# Experimentelle Untersuchung des lokalen und nichtlokalen Transports in Supraleiter-Ferromagnet-Hybridstrukturen



# Dissertation

von

# Florian Hübler

durchgeführt am

Karlsruher Institut für Technologie Institut für Festkörperphysik

# Karlsruhe, Dezember 2011

Referent:	Prof. Dr. Hilbert von Löhneysen
Korreferent:	Prof. Dr. Gerd Schön
Betreuer:	PrivDoz. Dr. Detlef Beckmann

Experimentelle Untersuchung des lokalen und nichtlokalen Transports in Supraleiter-Ferromagnet-Hybridstrukturen

# Zur Erlangung des akademischen Grades eines DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN durch die Fakultät für Physik des Karlsruher Instituts für Technologie

genehmigte

# DISSERTATION

von

# Dipl.-Phys. Florian Hübler aus Weinheim

Tag der mündlichen Prüfung:02.12.2011Referent:Prof. Dr. HKorreferent:Prof. Dr. G

02.12.2011 Prof. Dr. Hilbert von Löhneysen Prof. Dr. Gerd Schön

#### Abstract

In this work, several transport mechanisms in nano-structured ferromagnet/superconductor (F/S) hybrid structures are investigated. Samples are fabricated by e-beam lithography and shadow evaporation. They consist of a superconducting aluminum bar to which several copper (respectively iron) wires are attached in order to form tunnel junctions. First, we concentrate on local transport and show that in F/S hybrid structures with ultra-thin oxide tunnel barriers our high-resolution differential conductance measurements allow to observe subgap features which are symmetric with respect to bias. These signatures can be explained by resonant transport via Andreev bound states induced by spin-active scattering at the interface. From the energy and Zeeman shift of the bound states, both the magnitude and sign of the spin-mixing angle can be determined. In the second part of this work, we focus on nonlocal transport. On one hand, we thoroughly investigate charge imbalance in normal-metal/superconductor (N/S) multiterminal structures at very low temperatures and on the other hand we perform similar measurements in the F/S hybrid structures of part one. Charge imbalance is found to be clearly bias dependent and very sensitive to pair-breaking. In contrast, in the F/S hybrid structures additional features were observed, which are asymmetric with respect to bias and very close to the superconducting gap. These features may be explained by the interplay of crossed Andreev reflexion and electron co-tunneling.

#### Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wurden verschiedene Transportmechanismen in nanostrukturierten Supraleiter/Ferromagnet(S/F)-Hybridstrukturen erforscht. Alle Proben wurden hierfür mittels Elektronenlithographie und Schattenbedampfung hergestellt und bestehen aus einem supraleitenden Aluminiumfilm, der an mehreren Stellen von Kupfer- beziehungsweise Eisenstreifen überlappt wird und mit diesen Tunnelkontakte bildet. Wir haben sowohl den lokalen als auch den nichtlokalen Transport detailliert untersucht und sind dabei besonders auf den Vergleich von Supraleiter/Normalleiter(S/N)- und S/F-Strukturen eingegangen. Als Erstes haben wir uns auf die lokalen Transportprozesse konzentriert und konnten hierbei in S/F-Hybridstrukturen mit ultradünnen Tunnelbarrieren – dank unserer hochauflösenden differentiellen Leitwertmessung – symmetrische Subgap-Features beobachten, welche durch resonanten Transport mittels gebundener Andreev-Zustände zustande kommen. Anhand der Energie und der Zeeman-Verschiebung eines solchen gebundenen Zustands kann sowohl die Größe als auch das Vorzeichen des Spin-Mischwinkels bestimmt werden. Im zweiten Teil der Arbeit wird der nichtlokale Transport besprochen. Hier haben wir zum einen sehr ausführlich den Effekt des Ladungs-Nichtgleichgewichts an S/N-Hybridstrukturen bei tiefen Temperaturen untersucht und zum anderen analoge Messungen in S/F-Strukturen durchgeführt. Im Besonderen konnten wir zeigen, dass das Ladungs-Nichtgleichgewichtssignal eine deutliche Spannungsabhängigkeit aufweist, und dass es außerdem sehr stark von Paarbrechungseffekten beeinflusst wird. In den S/F-Hybridstrukturen konnten zusätzliche asymmetrische Leitwertsignaturen im Spektrum beobachtet werden, die sich wahrscheinlich auf ein Zusammenspiel von nichtlokaler Andreev-Reflexion und Elektronentransfer zurückführen lassen.

# Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung									
<b>2</b>	Theorie und Grundlagen								
	2.1	Ferromagnetismus		7					
	2.2	Supraleitung	•••	7					
	2.3	Grenzflächen und lokaler Transport		9					
		2.3.1 Quasiteilchentunneln	•••	10					
		2.3.2 Andreev-Reflexion	•••	11					
	2.4	Gebundene Andreev-Oberflächenzustände	•••	12					
	2.5	Mehrfachgrenzflächen - Multiterminalstrukturen	•••	14					
		2.5.1 Nichtlokale Effekte in N/S/N-Strukturen	•••	14					
		2.5.2 Ladungs-Nichtgleichgewicht	•••	16					
3	Exp	cperimentelle Methoden							
	3.1	B.1 Probenherstellung							
	3.2	2 Messtechnik							
	3.3	Probendetails		23					
4	Lok	okaler Transport							
	4.1	I.1 Lokaler Transport in N/S-Strukturen							
		4.1.1 Probendetails und Messkonfiguration		25					
		4.1.2 Kontakt- und Filmcharakterisierung		26					
	4.2	Lokaler Transport in F/S-Strukturen		28					

		4.2.1	Probendetails und Meßkonfiguration	28			
		4.2.2	Kontakt- und Filmcharakterisierung	30			
	4.3	Unters	suchung zu gebundenen Andreev-Zuständen	31			
		4.3.1	Magnetfeldabhängigkeit der gebundenen Andreev-Zustände	31			
		4.3.2	Reproduzierbarkeit der Ergebnisse	33			
		4.3.3	Detaillierte Betrachtung der sogenannten "Schatten"	34			
		4.3.4	Temperaturabhängigkeit der gebundenen Andreev-Zustände	35			
		4.3.5	Diskussion	37			
5	Nicl	htlokal	er Transport	39			
	5.1	Unters	suchung des Ladungs-Nichtgleichgewichts in N/S-Hybridstrukturen	39			
		5.1.1	Diskussion	43			
	5.2	Nichtle	okaler Transport in F/S-Hybridstrukturen $\ldots$	46			
		5.2.1	Probendesign und Messkonfiguration	46			
		5.2.2	Magnetisierungsabhängigkeit	47			
		5.2.3	Magnetfeldabhängigkeit	49			
		5.2.4	Abstandsabhängigkeit	52			
		5.2.5	Temperaturabhängigkeit	54			
		5.2.6	Diskussion	55			
	5.3	3 Energie-Nichtgleichgewicht					
		5.3.1	Energie-Nichtgleichgewicht in N/S-Hybridstrukturen $\ .\ .\ .$ .	61			
		5.3.2	Energie-Nichtgleichgewicht in F/S-Hybridstrukturen	63			
	5.4	Einflus	ss der Detektorspannung	65			
6	Zus	ammer	nfassung	69			
A	Zus	usatzinformationen					
	A.1	.1 Benutzte Probenzuordnung					

# 1 Einleitung

Seit der Entdeckung der Supraleitung im Jahre 1911 hat sich das damit zusammenhängende Forschungsgebiet beständig weiterentwickelt und immer wieder zu neuen grundlegenden Erkenntnissen geführt. Dies war möglich, da der wissenschaftliche Erkenntnisgewinn stetig mit technisch relevanten Anwendungen einherging, welche nach einiger Zeit direkt oder indirekt zu einer Verbesserung der experimentellen Möglichkeiten führten (so zum Beispiel im Falle des Josephsoneffekts und der Entwicklung des SQUIDs – ein Bauteil zur präzisen Magnetfeldbestimmung). Dass wissenschaftlicher und technischer Fortschritt während der letzten Jahrzehnte Hand in Hand gingen, läßt sich besonders gut am Beispiel der Mikro- und Nanofabrikation und der industriellen Verwertung der Halbleitertechnologie verdeutlichen. Im Falle der Supraleitung konnten (um nur ein Beispiel zu nennen) Experimente mit sehr kleinen Kontaktabständen dazu beitragen die Umwandlung von Quasiteilchen in Cooperpaare zu verstehen. Die heutigen technischen Möglichkeiten erlauben es nun, noch kleinere Kontaktabstände (in der Größenordnung der intrinsischen Längenskalen der jeweiligen Effekte - z.B. der Kohärenzlänge der Supraleitung, bzw. der Längenskala der ferromagnetischen Wechselwirkung, etc.) zu realisieren und somit neue Phänomene zu erschließen.

Eins der zur Zeit prominentesten Ziele der experimentellen Grundlagenforschung ist quantenmechanisch verschränkte Teilchenpaare zu erzeugen, um diese für die Informationsverarbeitung zu nutzen. Auf dem Gebiet der Festkörperphysik gilt hierbei besonders der Prozess der nichtlokalen Andreev-Reflexion (engl. crossed Andreev reflexion, CAR) als vielversprechend, da er konzeptionell die Möglichkeit bietet verschränkte Elektronenpaare räumlich getrennt zu erzeugen [1–5]. Seit dem experimentellen Nachweis dieses kohärenten Transporteffekts aus dem Jahre 2004, der an Supraleiter-Ferromagnet-Punktkontakten gelang [6], versucht man die beteiligten Mechanismen durch immer neue experimentelle Fragestellungen [7–18] möglichst genau zu verstehen, um einen Solid State Entangler zu realisieren. Gerade in den letzten Jahren sind außerdem die theoretischen Modelle zur Beschreibung des Wechselspiels von nichtlokaler Andreev-Reflexion und Elektronentransfer (engl. elastic co-tunneling, EC) zunehmend verfeinert worden, weswegen sie es heute erlauben komplexe Beobachtungen zu interpretieren [19–22].

Die vorliegende Arbeit ist eine thematische Weiterführung der Dissertation von Jakob Brauer aus dem Jahre 2009 [23]. Jedoch wurde der Untersuchungsschwerpunkt weg von den Normalleiter-Supraleiter-Heterostrukturen hin zu Ferromagnet-Supraleiter-Heterostrukturen verschoben. Grund für diese Neuausrichtung war die schon 2004 vorgeschlagene Idee, derzufolge der Prozess der nichtlokalen Andreev-Reflexion durch Zuhilfenahme ferromagnetischer Kontakte von dem eher trivialen – aber in normalleitenden Kontakten gleichzeitig und gleich wahrscheinlich auftretenden – Prozess des Elektronentransfers getrennt werden kann. Dies ist möglich, da bei CAR zwei Elektronen mit unterschiedlichem Spin benötigt werden, wohingegen bei EC die beiden beteiligten Elektronen den gleichen Spin haben, das heißt im idealen Fall (mit Kontakten aus vollständig spinpolarisierten Halbmetallen) ist es je nach Magnetisierungs-Konfiguration (parallel/anti-parallel) möglich einen der beiden Prozesse vollständig zu unterdrücken und somit den jeweils anderen genau zu vermessen. Auch im weniger perfekten Fall eines nur teilweise spinpolarisierten Ferromagnets bleibt die zugrunde liegende Idee, dass die Beiträge der beiden Prozesse in Abhängigkeit der magnetischen Konfiguration der Kontakte unterscheidbar sind, richtig und ermöglicht somit neue Einblicke in die Physik dieser beiden konkurrierenden Prozesse.

Um genaue Aussagen über die jeweiligen Beiträge von CAR und EC treffen zu können, wurde zunächst ein dritter nichtlokaler Transportmechanismus, der in den von uns verwendeten Geometrien ebenfalls auftritt – der Nichtgleichgewichtseffekt der Ladung (engl. Charge Imbalance, CI) – detailliert untersucht. Obwohl Nichtgleichgewichtsphänomene in Supraleitern bereits seit den 70er Jahren ausführlich untersucht werden, beschränkten sich die meisten Arbeiten zum Ladungs-Nichtgleichgewicht bis vor kurzem auf den Temperaturbereich nahe  $T_c$ . Denn für diesen Temperaturbereich ist zum einen der experimentelle Zugang besonders einfach, da das CI-Signal beim Übergang vom supraleitenden zum normalleitenden Zustand divergiert, und zum anderen gibt es gerade für dieses Regime ( $T \leq T_c$ ) ausgezeichnete theoretische Modelle [24–26].

Durch das aktuelle Interesse an anderen nichtlokalen Transportphänomenen in diffusiven quasi-eindimensionalen Strukturen und deren Potential für die Informationsverarbeitung (besonders zu nennen ist hier neben der bereits erwähnten nichtlokalen Andreev-Reflexion der spinabhängige Transport als Grundstein der Spintronic [27–30]) ist in den letzten Jahren auch die Untersuchung des Charge Imbalance Signals wieder in den experimentellen Fokus gerückt [31–34]. Allerdings ist man heute besonders am Tieftemperaturbereich  $T \ll T_c$  interessiert. Für alle nichtlokalen Prozesse gilt, dass sie, je nachdem welcher mikroskopische Mechanismus ihnen zu Grunde liegt, eine charkteristische Längenskala haben. Da die Relaxationslänge des Ladungs-Nichtgleichgewichts mit  $\lambda_{Q^*} \sim 10 \ \mu m$  [26] deutlich länger ist als die Spindiffusionslänge  $\lambda_{sf} \sim 1 \ \mu m$  [35–38] und die supraleitende Kohärenzlänge  $\xi \sim 0.1 \ \mu m$  [22] kommt es jedoch häufig vor, dass das Signal des Ladungs-Nichtgleichgewichts größer ist als die eigentlich zu untersuchenden Signalbeiträge und diese deshalb überdeckt. Aus diesem Grund ist eines der Ziele der vorliegenden Arbeit das Charge Imbalance Signal für die Strukturen und Bedingungen, die zur Beobachtung der nichtlokalen Andreev-Reflexion notwendig sind, zu charakterisieren und mögliche Unterscheidungskriterien aufzuzeigen.

