГС, в которых наблюдается эффект Джозефсона (R_N — сопротивление в нормальном состоянии, измеренное при напряжении $V \sim 1.5 \text{ mV}$ ($T = 4.2 \text{ K}$), $A = L^2$ — площадь МГС). Из данных, представленных на рис. 3, видно, что удельное сопротивление ρ_M автономной CSCO пленки ($x = 0.5$) растет с понижением температуры. При температуре $T = 4.2 \text{ K}$ ожидаемый вклад в $R_{NA} = \rho_M d_M$ МГС от сопротивления пленки CSCO должен составить величину более $10^4 \mu\Omega \cdot \text{cm}^2$. Однако для МГС с относительно тонкой прослойкой $d_M < 20 \text{ nm}$ таких больших значений R_{NA} не наблюдалось. Более того, по сравнению с автономной пленкой CSCO сопротивление МГС в интервале $T_{C'} < T < T_C$ слабо зависит от температуры. Следовательно, основной вклад в сопротивление МГС при низких температурах и малых толщинах прослойки вносит граница CSCO/Au. Как видно из зависимости на вставке к рис. 4, характерное сопротивление R_{NA} образцов экспоненциально растет с увеличением d_M : $R_{NA} = A_R \exp(d_M/a_R)$. Подгоночные параметры были вычислены по методу наименьших квадратов и составили $a_R = 8.5 \text{ nm}$, $A_R = 0.184 \mu\Omega \cdot \text{cm}^2$. Полученные данные показывают, что при толщине прослойки $d_M < 40 \text{ nm}$ значения R_{NA} меньше, чем в структурах без M-прослойки ($d_M = 0$). Если бы основной вклад в сопротивление МГС был от сопротивления CSCO прослойки, то величина R_{NA} линейно увеличивалась бы с d_M , однако этого не наблюдается в эксперименте.

Дополнительную информацию об электрических свойствах прослойки и границы YBCO/Au можно извлечь из зависимости изменения емкости (C) МГС от толщины d_M . Вольт-амперные характеристики (ВАХ) джозефсоновских МГС при $T = 4.2 \text{ K}$ обнаруживали гистерезис (см. вставку к рис. 5). Емкость определялась из величины параметра МакКамбера $\beta_C = 4\pi e I_C R_N^2 C / h$, который

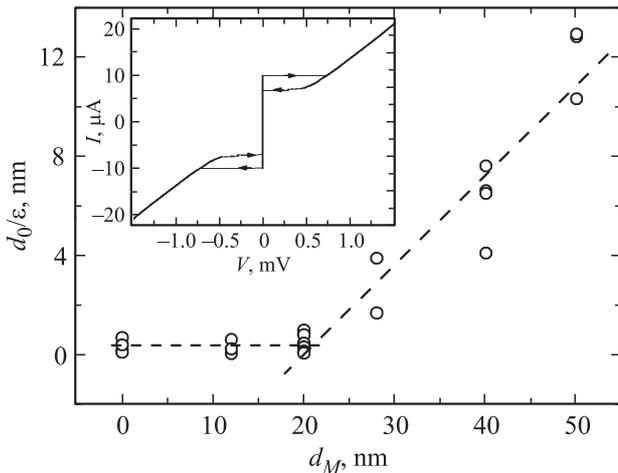


Рис. 5. Зависимость нормированной толщины барьера (d_0/ϵ) от толщины прослойки (d_M) $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$ для $x = 0.5$. Линиями показаны аппроксимационные зависимости. На вставке приведена ВАХ МГС с толщиной прослойки $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$ $d_M > 20$ нм. Стрелки соответствуют критическому току и току „возврата“.

однозначно связан с отношением тока возврата к критическому току ВАХ джозефсоновского перехода [13]. Для планарной геометрии МГС емкость $C = \epsilon_0 \epsilon A / d_0$, где ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, ϵ — диэлектрическая проницаемость барьерного слоя CSCO/Au, d_0 — толщина барьера. На рис. 5 показана зависимость d_0/ϵ от толщины d_M CSCO-прослойки. Видно, что при $d_M \leq 20$ нм изменение емкости незначительно и величина d_0/ϵ (для серий МГС с $d_M = 12$ и 20 нм) в пределах ошибки совпадает со случаем гетероструктур без прослойки: $d_0/\epsilon = 0.35 \pm 0.2$ нм.

