

SUMMARY

This thesis examines how size reduction and geometry influence Josephson junctions with normal and ferromagnetic weak links, as well as the properties of highly correlated electron matter through transport experiments. Central to achieving this goal is a top-down sample fabrication technique: by combining mechanical exfoliation of bulk single crystals with focused ion beam (FIB) processing, we can produce microstructured correlated oxide materials. Besides, FIB milling allows us to structure Josephson junctions with arbitrarily-shaped electrodes from macroscopic thin films, having feature sizes well below 1 μm . The thesis is divided into three parts, which I will detail below.

PART ONE: JOSEPHSON PHYSICS IN THIN FILM PLANAR JUNCTIONS

The first Part introduces basic concepts of superconductivity and the most fundamental building block of superconducting electronics: the Josephson junction. Chapter 2 explains that superconductivity is a state of matter characterized by a change of charge carrier statistics from Fermionic to Bosonic nature. This allows them to occupy a single quantum mechanical state, which results in zero electrical resistance and the expulsion of magnetic fields from the center of the bulk, among other properties. The currents that expel the magnetic fields are called shielding currents and are driven by the quantum mechanical phase. Therefore, superconductivity is a manifestation of quantum mechanics at the macroscale. This becomes clear in Josephson junctions, which are two superconducting electrodes separated by a non-superconducting link. The maximum supercurrent such an object can sustain, called critical current (I_c), oscillates as a function of magnetic field (B), resulting from the interference between the shielding currents running in the electrodes.

The shielding currents in the electrodes are determined by the local vector potential for a macroscopic junction. However, when a Josephson junction is situated between two superconducting films that are thinner than the penetration depth of the magnetic field (i.e., London penetration depth), this radically changes. Instead, non-local electrodynamics start to play a role, and the $I_c(B)$ -pattern is determined by the geometry of the electrodes. The third Chapter extends the model proposed by John Clem in 2010, which calculated $I_c(B)$ for a rectangular superconducting strip of length L and width W , separated in the middle by a Josephson junction, to include ellipsoid and rhomboid geometries. We find the periodicity of the $I_c(B)$ -pattern to have universal limits

for $L \gg W$ and $L \ll W$, independent of the geometry of the electrodes. Furthermore, we experimentally verify the L/W dependence of this periodicity by fabricating elliptically shaped planar S–N–S junctions with various aspect ratios. This part concludes by establishing a relation between the $I_c(B)$ -pattern and the spatial distribution of critical current in a planar junction between thin films that can be used to analyze possible current channels.

PART TWO: MESOSCOPIC SF-HYBRID JOSEPHSON JUNCTIONS

Ferromagnetism and superconductivity are typically antagonistic properties. In the last twenty years, however, it has been shown that magnetic inhomogeneity at the interface between a superconductor and a ferromagnet can induce long-range triplet (LRT) correlations, penetrating the ferromagnet over long distances. Alternatively, ferromagnetic vortices and Skyrmions were proposed to generate LRT correlations based on their ferromagnetic spin textures, although these lacked experimental realization. In the second Part of this thesis, we replace the metallic layer of the S–N–S junctions described in the first Part with a ferromagnet, resulting in S–F–S Josephson junctions that feature a deterministic ferromagnetic spin texture due to the shape of the electrodes. We use these junctions to study the interplay of supercurrents and spin texture, which had remained experimentally elusive before.

Specifically, in the fourth Chapter, we show that the presence of a ferromagnetic vortex leads to the LRT proximity effect in disk-shaped S–F–S devices. By employing the relation between the $I_c(B)$ -pattern and the spatial distribution of critical current developed in the first Part, we find the LRT currents to flow in highly localized channels located at the rim of the device. We explain the emergence of these 'rim currents' through the equivalence between the spin texture and an effective spin-orbit coupling, which results in an accumulation of spin at the sample–vacuum boundary that gets transformed into LRT correlations. By modifying the spin texture, we show that we can alter the relative phase between the channels, manifesting itself as the appearance of 0 and π channels.

In Chapter five, we transition to elliptical S–F–S devices to create a stable and non-volatile superconducting memory element that combines the ultra-fast manipulation of spins with dissipationless readout. It functions based on the bistability of magnetic textures of the ferromagnet: the sample can either be uniformly magnetized along its long axis or contains two magnetic vortices at zero applied field. The two states yield considerably different critical currents, which facilitates electrical readout of the bit. We call the low critical current the "1" state and the high I_c state resembles the "0". By quantifying the fields emerging from the ferromagnet using micromagnetic simulations, we show that the change in critical current is caused by the local stray field penetrating the Josephson junction.

