Письма в ЖЭТФ, том 107, вып. 7, с. 449 – 454

Осцилляции критической температуры в гетероструктуре (Fe/Cr/Fe)/V/Fe

В. А. Туманов[+1)], *Ю. В. Горюнов*[*], *Ю. Н. Прошин*[+]

[+]*Казанский федеральный университет, 420008 Казань, Россия*

[*]*Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского РАН, 420029 Казань, Россия*

Поступила в редакцию 22 февраля 2018

Экспериментально и теоретически исследованы сверхпроводящие и магнитные свойства слоистой системы (Fe/Cr/Fe)/V/Fe с переменной толщиной прослойки хрома. Магнитные свойства системы исследовались методом ферромагнитного резонанса, температура сверхпроводящего перехода измерена по скачку магнитной восприимчивости. В системе наблюдается большое разнообразие магнитных состояний, в частности, в слое железа, помещенном между ванадием и хромом, может возникать структура мелких доменов. Экспериментально показано, что критическая температура T_c сверхпроводящего перехода в данной системе при изменении толщины прослойки Cr испытывает немонотонные осцилляции с заметной амплитудой. Предложенная модель, основанная на теории эффекта близости, позволяет связать эти осцилляции T_c с особенностями магнитной структуры образцов.

DOI: 10.7868/S0370274X18070081

Сосуществование сверхпроводимости и ферромагнетизма в пределах однородного образца требует специфических и трудновыполнимых условий. Оно может быть достигнуто в гетероструктурах сверхпроводник–ферромагнетик (S/F) либо за счет пространственного разделения ферромагнитного и сверхпроводящего материалов (эффект близости), либо за счет подавления эффективного обменного поля. Пространственное разделение позволяет сочетать магнитные и сверхпроводящие свойства в пределах одного образца за счет большой делокализации куперовских пар, которые распространяют сверхпроводящие корреляции в приграничном слое ферромагнетика. Возникающая конкуренция сверхпроводимости и магнетизма приводит к появлению ряда интересных эффектов, в частности, немонотонной зависимости критической температуры и тока Джозефсона от толщин ферромагнитных слоев d_f. (см. обзоры [1–4] и приведенные в них ссылки). Магнитные неоднородности различной природы (доменные стенки, геликоидальные магнитные структуры, искусственно созданные многослойные структуры с различными направлениями намагниченности) в ферромагнитном слое значительно усложняют структуру сверхпроводящих корреляций в S/F системе. Намагниченность, неоднородная по направлению в пределах ферромагнитного слоя, приводит к возникновению триплетных сверхпроводящих корреляций с ненулевой проекцией спина [5–7] и влияет на критическую температуру сверхпроводящего перехода. Теоретические оценки такого влияния проводились, например, в работе [8, 9].

В настоящей работе мы изучаем магнитные и сверхпроводящие свойства системы, где возможно формирование доменов, размеры которых порядка сверхпроводящей длины когерентности. Экспериментальная реализация такой системы представляет из себя контакт сверхпроводника с магнитной системой (Fe/Cr/Fe), которая сама по себе представляет большой интерес [10, 11]. В системе (Fe/Cr/Fe) наблюдается явление гигантского магнитосопротивления [12], при этом взаимная ориентация намагниченностей слоев железа как функция толщины слоя хрома имеет очень сложный характер и зависит от условий напыления слоев [10].

Для исследований были приготовлены две серии образцов на монокристаллической подложке MgO(001). Первая серия образцов Fe/V (335 Å)/Fe с симметричными клинообразными слоями железа, верхний слой защищен Pd (20Å). Вторая серия Fe (8 Å)/Cr/Fe (8 Å)/V (340 Å)/Fe (20 Å) с клинообразным слоем хрома, верхний слой защищен ванадием (60 Å). Здесь и далее слои перечисляются слева направо в порядке напыления. При напылении температура подложек составляла 300 °C, что является оптимальным для получения наиболее гладких слоев и, соответственно, резких интерфейсов [10, 13, 14]. Процесс получения образцов подробно описан в ра-