Наличие гистерезиса в гетероструктурах без прослойки [14] свидетельствует об образовании барьерного слоя на границе YBCO/Au, что определяет величину емкости между электродами YBCO и NbAu. В случае же МГС барьерный слой образуется на границе CSCO/Au. Проанализируем, какую роль при этом играет слой CSCO. При $d_M > 20$ нм наблюдается рост d_0/ϵ на нескольких сериях МГС. По методу наименьших квадратов для участка роста получаем линейную зависимость $d_0/\epsilon = (0.36 \pm 0.05)[d_M - (20 \pm 4)]$ нм. Такая зависимость d_0/ϵ от d_M описывается моделью, по которой из-за влияния YBCO на границе CSCO/YBCO образуется проводящий слой, который не вносит вклада в емкость C . Над проводящим слоем CSCO (толщиной до 20 нм) располагается слабопроводящая часть CSCO-прослойки толщиной d_0 , определяющая емкость МГС. Отметим, что, хотя характерные сопротивления R_{NA} МГС и гетероструктур без M -прослойки различаются почти на порядок (см. вставку к рис. 4), величины d_0/ϵ практически равны при $d_M < 20$ нм. Ранее возникновение проводящего слоя (толщиной до 50 нм) наблюдалось для других купратов на границе $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{YBCO}$ [15]. Известно, что в тонких пленках

CSCO из-за нестехиометрии по кислороду может происходить перестройка электронной подсистемы [16–18]. Как показано в [16], несмотря на слабую диффузию катионов (1–2 атомных ячейки), изменение проводимости контактирующих материалов на границе раздела двух оксидов может быть вызвано электронной перестройкой, как это происходит на границе сильно коррелированного моттовского изолятора и изолятора со щелью в спектре возбуждений [16]. Зарядовая перестройка из-за уменьшения содержания кислорода в пленке в процессе ее роста [18] может привести к значительному изменению электронной подсистемы слоя CSCO и переходу в металлическое состояние. В пользу предположения, что основной вклад в сопротивление МГС вносит граница CSCO/Au, свидетельствуют различие проводимости и Ферми-скоростей контактирующих материалов, их разные кристаллографические параметры, а также наличие дефектов на границе.

При относительно больших $d_M > 70$ нм происходило резкое изменение $R(T)$ МГС (см. вставку к рис. 6). В этом случае вклад сопротивления барьера R_b уже невелик по сравнению с R_M , и сопротивление CSCO-пленки дает экспоненциальный (с увеличением d_M) вклад в R_{NA} .

В интервале температур $T = 70$ –43 К наблюдалась зависимость, которая описывается (1), что характерно для прыжковой проводимости. Величина подгоночного параметра $T_0 = 7 \cdot 10^5$ К оказалась в несколько раз меньше, чем для автономной пленки CSCO. Если длина прыжка $2r \cong a(T_0/T)^{1/4}$ сравнивается с толщиной барьера d_0 , то может произойти смена механизмов проводимости МГС, например переход от прыжковой

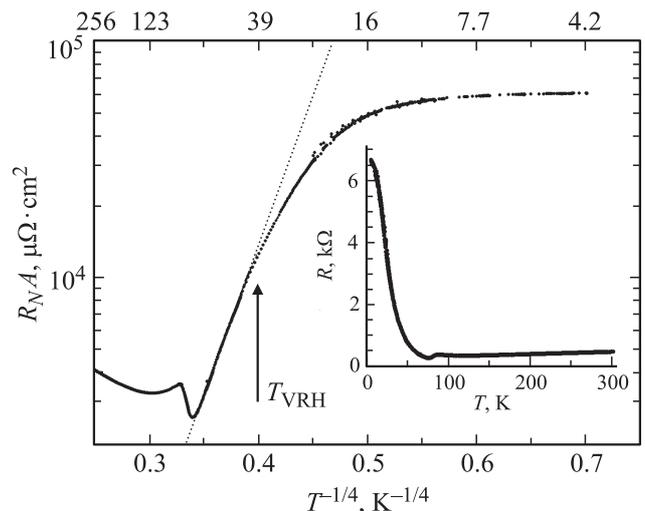


Рис. 6. Температурная зависимость характерного сопротивления МГС ($x = 0.5$, $d_M = 80$ нм, $L = 30 \mu\text{m}$). Стрелкой показана температура T_{VRH} , ниже которой находится интервал температур, соответствующий механизму проводимости (1) (пунктирная линия), $T_0 = 7 \cdot 10^5$ К. На вставке показана температурная зависимость (в линейном масштабе) сопротивления той же МГС.

проводимости к туннелированию через локализованные состояния [12,19]. На рис. 6 эта температура, при которой длина прыжка $2r$ становится равной d_0 и происходит смена механизмов проводимости, обозначена как T_{VRH} . Из данных, представленных на рис. 6, имеем $T_{VRH} = 43$ К, и для $d_M = 80$ nm, учитывая зависимость d_0/ε от d_M (рис. 5), получаем $d_0 = 60$ nm и радиус локализации $a \cong 5$ nm. Используя значения T_0 и a из соотношения $T_0 = 24/(\pi k_B N_F a^3)$, определяем плотность состояний $N_F = 10^{18} \text{eV}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$, что существенно ниже величины N_F , наблюдаемой в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ [15].

