

## Транспортные характеристики композита сверхпроводник–ферромагнетик

В.В. Кононенко, В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, В.Н. Варюхин

*Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины*  
*ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина*  
E-mail: vkononenko@gmail.com;  
tarenko@rambler.ru

Статья поступила в редакцию 23 июля 2013 г., после переработки 14 октября 2013 г.

Исследованы транспортные характеристики композита, состоящего из микрочастиц сверхпроводника  $\text{MgB}_2$  и нанопорошка манганита  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  (LSMO). Найдено, что при содержании более десяти объемных процентов ферромагнетика наблюдается резкий рост удельного сопротивления композита. Это вызвано нарушением перколяционных путей по микрочастицам диборида магния, что приводит к образованию сетки контактов сверхпроводник–ферромагнетик–сверхпроводник. В результате наблюдается значительное уширение сверхпроводящего перехода композита при сохранении его ферромагнитных свойств. Полученный результат показывает возможность прохождения куперовских пар через половинный металл толщиной  $d > 10$  нм с высокой (порядка 100%) спиновой поляризацией носителей.

Досліджено транспортні характеристики композиту, який складається з мікрочастинок надпровідника  $\text{MgB}_2$  та нанопорошку манганіта  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  (LSMO). Знайдено, що при зміні більше десяти об'ємних відсотків ферромагнетика спостерігається різке зростання питомого опору композиту. Це викликано порушенням перколяційних шляхів по мікрочастинам диборида магнію, що призводить до утворення сітки контактів надпровідник–ферромагнетик–надпровідник. В результаті спостерігається значне розширення надпровідного переходу композиту при збереженні його ферромагнітних властивостей. Отриманий результат показує можливість проходження куперівських пар крізь половинний метал завтовшки  $d > 10$  нм з високою (близько 100%) спіноювою поляризацією носіїв.

PACS: **74.40.-n** Флуктуационные явления;  
**74.45.+c** Эффекты близости; SN и SNS контакты;  
**72.10.-d** Теория электронного транспорта; механизмы рассеивания.

Ключевые слова: композит, перколяционный кластер, спин-активированная граница, критическая температура, сверхпроводящий переход.

### Введение

Интерес к сверхпроводящему эффекту близости в контактах сверхпроводник–металл инициирован возможностями новых технических приложений, в частности в элементах нанoeлектроники [1–3]. Наведенную сверхпроводимость можно осуществить в композитах при непосредственном контакте со сверхпроводником различных материалов [4,5]. В результате получают новые соединения с уникальными характеристиками, которые для отдельных компонентов композита не реализуются [6,7]. Одной из таких комбинаций могут быть композиты магнетика со сверхпроводником. Так, методом сканирующей туннельной спектроскопии было показано существование эффекта близости в гиб-

ридных пленочных структурах LSMO–YBCO [8–11]. Реализация эффекта близости и когерентного состояния манганита LSMO, находящегося в ферромагнитном состоянии в контактах LSMO–сверхпроводник (Pb, Nb,  $\text{MgB}_2$ ), обнаружена в экспериментах по андреевскому отражению [12–14]. Кроме спектроскопического проявления эффекта близости в контактах сверхпроводника с манганитом имеются многочисленные исследования по протеканию сверхпроводящего тока в гибридных пленочных структурах типа сверхпроводник–манганит–сверхпроводник [8–11,14]. Следует отметить, что эффект близости в манганитах наблюдался при разной симметрии параметра порядка контактирующего сверхпроводника. Так, сверхпроводники Pb, Nb,  $\text{MgB}_2$ , которые использовались в экспериментах

[12,13], имели  $s$ -волновой параметр порядка энергетической щели, а купрат YBCO [8–11,14] —  $d$ -волновую симметрию параметра порядка. Поэтому вопрос о том, какой механизм переноса куперовских пар через половинный металл остается открытым и является предметом интенсивных исследований.