1)e-mail: tumanvadim@yandex.ru

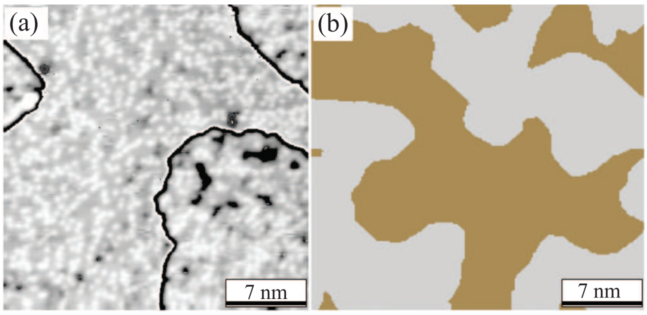

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Снимок сканирующего электронного микроскопа, на котором можно видеть островки хрома на поверхности железа. Эффективная толщина хрома составляет 0.4 монослоя. Рисунок взят из работы [16]. (b) – Моделирование напыления хрома на поверхности железа с наполовину заполненным верхним слоем в рамках нашей феноменологической модели. Эффективная толщина хрома составляет 0.43 монослоя

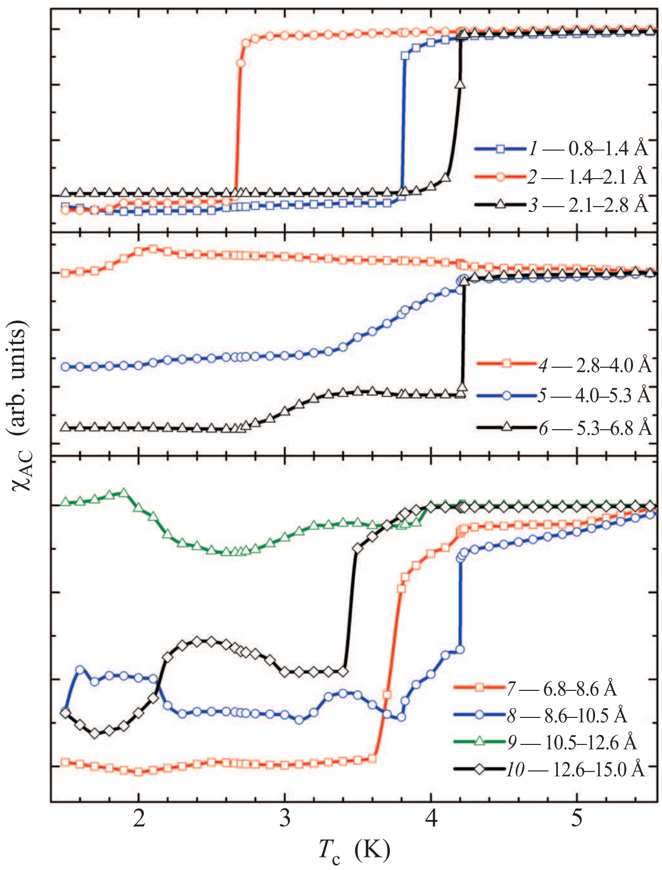

Рис. 2. (Цветной онлайн) Сверхпроводящие переходы в системе (Fe/Cr/Fe)/V/Fe, измеренные по скачку магнитной восприимчивости

ботах [14, 15]. Заметим, что слой железа толщиной 8 Å в магнитной системе Fe/Cr/Fe соответствует 5.5 монослоям. При такой толщине верхний монослой железа в первом слое достроен наполовину даже в случае подложки с нулевой шероховатостью. Верхний монослой в первом слое железа не является сплошным и представляет собой множество островков. Островки хрома, растущего на железе, экспериментально исследованы в работе [16] методом сканирующей тоннельной микроскопии. Характерный размер наблюдаемых островков составлял 100–250 Å (рис. 1a). Рост подобных островков можно воспроизвести в рамках качественной модели эпитаксиального напыления, в которой устойчивость положения атома в напыляемом слое определяется числом ближайших соседей. На рис. 1b представлены результаты наших вычислений с помощью этой модели.

