



发现磁性氧化物异质结中的超导条纹相

华翔宇¹, 项子霁^{1,2*}, 陈仙辉^{1,2,3*}

1. 中国科学技术大学微尺度物质科学国家研究中心, 合肥 230026;

2. 合肥国家实验室, 合肥 230088;

3. 中国科学技术大学物理系, 合肥 230026

* 联系人, E-mail: zijixiang@ustc.edu.cn; chenxh@ustc.edu.cn

Discovery of superconducting stripes in a magnetic oxide heterostructure

Xiang-Yu Hua¹, Zi-Ji Xiang^{1,2*} & Xian-Hui Chen^{1,2,3*}

¹ Hefei National Research Center for Physical Sciences at the Microscale, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

² Hefei National Laboratory, Hefei 230088, China;

³ Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

* Corresponding authors, E-mail: zijixiang@ustc.edu.cn; chenxh@ustc.edu.cn

doi: [10.1360/TB-2024-0314](https://doi.org/10.1360/TB-2024-0314)

非常规超导电性是凝聚态物理学领域重要的研究方向, 目前学术界普遍认为非常规超导配对的形成与磁性密切相关. 在铜氧化物和铁基高温超导体中, 超导电性在相图中都发生在磁有序态附近, 而超导与磁性的相互作用则会导致更为奇特的演生现象或物态. 一个典型例子是镧(La)基214系列铜氧化物, 作为高温超导家族最著名的成员之一, 该系列材料的特点是随着在反铁磁绝缘母相 La_2CuO_4 中引入空穴掺杂, 可以产生两种共存并相互竞争的电子序, 即超导和条纹序^[1,2]. 条纹有序相可看作一种特殊的密度波态, 其中电荷和自旋自发形成空间中周期性调制的一维条纹, 且二者的变化周期存在直接关联. 在La214系列材料 $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$ (LBCO-1/8)中, 超导与条纹序发生进一步耦合, 产生不同寻常的维度降低现象: 对于电流平行于和垂直于铜氧平面的测量, 零电阻温度分别为约16和约5 K; 因此, 相位相干的超导态首先在二维铜氧平面内形成, 而在更低温度才进入三维全局超导^[3]. 理论工作指出, LBCO-1/8体系奇特的二维超导态可能是一个配对密度波(pair density wave, PDW)态^[4,5], 它可以看作是由超导与条纹序的相互作用产生的一种独特的“交织序”, 具有空间周期性振荡的超导序参量和有限动量配对; 在这个PDW态中, 层间耦合几乎被解除, 导致三维材料中出现二维的超导相^[4]. 上述结果表明, 自旋序和超导电性之间复杂的相互作用会诱导出新的演生物态, 而对相关物理现象和机制的研究可能帮助我们在高温超导成因等关键科学问题上取得突破. 这方面的研究迫切需要一个同时具有超导和磁

性的系统, 且它们之间的耦合可以以某种方式有效调控, 实现“开启”和“关闭”. 由两种绝缘氧化物——立方结构钙钛矿 KTaO_3 (KTO)和铁磁体EuO构成的异质结是一个很好的候选体系, 其界面处的二维电子气(two-dimensional electron gas, 2DEG)展现出超导电性^[6]. 我们通过分子束外延技术在KTO (110)晶面生长EuO, 构建EuO/KTO(110)异质结, 并在前期工作中发现了可被电场有效调控的二维界面超导^[7]. 最近, 我们在此基础上发现, 该异质结界面处很可能出现了维度降低现象, 形成奇特的一维超导条纹^[8].

