

УДК 537.9:537.6:53.06

ИССЛЕДОВАНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ СВЕРХПРОВОДЯЩЕГО СПИНОВОГО КЛАПАНА НА БАЗЕ Fe/Nb

© 2023 г. А. А. Камашев¹, *, А. А. Валидов¹, Н. Н. Гарифьянов¹, И. А. Гарифуллин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: kamandi@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изучены новые структуры сверхпроводящих спиновых клапанов конструкций Fe₂/Nb/Fe₁/CoO_x и Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x. Работа этих структур построена за пределами классического эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик. Интерфейс сверхпроводник/ферромагнетик в этих структурах разделен дополнительным изолирующим слоем. Согласно результатам наших исследований, наиболее перспективными конструкциями для дальнейшего исследования являются конструкции Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x.

DOI: 10.31857/S0367676522700910, EDN: NONRGT

ВВЕДЕНИЕ

В последние десятилетия сверхпроводящая спинтроника вызывает огромный интерес во всем мире. Большое количество разнообразных работ посвящено созданию, исследованию и моделированию различных устройств сверхпроводящей спинтроники (см., например, обзор [1]). Логические устройства типа сверхпроводник/ферромагнетик/сверхпроводник (С/Ф/С) могут оказаться перспективным для реализации в квантовой логике [2]. Элемент квантового кубита [3, 4] основан на использовании джозефсоновского π -контакта [5, 6].

Явления ферромагнетизма и сверхпроводимости антагонистичны друг к другу. Ферромагнетизм сильно подавляет сверхпроводимость. Это связано с тем, что ферромагнетизм предполагает параллельную (П) ориентацию спинов, а сверхпроводимость антипараллельную (АП), так как спины электронов куперовской пары в сверхпроводнике противоположно направлены. В искусственно созданных слоистых гетероструктурах взаимодействие этих явлений получило название эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик (С/Ф). Более детально все особенности этого эффекта описаны в работах [7–10].

В конце 1990-х гг. были предложены две теоретические модели сверхпроводящего спинового клапана (ССК), основанных на эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик. Первая модель Ф1/Ф2/С была предложена Санжиун О и др. [11]. Другая модель Ф1/С/Ф2 была представлена Таги-

ровым [12]. Принцип работы обеих моделей одинаков. Эффект сверхпроводящего спинового клапана состоит в различной степени подавления сверхпроводимости в искусственно созданных тонкопленочных мультислоях Ф1/Ф2/С или Ф1/С/Ф2 для параллельной (П) и антипараллельной (АП) взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев Ф1 и Ф2. Таким образом, эта разница приводит к более низкому значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние в случае параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев ($T_c^П$), чем при антипараллельной ориентации ($T_c^{АП}$). Главным условием для возможности контроля за сверхпроводящим током в структурах ССК является: $\Delta T_c > \partial T_c$, где $\Delta T_c = T_c^{АП} - T_c^П$ – эффект сверхпроводящего спинового клапана; ∂T_c – ширина сверхпроводящего перехода. Сверхпроводящий спиновый клапан перспективен в качестве пассивного элемента в сверхпроводящей спинтронике. Впервые экспериментально реализовать сверхпроводящий спиновый клапан удалось в нашей группе в 2010 г. в конструкции ССК Fe₁/Cu/Fe₂/In [13].

В ряде работ (см., например, [8–10, 14]) предсказана генерация далекодействующей триплетной компоненты (ДТК) сверхпроводящего конденсата в структурах сверхпроводник/ферромагнетик. В однородном ферромагнетике эта компонента имеет нулевой спин куперовской пары $S_z = 0$. Поэтому,