Магнитные свойства образцов (Fe/Cr/Fe)/V/Fe с меняющейся толщиной слоя хрома были изучены методом ферромагнитного резонанса (ФМР). Сигнал от фрагмента Fe/Cr/Fe удается отделить от сигнала верхнего слоя железа толщиной 20 Å. В отсутствие слоя Cr эти свойства очень близки к свойствам сигнала образца с толщиной слоя Fe 16 Å. При внедрении первого монослоя хрома и разделении этого слоя на два слоя Fe толщиной по 8 Å свойства сигнала ФМР существенно изменяются. С одной стороны, эти изменения вызваны уменьшением толщины слоя Fe и, соответственно, усреднением неелевского вклада на вдвое меньшую толщину. С другой стороны на эти свойства влияет намагниченность слоя хрома. Подробный анализ спектра ФМР образца серии (Fe/Cr/Fe)/V/Fe, когда эффективная толщина слоя хрома менее одного монослоя, проведен в работе [15]. Переход к следующим, по толщине хрома, образцам незначительно меняет вид угловой зависимости, но существенно уменьшает относительную интенсивность сигнала ФМР фрагмента Fe/Cr/Fe. Это свидетельствует о том, что большая часть образца с толщиной слоя хрома около 2–3 Å перестает быть ферромагнитной.

Температура перехода в сверхпроводящее состояние определялась через скачок магнитной восприимчивости на переменном токе. Данный метод показывает относительную величину сверхпроводящей фазы в образце. На рис. 2 показаны результаты измерений магнитной восприимчивости для серии образцов (Fe/Cr/Fe)/V/Fe и диапазоны толщин слоя хрома, соответствующие всем образцам. За счет клинообразности слоя Cr его толщина в пределах одного образца меняется на величину порядка одного монослоя, и мы можем наблюдать, что различные участки образца переходят в сверхпроводящее состояние при различной температуре. Особо отметим резкие переходы при высоких температурах 4.1–4.25 K, на-

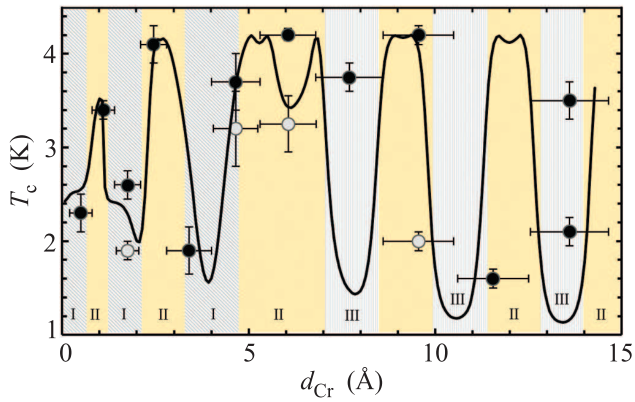

Рис. 3. (Цветной онлайн) Критическая температура сверхпроводящего перехода системы (Fe/Cr/Fe)/V/Fe, полученная из экспериментальных данных по магнитной восприимчивости: сплошные кружки соответствуют температуре перехода большей части образца, пустые кружки – более слабым переходам в тех же образцах, сплошная линия – теоретическая оценка зависимости критической температуры от толщины прослойки хрома. Диапазоны толщин области I соответствуют параллельным намагниченностям слоев железа, разделенных слоем хрома, области III – антипараллельной намагниченности, области II – мелкой доменной структуре в прилегающем к сверхпроводнику слое железа

блюдаемые у образцов *3*, *6*, *8*. Данные переходы дополняются слабыми широкими переходами при более низкой температуре. Образцы *2*, *4*, *8*, *9*, *10* содержат слабые переходы вблизи 2 K. На рис. 3 представлена зависимость критической температуры сверхпроводящего перехода от толщины прослойки хрома и наша теоретическая оценка.

