

# МАГНИТНЫЙ ЭФФЕКТ БЛИЗОСТИ НА ГРАНИЦЕ КУПРАТНОГО СВЕРХПРОВОДНИКА С ОКСИДНЫМ СПИНОВЫМ КЛАПАНОМ

Г. А. Овсянников<sup>a,b\*</sup>, В. В. Демидов<sup>a</sup>, Ю. Н. Хайдуков<sup>c,d</sup>, Л. Мустафа<sup>c</sup>,  
К. И. Константиныч<sup>a</sup>, А. В. Калабухов<sup>b,d</sup>, Д. Винклер<sup>b</sup>

<sup>a</sup> *Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова Российской академии наук  
125009, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Chalmers University of Technology  
SE-41296, Gothenburg, Sweden*

<sup>c</sup> *Max-Planck Institute for Solid State Research  
D-70569, Stuttgart, Germany*

<sup>d</sup> *Научно-исследовательский институт ядерной физики,  
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 октября 2015 г.

Гетероструктура, состоящая из купратного сверхпроводника  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  и спинового клапана рутенат/манганит ( $\text{SrRuO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ), была исследована методами СКВИД-магнитометрии, ферромагнитного резонанса и нейтронной рефлектометрии. Было показано, что из-за влияния магнитного эффекта близости в сверхпроводящей части гетероструктуры возбуждается магнитный момент, а в композитной ферромагнитной прослойке происходит подавление магнитного момента. Величина намагниченности, возникающей в сверхпроводнике, по порядку величины совпадает как с расчетами с учетом наведенного магнитного момента атомов Cu из-за орбитальной реконструкции на границе сверхпроводника с ферромагнетиком, так и в модели, учитывающей изменение плотности состояний на расстоянии порядка длины когерентности в сверхпроводнике. Полученная из эксперимента величина характерной длины проникновения магнитного момента в сверхпроводник существенно превышает длину когерентности купратного сверхпроводника, что указывает на доминирование механизма наведенного магнитного момента атомов Cu.

DOI: 10.7868/S0044451016040143

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Проникновение ферромагнитных корреляций в сверхпроводник (S) и сверхпроводящих корреляций в ферромагнетик (F) при наличии контакта между ними в настоящее время привлекает повышенный интерес [1, 2]. В случае контакта с нормальным металлом ферромагнитные корреляции из ферромагнетика проникают в нормальный металл на малое (порядка межатомного) расстояние из-за локальности обменного взаимодействия (см., например, [3]). В работах [4–6] было показано теорети-

чески, что в сверхпроводнике на границе с ферромагнетиком под действием обменного поля происходит изменение плотности состояний из-за ее отличия для электронов со спином вверх и электронов со спином вниз. Позднее также теоретически было показано, что знак и величина магнитного момента, возникающего в сверхпроводнике, сильно зависят от параметров S/F-границы, таких как прозрачность границы, наличие примесей и толщины слоев [7–9]. Влияние параметров спин-активного барьера на S/F-границе на магнитный момент в сверхпроводнике было рассмотрено теоретически в [10], а возникновение аномального магнитного отклика в нормальном металле в контакте со спиновым клапаном S/F<sub>1</sub>F<sub>2</sub>, генерирующим триплетные сверхпроводящие кор-

\* E-mail: gena@hitech.cplire.ru

реляции, приведено в работе [11]. Экспериментальное исследование магнитного эффекта близости в S/F-структурах на основе металлических ферромагнетиков и обычных сверхпроводников, проведенное разнообразными методами (ферромагнитный резонанс, мюонное рассеяние, нейтронное рассеяние и др.) [12–15], в целом подтвердило выводы теории.

Из структур на основе купратных сверхпроводников, имеющих малую длину когерентности и анизотропную сверхпроводящую щель, исследовались, в основном, сверхрешетки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (YBCO/LCMO), которые выявили наличие магнитного момента в сверхпроводнике [16–20]. На границе купратного сверхпроводника и магнитного материала с помощью рентгеновского дихроизма [18–20] был обнаружен индуцированный магнитный момент атома Cu, ориентированный антипараллельно атомам Mn. Было показано, что атомы Cu и Mn связаны через границу за счет ковалентной химической связи, приводящей к сильной гибридизации и орбитальной реконструкции. Заметим, что характерные длины орбитальной реконструкции значительно превышают межатомные расстояния и равны 8–10 нм [21, 22].

Теоретически возникновение магнитного момента в купратном сверхпроводнике, граничащем с манганитом, было рассмотрено в работе [22], где было показано, что в результате антиферромагнитного взаимодействия спинов  $x^2-y^2$ -электронов Cu с  $e_g$ -электронами Mn индуцируется отрицательная спиновая поляризация в купратном сверхпроводнике. Влияние такого процесса на свойства сверхпроводника значительно сильнее, чем инжекция спин-поляризованных электронов ферромагнетика. Важным параметром для анализа происходящих процессов является глубина проникновения магнитного момента в сверхпроводник, которая не ограничивается изменением положения атомов на соседних слоях границы, а определяется 8–10 атомными слоями сверхпроводника [20, 22].

В данной работе экспериментально изучалось изменение магнитного момента гетероструктуры, содержащей границу купратный сверхпроводник–ферромагнитный спиновый клапан, который сформирован из двух ферромагнитных слоев. Измерения магнитного момента гетероструктур проводились СКВИД-магнитометром, нейтронной рефлектометрией и с помощью ферромагнитного резонанса (ФМР). Из анализа данных, полученных с помощью этих трех методик, удалось определить величину индуцированного в сверхпроводнике маг-

нитного момента и величину изменения магнитного момента в ферромагнитном спиновом клапане. В работе обсуждается изменение магнитных моментов в отдельных слоях гетероструктуры под влиянием триплетных сверхпроводящих корреляций в ферромагнетике, которые возникают из-за неколлинеарной ориентации векторов намагниченностей ферромагнитных пленок спинового клапана.

## 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБРАЗЦЫ

Исследовались эпитаксиальные тонкопленочные гетероструктуры, состоящие из купратного сверхпроводника  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) и двух ферромагнитных слоев,  $\text{SrRuO}_3$  (SRO) и  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (LSMO), изготовленных с помощью лазерной абляции при температуре 700–800 °С и давлении кислорода 0.3–0.6 мбар. Толщина сверхпроводника находилась в диапазоне 80–200 нм, толщины ферромагнитных слоев варьировались от 5 до 20 нм (см. таблицу). Гетероструктуры покрывались сверху тонким (20 нм) слоем золота. Использовались подложки размером  $5 \times 5 \text{ мм}^2$  из (110)NdGaO<sub>3</sub> (NGO), (001)LaAlO<sub>3</sub> (LAO) и  $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}+(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$  (LSAT). Вектор намагниченности эпитаксиальной пленки LSMO, нанесенной на подложку (110)NGO или на пленку (001)YBCO, обычно лежит в плоскости подложки [23, 24], в то время как для SRO-пленки вектор намагниченности находится вне плоскости для используемых подложек [25].

Детальное исследование полевой и температурной зависимостей намагниченности отдельных пленок и гетероструктур проводилось с помощью СКВИД-магнитометра MPMS 3 фирмы Quantum Design в режиме VSM-моды [26]. Плоскость подложки устанавливалась относительно направления магнитного поля с точностью  $1^\circ$ – $2^\circ$ .