В настоящей работе изучается возможность протекания сверхпроводящего тока в композитах сверхпроводник–манганит LSMO (температура Кюри 380 К). В ферромагнитной фазе манганит LSMO представляет собой так называемый «половинный металл», в котором на уровне Ферми присутствуют носители только с одним направлением спина [15,16]. Для таких соединений, имеющих 100% поляризацию носителей, нельзя ожидать проявления классического  $s$ -волнового эффекта близости по теории FFLO [17–19], так как нет возможности для образования куперовских пар в объеме манганита с противоположным направлением спина. Следует отметить, что микроконтактная андреевская спектроскопия показывает на поверхности манганита LSMO и LCMO 80–85% поляризацию носителей при 100% поляризации в объеме [20]. Согласно работам [4,21], такой поверхностный слой может играть роль спин-активированной поверхности, способствующей трансформации куперовских пар с  $s$ -волновой симметрией параметра порядка в пары с  $p$ -волновой симметрией. Однако для окончательного решения этого вопроса необходимы дополнительные исследования. В настоящей работе удалось реализовать ситуацию, когда композиты LSMO–MgB<sub>2</sub> проявляли характеристики как сверхпроводника, так и свойства типичного ферромагнетика.

Как известно, электротранспортные характеристики композитов зависят не только от свойств составляющих его элементов, но и от структуры возникающего в композите перколяционного кластера, особенно в случае сильно отличающихся по проводимости компонентов, составляющих композит [22]. Если бесконечный протекательный кластер по высокопроводящей составляющей композита разорван, то транспортные характеристики композита будет определять высокоомная фаза. В композите LSMO–MgB<sub>2</sub> высокоомной фазой является LSMO, а низкоомной — MgB<sub>2</sub>. Это позволило, варьируя концентрацию  $p$  для LSMO, определить порог  $p_c$ , выше которого транспортные характеристики композита определяются протеканием тока по цепочкам La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>–MgB<sub>2</sub>–La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>–MgB<sub>2</sub>. В таком случае наблюдение критического тока для образцов композита при  $p > p_c$  свидетельствует о проявлении эффекта близости в манганите LSMO.

### Эксперимент

Исследованы характеристики композитов на основе сверхпроводника MgB<sub>2</sub> и манганита La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub> в ферромагнитной фазе с различным объемным содержа-

нием компонентов. Отличительной особенностью приготовленных композитов являлась существенная разница в размерах частиц MgB<sub>2</sub> и La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>. По данным сканирующей электронной микроскопии размер частиц MgB<sub>2</sub>  $d$  составлял 5–10 мкм, а у La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub> (нанопорошок) средний размер частиц  $d = 8–10$  нм. Выбор MgB<sub>2</sub> в качестве сверхпроводящей матрицы обусловлен тем, что образцы спрессованного порошка MgB<sub>2</sub> имеют относительно малое удельное сопротивление  $\rho = 4 \cdot 10^{-4}$  Ом·см и хорошо выраженный «металлический характер» температурной зависимости сопротивления, что говорит о малом влиянии межзеренных границ на проводимость диборида магния. Кроме того, критическая температура сверхпроводящего перехода MgB<sub>2</sub> составляет  $T_c = 39$  К [23]. Это позволяет исследовать характеристики композита в широком температурном интервале.

Для получения однородного распределения компонентов смесь порошков нагревали выше температуры Кюри манганита ( $\approx 380$  К) и перемешивали в спирте. После сушки и дополнительного механического перемешивания из полученной смеси под давлением  $P = 40–60$  кбар прессовали пластинки с размерами  $S = 0,2 \times 1 \times 10$  мм. Токковые и потенциальные контакты приготавливали нанесением на пластину порошка коллоидного серебра в область предполагаемого контакта перед прессованием образца.