Монослой хрома, выращенный на тонком слое железа, ферромагнитно упорядочен в пределах слоя. При этом намагниченность слоя хрома антипараллельна намагниченности слоя железа [17]. Таким образом, в случае роста хрома на заполненном слое железа, при разделении слоя железа нечетным (четным) числом монослоев хрома можно ожидать параллельную (антипараллельную) ориентации намагниченности в соседних слоях железа. Однако, при достаточно малой толщине прослойки хрома между ферромагнитными слоями, возникает взаимодействие типа РККИ [11], которое имеет характер затухающих осцилляций со значительно большим периодом. Шероховатость слоя железа также вносит значительные поправки, которые мы должны учитывать при анализе экспериментальных результатов. Наиболее резкие границы достигаются при температуре напыления 300 °C. В эксперименте при изменении толщины хрома [10] наблюдается сложная зависимость взаимной ориентации намагниченности в слоях железа, сочетающая длинный и короткий период осцилляций. Длиннопериодические осцилляции проявляются до толщин порядка 10–15 Å, после чего переходят в осцилляции с периодом примерно равным постоянной решетки хрома (см. рис. 4 в работе [10]).

Для анализа систем, в которых намагниченность в плоскости границы меняется медленно на масштабах длины когерентности, достаточно проанализировать поведение парной амплитуды перпендикулярно плоскости слоев. Учитывая полученные в работе [14] оценки для длины свободного пробега и длины спиновой жесткости в таких системах, мы проводим расчеты в рамках грязного предела и используем уравнения Узаделя. Для получения полуколичественных оценок будем использовать наиболее простое одномодовое приближение, которое доказало свою эффективность для систем с большим количеством слоев [18]. В этом приближении парная амплитуда в сверхпроводящем слое ищется в виде гармонической функции, волновой вектор в которой может быть найден из обобщенных граничных условий Куприянова–Лукичева [19]. Волновой вектор в ферромагнитных слоях связан с эффективным обменным полем соотношением $k_f = \sqrt{-2iI/D_f}$. Мы пренебрегаем изменениями парной амплитуды в пределах тонкого слоя антиферромагнитного металла. В этом случае антиферромагнитная прослойка заменяется границей между ферромагнитными слоями, условия сшивки на которой имеют вид

$$\frac{d}{dx}F_{f1} = \frac{d}{dx}F_{f2} = \frac{F_{f2} - F_{f1}}{2\sigma_{\mathrm{Fe/Cr}} R_{\mathrm{Fe/Cr}}}, \qquad (1)$$

где F_{f1} и F_{f2} – синглетная часть парной амплитуды в ферромагнитных слоях, $\sigma_{\mathrm{Fe/Cr}}$ – параметр характеризующий прозрачность границы границы [1] Fe/Cr, $R_{\mathrm{Fe/Cr}}$ – сопротивление единицы площади границы Fe/Cr. В системе Fe/V/Fe наблюдаются ярко выраженные осцилляции критической температуры как функции толщины ферромагнитных слоев [14]. При исследовании зависимости критической температуры от толщины ферромагнитного слоя наблюдается глубокий минимум с выходом на плато в $0.4T_{\mathrm{cs}}$, где T_{cs} – критическая температура сверхпроводящего перехода в отсутствии ферромагнитного слоя. Такое поведение критической температуры исследовано во множестве теоретических работ [1–3, 20, 21] и позволяет путем подгонки определять некоторые параметры теории эффекта близости. Мы воспользовались экспериментальными значениями сверхпроводящей длины когерентности $\xi_s = 125$ Å, длины когерентности БКШ $\xi_{\mathrm{BCS}} = 440$ Å и отношения длины свободного пробега к длине спиновой жесткости $l_f/\xi_f = 1.3$ из работы [14]. Длину спиновой жесткости $\xi_f = 11.5$ Å, параметр прозрачности границы V/Fe со стороны ванадия $\sigma_{\mathrm{V/Fe}} = 7.5$ и параметр $n_{sf} = (N_f v_f)/(N_s v_s) = 0.23$ ($N_{s(f)}$ и $v_s(f)$ – плотность состояний и скорость на уровне Ферми), мы определили из подгонки теории к экспериментальным данным [14], где использовались те же самые материалы и методы напыления. Параметр $p = (\sigma_{\mathrm{Fe/Cr}} R_{\mathrm{Fe/Cr}})/(\sigma_{\mathrm{Fe/V}} R_{\mathrm{Fe/V}})$, характеризующий прозрачность границы Fe/Cr, выступал в качестве подгоночного параметра при сравнении нашей теории с экспериментом. Мы учитывали, что параметр прозрачности зависит от взаимной ориентации намагниченности слоев железа в системе Fe/Cr/Fe из-за явления гигантского магнетосопротивления (GMR), при этом мы использовали результаты работы [12, 13].