ОБРАЗЦЫ

такая компонента не может быть экспериментально обнаружена при исследовании транспортных свойств системы. Однако, при наличии магнитных неоднородностей или $\Phi 2$ -слоя с неколлинеарной ориентацией намагниченности к $\Phi 1$ -слою полный спин куперовской пары становится $S_z = \pm 1$ [15], и ее можно зафиксировать по аномально глубокому проникновению куперовской пары в ферромагнетик. Как следует из работы Фомина и др. [16], наличие минимума T_c вблизи ортогональной ориентации намагниченностей Φ -слоев однозначно свидетельствует о генерации ДТК. Мы неоднократно получали экспериментальное подтверждение существования ДТК для структур ССК $\Phi 1/\Phi 2/C$. Впервые это было нами продемонстрировано для структур спинного клапана $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Cu}/\text{Fe2}/\text{Pb}$ в работе [17]. Наличие триплетного вклада в величину эффекта сверхпроводящего спинного клапана было также показано в работах [18–22]. В наших последних работах [23, 24], мы продемонстрировали гигантскую величину эффекта сверхпроводящего спинного клапана более 0.5 K, что является рекордом эффекта ССК в этих магнитных полях для структур модели $\Phi 1/\Phi 2/C$. Основной вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинного клапана в работах [23, 24] вносили дальноствующие триплетные компоненты сверхпроводящего конденсата.

Необходимо отметить, что на сегодняшний день классический эффект близости C/Φ в структурах ССК, практически полностью изучен. Как показывают результаты наших работ [23, 24] и результаты других групп [25] уже сейчас достигнуты предельные значения эффекта ССК с использованием различных сплавов и элементных ферромагнетиков в структурах $\Phi 1/\Phi 2/C$. В связи с этим необходимо начать изучение принципиально новых структур. В настоящей работе мы исследовали структуры ССК, основанные на неизученном эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик с изолирующими слоями, где отсутствовал прямой интерфейсный контакт между сверхпроводником и ферромагнетиком. В данной работе были исследованы структуры $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ и $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$. В структурах $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ в качестве изолирующего слоя использовался “мертвый” слой (“мертвая” зона), которая образуется в результате взаимной диффузии атомов ниобия и железа через интерфейс. Наличие такой “мертвой” зоны на границе раздела Fe/Nb было показано в экспериментах Мюге с сотрудниками в работах [26–28]. В структурах $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ в качестве изолирующего слоя использовался оксид алюминия (Al_2O_3). Наиболее интересные результаты были получены для структур $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$.

Изготовлены и исследованы структуры сверхпроводящего спинного клапана $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ и $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$. Образцы изготовлены на напылительной установке фирмы производства BESTEC с использованием классического метода электронно-лучевого испарения в сверхвысоком вакууме $1 \cdot 10^{-9}$ мбар в Казанском физико-техническом институте. Напыление оксида кобальта и оксида алюминия проводилось в два этапа. Сначала напылялся Co или Al, затем держатель образцов перемещался в загрузочный шлюз и выдерживался в течение 2 ч в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар. Образцы представляли собой полосы $1 \times 15 \text{ мм}^2$, нанесенные на монокристаллическую подложку MgO (001). В процессе приготовления подложка ориентировалась таким образом, чтобы легкая ось Φ -слоев совпадала с длинной стороной образца. Для приготовления слоев ССК были использованы сверхчистые мишени железа (Fe), алюминия (Al), ниобия (Nb) и кобальта (Co) с чистотой выше значения 4N (концентрация примеси менее 0.01%). Скорость напыления слоев Fe, Al и Co составляла 0.5 Å/с, а скорость напыления сверхпроводящего слоя Nb составляла 1.5 Å/с. В напылительной камере установлено 4 различных мишени, что позволяет осуществлять напыление различных материалов в одном вакуумном цикле. Скорость осаждения контролировалась при помощи водоохлаждаемого кварцевого осциллятора. Специальный самодельный держатель образцов позволял готовить 8 различных образцов за один вакуумный цикл. Как показали наши предварительные исследования, качественные структуры сверхпроводящего спинного клапана на базе Fe/Nb получаются при приготовлении структур на нагретые подложки до температур выше 600 K. Дизайн исследуемых образцов изображен на рис. 1. Параметры исследуемых образцов представлены в табл. 1.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Оптимальная толщина слоя ниобия Nb была определена при изучении двухслойных систем Fe/Nb и трехслойных систем $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ из кривых $T_c(d_{\text{Nb}})$ (см. рис. 2), измеренных при постоянной толщине $d_{\text{Fe}} = 10 \text{ нм}$, что намного превышает глубину проникновения ξ_h куперовских пар в Φ -слой железа. Основываясь на наших данных по зависимости $T_c(d_{\text{Fe}})$ при фиксированном значении d_{Nb} , мы оценили эту величину как $\xi_h \sim 1 \text{ нм}$. Согласно рис. 2, в области больших толщин ниобия T_c медленно уменьшается с уменьшением d_{Nb} . Ниже $d_{\text{Nb}} \sim 30 \text{ нм}$ для образцов серии Fe/Nb и $d_{\text{Nb}} \sim 10 \text{ нм}$ для образцов серии $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ значение T_c начинает резко уменьшаться. При $d_{\text{Nb}} <$