Результаты измерений полевой зависимости магнитного момента  $m$  гетероструктуры Au/LSMO/SRO/YBCO (№1 в таблице) приведены на рис. 1 для двух направлений внешнего магнитного поля при температуре  $T = 100 \text{ K}$ , что выше критической температуры сверхпроводника  $T_C$ . Измерялась составляющая магнитного момента параллельная внешнему магнитному полю  $H$ . Для магнитного поля, параллельного плоскости подложки, основной вклад в полевую зависимость магнитного момента гетероструктуры  $m_{\parallel}(H)$  дает пленка LSMO, а для перпендикулярного — SRO. На зависимости  $m_{\parallel}(H)$  в диапазоне полей  $H < 600 \text{ Э}$  влияние SRO-пленки не наблюдается (рис. 1а). В

Таблица

№	Подложка	$d_S$ , нм	$d_{SRO}$ , нм	$d_{LSMO}$ , нм	$\Delta m$ , $10^{-6}$ ед. СГСМ
1	(001)LaAlO <sub>3</sub>	80	20	14	10
2	(110)NdGaO <sub>3</sub>	80	17	7	$(5 \pm 1.5)$
3	(110)NdGaO <sub>3</sub>	180	0	20	$\leq (1 \pm 2)$
4	(001)LSAT	150	13	25	2.5
5	(110)NdGaO <sub>3</sub>	0	14	40	—
6	(110)NdGaO <sub>3</sub>	0	0	50	—

Примечание.  $d_S$  — толщина пленки YBCO,  $d_{SRO}$  — толщина пленки SRO,  $d_{LSMO}$  — толщина пленки LSMO,  $\Delta m$  — изменения магнитного момента. Для гетероструктур № 1 и № 4 измерялось изменение  $m$  всего образца, а для гетероструктур № 2 и № 3 — только для ферромагнитной части. Для гетероструктуры № 4 в качестве сверхпроводника использовался  $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_x$ . В гетероструктурах № 5 и № 6 сверхпроводник не напылялся

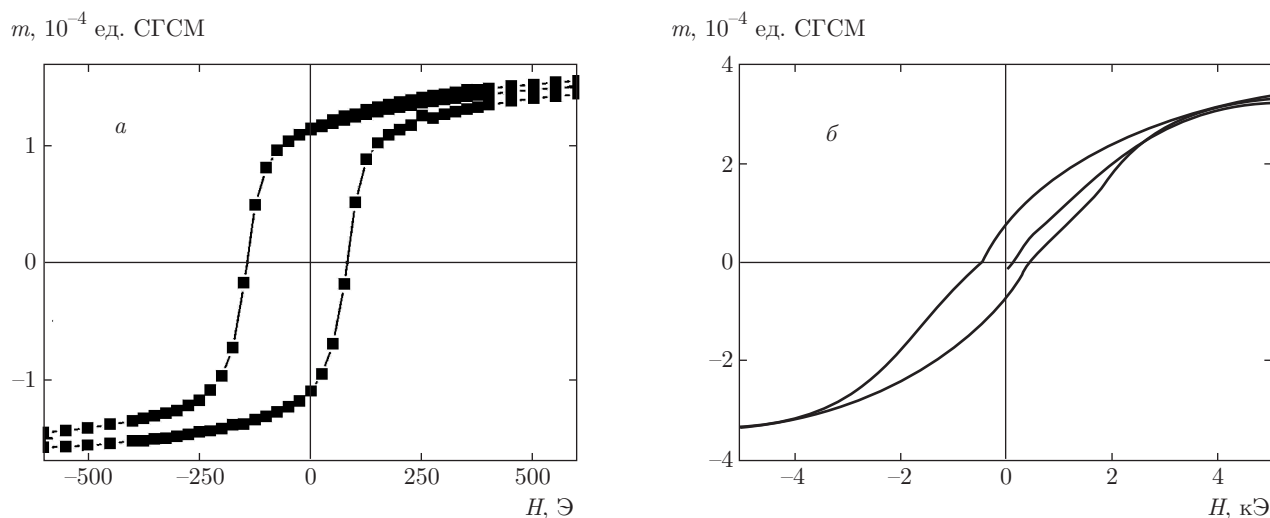


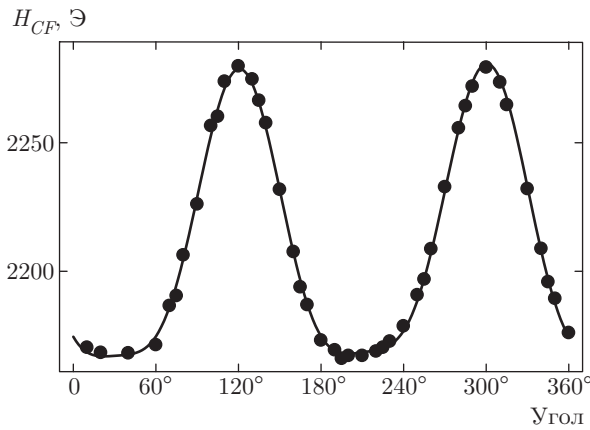
Рис. 1. Петля гистерезиса гетероструктуры Au/LSMO/SRO/YBCO № 1 при  $T = 100$  К для магнитного поля, ориентированного параллельно (а) и перпендикулярно (б) плоскости подложки

то же время петля гистерезиса гетероструктуры  $m_{\perp}(H)$  определяется пленкой SRO (рис. 1б).

Магнитные поля насыщения ферромагнитных пленок различаются более чем на порядок: у LSMO — в пределах 0.1–0.3 кЭ, в то время как для SRO — 5–7 кЭ. Отметим, что магнитные параметры пленок в гетероструктуре могут отличаться от пленок, напыленных непосредственно на подложку. В частности, поле насыщения ферромагнитных пленок в гетероструктуре несколько меньше, чем у пленок, напыленных непосредственно на подложку [24, 25].

Определенная из петли гистерезиса намагниченность LSMO-пленки при  $T = 80$  К равна  $2.5\mu_B/\text{Mn}$ , а SRO-пленки —  $1.5\mu_B/\text{Ru}$ . Здесь  $\mu_B$  — магнетон Бора. Положение легкой оси намагниченности SRO-пленки близко к нормали к плоскости подложки. Неколлинеарность векторов намагниченности ферромагнитных пленок способствует генерации в ферромагнитной прослойке сверхпроводящих триплетных корреляций с ненулевой проекцией спина сверхпроводящих носителей [27, 28].

Гетероструктуры были исследованы также с помощью спектрометра магнитного резонанса Bruker ER 200, работающего на частоте  $\omega/2\pi = 9.7$  ГГц.



**Рис. 2.** Угловая зависимость резонансного магнитного поля при  $T = 295$  К, гетероструктура №2. Сплошной линией показана зависимость (1) при следующих подгоночных параметрах:  $M_0 = (1.615 \pm 0.001) \mu_B/\text{Mn}$ ,  $H_u = (65.3 \pm 0.5)$  Э,  $H_c = (17.5 \pm 0.5)$  Э,  $\varphi_u = (30.2 \pm 2)^\circ$ ,  $\varphi_c = (76.0 \pm 0.4)^\circ$

Измерялись спектры ферромагнитного резонанса в широком диапазоне изменения температуры: от 20 К до 300 К. Спектры ФМР от пленки LSMO в гетероструктурах были получены при охлаждении образца в поле Земли. При достижении заданной температуры проводилось сканирование магнитного поля от 0 до 4 кЭ. Спектр ФМР от пленки SRO в наших экспериментальных условиях не виден из-за большого значения поля магнитной анизотропии рутената. Магнитная компонента СВЧ-поля была направлена перпендикулярно к плоскости подложки. Внешнее магнитное поле  $H$  всегда лежало в плоскости подложки (параллельная ориентация), а в экспериментах с охлаждением образца было выставлено вдоль оси легкого намагничивания наведенной одноосевой анизотропии LSMO-пленки [29]. Направление этой оси было предварительно определено из угловых зависимостей величины резонансного поля  $H_{CF}$ , снятых при различных температурах в условиях вращения магнитного поля вокруг нормали к плоскости подложки в параллельной ориентации (рис. 2).

