



Heiko Alexander Stalzer (Autor)
**Magnetisierung von supraleitenden Nb/Ag- und
Nb/Ag/Fe-Proximity-Schichtsystemen**

Heiko Alexander Stalzer

**Magnetisierung von supraleitenden
Nb/Ag- und Nb/Ag/Fe-
Proximity-Schichtsystemen**



Cuvillier Verlag Göttingen

<https://cuvillier.de/de/shop/publications/2611>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,
Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>

Kapitel 1

Einleitung

Im Rahmen dieser Arbeit werden die magnetischen Eigenschaften von Supraleiter/Normalleiter (SN)- und Supraleiter/Normalleiter/Ferromagnet (SNF)-Schichtsystemen untersucht. Verwendet werden Nb als Supraleiter, Ag als Normalleiter und Fe als Ferromagnet. Für konventionelle Supraleiter (BCS-Supraleiter) ist die elektronische Zustandsdichte $D(E_F)$ an der Fermi-Kante und die Elektron-Phonon-Kopplung V ein entscheidendes Maß für die Höhe der supraleitenden Sprungtemperatur

$$T_c = (1.13\hbar\omega_D/k_B)\exp(-1/D(E_F)V).$$

Schon frühe Untersuchungen ergaben, dass die Elektron-Phonon-Kopplung zur Ausbildung der Supraleitung in Edelmetallen und ihren Legierungen im fcc-Gitter für experimentell zugängliche Temperaturen zu klein ist [1–3]. Extrapolierte Werte der Übergangstemperaturen von Ag, mit verschiedenen Konzentrationen an zulegierten Supraleitern, ergeben eine Obergrenze von ungefähr 1 nK [4,5]. Um solche niedrigen Übergangstemperaturen nachzuweisen, sind überdies extrem reine Proben erforderlich, da in diesem Fall die Supraleitung durch magnetische Verunreinigungen im ppm-Bereich zerstört werden kann.

Unterhalb einer kritischen Temperatur T_c bilden sich im Supraleiter korrelierte Elektronenpaare, die so genannten Cooper-Paare, die den widerstandslosen Transport und den Diamagnetismus im supraleitenden Zustand tragen. Diese Korrelationen, und damit auch die supraleitenden Eigenschaften, können in ein angrenzendes normalleitendes Material induziert werden. Dies bezeichnet man als Proximity-Effekt. Das Paarpotenzial oder auch Ordnungsparameter der Supraleitung ist proportional zur Dichte der korrelierten Cooper-Paare und verschwindet beim Phasenübergang in den normalleitenden Zustand [6–8]. Notwendige Bedingung zur Definition des supraleitenden Ordnungsparameters ist das Vorhandensein einer attraktiven Wechselwirkung zur Bildung der Cooper-Paare. Da in einem Normalmetall (N), wie zum Beispiel Ag, diese attraktive Wechselwirkung bei allen experimentell erreichbaren Temperaturen fehlt, ist auch

das Paarpotenzial Null. Damit gehören Proximity-Systeme zu der Klasse der Supraleiter mit ortsabhängigem Ordnungsparameter, die im Folgenden auch als heterogene Supraleiter bezeichnet werden.

