Письма в ЖЭТФ, том 119, вып. 4, с. 296 – 301

Эффект сверхпроводящего спинового клапана в гетероструктуре Co/Pb/Co с изолирующими прослойками

А. А. Камашев+1), *Н. Н. Гарифьянов*+, *А. А. Валидов*+, *В. Е. Катаев**, *А. С. Осин*×, *Я. В. Фоминов*×, *И. А. Гарифуллин*+

+*Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского ФИЦ Казанский научный центр РАН, 420029 Казань, Россия*

**Leibniz Institute for Solid State and Materials Research, D-01069 Dresden, Germany*

×*Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия*

Поступила в редакцию 5 декабря 2023 г.
После переработки 27 декабря 2023 г.
Принята к публикации 11 января 2024 г.

Исследованы сверхпроводящие свойства гетероструктуры Co/Pb/Co с тонкими изолирующими прослойками, роль которых играют окисленные интерфейсы сверхпроводник/ферромагнетик. Изучено поведение температуры перехода гетероструктуры в сверхпроводящее состояние (T_c) при изменении взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев с антипараллельной на параллельную (так называемый эффект сверхпроводящего спинового клапана). Как правило, данный эффект наиболее выражен в случае идеального металлического контакта на границах раздела сверхпроводник/ферромагнетик. Мы же наблюдали значительный эффект сверхпроводящего спинового клапана для структур с ухудшенными интерфейсами сверхпроводник/ферромагнетик. Разница в T_c при изменении взаимной ориентации намагниченностей двух ферромагнитных слоев Co с антипараллельной на параллельную составила 0.2 K при оптимальной толщине сверхпроводящего Pb-слоя. Наши исследования верифицируют ранние, до сих пор не подтвержденные результаты Дойчера и Менье [G. Deutscher and F. Meunier, Phys. Rev. Lett. **22**, 395 (1969)], и открывают новые интересные возможности улучшения параметров сверхпроводящего спинового клапана.

DOI: 10.31857/S1234567824040086, EDN: szruqq

Введение Различные теоретические модели и практические конструкции сверхпроводящего спинового клапана (ССК) исследуются на протяжении последних 25 лет (см., например, [1–10]). Фундаментальный интерес к таким системам связан с тем, что в них существует возможность пространственного разделения сверхпроводимости (С) и ферромагнетизма (Ф) в рамках одной структуры для исследований их взаимного влияния на свойства друг друга (см., например, [11–17]). Помимо этого, структуры ССК являются перспективными элементами сверхпроводящей спинтроники (см., например, [18–22]). Впервые теоретическая модель ССК конструкции Ф1/Ф2/С была предложена О и др. в 1997 г. [1]. В 1999 году Тагировым [2] и Буздиным и др. [3] была предложена другая модель конструкции Ф1/С/Ф2. Здесь, Ф1 и Ф2 – ферромагнитные слои; С – сверхпроводящий слой. Принцип работы ССК основан на эффекте близости С/Ф. В структурах ССК можно управлять степенью подавления сверхпроводимости путем изменения взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев, то есть величиной среднего обменного поля Ф-слоев, действующего на С-слой. Температура перехода в сверхпроводящее состояние T_c в структурах ССК минимальна/максимальна для параллельной (П)/антипараллельной (АП) ориентации намагниченностей Ф-слоев, соответственно. Величина эффекта ССК определяется как разница температур $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^{P}$. Полный эффект ССК реализуется только в том случае, когда ΔT_c превышает ширину сверхпроводящего перехода δT_c в П- и АП-ориентациях. Впервые экспериментально реализовать полный эффект ССК удалось в 2010 г. для конструкции Ф1/Ф2/С [10].

