# Реакция критического тока композита сверхпроводник–половинный металл на гидростатическое давление

# 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: vkkononenko@gmail.com

Статья поступила в редакцию 22 сентября 2014 г., опубликована онлайн 27 января 2015 г.

В условиях гидростатического сжатия исследованы транспортные характеристики композита, состоящего из микрочастиц сверхпроводника  $MgB_2$  и нанопорошка ферромагнитного половинного металла  $La_{0,7}Ca_{0,3}MnO_3$  (LCMO). С повышением концентрации манганита LCMO выше порога протекания по  $MgB_2$  наблюдалось прохождение сверхтока по цепочкам сверхпроводник-ферромагнетик-сверхпроводник при толщине прослоек LCMO, на порядок превышающих магнитную длину когерентности  $\xi_M$ в половинном металле ( $\xi_M \leq 10$  Å). Такое поведение можно объяснить реализацией триплетных сверхпроводящих корреляций в половинном металле, возникающих благодаря спин-активной поверхности на наногранулах LCMO. Увеличение давления приводило к росту критического тока композита  $MgB_2$ -LCMO, в то время как критический ток и температура перехода чистого  $MgB_2$  уменьшались.

В умовах гідростатичного стискування досліджено транспортні характеристики композиту, що складається з мікрочасток надпровідника  $MgB_2$  і нанопорошку феромагнітного половинного металу  $La_{0,7}Ca_{0,3}MnO_3$  ((LCMO). З підвищенням концентрации манганита LCMO вище за поріг протікання по  $MgB_2$  спостерігалося проходження надструму по ланцюжках надпровідник–феромагнетик–надпровідник при товщині прошарків LCMO, що на порядок перевищують магнітну довжину когерентності  $\xi_M$  в половинному металі ( $\xi_M \le 10$  Å). Таку поведінку можна пояснити реалізацією триплетних надпровідних кореляцій в половинному металі, що виникають завдяки спін-активної поверхні на наногранулах LCMO. Збільшення тиску призводило до зростання критичного струму композиту  $MgB_2$ –LCMO, тоді як критичний струм і температура переходу чистого  $MgB_2$  зменшувалися.

РАСS: 74.40.-п Флуктуационные явления;

- 74.45.+с Эффекты близости; SN и SNS контакты;
- 74.62. Fj Эффекты давления;
- 74.90.+п Другие вопросы сверхпроводимости;

75.50.Tt Системы малых частиц, нанокристаллические материалы.

Ключевые слова: перколяционный кластер, спин-активная граница, критическая температура, вольтамперные характеристики, композиты ферромагнетик–сверхпроводник.

# Введение

Исследованию характеристик гетероструктур сверхпроводник-магнетик-сверхпроводник (S-M-S) в последнее время посвящено значительное число публикаций [1–12]. Однако, несмотря на большое число работ по проявлению эффекта близости в контактах сверхпроводника с ферромагнетиками, лишь в некоторых из них определялся критический ток [13–17]. В основном исследования были ограничены измерением температурных зависимостей гетероструктур, что во многом обусловлено сложностью измерений вольт-амперных характеристик (BAX) в направлении, нормальном к тонким слоям [18–22]. В настоящей работе измерены температурные зависимости сопротивления и BAX объемного композита из ферромагнитного манганита лантана (La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>) и сверхпроводника MgB<sub>2</sub> с разным объемным содержанием магнетика в условиях высоких гидростатических давлений. Давление можно использовать как эффективный способ определения природы контактов, возникающих в гранулярной среде. Для контактов металлического типа критический ток под давлением будет изменяться в соответствии с изменением отношения  $\Delta/R$  ( $\Delta$  — энергетическая щель сверхпроводящего берега контакта, R — сопротивление мостика в нормальном состоянии) [23]. Если межзеренные границы являются диэлектрическими или нормальными областями, то плотность критического тока запишем в виде

$$j_c \approx j \mathrm{e}^{-\zeta}, \qquad \zeta = \frac{d}{\xi_N},$$
 (1)

где d и  $\xi_N$  — толщина и длина когерентности нормального слоя соответственно [23]. При больших параметрах  $\zeta$  даже незначительное уменьшение толщины dможет привести к быстрому возрастанию критического тока. Такое различие в характере реакции на давление гранулярной среды с нормальными прослойками между гранулами и среды со сверхпроводящими закоротками позволяет в нашем случае по реакции критического тока исследуемого образца на давление однозначно определить, протекает ток через ферромагнитное включение или через сверхпроводящую закоротку.