Schichtabfolgen aus supra-, normal- oder halbleitenden Materialien sind z.B. in supraleitenden Tunneldioden zu finden, die als Röntgen- und Teilchendetektoren [9–11] verwendet werden. Josephson-Wechselströme in Josephson-Kontakten [12, 13], in denen zwei Supraleiter z.B. durch eine nichtleitende Schwachstelle verbunden sind, werden heutzutage zur Definition des Spannungsnormals verwendet [9, 14, 15]. Auf der Suche nach schnellerer, leistungsfähigerer und energiesparender Elektronik rückten hybride Strukturen aus Supraleitern und Halbleitern, wie z.B. der Josephson-Feldeffekt-Transistor (JoFET) [16–18], in das Interesse der Forschung. Sowohl experimentell als auch theoretisch werden Josephson-Kontakte zur Realisierung von Quantenrechnern untersucht [19–21]. Der Vorteil gegenüber klassischen Methoden liegt in der parallelen Informationsverarbeitung, der ein Überlagerungszustand eines Zweiniveausystems zugrunde liegt. Gewöhnlich wird er durch Zuschalten eines externen Parameters, z.B. ein B -Feld, erzeugt. Der Nachteil dieser Methode liegt darin, dass der Überlagerungszustand und seine Phasenbeziehung sehr empfindlich gegenüber Schwankungen des externen Parameters ist. Das Ziel ist, seine Kohärenz möglichst lange aufrecht zu erhalten und während dieser Zeit die Rechenoperationen auszuführen. Die Konfiguration mit einem Ferromagneten als Schwachstelle führt bei geeigneter Dimensionierung der Schichtdicke und der Austauschwechselwirkung von F zu einem π -Kontakt [22, 23]. Damit stellt sich ohne externes Magnetfeld ein stabiler Überlagerungszustand mit langen Kohärenzzeiten ein. In Kapitel 5 soll gezeigt werden, dass die untersuchten SNF-Schichtsysteme prinzipiell zur Realisierung solch eines π -Kontakts geeignet sind. Für all die genannten Anwendungen ist ein fundiertes Verständnis von Proximity-Systemen nötig, wozu diese Arbeit beitragen möchte.

Bevor die mikroskopische BCS-Theorie von Bardeen, Cooper und Schrieffer [13, 24, 25], 1957 zur erfolgreichen Beschreibung der Supraleitung führte, stellten Ginzburg und Landau [6, 13, 26] 1950 einen phänomenologischen Ansatz vor. Damit wurde die Beschreibung von Typ-II-Supraleitern als erstem Beispiel mit ortsabhängigem Ordnungsparameter möglich. Mit Hilfe quantenfeldtheoretischer Methoden gelang es Gorkov 1959-60 [7, 27–29], die BCS-Theorie auf Supraleiter mit ortsabhängigem Ordnungsparameter zu erweitern. Diese so genannte Ginzburg-Landau-Abrikosov-Gorkov (GLAG)-Theorie bildet bis heute die Grundlage für die Beschreibung der Proximity-Systeme. Schon bald wurden auch die Auswirkungen von magnetischen Verunreinigungen auf die Supraleitung untersucht. Im Gegensatz zu unmagnetischen Störstellen brechen sie die Zeitumkehrsymmetrie [30] und senken in ihrer Nähe die Paaramplitude ab, was Auswirkungen auf das kritische Feld und die Übergangstemperatur des Supraleiters hat [31, 32]. Auch die Koexistenz von Supraleitung und Ferromagnetismus in Form eines cryptoferromagnetischen Zustands [33], bei dem die Supraleitung aufgrund der langskaligen Modulation der magnetischen Ordnung nicht zerstört wird, wurde bald

diskutiert. Sie ist heutzutage noch Bestandteil der aktuellen Forschung [34].

In den Folgejahren untersuchte die Orsay-Gruppe [35, 36] intensiv die Auswirkungen einer normalleitenden Schicht auf die Übergangstemperaturen eines angrenzenden Supraleiters und die durch ihn induzierten thermodynamischen, magnetischen und elektrischen Eigenschaften des Normalleiters. Die planaren normalleitenden Schichten wurden durch die Theorie von Werthamer et al. [7, 37–40] im „dirty limit“-Grenzfall ($l_N \ll \{\xi_N(T), d_N\}$) beschrieben, in der nichtlokale Effekte vernachlässigt werden. Mit l_N wird die mittlere freie Weglänge, mit ξ_N die Kohärenzlänge und mit d_N die Schichtdicke in N bezeichnet. Erst als es möglich war, Proben mit großer mittlerer freier Weglänge herzustellen („clean limit“: $l_N \gg \min\{\xi_N(T), d_N\}$), musste man nichtlokale Effekte berücksichtigen. Diese treten auf, wenn sich das magnetische Feld B in N auf einer sehr viel kleineren Skala ändert als die Kohärenzlänge ξ_N . 1982 berechnete Zaikin [41] den Einfluss der Nichtlokalität auf die Suszeptibilität des Normalleiters einer SN-Doppelschicht. Es treten räumliche Oszillationen in der Magnetisierung auf, die bei $T = 0$ K, im Vergleich zu $\chi_N = -1$ im lokalen Fall, zu einer reduzierten diamagnetischen Suszeptibilität $\chi_N = -3/4$ führen.