我们制备了一系列EuO/KTO(110)异质结, 其中界面2DEG载流子浓度 n_s 变化范围为 $6.6 \times 10^{13} \sim 9.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. 随后, 我们在异质结样品上构建了标准霍尔条形(Hall bar)器件, 同时测量电流 I 沿面内两个正交方向 $[001]$ 和 $[0\bar{1}0]$ 的电阻曲线. 高载流子浓度($n_s = 9.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$)的样品表现出正常超导2DEG的行为, 超导转变温度 T_c 与电流方向无关(图1(a)). 在低载流子浓度($n_s = 6.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$)的样品中, T_c 却出现明显的各向异性(图1(b)): 将正常态电阻下降50%时的温度定为 T_c , $I \parallel [001]$ 时, $T_c = 0.62 \text{ K}$, $I \parallel [1\bar{1}0]$ 时, $T_c = 0.44 \text{ K}$. 这种超导转变温度随电流方向变化的反常现象普遍存在于 n_s 低于 $8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 的异质结中, 如图1(c)所示, 且在所有此类样品中都观测到 $I \parallel [001]$ 时出现更高的 T_c . 磁场下的输运实验进一步表明, 在低载流子浓度的样品中, 超导态上临界场(H_{c2})也强烈依赖于电流方向: 对于3个正交方向 $[110]$, $[001]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 施加的外磁场, $I \parallel [001]$ 的测量相对于 $I \parallel [1\bar{1}0]$ 都给出更高的 H_{c2} .

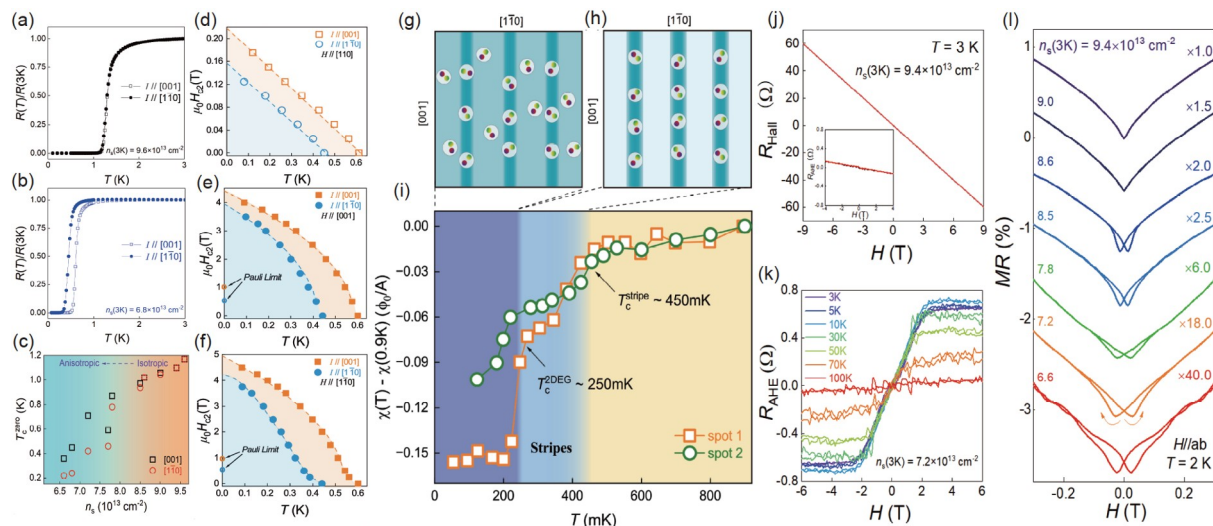


图 1 (网络版彩色)EuO/KTO(110)界面受能带填充调控的面内超导各向异性及铁磁近邻效应。高载流子浓度(n_s) (a)和低 n_s (b)样品不同电流方向的超导转变电阻曲线; (c) 零电阻温度随 n_s 的变化图; (d)~(f) 低 n_s 样品中[110], [001]和[1 $\bar{1}$ 0]方向上临界磁场随温度的变化关系; 低温下二维界面超导(g)和中间温区超导局限在一维条纹相(h)的示意图; (i) 低 n_s 样品定点磁化率随温度变化曲线; (j) 高 n_s 样品在3 K的霍尔电阻, 插图显示扣除高场线性背景后的结果; (k) 低 n_s 样品中的反常霍尔效应; (l) 不同 n_s 样品2 K时的面内磁阻

Figure 1 (Color online) In-plane superconducting anisotropy and ferromagnetic proximity effect controlled by band filling at the EuO/KTO(110) interface. Resistive superconducting transition in high- n_s (a) and low- n_s (b) samples with current along different orientations; (c) zero-resistance temperature plotted as a function of n_s ; (d)~(f) upper critical fields of a low- n_s sample for [110], [001] and [1 $\bar{1}$ 0] field orientations; schematics of the low temperature superconducting 2DEG (g) and formation of 1D superconducting stripes at intermediate temperatures (h); (i) local susceptibility χ measured on a low- n_s sample; (j) Hall resistance measured at 3 K in a high- n_s sample; the inset shows the residual term after subtracting an H -linear background; (k) anomalous Hall effect in a low- n_s sample; (l) magnetoresistance of samples with different n_s at 2 K

(图1(d)~(f)).