На сегодняшний день подробно изучены различные конструкции ССК с использованием разнообразных элементных металлов и сплавов. Результаты этих исследований указывают, что, возможно, уже достигнут предел величины эффекта ССК (см., например, [23–25]). В основе работы этих конструкций лежит эффект близости С/Ф, который определяется качеством границы раздела между С- и Ф-слоями. Именно поэтому всегда особое внимание в структу-

1)e-mail: kamandi@mail.ru

рах ССК уделялось интерфейсу С/Ф. Обычно считается, что для наблюдения эффектов ССК необходимо, чтобы интерфейс С/Ф был совершенным с точки зрения морфологии (см., например, [26]). Однако, в 1969 г. Дойчер и Менье [27] наблюдали значительный эффект ССК $\Delta T_c \sim 0.3$ К в гетероструктуре FeNi/In/Ni с окисленными интерфейсами С/Ф, что с сегодняшней точки зрения, действительно, удивительно. Окисление ферромагнитных FeNi- и Ni-слоев объяснялось необходимостью ослабления эффекта близости С/Ф, и, как следствие, сверхпроводимость в In-слое могла быть не полностью подавлена средним обменным полем Ф-слоев. В работе же Ли и др. [28] показано, что для наблюдения эффектов ССК нужен непосредственный контакт между ферромагнитным изолятором и сверхпроводником. При этом введение тончайшего изолирующего немагнитного слоя (барьера) на границу раздела С/Ф приводило к полному подавлению эфекта близости С/Ф, и, как следствие, эффекта ССК.

Однако, в работе Дойчера и Менье [27] ухудшение границы С/Ф привело к наблюдению значительного эффекта ССК. Насколько нам известно, работа Дойчера и Менье [27] не получила подтверждения для других конструкций ССК, хотя некоторые экспериментальные группы пытались воспроизвести этот неожиданный результат.

В настоящей работе представлено дальнейшее развитие концепции Дойчера и Менье [27]. Мы исследовали сверхпроводящие свойства структур ССК, состоящих из других ферромагнитных и сверхпроводящих материалов по сравнению с описанными в работе [27]. Следует отметить, что работа [27] являлась одной из первых, где исследовались тонкопленочные гетероструктуры на базе С/Ф. В то время отсутствовало глубокое понимание явлений, происходящих в таких структурах. Поэтому параметры структуры (толщины слоев и условия их приготовления) в работе [27] могли быть неоптимальными.

Мы изготовили структуры ССК Co1/Pb/Co2 с тонкими изолирующими прослойками на границах раздела Co1/Pb и Pb/Co2. Формирование окисленных изолирующих прослоек на границах раздела было сделано по примеру работ [27, 29]. Мы изучили зависимость величины эффекта ССК ΔT_c от толщины Pb-слоя. Было установлено, что величина ΔT_c достигает 0.2 К при оптимальной толщине Pb-слоя, что превосходит большинство значений эффекта для структур с идеальными границами раздела С/Ф.

Образцы. Образцы изготовлялись на напылительной установке фирмы BESTEC. Была приготовлена основная серия образцов CoO_x(3.5 нм)/Co1(3 нм)/И1/Pb(d_{Pb})/И2/Co2(3 нм)/$\mathrm{Si_3N_4}$(85 нм) с варьируемой толщиной Pb-слоя d_{Pb} в пределах от 40 до 120 нм. Образцы напылялись на высококачественные монокристаллические подложки MgO (001). Здесь: CoO_x – антиферромагнитный (АФ) слой, необходимый для фиксации намагниченности Co1-слоя; Co1 и Co2 – ферромагнитные Ф1- и Ф2-слои; И1 и И2 – тонкие оксидные изолирующие прослойки; Pb – сверхпроводящий слой, $\mathrm{Si_3N_4}$ – защитный слой. Слои наносились методами электронно-лучевого испарения (Co, Pb) и магнетронного напыления на переменном токе ($\mathrm{Si_3N_4}$). Слой CoO_x был приготовлен окислением металлического Co-слоя в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар в течение двух часов. После этого в камере молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) наносился Co1-слой поверх слоя CoO_x. Слой И1 формировался на поверхности Co1 в загрузочной камере в атмосфере кислорода при давлении около $\sim 10^{-2}$ мбар в течение 60 с. Наши исследования показали, что такое короткое время окисления не приводит к образованию антиферромагнитного CoO_x. После этого в МЛЭ камере наносился Pb-слой при температуре подложки $T_{\mathrm{sub}} \sim 150$ К. Такая температура подложки была необходима для получения гладкого Pb-слоя [26]. Слой Pb выдерживался в загрузочной камере в атмосфере кислорода при давлении около 10^{-2} мбар в течение 30 с для формирования И2-слоя на его поверхности. Далее в МЛЭ камере наносился Co2-слой. На последнем этапе все образцы покрывались защитным слоем $\mathrm{Si_3N_4}$. Скорости напыления слоев составляли: 0.5 Å/с для Co-слоев; 12 Å/с для Pb-слоя; 1.8 Å/с для защитного $\mathrm{Si_3N_4}$-слоя.