Проведенные нами эксперименты показали, что если критический ток и критическая температура образца MgB<sub>2</sub> с увеличением давления убывали, то в композите при объемном содержании манганита  $p > p_c \approx 23\%$ критический ток существенно увеличивался. При этом наблюдалось сужение сверхпроводящего R(T)-перехода композита под действием давления, что свидетельствует об уменьшении флуктуационных эффектов и росте сверхпроводящих корреляций в композите [24,25].

#### Эксперимент

Исследованы транспортные характеристики композитов сверхпроводник-MgB2 (критическая температура сверхпроводящего перехода  $T_c = 39,5$  K) и манганит–La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> (точка Кюри  $T_C$  = 280 K) с различным объемным содержанием магнетика. Особенность этих композитов заключается в том, что диборид магния представлял собой порошок с размерами гранул d = 5-10 мкм, а La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> — нанопорошок, размер частиц которого составлял d = 10-30 нм. Измерения намагниченности показали, что порошинки манганита такого размера сохраняют магнитные свойства, близкие к свойствам монокристалла [26]. Однородный состав композита получался смешиванием компонентов в спирте с последующей сушкой и дополнительным механическим перемешиванием. Из полученной смеси под давлением P = 40-60 кбар прессовались пластинки с размерами 0,2×1×10 мм. Такие давления обеспечивали электрическую связь между гранулами и высокую механическую прочность пластинки. Токовые и потенциальные измерительные контакты изготавливали при прессовании пластинок с добавлением мелкодисперсного серебра в область предполагаемого контакта. Образцы не подвергались спеканию во избежание взаимной диффузии и химической реакции компонентов.

Таким образом, электрическая проводимость композита, который представляет собой механическую смесь компонентов, определяется характером строения перколяционного кластера. Выбор MgB2 в качестве матрицы обусловлен высокой проводимостью спрессованного аналогичным образом порошка MgB<sub>2</sub>, а также тем, что он имеет хорошо выраженный металлический характер, что указывает на чистоту межзеренных границ MgB<sub>2</sub>. Как известно, электротранспортные характеристики композитов зависят от структуры возникающего в композите проводящего кластера, особенно для сильно отличающихся по проводимости компонентов композита [27]. Если бесконечный перколяционный кластер по высокопроводящей фазе разорван, то транспортные характеристики композита будет определять более высокоомная фаза. В композите MgB2-LCMO высокоомной фазой является манганит LCMO. Это позволило, варьируя объемную концентрацию (р) для LCMO, определить порог протекания ( $p_c = 23 \text{ об.\%}$ ), выше которого транспортные характеристики композита обусловлены прохождением тока по цепочкам MgB2-LCMO-MgB2. Исходя из обычной перколяционной модели [27,28], малые (~20 об.%) добавки высокоомной фазы LCMO не могут разорвать бесконечный кластер по низкоомной фазе MgB<sub>2</sub>, доля которого в смеси ~ 80 об.%, а для протекания в трехмерных смесях достаточно 20 об.% низкоомной фазы. Наблюдаемое существенное отклонение от теории протекания в нашем случае объясняется большим различием размеров гранул MgB<sub>2</sub> и порошинок LCMO. В результате при *p* > 23 об.% порошинки LCMO покрывают поверхность больших гранул MgB<sub>2</sub>, исключая непосредственный контакт между ними.