PART THREE: STRONGLY CORRELATED RUTHENIUM OXIDE MICROSTRUCTURES

In Part three of this thesis, we use size-reduction in specific geometries to study two strongly correlated ruthenium oxide materials, namely, the isostructural counterparts Ca_2RuO_4 and Sr_2RuO_4 . The first is a Mott insulator at room temperature exhibiting an insulator-to-metal transition (IMT) at surprisingly low current densities, making it a candidate material for developing Mott-based electronics. In Chapter six, we study the current densities required for driving Ca_2RuO_4 crystals out of the insulating phase, using size as the principal tuning parameter. We find a four orders of magnitude increase in the current density that induces the current-maintained metastable phase (preceding the fully metallic state) when the crystal size is reduced to the micrometer scale. That effectively shatters the promise of applications using this material. Furthermore, we tackle the hotly debated issue of possible heating effects driving the transition by including a microscopic thermometer on our micrometer-sized samples. We conclude from our thermometry experiments and simulations that heating effects cannot explain the found size dependence. Instead, our findings suggest that an inhomogeneous current distribution over the cross-sectional area is responsible for the size dependence.

One of the large open questions of condensed matter physics is the nature of the electron pairing in the superconductor Sr_2RuO_4 . At the moment, the proposals range widely. An attractive approach to differentiate between these proposals is the chirality of the order parameter. A chiral superconductor is characterized by a finite angular momentum of the Cooper pairs, which causes the superconducting order parameter to spontaneously break up into spatially separated domains, each corresponding to a single chirality. In a previous work, we found an experimental signature of the chiral domain walls separating two chiral domains: the order parameter is locally suppressed at the domain wall, which acts as a Josephson junction. In Chapter seven, we further examine the properties of these chiral domain wall junctions. We find that the chiral domain walls are stable in mesoscopic samples of quite different geometries. Furthermore, the $I_c R_N$ product associated with domain wall junctions exhibits a universal temperature dependence. By obtaining the Shapiro response of our samples, we provide definite proof of the Josephson coupling of the domain-wall-associated junctions. Besides, we gain insight into their current-phase relation and find that we can alter the domain structure by applying small in-plane magnetic fields (in the ab -plane of the crystal; $H < H_{c1}$), which is indicated by the appearance of half-integer Shapiro steps in the IV -characteristic. In-plane fields also reveal a bistable critical current, which can be switched by reversing the bias current polarity: by applying either a positive or negative current bias, we switch between a low and high I_c state. We interpret the bistability of I_c as unpinned, and therefore mobile, domain walls in our samples. Finally, we conclude that a chiral d -wave order parameter is best suited for describing superconductivity of Sr_2RuO_4 .

SAMENVATTING

Dit proefschrift beschrijft hoe het verkleinen van de elektrodes en hun geometrie invloed heeft op Josephson-juncties met een normaal metaal of ferromagnetische verbinding en hoe het verkleinen van kristallen van sterk gecorreleerde elektronenmaterialen in specifieke vormen invloed kan hebben op hun eigenschappen. Dit wordt onderzocht door middel van transportexperimenten. Als rode draad door dit proefschrift loopt de top-down samplefabricagetechniek. In micrometer grote kristallen, verkregen door mechanische exfoliatie, worden met de gefocusseerde ionenstraal (FIB) gefreesd tot microstructuren. Daarnaast, stelt het FIB-frezen ons in staat om Josephson-juncties met arbitrair gevormde elektrodes te structureren uit lateraal macroscopische dunne lagen van supergeleiders, met een precisie van ruim onder 1 μm . Dit proefschrift is onderverdeeld in drie delen, die ik hieronder toelicht.

DEEL ÉÉN: JOSEPHSON FYSICA VAN JUNCTIES TUSSEN DUNNE LAAG SUPERGELEIDERS

In het eerste deel worden de concepten van supergeleiding en de meest fundamentele bouwsteen van de supergeleidende electronica, de Josephson-junctie, besproken. Hoofdstuk 2 zet uiteen dat supergeleiding een toestand is die wordt gekenmerkt door een verandering van de ladingsdragers van fermionische naar bosonische aard, waardoor ze zich in één enkele kwantumtoestand kunnen bevinden. Dit resulteert onder meer in de afwezigheid van elektrische weerstand en de verdrijving van magnetische velden uit de bulk van de supergeleider. De kringstromen die de magnetische velden verdrijven worden afschermingsstromen genoemd en worden aangedreven door de kwantummechanische faseverschillen. Vandaar dat supergeleiding een manifestatie van de kwantummechanica op macroschaal wordt genoemd. Dit wordt duidelijk in Josephson-juncties: twee supergeleidende elektrodes gescheiden door een niet-supergeleidende verbinding. De maximale superstroom die een Josephson-junctie kan dragen, de zogenaamde kritische stroom (I_c), oscilleert als een functie van het magnetische veld (B), als gevolg van de interferentie tussen de afschermingsstromen in de elektrodes.