### Результаты

Температурные зависимости сопротивления  $R$  снимали при величинах измерительных токов, не влияющих на  $R(T)$ -переход. Переходное сопротивление контактных площадок составляло  $\sim 10^{-3}$  Ом·мм<sup>2</sup> и практически не зависело от состава композита. В качестве критерия однородного распределения компонентов по объему образца было принято равенство сопротивлений различных пластинок одного состава, а также линейная зависимость сопротивления от длины участка пластинки, полученная с помощью шести потенциальных контактов. Образцы не подвергались спеканию во избежание взаимодиффузии и химических реакций компонентов.

На вставке рис. 1 представлена зависимость удельного сопротивления композита от объемной концентрации  $p$  порошка LSMO. Резкое изменение сопротивления композита наблюдается уже при концентрации нанопорошка LSMO  $> 10\%$ , что противоречит обычной перколяционной модели [22], согласно которой в двухкомпонентной 3D среде протекание по высокопроводящей фазе (здесь MgB<sub>2</sub>) должно прерываться при  $p > 80\%$ . Наблюдаемое отклонение от стандартной ситуации [22] объясняется существенным различием размеров частиц MgB<sub>2</sub> (5–10 мкм) и LSMO ( $\sim 10$  нм). В таком случае, в результате перемешивания и во время прессования образца при высоких давлениях происходит обволакивание наночастицами манганита микрокристаллов дибо-

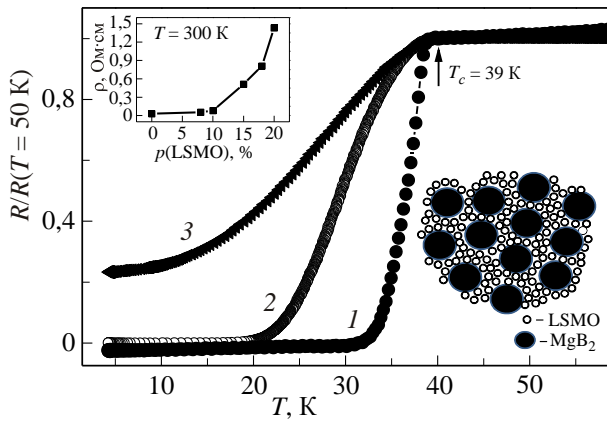


Рис. 1. Температурные зависимости сопротивлений, нормированных на  $R(T = 50 \text{ K})$ ,  $\text{MgB}_2$  (1),  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$  (10% LSMO) (2) и  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$  (26% LSMO) (3). На вставках показаны зависимость удельного сопротивления композита от объемного содержания LSMO и структура композита (схема).

рида магния (вставка рис. 1). Таким образом, каждая из микрочастиц  $\text{MgB}_2$  покрывается оболочкой из наночастиц LSMO. Поэтому между частицами  $\text{MgB}_2$  уже при  $p > 10\%$  возникает прослойка из наночастиц LSMO. В результате при  $p > 10\%$  прямой контакт гранул  $\text{MgB}_2$  исключается, а сопротивление композита определяется протеканием тока по цепочкам  $\text{LSMO-MgB}_2\text{-LSMO-MgB}_2$  и т.д., что и приводит к росту его сопротивления и значительному уширению кривой сверхпроводящего  $R(T)$ -перехода (рис. 1).

В пользу этого предположения говорит измерение плотности образцов после прессования. Так, плотность пластинок  $\text{MgB}_2$ , полученная при давлениях 40–60 кбар, составляла  $(72 \pm 3)\%$  от плотности монокристалла  $\text{MgB}_2$ . Плотность спрессованного нанопорошка LSMO при тех же давлениях была всего  $(68 \pm 3)\%$ , а плотность композита  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$  (26%) составила  $(96 \pm 3)\%$  расчетной плотности. Столь высокая плотность композита указывает на то, что нанопорошок LSMO в условиях высоких одноосных давлений «растекался» по объему образца, заполняя поры вокруг больших гранул  $\text{MgB}_2$ .