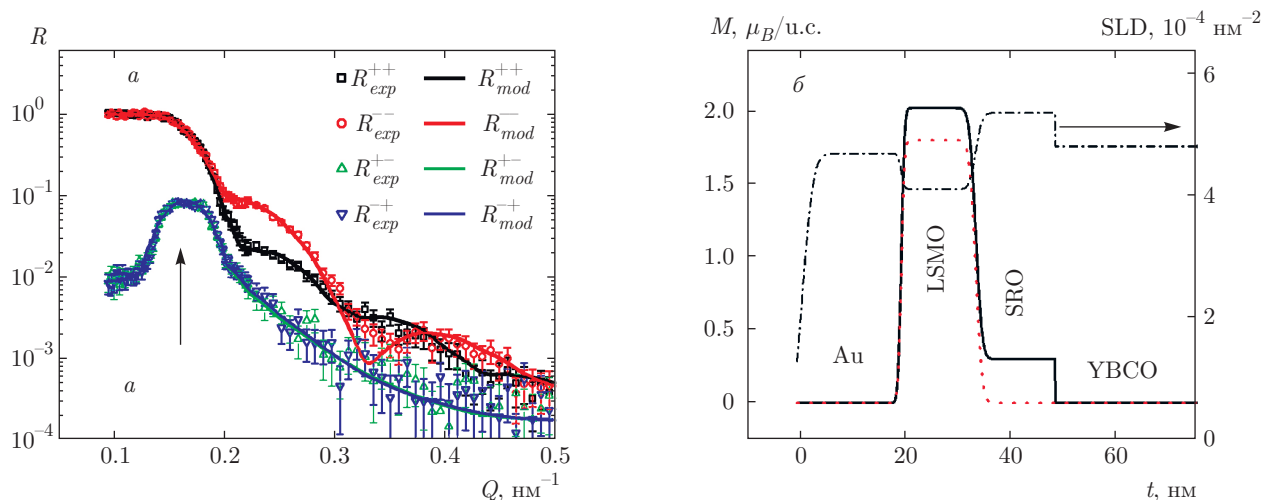
Угловые зависимости ФМР-спектра тонкой ферромагнитной пленки в параллельной ориентации при наличии одноосной и двухосной анизотропий описываются формулой [29]

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_0 + H_u \cos 2\varphi_u + H_c \cos 4\varphi_c) \times \left(4\pi M_0 + H_0 + H_u \cos^2 \varphi_u + H_c \frac{1 + \cos^2 2\varphi_c}{2}\right), \quad (1)$$

где  $\gamma$  — гиромагнитное отношение,  $H_u = 2K_u/M_0$ ,  $H_c = 2K_c/M_0$ ,  $K_u$  — постоянная одноосной анизотропии,

$K_c$  — постоянная кубической анизотропии, параметр  $M_0$  равен равновесной намагниченности в отсутствие соседних магнитно-упорядоченных слоев, а  $\varphi_u$  и  $\varphi_c$  — углы, под которыми направлены оси легкого намагничивания соответственно одноосной и кубической анизотропий относительно внешнего магнитного поля. В результате подгонки экспериментальных данных (рис. 2) с помощью формулы (1) удается определить следующие параметры ферромагнетика:  $K_u$ ,  $K_c$ ,  $M_0$ , а также направления обеих легких осей одноосной и кубической анизотропии (см. подписи под рис. 2).

Эксперимент с поляризованными нейтронами был проведен на монохроматическом рефлектометре NREX (длина волны 0.43 нм, энергия 4.4 мэВ), расположенном на исследовательском реакторе FRM II (Гархинг, Германия). Пучок поляризованных нейтронов (поляризация 99.99%) падал на образец под углами скольжения  $\theta = (0.15-1)^\circ$ . Расходимость пучка  $\Delta\theta_1 = 0.025^\circ$  задавалась двумя диафрагмами перед образцом. Поляризация отраженного пучка анализировалась при помощи анализатора с эффективностью 98%. Внешнее магнитное поле в эксперименте было направлено в плоскости образца и нормально к плоскости рассеяния. При фиксированной температуре снимались данные с четырех каналов интенсивности малоуглового отражения:  $R^{++}(\theta)$ ,  $R^{--}(\theta)$ ,  $R^{+-}(\theta)$ ,  $R^{-+}(\theta)$ . Под «+» и «-» следует понимать знаки проекции спина нейтрона на внешнее магнитное поле. Коэффициенты отражения без переворота спина  $R^{++}(\theta)$  и  $R^{--}(\theta)$  чувствительны соответственно к сумме и разнице ядерного профиля (SLD) и компоненты намагниченности, лежащей в плоскости подложки и коллинеарной к внешнему полю ( $M_{\parallel}$ ). Коэффициенты отражения с переворотом спина  $R^{+-}(\theta)$ ,  $R^{-+}(\theta)$  чувствительны к компоненте намагниченности  $M_{\perp}$ , лежащей в плоскости подложки и неколлинеарной к внешнему полю. Особенностью рефлектометрии поляризованных нейтронов является нечувствительность метода к компоненте намагниченности, нормальной к плоскости образца [30, 31]. На рис. 3а показаны коэффициенты отражения, измеренные при  $T > T_C$  для гетероструктуры №1. Коэффициенты отражения без переворота спина (не спин-флип, NSF-рассеяние)  $R^{++}(\theta)$  и  $R^{--}(\theta)$  характеризуются наличием области полного отражения при  $Q < Q_{crit} \approx 0.15 \text{ нм}^{-1}$  и осцилляциями Кизиха, вызванными интерференцией на различных границах раздела в структуре. Существенное различие NSF-коэффициентов отражения  $R^{++}(\theta)$  и  $R^{--}(\theta)$



**Рис. 3.** а) Коэффициенты отражения низкоэнергетических нейтронов от гетероструктуры Au/LSMO/SRO/YBCO при  $T = 80$  К,  $H = 30$  Э. Расчетные кривые коэффициентов отражения показаны сплошными линиями. Расчетные зависимости для коэффициентов отражения с переворотом спина  $R^{+-}(\theta)$  и  $R^{-+}(\theta)$  совпадают. Стрелка указывает положение волноводного пика, совпадающего с критическим значением переданного момента полного отражения  $Q_{crit}$ ; б) ядерный профиль SLD (штрихпунктир) и профили магнитных моментов гетероструктуры в плоскости подложки:  $M_{\parallel}$  (сплошная линия) и  $M_{\perp}$  (пунктир)

говорит о наличии коллинеарной компоненты намагниченности. В то же время в эксперименте наблюдалось сильное рассеяние с переворотом спина (спин-флип-(SF)-рассеяние), что говорит о наличии неколлинеарной компоненты намагниченности. Характерным для SF-рассеяния от данной структуры является наличие так называемого резонансного пика вблизи  $Q_{crit}$ , вызванного резонансно усиленной нейтронной стоячей волной [30–32].