Эксперименты по влиянию высоких гидростатических давлений на температурные зависимости сверхпроводящего перехода и критического тока композитов MgB<sub>2</sub>–LCMO выполнялись в камере высокого давления типа поршень–цилиндр [29]. Передающей давление средой служила смесь керосин–масло. Кроме образца, в камере находился датчик температуры из платиновой проволоки и манганиновый датчик давления.

## Результаты

На рис. 1 приведена зависимость удельного сопротивления  $\rho$  композита MgB<sub>2</sub>–LCMO от объемного содержания LCMO при температуре T = 300 К. Быстрое изменение удельного сопротивления образца происходит в районе 23 об.% LCMO. Температурный ход со-



*Рис. 1.* Зависимость удельного сопротивления р композита от объемного содержания LCMO. На вставке показаны R(T)-зависимости MgB<sub>2</sub> (1), MgB<sub>2</sub>–LCMO при объемном содержании LCMO 15 (2), 27 (3) и 34 (4) об.% соответственно. Зависимости R(T) нормированы при T = 50 К.

противления для чистого MgB<sub>2</sub> и композита MgB<sub>2</sub>– LCMO (15, 27 и 34 об.% LCMO) представлен на вставке рис. 1. На рисунке видно, что добавка 15 об.% манганита в MgB<sub>2</sub> не изменяет характер R(T)-перехода, который совпадает с R(T)-зависимостью чистого MgB<sub>2</sub>. Но уже 27%-ная добавка LCMO существенно уширяет резистивный сверхпроводящий R(T)-переход композита. Сопротивление образца с 34 об.% нанопорошка LCMO в MgB<sub>2</sub> остается конечным во всем исследуемом интервале температур, хотя начало R(T)-перехода композита совпадает с началом сверхпроводящего перехода чистого MgB<sub>2</sub>. Отметим, что температурные зависимости сопротивления снимались на установке PPMS-9 при величинах измерительных токов (10–100 мкА), которые не влияли на форму R(T)-перехода.

Оценка толщины прослоек манганита от его объемного содержания в композите при характерных размерах пластинок диборида магния ~5×3×2 мкм показывает, что при однородном распределении достаточно ~18 об.% LCMO для получения толщины прослойки d ~ 50 нм, что более чем на порядок превышает магнитную длину когерентности  $\xi_M$  в половинном металле  $(\xi_{M} \le 10 \text{ Å})$  [5,8,11,15,16]. Это приводит к тому, что уже при малых концентрациях манганита все гранулы MgB<sub>2</sub> могут покрываться наночастицами LCMO. В результате прямой контакт гранул MgB2 исключается, а сопротивление композита определяется протеканием тока по цепочкам LCMO-MgB2-LCMO и т.д., что и приводит к значительному уширению кривой R(T) сверхпроводящего перехода (вставка на рис. 1). На такую структуру композита указывают также измерения плотности прессованных образцов. Так, плотность пластинок MgB<sub>2</sub> при давлениях 40-60 кбар составляла (72±3)% от плотности монокристалла MgB<sub>2</sub>. Плотность спрессованного нанопорошка LCMO при тех же давлениях достигала (65±5)%, а плотность композита MgB<sub>2</sub>-LCMO (27 об.%)

составила (93±3)% расчетной плотности. Такая высокая плотность композита свидетельствует о том, что нанопорошок LCMO под действием высоких одноосных давлений «растекался» по объему образца, заполняя поры между значительно большими гранулами MgB<sub>2</sub>.