Толщина АФ-слоя CoO_x $d_{\mathrm{CoO}_x} = 3.5$ нм была выбрана на основе результатов наших предыдущих исследований [30–32]. Такая величина d_{CoO_x} позволяет зафиксировать намагниченность Co1-слоя вдоль направления внешнего магнитного поля до $H_0^{\max} \sim \sim 1.5$ кЭ. Толщины Co1 и Co2-слоев одинаковы и составляют 3 нм. Кроме того, нами была приготовлена контрольная серия образцов Co1/Pb/Co2 с такими же толщинами слоев как и у основной серии, но без изолирующих прослоек. Структуры приготовленных образцов представлены на рис. 1.

Экспериментальные результаты. Величины T_c определялись из зависимостей удельного сопротивления от температуры. Сопротивление измерялось при помощи стандартного 4-контактного метода на постоянном токе. Значения T_c определялись как средняя точка на сверхпроводящем переходе.

Вначале образцы охлаждались от комнатной до гелиевых температур во внешнем магнитном поле

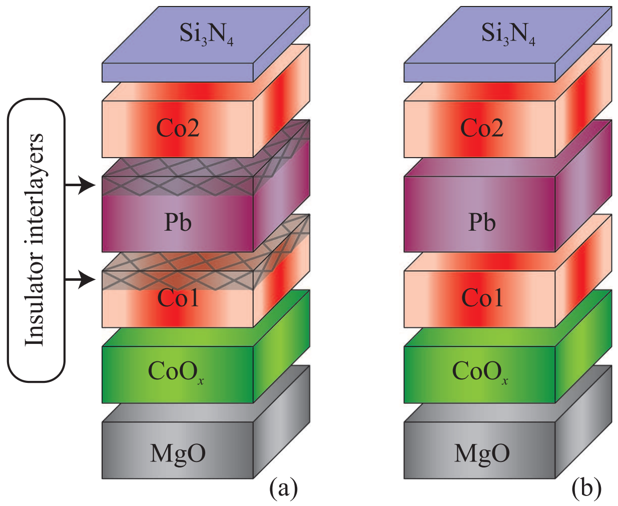

Рис. 1. (Цветной онлайн) Структуры приготовленных образцов: (a) – основная серия образцов CoO_x/Co1/И1/Pb/И2/Co2/Si_3N_4 с изолирующими прослойками; (b) – контрольная серия образцов CoO_x/Co1/Pb/Co2/Si_3N_4 без изолирующих прослоек

порядка 5 кЭ, приложенном вдоль плоскости образца (*field cooling procedure*). Это позволяло добиться параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев и зафиксировать намагниченность Co1-слоя вдоль направления приложенного поля до $H_0^{\max} \sim$ ~ 1.5 кЭ. Далее была исследована температурная зависимость удельного сопротивления $R(T)$ для П- и АП-ориентаций намагниченностей Ф-слоев для обеих серий образцов. Взаимное изменение ориентации намагниченностей Ф-слоев достигалась путем вращения вектора приложенного внешнего магнитного поля $H_0 = 1$ кЭ, приводящего к соответствующему повороту намагниченности Co2-слоя.