In einer vor einigen Jahren durchgeführten experimentellen Arbeit von Keizer et al. [39] wurde das Vorhandensein eines Suprastroms in einer vollständig spinpolarisierten Chromdioxidschicht zwischen zwei Kontakten eines Singulett-Supraleiters beobachtet. Der Abstand zwischen den beiden Kontakten war dabei so groß, dass es unter der Annahme konventioneller Cooperpaare aus Elektronen mit entgegengesetztem Spin – aufgrund der im Ferromagneten induzierten Phasenverschiebung – nicht zu kohärentem Transport hätte kommen können. Erklärt wurde die Beobachtung des Suprastroms deshalb durch Cooperpaare mit gleichem Spin, also durch das Auftreten eines langreichweitigen Triplettproximityeffekts [40–43]. Dieser Effekt – der in der Zwischenzeit auch von anderen Experimenten (zum Beispiel [44]) bestätigt wurde – geht laut theoretischen Modellen auf Inhomogenitäten der Austauschfelder zwischen Ferromagnet und Supraleiter zurück. Diese können entweder eine direkte Ursache von einer sich räumlich verändernden Magnetisierungsausrichtung sein [40], oder auf die Kombination einer spinabhängigen Phasenverschiebung der Elektronenwellenfunktion an der Grenzfläche [45] und gleichzeitiger Spin-Flip-Streuung an magnetischen Störstellen [46] zurückgehen. Bisher fehlten experimentelle Beobachtungen, die es erlaubt hätten, die beteiligten mikroskopischen Mechanismen zu klären. Die in Kapitel 4.3 vorgestellten Untersuchungen zu gebundenen Andreev-Oberflächenzuständen an spinaktiven Grenzflächen könnten eine Brücke darstellen, um diese Lücke zwischen Theorie und Experiment zu schließen. So ist seit Längerem bekannt, dass Andreev-Streuung an Grenzflächen ein wertvolles Hilfsmittel ist, um die Symmetrie des supraleitenden Ordnungsparameters zu bestimmen [47]. Diese Technik wurde beispielsweise benutzt um die gebundenen Zero-Bias-Andreev-Zustände an unkonventionellen Singulett-d-Wellensupraleitern [48, 49], beziehungsweise Triplett-p-Wellensupraleitern [50,51] zu untersuchen. In diesen Spezialfällen sind die gebundenen Zustände darauf zurückzuführen, dass in unkonventionellen Supraleitern eine Phasenverschiebung von  $\pi$  zustande kommen kann, wenn sich aufgrund der Anisotropie des Ordnungsparameters dessen Vorzeichen ändert. Bei gebundenen Zuständen an spinaktiven Grenzflächen kann der Wert der Phasenverschiebung beliebig zwischen  $-\pi$  und  $\pi$  liegen, weswegen die Zustände bei endlichen Energien liegen können [52].

## 1 EINLEITUNG

# 2 Theorie und Grundlagen

Dieses Kapitel – das inhaltlich und strukturell an Referenz [53] angelehnt ist – soll es ermöglichen, die im weiteren Verlauf benutzten theoretischen Modelle einzuordnen und die vorgestellte Arbeit in sich selbst schlüssig zu machen. Für tiefergehende Erklärungen sei jedoch auf die Fachliteratur verwiesen. Als Startpunkt, um einen breiteren Einblick in das Forschungsgebiet der Ferromagnet-Supraleiter-Hybridstrukturen zu bekommen, eignet sich beispielsweise einer der folgenden Übersichtsartikel [42,43,54], sowie die am Experiment orientierte Arbeit von Detlef Beckmann [55].

### 2.1 Ferromagnetismus

Die Bandstruktur eines normalleitenden Metalls lässt sich in erster Näherung im Modell des freien Elektronengases darstellen und ergibt sich zu einer Parabel, die der Bedingung

$$\epsilon(\vec{k}) = \frac{\hbar k^2}{2m^*} \tag{1}$$

genügt, wobei  $\hbar$  das reduzierte Plancksche Wirkungsquant und  $\epsilon$  die Bandenergie,  $\vec{k}$  der Wellenvektor und  $m^*$  die effektive Masse des Elektrons ist. Durch die effektive Austauschwechselwirkung im Ferromagneten wird die Entartung zwischen den Elektronen mit Spin-up und Spin-down aufgehoben, so dass sich die betreffenden Sub-Bänder gegeneinander verschieben (Stoner-Modell). Dieses Phänomen ist für unsere weiteren Betrachtungen sehr wichtig, da typische effektive Austauschenergien in der Größenordnung von etwa 1 eV liegen, weshalb sie im Vergleich zur Fermienergie ( $\epsilon_F$ ) bereits nicht mehr vernachlässigbar sind. Als Konsequenz der beschriebenen Spinaufspaltung im Ferromagneten werden sowohl die Zustandsdichte der Elektronen an der Fermikante als auch der Fermi-Wellenvektor spinabhängig. Aus Gründen der Charakterisierbarkeit definiert man deshalb zum Beispiel über die Leitfähigkeit  $\sigma = Ne^2D$  (mit N der Zustandsdichte, e der Elementarladung und D der Diffusionskonstanten) den Grad der Spinpolarisation des Materials durch  $P_{\sigma} = (\sigma^{\downarrow} - \sigma^{\uparrow})/(\sigma^{\downarrow} + \sigma^{\uparrow})$ .

### 2.2 Supraleitung

Die Supraleitung verdankt dem verschwindenden Gleichstromwiderstand ihren Namen, welcher von Kamerlingh Onnes als erste Eigenschaft entdeckt wurde. Zustande kommt sie dadurch, dass die Elektronen im Energiebereich der Fermikante im Supraleiter Cooper-Paare bilden, die gemeinsam in einen makroskopischen Quantenzustand kondensieren. Verglichen mit dem Fall fermionischer Elektronen, die nach dem Pauli-Prinzip alle Zustände bis hin zur Fermienergie besetzen, spart diese Kondensation in den Grundzustand (aufgrund der attraktiven Wechselwirkung zwischen den Elektronen) Energie. Dadurch, dass es im Supraleiter an der Fermikante keine ungebundenen Elektronen mehr gibt, kann es auch nicht mehr zu Einteilchen-Streuprozessen kommen, womit die Ursache des Gleichstromwiderstands nicht mehr vorhanden ist. Wie Bardeen, Cooper und Schrieffer (BCS) zeigen konnten [56], wird für konventionelle Supraleiter die Energie, die erst einmal nötig ist um Cooperpaare zu bilden, durch die Wechselwirkung mit dem Kristallgitter zur Verfügung gestellt. Der Singulett-Grundzustand der Cooperpaare besteht in diesem Fall aus zwei Elektronen mit entgegengesetztem Wellenvektor und Spin,  $(k,\uparrow)$  und  $(-k,\downarrow)$ . Die benötigte Bindungsenergie führt zu einem Gap in der Zustandsdichte der Einteilchenanregungen, das die Größe des Paarpotentials  $\Delta$  hat. Des Weiteren hängt die kritische Temperatur  $T_c$ , bei der die Supraleitung einsetzt, ebenfalls mit der Bindungsenergie zusammen, da bei höheren Temperaturen thermische Anregungen die Cooper-Paare aufbrechen. Für uns ist außerdem die Kohärenzlänge  $\xi_S$  wichtig, die man als Größenordnung der räumlichen Ausdehnung eines solchen "supraleitenden Paares" auffassen kann. Bei geläufigen Metallen findet man Kohärenzlängen von 10-1000 nm.

Aufgrund unseres zentralen Interesses in die Magnetfeldabhänigkeit der untersuchten Proben, wollen wir nun zunächst die für uns relevanten Magnetfeldeinflüsse diskutieren. Eine der Konsequenzen eines äußeren Felds ist, dass die Zustandsdichten der Einteilchenzustände der beiden Spinfamilien – wie von Tedrow und Meservey experimentell gezeigt [57] – aufgrund des Zeeman-Effekts aufspalten: siehe Illustration in Abbildung 2.1(a). Bereits 1962 haben Abrikosov und Gorkov die Auswirkungen von vereinzelten paramagnetischen Störstellen auf den supraleitenden Zustand berechnet [58] und damit den Grundstein für das heutige Verständnis der Paarbrechungstheorie gelegt. Die mikroskopische Ursache der Paarbrechung (und der damit verbundenen Abnahme des Ordnungsparameters und der kritischen Temperatur) liegt darin begründet, dass die Zeitumkehr-Symmetrie der Elektronenzustände gebrochen wird. Neben magnetischen Störstellen gibt es noch eine ganze Reihe anderer Gründe für einen solchen Bruch der Zeitumkehr-Symmetrie – so zum Beispiel der für uns interessante Fall eines dünnen supraleitenden Films im parallelen angelegten Magnetfeld – jedoch konnte gezeigt werden [59], dass für diffusive Proben mit kleiner freier Weglänge alle Ursachen durch einen einzigen Paarbrechungsparameter  $\Gamma$  beschrieben werden können, für den nach Referenz [58] für  $\Gamma/\Delta < 1$  gilt

$$\ln(\Delta/\Delta_0) = -(\pi/4)(\Gamma/\Delta) \quad , \tag{2}$$

wobei  $\Delta_0$  der Ordnungsparameter für B=0 und T=0 ist.

Wenn man das bisherige Modell dadurch verfeinert, dass man zusätzlich die Auswirkung von Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigt [59], lässt sich die spin-aufgelöste Zustandsdichte des Supraleiters in Gegenwart eines magnetischen Felds als

$$n_{\pm}(\varepsilon) = \frac{1}{2} \operatorname{Re}\left(\frac{u_{\pm}}{\sqrt{u_{\pm}^2 - 1}}\right) \tag{3}$$

beschreiben, wobei die komplexe Größe  $u_{\pm}$  über die implizite Gleichung

$$\frac{\varepsilon \mp \mu_{\rm B} B}{\Delta} = u_{\pm} \left( 1 - \frac{\Gamma}{\Delta} \frac{1}{\sqrt{1 - u_{\pm}^2}} \right) + b_{\rm so} \left( \frac{u_{\pm} - u_{\mp}}{\sqrt{1 - u_{\mp}^2}} \right) \tag{4}$$

bestimmt werden muss.

Hierbei steht  $\varepsilon$  für die Energie der Quasiteilchen in Bezug zum chemischen Potential des Supraleiters und  $\mu_{\rm B}$  für das Bohrsche Magneton, während  $b_{\rm so} = \hbar/3\tau_{\rm so}\Delta$  die Stärke der Spin-Bahn-Kopplung wiedergibt. Die obige Gleichung ist eine Näherung, da kleine Beiträge höherer Ordnung zu  $b_{\rm so}$  vernachlässigt wurden. Abbildung 2.1 illustriert den theoretischen Verlauf der spinaufgespaltenen Einteilchenzustandsdichte des Supraleiters. Während es ohne Spin-Bahn-Kopplung zu einer einfachen Verschiebung der Spinbänder kommt, mischen die Zustände der beiden Spinfamilien im Fall einer endlichen Kopplung.



Abbildung 2.1: Darstellung (analog zu Fig.5 aus Referenz [57]) der theoretischen Zustandsdichte für ein angelegtes Magnetfeld von  $B \approx 0.6\Delta/\mu_B$  und  $\Gamma/\Delta = 0.003$ : (a) ohne Spin-Bahn-Kopplung und (b) mit einer Kopplungsstärke von  $b_{so} = 0.2$ .

#### 2.3 Grenzflächen und lokaler Transport

Den Transport durch eine Grenzfläche zwischen zwei Materialien kann man mittels der Streumatrix:

$$\mathcal{S} \propto \begin{pmatrix} \sqrt{t_{\uparrow}} e^{i\theta_S/2} & 0\\ 0 & \sqrt{t_{\downarrow}} e^{-i\theta_S/2} \end{pmatrix}$$
(5)

beschreiben, die angibt, wie die Wellenfunktionen der Spin-up- und Spin-down-Elektronen an der Grenzfläche beeinflußt werden. Neben der spinabhängigen Transmissionswahrscheinlichkeit der Grenzfläche  $t_{\uparrow,\downarrow}$  (die komplementär zur Reflexionswahrscheinlichkeit  $r_{\uparrow,\downarrow} = 1 - t_{\uparrow,\downarrow}$  ist) geht hier außerdem der Spin-Mischwinkel  $\theta_S$  ein, der die relative Phasenverschiebung zwischen den Wellenfunktionen der beiden Elektronenfamilien beschreibt [52]. Im Besonderen spricht man von einer spinaktiven Grenzfläche, wenn  $\theta_S$  endlich ist. Für die meisten Grenzflächen sind die Transmissionswahrscheinlichkeiten der beiden Spinfamilien  $t_{\uparrow}$  und  $t_{\downarrow}$  gleich, so dass es normalerweise zu keiner zusätzlichen Spinpolarisation aufgrund der Grenzfläche ( $P = (t_{\downarrow} - t_{\uparrow})/(t_{\downarrow} + t_{\uparrow})$ ) kommt und man alle Vorgänge mit der mittleren Transparenz  $\mathcal{T} = (t_{\downarrow} + t_{\uparrow})/2$  beschreiben kann. Fügt man an der Grenzfläche eine Tunnelbarriere ein, so werden die beiden Kontaktmaterialien dadurch weitestgehend entkoppelt, da die Transmission aufgrund des Isolators gegen Null geht. Die relative Phasenverschiebung  $\theta_S$  tritt jedoch auch in dieser Situation auf, da sie mikroskopisch auf magnetische Austauschfelder zurückgeht.

Bringt man einen Supraleiter in Kontakt mit einem Normalleiter, so treten zwei Prozesse auf, die je nach Transparenz der Grenzfläche den Ladungstransport zwischen den beiden Materialien beherrschen: das Quasiteilchentunneln und die Andreev-Reflexion.

#### 2.3.1 Quasiteilchentunneln (dominant für $T \sim 0$ )

Verfügt ein vom Normalleiter kommendes Elektron über genug Energie, um das Gap des Supraleiters zu überwinden, so hat es in diesem direkten Zugang zu freien Zuständen. Es kann also mit einer Wahrscheinlichkeit in den Supraleiter eindringen, die sich analog zum gewöhnlichen Tunnelvorgang zwischen zwei Normalleitern ableiten lässt. Anschaulich beschreiben kann man das Quasiteilchentunneln mit dem sogenannten Halbleitermodell, das die Zustandsdichten von Supraleiter und Normalleiter repräsentiert. Im Supraleiter sind im Energiebereich des Gaps keine Einteilchenzustände vorhanden und erst bei  $\epsilon_F \pm \Delta$  wird die Zustandsdichte endlich. Genauer kommt es an diesen Stellen zu divergierenden Peaks, die dann in die konstante Zustandsdichte des normalleitenden Zustands auslaufen. Integriert man über alle Energien, erkennt man, dass die Zustandsdichtepeaks gerade so groß ausfallen, dass mit ihnen die im Gap fehlenden Zustände ausgeglichen werden. Abbildung 2.2 stellt das Quasiteilchentunneln an einer N/S-Grenzfläche im Halbleitermodell dar.

Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines N/S-Übergangs im Halbleitermodell. Besetzte Zustände des Normalleiters mit einer Energie größer als das Gap des Supraleiters, stehen hier direkt freien Zuständen gegenüber und können deshalb in Form von Quasiteilchen tunneln.



Übergänge vom Normalleiter – mit seiner konstanten Zustandsdichte  $N_{\rm N}(0)$  – in den Supraleiter, oder umgekehrt, sind hierbei nur in der Horizontalen und unter Berücksichtigung der jeweiligen Besetzung erlaubt. Im Falle eines Ferromagneten wird sowohl

die Zustandsdichte des Normalleiters als auch die betreffende Transmissionswahrscheinlichkeit der Grenzfläche spinabhängig. Um den resultierenden Gesamttunnelstrom zu berechnen summiert man jedoch die einzelnen voneinander unabhängigen Teilströme für Elektronen mit Spin-up beziehungsweise Spin-down auf, weswegen das grundlegende Resultat gleich bleibt und sich der folgende spannungsabhängige Tunnelstrom ergibt:

$$I_{\rm T}(V) = \frac{G_{\rm N}}{e} \int_{-\infty}^{\infty} \left( (1-P)n_{+}(\varepsilon) + (1+P)n_{-}(\varepsilon) \right) \left( f_{\rm T}(\varepsilon) - f_{\rm T}(\varepsilon + eV) \right) d\varepsilon \quad . \tag{6}$$

Hierbei ist  $G_N$  der Leitwert des Kontakts im normalleitenden Zustand (bei hohen Energien),  $f_T(\varepsilon)$  die Fermifunktion und  $n_{\pm}$  die Einteilchenzustandsdichte aus Gleichung (3). In Tunnelexperimenten untersucht man nun die Ableitung dieses Tunnelstroms nach der angelegten Spannung (differentieller Leitwert), welche für  $T \to 0$  einen direkten Rückschluss auf die Einteilchen-Zustandsdichte im Supraleiter zulässt,

$$g = \frac{dI}{dV} = G_{\rm N} \int_{-\infty}^{\infty} \left( (1-P)n_+(\varepsilon) + (1+P)n_-(\varepsilon) \right) \left[ -\frac{\partial f_{\rm T}(\varepsilon+eV)}{\partial(eV)} \right] d\varepsilon \qquad .$$
(7)

#### 2.3.2 And reev-Reflexion (dominant für $T \sim 1$ )

Beim Prozess der Andreev-Reflexion, der bevorzugt in Kontakten mit hoher Transparenz  $\mathcal{T} \sim 1$  auftritt, paart sich ein Elektron, dessen Energie nicht ausreicht, um direkt als Quasiteilchen in den Supraleiter einzugehen, mit einem passenden Partnerelektron aus dem Fermisee der besetzten Elektronenzustände des Normalleiters und formt mit diesem ein Cooper-Paar, das dann in den Supraleiter übergehen kann. Diesen Vorgang kann man auch als ein eingehendes Elektron beschreiben, das unter Reflexion eines fehlenden Elektrons (Loch) aus dem entgegengesetzten Spinband in den Supraleiter übergeht (siehe Abbildung 2.3). Die Andreev-Reflexion, die einen Netto-Ladungstransport von 2e bewirkt, ist folglich ein kohärenter Zweiteilchen-Prozess, dessen Wahrscheinlichkeit proportional zum Quadrat der Transmissionswahrscheinlichkeit der Grenzfläche  $t_{\uparrow,\downarrow}$  ist. Im Folgenden ist es von Bedeutung, dass die Phasenbeziehung der beiden am Prozess beteiligten Quasiteilchen durch die Kohärenz des Cooper-Paares verbunden ist und es sich deshalb um einen verschränkten Zustand handelt, bei dem das Loch den zeitumgekehrten Pfad des Elektrons beschreibt.



Abbildung **2.3:** Darstellung der Andreev-Reflexion im generalisierten Halbleiter-Modell von BTK [60]: Ein an der N/S-Grenzfläche ankommendes Elektron mit einem Wellenvektor, geringfügig außerhalb der Fermifläche des Normalleiters, paart sich mit einem Elektron, dessen Impuls gerade um den gleichen Betrag versetzt noch innerhalb der Fermikugel des Normalleiters liegt und geht mit diesem zusammen als Cooper-Paar in den Supraleiter über. Das bedeutet, dass das ankommende, angeregte Elektron an der N/S-Grenzfläche als Loch in gleiche Richtung wie das Elektron retro-reflektiert wird.

### 2.4 Gebundene Andreev-Oberflächenzustände

Die Entstehung von gebundenen Andreev-Oberflächenzuständen, die sich aus vier sukzessiven Teilschritten aufbaut, ist in Abbildung 2.4 schematisch anhand eines Elektrons mit Spin-down dargestellt: Bewegt sich dieses Elektron der Energie  $\varepsilon < \Delta$  von der Grenzfläche zwischen Ferromagnet (F) und Supraleiter (S) in den Supraleiter, so kommt es über die Längenskala  $\xi$  zu einer Andreev-Reflexion, wobei ein Loch in das entgegengesetzte Spinband retro-reflektiert wird (Prozess 1). Wird nun die Bewegungsrichtung dieses Lochs der Energie  $-\varepsilon$  an der spinaktiven Grenzfläche durch einen gewöhnlichen Reflexionsprozess umgekehrt, so sammelt es dabei die Phasenänderung  $-\theta_S/2$  auf (Prozess 2) und bewegt sich zurück in den Supraleiter. Dann wird der bisher beschriebene Pfad umgekehrt und es kommt im Supraleiter zu einer inversen Andreev-



Abbildung 2.4: Schaubild zur Entstehung gebundener Andreev-Zustände an spinaktiven Grenzflächen.

Reflexion, bei der das Loch wieder in ein Elektron der Energie  $\varepsilon$  zurückgewandelt wird (Prozess 3), welches durch eine zweite Reflexion an der Grenzfläche seine Richtung umkehrt, und erneut die Phasenänderung  $-\theta_S/2$  aufsammelt (Prozess 4). Nach diesem vierten Schritt schließt sich also der Kreis, da man mit Ausnahme der aufgesammelten Phasendifferenzen wieder in der gleichen Ausgangslage ist wie zu Beginn. Zusammen mit der intrinsischen Phasenänderung der Andreev-Reflexion ( $\cos \phi = \varepsilon/\Delta$ ) beläuft sich der akkumulierte Phasenunterschied für einen kompletten Durchlauf auf  $\phi = 2 \arccos(\varepsilon/\Delta) \pm \theta_s$ , wobei das Vorzeichen des Spin-Mischwinkels davon abhängt, mit welcher Elektronenorientierung – Spin-down (–) oder Spin-up (+) – man startet. Gebundene Zustände können immer dann entstehen, wenn der aufgesammelte Wert ein Vielfaches von  $2\pi$  ist und es zu konstruktiver Interferenz kommen kann; das heißt, es ergibt sich die folgende sehr einfache Beziehung zwischen dem Spin-Mischwinkel  $\theta_S$ und der Energie, an der ein gebundener Andreev-Zustand auftritt:

$$\varepsilon_{\pm} = \pm \Delta \cos(\theta_{\rm s}/2) \quad . \tag{8}$$

Die durch diese Beziehung mögliche eindeutige Zuordnung erlaubt folglich eine sehr genaue Bestimmung von  $\theta_S$ . Laut einer kürzlich erschienenen theoretischen Abhandlung [61] sind für S/F-Tunnelkontakte mit sehr dünner Oxidschicht hierbei durchaus Spin-Mischwinkel in der Größenordnung von  $\pi$  möglich. Für das weitere Verständnis ist es wichtig, dass die beschriebenen gebundenen Zustände allerdings nur indirekt am Transport beteiligt sind. Durch ihr Vorhandensein an der Grenzfläche erhöht sich die lokale Zustandsdichte (LDOS) für Elektronen, beziehungsweise Löcher einer bestimmten Energie, wodurch resonanter Andreev-Transport über die entsprechenden Zustände ermöglicht wird. Die Entstehung und die Detektion der gebundenen Zustände ist also unabhängig voneinander [46].

Abbildung 2.5 zeigt die veränderte lokale Zustandsdichte der Einteilchenanregungen [42,52] für den speziellen Fall eines Kontakts mittlerer Transparenz ( $\mathcal{T} = 0.5$ ). Wobei die beiden Teilbilder (a) und (b) jeweils die Situation für einen gebundenen Zustand mit positivem, beziehungsweise negativem  $\theta_S$  zeigen. Wie man erkennen kann führen die unterschiedlichen Vorzeichen des Spin-Mischwinkels zu einer Vertauschung des Spins. Da der Andreev-Transport jedoch resonant über den elektronenartigen und den lochartigen Kanal erfolgt, sind die in den beiden Teilbildern gezeigten Situationen zunächst nicht unterschiedbar.

Unter der Annahme eines einzelnen Transportkanals mit Transparenz  $\mathcal{T}$ , lässt sich der Subgap-Leitwert aufgrund der Anwesenheit von gebundenen Andreev-Zuständen zu

$$g_{\rm ABS}(V) = \frac{e^2}{h} \int \sum_{\pm} \frac{t_{\uparrow} t_{\downarrow}}{1 + r_{\uparrow} r_{\downarrow} - 2\sqrt{r_{\uparrow} r_{\downarrow}} \cos\left(2 \arccos\left(\varepsilon/\Delta\right) \pm \theta_{\rm s}\right)} \frac{-\partial f_{\rm T}(\varepsilon + eV)}{\partial eV} d\varepsilon$$
(9)

umschreiben [52] (wobei die Summe über Spin-up (+) und Spin-down (-) läuft).



Abbildung 2.5: Veranschaulichung der Auswirkungen eines an der Grenzfläche gebundenen Andreev-Zustands auf die lokale Zustandsdichte der Einteilchenanregungen eines Kontakts mittlerer Transparenz für (a) einen positiven, beziehungsweise (b) negativen Spin-Mischwinkel von  $3\pi/4$ .

### 2.5 Mehrfachgrenzflächen - Multiterminalstrukturen



Multiterminalstrukturen bieten anders als gewöhnliche Sandwichstrukturen die Möglichkeit, sowohl mittels einer lokalen als auch einer nichtlokalen Geometrie zu messen (Abbildung 2.6).

Abbildung 2.6: Schema einer nichtlokalen Messgeometrie.

#### 2.5.1 Nichtlokale Effekte in N/S/N-Strukturen

In N/S/N-Multiterminalstrukturen mit kleinem Kontaktabstand können mehrere Transportphänomene auftreten, die zu nichtlokalen Signalen führen. Wir wollen hier im Detail auf die beiden kohärenten Subgap-Prozesse: Nichtlokale Andreev-Reflexion und Elektronentransfer eingehen und dann im Anschluss das nichtlokale Quasiteilchentunneln und seine Auswirkungen auf Ladungs- und Energie-Nichtgleichgewicht besprechen.

Abbildung 5.5(a) zeigt eine schematische Darstellung der beiden nichtlokalen Subgap-Transportprozesse, bei denen ein Elektron mit  $|\varepsilon| < |\Delta|$  am Kontakt A in den Supraleiter eintritt und am räumlich getrennten Kontakt B einen Stromfluss bewirkt (dies ist möglich, wenn der Abstand *d* zwischen den beiden Kontakten vergleichbar mit oder kleiner als die Kohärenzlänge des Supraleiters  $\xi_S$  ist). Beim Mechanismus der nichtlokalen



Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der möglichen nichtlokalen Subgap-Prozesse: In der Horizontalen, also bei gleicher Energie, verläuft der Mechanismus des Elektronentransfers, bei dem ein Elektron mittels eines virtuellen Zustands von einem Kontakt zum anderen übergeht. Die nichtlokale Andreev-Reflexion, bei der es zu räumlich getrennten verschränkten Teilchenpaaren kommt, verläuft in der Diagonalen.

Andreev-Reflexion (CAR) handelt es sich im Prinzip um den gleichen Prozess wie bei der bereits besprochenen Andreev-Reflexion, nur dass jetzt das ankommende Elektron als Loch in den zweiten Abgriff transmittiert wird. Dies wird möglich, da die Cooper-Paare im Supraleiter eine endliche räumliche Ausdehnung ( $\sim \xi_S$ ) haben und die beiden beteiligten Elektronen folglich nicht zwingend vom gleichen Kontakt stammen müssen. Parallel zu CAR kommt es zum konkurrierenden Prozess des Elektronentransfers (EC), bei dem sich das injizierte Elektron einen virtuellen Zustand im Supraleiter zunutze macht, der ihm erlaubt, während einer Zeitspanne, die durch die Unschärferelation gegeben ist, einen im supraleitenden Material eigentlich nicht erlaubten Energiewert einzunehmen und so an den anderen Kontakt zu tunneln. Die Schwierigkeit besteht nun darin, die Beiträge dieser beiden Transportprozesse zum gemessenen Gesamtsignal nach ihrem Ursprung zu trennen [23]. Im Falle ferromagnetischer Abgriffe kann man sich den Umstand zunutze machen, dass sich die an den beiden Mechanismen beteiligten Elektronen durch ihre Spinorientierung unterscheiden. Während die beiden Elektronen für CAR wegen des beteiligten Singulett-Cooper-Paars entgegengesetzte Orientierungen haben, handelt es sich bei EC um einen Tunnelprozess, bei dem die Spinausrichtung des Elektrons erhalten bleibt. Würde es sich bei den beiden Kontakten A und B also um Halbmetalle handeln, in denen nur eine Spinfamilie präsent ist, könnte man durch die Wahl der Magnetisierungskonfiguration (unter Vernachlässigung von Spin-Flip-Streuprozessen) eindeutig zwischen den beiden Transportprozessen wählen und somit ihre Beiträge trennen (parallele Magnetisierung  $\hat{=}$  EC und anti-parallele Magnetisierung  $\doteq$  CAR). Das gleiche Argument gilt natürlich in abgeschwächter Form auch für nicht vollständig polarisierte Ferromagneten, bei denen die entsprechende Magnetisierungskonfiguration den einen Transportprozess gegenüber dem anderen begünstigt. In Referenz 21 gehen Kalenkov und Zaikin detailliert darauf ein, wie sich das Wechselspiel von EC und CAR (die sich in N/S-Strukturen zum Beispiel laut Vorhersagen gerade gegenseitig aufheben [62]) durch eine spinaktive Grenzfläche mit endlichem Spin-Mischwinkel ändert.