На рис. 2 представлены вольт-амперные характеристики образцов MgB2-LCMO (27 и 34 об.% LCMO). Если для образцов, содержащих 27 об.% LCMO (главная панель рис. 2), наблюдается критический ток, то для 34 об.% LCMO (вставка, рис. 2) ВАХ не демонстрирует критического тока и принимает форму, характерную для среды из слабосвязанных джозефсоновских контактов с избыточным током I<sub>exc</sub>. То есть наблюдается превышение I<sub>exc</sub> тока в сверхпроводящем состоянии над током в нормальном состоянии. Такую ситуацию можно смоделировать на структуре большого числа слабосвязанных S-N-S-контактов [30-32]. На рис. З приведены температурные зависимости сверхпроводящего перехода для образца MgB2-LCMO (27 об.% LCMO) при нулевом давлении и P = 12 кбар. Под действием давления начало перехода композита сдвигалось в сторону низких температур, а область размытия, начиная с середины R(T)-перехода, смещалась в область высоких температур. Такая реакция температурной зависимости сопротивления композита на давление связана с двумя факторами: отрицательным значением  $dT_c/dP$  для MgB<sub>2</sub> и реакцией на давление межзеренных прослоек. На вставке рис. 3 представлено влияние давления на зависимость сверхпроводящего R(T)-перехода для образца MgB<sub>2</sub>. Как видно, под действием давления критическая температура перехода падает со скоростью  $dT_{c}(P)/dP \approx 0,1$  К/кбар. Эти значения  $dT_c/dP$  согласуются с данными, приведенными в обзоре [33]. Уменьшение размытия кривой R(T)-перехода для композита (рис. 3) коррелирует с возрастанием критического тока, что также характерно для реакции джозефсоновских сред на гидростатическое сжатие [24,25].



*Рис.* 2. Вольт-амперные характеристики композитов  $MgB_2$ -LCMO с 27 (основная панель) и 34 (на вставке) об.% LCMO, измеренные при *T* = 4,2 К.



*Рис. 3.* Влияние гидростатических давлений на температурную зависимость сверхпроводящего перехода MgB<sub>2</sub>–LCMO (27 об.% LCMO). На вставке — влияние давления на температурную зависимость сопротивления образца MgB<sub>2</sub>.

Влияние давления на вольт-амперные характеристики образцов MgB<sub>2</sub> и MgB<sub>2</sub>-LCMO показано на рис. 4. Критический ток сверхпроводников второго рода зависит от давления в соответствии с изменением постоянной решетки и критической температуры. Критическая температура MgB<sub>2</sub> убывает с увеличением давления (рис. 3), соответственно, для образцов MgB<sub>2</sub> под давлением наблюдается уменьшение критического тока (вставка на рис. 4). Напротив, для образцов композита MgB2-LCMO давление приводило к увеличению критического тока (рис. 4, главная панель). Таким образом, эксперименты по влиянию давления на транспортные характеристики композита MgB2-LCMO указывают на формирование структуры слабосвязанных контактов S-N-S-типа. Сравнительно большая величина критического тока композита (рис. 4) исключает большое отношение  $\zeta = d/\xi_N$ , при котором критический ток (1) экспоненциально подавляется ( $d \ge 10$  нм).



*Рис. 4.* Влияние высоких гидростатических давлений на вольтамперную характеристику композита  $MgB_2$ –LCMO (27 об.% LCMO). На вставке — влияние давления на вольт-амперную характеристику  $MgB_2$ . Зависимости измерены при T = 4,2 К.

Low Temperature Physics/Физика низких температур, 2015, т. 41, № 3

То есть длина когерентности  $\xi_N$  в LCMO намного превышала магнитную длину когерентности в половинном металле  $\xi_M \le 1$  нм [5,6,8,12].

Известно, что на поверхности гранул манганитов имеется слой, намагниченность которого отлична от намагниченности объема гранул [26]. Как показано в [34], давление порядка 10 кбар приводит к металлизации этого слоя, при этом проводимость межзеренных прослоек композита резко возрастает, что увеличивает сверхпроводящую составляющую тока между берегами MgB2. В исследуемых нами объектах парадоксально то, что «нормальным металлом» в S-N-S-контактах является ферромагнетик LCMO, на поверхности Ферми которого присутствуют электроны только с одним направлением спина (половинный металл). В таком случае куперовская пара с s-волновой симметрией параметра порядка (MgB<sub>2</sub>) и противоположным направлением спинов электронов не может беспрепятственно проникнуть через ферромагнетик La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> на расстояния ≥ 10 нм без разрушения пары [1,2,5,8,35–38]. Однако ситуация складывается иначе, если интерфейс между MgB<sub>2</sub>-LCMO представляет собой спин-активную границу [1-5,8,14-17]. Роль спин-активной границы может играть поверхность гранул, направление намагниченности в которой отличается от такового в объеме [1,2,4,12,15–17]. О существовании такой поверхности в нашем случае свидетельствует аномальная реакция на давление критического тока, которую можно объяснить металлизацией поверхностных слоев [34]. При наличии спин-активной границы на гранулах манганита появляется возможность трансформации куперовских пар в триплетные корреляции, обеспечивающие протекание сверхпроводящего тока через половинный металл LCMO.