Подгонка экспериментальных данных по модели, предложенной в работе [27], позволила восстановить профиль ядерной плотности длины рассеяния (SLD), а также профиль коллинеарной и неколлинеарной компонент магнитного момента в плоскости (рис. 3б). Как следует из подгонки, границы раздела в структуре достаточно резкие с переходными областями не превышающими 2 нм. Магнитное состояние системы хорошо описывается магнитным моментом LSMO-слоя  $2.5 \mu_B/\text{Mn}$ , направленным под углом  $43.3^\circ$  к направлению внешнего поля, и компонентой SRO-намагниченности в плоскости величиной  $0.3 \mu_B/\text{Ru}$ , параллельной внешнему полю. Спин-флип-рассеяние выше  $T_C$  задается компонентой намагниченности LSMO-слоя, направленной нормально к внешнему полю.

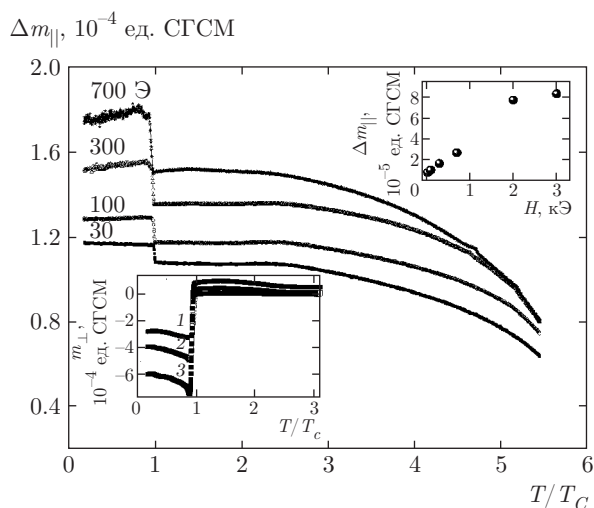
### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В таблице приведены составы и толщины пленок исследованных гетероструктур, а также экс-

периментально определенные величины изменений магнитного момента гетероструктуры  $-\Delta m$ . Знак у  $\Delta m$  соответствует увеличению (положительный) или уменьшению (отрицательный) намагниченностей. Величины  $\Delta m$  для образцов №2 и №3 получены из ФМП-измерений и соответствуют изменению намагниченности слоя SRO для гетероструктуры №2 и LSMO-пленки для гетероструктуры №3, остальные данные относятся к изменению намагниченности всей гетероструктуры. В образце №4 использовалась подложка LSAT, на которую наносилась эпитаксиальная пленка из допированного Ca купратного сверхпроводника YBCO ( $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ).

#### 3.1. Магнитные измерения

На рис. 4 показано семейство температурных зависимостей магнитного момента, параллельного плоскости подложки,  $m_{\parallel}$ , для гетероструктуры №1. Эти зависимости получены с помощью СКВИД-магнитометра при охлаждении в магнитном поле (режим FC). Внешнее магнитное поле находилось в плоскости подложки и было направлено вдоль одной из ее граней. Более детальные измерения магнитной анизотропии показали, что грани подложки образуют угол  $40^\circ$ – $50^\circ$  относительно легкой оси магнитной анизотропии LSMO. В интервале температур  $T < T_{SRO}$  (температура сверхпроводящего пере-



**Рис. 4.** Температурные зависимости магнитного момента  $m_{\parallel}$  для гетероструктуры № 1 при охлаждении в магнитных полях (режим FC) для  $H = 30, 100, 300, 700$  Э. Переход пленки SRO в ферромагнитное состояние наблюдается при  $T/T_C = 2.5$ . Вставка внизу: зависимости величин магнитного момента  $m_{\perp}$  в поле, перпендикулярном плоскости подложки, измеренные в полях: 1 — 30, 2 — 200, 3 — 500 Э. На вставке сверху представлена зависимость изменения магнитного момента  $\Delta m_{\parallel}$  гетероструктуры от величины внешнего магнитного поля при  $T \approx T_C$

хода YBCO-пленки  $T_C \approx 55$  K и температура Кюри SRO-пленки  $T_{SRO} \approx 150$  K)  $m_{\parallel}$  определяется суммой проекций магнитного момента пленки LSMO и магнитного момента пленки SRO на направление магнитного поля. Под действием магнитного поля  $m_{\parallel}$  изменяется из-за поворота магнитных моментов LSMO- и SRO-пленок. В результате взаимодействия магнитных моментов пленок LSMO и SRO суммарный магнитный момент спинового клапана при малых полях меньше, чем для LSMO-пленки при той же температуре, а при  $H > 1$  кЭ — больше.

При  $T \approx T_C$  наблюдается резкое увеличение магнитного момента гетероструктуры (рис. 4). Толщина пленки YBCO  $d_S = 80$  нм меньше лондонской глубины проникновения магнитного поля. Магнитное поле, направленное вдоль плоскости пленки, полностью проникает в сверхпроводник, и диамагнитный отклик из-за эффекта Мейснера не наблюдается. Отметим, что если плоскость образца отклонена на небольшой угол относительно направления внешнего магнитного поля (чего очень сложно избежать в отсутствие специальной юстировки), то влияние перпендикулярного магнитного поля существенно больше, чем параллельного из-за размаг-

нивающего фактора пленки [33]. Однако влияние перпендикулярной компоненты магнитного поля существенно уменьшается в режиме охлаждения в магнитном поле (FC) из-за возникновения вихрей Абрикосова [33]. Действительно, в эксперименте наблюдалось изменение формы зависимости  $m_{\parallel}(T)$  в режиме охлаждения в нулевом магнитном поле (режим ZFC). Влияние перпендикулярной компоненты приводит к тому, что температурные зависимости магнитного момента аналогичны случаю перпендикулярной ориентации (см. нижнюю вставку на рис. 4).

Согласно [34, 35] величину индуцированного в сверхпроводнике магнитного момента можно оценить как  $\Delta m_s \approx 2\mu_B N_S k_B T_C V \approx 10^{-5}$  ед. СГСМ, при плотности состояний в сверхпроводнике  $N_S = 7 \cdot 10^{22}$  1/(эВ·см<sup>3</sup>) [36]. Здесь  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $V$  — объем пленки YBCO. Полученная оценка по порядку величины совпадает с измеренными значениями увеличения магнитного момента после перехода YBCO в сверхпроводящее состояние (см. рис. 4). При этом, согласно расчетам [7], обменное поле ферромагнетика индуцирует магнитный момент в сверхпроводнике на расстоянии порядка длины когерентности. В эксперименте (рис. 4) наблюдается увеличение  $m_{\parallel}$  (положительный знак  $\Delta m$ ) при  $T \approx T_C$ . Из расчетов [34, 35] следует, что знак  $\Delta m$  должен быть отрицательным в большинстве случаев. Однако в работе [7] указано, что если контактирующий со сверхпроводником ферромагнетик имеет отрицательную намагниченность, то знак изменения  $\Delta m$  может измениться. Изменение знака магнитного момента в сверхпроводнике может быть вызвано орбитальной реконструкцией на границе YBCO/SRO [37].