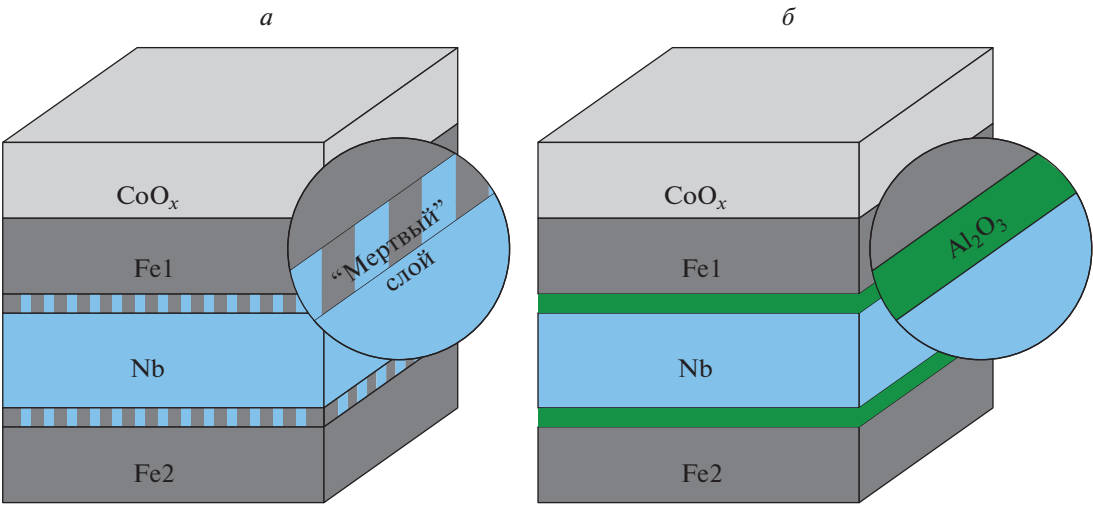


Рис. 1. Дизайн исследуемых образцов: Fe2/Nb/Fe1/CoO_x (а) и Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x (б).

< 15 нм для образцов серии Fe/Nb и при $d_{Nb} < 3$ нм для образцов серии Fe/Al₂O₃/Nb T_c становится меньше 1.5 К. Основываясь на результатах, представленных на рис. 2, были выбраны следующие оптимальные толщины сверхпроводящих слоев $d_{Nb} \sim 35$ нм для образцов серии Fe/Nb и $d_{Nb} \sim 4$ нм для образцов серии Fe/Al₂O₃/Nb. Для проверки воспроизводимости параметров были повторены несколько образцов из серии 1а и 1б (см. рис. 2). Как видно из рис. 2, свойства наших образцов воспроизводимы от серии к серии.

Была проведена магнитная характеристика образцов серии 1а и 1б для определения и оценки наличия “мертвого” слоя (“мертвой” зоны) в интерфейсе Fe/Nb. Магнитная характеристика проводилась на установке PPMS-9 (Quantum Design). Согласно нашим оценкам, толщина “мертвого” слоя составила ~ 0.5 нм. Эти результаты хорошо согласуются с результатами, полученными ранее в работах [26–28].