Oda und Nagano [42] führten 1978 die ersten Messungen an drahtförmigen Proximity-Systemen durch. Bei einem Temper-Prozess wurden die Versetzungen ausgeheilt, die beim Strecken der Proben zur Erlangung der erforderlichen Abmessungen erzeugt werden. Dadurch sind mittlere freie Weglängen l_N möglich, die Werte in der Größenordnung der normalleitenden Schichtdicke aufweisen. Die Proben bestanden aus einem Nb- oder NbTi-Kern mit einem Kupfermantel und wiesen noch Eigenschaften des „dirty limit“ ohne das Auftreten von vollständigem Diamagnetismus auf. 1982 zeigten Mota, Marek und Weber [43] an Proben mit mittleren freien Weglängen l_N in der Größenordnung der Manteldicke d_N von einigen Mikrometern die ersten Magnetisierungsmessungen mit einem scharfen diamagnetischen Phasenübergang, der auf die induzierte Supraleitung im Ag zurückzuführen ist. Dieser Übergang findet bei Temperaturen unterhalb der Sprungtemperatur des Niobs statt. Sie erstellten ein magnetisches Phasendiagramm des Normalleiters und charakterisierten den Phasenübergang erster Ordnung, der Hystereseeffekte zeigt. Visani et al. berichteten über ein paramagnetisches Wiedereintrittsverhalten der Magnetisierung bei tiefen Temperaturen [44], was bis heute nicht erklärt werden kann. Man vermutet, dass sich aufgrund der großen mittleren freien Weglänge eine neue makroskopische Quantenkohärenz ausbilden kann. Bruder und Imry [45] stellten ein theoretisches Modell vor, in dem sie versuchen, den Effekt unter Einbeziehung der zylindrischen Symmetrie zu erklären. Der spontane paramagnetische Abschirmstrom wird von Andreev-Paaren getragen, die sich unter streifendem Winkel zirkular an der Vakuumgrenzfläche bewegen und zu dieser Quantenkohärenz führen. Es existiert ebenfalls ein Modell für planare SN-Doppelschichten [46, 47], unter der Annahme eines repulsiven Potenzials in N. Durch den Phasensprung des Paarpotenzials an der SN-Grenzfläche entsteht ein π -Kontakt. Die Entartung energetisch tief liegender und gebundener Andreev-Zustände in einem externen B -Feld führt zur Ausbildung

eines paramagnetischen Abschirmstroms. Alle Modelle kommen jedoch nicht zu einer quantitativen Übereinstimmung mit den Experimenten. Ein Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, herauszufinden, ob solch ein Wiedereintrittsverhalten auch bei planaren Schichtsystemen existiert.

Die Arbeit gliedert sich in fünf Kapitel. In Kapitel 2 werden die wichtigsten theoretischen Grundlagen zum Proximity-Effekt diskutiert. In diesem Zusammenhang werden die Bogoliubov-de Gennes Gleichungen und die quasiklassischen Eilenberger-Gleichungen vorgestellt. Es folgt die Diskussion des Proximity-Effekts im Bild der Andreev-Reflexion, bei dem die mittlere freie Weglänge in N eine entscheidende Rolle spielt. Die charakteristischen Energie- und Längenskalen und damit auch das thermodynamische und magnetische Verhalten hängen entscheidend davon ab, ob sich die N-Schicht im ballistischen Grenzfall („clean limit“, $l_N \gg \min\{\xi_N(T), d_N\}$), diffusiven Grenzfall („dirty limit“, $l_N \ll \{\xi_N(T), d_N\}$) oder im Zwischenregime befindet. Zum besseren Verständnis der SNF-Schichten wird der Effekt eines Austauschfelds auf die Propagation von Andreev-Paaren in einem Ferromagneten anhand von SF-Kontakten erläutert.

Kapitel 3 beginnt mit der Vorstellung der Proben und ihrer Grundcharakterisierung. Darauf folgt eine Einführung in die experimentellen Untersuchungsmethoden. Die Magnetisierung wird mittels eines SQUID (Superconducting Quantum Interference Detector)-Gradiometers oder eines Foner-Gradiometers erster Ordnung gemessen. Die experimentellen Ergebnisse zur ortsabhängigen Magnetisierung eines dünnen Supraleiters werden mit Hilfe der Methode finiter Elemente bestätigt.