В случае механизма возникновения наведенного магнитного момента за счет орбитальной реконструкции было получено, что индуцированный в сверхпроводнике магнитный момент атома Cu равен  $0.23\mu_B$  и направлен против магнитного момента Mn для YBCO/LCMO-сверхрешеток [17]. К сожалению, в работе [17] не указана температура, при которой получена эта величина. В то же время, в работе [19] для аналогичной сверхрешетки приводится значение индуцируемого магнитного момента  $0.013\mu_B/\text{Cu}$  при  $T = 28$  K. Если предположить, что изменение магнитного момента нашей гетероструктуры происходит за счет атомов меди, расположенных в слое толщиной порядка 10 нм, то для получения экспериментального значения  $\Delta m \sim 10^{-5}$  ед. СГСМ в образце № 1 (см. рис. 3) следует принять величину индуцированного магнитного момента  $\sim 0.25\mu_B/\text{Cu}$ .

Изменение направления магнитного момента меди наблюдалось в [37], а в нашем случае оно может быть вызвано отрицательной намагниченностью пленки SRO [7, 25].

Величина  $\Delta m_{\parallel}$  растет с увеличением внешнего магнитного поля (верхняя вставка к рис. 4). Расчет изменения магнитного момента сверхпроводника, который находится в контакте с магнитным спиновым клапаном, показывает, что величина наведенного магнитного момента в сверхпроводнике изменяется пропорционально  $\sin \theta$ , где  $\theta$  — угол разориентации намагниченностей ферромагнетиков в спиновом клапане [34]. Как следует из анализа рис. 4, при малых полях проекция магнитного момента пленки SRO ( $m_{SRO}$ ) на плоскость подложки направлена против магнитного момента пленки LSMO ( $m_{LSMO}$ ), т. е. угол разориентации магнитных моментов  $\theta$  близок к  $180^\circ$ . С увеличением магнитного поля угол  $\theta$  уменьшается и  $\Delta m_{\parallel}$  увеличивается, что и наблюдается в эксперименте, причем в зависимости от направления изменения угла (по часовой или против часовой стрелки) величина  $\Delta m$  может быть как положительной, так и отрицательной [34]. Как видно на рис. 4, при полях около 1000 Э вклад SRO-пленки в общую намагниченность гетероструктуры становится равным нулю (температурная зависимость магнитного момента гетероструктуры близка к  $m_{LSMO}$  пленки) и, следовательно, угол между  $m_{LSMO}$  и проекцией  $m_{SRO}$  на плоскость близок к  $90^\circ$ . При дальнейшем росте магнитного поля  $H$  величина  $\Delta m_{\parallel}$  растет, хотя, согласно расчетам [34], должно быть насыщение.

Изменение  $m_{\parallel}$  при  $T \approx T_C$  может быть также связано с возникновением аномального магнитного отклика в нормальном металле (Au), который находится в контакте со сверхпроводящим спиновым клапаном S/F<sub>1</sub>F<sub>2</sub>, генерирующим триплетные сверхпроводящие корреляции [11]. По нашим оценкам (с использованием расчетного значения восприимчивости  $\chi = 10^{-3}$  [11]) этот вклад не превышает  $2 \cdot 10^{-10}$  ед. СГСМ, что значительно меньше измеренных значений изменения  $m_{\parallel}$ .

Если же магнитное поле направлено перпендикулярно плоскости сверхпроводящей пленки, то экранирующие токи протекают в слое  $\lambda_{\perp} = \lambda_L^2/d_S \approx \approx 0.3$  мкм по краю пленки, и магнитное поле выталкивается из сверхпроводящей пленки — наблюдается диамагнитный отклик (эффект Мейснера). Это видно на зависимостях магнитного момента  $m_{\perp}(T)$  гетероструктуры, измеренного в магнитном поле, направленном перпендикулярно плоскости подложки (см. нижнюю вставку на рис. 4). По зависимо-

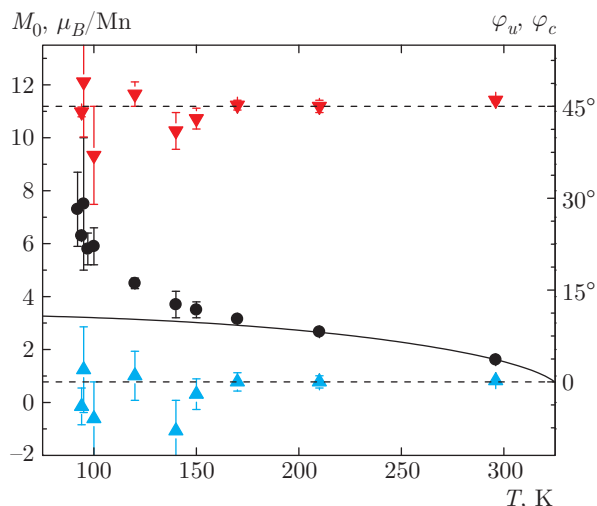
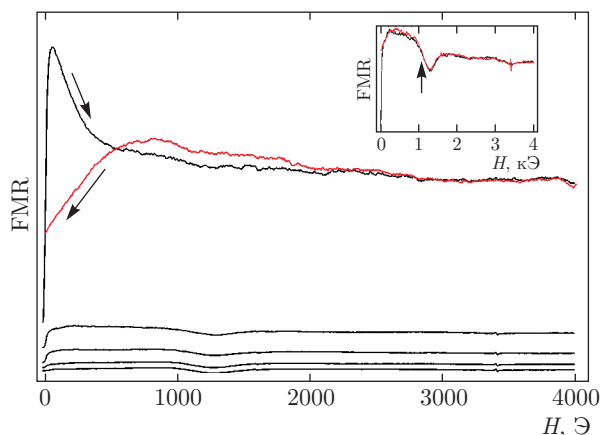


Рис. 5. Температурная зависимость параметра  $M_0$  (кружки, левая шкала) и направлений легких осей анизотропий (правая шкала): одноосной — угол  $\varphi_u$  (треугольники) и двухосной — угол  $\varphi_c$  (перевернутые треугольники) для слоя LSMO гетероструктуры №2, полученные из обработки угловых зависимостей ФМР-спектров по формуле (1). Сплошная линия — расчетная намагниченность слоя LSMO, а штриховые линии — горизонтальные прямые, проведенные по треугольникам (см. текст)

сти  $m_{\perp}(T)$  легко определить критическую температуру сверхпроводника  $T_C$  в гетероструктуре. Отметим, что форма зависимостей  $m_{\perp}(T)$  не изменяется при смене режима охлаждения (FC или ZFC).