Voor een macroscopische junctie bepaalt de lokale vectorpotentiaal de afschermstromen in de elektrodes. Dit verandert echter wanneer een Josephson-junctie zich tussen twee supergeleidende films bevindt die dunner zijn dan de penetratiediepte van het magnetische veld. In dit geval bepaalt de niet-lokale elektrodynamica de afschermstromen, en wordt het $I_c(B)$ -patroon volledig bepaald door de geometrie van de elek-

troden. Het derde hoofdstuk is een uitbreiding op het door John Clem in 2010 voorgestelde model, dat $I_c(B)$ geeft voor een rechthoekige supergeleidende strook met lengte L en breedte W , gedeeld in twee door een Josephson-junctie in het midden van de strook, naar ellipsoïde en ruitvormige geometrieën. We vinden dat de periodiciteit van het $I_c(B)$ -patroon twee universele limieten heeft voor $L \gg W$ en $L \ll W$, onafhankelijk van de geometrie van de elektroden. Verder leveren we een experimentele verificatie van de L/W -afhankelijkheid van deze periodiciteit door elliptisch gevormde vlakke S–N–S-juncties te fabriceren met verschillende L/W -verhoudingen. We sluiten dit deel af met een relatie tussen het $I_c(B)$ -patroon en de ruimtelijke verdeling van kritische stroom in een vlakke junctie tussen twee dunne films die kan worden gebruikt om mogelijke stroomkanalen te analyseren.

DEEL TWEE: MESOSCOPISCHE SF-HYBRIDE JOSEPHSON JUNCTIES

Ferromagnetisme en supergeleiding zijn doorgaans twee elkaar tegenwerkende fenomenen. In de afgelopen twintig jaar is echter aangetoond dat magnetische inhomogeniteit in het grensvlak tussen een supergeleider en een ferromagneet en superstroom kan genereren die de ferromagneet over lange afstanden kan binnendringen. Naast magnetische inhomogeniteit is er een groep alternatieve theoretische voorstellen om deze zogeheten *long-range triplet* (LRT-)correlaties te induceren op basis van ferromagnetische spintexturen zoals vortices. Deze zijn echter nog niet experimenteel gerealiseerd. In het tweede deel van dit proefschrift vervangen we de metallische laag van de S–N–S juncties beschreven in het eerste deel door een ferromagneet, wat resulteert in S–F–S Josephson-juncties met een deterministische ferromagnetische spintextuur geïnduceerd door de geometrie van de elektroden. We gebruiken deze juncties om de, voorheen experimenteel niet toegankelijke, interactie van superstromen en spintexturen te bestuderen.

In het bijzonder demonstreert het vierde hoofdstuk dat de aanwezigheid van een ferromagnetische vortex leidt tot LRT-correlaties in schijfvormige S–F–S-juncties. Door gebruik te maken van de relatie tussen het $I_c(B)$ -patroon en de ruimtelijke verdeling van kritische stroom beschreven in het eerste deel, vinden we dat de LRT-stromen in sterk gelokaliseerde kanalen aan de rand van het sample stromen. We verklaren het ontstaan van deze '*rim currents*' door de equivalentie tussen de vortex spintextuur en een effectieve spin-baankoppeling die resulteert in een accumulatie van spin aan het sample–vacuüm grensvlak, welke vervolgens wordt omgezet in LRT-correlaties. Door de spintextuur aan te passen, laten we zien dat we de relatieve faseverschuiving tussen de kanalen kunnen veranderen, wat zich manifesteert als 0 en π kanalen in de junctie.

In hoofdstuk vijf beschrijven we elliptische S–F–S-juncties die een stabiel en niet-vluchtig supergeleidend geheugenelement vormen dat de ultrasnelle manipulatie van spintexturen combineert met uitlezing zonder warmtedissipatie. Het werkingsprincipe achter het geheugenelement is de bistabiliteit van magnetische texturen van de

ferromagneet: het sample kan ofwel uniform gemagnetiseerd zijn langs zijn lange as of bevat twee ferromagnetische vortices, in de afwezigheid van een extern aangelegd magnetisch veld. De twee toestanden leveren aanzienlijk verschillende kritische stromen (I_c) op, wat de elektrische uitlezing van de bit vergemakkelijkt. We noemen de lage I_c toestand de "1" toestand en de hoge I_c toestand de "0" toestand. Door de velden die uit de ferromagneet komen te kwantificeren met behulp van micromagnetische simulaties, laten we zien dat de verandering in kritische stroom wordt veroorzaakt door het lokale strooiveld dat de Josephson-junctie binnendringt.