Таким образом, композит при низких температурах представлял собой механическую смесь сверхпроводника и магнетика, что нашло свое отражение в зависимости магнитного момента образца от магнитного поля. На рис. 2 приведены зависимости  $M(H)$  для спрессованного порошка  $\text{MgB}_2$  и композита  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$  (10 объемных процентов LSMO). Кривая на вставке рис. 2(а) представляет собой характерную зависимость  $M(H)$  для обычного сверхпроводника второго рода. В отличие от этого зависимость на рис. 2 (главная панель) содержит вклад от намагниченности LSMO и представляет собой сумму диамагнитной и ферромагнитной составляющих композита  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$ . На вставке рис. 2(б) представлена зависимость намагниченности композита от магнитного поля выше температуры сверхпроводящего перехода  $\text{MgB}_2$ . Видно, что она соответствует зависимости  $M(H)$  для магнитного материала. Первое измерение  $M(H)$  было выполнено после охлаждения образца в нулевом

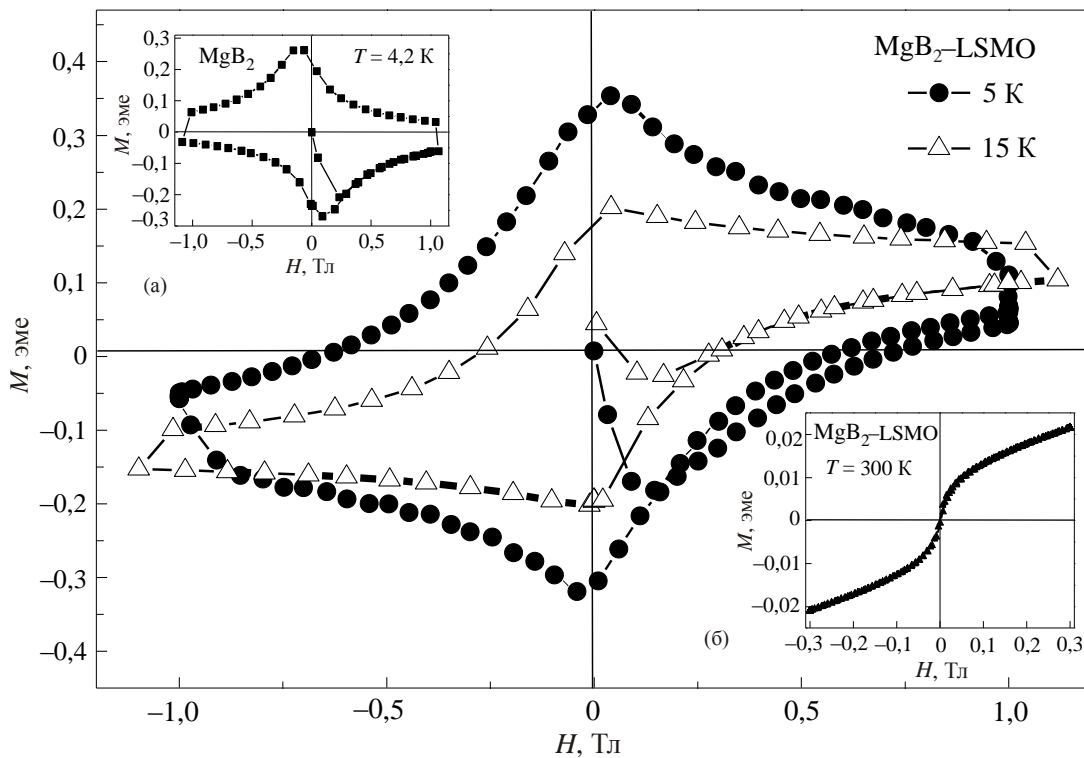


Рис. 2. Зависимости намагниченности образцов  $\text{MgB}_2$  и  $\text{MgB}_2\text{-LSMO}$  (10%) от магнитного поля при разных температурах.