#### 2.5.2 Ladungs-Nichtgleichgewicht

Werden von einem Normalleiter Elektronen in einen Supraleiter injiziert, so können diese falls sie eine Energie größer der Energielücke besitzen, im Supraleiter als Quasiteilchen propagieren. Die durch den injizierten Strom getriebenen Quasiteilchen sind dann allerdings erst einmal im Nichtgleichgewicht mit den sie umgebenden Cooper-Paaren. Dabei gibt es zwei theoretische Konzepte, die es erlauben diese Situation zu beschreiben: das "zwei-Flüssigkeiten"-Modell [24, 25, 63, 64] und das Modell quasiklassischer Green-Funktionen [65]. Obwohl das zweite Modell eine allgemeinere Beschreibung zulässt, werden wir uns im Folgenden auf das rechnerisch einfachere "zwei-Flüssigkeiten"-Modell beschränken, das Quasiteilchen und Cooper-Paare getrennt voneinander betrachtet. Wie in Abbildung 2.8 schematisch dargestellt, ergibt sich die Energie eines Quasiteilchens zu

$$\varepsilon = \sqrt{\zeta^2 + \Delta^2} \quad , \tag{10}$$

wobei  $\zeta$  die Bandenergie aus Gleichung (1) bezogen auf die Fermienergie ist. Da Quasiteilchen durch eine Überlagerung von Beiträgen der Elektron- und Lochwellenfunktionen gegeben sind, folgt, dass ihre effektive Ladung  $q_k$  energieabhängig ist:  $q_k = \zeta_k/\varepsilon_k$ gibt die Quasiteilchenladung in Einheiten der Elementarladung an. Quasiteilchen für Anregungsenergien oberhalb der Fermikante des Supraleiters ( $\zeta_k \gg 0$ ) haben dabei elektronartigen Charakter ( $q_k \approx 1$ ), während solche unterhalb der Fermikante ( $\zeta_k \ll 0$ ) lochartig sind ( $q_k \approx -1$ ). Aufgrund der effektiven Ladung  $q_k$  unterscheidet man den



Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des Nichtgleichgewichtszustands der zu Charge Imbalance führt, sowie der beteiligten Relaxationsprozesse (siehe Text). Darstellung analog zu [25]

elektron- und lochartigen Zweig der Parabel. Das Ladungs-Nichtgleichwicht, das sich im obigen Schema durch die unterschiedliche Besetzung der Zweige äußert, ist als

$$Q^* = 2N_0 \int_{-\infty}^{\infty} q(\zeta) f(\zeta) d\zeta$$
(11)

definiert (wobei  $N_0$  die Zustandsdichte im normalleitenden Zustand pro Spin ist und  $f(\zeta)$  die Verteilung der Quasiteilchen ist, die im thermischen Gleichgewicht durch die Fermiverteilung  $f_{\rm T}(\varepsilon)$  gegeben wird). Wie sich aus Gleichung (11) schließen lässt, kann es nur dann zu einem Ladungs-Nichtgleichgewicht  $Q^*$  kommen, wenn die Besetzung des elektron- und des lochartigen Zweigs ungleich ist  $(f(\zeta) - f(-\zeta) \neq 0)$ . Neben dem Ladungs-Nichtgleichgewicht (transversale Anregung) gibt es allerdings auch das Energie-Nichtgleichgewicht (longitudinale Anregung), das durch  $f(\zeta) + f(-\zeta) - 2f_{\rm T}(\varepsilon) \neq 0$  charakterisiert wird und den Tunnelstrom nur indirekt über die Selbstkonsistenzgleichung des Paarpotentials [66]:

$$1 + \mathcal{V} \int_{-\hbar\omega_D}^{\hbar\omega_D} \frac{1 - 2f(\zeta)}{2\sqrt{\zeta^2 + \Delta^2}} d\zeta = 0$$
(12)

beeinflusst (wobei  $\mathcal{V}$  die Kopplungskonstante und  $\hbar\omega_D$  die Debye-Energie ist).

Im Weiteren betrachten wir einen quasi-eindimensionalen Supraleiter, an den in verschiedenen Abständen d mittels Tunnelbarrieren normalleitende Kontakte angebracht sind, die sowohl zur Injektion als auch zur Detektion der Nichtgleichgewichtsquasiteilchen im Supraleiter dienen. Der elektrische Strom, der sich in solch einer Konfiguration je nach angelegter Bias-Spannung ergibt, lässt sich als Summe des Tunnelstroms  $I_T(V)$  aus Gleichung (6) und eines spannungsunabhängigen Extrabeitrags aufgrund des Ladungs-Nichtgleichgewichts  $I_{Q^*}$  [63] als

$$I(V) = I_{\rm T}(V) + I_{Q^*} \tag{13}$$

schreiben. Dabei gilt für den zusätzlichen Beitrag

$$I_{Q^*} = -\frac{G_N Q^*}{2eN_0} \quad . \tag{14}$$

Während der Strom  $I_{Q^*}$  über die Quasiteilchenverteilung  $f(\zeta)$  nur vom Ladungs- und nicht vom Energie-Nichtgleichgewicht abhängt, wird der Tunnelstrom  $I_T(V)$  andererseits einzig vom Energie-Nichtgleichgewicht beeinflusst; dies jedoch – wie bereits erwähnt – nur indirekt über die Auswirkungen von Gleichung (12). Wir wollen im Weiteren  $I_{det}(V_{det} = 0) = I_{Q^*}$  betrachten, da in dieser Konfiguration die einzige Detektorcharakteristik die in die Messung von  $Q^*$  eingeht, der konstante Leitwert  $G_{det}$  im normalleitenden Zustand ist, und es somit möglich wird sehr direkte Aussagen über das Ladungs-Nichtgleichgewicht zu erhalten.

Sobald die Nichtgleichgewichtsquasiteilchen einmal in den Supraleiter injiziert werden, beginnen sie sich mit der energieabhängigen Diffusionskonstanten  $D(\varepsilon) = v_{\rm g}D_{\rm N}$  [67,68] entlang des Leiters auszubreiten (wobei  $D_{\rm N}$  der Wert der Diffusionskonstante im normalleitenden Zustand und  $v_{\rm g} = |\zeta|/\varepsilon$  die normierte Gruppengeschwindigkeit der Quasiteilchen sind). Während der Ausbreitung relaxiert die Nichtgleichgewichtsverteilung durch mehrere Mechanismen, wie zum Beispiel inelastische Elektron-Phonon-Streuung

[25,63,69], elastische Streuung an Störstellen [63,70] (die aufgrund der Anisotropie des Gaps zum Ladungsausgleich zwischen den verschieden besetzten Zweigen führt) und Paarbrechungseffekte aufgrund des Magnetfelds [65,71,72]. In der schematischen Darstellung von Abbildung 2.8 sind einige dieser Prozesse skizziert: elastische Streuprozesse, die direkt zu einem Ladungsübertrag ohne Energieänderung führen, sind lila dargestellt und inelastische Prozesse orange. Neben den durchgezogenen Linien bei Energien nahe des Gaps, die den Hauptbeitrag zum Abbau des Ladungs-Nichtgleichgewichts ausmachen, sind noch weitere Mechanismen angedeutet. Die gepunkteten Linien zwischen dem elektron- und dem lochartigen Zweig sollen veranschaulichen, dass der Ladungsübertrag für große Energien unwahrscheinlich wird, da die entsprechenden Kohärenzfaktoren für diese Prozesse (wegen des gleichzeitig nötigen Impulsübertrags) verschwindend klein werden. Bei hohen Energien beginnt dafür die Energie-Relaxation – bei der Anregungen durch Elektron-Phonon-Streuung schrittweise auf ihrem Zweig Energie verlieren – eine bedeutende Rolle zu spielen. Dieses "Abkühlen" setzt sich solange fort bis die auf diese Weise in der Energie abgesenkten Anregungen mittels zweigübergreifender Streuprozesse ebenfalls zum Abbau des Ladungs-Nichtgleichgewichts beitragen. Obwohl die skizzierte Darstellung stark vereinfacht ist, bleibt festzuhalten, dass das Ladungs-Nichtgleichgewicht mit einer bestimmten Rate abklingt, die ihren Ursprung in mehreren unterschiedlichen Beiträgen (mit individuellen Energieabhängigkeiten) hat, und dass man dem Relaxationsprozess deshalb eine charakteristische Zeit  $\tau_{Q^*} = Q^*/Q^*$ , sowie ein exponentielles Abklingen mit der charakteristischen Länge  $\lambda_{Q^*} = \sqrt{D\tau_{Q^*}}$  zuordnen kann. Sobald die Injektions- und Relaxationsraten gleich groß sind, kommt es zu einem stationären Zustand, der die jeweilige Größe des nichtlokalen Leitwerts  $g_{\rm nl}$ – unserer experimentell zugänglichen Messgröße – bestimmt:

$$g_{\rm nl} = \frac{dI_{\rm det}}{dV_{\rm inj}} = G_{\rm inj}G_{\rm det} \ g^* \frac{\rho_{\rm N}\lambda_{Q^*}}{2A} \exp\left(-\frac{d}{\lambda_{Q^*}}\right) \qquad (15)$$

Diese Gleichung (in der  $G_{inj}$  und  $G_{det}$  die Leitwerte des Injektor-, beziehungsweise Detektorkontakts im normalleitenden Zustand sind, sowie  $\rho_N$  der spezifische Widerstand des Supraleiters oberhalb von  $T_c$  und A der Querschnitt des Leiters ist) ist der Grundstein für die Auswertung unserer experimentellen Daten. Hierbei ist  $g^*$  ein Faktor der Größenordnung 1 [73].

# 3 Experimentelle Methoden

Ohne zu sehr in die Tiefe zu gehen, wollen wir in diesem Kapitel einen kurzen Überblick über die experimentellen Voraussetzungen geben, die nötig sind, um die uns interessierenden Phänomene zu untersuchen. Einer der zeitintensivsten Punkte hierbei ist die Probenfabrikation – denn nur mit geeigneten Proben in guter Qualität ist es möglich gezielt bestimmte Effekte zu vermessen. Der zweite sehr wichtige Punkt ist der verwendete Messaufbau, der genügend Empfindlichkeit besitzen muss, um die meist sehr kleinen Signalbeiträge vom Rauschhintergrund zu unterscheiden. Wie im Weiteren beschrieben, wurden unsere Proben speziell auf einen vorhandenen, bereits bewährten Messaufbau zur differentiellen Leitwertmessung abgestimmt.

### 3.1 Probenherstellung

Die in dieser Arbeit vorgestellten Proben wurden am Institut für Nanotechnologie mittels Elektronenstrahllithographie und Schattenbedamfung hergestellt, wobei es sich beim genauen Herstellungsprozess größtenteils um ein Standardverfahren handelt, das sich während der letzten Jahre in der Arbeitsgruppe "Physikalische Eigenschaften von Nanostrukturen" etabliert hat [74] und auf das wir hier nur sehr knapp eingehen wollen.

Die Verwendung eines Zwei-Schicht-Lacksystems erlaubt es uns, quasi-freitragende Masken mit Strukturgrößen  $\leq 100$  nm zu erzeugen, die in einem bestimmten Abstand über dem Substrat "schweben" und es uns deshalb ermöglichen, das gleiche Maskenmotiv mehrmals unter verschiedenen Winkeln aufzudampfen, so dass die entsprechenden Metallfilme versetzt zueinander liegen. Diese zugegebenermaßen komplizierte Technik hat den entscheidenden Vorteil, dass man ein komplexes Mehrschichtsystem aus unterschiedlichen Materialien erzeugen kann, ohne dabei das Vakuum zu brechen oder die Grenzflächen auf andere Weise zu verunreinigen. In puncto Grenzflächenqualität heben sich die so fabrizierten Proben deshalb deutlich von mittels Mehrfachlithographie hergestellten Proben ab. Ein weiterer Vorteil der Schattenbedampfung besteht darin, dass sich der Versatz zwischen den verschiedenen Schichten im Gegensatz zu einem Alignment-Verfahren sehr präzise und reproduzierbar einstellen lässt.

Abbildung 3.1 zeigt das Fabrikationsprinzip anhand eines typischen Probendesigns, das für die Messung nichtlokaler kohärenter Transportprozesse erdacht wurde. Teilbild (a) illustriert, wie aus fabrikationstechnischen Gründen das Motiv der quasi-freitragenden Maske dreimal – jeweils versetzt zueinander – mit verschiedenen Metallen aufgedampft wird. Der Grund für die Verwendung von drei und nicht zwei Metallschichten liegt darin, dass man wegen der benutzten Leitwertmessung mehrere Übergangsbereiche mit unterschiedlichen Eigenschaften braucht: während wir im Innenbereich (b) Tunnelbarrieren erzeugen wollen, sollen die Außenbereiche (c) gleichzeitig niederohmig ausfallen. Zuerst werden deshalb Zuleitungen aus Kupfer (grün), dann der supraleitende Aluminiumstreifen (blau) und zuletzt die ferromagnetischen Eisen-Kontakte (rot) aufgedampft



Abbildung 3.1: (a) Illustration der Schattenbedampfung anhand eines Designs, das für die Messung nichtlokaler kohärenter Transportprozesse erdacht wurde. Elektronenmikroskopiebild (b) der resultierenden Innenstruktur und (c) des äußeren Verzahnungsbereichs.

(wobei man das Aluminium zwischen den letzten beiden Schritten in-situ oxidiert und somit eine  $Al_2O_3$ -Barriere kontrollierter Qualität schafft). Ein Problem der Schattenbedampfung besteht darin, dass aus jedem Material immer das komplette Motiv der Maske und nicht nur die tatsächlich notwendigen Strukturpartien aufgedampft werden – es muss also sichergestellt werden, dass die während des Prozesses entstehenden Artefakte (versetzt liegende, unerwünschte Metallstrukturen) die eigentliche Messgeometrie nicht stören. Die Teilbilder (b) und (c) zeigen Elektronenmikroskopiebilder bestimmter Bereiche des tatsächlich resultierenden Schichtsystems. In Teilbild (b) ist der Innenbereich zu sehen, in dem der Aluminiumstreifen von den Eisenkontakten überlappt wird und somit die S/F-Tunnelkontakte gebildet werden, die für die Messung entscheidend sind. Der gezeigte äußere Verzahnungsbereich (c) ist eine der möglichen Gegenmaßnahmen, um die Artefakte der Schattenbedampfung auszugleichen und stellt hier sicher, dass nur der von links kommende Aluminiumstreifen kontaktiert wird (so dass die anderen beiden Querstreifen keine parallelen – die Interpretation der Messergebnisse erschwerenden – Strompfade zur Messgeometrie bilden können).