DEEL DRIE: MICROSTRUCTUREN VAN STERK GECORRELEERDE RUTHEEN OXIDEN

In deel drie van dit proefschrift gebruiken we de reductie van sample dimensies in specifieke geometrieën om twee sterk gecorreleerde rutheenoxides te bestuderen, namelijk de isostructurele tegenhangers Ca_2RuO_4 en Sr_2RuO_4 . De eerste is een Mott-isolator bij kamertemperatuur die een isolator-naar-metaaltransitie (IMT) vertoont bij verrassend lage stroomdichtheden, waardoor het een kandidaat-materiaal is voor de ontwikkeling van nieuwe Mott-IMT elektronica. In hoofdstuk zes bestuderen we de stroomdichtheid waarmee Ca_2RuO_4 kristallen uit de isolerende fase gedreven kunnen worden, waarbij we de grootte van de kristallen als parameter gebruiken. We vinden een toename van vier ordes van grootte in de stroomdichtheid die de metastabiele fase induceert (welke vooraf gaat aan de volledig metallische toestand) wanneer de kristalgrootte wordt verkleind tot de micrometerschaal. Daarmee laten we zien dat Ca_2RuO_4 niet geschikt is voor toepassingen binnen de elektronica. Verder bespreken we de opwarmeffecten die mogelijk verantwoordelijk zijn voor de IMT, een heet hangijzer in onderzoek aan de IMT in Ca_2RuO_4 . We bereiken dat door een thermometer van micrometerformaat in onze samples op te nemen. We concluderen uit onze thermometrie-experimenten en simulaties dat verwarmingseffecten de gevonden grootte-afhankelijkheid niet kunnen verklaren. In plaats daarvan suggereren onze bevindingen dat een inhomogene stroomverdeling over het dwarsdoorsnede-opervlak verantwoordelijk is voor de grootte-afhankelijkheid.

Een van de grote open vragen van de vaste stof fysica is de aard van de elektronenparen in de onconventionele supergeleider Sr_2RuO_4 . Op dit moment lopen de voorstellen dan ook sterk uiteen. Een aantrekkelijke benadering om onderscheid te maken tussen deze voorstellen is de chiraliteit van de ordeparameter. Een chirale supergeleider wordt gekenmerkt door een eindig baanimpulsmoment van de Cooper-paren, waardoor de supergeleidende ordeparameter zich spontaan opbreekt in ruimtelijk gescheiden domeinen, elk overeenkomend met een enkele chiraliteit (rechts- of linkshandig). In een eerdere publicatie, vonden we bewijs voor het bestaan van de chirale domeinwanden die twee chirale domeinen scheiden. De ordeparameter wordt bij de domeinwand onderdrukt en fungeert daarom als een Josephson-junctie. Hoofdstuk zeven gaat dieper in op de eigenschappen van deze chirale domeinwand-juncties. We vinden dat de

chirale domeinwanden stabiel zijn in mesoscopische samples van verschillende geometrieën en dat het $I_c R_N$ product geassocieerd met domeinwand-juncties een universele temperatuurafhankelijkheid vertoont. Door de Shapiro-respons van onze samples te verkrijgen, leveren we definitief bewijs van het Josephson-effect van de chirale domeinwanden. Bovendien krijgen we inzicht in hun stroom-faserelatie en ontdekken we dat we de domeinstructuur kunnen beïnvloeden door kleine magnetische velden in het vlak (het ab-vlak van het kristal; $H < H_{c1}$) aan te leggen, hetgeen we opmaken uit het verschijnen van halve Shapiro-stappen in de IV -karakteristiek. Bovendien onthullen magneet velden in het ab-vlak een dubbelstabiele kritische stroom, die kan worden geschakeld door de polariteit van de aangelegde stroom om te keren: door ofwel een positieve of negatieve stroom aan te leggen, schakelen we tussen een lage en een hoge I_c toestand. De oorzaak van de bistabiliteit in I_c ligt in mobiele domeinwanden in onze samples. Ten slotte concluderen we dat een chirale d -wave orderparameter het meest geschikt is voor het beschrijven van supergeleiding van Sr_2RuO_4 .