магнитном поле от 300 до 4,2 К. После этого включали магнитное поле и проводили запись  $M(H)$ . Далее образец отогревали до температуры 50 К, превышающей  $T_c$   $MgB_2$ , и охлаждали до температуры записи кривых.

Исследование температурной зависимости сопротивления образцов  $MgB_2$ –LSMO показывает, что начало резистивного перехода для всех объемных концентраций LSMO в  $MgB_2$  совпадает с началом  $R(T)$ -перехода для образцов чистого  $MgB_2$ . Однако уже при более 10 объемных процентах манганита происходило значительное уширение сверхпроводящего перехода композита (рис. 1), а при содержании манганита более 25% сопротивление композита оставалось конечным до температуры  $T = 4,2$  К. Наблюдаемое уширение  $R(T)$ -перехода в композите  $MgB_2$ –LSMO при  $p > 10\%$  можно объяснить образованием слабых связей в цепочках  $MgB_2$ –LSMO– $MgB_2$ . Хотя при низких температурах манганит LSMO находится в ферромагнитной фазе, согласно работам [4,5,8–11] через тонкие слои ферромагнетика еще возможно протекание сверхтока. Для проверки этой возможности исследовано влияние больших магнитных полей на вид  $R(T)$ -перехода образцов  $MgB_2$  и композита. Как видно (рис. 3(а)–(в)), магнитные поля  $H \leq 5$  Тл приводят к сдвигу  $R(T)$ -зависимости для  $MgB_2$  и композита при  $p \sim 10\%$  (LSMO) при незначительном ее уширении. При больших кон-

центрациях LSMO, кроме сдвига  $R(T)$ -зависимости, наблюдается заметное уширение резистивного перехода, что указывает на участие частиц LSMO в токовом пути перколяционного кластера. На рис. 3(г) приведены зависимости  $T_c(H)$ , измеренные по середине  $R(T)$ -перехода, что более соответствует критической температуре композита. Таким методом находят критическое поле  $H_{c2}$  для классических сверхпроводников второго рода, а также для гетероструктур [24]. Как видим, для спрессованного порошка  $MgB_2$  величина  $H_{c2}(0) \approx 11$  Тл, а для композита  $H_{c2}(0) \approx 8,5$  Тл. Как видно на рис. 3(г), даже для композита в больших магнитных полях сохраняется функциональная извращенность  $T_c(H)$ , близкая к сверхпроводнику второго рода  $MgB_2$ .

Для концентраций включений, превышающих 10% LSMO, наблюдается разрыв перколяционного кластера по сверхпроводящим гранулам  $MgB_2$  (вставка рис. 1), при этом гранулы разделены как минимум несколькими порошинками LSMO ( $d = 10$  нм) (схема на вставке рис 1). Вольт-амперные характеристики (ВАХ) таких композитов  $MgB_2$ –LSMO (10% и 26% LSMO соответственно) представлены на вставке рис. 4. Как видим, при концентрации LSMO 10% еще наблюдается критический ток порядка 10 мА, что много меньше критического тока сверхпроводника  $MgB_2$  ( $I_c \approx 400$  мА). С дальнейшим увеличением концентрации LSMO