### 3.2. Ферромагнитный резонанс

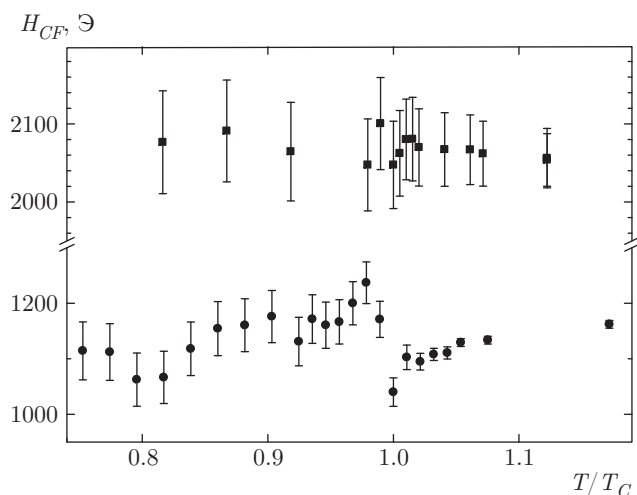
Как отмечалось ранее, обработка угловых зависимостей спектров ФМР по формуле (1) позволяет определить параметр  $M_0$  и направления легких осей в пленке LSMO исследуемых гетероструктур. На рис. 5 показана температурная зависимость параметра  $M_0$  (левая шкала) и значений углов  $\varphi_u$  и  $\varphi_c$ , под которыми направлены легкие оси одноосной и двухосной магнитных анизотропий (правая шкала), определенных с использованием формулы (1). При этом значения углов приведены для случая, когда внешнее магнитное поле направлено вдоль направления  $[1\bar{1}0]$  NGO-подложки, что соответствует направлению легкой оси плоскостной одноосной анизотропии. На рис. 5 видно, что направления легких осей не меняются в исследованном интервале температур, а значит, определяются теми же причинами, что и при комнатной температуре [29]. Здесь необходимо указать, что параметр  $M_0$  определяет вели-



**Рис. 6.** Температурные зависимости спектров ФМР для гетероструктуры №2 при температурах (снизу вверх) соответственно на 4 %, 3 %, 2 % и 1 % выше  $T_C$ , а также при  $T < T_C$ . Стрелками указано направление изменения внешнего магнитного поля при измерении спектра поглощения при  $T < T_C$ . На вставке показан спектр ФМР (прямой и обратный ход по полю) в увеличенном масштабе для температуры  $T = 1.01T_C$ , стрелкой указано резонансное поле  $H_{CF}$

чину намагниченности в слое LSMO ( $M_{LSMO}$ ) только при температурах выше ферромагнитного перехода в слое SRO. При более низких температурах следует учитывать межслойный обмен между двумя ферромагнетиками [38], что приведет к резонансному соотношению, отличному от формулы (1). Для демонстрации этого факта на рис. 5 приведена расчетная кривая для намагниченности слоя LSMO, полученная с использованием молекулярной теории Вейсса [39], и намагниченности  $M_{LSMO}$ , определенной по формуле (1) в интервале температур выше  $T_{SRO}$ . На рисунке видно, что при возникновении ферромагнетизма в слое SRO значения параметра  $M_0$  начинают превышать расчетную кривую, что указывает на наличие межслойного обмена LSMO и SRO ферромагнитного характера. На рис. 5 видно, что намагниченность LSMO достигает величины около  $3.0\mu_B/\text{Mn}$  при температурах вблизи  $T_{SRO}$ . Учитывая соотношение между объемами элементарной ячейки и слоя LSMO, определяем магнитный момент LSMO-пленки для гетероструктуры №2 как  $m_{LSMO} \approx 10^{-4}$  ед. СГСМ, что согласуется с данными для гетероструктуры №1, полученными с помощью СКВИД-магнитометра (см. рис. 4).

На рис. 6 показаны спектры ФМР от пленки LSMO гетероструктуры №2, снятые при  $T \approx T_C$ . При  $T \leq T_C$ , когда YBCO-пленка перешла в сверхпроводящее состояние, наблюдается гигантский сиг-



**Рис. 7.** Температурная зависимость резонансного поля для гетероструктур №2 (кружки) и №3 (квадраты) в области температуры сверхпроводящего перехода

нал нерезонансного поглощения при низких магнитных полях, имеющий гистерезис по магнитному полю [40]. В результате сигналы ФМР при  $T < T_C$  регистрируются на фоне гигантского нерезонансного поглощения, что увеличивает ошибку измерений резонансного поля  $H_{CF}$ , но позволяет определить температуру сверхпроводящего перехода YBCO-пленки  $T_C$ . При  $T > T_C$  величины  $H_{CF}$  определяются значительно точнее, что показано на вставке на рис. 6.

На рис. 7 изображены температурные зависимости резонансного поля  $H_{CF}$  для сигналов ФМР от пленки LSMO в гетероструктурах №2 и №3 в области сверхпроводящего перехода пленки YBCO. Во всех случаях направление внешнего магнитного поля было выбрано вдоль оси легкого намагничивания. Видно, что для гетероструктуры №2 наблюдается резкое изменение резонансного поля в области сверхпроводящего перехода.

Ранее уменьшение эффективной намагниченности (увеличение резонансного поля) ферромагнитного слоя в двухслойной S/F-структуре V/PdFe наблюдалось на спектре ФМР при переходе в сверхпроводящее состояние ванадия [12]. Эффект объяснялся возникновением криптоферромагнитного состояния [41]. В работе [7] предложено другое объяснение экспериментальных данных, связанное с магнитным эффектом близости и основанное на расчетах в рамках модели квазиклассического приближения.

Поскольку в гетероструктуре №2 пленка LSMO, в которой регистрируется изменение резонансного поля, отделена от сверхпроводящей пленки YBCO



ферромагнитной пленкой SRO, скачок резонансного поля  $H_{CF}$  слоя LSMO следует связать с изменением намагниченности в SRO-пленке, непосредственно контактирующей со сверхпроводящим слоем. Для этого необходимо учесть межслойное обменное взаимодействие LSMO и SRO, которое происходит через магнитно-упорядоченный пограничный слой с высокой проводимостью [42–45]. Проблема межслойного обменного взаимодействия в структуре LSMO/SRO заслуживает отдельного рассмотрения. Здесь же мы отметим, что, используя процедуру, изложенную в работах [38, 46], мы получили соотношение между частотой и резонансным полем для слоя LSMO в гетероструктуре LSMO/SRO, которое имеет вид, аналогичный выражению (1), но величину резонансного поля в нем следует заменить комбинацией

$$H_{CF} + \frac{H_{J1}^{LSMO} (H_{CF} + H_{J1}^{SRO})}{H_{SRO} - 4\pi M_{SRO} - H_{J2}^{SRO}}. \quad (2)$$

Здесь  $H_{SRO}$  и  $M_{SRO}$  — поле одноосной магнитной анизотропии и намагниченность пленки SRO,  $H_{J1}^{LSMO, SRO}$  и  $H_{J2}^{SRO}$  — эффективные поля билинейного и биквадратичного межслойных обменов для соответствующих слоев, а величины этих полей обратно пропорциональны намагниченностям соответствующих слоев [38, 46].

Соблюдение резонансного соотношения требует постоянства комбинации (2) по обе стороны от скачка намагниченности. Из условия такого постоянства получаем соотношение между скачком резонансного поля  $\delta H_{CF}$  в пленке LSMO и скачком намагниченности пленки SRO  $\delta M_{SRO}$ :

$$\frac{\delta M_{SRO}}{M_{SRO}} \approx \frac{\delta H_{CF}}{H_{CF}} \frac{H_{SRO}}{4\pi M_{SRO}}. \quad (3)$$

Оценка по формуле (3) показывает, что изменение намагниченности пленки SRO при переходе YBCO в сверхпроводящее состояние составляет величину примерно  $0.5M_{SRO}$ . С учетом вклада SRO-пленки ( $m_{SRO} \sim 10^{-5}$  ед. СГСМ) в общий магнитный момент  $m_{\parallel}$  гетероструктуры (рис. 4) получаем, что величина изменения магнитного момента композитного ферромагнетика меньше, чем наведенный магнитный момент в сверхпроводнике. Заметим, что положительный знак  $\delta M_{SRO}$  говорит об уменьшении намагниченности пленки SRO, так как в этом слое намагниченность имеет отрицательный знак (см. выше и работу [7]).

