

УДК 53.06:537.6:538.9

## СВЕРХПРОВОДЯЩИЙ СПИНОВЫЙ КЛАПАН $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$ НА СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОДЛОЖКЕ ИЗ НИОБАТА СВИНЦА И МАГНИЯ И ТИТАНАТА СВИНЦА

© 2023 г. А. А. Камашев<sup>1</sup>, \*, С. А. Большаков<sup>1</sup>, Р. Ф. Мамин<sup>1</sup>, И. А. Гарифуллин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Казанский 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 14.04.2023 г.

После доработки 15.05.2023 г.

Принята к публикации 29.05.2023 г.

Изучены свойства структуры сверхпроводящего спинового клапана  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на коммерческой сегнетоэлектрической подложке из ниобата свинца и магния и титаната свинца  $([\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{1-x}[\text{PbTiO}_3]_x)$ , где  $x = 0.29-0.31$  под воздействием электрического поля. Внешнее электрическое поле создает упругие напряжения и деформации в сегнетоэлектрической подложке, что может приводить к изменению взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев в структуре спинового клапана. Согласно результатам наших исследований, при приложении электрического поля 1 кВ/см удается зарегистрировать сдвиг температуры перехода в сверхпроводящее состояние системы  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на 25 мК.

DOI: 10.31857/S036767652370223X, EDN: WZQCKK

### ВВЕДЕНИЕ

Взаимное влияние сверхпроводимости и ферромагнетизма исследуется с середины прошлого века. Эти два физических явления являются противоположными друг другу. Это связано с тем, что сверхпроводимость (С) предполагает антипараллельную (АП) ориентацию спинов, так как спины электронов, входящих в куперовскую пару, противоположно направлены. При этом ферромагнетизм предполагает параллельную (П) ориентацию спинов. В самом начале, взаимодействии сверхпроводимости и ферромагнетизма изучалось в интерметаллических соединениях и сплавах (см., например, [1–3]). На сегодняшний день наибольший интерес связан со структурами, состоящими из ферромагнитных и сверхпроводящих слоев, потому что в них существует возможность пространственного разнесения между сверхпроводимостью и ферромагнетизмом. Изучение таких структур стало возможно благодаря технологическому прогрессу в приготовлении высококачественных тонкопленочных слоистых металлических структур (см., например, [4–9]). Эффекты, которые наблюдаются в тонкопленочных слоистых металлических структурах на базе сверхпроводников и ферромагнетиков, получили название эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик (С/Ф). Многие особенности этого эффекта подробно описаны в работах [7, 9–11].

В 1997 году группа профессора Бисли из Стэнфордского университета предложила теоретическую модель сверхпроводящего спинового клапана (ССК)  $\Phi 1/\Phi 2/\text{С}$ , основанную на эффекте близости С/Ф [12]. Другой возможный вариант сверхпроводящего спинового клапана был предложен теоретически Тагировым [13] и Буздиным с соавторами [14, 15] в 1999 г. Принцип работы обеих моделей одинаков. Эффект сверхпроводящего спинового клапана состоит в различной степени подавления сверхпроводимости в тонкопленочных мультислоях  $\Phi 1/\Phi 2/\text{С}$  или  $\Phi 1/\text{С}/\Phi 2$  для параллельной и антипараллельной взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев  $\Phi 1$  и  $\Phi 2$ . Таким образом, эта разница приводит к более низкому значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние в случае параллельной ориентации намагниченностей  $\Phi$ -слоев ( $T_c^{\text{П}}$ ), чем при антипараллельной ориентации ( $T_c^{\text{АП}}$ ). Сверхпроводящий спиновый клапан перспективный пассивный элемент в сверхпроводящей спинтронике, так как на базе него существует возможность контроля сверхпроводящим током. Главным условием для возможности такого контроля  $\Delta T_c > \partial T_c$ , где  $\Delta T_c = T_c^{\text{АП}} - T_c^{\text{П}}$  – эффект сверхпроводящего спинового клапана;  $\partial T_c$  – ширина сверхпроводящего перехода. Большой

интерес в данной области физики вызван не только фундаментальным значением исследований, но и возможным практическим применением для будущих нужд спинтроники. Впервые экспериментально реализовать сверхпроводящий спиновый клапан (ССК) удалось в нашей группе в 2010 г. в конструкции  $\text{Fe1}/\text{Cu}/\text{Fe2}/\text{In}$  [16].