Для анализа системы, содержащей доменную структуру в ближайшем к сверхпроводнику слое, необходима теория, учитывающая пространственную неоднородность функции Узаделя в плоскости границы. Для простоты мы ограничимся рассмотрением эффективной двухслойной системы. В качестве верхнего слоя мы будем использовать систему V (340 Å)/Fe (20 Å), который в данном случае выполняют роль сверхпроводящего слоя с $T_{\mathrm{cs}} \simeq 4.3$ K. Это возможно потому, что слой железа 20 Å соответствует выходу зависимости $T_{\mathrm{c}}(d_{\mathrm{Fe}})$ на плато. В качестве нижнего слоя мы рассмотрели слой железа между ванадием и хромом, при этом границу с хромом мы заменили на свободную границу, так как по нашим оценкам ее проницаемость гораздо ниже проницаемости границы Fe/V. Чтобы получить аналитическое решение краевой задачи, мы ограничились случаем тонких ферромагнитного и сверхпроводящего слоев. В таком приближении реальные параметры системы (коэффициент диффузии $D_{s(f)}$, обменное поле I, сверхпроводящий параметр порядка Δ) заменяются эффективными параметрами, усредненными с учетом граничных условий вдоль оси, перпендикулярной плоскости границы [22]:

$$\begin{gathered} \eta_{s(f)} = \frac{\sigma_{s(f)} d_{s(f)}/D_{s(f)}}{\sigma_s d_s/D_s + \sigma_f d_f/D_f}, \\ D_e = D_s\eta_s + D_f\eta_f, \\ I_e = I\eta_f,\ \Delta_e = \Delta_s\eta_s, \end{gathered} \tag{2}$$

где $d_{s(f)}$ – толщина сверхпроводящего (ферромагнитного) слоя, $\sigma_{s(f)}$ – параметр прозрачности со стороны сверхпроводящего (ферромагнитного) слоя. Сравнивая фазовые диаграммы однородного магнитного сверхпроводника с эффективными параметрами (2) и фазовую диаграмму S/F системы, мы пришли к выводу, что приближение (2) удовлетворительно описывает зависимость критической температуры от толщины ферромагнетика в диапазоне толщин $d_f < d_{f0}$, где d_{f0} – толщина ферромагнетика, отвечающая первому минимуму зависимости $T_c(d_f)$. В случае контакта сверхпроводника с однородным слоем железа толщина 8 Å соответствует толщине приблизительно d_{f0}. Таким образом, данное приближение подходит для оценки влияния мелкомасштабных магнитных неоднородностей в данной системе. Для вычисления критической температуры S/F системы с планарной доменной структурой в приближении (2) можно воспользоваться уравнением самосогласования (3) для матричной функции Узаделя $\hat{F}$

$$\Delta_e \ln\left(\frac{T_c}{T_{\mathrm{cs}}}\right) = \pi T_c \sum_{\omega>0}^{\omega_D} \left(\mathrm{Sp}\, \hat{F}\,(x,\omega) - \frac{\Delta_e}{\omega}\right), \tag{3}$$

где ω – мацубаровская частота.

Используя алгоритм решения краевой задачи на матричную функцию Узаделя [23], мы нашли, что при характерном размере доменной структуры $(1{-}2)\xi_s$ влияние ферромагнитного обменного взаимодействия на критическую температуру почти полностью подавлено. При этом можно сопоставить заданному характерному размеру магнитных неоднородностей эффективное обменное поле I'_e (действующее в однородном магнитном сверхпроводнике), которое приводит к такому же снижению T_c. Заметим, что данное приближение подходит для оценки критической температуры, но не годится для изучения транспортных свойств системы.