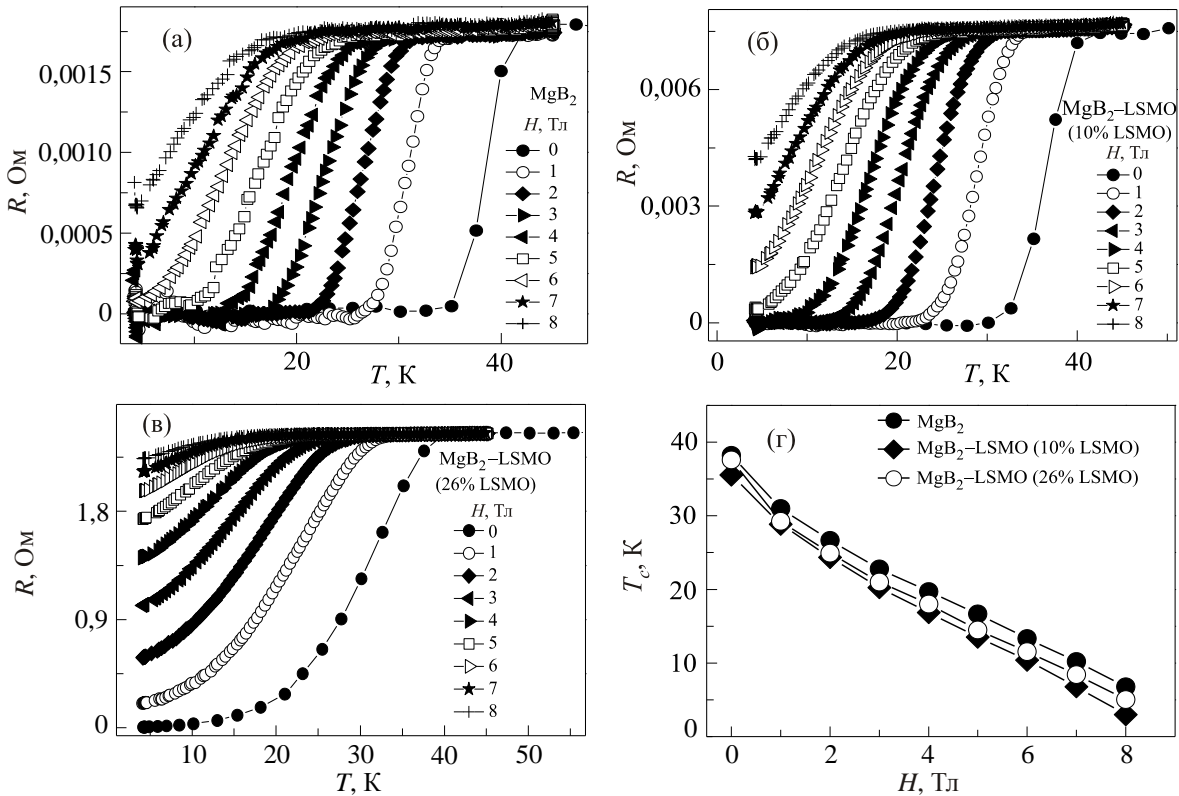


Рис. 3. Влияние больших магнитных полей на зависимость температурного сопротивления образцов  $MgB_2$  (а),  $MgB_2$ –LSMO (10% LSMO) (б),  $MgB_2$ –LSMO (26% LSMO) (в); зависимость критической температуры от магнитного поля для образцов  $MgB_2$ ,  $MgB_2$ –LSMO (10% LSMO),  $MgB_2$ –LSMO (26% LSMO) (г).

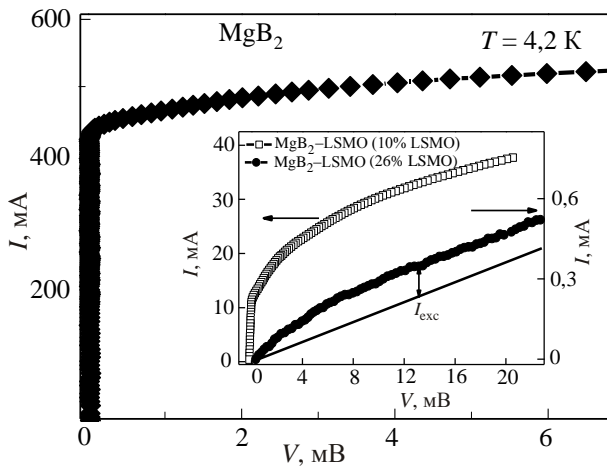


Рис. 4. Вольт-амперная характеристика образца  $\text{MgB}_2$ . На вставке вольт-амперные характеристики композитов  $\text{MgB}_2$ –LSMO с 10% и с 26% содержанием LSMO.