Теоретические работы (см., например, обзоры [9–11, 17–19]) предсказывают существование при определенных условиях действующей триплетной компоненты (ДТК) сверхпроводящего конденсата в ССК структурах. Как следует из теории Фомина и др. [20], наличие минимума  $T_c$  вблизи ортогональной конфигурации намагниченностей однозначно свидетельствует о генерации ДТК. Нами были получены прямые доказательства существования ДТК сверхпроводящего конденсата в структурах сверхпроводящего спинового клапана модели  $\Phi 1/\Phi 2/\text{C}$  [21]. Мы продемонстрировали гигантскую величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана порядка 0.5 К в магнитном поле 3.5 кЭ, что является рекордом эффекта ССК в этих магнитных полях для структур модели  $\Phi 1/\Phi 2/\text{C}$  [22, 23].

Стоит отметить, что на сегодняшний день, управление сверхпроводящим током под действием внешнего магнитного поля в структурах ССК достигло максимальных значений по эффективности. Последние результаты [22–24] показывают, что предельные значения эффекта ССК уже практически достигнуты. Основываясь на вышеизложенном, можно предположить, что необходимо исследовать новые структуры ССК с иными подходами к функционированию. Здесь мы предлагаем исследование структур ССК на базе сегнетоэлектрических подложек. Это должно позволить управлять сверхпроводящим током с помощью электрического поля в структурах ССК.

Взаимное изменение векторов намагниченностей в структуре ССК будет происходить под воздействием внешнего электрического поля на сегнетоэлектрическую подложку за счет обратного магнитострикционного эффекта. Обратный магнитострикционный эффект в этой системе возникает вследствие деформаций сегнетоэлектрической подложки, обусловленных обратным пьезоэлектрическим эффектом при приложении внешнего электрического поля к сегнетоэлектрической подложке. Деформации в сегнетоэлектрической подложке вызывают напряжения в ферромагнитном слое. Это, в свою очередь, проявляется в появлении дополнительной магнитной анизотропии, которая при определенном построении системы может привести к изменению направления вектора намагниченности ферромагнитного слоя.

Таким образом, если использовать два ферромагнитных материала с различной коэрцитивной

силой или зафиксировать направление намагниченности одного из  $\Phi$ -слоев в структуре ССК, то существует возможность взаимного изменения направления векторов намагниченностей под действием внешнего электрического поля на сегнетоэлектрическую подложку. Это в свою очередь позволит контролировать температуру перехода в сверхпроводящее состояние в структуре ССК. В наших предыдущих работах [25], мы продемонстрировали возможность регистрации изменения направления вектора намагниченности  $\Phi$ -слоя на сегнетоэлектрической подложке при прикладывании электрического поля в пределах от 0.6 до 1 кВ/см.

В настоящей работе представлены результаты исследований структуры сверхпроводящего спинового клапана  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на коммерческой сегнетоэлектрической подложке из ниобата свинца и магния и титаната свинца (PMN-PT;  $[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{1-x} - [\text{PbTiO}_3]_x$ , где  $x = 0.29 - 0.31$ ). Мы продемонстрировали, что при приложении электрического поля от 0.6 до 1 кВ/см к сегнетоэлектрической подложке PMN-PT увеличивается сдвиг температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Величина сдвига  $T_c$  увеличивается с увеличением электрического поля. Максимальный сдвиг  $T_c$ , который удалось пронаблюдать для данной системы, составил половину ширины сверхпроводящего перехода при прикладывании электрического поля 1 кВ/см.

## ОБРАЗЦЫ

Для экспериментов были приготовлены структуры сверхпроводящего спинового клапана  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на сегнетоэлектрической подложке PMN-PT. Модель полученных структур представлена рис. 1. Образцы изготавливали на напылительной установке фирмы BESTEC с использованием классического метода электронно-лучевого испарения в сверхвысоком вакууме  $1 \cdot 10^{-9}$  мбар и магнетронного распыления в Казанском физико-техническом институте. Напыление оксида кобальта проводили в два этапа. Сначала напыляли Co, затем держатель образцов перемещали в загрузочный шлюз и выдерживался в течение 2 ч в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар. Образцы представляли собой прямоугольные полосы  $2 \cdot 10 \text{ мм}^2$ , нанесенные на сегнетоэлектрическую подложку PMN-PT толщиной 0.5 мм. Для приготовления слоев ССК были использованы сверхчистые мишени железа (Fe), алюминия (Al), свинца (Pb) 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 Pb составляла 12 Å/с. Для предотвращения окисления слоя свинца все