Мы провели расчеты критической температуры сверхпроводящего перехода для систем (Fe/Cr/Fe)/V/Fe в рамках одномодового приближения с учетом различных реализуемых вариантов магнитного упорядочения в структуре Fe/Cr/Fe (см. рис. 3). Зависимость намагниченности от толщины прослойки хрома оценивалась на основе феноменологической модели напыления хрома на железе (см. рис. 1), с учетом различной степени заполнения верхнего слоя железа. В дополнении к этому мы использовали феноменологическую оценку дальнодействующего вклада типа РККИ во взаимодействие намагниченностей в слоях железа, разделенных хромом, полученную путем выделения изменений взаимной ориентации намагниченности, не соразмерных с постоянной решетки хрома. Такие оценки хорошо согласуются с теоретическим расчетами магнитного взаимодействия слоев железа, разделенного прослойкой хрома в подобных системах [11]. Для определения параметров фе-

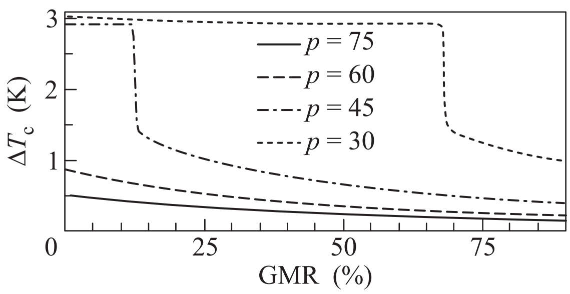

Рис. 4. Разница критических температур системы Fe(4 Å)/Cr/Fe(4 Å)/V(125 Å) с антипараллельно и параллельно ориентированными намагниченностями слоев железа, разделенных слоем хрома

номенологической модели мы сравнивали наши экспериментальные данные и данные работы [10], где взаимная ориентация намагниченности слоев железа измерялась непосредственно.

Набор параметров, полученных при сравнении теории с нашим экспериментом, можно использовать, чтобы оценить критическую температуру подобной системы с другими толщинами слоев. Используя полученные в результате подгонки параметры, мы рассчитали критическую температуру системы Fe (4 Å)/Cr/Fe (4 Å)/V (125 Å) с параллельными $T_{\mathrm{c(p)}}$ и антипараллельными $T_{\mathrm{c(ap)}}$ намагниченностями слоев железа, разделенного слоем хрома. Зависимость разности этих критических температур $\Delta T_{\mathrm{c}} = T_{\mathrm{c(ap)}} - T_{\mathrm{c(p)}}$ от величины эффекта гигантского магнетосопротивления в системе Fe/Cr/Fe представлен на рис. 4. Параметр p, характеризующий прозрачность границ Fe/Cr, значительно влияет на величину эффекта. При сравнении нашей теории с экспериментом наилучшего согласия удается добиться в диапазоне $p = 30-60$, в зависимости от толщины слоя хрома. Отметим, что величина эффекта спинового клапана в данной геометрии очень чувствительна к проницаемости границы F/S и толщине сверхпроводящего слоя.

В работе экспериментально исследовались магнитные и сверхпроводящие свойства тонкослойных систем Fe/V/Fe и (Fe/Cr/Fe)/V/Fe. Магнитные свойства системы (Fe/Cr/Fe)/V/Fe исследовались методом ФМР. Наблюдались качественные изменения формы линии ФМР при внедрении прослойки хрома, начиная с эффективной толщины менее одного монослоя. По скачку магнитной восприимчивости в клинообразных образцах измерена температура сверхпроводящего перехода как функция толщины прослойки хрома в системе (Fe/Cr/Fe)/V/Fe. В рамках теории эффекта близости в грязном пределе мы рассчитали критическую температуру как функцию толщины слоя хрома. Наши теоретические оценки находятся в полуколичественном согласии с экспериментальными данными по измерению критической температуры системы как функции толщины хрома. Согласно нашим оценкам участки образцов с критической температурой 3.8–4.2 K соответствуют ситуации, когда слой железа между хромом и ванадием расщеплен на домены, характерный размер которых порядка сверхпроводящей длины когерентности. Наблюдение критической температуры ниже 2 K указывает на относительно низкую прозрачность границы между железом и хромом. Используя полученные в результате подгонки параметры, мы провели оценку эффекта сверхпроводящего спинового клапана в системе Fe (4 Å)/Cr/Fe (4 Å)/V (125 Å). Различие критических температур при антипараллельной и параллельной ориентации намагниченности слоев железа может достигать 1–2 K. Полученные результаты могут быть полезны при проектировании сверхпроводящего спинового клапана [24].