4. Заключение

Таким образом, в результате структурных, рентгеновских и электрофизических исследований гибридных мезагетероструктур на основе купратного сверхпроводника (YBCO) с прослойкой из купратного антиферромагнетика (CSCO) установлено, что при эпитаксиальном росте двух купратов YBCO и CSCO образуется граница раздела с высокой прозрачностью. В автономном случае, когда пленка CSCO нанесена непосредственно на подложку, материал прослойки является моттовским изолятором, имеющим прыжковую проводимость, однако на границе YBCO/CSCO происходит допирование пленки CSCO носителями на глубину порядка 20 nm до состояния, близкого к металлическому, что приводит к уменьшению удельного сопротивления МГС с CSCO-прослойки по сравнению с удельным сопротивлением автономной CSCO-пленки на два порядка. При толщинах прослойки выше 70 nm сопротивление МГС в определенном диапазоне температур имеет зависимость, типичную для прыжковой проводимости, по которой удается оценить характерную температуру прыжковой проводимости и плотность состояний на уровне Ферми для прослойки.

Авторы благодарны И.В. Борисенко, В.В. Демидову, А.В. Зайцеву, А. Калабухову, И.М. Котелянскому, А.М. Петржику за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] A. Buzdin. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 935 (2005).
- [2] F.S. Bergeret, A.F. Volkov, K.B. Efetov. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005).
- [3] V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.Y. Rusanov, A.V. Veretennikov, A.A. Golubov, J. Aarts. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2427 (2001).
- [4] M. Flokstra, J. Aarts. *Phys. Rev. B* **80**, 144 513 (2009).
- [5] C. Bell, E.J. Tarte, G. Burnell, C.W. Leung, D.-J. Kang, M.G. Blamire. *Phys. Rev. B* **68**, 144 517 (2003).
- [6] A. Gozar, G. Logvenov, L.F. Kourkoutis, A.T. Bollinger, L.A. Giannuzzi, D. Muller, I. Bozovic. *Nature* **455**, 782 (2008).
- [7] А.В. Зайцев, Г.А. Овсянников, К.И. Константиан, Ю.В. Кислинский, А.В. Шадрин, И.В. Борисенко, Ф.В. Комиссинский. *ЖЭТФ* **137**, 380 (2010).
- [8] Г.А. Овсянников, К.И. Константиан. *ФНТ* **38**, 423 (2012).
- [9] Г.А. Овсянников, С.А. Денисюк, И.К. Бдикин, ФТТ **47**, 417 (2005).
- [10] Ю.В. Кислинский, К.И. Константиан, Г.А. Овсянников, Ф.В. Комиссинский, И.В. Борисенко, А.В. Шадрин. *ЖЭТФ* **133**, 914 (2008).
- [11] G.A. Ovsyannikov, K.Y. Constantinian, Yu.V. Kislinski, A.V. Shadrin, A.V. Zaitsev, A.M. Petrzhik, V.V. Demidov, I.V. Borisenko, A.V. Kalabukhov, D. Winkler. *Supercond. Sci. Technol.* **24**, 055 012 (2011).
- [12] Y. Xu, D. Ephron, M.R. Beasley. *Phys. Rev. B* **52**, 2843 (1995).
- [13] H.H. Zappe. *J. Appl. Phys.* **44**, 1371 (1973).
- [14] P.V. Komissinskiy, G.A. Ovsyannikov, K.Y. Constantinian, Y.V. Kislinski, I.V. Borisenko, I.I. Soloviev, V.K. Kornev, E. Goldobin, D. Winkler. *Phys. Rev. B* **78**, 024 501 (2008).
- [15] M.I. Faley, U. Poppe, C.L. Jia, K. Urban. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **7**, 2514 (1997).
- [16] S. Okamoto, A. Millis. *Nature* **428**, 630 (2004).
- [17] J.C. Nie, P. Badica, M. Hirai, J.Y. Kodama, A. Crisan, A. Sundaresan, Y. Tanaka, H. Ihara. *Physica C* **388–389**, 441 (2003).
- [18] S.J.L. Billinge, P.K. Davies, T. Egami, C.R.A. Catlow. *Phys. Rev. B* **43**, 10 340 (1991).
- [19] U. Kabasawa, Y. Tarutani, M. Okamoto, T. Fukazawa, A. Tsukamoto, M. Hiratani, K. Takagi. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1700 (1993).