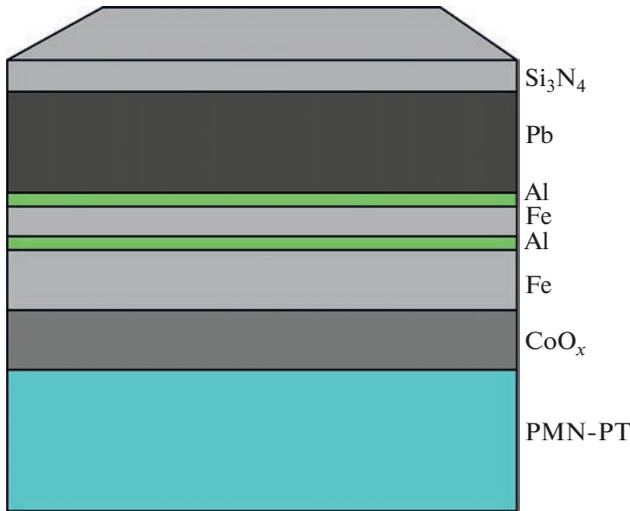


Рис. 1. Модель исследуемых структур ССК.

образцы были защищены толстым диэлектрическим слоем нитрида кремния ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) толщиной 85 нм. Данный слой наносился последним в камере магнетронного распыления, скорость напыления составляла  $1.8 \text{ \AA}/\text{с}$ . В напылительной камере, в которой используется метод электронно-лучевого испарения, установлено 4 различных мишени, что позволяет осуществлять напыление различных материалов в одном вакуумном цикле. Параметры исследуемых образцов представлены в табл. 1. Здесь Fe1 и Fe2 – ферромагнитные слои. Слой  $\text{CoO}_x$  – антиферромагнитный слой. Данный слой необходим для фиксации намагниченности Fe1-слоя. Слой Al между ферромагнитными слоями необходим для разнесения намагниченностей Ф-слоев. Слой Al между Fe2 и Pb – технический слой необходим для гладкого роста Pb-слоя. Слой Pb – сверхпроводящий слой. Слой  $\text{Si}_3\text{N}_4$  – защитный слой.

Таблица 1. Параметры исследуемых образцов, представленных на рис. 1. Серия PLAK25:  $\text{CoO}_x(3.5 \text{ нм})/\text{Fe1}(3 \text{ нм})/\text{Al}(4 \text{ нм})/\text{Fe2}(d_{\text{Fe2}})/\text{Al}(1.2 \text{ нм})/\text{Pb}(60 \text{ нм})/\text{Si}_3\text{N}_4(85 \text{ нм})$ ; Серия PLAK26:  $\text{CoO}_x(3.5 \text{ нм})/\text{Fe1}(3 \text{ нм})/\text{Al}(4 \text{ нм})/\text{Fe2}(1 \text{ нм})/\text{Al}(1.2 \text{ нм})/\text{Pb}(d_{\text{Pb}})/\text{Si}_3\text{N}_4(85 \text{ нм})$