## Заключение

Проведенные эксперименты показывают, что в композитах  $MgB_2$ –LCMO образуется сетка слабосвязанных контактов  $MgB_2$ –La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>–MgB<sub>2</sub> и реализуется режим протекания сверхтекучей компоненты тока через половинный металл La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>. Эксперименты под давлением демонстрируют также, что интерфейс между  $MgB_2$  и LCMO отличается по свойствам от объема и, видимо, представляет собой спинактивную область, при прохождении через которую куперовские пары с *s*-волновой симметрией параметра порядка приобретают триплетные корреляции, что обеспечивает протекание сверхтока через ферромагнитный половинный металл La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>.

- F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Phys. Rev. Lett.* 86, 4096 (2001).
- F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* 77, 1321 (2005).

- 3. M. Houzet and A.I. Buzdin, *Phys. Rev. B* **76**, 060504(R) (2007).
- 4. A.F. Volkov and K.B. Efetov, Phys. Rev. B 81, 144522 (2010).
- M. Eschrig, J. Kopu, J.C. Cuevas, and G. Schön, *Phys. Rev.* Lett. 90, 137003 (2003).
- Y. Asano, Y. Tanaka, and A.A. Golubov, *Phys. Rev. Lett.* 98, 107002 (2007).
- A.V. Galaktionov, M.S. Kalenkov, and A.D. Zaikin, *Phys. Rev. B* 77, 094520 (2008).
- 8. M. Eschrig and T. Löfwander, Nature Physics 4, 138 (2008).
- 9. K. Halterman and O.T. Valls, *Phys. Rev. B* **80**, 104502 (2009).
- R. Grein, T. Löfwander, G. Metalidis, and M. Eschrig, *Phys. Rev. B* 81, 094508 (2010).
- T. Löfwander, R. Grein, and M. Eschrig, *Phys. Rev. Lett.* 105, 207001 (2010).
- 12. M. Eschrig, Phys. Today 64, 43 (2011).
- M.Q. Huang, Z.G. Ivanov, P.V. Komissinski, and T. Claeson, *Physica C* 79, 326 (1999).
- R.S. Keizer, S.T.B. Goennenwein, T.M. Klapwijk, G. Miao, and A. Gupta, *Nature (London)* 439, 825 (2006).
- M.S. Anwar, M. Hesselberth, M. Porcu, and J. Aarts, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 226401 (2010).
- M.S. Anwar and J. Aarts, Supercond. Sci. Technol. 24, 024016 (2011).
- Г.А. Овсянников, А.Е. Шейерман, А.В. Шадрин, Ю.В. Кислинский, К.И. Константинян, А. Калабухов, *Письма* в ЖЭТФ 97, 1650169 (2013).
- P. Prieto, P. Vivas, G. Campillo, E. Baca, L.F. Castro, M. Varela, C. Ballesteros, D. Arias, C. León, and J. Santamaria, *J. Appl. Phys.* 89, 8026 (2001).
- V. Peña, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon, J. Santamaria, M. Varela, S.J. Pennycook, and J.L. Martinez, *Phys. Rev. B* 69, 224502 (2004).
- P. Przysłupski, I. Komissarov, W. Paszkowicz, P. Dluzewski, R. Minikayev, and M. Sawicki, *Phys. Rev. B* 69, 134428 (2004).
- S. Soltan, J. Albrecht, and H.-U. Habermeier, *Phys. Rev. B* 70, 144517 (2004).
- C. Visani, J. Tornos, N.M. Nemes, M. Rocci, C. Leon, J. Santamaria, S.G.E. te Velthuis, Y. Liu, A. Hoffmann, J.W. Freeland, M. Garcia-Hernandez, M.R. Fitzsimmons, B.J. Kirby, M. Varela, and S.J. Pennycook, *Phys. Rev. B* 84, 060405(R) (2011).
- 23. А. Бароне, Дж. Патерно. Эффект Джозефсона: физика и применение, Мир, Москва (1984).
- В.Г. Барьяхтар, О.В. Григуть, А.В. Василенко, А.И. Дьяченко, В.М. Свистунов, В.Ю. Таренков, О.И. Черняк, *Письма в ЖЭТФ* 47, 457 (1988).
- В.М. Свистунов, В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, О.В. Григуть, О.И. Черняк, А.В. Василенко, *ФТТ* 30, 3498 (1988).
- T. Sarkar, M.V. Kamalakar, and A.K. Raychaudhuri, *New J. Phys.* 14, 033026 (2012).
- X. Liu, R. P. Panguluri, Zhi-Feng Huang and B. Nadgorny, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 035701 (2010)
- D. Stauffer and A. Aharony, *Introduction to Percolation Theory*, 2nd Edition, Taylor and Francis, London (1992).
- 29. Е.С. Ицкевич, ПТЭ, №4, 148 (1963).