На рисунке 2 показаны кривые сверхпроводящих переходов для образцов CoO_x(3.5 нм)/Co1(3 нм)/И1/Pb(d_{Pb})/И2/Co2(3 нм) с толщинами С-слоя $d_{Pb} =$ $= 120$, 60 и 40 нм при П ($H_0 = +1$ кЭ) и АП ($H_0 =$ $= -1$ кЭ) ориентациях намагниченностей Co1- и Co2-слоев, соответственно. Очевидно, что для образца с $d_{Pb} = 60$ нм реализован полный эффект ССК ($\Delta T_c >$ $> \delta T_c$) со значением $\Delta T_c = 0.2$ К (см. рис. 2b).

На рисунке 3 представлена зависимость ΔT_c от толщины Pb-слоя d_{Pb} для основной серии образцов с изолирующими прослойками. ΔT_c практически линейно увеличивается с уменьшением d_{Pb} до значений 60 нм, после чего ΔT_c начинает резко уменьшаться. Максимальная величина эффекта ССК $\Delta T_c = 0.2$ К достигается при оптимальной толщине сверхпроводящего слоя $d_{Pb} = 60$ нм.

Следует отметить, что для всех образцов контрольной серии с такими же толщинами слоев, как

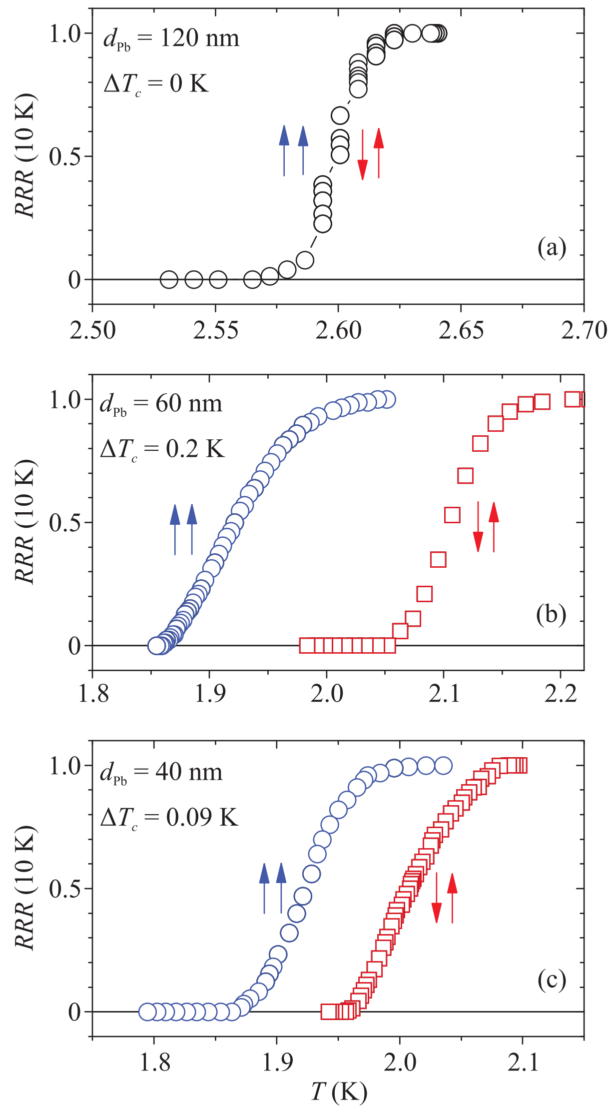

Рис. 2. (Цветной онлайн) Кривые сверхпроводящих переходов для образцов CoO_x(3.5 нм)/Co1(3 нм)/И1/Pb(d_{Pb})/И2/Co2(3 нм) с толщинами С слоя d_{Pb} = $= 120$ нм (a), 60 нм (b) и 40 нм (c) при П ($H_0 = +1$ кЭ) и АП ($H_0 = -1$ кЭ) ориентациях намагниченностей Co1- и Co2-слоев, соответственно

и в основной серии, но без изолирующих прослоек, сверхпроводимость не наблюдалась вплоть до самой низкой достижимой нами температуры 1.4 К.