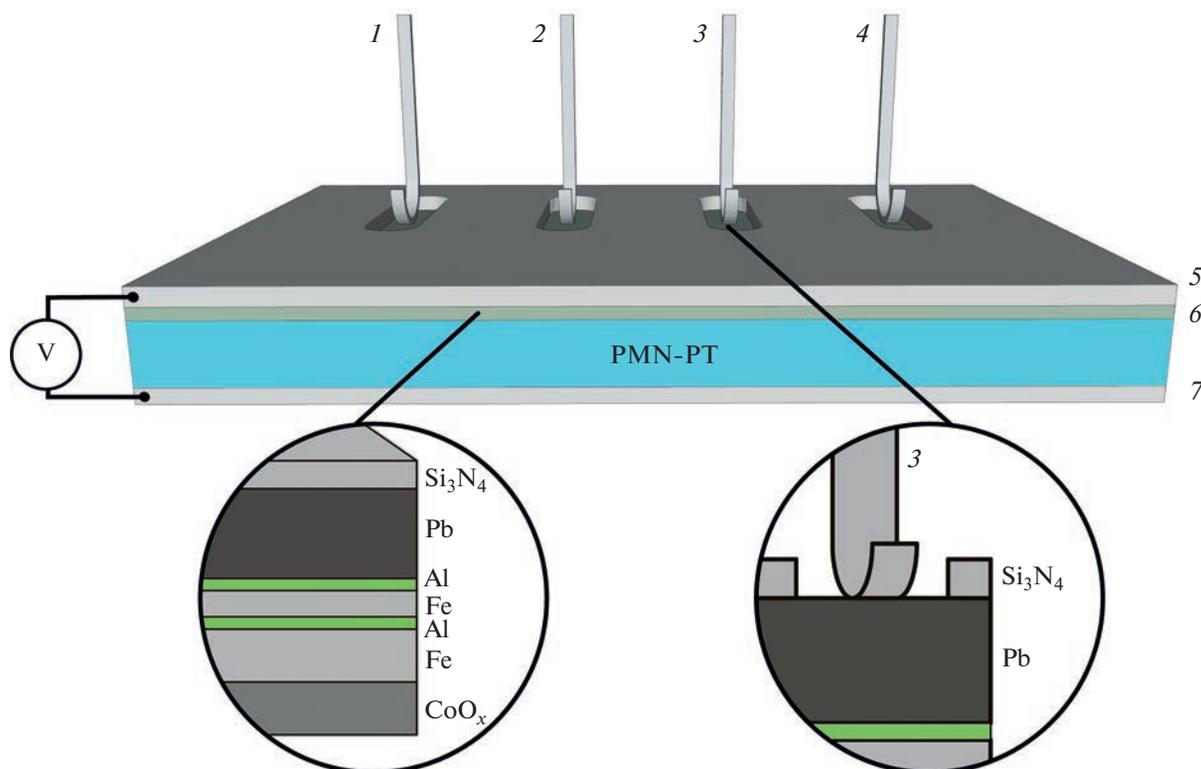
Серия образцов	Номер образца	$d_{\text{Fe2}}$ , нм	$d_{\text{Pb}}$ , нм
PLAK 25	1	0.9	–
	2	1	–
	3	1.2	–
	4	1.5	–
PLAK 26	1	–	50
	2	–	40
	3	–	30
	4	–	20

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Были проведены измерения транспортных свойств приготовленной серии образцов. 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 остаточным магнитным полем, позволяющий сканировать магнитное поле, и специально сконструированный измерительный криостат. Образец на измерительной вставке размещался таким образом, чтобы существовала возможность прикладывания электрического поля к сегнетоэлектрической подложке. Электроды необходимые для воздействия электрическим полем располагались на нижней и верхней грани образца. Схема подвода электродов для измерения  $T_c$  и прикладывания электрического поля представлена на рис. 2. Значения  $T_c$  определялись как средняя точка на сверхпроводящем переходе.

Наиболее интересный результат был получен для образца PLAK 261 (см. рис. 3). Для данного образца удалось наблюдать сдвиг в температуре перехода в сверхпроводящее состояние при прикладывании электрического поля к сегнетоэлектрической подложке. При этом данный сдвиг увеличивался с увеличением величины электрического поля, прикладываемому к подложке. На рис. 3а изображена температурная зависимость сопротивления, полученная при приложении к подложке электрического поля напряженностью  $0.6 \text{ кВ}/\text{см}$ , при этом сдвиг  $T_c$  составил 15 мК. На рис. 3б изображена температурная зависимость сопротивления при приложении электрического поля 1 кВ/см, при этом сдвиг  $T_c$  составил уже 25 мК, что равно половине величины ширины сверхпроводящего перехода.

Стоит отметить, что осуществить полное переключение между нормальным и сверхпроводя-