Neben dem beispielhaft gezeigten Probendesign, das für zwei der drei vorhandenen Kontakte eine Messung in echter Vier-Punkt-Konfiguration zulässt, haben wir für diese Arbeit verschiedene andere Designs benutzt, für die wir es in Kauf genommen haben, die Messungen in einer Drei-Punkt-Konfiguration mit etwa 100  $\Omega$  Zuleitungswiderstand durchführen zu müssen und stattdessen zusätzliche Kontakte zur Verfügung zu haben. Die Ergebnisse für den Subgap-Bereich werden von dieser Wahl jedoch nur leicht beeinflußt, da die Beiträge der Zuleitungen stets viel kleiner sind als die Widerstandsbeiträge



Abbildung 3.2: Illustration der für lokale und nichtlokale Leitwertmessungen benutzten Messkonfiguration.

der Tunnelbarrieren ( ~  $k\Omega - M\Omega$  je nach Spannungsbereich).

### 3.2 Messtechnik

Aufgrund der Energieskalen der zu beobachteten Effekte wurden alle unsere Messungen in einem kommerziellen  ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He-Mischungskryostaten}$  von Oxford Instruments bei Temperaturen weit unterhalb der kritischen Temperatur des Aluminiumfilms durchgeführt ( $T_c \sim 1.5$  K). Für die Transportmessungen wurden die Proben in einem abgeschirmten Kupferbecher montiert, der zum einen in sehr gutem thermischen Kontakt zur Mischungskammer des Kryostaten steht und zum anderen so ausgerichtet ist, dass er sich genau im Zentrum des supraleitenden Magneten befindet, der es ermöglicht parallel zur Probenebene Magnetfelder bis zu 12 T anzulegen. Um die Proben von Mikrowellen- und RF-Strahlung zu entkoppeln, sind die zur Verfügung stehenden acht Messleitungen aus verdrillten Stahl-Koaxialkabeln durch eine Serie verschiedener Filter (auf unterschiedlichen Temperaturstufen) geführt.

Für die eigentliche Messung wurden verschiedene kommerzielle Messgeräte, in Kombination mit einer am Institut für Nanotechnologie im Eigenbau entstandenen Verstärkerbox verwendet – wobei es sich bei den in dieser Arbeit vorgestellten Messergebnissen ausschließlich um differentielle Leitwertmessungen (analog zu Referenz [23]) handelt.

Abbildung 3.2 illustriert das zugrunde liegende Messprinzip schematisch:

Zwischen dem Injektorkontakt und einer weit entfernten  $(d \gg \lambda_{Q^*})$  Referenzelektrode wird die Erregerspannung  $V_{\text{ex}}$  angelegt, die aus einem DC-Bias und einer darauf aufgeprägten kleinen AC-Modulation besteht (schwarz dargestellt). Dabei wird die DC-Spannung, die den Arbeitspunkt  $V_{\text{inj}}$  in Bezug auf das chemische Potential des Supraleiters festlegt, mittels eines batteriebetriebenen Spannungsteilers vorgegeben, während



Abbildung 3.3: Schematische Illustration der vier im Laufe dieser Arbeit umgesetzten Messprinzipien (siehe Text).

der zusätzliche AC-Anteil ( $\approx 5 \ \mu V$  bei 137 Hz) über einen Trenntransformator aufgeprägt wird. Mittels der benutzten Lock-In-Technik ist es möglich, die differentielle Änderung des Injektorstroms in Abhängigkeit der Änderung der separat gemessenen Injektorspannung (rot dargestellt)  $dI_{\rm inj}/dV_{\rm inj}$  zu untersuchen.

Zusätzlich zu den bisher beschriebenen lokalen Messungen ermöglicht ein dritter Lock-In-Verstärker zeitgleich nichtlokale Messungen vorzunehmen: das heißt, während am Injektorkontakt über den schwarz dargestellten Pfad ein Strom injiziert wird, kann man die Auswirkungen auf den – nicht im gleichen Pfad befindlichen – Detektorkontakt beobachten (lila dargestellt). Neben der Messung des differentiellen nichtlokalen Leitwerts  $dI_{det}/dV_{inj}$ , ist es außerdem möglich, am zweiten Kontakt eine unabhängige DC-Spannung aufzuprägen.

Abbildung 3.3 illustriert die vier im Laufe dieser Arbeit umgesetzten Messprinzipien, auf deren Ergebnisse wir in den Kapiteln 4 und 5 im Detail eingehen werden:

- (a) lokaler Transport eines einzelnen Kontakts,
- (b) nichtlokaler Transport zwischen zwei Kontakten,
- (c) "lokaler" Transport des Detektorkontakts in Abhängigkeit der Injektion an einem zweiten Kontakt,
- (d) nichtlokaler Transport zwischen zwei Kontakten in Abhängigkeit einer zusätzlichen Spannung am Detektor.

### 3.3 Probendetails

Tabelle 3.1 fasst einige der charakteristischen Größen der dreizehn in dieser Arbeit diskutierten Proben zusammen (wobei es sich bei drei Proben um N/S-Hybridstrukturen handelt, während der Rest F/S-Hybridstrukturen sind). Hierbei wurden die Schichtdicken der Filme direkt während des Aufdampfens mittels kalibrierter Quartzmikrowaagen bestimmt, Abstände und sonstige Abmessungen aus Elektronenmikroskopiebildern ausgewertet, der spezifische Widerstand aus dem Restwiderstandsverhältnis zwischen Raumtemperatur und 4.2 K berechnet und alle sonstigen Größen experimentell durch die beschriebenen Leitwertmessungen ermittelt. Die Abmessungen der benutzten Tunnelkontakte waren bei allen Proben sehr ähnlich, so dass die entsprechenden Kontaktfächen, die in den Flächenwiderstand RA eingehen, nur geringfügig (Faktor  $\leq 1.5$ ) voneinander abweichen.

Bei einigen Proben (Fe-1, Fe-2 und Fe-5) wurde außerdem mit einer 1 nm dicken, isolierten Magnesiumoxidschicht als Haftvermittler zwischen dem sehr dünnen Aluminiumfilm ( $t_{\rm Al} \leq 12.5$  nm) und dem SiO<sub>2</sub>-Substrat gearbeitet. Da dies jedoch keine signifikante Verbesserung der Filmqualität brachte, wurde dieser Ansatz nicht weiterverfolgt.

	$t_{\rm Al}$	$w_{\rm Al}$	$ ho_{ m Al}$	RA	d	G	$T_{\rm c}$	$B_{\rm c}$	
	(nm)	(nm)	$(\mu\Omega \mathrm{cm})$	$(\Omega \mu m^2)$	$(\mu m)$	$(\mu S)$	(K)	(T)	
 Cu-1	30	140	3.3	71	1-12	230-270	1.39	0.53	
Cu-2	30	190	3.1	84	0.2 - 9.7	260 - 350	1.38	0.58	
Cu-3	12.5	140	6.4	49	0.4 - 6.5	370-490	1.50	1.73	
 Fe-1	11	200	7.2	33	0.1-3.9	810-940	1.59	2.16	
Fe-2	11	160	7.3	32	0.1 - 3.9	715-930	1.61	2.20	
Fe-3	12.5	180	6.2	36	0.1 - 2.4	435 - 625	1.59	1.97	
Fe-4	10	190	10.1	52	0.1 - 2.2	525 - 715	1.54	1.89	
Fe-5	12.5	180	11.1	34	1-12	750-910	1.54	1.67	
Fe-6	13	165	5.6	41	0.9 - 2.1	490-600	1.50	1.64	
Fe-7	15	125	5.2	54	1-12	385 - 525	1.48	1.54	
Fe-8	14	200	8.4	52	0.5 - 8	510 - 550	1.63	2.15	
Fe-9	15	130	5.2	47	1-12	410-470	1.48	1.56	
Fe-10	15	200	4.6	47	0.1 - 3.9	630-710	1.51	$\approx 1.5$	

**Tabelle 3.1:** Charakteristische Größen der vermessenen Proben: Filmdicke des Aluminiumstreifens  $t_{Al}$ , Streifenbreite  $w_{Al}$ , spezifischer Widerstand bei T = 4.2 K  $\rho_{Al}$ , durchschnittlicher Flächenwiderstand der Tunnelbarriere RA, Variationsbereich der Kontaktabstände d und der lokalen Leitwerte G, kritische Temperatur  $T_c$ , kritisches Magnetfeld  $B_c$ .

# 4 Lokaler Transport



In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der lokalen Messkonfiguration – für die Injektorund Detektorkontakt identisch sind (siehe Schema) – vorgestellt. Die so erhaltenen Daten dienen vor allem dazu die einzelnen Kontakte, sowie den Aluminiumstreifen zu charakterisieren und werden die Grundlage für die Auswertung der komplexeren nichtlokalen Leitwertmessungen des nächsten Kapitels darstellen. Neben der standardmäßigen Charakterisierung, werden wir in diesem Kapitel auf die Beobachtung eines besonderen Subgap-Features im lokalen Spektrum der F/S-Hybridstrukturen eingehen [75], welches seinen Ursprung in resonantem Transport mittels gebundener Andreev-Oberflächenzustände hat.

## 4.1 Lokaler Transport in N/S-Strukturen

#### 4.1.1 Probendetails und Messkonfiguration

Die drei in diesem Kapitel zuerst diskutierten Proben wurden speziell für die Untersuchung des Ladungs-Nichtgleichgewichts hergestellt. Es handelt sich hierbei um Aluminium-Kupfer-Hybridstrukturen bei denen die Aluminiumoxid-Tunnelbarrieren zwischen den beiden Metallen im Vergleich zu den üblichen Fabrikationsparametern (die zu Flächenwiderständen der Tunnelbarriere von  $RA \sim 40 \ \Omega \mu m^2$  führen) [23, 74] durch stärkeres oxidieren absichtlich dicker gewählt wurden, so dass Transportprozesse höherer Ordnung unterdrückt werden und demnach das Quasiteilchentunneln selbst für kurze Abstände den Transport dominiert. Darüber hinaus wurde beim Probendesign sehr viel Wert darauf gelegt, eine große Variation von Kontaktabständen möglich zu machen – was es wiederum erlaubt, Aussagen über die Abstandsabhängigkeit der Relaxation des Ladungs-Nichtgleichgewichts zu treffen. Abbildung 4.1 zeigt eine der drei verwendeten Proben zusammen mit einer schematischen Darstellung der Messkonfiguration. Der Abstand zwischen den Kupferkontakten, die den supraleitenden Aluminium-Querstreifen überlappen und mit diesem Tunnelkontakte bilden, wurde bei der gezeigten Probe zu 1  $\mu$ m, 2  $\mu$ m, 4  $\mu$ m und 5  $\mu$ m gewählt. Durch die Kombination der verschiedenen Kontaktpaare sind so insgesamt zehn verschiedene Längen von 1  $\mu$ m bis 12  $\mu$ m messbar, wobei natürlich bei mehr als der Hälfte dieser Konfigurationsmöglichkeiten Zwischenkontakte vorhanden sind, von denen erst noch gezeigt werden muss, dass sie das Messresultat nicht verfälschen (dazu mehr in Abschnitt 5.1).



Abbildung 4.1: Mikroskopiebild von Probe Cu-1, ergänzt durch eine schematische Darstellung der Messkonfiguration. Zu sehen sind die fünf Kupferfinger (Cu), die jeweils durch einen Tunnelkontakt mit dem darunterliegenden Aluminiumstreifen (Al) verbunden sind und mit deren Hilfe es möglich ist, in 10 verschiedenen Kontaktabständen das Verhalten des Ladungs-Nichtgleichgewichts zu vermessen.

#### 4.1.2 Kontakt- und Filmcharakterisierung

Abbildung 4.2 zeigt typische lokale Messdaten eines Kontakts der Probe Cu-2. In beiden Teilbildern ist der lokale differentielle Leitwert g = dI/dV als Funktion der angelegten Spannung aufgetragen. Hierbei sind Messpunkte als Symbole dargestellt, wohingegen die durchgezogenen Linien Fits zu Gleichung (6) repräsentieren, die unter anderem den Zeeman-Effekt und die damit verbundene Aufspaltung der Zustandsdichten berücksichtigen. In Teilbild (a) ist der Einfluss der Temperatur auf das Tunnelspektrum bei B = 0 T zu sehen. Während bei 18 mK die Signaturen des Gaps (die BCS-Singularitäten) noch sehr ausgeprägt sind und praktisch kein Subgap-Leitwert vorhanden ist, rundet mit wachsender Temperatur das gesamte Spektrum aufgrund der thermischen Verschmierung aus, wodurch es dann auch im Bereich des Gaps zu einem endlichen Leitwert kommt. Teilbild (b) zeigt die Situation bei angelegtem Magnetfeld bei einer festen Temperatur von 50 mK. Mit zunehmendem angelegten Feld nimmt die Paarbrechung im Supraleiter zu, weshalb die Größe des Paarpotentials abnimmt. Außerdem kommt es durch den Zeeman-Effekt zu einer Separierung der Spinbänder für Spin-up- und Spin-down-Elektronen, die proportional zu B ist und dazu führt, dass sich die beiden BCS-Singularitäten aufspalten. Jedoch lassen sich die vorhandenen vier Peaks wegen der endlichen Verschmierung nur für das höchste Feld erahnen. (Der hier beschriebene Effekt ist klarer zu erkennen, wenn es sich – wie später gezeigt – um einen dünneren Aluminiumfilm handelt.)

Wie am Beispiel von Abbildung 4.2 zu sehen, ist die Übereinstimmung zwischen Messdaten und Fits im Falle der Probe Cu-1 (nicht gezeigt) und Cu-2 sehr gut. Für die Probe mit dem wesentlich dünneren Aluminiumfilm (Cu-3) gilt dies allerdings nicht, da für die



Abbildung 4.2: Lokaler differentieller Leitwert g = dI/dV einer der Kontakte von Probe Cu-2 als Funktion der angelegten Bias-Spannung V für (a) verschiedene Temperaturen T und (b) verschiedene angelegte Magnetfelder B. Messpunkte sind als Symbole dargestellt, während die durchgezogenen Linien Fits zu Gleichung (6) repräsentieren.