Обсуждение результатов. Наши результаты демонстрируют значительную величину эффекта ССК в гетероструктурах Ф1/С/Ф2 с изолирующими прослойками на границах раздела Ф1/С и С/Ф2 и таким образом подтверждают первоначальные результаты Дойчера и Менье [27]. Более того, выясняется, что толщина С- слоя является важным параметром для реализации полного эффекта ССК. Если сверхпроводящий слой слишком толстый,

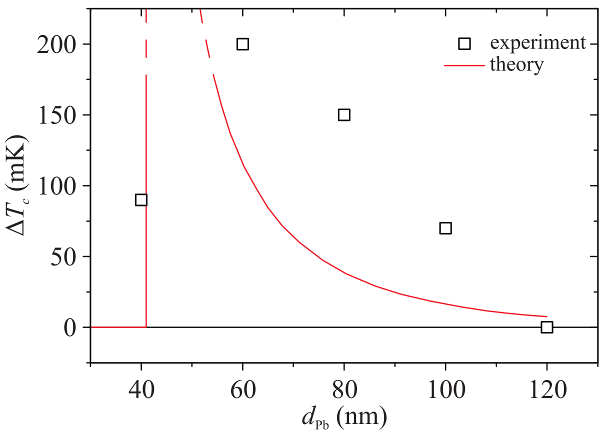

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость величины эффекта ССК ΔT_c от толщины Pb-слоя d_{Pb} для основной серии образцов с изолирующими прослойками. Сплошная кривая – теоретическая зависимость $\Delta T_c(d_{\mathrm{Pb}})$ (см. пункт "Обсуждение результатов")

то эффект не наблюдается. При уменьшении d_{Pb} значение ΔT_c увеличивается и достигает максимума 0.2 К при $d_{\mathrm{Pb}} = 60$ нм (см. рис. 3). Дальнейшее уменьшение d_{Pb} приводит к резкому падению T_c. По-видимому, несмотря на изолирующие прослойки, эффект близости С/Ф становится более выраженным при уменьшении d_{Pb}.

Достигнутая нами максимальная величина эффекта ССК ΔT_c вдвое превышает величины эффектов в работах [30–33], где исследовались структуры ССК с элементными металлическими ферромагнитными слоями и идеальными границами раздела С/Ф. Полученный нами результат довольно необычен, поскольку противоречит считающемуся важнейшим условием реализации эффекта близости С/Ф – наличию хорошего металлического контакта между С- и Ф- слоями. Не исключено, что оксидные изолирующие прослойки остаются магнитными, как это предполагалось в работах [27, 29]. Они могут играть двойную роль: (1) ослаблять влияние металлического ферромагнитного слоя на С-слой (в контрольных образцах без изолирующих прослоек сверхпроводимость подавляется полностью); (2) и в то же время сохранять своего рода эффект близости, позволяющий переключаться между нормальным и сверхпроводящим состояниями. Стоит отметить, что в работе Ли и др. [28] было продемонстрировано включение/выключение сверхпроводимости в трехслойной системе EuS/Al/EuS, где EuS являлся ферромагнитным изолятором.

Корректное теоретическое описание полученных результатов представляет собой сложную задачу из-за неопределенности параметров интерфейсов структуры ССК. Теория для описания T_c в *симметричных* структурах Ф1/С/Ф2 с тонкими изолирующими интерфейсами была сформулирована в работе [34]. Применив эту теорию к нашим данным, мы смогли добиться качественного согласия между теорией и экспериментом (см. рис. 3) при использовании следующих параметров системы: длины когерентности в сверхпроводнике $\xi_S = 41$ нм; длины когерентности в Ф-слоях $\xi_F = 12$ нм; параметров интерфейсов $\gamma = 0.093$ (параметр согласования материалов) и $\gamma^b = 0.48$ (параметр прозрачности границы) [34] и обменной энергии в Ф-слоях $h = 0.035$ эВ.