(26% LSMO) ВАХ все более принимает форму, характерную для среды слабосвязанных контактов с избыточным током [25], т.е. наблюдается превышение тока в сверхпроводящем состоянии  $\text{MgB}_2$  над током в нормальном состоянии, что говорит о прохождении куперовских пар через половинный металл. Напротив, для образцов  $\text{MgB}_2$  ВАХ имеет вид, характерный для сверхпроводника второго рода [26] (т.е. срывная характеристика без избыточного тока).

### Заключение

Проведенные эксперименты демонстрируют, что при некоторых условиях бездиссипативный сверхпроводящий ток может протекать в объемных структурах сверхпроводник–половинный металл LSMO. Парадоксальным является то обстоятельство, что в данном случае на поверхности Ферми ферромагнетика LSMO присутствуют электроны только с одним направлением спина. Известно [17], что при контакте сверхпроводник–классический ферромагнетик куперовские пары проникают в ферромагнетик на глубину  $\xi_F \sim (\hbar v_F)/E_{\text{exc}}$  (чистый предел). Здесь  $v_F$  — скорость на поверхности Ферми ферромагнетика,  $E_{\text{exc}}$  — его обменная энергия. В обычных классических ферромагнетиках Fe, Ni, Co величина  $\xi_F \sim 1$  нм. В половинном металле LSMO, как ожидается, из-за большой энергии Хунда,  $\sim 2$  эВ, соответствующее значение  $\xi_F$  будет еще меньше. Поэтому в большинстве работ по слоистым структурам LSMO–YBCO предполагается, что наблюдаемые эффекты сверхпроводящей близости не связаны с эффектом FFLO [1,4,21]. С другой стороны протекание сверхтока через прослойки LSMO толщиной  $d \gg \xi_F$  возможно, если интерфейс между LSMO– $\text{MgB}_2$  представляет собой спин-активированную границу [1,4,5,27,28]. В таком случае, как обсуждалось в работах [7,29–30], может

реализоваться трансформация куперовских пар с  $s$ -волновой симметрией параметра порядка (в  $\text{MgB}_2$ ) в пары с  $p$ -волновой симметрией (в LSMO). Эти пары будут проходить через половинный металл так, как если бы это был обычный парамагнитный металл.