In Kapitel 4 werden Magnetisierungsmessungen an Nb/Ag-Doppelschichten ($d_N = 200 - 800 \text{ nm}$) vorgestellt. Die Proben besitzen mittlere freie Weglängen l_N in der Größenordnung der Schichtdicke d_N und weisen somit Eigenschaften auf, die sich im Zwischenregime von „dirty“ und „clean limit“ befinden. Anhand des Phasendiagramms lassen sich die charakteristische Energie und die kritischen Felder ermitteln. Da die Übergangstemperaturen des Silbers im Bereich von einigen Kelvin liegen, treten nicht-lineare Effekte in der magnetfeldabhängigen Magnetisierung auf. Des Weiteren soll anhand unserer Ergebnisse die Frage eines paramagnetischen Wiedereintrittsverhaltens diskutiert werden.

Kapitel 5 behandelt die Auswirkungen auf den Proximity-Effekt einer zusätzlichen ferromagnetischen Schicht an der Grenzfläche zu N in SNF- und SNIF-Schichten, wobei bei den letzteren der Ag- und der Fe-Film mittels einer Isolationsschicht aus SiO_2 getrennt sind. Dabei soll die paarbrechende Wirkung der Fe-Schicht ($d_F = 42 \text{ nm}$) auf die Andreev-Paare untersucht werden. Man kann dabei die Koexistenz von Supraleitung und Ferromagnetismus untersuchen, die durch das Wechselspiel der beiden charakteristischen Energieskalen, der Austauschwechselwirkung I und der Andreev-Energie E_A , beeinflusst wird.

Die Arbeit schließt mit Kapitel 6 als Zusammenfassung.

Kapitel 2

Theorie des Proximity-Effekts

Die BCS-Theorie ist in ihrer ursprünglichen Formulierung aufgrund der Annahme eines ortsunabhängigen Ordnungsparameters nicht in der Lage, Proximity-Systeme theoretisch zu beschreiben. Es musste daher nach weiterführenden mikroskopischen Ansätzen gesucht werden, die den geänderten Randbedingungen in heterogenen Systemen gerecht werden.

Bevor die BCS-Theorie zur Beschreibung der Supraleitung entwickelt wurde, existierte mit der Einführung eines ortsabhängigen Ordnungsparameters zur Behandlung von Phasenübergängen, ein phänomenologischer Ansatz von Ginzburg und Landau [26]. Im Fall der Supraleitung entspricht der Ordnungsparameter der Dichte der Cooper-Paare $|\psi(\vec{r})|^2$. In der Ginzburg-Landau (GL)-Theorie ist die Kohärenzlänge $\xi_{GL} \sim \xi_0/(1 - T/T_C)^{1/2}$ die charakteristische Längenskala, über die der Ordnungsparameter zwischen supra- und normalleitenden Bereichen variieren kann. In der BCS-Theorie wird die Kohärenzlänge ξ_{BCS} als temperaturunabhängig angenommen und beschreibt die mittlere Ausdehnung der Cooper-Paare. Allerdings kann die GL-Theorie keine Aussagen über den mikroskopischen Mechanismus der Supraleitung machen, was in ihrem universellen Ansatz begründet ist. Im Gegensatz zur GL-Theorie ist die BCS-Theorie nicht in der Lage, z.B. Typ-II-Supraleiter zu beschreiben, da hier die Existenz der Flussschläuche zu einer Modulation der Paaramplitude führt. Typ-II-Supraleiter sind in Magnetfeldern $B < B_{c2}$ (oberes kritisches Feld des Supraleiters) in supraleitende Bereiche ($|\psi(\vec{r})|^2 \neq 0$) und normalleitende Bereiche ($|\psi(\vec{r})|^2 = 0$), in Form von Flussschläuchen, unterteilt. Um die Lücke zwischen den beiden Beschreibungen zu schließen, arbeitete Gorkov mit feldtheoretischen Methoden eine weiter entwickelte Theorie aus, die so genannte Ginzburg-Landau-Abrikosov-Gorkov (GLAG)-Theorie [7]. Dadurch bekamen der Ordnungs- und die GL-Parameter der GL-Theorie eine mikroskopische Bedeutung. Die GLAG-Theorie ist seitdem die Grundlage zur theoretischen Beschreibung von heterogenen Supraleitern mit ortsabhängigem Ordnungsparameter, wie z.B. Proximity-Systemen.