Теория демонстрирует немонотонную зависимость и приблизительное положение максимума величины эффекта ССК. Этот максимум ожидаем, поскольку эффект ССК должен подавляться как в пределе очень тонкого, так и очень толстого С-слоя. Максимальная же величина эффекта ССК должна наблюдаться при толщине С-слоя, близкой к длине когерентности ξ_S. Однако, количественного согласия между теорией и экспериментом добиться не удалось по следующим возможным причинам. Теория [34] предполагает симметричную структуру Ф1/С/Ф2, наши же образцы могут быть асимметричны с точки зрения прозрачности интерфейсов, поскольку условия формирования И1- и И2-слоев были различными. Кроме того, как отмечено выше, не исключен собственный магнетизм интерфейсов, в то время как в теории [34] они моделируются как немагнитные потенциальные барьеры. Тем не менее, несмотря на эти причины, очевидно препятствующие хорошему количественному совпадению теории и эксперимента, примененный нами теоретический подход позволил качественно понять причину немонотонной зависимости $\Delta T_c(d_{\mathrm{Pb}})$ в исследованных гетероструктурах и определить условия достижения максимального эффекта ССК.

Заключение. Исследовались сверхпроводящие свойства гетероструктур ССК Co1/Pb/Co2 с тонкими оксидными изолирующими прослойками, сформированными на границах раздела Co1/Pb и Pb/Co2. Была определена оптимальная толщина сверхпроводящего Pb-слоя для реализации полного эффекта сверхпроводящего спинового клапана. Максимальная величина эффекта ССК составила 0.2 К. Наши результаты подтверждают наблюдения работы Дойчера и Менье [27], в которой был обнаружен большой эффект ССК для структур Ф1/С/Ф2 с изолирующими прослойками. Следует отметить, что полученная нами величина эффекта ССК ΔT_c значительно превышает величины эффектов, которые наблюдались для структур с элементными ферромагнитными и сверхпроводящими материалами, где особое внимание уделялось качеству интерфейса С/Ф.

Необходимо отметить, что, по всей видимости, в эффекте сверхпроводящего спинового клапана ключевую роль играет не сила эффекта близости С/Ф, а *чувствительность* сверхпроводимости к магнитной части системы. В наших экспериментах мы старались добиться "ослабленной" сверхпроводимости, максимально чувствительной к изменению взаимной ориентации намагниченностей Ф-слоев. В структурах Co1/Pb/Co2 без изолирующих прослоек сверхпроводимость полностью подавлена. Роль изолирующих прослоек, возможно, заключается в восстановлении сверхпроводимости в системе путем ухудшения эффекта близости С/Ф. Такая "восстановленная" сверхпроводимость, действительно, оказывается очень чувствительной к магнитной части структуры. Полученные результаты позволяют надеяться, что исследования структур ССК с модифицированными интерфейсами окажут стимулирующее влияние на развитие новых подходов к оптимизации рабочих и конструкционных параметров сверхпроводящих спиновых клапанов.

Финансировнаие работы. Работа А. А. Камашева и Н. Н. Гарифьянова по приготовлению образцов была финансирована Российским научным фондом из проекта # 21-72-20153. Работа А. А. Камашева, Н. Н. Гарифьянова, А. А. Валидова и И. А. Гарифуллина по исследованию сверхпроводящих свойств систем была выполнена в рамках государственного задания Федерального исследовательского центра Казанского научного центра Российской академии наук. Работа Я. В. Фоминова была выполнена в рамках государственного задания Института теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук.