На рис. 7 также видно, что в гетероструктуре № 3, в которой с пленкой YBCO контактирует ферромагнитная пленка LSMO, заметное изменение намагниченности LSMO при  $T \approx T_C$  в пределах ошиб-

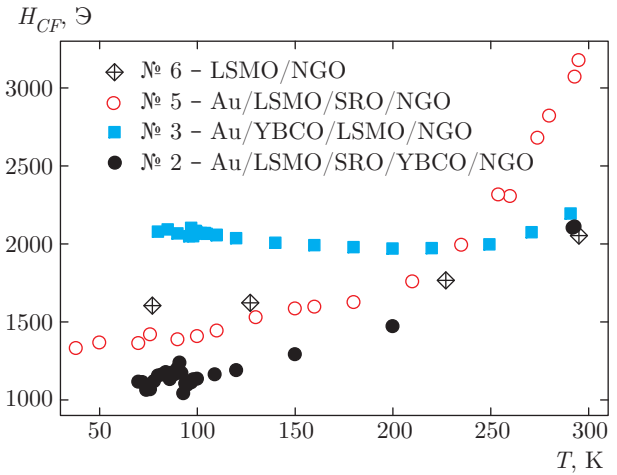


Рис. 8. Температурные зависимости резонансного поля в пленках LSMO для гетероструктур, перечисленных на вставке

ки измерений не обнаружено. Такое отличие в гетероструктуре № 3 можно объяснить отсутствием возбуждения триплетной компоненты сверхпроводящего тока [1, 7, 27, 47, 48] и низкой прозрачностью границы YBCO/LSMO [47]. Это приводит к пренебрежимо малому проникновению сверхпроводящего параметра порядка из YBCO в пленку LSMO и, следовательно, к пренебрежимо малым изменениям магнитного момента пленки LSMO в гетероструктуре № 3.

Отметим, что величина резонансного поля в гетероструктуре № 2 продолжает уменьшаться после скачка в области сверхпроводящего перехода. Мы связываем такое поведение не с увеличением намагниченности, которая при этих температурах близка к насыщению, а с ростом при понижении температуры величины межслойного обмена LSMO и SRO. Величина намагниченности LSMO при температуре близкой к  $T_C$  составляет 97% от насыщенного значения, что однозначно исключает ее роль в уменьшении резонансного поля при дальнейшем понижении температуры. Кроме того, имеется температурная зависимость величин поля магнитной анизотропии, что тоже влияет на значение резонансного поля.

В качестве примера на рис. 8 приведены температурные зависимости резонансных полей для LSMO в различных гетероструктурах. Наблюдается широкое разнообразие изменения величины  $H_{CF}$  в процессе понижения температуры, хотя температурные зависимости намагниченностей LSMO-пленок для всех приведенных на рис. 8 структур ведут себя одинаково. Следует обратить внимание на то, что

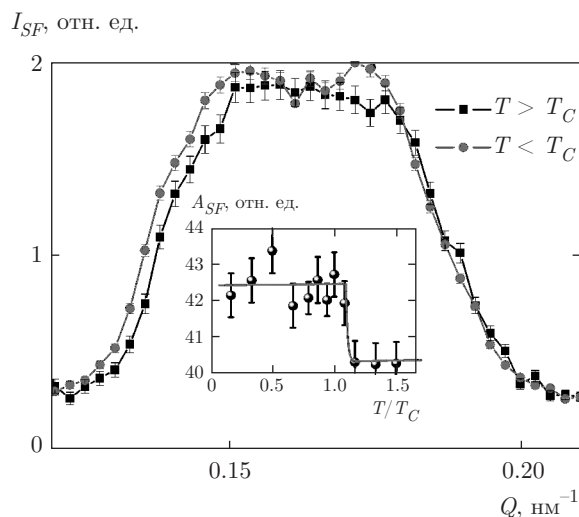


Рис. 9. Температурная зависимость интенсивности волноводного пика  $I_{SF}$  для гетероструктуры № 1. Линии соединяют экспериментальные точки. На вставке показано температурное изменение площади пика

для гетероструктуры № 5 Au/LSMO/SRO/NGO на рис. 8 видно появление дополнительного изгиба на кривой  $H_{CF}(T)$  вблизи  $T \approx T_{SRO}$ , что указывает на проявление межслойного обменного взаимодействия двух ферромагнитных пленок. Для гетероструктуры № 2 даже в этом масштабе видно изменение  $H_{CF}$  при  $T \approx T_C$ .

### 3.3. Нейтронные измерения

Нейтрон-рефлектометрические кривые были измерены для образцов № 1 и № 4 в диапазоне температур  $T = 10$  К–80 К. Для обоих образцов в эксперименте наблюдалось увеличение рассеяния с переворотом спина (SF-рассеяние) при температурах ниже  $T_C$ . Изменение намагниченности гетероструктуры удается зафиксировать с помощью резонансного пика, вызванного резонансно усиленной нейтронной стоячей волной. На рис. 9 показана интенсивность SF-рассеяния вблизи резонансного пика, измеренная при температурах выше и ниже  $T_C$ . Данные для температур выше и ниже  $T_C$  просуммированы соответственно в диапазоне температур  $T = 70$  К–90 К и  $T = 10$  К–60 К. Как следует из рис. 9, интенсивность SF-рассеяния увеличилась при переходе образца в сверхпроводящее состояние. На вставке к рис. 9 показана температурная зависимость площади волноводного пика, откуда следует, что наблюдается рост SF-рассеяния для температур ниже  $T_C$ .

Аналогичное увеличение интенсивности SF-рассеяния наблюдалось также на образце № 4 как в режиме заморозки в поле, так и в режиме заморозки в нулевом поле. Таким образом, нейтронные данные указывают на рост неколлинеарной намагниченности в гетероструктуре при переходе слоя YBCO в сверхпроводящее состояние.

Для образца № 1 проведенный количественный расчет показывает, что рост SF-рассеяния может быть удовлетворительно описан появлением намагниченности в YBCO-слое с величиной  $0.4\mu_B/\text{Cu}$  на толщине 10 нм вблизи границы раздела с SRO. При этом вектор наведенной намагниченности должен быть направлен параллельно намагниченности LSMO-слоя, т.е. под углом  $45^\circ$  к внешнему полю. Вместе с тем, изменение рассеяния без переворота спина (NSF-рассеяние) (порядка 1–3%), вызванное таким моментом, не превышает статистической ошибки экспериментально измеренных коэффициентов отражения. Рост SF-рассеяния может быть описан возникновением магнитного момента величиной  $4\mu_B/\text{Cu}$  на толщине порядка длины когерентности YBCO (1 нм) вблизи границы раздела с SRO. Это должно приводить к сильному изменению коэффициентов NSF-рассеяния (больше 10%), которое не наблюдается в эксперименте.

Модели, предполагающие рост неколлинеарной намагниченности в LSMO- или в SRO-слоях, также описывают экспериментальные данные, но противостоят ФМР-данным (см. разд. 3.2).

Похожее изменение интенсивности волноводного пика с переворотом спина ниже  $T_C$  наблюдалось ранее в бислое сверхпроводник/ферромагнетик V(40 нм)/Fe(1 нм) [32, 49], оно было интерпретировано как появление наведенной намагниченности  $+0.1\mu_B/\text{V}$  в 7 нм ванадия, граничащего с тонким слоем железа [30, 49].