Значения T_c определялись по изменению сопротивления при помощи стандартного 4-х контактного метода на постоянном токе на установке, которая была создана на базе спектрометра ЭПР X-диапазона фирмы Bruker. В состав установки входит электромагнит с малым (меньше 20 Э) остаточным магнитным полем, позволяющий сканировать магнитное поле, и специально сконструированный измерительный криостат. Перед каждым измерением, проводилась специальная процедура юстировки образца относительно оси вращения для того, чтобы исключить составляющую магнитного поля, перпендикулярную к плоскости образца.

Для серий образцов АА 3 и АА 4 была изучена зависимость T_c от угла α между направлением поля охлаждения и внешним магнитным полем. В наших структурах вектор намагниченности Fe1-слоя остается зафиксированным из-за закрепления антиферромагнитным слоем CoO_x (температура Нееля $T_N \sim 250$ К). Направление век-

Таблица 1. Параметры исследуемых образцов, представленных на рис. 1. Серия АА 3: Fe2(d_{Fe})/Nb(35 нм)/Fe1(2.5 нм)/CoO_x(3 нм); Серия АА 4: Fe2(d_{Fe})/Al₂O₃(2 нм)/Nb(4 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Fe1(3 нм)/CoO_x(3 нм)

Серия образцов	Номер образца	d_{Fe} , нм
АА 3	1	0.7
	2	0.9
	3	1
	4	1.2
АА 4	1	1
	2	2
	3	5
	4	10

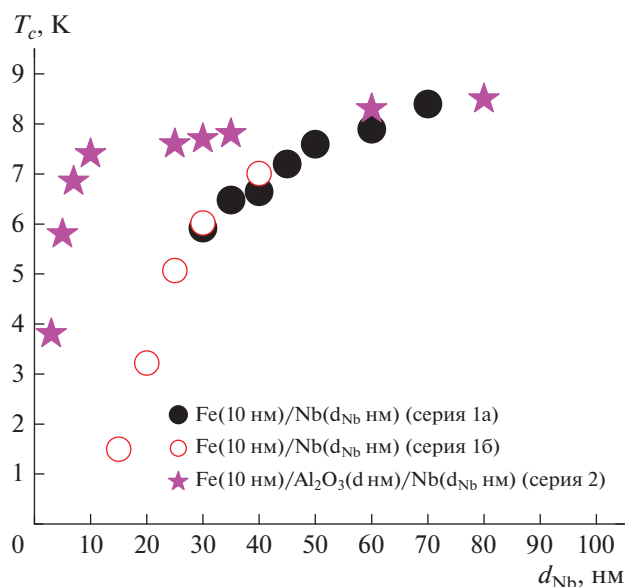


Рис. 2. Зависимость T_c от толщины Nb-слоя для структур Fe(10 нм)/Nb и Fe(10 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Nb.

тора намагниченности Fe2-слоя является свободным. Наиболее интересные результаты удалось получить для образцов АА 3-3 и АА 4-4. Согласно результатам, представленным на рис. 3а, видно, что для образцов серии АА 3 не наблюдается никаких эффектов. Величина эффекта сверхпроводящего спинового клапана фактически равна 0. Согласно рис. 3б, для образца из серии АА 4 наблюдается немонотонная зависимость $T_c(\alpha)$ с характерным минимумом вблизи ортогональной ориентации намагниченностей. Согласно теории Фомина и др. [16] такое поведение зависимости $T_c(\alpha)$ свидетельствует о генерации дальнедействующих триплетных компонент сверхпроводящего конденсата в наших образцах.