Работа частично поддержана субсидией Минобрнауки РФ, выделенной КФУ для выполнения проекта (# 3.2166.2017) по государственному заданию в области научной деятельности. В.А.Т. также благодарен РФФИ (гранту # 16-02-01016).

1. A. I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. **77**, 935 (2005).
2. K. B. Efetov, I. A. Garifullin, A. F. Volkov, and K. Westerholt, Springer Tracts Mod. Phys. **227**, 251 (2008).
3. Ю. А. Изюмов, Ю. Н. Прошин, М. Г. Хусаинов, УФН **172**, 113 (2002).
4. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, M. Yu. Kupriyanov, A. L. Gudkov, andA. S. Sidorenko, Beilstein J. Nanotechnology **8**, 2689 (2017).
5. Ya. V. Fominov, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Phys. Rev. B **75**, 104509 (2007).
6. T. S. Khaire, R. Loloee, W. P. Pratt, and N. O. Birge, Phys. Rev. Lett. **104**, 137002 (2010).
7. A. I. Buzdin, A. S. Mel'nikov, and N. G. Pugach, Phys. Rev. B **83**, 144515 (2011).
8. M. Houzet and A. I. Buzdin, Phys. Rev. B **74**, 214507 (2006).
9. J. Linder and K. Halterman, Phys. Rev. B **90**, 104502 (2014).
10. J. Unguris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. **67**, 140 (1991).
11. Y. Wang, P. M.Levy, and J. L.Fry, Phys. Rev. Lett. **65** 2732 (1990).
12. P. Zahn, I. Mertig, M. Richter, and H. Eshrich, Phys. Rev. Lett. **75** 2996 (1995).
13. D. E. Romanovskiy, M. V. Mamonova, V. V. Prudnikov, and P. V. Prudnikov, Журн. СФУ **10**, 65 (2017).

14. I. A. Garifullin, D. A. Tikhonov, N. N. Garif'yanov, L. Lazar, Yu. V. Goryunov, S. Ya. Khlebnikov, L. R. Tagirov, K. Westerholt, and H. Zabel, Phys. Rev. B **66**, 020505-R (2002).
15. Yu. V. Goryunov, J. Supercond. Nov. Magn. **20** 121 (2007).
16. A. Davies, J. A. Stroscio, D. T. Pierce, and R. J. Celotta, Phys. Rev. Lett. **76**, 4175 (1996).
17. A. B. Klautau, S. B. Legoas, R. B. Muniz, and S. Frota-Pess'a, Phys. Rev. B **60**, 3421 (1999).
18. Z. Radović, L. Dobrosavljević-Grujić, A. I. Buzdin, and J. R. Clem, Phys. Rev. B **38**, 2388 (1988).
19. M. Куприянов, В. Лукичев, ЖЭТФ **94**, 139 (1988).
20. М. В. Авдеев, Ю. Н. Прошин, ЖЭТФ **144**, 1251 (2013).
21. Е. А. Кошина, В. Н. Криворучко, ФНТ **43**, 754 (2017).
22. M. L. Kulic and I. M. Kulic, Phys. Rev. B **63**, 104503 (2001).
23. V. A. Tumanov and Yu. N. Proshin, J. Low Temp. Phys. **185**, 460 (2016).
24. В. Н. Кушнир, М. Ю. Куприянов, ФНТ **42**, 1148 (2016).