Kontakte dieser Probe der Anstieg der Gap-Signaturen nicht vollständig den Vorhersagen der BCS-Theorie entspricht, sondern zusätzlich auf Energie-Nichtgleichgewichtseffekte zurückgeht (die wir in Abschnitt 5.3 untersuchen). Aus diesem Grund konnten nur für die ersten beiden Proben (Cu-1 und Cu-2) zuverlässige Fit-Parameter für alle angelegten Magnetfelder bestimmt werden (während für die dritte Probe (Cu-3) erst bei höheren Feldern ( $B \ge 0.75$  T), bei denen die Gap-Signaturen deutlich verschmiert sind, akzeptable Fits möglich waren). Zwei dieser Fit-Parameter, das Paarpotential  $\Delta$ und der Paarbrechungsparameter  $\Gamma$ , sind in Abbildung 4.3 als Funktion des angelegten Magnetfelds aufgetragen. Teilbild (a) zeigt das normierte Paarpotential  $\Delta/\Delta_0$  als Funktion von  $B/B_c$  zusammen mit der theoretischen Vorhersage aus Gleichung (2).

Nimmt man für die kritische Stärke der Paarbrechung (der Wert der zu einer Unterdrückung der Supraleitung führt)  $2\Gamma = \Delta_0$  an [58] und setzt weiterhin ein, dass in dünnen Filmen, die parallel zum Magnetfeld ausgerichtet sind,  $\Gamma \propto B^2$  gilt [76], dann lässt sich der Paarbrechungsparameter  $\Gamma$  umschreiben zu

$$\frac{\Gamma}{\Delta_0} = \frac{1}{2} \left(\frac{B}{B_c}\right)^2 \quad . \tag{16}$$

Abbildung 4.3(b) zeigt  $\Gamma/\Delta_0$  als Funktion von  $(B/B_c)^2$ , wobei die durchgezogene Linie die Vorhersage von Gleichung (16) widerspiegelt. Auch wenn für Probe Cu-3 aufgrund der beschriebenen Problematik nur wenige Datenpunkte ermittelt werden konnten, lässt sich feststellen, dass sich alle drei Proben (Cu-1 bis Cu-3) mittels der Standard-Paarbrechungs-Theorie beschreiben lassen.



Abbildung 4.3: (a) Paarpotential  $\Delta$  als Funktion des angelegten Magnetfelds B.  $\Delta$  ist auf den Wert ohne äußeres magnetisches Feld  $\Delta_0$ , und B auf das kritische Feld  $B_c$  normiert. (b) Normierter Paarbrechungsparameter  $\Gamma/\Delta_0$  als Funktion von  $(B/B_c)^2$ . Die durchgezogene Linie entspricht den theoretischen Vorhersagen zur Paarbrechung.

### 4.2 Lokaler Transport in F/S-Strukturen

Im Rest dieses Kapitels wollen wir uns nun mit der Untersuchung von Ferromagnet-Supraleiter-Hybridstrukturen beschäftigen, das heißt, anstelle der normalleitenden Kupferkontakte werden die Tunnelkontakte im Weiteren durch eine Abfolge aus Aluminium, Aluminiumoxid und Eisen realisiert.

#### 4.2.1 Probendetails und Meßkonfiguration

Abbildung 4.4(a) zeigt ein zur Veranschaulichung nachkoloriertes Elektronenmikroskopiebild eines der in diesem Unterkapitel untersuchten Kontakte, zusammen mit einer schematischen Darstellung der Messkonfiguration. Wie bei den N/S-Strukturen haben wir auch hier die verwendeten Proben mittels Elektronenstrahllithographie und Schattenbedampfung hergestellt. Insgesamt wurden dazu sechs unterschiedliche Probendesigns verwendet, die jeweils zwischen drei bis fünf der gezeigten Einzelkontakte aufwiesen. Da in den nun vorgestellten Experimenten ferromagnetische Eisenabgriffe zum Einsatz kamen, wurde die Filmdicke des Aluminium-Querstreifens mit 10 – 15 nm möglichst dünn gewählt. Dieses Vorgehen hat zwei Vorteile: zum einen können relativ hohe magnetische Felder ( $B_c \approx 1.5 - 2.1$  T) in der Filmebene angelegt werden, ohne dabei die Supraleitung zu zerstören, und zum anderen wird durch diese Wahl gewährleistet, dass der überlappende Eisenfilm weitgehend flach liegt, wodurch seine Magnetisierungseigenschaften vergleichsweise klar definiert sind. Ein Nachteil der gewählten



Abbildung 4.4: (a) Koloriertes Elektronenmikroskopiebild eines der vermessenen Kontakte, zusammen mit einem Schema der Meßkonfiguration. (b) Transmissionselektronenmikroskopiebild eines analog zu den Proben prozessierten Filmsystems. (c) Hochauflösende Aufnahme der Tunnelbarriere aus Teilbild (b)

Schichtdicke besteht darin, dass sich bei allen Eisenproben (Fe-1 bis Fe-10) – wie bei der Kupferprobe mit dünnem Aluminiumfilm (Cu-3) – die Leitwertspektren für kleine angelegte Magnetfelder ( $B \leq 0.5$ T) aufgrund des Energie-Nichtgleichgewichts nur mit leichten Einschränkungen durch Gleichung (6) fitten lassen. Abbildung 4.4(b) zeigt den Querschnitt eines zu unseren Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe-Proben fabrikationsgleichen Schichtsystems. Das sehr dünne Aluminiumoxid, das die Tunnelbarriere zwischen dem Ferromagneten und dem Supraleiter bildet, ist in dieser Aufnahme als helle Linie zu erkennen, die nur bedingt homogen zu sein scheint. Generell lässt sich feststellen, dass es auf der Nanometerskala Dickenvariationen des gesamten Schichtsystems gibt, wobei selbst das Si/SiO<sub>2</sub>-Substrat eine deutliche Rauigkeit aufweist. Betrachtet man den Grenzflächenbereich – wie in Abbildung 4.4(c) gezeigt – mit einem hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskop so erkennt man, dass sowohl der Aluminium- als auch der Eisenfilm texturiert sind, während die Oxidbarriere amorph erscheint.



Abbildung 4.5: (a) lokaler differentieller Leitwert eines der Kontakte (Nr.1) als Funktion der angelegten Spannung für verschiedene Magnetfelder B bei T = 50 mK. (b) Zoom auf den Subgap-Leitwert desselben Kontakts bei B = 0, zusammen mit einem als durchgezogene Linie dargestellten Fit nach Gleichung (17). Die Leitwertskala der beiden Teilbilder unterscheidet sich um den Faktor 1000.

#### 4.2.2 Kontakt- und Filmcharakterisierung

Abbildung 4.5 zeigt den lokalen differentiellen Leitwert eines Kontakts mit ultradünner Tunnelbarriere ( $RA \sim 30 \ \Omega \mu m^2$ ,  $t_{Al_2O_3} \sim 2 \ nm$ ) als Funktion der angelegten Spannung. In Teilbild (a) ist das Tunnelspektrum für T = 50 mK und für verschiedene in der Filmebene angelegte Magnetfelder gezeigt. Wie man aus dem nahezu verschwindenden Signal innerhalb des gut aufgelösten Gaps ( $\Delta \approx 200 \ \mu eV$ ) erkennen kann, handelt es sich trotz des sehr hohen Leitwerts für den normalleitenden Zustand ( $\approx 1 \text{ mS}$ ) immer noch um eine Pinhole-freie Barriere, die keine komplett offenen Transportkanäle aufweist. Auch hier führt das angelegte Magnetfeld neben der Verringerung des Gaps und dem bekannten Einfluss auf die Paarbrechung wieder dazu, dass die Zustandsdichten für Spin-up- und Spin-down-Elektronen aufspalten. Dies lässt sich vor allem für höhere Felder sehr gut beobachten, da man im Falle des spinpolarisierten Eisens eine klare Asymmetrie der Schultern erkennt [77]. Für unsere sehr dünnen Tunnelbarrieren aus amorphem Aluminiumoxid konnten wir so mittels Fits zu Gleichung (6) typische Spinpolarisationen von  $P \approx 10 - 15\%$  bestimmen (hier beipielhaft gezeigt für B = 1.5 T). Dies ist eine Größenordnung, die in guter Übereinstimmung zur Literatur steht [78] und die wir außerdem auch durch Spinventil-Experimente bei 4.2 K bestätigen konnten.
# 4.3 Untersuchung zu gebundenen Andreev-Zuständen an spinaktiven Grenzflächen

Abbildung 4.5(b) zeigt einen etwa tausendfachen Zoom auf die Leitwert-Messdaten des Subgap-Bereichs derselben Probe bei B = 0. Neben der thermischen Verbreiterung des Gaps, die bei einem Spannungswert oberhalb von etwa  $\pm 100 \ \mu$ V zu einem steilen Anstieg des Leitwerts führt, sind zwei klar aufgelöste, gleich hohe Leitwertmaxima bei  $V = \pm 23 \ \mu$ V zu erkennen. Diese weisen zwei der hervorstechendsten Eigenschaften auf, die man bei resonantem Andreev-Transport mittels gebundener Oberflächenzustände erwarten würde: zum einen ist ihre Position symmetrisch zum chemischen Potential des Supraleiters und zum anderen zeigen sie anders als die BCS-Singularitäten (die auf Einteilchenanregungen und nicht auf kohärenten Transport durch die Grenzfläche zurückgehen) keine Anzeichen einer spinpolarisations-bedingten Asymmetrie. Die durchgezogene Linie ist ein Fit zu dem folgenden Modell, nach dem sich drei Beiträge unterschiedlichen Ursprungs zum Gesamtsignal summieren

$$g(V) = g_{\text{Tunnel}}(V) + g_{\text{ABS}}(V) + g_0 \quad , \tag{17}$$

wobei  $g_{\text{Tunnel}}(V)$  das Standardmodell für spinpolarisiertes Quasiteilchentunneln aus Gleichung (6) ist [76,79,80],  $g_{\text{ABS}}(V)$  der Subgap-Leitwert aufgrund der Anwesenheit von gebundenen Andreev-Zuständen aus Gleichung (9) ist [52] und  $g_0 \approx 1 \ \mu\text{S}$  ein zusätzlicher Offset ist, der eventuellen Leckströmen durch die dünne Oxidbarriere Rechnung trägt. Mit Hilfe dieses Fits kann die Energie des gebundenen Zustands und folglich der Betrag des Spin-Mischwinkels (hier  $|\theta_s| = 0.94\pi$ ) bestimmt werden. An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, dass der erhaltene Wert für den Spin-Mischwinkel nur relativ schwach von der Qualität des Fits abhängt, da die beiden nach Gleichung (8) ausschlaggebenden Größen (das Paarpotential  $\Delta$  und die Energie des gebundenen Zustands  $\varepsilon$ ) leicht aus den BCS-Singularitäten (Abbildung 4.5(a)), beziehungsweise aus den Leitwertmaxima im Subgap-Bereich (Abbildung 4.5(b)) zu bestimmen sind.

# 4.3.1 Magnetfeldabhängigkeit der gebundenen Andreev-Zustände

Abbildung 4.6 zeigt die Entwicklung der Subgap-Features mit dem Magnetfeld. Die Leitwertdaten sind dazu farbkodiert als Funktion der angelegten Spannung und des Magnetfelds dargestellt, wobei es sich im Teilbild (a) um den bereits besprochenen Kontakt handelt, während Teilbild (b) die Situation an einem zweiten Kontakt derselben Probe wiedergibt. Betrachten wir zunächst den bereits bekannten Kontakt in Teilbild (a): Wie durch die gepunkteten Linien angedeutet, schieben die beiden Peaks, die für B = 0 bei  $V = \pm 23 \ \mu V$  liegen, mit zunehmendem Magnetfeld in Übereinstimmung mit der Zeeman-Energie  $\mu_B B$  in entgegengesetzte Richtungen, wobei wir als g-Faktor den Wert freier Elektronen angenommen haben. Das Leitwertmaximum bei positiven Bias-Spannungen schiebt hierbei in die negative Richtung, weswegen wir ihm eindeutig den Minoritätsspin (Spin-up) zuordnen können. Im Umkehrschluss folgt für



Abbildung 4.6: Farbkodierte Auftragung des differentiellen Leitwerts zweier Kontakte (Nr.1 und 2) derselben Probe in Abhängigkeit der angelegten Spannung und des angelegten Magnetfelds. Für beide Kontakte ist die Zeeman-Verschiebung der gebundenen Zustände durch weiße gestrichelte Linien angedeutet (nur für positive Felder gezeigt), wobei die Pfeile die Spinorientierung des jeweiligen Leitwertpeaks anzeigen.

das Maximum bei negativer Bias-Spannung, dass es sich um den Majoritätsspin (Spindown) handelt – die entsprechenden Zuordnungen sind in Abbildung 4.6 durch Pfeile veranschaulicht. Die Beobachtung, dass Leitwertmaxima, die bei entgegengesetzten Spannungen auftreten zur entgegengesetzten Spinorientierung gehören, bestätigt eine weitere Erwartung, die mit resonantem Transport durch gebundene Andreev-Zustände verbunden ist [52]. Die obige Spinzuweisung erlaubt es somit, dem gefundenen Spin-Mischwinkel eindeutig sein Vorzeichen zuzuordnen, so dass sich  $\theta_s = +0.94\pi$  ergibt. Da das Koerzitivfeld der Eisenkontakte mit 40 - 60 mT kleiner ist als die für unsere Messung benutzten Magnetfeld-Schritte von 100 mT, dreht die Magnetisierung der jeweiligen Kontakte faktisch gleichzeitig mit dem angelegten äußeren Feld. Dadurch ergibt sich in obigen Colorplots ein symmetrisches Bild, bei dem die Daten für B < 0 und B > 0 im Rahmen der Messgenauigkeit übereinstimmen. Die Tatsache, dass die beobachteten Leitwertmaxima unabhängig von der Orientierung der Kontaktmagnetisierung in die gleiche Richtung schieben, ist folglich ein Beleg dafür, dass die beobachteten Signaturen, wie theoretisch vorhergesagt [61] mit dem Eindringen des Austauschfelds des ferromagnetischen Kontakts in den Supraleiter zu tun haben. Neben den bisher besprochenen Hauptcharakteristika (weiße gepunktete Linien) weist Teilbild (a) noch zwei schwächere "Schatten" (türkis gepunktete Linien) auf, die ebenfalls aus den ursprünglichen Peaks bei B = 0 entstehen, aber in die entgegengesetzte Richtung laufen. Auf diese "Schatten" und ihre mögliche Erklärung werden wir später

noch einmal zurückkommen.