超导2DEG行为与 n_s 的相关性, 以及同一掺杂浓度区间内实验现象的一致性, 都表明 T_c 与 H_{c2} 依赖于电流方向的奇特现象不能归因于KTO(110)表面的二度旋转对称性或结构、化学不均匀性导致的非本征效应。由于实验中施加的电流比界面超导临界电流小两个量级, 上述现象也与临界电流各向异性无关。我们指出, 输运实验结果可以用一个有趣的物理图像来解释, 即EuO/KTO(110)异质结界面的超导2DEG可能出现了维度降低效应, 导致形成具有高度方向依赖性的特殊超导态, 例如沿[001]方向延伸的一维超导条纹。在这一图像中, 随着温度降低, 相位相干的库珀对(Cooper pair)首先在这些条纹内部出现, 产生跨越界面的离散超导通道, 此时只有[001]方向产生零电阻, 而条纹之间的弱耦合阻止了垂直方向([1 $\bar{1}$ 0])上超流形成(图1(h))。当温度进一步降低直到条纹之间产生超导相位相干, 界面2DEG的全局超导才得以实现(图1(g)); 该温度对应于 $I \parallel [1\bar{1}0]$ 时测量的较低 T_c 。

为了进一步寻找一维超导条纹相形成的实验证据, 我们与复旦大学的实验团队合作^[8], 对低载流子浓度的样品进行了扫描超导量子干涉仪(Scanning SQUID)测量。Scanning SQUID成像实验结果证明, 样品表面的磁化率在微米尺度上空间分布是均匀的, 这意味着EuO的铁磁序并未形成条纹状空间结构(其铁磁畴的成像显示随机分布的不规则形状), 而

超导态的面内各向异性也并非来自EuO磁性的特殊空间取向。然而, 变温磁化率定点测量却在样品表面不同位置都观察到低温下连续出现两个抗磁转变, 如图1(i)所示, 转变温度为450和250 mK, 分别与 $I \parallel [001]$ 和 $I \parallel [1\bar{1}0]$ 时超导零电阻温度一致。这一结果明确表明: (1) 在Scanning SQUID的空间分辨率(约3 $\mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$)范围内有两个 T_c 不同的超导相共存, 且这种共存于界面均匀分布; (2) T_c 较高的超导相仅在[001]方向导致零电阻, 意味着它具有高度方向依赖性, 与一维超导条纹的特征相符。因此, Scanning SQUID实验为一维超导条纹相的存在提供了有力支持。微米尺度上空间均匀的磁化信号则表明, 这些条纹的宽度很可能在几十到几百纳米量级。

下一个需要解答的关键问题是EuO/KTO(110)界面一维超导条纹相的起源。由于 T_c 和 H_{c2} 的电流方向依赖现象与 n_s 紧密相关, 我们认为, 超导条纹的出现受到2DEG能带填充的有效调控。异质结样品正常态的磁输运测量表明, 界面2DEG与EuO层磁性的耦合也随 n_s 出现相应的演化。如图1(j), (k)所示, 在低载流子浓度样品中观测到了清晰的反常霍尔信号, 其起始温度(~70 K)以及饱和场(~2.5 T)均与EuO的铁磁有序态符合, 而高载流子浓度的样品中没有反常霍尔效应。此外, 低载流子浓度样品的面内磁阻表现出清晰的蝴蝶状回滞, 随着 n_s 增加, 回滞逐渐变弱并最终消失(图1(l))。为进一步理解这种受能带填充控制的铁磁近邻效应, 我们与清华大学理论团队

合作进行了第一性原理计算^[8], 其结果表明, Eu 4f轨道接近Ta 5d能带的底部, 在这个能量区间, *d-f*杂化效应导致2DEG能带出现显著的自旋劈裂, 随着能量升高, *d-f*杂化效应迅速减弱, 能带自旋重归简并. 理论计算定性解释了以上实验结果, 即只有费米能级较低的2DEG受到铁磁近邻效应的强烈影响, *d-f*杂化导致的能带劈裂和电子自旋极化成为正常态反常霍尔效应、磁阻回滞以及超导态一维条纹相形成的根本原因.