1. M. Eschrig, *Phys. Today* **64**, 43 (2011).
2. Xiao-Liang Qi and Shou-Cheng Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1057 (2011).
3. M.Z. Hasan and C.L. Kane, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045 (2010).
4. F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005).
5. A.I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 935 (2005).
6. I.F. Lyuksyutov and V.L. Pokrovsky, *Adv. Phys.* **54**, 67 (2005).
7. M. Eschrig, T. Löfwander, T. Champel, J.C. Cuevas, J. Kopu, and Gerd Schön, *J. Low Temp. Phys.* **147**, 457 (2007).
8. Z.L. Zhang, U. Kaiser, S. Soltan, H-U. Habermeier, and B. Keimer, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 242505 (2009).
9. G. Koren and T. Kirzhner, *Phys. Rev. B* **84**, 134517 (2011).
10. D.K. Satapathy, M.A. Uribe-Laverde, I. Marozau, V.K. Malik, S. Das, Th. Wagner, C. Marcelot, J. Stahn, S. Brück, A. Rühm, S. Macke, T. Tietze, E. Goering, A. Frañó, J.-H. Kim, M. Wu, E. Benckiser, B. Keimer, A. Devishvili, B.P. Toperverg, M. Merz, P. Nagel, S. Schuppler, and C. Bernhard, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 197201 (2012).
11. Y. Kalcheim, T. Kirzhner, G. Koren, and O. Millo, *Phys. Rev. B* **83**, 064510 (2011).
12. V.N. Krivoruchko and V.Yu. Tarenkov, *Phys. Rev. B* **86**, 104502 (2012).
13. V.N. Krivoruchko, A.I. D'yachenko, and V.Yu. Tarenkov, *Fiz. Nizk. Temp.* **39**, 276 (2013) [*Low Temp. Phys.* **39**, 211 (2013)].
14. G. Koren and T. Kirzhner, *Phys. Rev. B* **84**, 134517 (2011).
15. В. М. Локтев, Ю. Г. Погорелов, *ФНТ* **26**, 231 (2000) [*Low Temp. Phys.* **26**, 171 (2000)].
16. M.B. Salamon and M. Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
17. A.I. Larkin and Yu.N. Ovchinnikov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 1136 (1964) [*Sov. Phys. JETP* **20**, 762 (1965)].
18. P. Fulde and R.A. Ferrell, *Phys. Rev.* **135**, A550 (1964).
19. V.I. Zdravkov, J. Kehrle, G. Obermeier, A. Ullrich, S. Gsell, D. Lenk, C. Müller, R. Morari, A.S. Sidorenko, V.V. Ryazanov, L.R. Tagirov, R. Tidecks, and S. Horn, *Supercond. Sci. Technol.* **24**, 095004 (2011).
20. А.И. Дьяченко, В.А. Дьяченко, В.Ю. Таренков, В.Н. Криворучко, *ФТТ* **48**, 407 (2006).
21. M. Eschrig, J. Kopu, J.C. Cuevas, and Gerd Schön, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 137003 (2003).
22. D. Stauffer and A. Aharony, *Introduction to Percolation Theory*, 2nd Edition, Taylor and Francis, London (1992).
23. C. Buzea, and T. Yamashita, *Supercond. Sci. Technol.* **14**, 115 (2001).
24. E. Antropov, M.S. Kalenkov, J. Kehrle, V.I. Zdravkov, R. Morari, A. Socrovisciuc, D. Lenk, S. Horn, L.R. Tagirov, A.D. Zaikin, A.S. Sidorenko, Horst Hahn, and R Tidecks, *Supercond. Sci. Technol.* **26**, 085003 (2013).

25. В.М. Свистунов, А.И. Дьяченко, В.Ю. Таренков, *Письма в ЖЭТФ* **33**, 274 (1981).
26. Р.Г. Минц, А.Л. Рахманов. *Неустойчивости в сверхпроводниках*, Наука, Москва (1984).
27. T. Löfwander, R. Grein, and M. Eschrig, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 207001 (2010).
28. M. Alidoust and J. Linder, *Phys. Rev. B* **82**, 224504 (2010).
29. Y. Wang, W.P. Pratt, Jr., and N.O. Birge, *Phys. Rev. B* **85**, 214522 (2012).
30. M.S. Anwar, F. Czeszka, M. Hesselbezh, M. Porcu, and J. Aarts, *Phys. Rev. B* **82**, 100501 (2010).

The transport characteristics of a superconductor–ferromagnet composite

V.V. Kononenko, V.Yu. Tarenkov, A.I. D'yachenko, and V.N. Varyuhin

The transport characteristics of a composite that consists of superconductor MgB<sub>2</sub> and nanopowder manganese La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) are investigated. It is

found that when the ferromagnet content is more than ten percent by volume increases sharply the composite resistivity. This is caused by a breach of percolation paths for microparticles of magnesium diboride, resulting in the formation of a grid of the superconductor–ferromagnet–superconductor contacts and a significant broadening of the superconducting transition of the composite compared to a pure MgB<sub>2</sub> sample. The data obtained show that the passage of the Cooper pairs through a ferromagnet half metal (thickness  $d > 10$  nm) with a high (about 100%) spin polarization of the carriers is quite possible.

PACS: **74.40.–n** Fluctuation phenomena;  
**74.45.+c** Proximity effects; SN and SNS junctions;  
**72.10.–d** Theory of electronic transport; scattering mechanisms.

Keywords: composite, the percolation cluster, the spin-activated interface, the critical temperature, the superconducting transition.