## 4. ВЫВОДЫ

Таким образом, в гетероструктуре на основе купратного сверхпроводника с ферромагнитным спиновым клапаном экспериментально обнаружено возникновение наведенного магнитного момента в сверхпроводнике. Величина возникающего магнитного момента в сверхпроводнике по порядку величины совпадает как с расчетами наведенного магнитного момента атомов Cu из-за орбитальной реконструкции на границе, так и с расчетами по модели, учитывающей изменение плотности состояний

в сверхпроводнике на границе с ферромагнетиком. Характерная длина проникновения магнитного момента в сверхпроводник существенно превышает длину когерентности купратного сверхпроводника, что указывает на доминирование механизма введенного магнитного момента Cu.

Авторы благодарны В. А. Ацаркину, И. В. Борисенко, А. Ф. Волкову, А. В. Зайцеву, Б. Каймеру (B. Keimer), Ю. В. Кислинскому, Г. Логвенову, А. М. Петржику, А. В. Шадрину за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты №№ 14-02-00165, 14-07-00258, 14-07-93105, 14-22-01007), гранта НШ-4871.2014.2 и с привлечением оборудования шведского национального центра для микро- и нанотехнологий (Mufab). Нейтронные измерения были проведены на инструменте NREX, обслуживаемом научным сообществом им. Макса Планка в центре Хайнц Майер Лейбниц (Heinz Maier-Leibnitz Zentrum), Гархинг, Германия.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Magnetic Heterostructures, Advances and Perspectives in Spinstructures and Spintransport*, ed. by H. Zabel and S. D. Bader, Springer Tracts in Modern Physics **227**, Springer, Berlin–Heidelberg (2008), p. 251.
2. A. I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 935 (2005).
3. W. L. Lim, N. Ebrahim-Zadeh, J. C. Owens et al., *Appl. Phys. Lett.* **102**, 162404 (2013).
4. K. Halterman and O. T. Valls, *Phys. Rev. B* **66**, 224516 (2002).
5. R. Fazio and C. Lucheroni, *Europhys. Lett.* **45**, 707 (1999).
6. V. N. Krivoruchko and E. A. Koshina, *Phys. Rev. B* **66**, 0145621 (2002).
7. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Phys. Rev. B* **69**, 174504 (2004).
8. F. S. Bergeret, A. L. Yeyati, and A. Martin-Rodero, *Phys. Rev. B* **72**, 064524 (2005).
9. M. Yu. Kharitonov, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Phys. Rev. B* **73**, 054511 (2006).
10. R. Grein, T. Löfwander, and M. Eschrig, *Phys. Rev.* **88**, 054502 (2013).
11. M. Alidoust, K. Halterman, and J. Linder, *Phys. Rev. B* **89**, 054508 (2014).
12. I. A. Garifullin, D. A. Tikhonov, N. N. Garif'yanov et al., *Appl. Magn. Reson.* **22**, 439 (2002).
13. M. G. Flokstra, S. J. Ray, S. J. Lister et al., *Phys. Rev. B* **89**, 054510 (2014).
14. J. Xia, V. Shelukhin, M. Karpovski et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 087004 (2009).
15. R. I. Salikhov, I. A. Garifullin, N. N. Garif'yanov et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 087003 (2009).
16. J. Stahn, J. Chakhalian, Ch. Niedermayer et al., *Phys. Rev. B* **71**, 1405098(R) (2005).
17. D. K. Satapathy, M. A. Uribe-Laverde, I. Marozau et al., *Phys. Rev. Lett.* **108**, 197201 (2012).
18. J. Chakhalian, J. W. Freeland, G. Srajer et al., *Nat. Phys.* **2**, 244 (2006).
19. J. Chakhalian, J. W. Freeland, H.-U. Habermeier et al., *Science* **318**, 1114 (2007).
20. H.-U. Habermeier, *J. Phys.: Conf. Ser.* **108**, 012039 (2008).
21. J. Santamaria, J. Garcia-Barriocanal, Z. Sefrioul, and C. Leon, *Int. J. Mod. Phys. B* **27**, 19 (2013).
22. J. Salafranca and S. Okamoto, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 256804 (2010).
23. V. V. Demidov, G. A. Ovsyannikov, A. M. Petrzhik et al., *J. Appl. Phys.* **113**, 163909 (2013).
24. Г. А. Овсянников, А. М. Петржик, И. В. Борисенко и др., *ЖЭТФ* **135**, 56 (2009).
25. G. Koster, L. Klein, W. Siemons et al., *Rev. Mod. Phys.* **84**, 253 (2012).
26. <https://www.qdusa.com/products/mpms3.html>.
27. Yu. N. Khaydukov, G. A. Ovsyannikov, A. E. Sheyerman et al., *Phys. Rev. B* **90**, 035130 (2014).
28. Г. А. Овсянников, А. Е. Шейерман, А. В. Шадрин и др., *Письма в ЖЭТФ* **97**, 165 (2013).
29. В. В. Демидов, И. В. Борисенко, А. А. Климов и др., *ЖЭТФ* **139**, 943 (2011).
30. Yu. N. Khaydukov, B. Nagy, J.-H. Kim et al., *Письма в ЖЭТФ* **98**, 116 (2013).
31. H. Zabel, K. Theis Bröhl, and B. P. Toperver, in *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*, John Wiley & Sons (2007).

32. Yu. N. Khaidukov and Yu. V. Nikitenko, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res., Sect A **629**, 245 (2011).
33. C. Monton, F. de la Cruz, and J. Guimpel, Phys. Rev. B **75**, 064508 (2007).
34. N. G. Pugach and A. I. Buzdin, Appl. Phys. Lett. **101**, 242602 (2012).
35. T. Lofwander, T. Champel, J. Durst, and M. Eschrig, Phys. Rev Lett. **95**, 187003 (2005).
36. J. Mannhart, Supercond. Sci. Technol. **9**, 49 (1996).
37. H.-U. Habermeier and G. Cristiani, Physica C **408–410**, 864 (2004).
38. Н. М. Крейнс, ФНТ **28**, 807 (2002).
39. Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела*, гл. 16, Наука, Москва (1978).
40. В. А. Ацаркин, В. В. Демидов, Н. Е. Ногинова, Сверхпроводимость: физика, химия, техника **5**, 305 (1992).
41. F. S. Bergeret, K. B. Efetov, and A. I. Larkin, Phys. Rev. B **62**, 11872 (2000).
42. P. Padhan, W. Prellier, and R. C. Budhani, Appl. Phys. Lett. **88**, 192509 (2006).
43. M. Ziese, I. Vrejoiu, E. Pippel et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 167203 (2010).
44. A. Y. Borisevich, A. R. Lupini, J. He et al., Phys. Rev. B **86**, 140102(R) (2012).
45. M. Ziese, F. Bern, A. Setzer et al., Eur. Phys. J. B **86**, 42 (2013).
46. В. Н. Меньшов, В. В. Тугушев, ЖЭТФ **125**, 136 (2004).
47. А. Е. Шейерман, К. И. Константибян, Г. А. Овсянников и др., ЖЭТФ **147**, 1185 (2015).
48. C. Richard, M. Houzet, J. S. Meyer, Phys. Rev. Lett. **110**, 217004 (2013).
49. Yu. N. Khaydukov, V. L. Aksenov, Yu. V. Nikitenko et al., J. Supercond. Nov. Magn. **24**, 961 (2011).