我们的发现再次证明, 磁性耦合作用可以有效诱导奇异超导态的产生. 事实上, 我们可以把LBCO-1/8和EuO/KTO(110)界面2DEG的超导态维度降低现象做一个有趣的对照: 前者当中超导和电荷/自旋条纹序之间的相互作用导致三维晶体中形成解耦的二维超导平面, 而后者由于界面2DEG能带与邻近层磁性的耦合, 在二维界面上形成了一维的超导条纹. 两个完全不同的超导体系出现这种物理效应的相关性, 表明磁性耦合导致超导态中的新奇演生物理是一类普遍存在的现象. 考虑到LBCO-1/8的二维超导态被解释为PDW态^[4,5], EuO/KTO(110)异

质结中的一维超导条纹很可能同样对应于某种序参量相位和/或幅值具有周期性空间变化的超导态(例如Fulde-Ferrell态^[9]或PDW态); 超导序参量的单向调制可以作为理解其超导态面内各向异性行为的一个可靠的出发点. 我们期待未来的探索(如谱学测量和电场调控^[10])能够揭示奇特条纹相的微观本质.

综上所述, 我们研究了EuO/KTO(110)磁性氧化物异质结体系, 发现在低载流子浓度的样品中形成了具有特殊空间变化的界面超导态. 该超导态的独特性质体现在其转变温度和上临界磁场随面内施加电流的方向改变而出现显著变化. 结合Scanning SQUID测量和理论计算, 我们提出这些反常的超导各向异性来源于界面电子能带与EuO铁磁性的耦合, 其耦合强度随能带填充发生显著变化; 在耦合较强的区间, 超导配对会首先在沿[001]方向的一维条纹中形成相干, 导致界面出现维度降低现象. 我们的发现在实验上揭示了氧化物界面上—维超导条纹相的出现, 并为利用磁近邻效应在异质结构器件中实现奇异超导相开辟了一条全新的途径.

推荐阅读文献

- 1 Emery V J, Kivelson S A, Tranquada J M. Stripe phases in high-temperature superconductors. *Proc Natl Acad Sci USA*, 1999, 96: 8814-8817
- 2 Tranquada J M. Cuprate superconductors as viewed through a striped lens. *Adv Phys*, 2020, 69: 437509
- 3 Li Q, Hücker M, Gu G D, et al. Two-dimensional superconducting fluctuations in stripe-ordered $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 067001
- 4 Berg E, Fradkin E, Kim E A, et al. Dynamical layer decoupling in a stripe-ordered high- T_c superconductor. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 127003
- 5 Agterberg D F, Davis J C S, Edkins S D, et al. The physics of pair-density waves: Cuprate superconductors and beyond. *Annu Rev Condens Matter Phys*, 2020, 11: 231270
- 6 Liu C, Yan X, Jin D, et al. Two-dimensional superconductivity and anisotropic transport at KTaO_3 (111) interfaces. *Science*, 2021, 371: 716–721
- 7 Hua X, Meng F, Huang Z, et al. Tunable two-dimensional superconductivity and spin-orbit coupling at the EuO/ KTaO_3 (110) interface. *npj Quantum Mater*, 2022, 7: 97
- 8 Hua X Y, Zeng Z M, Meng F B, et al. Superconducting stripes induced by ferromagnetic proximity in an oxide heterostructure. *Nat Phys*, 2024, 20: 957–963
- 9 Fulde P, Ferrell R A. Superconductivity in a strong spin-exchange field. *Phys Rev*, 1964, 135: A550–A563
- 10 Chen Z, Liu Y, Zhang H, et al. Electric field control of superconductivity at the $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ (111) interface. *Science*, 2021, 372: 721–724