Согласно нашим результатам, можно заключить, что наличие “мертвого” слоя в структурах Fe2/Nb/Fe1/CoO_x не позволяет наблюдать эффектов сверхпроводящего спинового клапана. Мы фиксируем влияние ферромагнетизма на сверхпроводимость (подавление T_c), но зафиксировать взаимного влияния направления векторов намагниченностей на ΔT_c пронаблюдать не удается. В структурах Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x, где используется Al₂O₃ в качестве изолирующего слоя в интерфейсе Fe/Nb, обнаружена небольшая величина эффекта ΔT_c . Остается непонятным почему величина эффекта спинового клапана в структурах Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x зависит от величины внешнего магнитного поля. Подобный эффект наблюдался для структур с полуметаллическими ферромагнитными материалами [23–25]. Данный результат требует до-

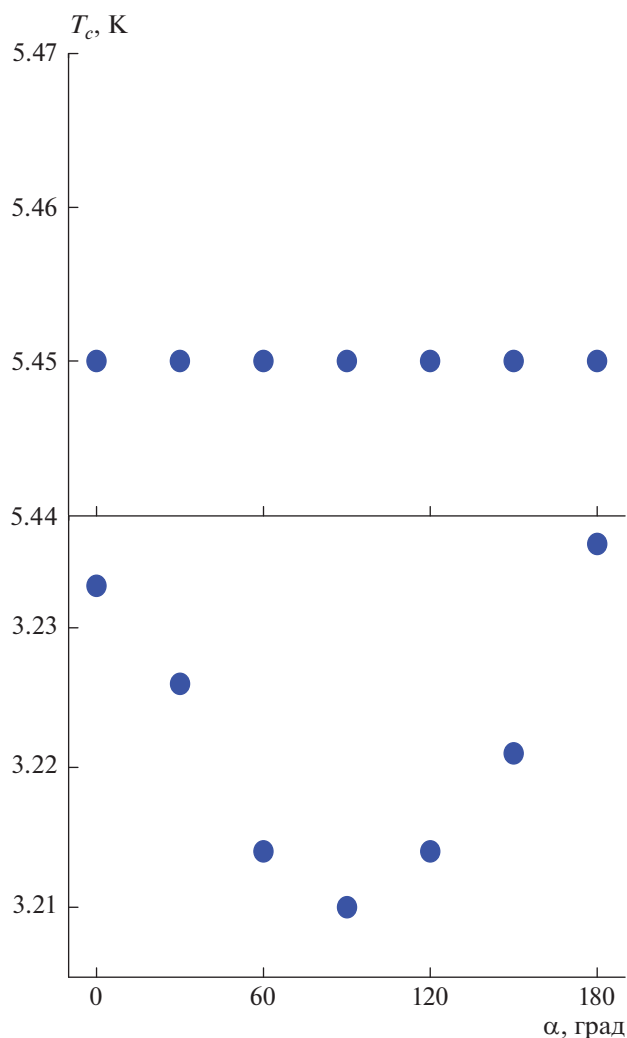


Рис. 3. Зависимость T_c от угла между намагниченностями слоев Fe1 и Fe2 при вращении магнитного поля величиной $H_0 = 7000$ Ое, лежащего в плоскости образцов: для образца АА 3-3 (а); для образца АА 4-4 (б).

полнительного теоретического обсуждения. Для структур Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x удалось обнаружить триплетный вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана, составляющую порядка 30 мК (см. рис. 3).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучены структуры сверхпроводящего спинового клапана конструкций Fe2/Nb/Fe1/CoO_x и Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x. Для структур Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x удалось обнаружить триплетный вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана, составляющую порядка 30 мК.

Полученные результаты позволяют предположить, что структуры со специально приготовлен-

ными изолирующими слоями являются более перспективными для дальнейшего исследования структур сверхпроводящего спинового клапана, построенного на неклассическом эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик с изолирующими слоями.