- M.S. da Luz, C.A.M. dos Santos, M.J.R. Sandim, A.J.S. Machado, and R.F. Jardim, *Brazilian J. Phys.* 37, N3B, 1155 (2007).
- C.A.M. dos Santos, C.J.V. Oliveira, M.S. da Luz, A.D. Bortolozo, M.J.R. Sandim, and A.J.S. Machado, *Phys. Rev. B* 74, 184526 (2006).
- 32. А.И. Дьяченко, В.Ю. Таренков, ЖЭТФ 91, 891 (1986).
- C. Buzea and T. Yamashita, Supercond. Sci. Technol 14, 115 (2001).
- В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, В.Н. Криворучко, ЖЭТФ 120, 205 (2001).
- 35. А.И. Ларкин, Ю.Н. Овчинников, ЖЭТФ 47, 1136 (1964).
- 36. P. Fulde and R.A. Ferrell, Phys. Rev. 135, A550 (1964).
- Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Прошин, М.Г. Хусаинов, УФН 172, 113 (2002).
- 38. A.I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. 77, 935 (2005).
  - The critical current reaction on hydrostatic pressure of a superconductor–semimetal composite
  - V.V. Kononenko, V.Yu. Tarenkov, A.I. Dyachenko, and V.N. Varukhin

The transport characteristics of a composite that consists of microparticles superconductor MgB2 and nanopowder ferromagnetic semimetal La0.7Ca0.3MnO3 (LCMO) are investigated under hydrostatic compression. It is found that as the increasing concentration of manganite LCMO is increased above the percolation threshold for MgB2 one can observe the overcurrent passage through the superconductor-ferromagnetsuperconductor chains with a LCMO thickness that exceeds the magnetic coherence length  $\xi_M$  in the semimetal ( $\xi_{\rm M} \leq 10$  Å) by the order of magnitude. This behavior is attributable to the presence of superconducting triplet correlations in the semimetal, arising due to the spinactive surface nanogranular of LCMO. The pressure causes the critical current of the MgB2-LCMO composite to increase and the critical current and the transition temperature of pure MgB<sub>2</sub> to decrease.

PACS:	74.40.–n	Fluctuation phenomena;
	74.45.+c	Proximity effects; SN and SNS
	contacts;	
	74.62.Fj	Effects of pressure;
	74.90.+n	Other issues superconductivity;
	75.50.Tt	Systems of small particles;
	nanocrystal materials.	

Keywords: percolation cluster, the spin-active surface, the critical temperature, the current-voltage characteristics, ferromagnet–superconductor composite.