Für den in Abbildung 4.6(b) gezeigten Kontakt sieht das Bild ein wenig anders aus. Wiederum werden zwei symmetrische Maxima gleicher Höhe beobachtet, allerdings diesmal bei einem deutlich größeren Spannungswert. Außerdem schieben die Leitwertmaxima dieses Kontakts nach außen und nicht nach innen, das heißt, die Signatur bei positiver Bias-Spannung schiebt diesmal als Funktion des Magnetfelds in die positive Richtung und lässt sich folglich dem Spin-down-Elektron zuordnen. Der Spin-Mischwinkel in diesem zweiten Kontakt ist also negativ ( $\theta_S = -0.73\pi$ ) und unterscheidet sich somit sowohl in Vorzeichen als auch Betrag von seinem fabrikationsgleichen Nachbarn. Darüber hinaus sind in diesem Kontakt keine "Schatten" zu beobachten.



#### 4.3.2 Reproduzierbarkeit der Ergebnisse

Abbildung 4.7: Übersicht über die Gesamtheit der vermessenen Kontakte. (a) Auftragung des Energiewerts, für den bei B = 0 das Spin-down-Leitwertmaximum eines gebundenen Zustands beobachtet wurde (sortiert nach der Zugehörigkeit zu Proben und Kontakten). Der grau dargestellte Energiebereich deutet an, ab welchem Wert die thermische Verschmierung des Gaps in etwa ausreicht, um ein entsprechendes Leitwertmaxima zu verschleiern. (b) Auftragung des, für den jeweiligen gebundenen Zustand aus dem Energiewert berechneten, Spin-Mischwinkels  $\theta_S$  (aufsteigend sortiert). Alle Kontakte für die kein gebundener Zustand beobachtet wurde, wurden dem "Blind Range" zugeordnet.

Insgesamt wurden 30 Kontakte an 8 verschiedenen Proben auf gebundene Andreev-Zustände hin vermessen: 11 davon zeigten kein erkennbares Subgap-Feature, während 15 einen einzigen gebundenen Zustand aufwiesen und an drei Kontakten zwei, beziehungsweise einmal sogar drei gebundene Zustände gleichzeitig beobachtet wurden. Abbildung 4.7 zeigt eine Zusammenfassung aller vermessenen Kontakte. In Teilbild (a) sind dazu die Energiewerte, bei denen für B = 0 das Spin-down-Leitwertmaximum eines gebundenen Zustands beobachtet wurde, in Abhängigkeit der Kontaktzugehörigkeit aufgetragen. Die acht Farben stehen hierbei für die verschiedenen Proben, wobei gleiche Symbole und gleiche Farbe bedeutet, dass es sich um mehrere gebundene Zustände an einem Kontakt handelt. Der grau dargestellte Energiebereich deutet an, ab welchem Wert die thermische Verschmierung des Gaps in etwa ausreicht, um ein Leitwertmaximum der üblichen Größe (~ 1  $\mu$ S) zu verschleiern. Für diesen relativ großen Energiebereich nahe  $\Delta$  ist es also möglich, dass es zwar ABS-Signaturen gibt, wir sie aber mit unserer Messung aufgrund der thermischen Verschmierung nicht auflösen können, da  $g_{ABS} \ll g_{Tunnel}$ . In Teilbild 4.7(b) sind die gleichen Daten nochmals etwas anders aufgetragen. Hier sind die aus den jeweiligen Energiewerten berechneten Spin-Mischwinkel  $\theta_S$  für alle gebundenen Zustände aufsteigend sortiert dargestellt, wobei den 11 Kontakten, für die kein Subgap-Feature erkennbar war, ein symbolischer Wert von 0 zugeordnet wurde. Wie man sehen kann, ist die Verteilung der Spin-Mischwinkel innerhalb des messtechnisch zugänglichen Bereichs für die geringe Menge an Datenpunkten erstaunlich homogen. Intuitiv würde man davon ausgehen, dass die Materialkombination des Tunnelkontakts dazu führt, dass es zu charakteristischen Energiewerten für das Auftreten von gebundenen Zuständen kommt. Aufgrund der geringen Statistik kann hierzu jedoch keine klare Aussage getroffen werden. Jedoch deutet die breite Verteilung vielmehr darauf hin, dass der Spin-Mischwinkel  $\theta_S$  sehr sensibel von den jeweiligen Grenzflächeneigenschaften abhängt, welche – wie wir in Abbildung 4.4(c) gesehen haben – durchaus lokal variieren können.

#### 4.3.3 Detaillierte Betrachtung der sogenannten "Schatten"

Die sogenannten "Schatten" lassen sich phänomenologisch dadurch beschreiben, dass man die Amplitude des ursprünglichen Peaks bei B = 0 in zwei Anteile aufteilt, wobei im Magnetfeld der eine entsprechend und der andere entgegengesetzt der Zeeman-Energie schiebt. Im Beispiel von 4.6(a) heißt das, dass der Hauptanteil des Peaks bei  $V = \pm 23 \ \mu V$  in Übereinstimmung mit der Zeeman-Energie nach innen schiebt (weiße gepunktete Linie), während ein kleinerer Anteil der Peakamplitude sich im Magnetfeld genau mit umgekehrtem Vorzeichen nach außen bewegt (türkis gepunktete Linie). Im unteren Graph von Abbildung 4.8(a) ist der Anteil der "Schatten" an der Gesamtamplitude aufgetragen. Jedoch konnte aufgrund der Datenlage nicht bei allen gebundenen Zuständen eine eindeutige Zuordnung erfolgen, da Signale kleiner 20% an die Auflösungsgrenze unserer Messungen stoßen würden. Für die gebundenen Zustände, bei denen klar erkennbar "Schatten" auftraten, wurde der Anteil an der Gesamtamplitude durch einen Fit zu dem gerade beschriebenen phänomenologischen Modell ermittelt, wobei die gezeigten Fehlerbalken Aufschluss über die Qualität des jeweiligen Fits geben. Diese war zum Beispiel dann eher schlecht, wenn es sich, um eine sehr komplexe Gesamtsituation mit mehreren gleichzeitig auftretenden gebundenen Zuständen handelte. Bemerkenswert ist die Tatsache, dass – falls die Datenlage aussagekräftig war – "Schatten" nur im Fall positiver Spin-Mischwinkel gefunden wurden, beziehungsweise keine "Schatten" im Fall negativer Spin-Mischwinkel.





Abbildung 4.8: (a) Gegenüberstellung der aus Abbildung 4.7(b) bekannten Informationen mit den Beobachtungen zu den sogenannten "Schatten" (siehe Text). (b) Illustration zum Auftreten einer möglichen nicht-kollinearen Magnetisierung.

Die Herkunft der "Schatten" ist momentan noch ungeklärt. Eine mögliche Erklärung ist, dass sie mit der unter Umständen vorhandenen nicht-kollinearen Magnetisierung des Eisenstreifens zusammenhängen könnten. Da sich in den von uns verwendeten Proben – wie in Abbildung 4.4(b) zu sehen – der Eisenfilm über den Aluminium-Querstreifen wölbt, ist es möglich, dass es für kleine angelegte Magnetfelder zu der in Abbildung 4.8(b) skizzierten Situation kommt, in der die Magnetisierungsachsen für den gebundenen Oberflächenzustand und den Tunnelstrom unterschiedlich sind und somit aufgrund der Projektion eine Mischung der beiden Spinbeiträge stattfindet. Für ausreichend hohe Magnetfelder sollte dieser Effekt zwar nicht mehr auftreten (da die Magnetisierung dann nicht länger dem Verlauf des Eisenfilms folgt), jedoch fehlen uns bisher die nötigen Feld-Simulationen und vor allem die Kenntnis der genauen Probengeometrie an den Kanten, um quantitative Aussagen darüber treffen zu können, welche angelegte Feldstärke in unseren Strukturen benötigt wird, um die Magnetisierung definitiv in der Filmebene auszurichten.

## 4.3.4 Temperaturabhängigkeit der gebundenen Andreev-Zustände

Abbildung 4.9(a) zeigt die Temperaturabhängigkeit eines Kontakts, an dem zwei klar erkennbare gebundene Zustände zu beobachten sind. Der differentielle lokale Leitwert ist hierzu wieder als Funktion der angelegten Spannung aufgetragen, wobei die verschiedenen Meßdaten für unterschiedliche Temperaturen diesmal so aufgetragen sind, dass der Ordinatenursprung für jeden Temperaturschritt um 1  $\mu$ S nach oben verschoben wurde. Diese Auftragung macht es möglich, sowohl die einzelnen Datenpunkte (Symbole), als auch die zugehörigen Fits nach Gleichung (17) (durchgezogene Linien) klar zu unterscheiden. Bevor wir auf die eigentliche Temperaturabhängigkeit eingehen, betrachten wir die schwarze Kurve für T = 20 mK: klar zu erkennen sind die Signaturen



Abbildung 4.9: Temperaturabhängigkeit eines Kontakts (Nr.21), an dem für zwei Energien,  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$ , klar erkennbare gebundene Zustände zu beobachten sind. (a) differentieller Leitwert (Symbole) und zugehörige Fits (Linien) als Funktion der angelegten Spannung für verschiedene Temperaturen. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde der Ordinatenursprung je Temperaturwert um  $1\mu S$  nach oben verschoben. (b) gefittete Temperaturen der jeweiligen Signaturen als Funktion der experimentell vorgegebenen Temperatur (siehe Text). Die gestrichelten Linien sind Orientierungshilfen mit einer Steigung von 1, wobei in diesem Teilbild alle Datensätze den gleichen Ordinatenursprung haben.

von zwei unterschiedlichen gebundenen Zuständen, bei  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  – wobei der äußere der beiden bereits im Ansatz der thermischen Verschmierung der BCS-Singularitäten liegt. Um die Temperaturabhängigkeit der Messkurven in die zugehörigen Fits einzubeziehen gibt es zwei alternative Möglichkeiten: zum einen kann man eine intrinsische Peak-Verbreiterung aufgrund der endlichen Lebensdauer der Zustände annehmen oder man kann stattdessen effektive Temperaturen einführen, die die Verbreiterungseffekte beschreiben. Da beide Ansätze qualitativ zum gleichen Ergebnis führen, haben wir uns hier dafür entschieden mit drei variablen Temperaturen zu arbeiten:  $T_1$  für die BCS-Singularitäten und  $T_2$  sowie  $T_3$  für jeweils einen der gebundenen Zustände. Die gezeigte Fit-Serie wurde dabei so durchgeführt, dass zuerst für die Messkurve bei niedrigster experimenteller Temperatur die optimalen Fit-Parameter für das Modell aus Gleichung (17) gesucht wurden, und wir diese dann für alle weiteren Fits bis auf die drei Temperaturen  $(T_{1-3})$  konstant gehalten haben. Wie zu sehen ist, lässt sich die Temperaturabhängigkeit bereits durch dieses einfache Vorgehen über weite Bereiche problemlos fitten. Teilbild 4.9(b) zeigt die Gegenüberstellung der so erhaltenen Temperaturwerte zur Badtemperatur. Für T = 20 mK liegen die Werte der gefitteten Temperaturen mit  $T_1 \approx 47$  mK,  $T_2 \approx 84$  mK und  $T_3 \approx 114$  mK deutlich über der experimentellen Vorgabe. Dies liegt zum einen daran, dass die tatsächliche Elektronentemperatur in unseren Proben nie wesentlich weniger als 50-75 mK beträgt und dass

zum anderen die Temperatur der Fit-Kurven – wie bereits erwähnt – einem effektiven Wert entspricht. Bemerkenswert ist die Tatsache, dass die gefundenen Beziehungen zwischen den gefitteten Temperaturen der gebundenen Zustände und der experimentellen Vorgabe deshalb zwar einen Offset – nicht geklärten Ursprungs – haben, dass sich die gegeneinander aufgetragenen Größen aber dennoch nahezu im gleichen Maße ändern (siehe Orientierungslinien mit Steigung 1). Wie man an den Fehlerbalken der Temperaturwerte erkennen kann, nimmt die Qualität der Fits für die beiden gebundenen Zustände mit zunehmender Temperatur ab, da in diesem Fall die thermische Verschmierung der BCS-Singularitäten die anderen Beiträge immer stärker verdeckt.

#### 4.3.5 Diskussion

Abschließend wollen wir noch einmal anschaulich auf die verschiedenen Beiträge der zur Beschreibung der gebundenen Zustände benutzten Gleichung (17) eingehen. Das gleichzeitige Vorhandensein von ausgeprägten BCS-Singularitäten, in der Kombination mit einem eher vernachlässigbaren globalen Subgap-Leitwert, lässt darauf schließen, dass sowohl die mittlere Transparenz ( $\langle \mathcal{T} \rangle \approx 10^{-5}$ ), als auch der Spin-Mischwinkel  $\theta_S$ über den größten Teil der Tunnelbarriere klein sind (so dass sich der entsprechende Beitrag durch  $g_{\text{Tunnel}}$  beschreiben lässt). Nur für kleine Bereiche der Kontaktstelle, für die das Aluminiumoxid aufgrund der fabrikationsbedingten Variation der Schichtdicke dünner ist, kommt es lokal zu ausreichend hohen Transparenzen ( $\mathcal{T} \approx 10^{-3}$ ), um Andreev-Transport zuzulassen. Diesen sogenannten Hotspots wird mit  $g_{\rm ABS}$  Rechnung getragen, wobei das Auftreten von relativ großen Spin-Mischwinkeln  $\theta_S \lesssim \pi$  in Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen für ultradünne Tunnelbarrieren mit stetigem Potentialprofil steht [61]. Wie vorausgesagt – und vermutlich durch die gefundene breite Verteilung von  $\theta_S$  bestätigt – hängt der genaue Wert des beobachteten Spin-Mischwinkels sehr empfindlich mit den Details des einzelnen Kontakts zusammen (da bereits Variationen im Angströmbereich die Effekte des ferromagnetischen Austauschfelds auf den Supraleiter ändern). Ein weiteres Indiz für das Hotspot-Modell könnte die Tatsache sein, daß die Anzahl der gebundenen Zustände, die pro Kontakt beobachtet wurden, meist Null oder Eins ist. Dies legt die Vermutung nahe, dass die Anzahl der für Andreev-Transport ausreichend starken Hotspots für unsere amorphen Tunnelbarrieren in etwa gleich verteilt ist, und dass man aufgrund der sehr kleinen Kontaktflächen (~ 0.03 ( $\mu$ m)<sup>2</sup>) deshalb nur äußerst selten zwei oder mehr Stellen mit ausreichend dünner Barriere abdeckt. Für eine quantitative Betrachtung dieser Thematik haben unsere Beobachtungen allerdings nicht genügend statistische Signifikanz. Das gleiche Problem tritt bei der Fragestellung auf, ob sich die gebundenen Andreev-Zustände, die gleichzeitig an einem Kontakt präsent sind, dadurch, dass ihre räumliche Ausdehnung in der Größenordnung  $\xi_S$  ist, gegenseitig beeinflussen (zum Beispiel – wie vorhergesagt [20] – in Form einer Modenabstoßung). Für die wenigen Fälle, die wir auswerten konnten, scheint es zwar keine Wechselwirkung der Zustände untereinander zu geben – dennoch lässt sich aufgrund der geringen Probenanzahl keine klare Aussage treffen.