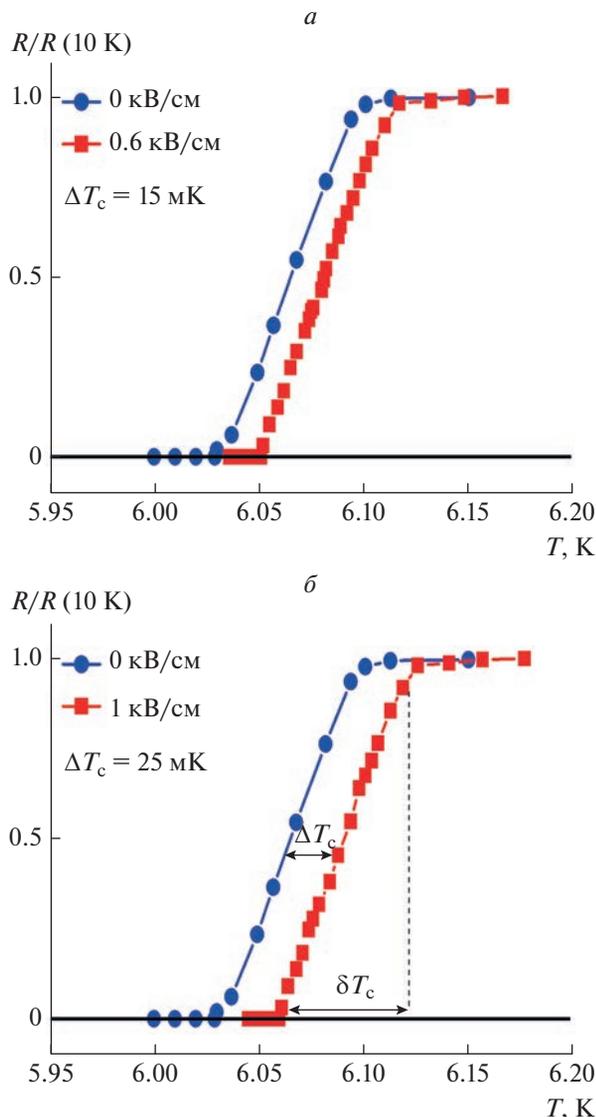


**Рис. 2.** Схема подвода электродов для измерения  $T_c$  и прикладывания электрического поля для исследуемых структур ССК: 1, 4 – токовые электроды для измерения  $T_c$ ; 2, 3 – потенциальные электроды для измерения  $T_c$ ; 5, 7 – обкладки для прикладывания электрического поля к сегнетоэлектрической подложке; 6 – структура сверхпроводящего спинового клапана.

щим состоянием для этих структур не удалось. Главное условие для этого выполнено не было, в нашем случае  $\Delta T_c < \partial T_c$ , а для реализации переключения необходимо  $\Delta T_c > \partial T_c$ . Несмотря на это, удалось продемонстрировать увеличение сдвига  $T_c$  с увеличением величины электрического поля, прикладываемому к подложке. Этот факт может говорить о том, что при прикладывании электрического поля к подложке происходит взаимное изменение направления векторов намагниченностей  $\Phi$ -слоев в структуре, что в свою очередь приводит к сдвигу  $T_c$ . С увеличением величины электрического поля происходит больший поворот между направлениями векторов намагниченностей, что приводит к большему сдвигу  $T_c$ . Также стоит подчеркнуть, что в этих системах (см. рис. 1) отсутствует прямой контакт на границе раздела между сегнетоэлектрической подложкой и ферромагнетиком. Этот факт может сказываться на влиянии обратного магнитострикционного эффекта на поворот намагниченности  $\Phi$ -слоя. В дальнейшем для увеличения эффекта сдвига  $T_c$  необходимо будет использовать два различных ферромагнитных материала с различными коэрцитивными параметрами в каче-

стве  $\Phi$ -слоев. Это позволит увеличить вероятность поворота намагниченности за счет обратного магнитострикционного эффекта в следствии непосредственного контакта между ферромагнетиком и сегнетоэлектрической подложкой. Таким образом, будет существовать возможность увеличения взаимного изменения направления векторов намагниченностей  $\Phi$ -слоев, что в свою очередь должно привести к увеличению эффекта сдвига  $T_c$ , что должно повысить эффективность работы ССК.

Несмотря на то, что конструкция ССК, представленная на рис. 1, требует модернизации для увеличения эффекта ССК, мы смогли продемонстрировать то, что при прикладывании электрического поля от 0.6 до 1 кВ/см к сегнетоэлектрической подложке PMN-PT увеличивается сдвиг температуры перехода в сверхпроводящее состояние в конструкции ССК  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$ . При этом величина сдвига  $T_c$  увеличивается с увеличением электрического поля. Максимальный сдвиг  $T_c$ , который удалось пронаблюдать для данной системы, составил половину ширины сверхпроводящего перехода при прикладывании электрического поля в 1 кВ/см.



**Рис. 3.** Температурные зависимости сопротивления для образца PLAK 261 при прикладывании электрического поля: (а) электрическое поле 0.6 кВ/см, сдвиг  $T_c$  составляет 15 мК; (б) электрическое поле 1 кВ/см, сдвиг  $T_c$  составляет 25 мК. Ошибка эксперимента соответствует размеру символов.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были исследованы свойства структуры сверхпроводящего спинового клапана  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на сегнетоэлектрической подложке PMN-PT под воздействием электрического поля. Согласно результатам наших исследований, при прикладывании электрического поля 1 кВ/см удастся зарегистрировать сдвиг температуры перехода в сверхпроводящее состояние системы  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  на половину ширины сверхпроводящего перехода.