Работа Камашева А.А. и Гарифьянова Н.Н. выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-20153). Работа Гарифуллина И.А. и Валидова А.А. выполнена в рамках темы государственного задания ФИЦ КазНЦ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ioffe L.B., Geshkenbein V.B., Feigel'man M.V. et al. // *Nature*. 1999. V. 398. No. 6729. P. 679.
2. Рязанов В.В. // УФН. 1999. Т. 169. № 8. С. 920; Ryzanov V.V. // *Phys. Usp.* 1999. V. 42. No. 9. P. 825.
3. Ryzanov V.V., Oboznov V.A., Veretennikov A.V., Rusanov A.Yu. // *Phys. Rev. B*. 2001. V. 65. Art. No. 020501.
4. Veretennikov A.V., Ryzanov V.V., Oboznov V.A. et al. // *Physica B*. 2000. V. 284–288. P. 495.
5. Ryzanov V.V., Oboznov V.A., Rusanov A.Yu. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2001. V. 86. P. 2427.
6. Kontos T., Aprili M., Lesueur J., Grison X. // *Phys. Rev. Lett.* 2002. V. 89. Art. No. 137007.
7. Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // УФН. 2002. Т. 172. № 2. С. 113; Izumov Yu.A., Proshin Yu.N., Khusainov M.G. // *Phys. Usp.* 2002. V. 45. No. 2. P. 109.
8. Buzdin A.I. // *Rev. Mod. Phys.* 2005. V. 77. P. 935.
9. Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B. // *Rev. Mod. Phys.* 2005. V. 77. P. 1321.
10. Efetov K.B., Garifullin I.A., Volkov A.F., Westerholt K. // In: *Magnetic heterostructures. Advances and perspectives in spinstructures and spintransport. Series Springer Tracts in Modern Physics*. V. 227. Berlin: Springer, 2007. P. 252.
11. Oh S., Youm D., Beasley M.R. // *Appl. Phys. Lett.* 1997. V. 71. No. 16. P. 2376.
12. Tagirov L.R. // *Physica C*. 1998. V. 307. P. 145.
13. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2010. V. 97. No. 10. Art. No. 102505.
14. Efetov K.B., Garifullin I.A., Volkov A.F., Westerholt K. // *Magnetic nanostructures: spin dynamics and spin transport. Springer Tracts in Modern Physics*. V. 246. Springer, 2013. P. 85.
15. Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B. // *Phys. Rev. Lett.* 2001. V. 86. P. 4096.
16. Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // *Письма в ЖЭТФ*. 2010. Т. 91. № 6. С. 329; Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // *JETP Lett.* 2010. V. 91. No. 6. P. 308.
17. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109. Art. No. 057005.
18. Zdravkov V.I., Kehrle J., Obermeier G. et al. // *Phys. Rev. B*. 2013. V. 87. Art. No. 144507.
19. Jara A.A., Safranski C., Krivorotov I.N. et al. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. Art. No. 184502.
20. Wang X.L., Di Bernardo A., Banerjee N. et al. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. Art. No. 140508(R).
21. Flokstra M.G., Cunningham T.C., Kim J. et al. // *Phys. Rev. B*. 2015. V. 91. Art. No. 060501.
22. Banerjee N., Smiet C.B., Smits R.G.J. et al. // *Nature Commun.* 2014. V. 5. Art. No. 3048.
23. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // *Beilstein J. Nanotechnol.* 2019. V. 10. P. 1458.
24. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // *Phys. Rev. B*. 2019. V. 100. Art. No. 134511.
25. Singh A., Voltan S., Lahabi K., Aarts J. // *Phys. Rev. X*. 2015. V. 5. Art. No. 021019.
26. Mühge Th., Garif'yanov N.N., Goryunov Yu.V. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 77. P. 1857.
27. Mühge Th., Westerholt K., Zabel H. et al. // *Phys. Rev. B*. 1997. V. 55. Art. No. 8945.
28. Mühge Th., Theis-Bröhl K., Westerholt K. et al. // *Phys. Rev. B*. 1998. V. 57. Art. No. 5071.

Investigation of the features of superconducting spin valve based on Fe/Nb

A. A. Kamashev^{a,*}, A. A. Validov^a, N. N. Garif'yanov^a, I. A. Garifullin^a

^a Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: kamandi@mail.ru

We studied new structures of superconducting spin valves of Fe₂/Nb/Fe₁/CoO_x and Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x designs. The operation of these structures is built beyond the classical superconductor/ferromagnet proximity effect. The superconductor/ferromagnet interface in these structures is separated by an additional insulating layer. According to the results of our studies, the Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x structures are the most promising structures for further research.