In dieser Arbeit werden sowohl Supraleiter/Normalleiter (SN)- als auch Supralei-

ter/Normalleiter/Ferromagnet (SNF)-Kontakte untersucht. Auf mikroskopischer Ebene wird der Proximity-Effekt durch den Prozess der Andreev-Reflexion beschrieben, bei dem ein Quasiteilchen an der SN-Grenzfläche mit entgegengesetzter Ladung reflektiert wird. Die Propagation von korrelierten Elektron-Loch-Paaren in Ferromagneten wird in Kap. 2.3 beschrieben. Sie weicht aufgrund der Existenz der ferromagnetischen Austauschwechselwirkung vom Verhalten in einem Normalleiter ab.

2.1 Der supraleitende Grundzustand

Bei Temperaturen unterhalb des Phasenübergangs bildet sich in Supraleitern ein neuer Grundzustand mit erhöhter kinetischer Energie aus. Die nach der BCS-Theorie berechnete Übergangstemperatur T_c wird laut Gl. 2.1 maßgeblich durch die Stärke der attraktiven Wechselwirkung V und die Höhe der Elektronenzustandsdichte an der Fermi-Kante $D(E_F)$ bestimmt.

$$k_B T_c = 1.13 \hbar \omega_D \exp(-1/D(E_F)V) \quad (2.1)$$

ω_D ist die Debye-Frequenz des Supraleiters. Die Fermi-Kante wird für $T = 0$ K im Bereich $2\Delta_S$ um die Fermi-Energie E_F herum aufgeweicht (Abb. 2.1). Die Energiezustände sind paarweise mit der Wahrscheinlichkeit v_k mit Elektronen entgegengesetzten Spins besetzt und mit der Wahrscheinlichkeit $u_k = 1 - v_k$ unbesetzt. Diese Unbestimmtheit ist Ausdruck eines quantenmechanischen Überlagerungszustands, wie er im normalleitenden Zustand nicht vorkommt. Durch die attraktive Wechselwirkung im Bereich der Energielücke entsteht ein Vielteilchenzustand aus virtuellen Elektron-Loch-Anregungen. Aufgrund der Aufweichung der Fermi-Verteilungsfunktion $f(E)$ bekommen die Elektronen mit den Wellenvektoren $(\vec{k}, -\vec{k})$ paarweise die Möglichkeit, über eine attraktive phononische Wechselwirkung $V_{k,k'}$ in andere Zustände $(\vec{k}', -\vec{k}')$ zu streuen und können dadurch die Gesamtenergie des Systems absenken. Die Bildung dieser korrelierten Cooper-Paare setzt die Kondensationsenergie

$$\Delta_{S,k} = - \sum_{k'} V_{k,k'} \langle \hat{c}_{k'} \hat{c}_{k'} \rangle = - \sum_{k'} V_{k,k'} v_{k'} u_{k'} \quad (2.2)$$

frei und überkompensiert den Zuwachs an kinetischer Energie. $\langle \hat{c}_{k'} \hat{c}_{k'} \rangle$ beschreibt die Cooper-Paardichte, wobei $\Delta_{S,k}$ auch als Ordnungsparameter oder Paarpotenzial bezeichnet wird und im normalleitenden Zustand verschwindet. An der Fermi-Kante bildet sich eine Energielücke $2\Delta_S$. Unter Verwendung der Hartree-Fock-Näherung kann man den Hamilton-Operator in zweiter Quantisierung wie folgt schreiben [8]:

$$\hat{H} = \int d^3r [\hat{\Psi}_\alpha^\dagger(\vec{r}) H_0 \hat{\Psi}_\alpha(\vec{r}) + \hat{\Psi}_\alpha^\dagger(\vec{r}) U(\vec{r}) \hat{\Psi}_\alpha(\vec{r})] \quad (2.3)$$