Полученные результаты позволяют предположить, что в структурах сверхпроводящего спинового клапана на сегнетоэлектрической подложке возможно осуществить полное переключение между нормальным и сверхпроводящим состояниями при прикладывании электрического поля к сегнетоэлектрической подложке.

Исследования выполнены при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-10178).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Fischer O., Peter M. Magnetism: magnetic properties of metallic alloys. Recent work on ferromagnetic superconductors. N.Y.: Academic Press Inc, 1973.
2. Rehmann S., Herrmannsdorfer T. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. No. 6. P. 1122.
3. Bulaevskii L.N., Buzdin A.I., Kuli'c M.L. et al. // Adv. Phys. 1985. V. 34. No. 2. P. 175.
4. Chien C.L., Jiang J.S., Xiao J.Q. et al. // J. Appl. Phys. 1997. V. 81. No. 8. P. 5358.
5. Chien C.L., Reich D.H. // J. Magn. Magn. Mat. 1999. V. 200. P. 83.
6. Garifullin I.A. // J. Magn. Magn. Mat. 2002. V. 240. P. 571.
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. Golubov A.A., Kupriyanov M.Y., Il'ichev E. // Rev. Mod. Phys. 2004. V. 76. No. 2. P. 411.
9. Buzdin A.I. // Rev. Mod. Phys. 2005. V. 77. No. 3. P. 935.
10. Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B. // Rev. Mod. Phys. 2005. V. 77. P. 1321.
11. Efetov K.B., Garifullin I.A., Volkov A.F., Westerholt K. Magnetic heterostructures. Advances and perspectives in spinstructures and spintransport. Series Springer Tracts in Modern Physics. V. 227. Berlin: Springer, 2007. P. 252.
12. Youm S., Oh D., Beasley M.R. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. No. 16. P. 2376.
13. Tagirov L.R. // Physica C. 1998. V. 307. P. 145.
14. Buzdin A.I., Vedyayev A.V., Ryzhanova N.V. // Europhys. Lett. 1999. V. 48. No. 48. P. 686.
15. Baladi'e I., Buzdin A.I., Ryzhanov N. et al. // Phys. Rev. B. 2000. V. 63. Art. No. 054518.
16. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 97. No. 10. Art. No. 102505.
17. Eschrig M. // Physics Today. 2011. V. 64. No. 1. P. 43.
18. Blamire M.G., Robinson J.W.A. // J. Phys. Cond. Matter. 2014. V. 26. No. 45. Art. No. 453201.
19. Linder J., Robinson J.W.A. // Nature Physics. 2015. V. 11. P. 307.
20. 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.
21. *Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109. Art. No. 057005.
22. *Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // Beilstein J. Nanotechnol.* 2019. V. 10. P. 1458.
23. *Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // Phys. Rev. B.* 2019. V. 100. Art. No. 134511.
24. *Singh A., Voltan S., Lahabi K., Aarts J. // Phys. Rev. X.* 2015. V. 5. Art. No. 021019.
25. *Kamashev A.A., Leontyev A.V., Garifullin I.A. et al. // Ferroelectrics.* 2022. V. 592. No. 1. P. 123.

## Superconducting spin valve $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$ on lead magnesium niobate–lead titanate ferroelectric substrate

A. A. Kamashev<sup>a, \*</sup>, S. A. Bolshakov<sup>a</sup>, R. F. Mamin<sup>a</sup>, I. A. Garifullin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>*Zavoisky Physical-Technical Institute, Federal Research Centre Kazan Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences,  
Kazan, 420029 Russia*

*\*e-mail: kamandi@mail.ru*

We study the structural properties of a superconducting spin valve  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  on a PMN-PT ferroelectric substrate under the action of an electric field. An external electric field creates elastic stresses and deformations in the ferroelectric substrate, which can lead to a change in the mutual direction of the magnetizations of the ferromagnetic layers in the structure of the spin valve. According to the results of our research, when applying an electric field of 1 kV/cm, it is possible to register a shift in the transition temperature to the superconducting state of the  $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Al}/\text{Fe2}/\text{Al}/\text{Pb}$  system by 25 mK.