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. S. Oh, D. Youm, and M. R. Beasley, Appl. Phys. Lett. **71**, 2376 (1997).
2. L. R. Tagirov, Phys. Rev. Lett. **83**, 2058 (1999).
3. A. I. Buzdin, A. V. Vedyayev, and N. V. Ryzhanova, Europhys. Lett. **48**, 686 (1999).
4. J. Y. Gu, C. Y. You, J. S. Jiang, J. Pearson, Ya. B. Bazaliy, and S. D. Bader, Phys. Rev. Lett. **89**, 267001 (2002).
5. I. C. Moraru, W. P. Pratt, and N. O. Birge, Phys. Rev. Lett. **96**, 037004 (2006).
6. A. Potenza and C. H. Marrows, Phys. Rev. B **71**, 180503(R) (2005).
7. K. Westerholt, D. Sprungmann, H. Zabel, R. Brucas, B. Hjörvarsson, D. A. Tikhonov, and I. A. Garifullin, Phys. Rev. Lett. **95**, 097003 (2005).
8. R. Steiner and P. Ziemann, Phys. Rev. B **74**, 094504 (2006).
9. N. G. Pugach, M. Yu. Kupriyanov, A. V. Vedyayev, C. Lacroix, E. Goldobin, D. Koelle, R. Kleiner, and A. S. Sidorenko, Phys. Rev. B **80**, 134516 (2009).
10. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, I. A. Garifullin, J. Schumann, H. Vinzelberg, V. Kataev, R. Klingeler, O. G. Schmidt, and B. Büchner, Appl. Phys. Lett. **97**, 102505 (2010).
11. L. B. Ioffe, V. B. Geshkenbein, M. V. Feigel'man, A. L. Fauchère, and G. Blatter, Nature **398**, 679 (1999).
12. M. V. Feigel'man, Phys.-Uspekhi **42**, 823 (1999).
13. A. I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. **77**, 935 (2005).
14. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Rev. Mod. Phys. **77**, 1321 (2005).
15. M. G. Blamire and J. W. A. Robinson, J. Phys.: Condens. Matter **26**, 453201 (2014).
16. J. Linder and J. W. A. Robinson, Nat. Phys. **11**, 307 (2015).
17. M. Eschrig, Rep. Prog. Phys. **78**, 104501 (2015).
18. E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley, Phys. Rev. B **55**, 15174 (1997).
19. I. A. Garifullin, J. Magn. Magn. Mater. **240**, 571 (2002).
20. I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
21. J. Linder, T. Yokoyama, and A. Sudbø, Phys. Rev. B **79**, 224504 (2009).
22. K. B. Efetov, I. A. Garifullin, A. F. Volkov, and K. Westerholt, *Spin-Polarized Electrons in the superconductor/ferromagnet hybrid structures: Magnetic Nanostructures. Spin Dynamic and Spin Transport*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2013).
23. Y. Gu, G. B. Halász, J. W. A. Robinson, and M. G. Blamire, Phys. Rev. Lett. **115**, 067201 (2015).
24. A. Singh, S. Voltan, K. Lahabi, J. Aarts, Phys. Rev. X **5**, 021019 (2015).
25. A. A. Kamashev, N. N. Garif'yanov, A. A. Validov, J. Schumann, V. Kataev, B. Büchner, Ya. V. Fominov, and I. A. Garifullin, Phys. Rev. B **100**, 134511 (2019).
26. P. V. Leksin, A. A. Kamashev, J. Schumann, V. E. Kataev, J. Thomas, B. Büchner, and I. A. Garifullin, Nano Res. **9**, 1005 (2016).
27. G. Deutscher and F. Meunier, Phys. Rev. Lett. **22**, 395 (1999).
28. B. Li, N. Roschewsky, B. A. Assaf, M. Eich, M. Epstein-Martin, D. Heiman, M. Münzenberg, and J. S. Moodera, Phys. Rev. Lett. **110**, 097001 (2013).
29. J. M. Lommel and C. D. Graham, Jr., J. Appl. Phys. **33**, 1160 (1968).

30. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Kamashev, Ya. V. Fominov, J. Schumann, C. Hess, V. Kataev, B. Büchner, and I. A. Garifullin, Phys. Rev. B **91**, 214508 (2015).
31. I. A. Garifullin, P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Kamashev, Ya. V. Fominov, J. Schumann, Y. Krupskaya, V. Kataev, O. G. Schmidt, and B. Büchner, J. Magn. Magn. Mater. **373**, 18 (2015).
32. A. A. Kamashev, P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Validov, J. Schumann, V. Kataev, B. Büchner, and I. A. Garifullin, J. Magn. Magn. Mater. **459**, 7 (2018).
33. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, I. A. Garifullin, Ya. V. Fominov, J. Schumann, Y. Krupskaya, V. Kataev, O. G. Schmidt, and B. Büchner, Phys. Rev. Lett. **109**, 057005 (2012).
34. Ya. V. Fominov, A. A. Golubov, and M. Yu. Kupriyanov, JETP Lett. **77**, 510 (2003).