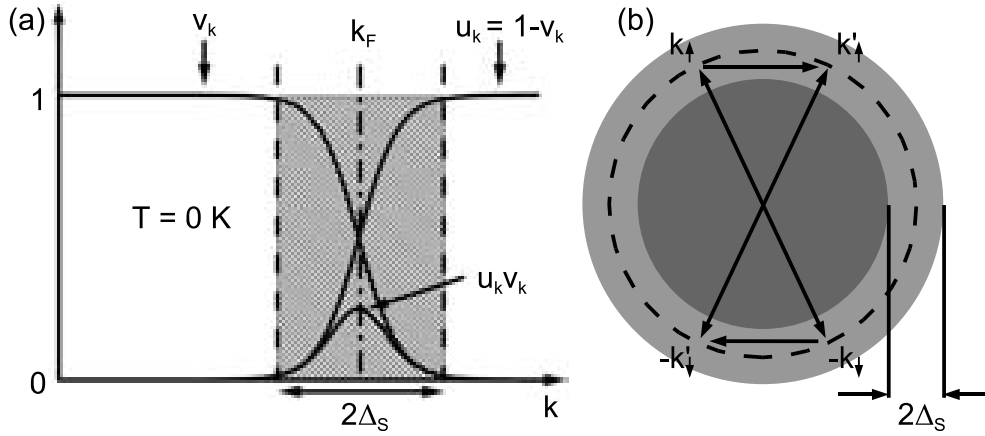


Abb. 2.1: (a) Quantenmechanische Besetzungswahrscheinlichkeit v_k im supraleitenden Zustand bei $T=0$ K. Das Produkt $u_k v_k$ gibt die Paaramplitude der Cooper-Paare im Energiebereich $2\Delta_S$ an. (b) Das attraktive Potenzial $V_{kk'}$ führt zur paarweisen Streuung der Elektronen innerhalb $2\Delta_S$ an der Fermi-Kante und damit zur Bildung von Cooper-Paaren.

$$+\Delta_S(\vec{r})\hat{\Psi}_\uparrow^\dagger(\vec{r})\hat{\Psi}_\downarrow^\dagger(\vec{r}) + \Delta_S^*(\vec{r})\hat{\Psi}_\downarrow(\vec{r})\hat{\Psi}_\uparrow(\vec{r})]$$

Gegenüber der BCS-Theorie ist hier schon ein allgemein ortsabhängiger Ordnungsparameter $\Delta_S(\vec{r})$ berücksichtigt. $\hat{\Psi}(\vec{r})$ ist der Feldvernichtungsoperator eines Elektrons und $H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m}(\vec{\nabla} - \frac{ie}{\hbar c}\vec{A}(\vec{r}))^2 - \mu$ beschreibt die kinetische Energie in einem externen Vektorpotenzial. Mit $U(\vec{r})$ wird die Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen bezeichnet und μ ist das chemische Potenzial. Der Index $\alpha = \uparrow, \downarrow$ gibt die Spinrichtung bezüglich der Quantisierungsachse an. Anhand der Verteilungsfunktion v_k des supraleitenden Grundzustands bei $T=0$ K stellt man fest, dass die Wellenfunktionen der Quasiteilchen in Abhängigkeit des Wellenvektors eine Mischung aus elektronartigen und lochartigen Zuständen sind. In Hinblick auf die elektronischen Zustände im Normalleiter liegt es daher nahe, den Supraleiter in einem Quasiteilchenbild darzustellen, was sich nachfolgend als sehr vorteilhaft für eine gemeinsame Beschreibung herausstellen wird. Mit Hilfe der Bogoliubov-Transformation

$$\hat{c}_{-k\downarrow} = u_k \hat{\gamma}_{-k\downarrow} - v_k \hat{\gamma}_{k\uparrow}^\dagger \quad (2.4)$$

$$\hat{c}_{k\uparrow}^\dagger = u_k \hat{\gamma}_{k\uparrow}^\dagger + v_k \hat{\gamma}_{-k\downarrow} \quad (2.5)$$

kann man die Feldoperatoren

$$\hat{\Psi}_\alpha(\vec{r}, t) = \sum_k w_k(\vec{r}, t) \hat{c}_{k\alpha}, \quad (2.6)$$