Die Magnetfeldabhängigkeit der gebundenen Zustände ist größtenteils eine direkte Ursache der Zeeman-Verschiebung der betreffenden Zustandsdichten und lässt sich deshalb dadurch ableiten, dass man die vorhandenen theoretischen Modelle [20, 52] um die entsprechenden Terme erweitert. Ob jedoch die ausschließlich für positive Spin-Mischwinkel beobachteten sogenannten "Schatten" – wie vermutet – eine Konsequenz der durch die Wölbung des Eisenfilms bedingten nicht-kollinearen Magnetisierung sind, oder ob es sich dabei eventuell um eine Auswirkung von Spin-Flip-Streuung handelt, ist bisher noch nicht geklärt und bedarf weiterer Untersuchung.

Die beobachtete Temperaturabhängigkeit entspricht den allgemeinen Erwartungen, da die Signaturen der gebundenen Zustände einfach thermisch verschmieren ohne dabei ihre Energie zu ändern.

# 5 Nichtlokaler Transport



In diesem Kapitel wollen wir nun die Ergebnisse des nichtlokalen Transports vorstellen und diskutieren. Wir beginnen hierbei zunächst in der im obigen Schema dargestellten Messkonfiguration, bei der der nichtlokale differentielle Leitwert  $g_{\rm nl} = dI_{\rm det}/dV_{\rm inj}$  als Funktion der Injektorspannung  $V_{\rm inj}$  untersucht wird, während der Detektorkontakt auf dem chemischen Potential des Supraleiters liegt (die komplizierteren Messkonfigurationen, bei denen an beiden Kontakten eine endliche DC-Spannung anliegt, betrachten wir ab Abschnitt 5.3).

# 5.1 Nichtlokaler Transport in N/S-Hybridstrukturen – Ladungs-Nichtgleichgewicht

Anhand der in Abschnitt 4.1.1 vorgestellten Kupfer/Aluminium-Hybridstrukturen wollen wir als Erstes auf den Effekt des induzierten Ladungs-Nichtgleichgewichts für Temperaturen  $T \ll T_c$  eingehen.

Abbildung 5.1 zeigt für ein Detektor-Injektor-Paar von Probe Cu-1 den nichtlokalen differentiellen Leitwert  $g_{nl}$  als Funktion der Injektorspannung  $V_{ini}$ . In Teilbild (a) handelt es sich um Messkurven für verschiedene Temperaturen bei B = 0. Bei der kleinsten dargestellten Temperatur (T = 50 mK) ist der nichtlokale Leitwert für Spannungswerte unterhalb des Gaps ( $\Delta/e \approx 200 \ \mu V$ ) im Rahmen der Messgenauigkeit Null und steigt dann bei Überschreiten dieses Schwellwerts mit einer endlichen Steigung an, bis bei etwa  $V_{\rm inj} \approx 450 \ \mu V$  ein breites Maximum erreicht wird, nach welchem der Leitwert wieder langsam abfällt. Mit zunehmender Temperatur schmiert das Signal in der Nähe des Gaps aus, so dass es auch für Spannungswerte innerhalb des Gaps zu einem von Null verschiedenen Leitwert kommt (der nichtlokale Leitwert für große Spannungen bleibt von diesem Effekt jedoch nahezu unberührt). Teilbild (b) zeigt den Einfluss eines angelegten Magnetfelds bei konstanter Temperatur. Im Gegensatz zu den geringen Auswirkungen der thermischen Verschmierung aus Teilbild (a) zeigt sich hier ein starker Einfluss auf die Signalform. Sowohl die Anfangssteigung als auch die Höhe des Maximums nehmen ab, während die Lage des Maximums zu höheren Spannungen hin verschoben wird, so dass für Felder  $B \ge 100 \text{ mT}$  der Maximalwert nicht mehr im experimentell untersuchten Spannungsbereich liegt.

Als dritte Abhängigkeit zeigt Abbildung 5.2(a) das nichtlokale Signal als Funktion der Injektorspannung für alle 10 bei Probe Cu-1 realisierbaren Kontaktabstände d, bei



**Abbildung 5.1:** Nichtlokaler differentieller Leitwert  $g_{\rm nl} = dI_{\rm det}/dV_{\rm inj}$  für ein Injektor-Detektor-Paar von Probe Cu-1 als Funktion der Bias-Spannung  $V_{\rm inj}$  (a) für verschiedene Temperaturen T und (b) magnetische Felder B.



**Abbildung 5.2:** (a) Normierter nichtlokaler differentieller Leitwert  $g_{\rm nl}/G_{\rm inj}G_{\rm det}$  als Funktion der Injektorspannung  $V_{\rm inj}$  für verschiedene Abstände d. (b) Halb-logarithmische Auftragung von  $g_{\rm nl}/G_{\rm inj}G_{\rm det}$  als Funktion des Abstandes d für verschiedene Injektorspannungen  $V_{\rm inj}$ . Die durchgezogenen Linien sind Fits zu Gleichung (15).



**Abbildung 5.3:** Relaxationslänge des Ladungs-Nichtgleichgewichts  $\lambda_{Q^*}$  als Funktion der Injektorspannung  $V_{inj}$  für (a) verschiedene Temperaturen T und (b) Magnetfelder B. Die durchgezogene Linie zeigt das Ergebnis numerischer Simulationen [81].

festem Magnetfeld und fester Temperatur (B = 0 T, T = 50 mK). Da der nichtlokale Leitwert proportional zu den Leitwerten der beiden beteiligten Kontakte ist ( $g_{nl} \propto G_{inj}G_{det}$ ) wurden die Messdaten entsprechend normiert, um den Einfluss kleiner Abweichungen in den Kontakteigenschaften herauszurechnen. Die Größe des Signals nimmt mit steigender Distanz ab, während die generelle Form des Signalverlaufs (so zum Beispiel die Position des Maximums) erhalten bleibt. Teilbild (b) stellt die gleichen Daten halb-logarithmisch als Funktion des Abstands d dar und ermöglicht es somit für verschiedene, feste Injektorspannungen jeweils eine zugehörige Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  zu ermitteln. Die durchgezogenen Linien sind Fits zum in Gleichung (15) vorhergesagten exponentiellen Abfall. Wie bereits anhand der in Abbildung 5.2(b) herausgegriffenen Spannungswerte zu sehen ist, ist die Qualität dieser Fits im Allgemeinen sehr überzeugend. Etwas mehr Streuung ergibt sich nur für die Datenpunkte bei kleinen Spannungswerten ( $V_{inj} \sim 200 \ \mu V$ ), bei denen das steil ansteigende nichtlokale Signal gerade erst einsetzt. Neben der Bestimmung der Relaxationslänge ermöglichen die gezeigten Fits auch die Amplitude

$$a = g^* \frac{\rho_N \lambda_{Q^*}}{2A} \tag{18}$$

zu bestimmen, die ein Teil des Vorfaktors von Gleichung (15) ist.

Die Spannungsabhängigkeit der Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  ist in Abbildung 5.3(a) für verschiedene Temperaturen und in 5.3(b) für verschiedene Magnetfelder aufgetragen. Bemerkenswert ist die Ähnlichkeit des Kurvenverlaufs dieser Datenpunkte mit dem der Rohdaten aus Abbildung 5.1, aus denen sie abgeleitet wurden. Dies ist allerdings keine wirkliche Überraschung, da die Amplitude des nichtlokalen Signals *a* proportional zur Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  ist. Der augenfälligste Unterschied zwischen den beiden Signalverläufen besteht darin, dass die Temperaturabhängigkeit von  $\lambda_{Q^*}$  im Vergleich zu der deutlich erkennbaren thermischen Verbreiterung der Rohdaten (Abbildung 5.1(a)) vernachlässigbar ist. Hieraus lässt sich schließen, dass der Einfluss der Temperatur auf den nichtlokalen Leitwert auf eine Änderung der Quasiteilchenverteilung im Injektorkontakt und nicht auf eine tatsächliche Änderung der Relaxationslänge zurückgeht. Im Gegensatz dazu läuft die Unterdrückung der nichtlokalen Leitfähigkeit mit zunehmendem Magnetfeld, die auch in der Feldabhängigkeit der Relaxationslänge widergespiegelt wird, auf eine echte Zunahme der Relaxationsrate hinaus.

Die in Abbildung 5.1-5.3 vorgestellten Ergebnisse sind insoweit repräsentativ, dass bei allen drei vermessenen Proben das qualitativ gleiche Verhalten gefunden wurde. Um die Frage zu klären, inwieweit eventuelle Zwischenkontakte die Relaxation des Ladungs-Nichtgleichgewichts beeinflussen, berechnen wir aus dem Maximalwert von  $\lambda_{Q^*}$  die Ladungs-Nichtgleichgewichtsrelaxationsrate  $\tau_{Q^*} = \lambda_{Q^*}^2 / D_N v_g$ , welche wir dann mit der Tunnelrate der Quasiteilchen aus Referenz [82] vergleichen können. Da wir, wie in Tabelle 5.1 zusammengefasst, für alle Proben  $\tau_{Q^*} / \tau_{tun} \ll 1$  bestätigen können, scheint die im Vorfeld gemachte Annahme der nicht beeinflussenden Detektion berechtigt.

sample	$\lambda_{Q^*}$	$\tau_{Q^*}$	$\tau_{Q^*}/\tau_{\mathrm{tun}}$
	$(\mu m)$	(ns)	
Cu-1	5.2	7.8	0.01
Cu-2	4.3	5.2	0.01
Cu-3	3.0	5.9	0.05

**Tabelle 5.1:** Maximalwert der Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$ , der Relaxationsrate  $\tau_{Q^*}$ , und des Verhältnisses  $\tau_{Q^*}/\tau_{tun}$  für alle drei Proben.

Im Folgenden wollen wir unser Augenmerk etwas genauer auf die Unterdrückung des Ladungs-Nichtgleichgewichts durch das magnetische Feld richten. Abbildung 5.4(a) zeigt für eine feste Injektorspannung von  $V_{inj} = 500 \ \mu V$  die normierte Ladungs-Nichtgleichgewichtsrelaxationsrate  $\hbar/\Delta_0 \tau_{Q^*}$  als Funktion des normierten Paarbrechungs-Parameters  $\Gamma/\Delta_0$ . Aufgrund der Erkenntnisse aus Abbildung 4.3 wurde hierzu  $\Gamma$  für alle drei Proben unter Zuhilfenahme von Gleichung (16) aus *B* berechnet. Wie man sehen kann, liegen die Datenpunkte aller drei Proben auf einer gemeinsamen Gerade, wobei die Relaxationsrate ohne angelegtes Magnetfeld auf der Skala des gezeigten Graphen zu vernachlässigen ist. Außerdem sollte man erwähnen, dass sich für den gezeigten Magnetfeldbereich ( $B \leq 0.5B_c$ ) die spektralen Eigenschaften des Supraleiters nur unwesentlich verändern. Die Abnahme des Paarpotentials  $\Delta$  aufgrund des magnetischen Felds beträgt in diesem Bereich beispielsweise weniger als 10%.

Analog zu Abbildung 5.4(a) können wir lineare Fits für alle gemessenen Spannungen  $V_{\rm inj}$  durchführen und somit  $\hbar/\Gamma \tau_{Q^*}(V_{\rm inj})$  aus unseren Daten bestimmen. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Abbildung 5.4(b) als Funktion des normierten Injektorbias  $eV_{\rm inj}/\Delta_0$  für alle drei Proben aufgetragen. Bei der durchgezogenen Linie handelt es sich um einen



Abbildung 5.4: (a) Normierte Ladungs-Nichtgleichgewichtsrelaxationsrate  $\hbar/\Delta_0 \tau_{Q^*}$  als Funktion des normierten Paarbrechungsparameters  $\Gamma/\Delta_0$ . (b) Normierte Ladungs-Nichtgleichgewichtsrelaxationsrate  $\hbar/\Gamma \tau_{Q^*}$  als Funktion der normierten Injektorspannung  $eV_{inj}/\Delta_0$ . Bei der durchgezogenen Linie handelt es sich um einen gemeinsamen Fit für die Datenpunkte aller drei Proben.

gemeinsamen Fit aller Datenpunkte zu der Gleichung

$$\frac{1}{\tau_{\mathbf{Q}^*}} = \alpha \frac{\Gamma}{\hbar} \frac{\Delta^2}{\varepsilon \zeta} \quad , \tag{19}$$

die die Relaxationsrate aufgrund von zu Paarbrechung führenden elastischen Störungseinflüssen beschreibt (magnetische Verunreinigungen [65, 71, 83], Supraströme [72], beziehungsweise angelegte äußere Magnetfelder [84]).  $\alpha$  ist hierbei ein numerischer Vorfaktor der Größenordnung 1, den wir als Fit-Parameter nutzen und zu  $\alpha = 0.73$  bestimmt haben. Außerdem haben wir für den Fit zu Gleichung (19)  $\varepsilon = eV_{inj}$  und  $\Delta = \Delta_0$ angenommen.

#### 5.1.1 Diskussion

Wir wollen damit beginnen, die beobachtete Spannungsabhängigkeit des nichtlokalen Leitwerts und vor allem das Auftreten des Leitwert-Maximums zu besprechen. Ursache hierfür sind die unterschiedlichen Energieabhängigkeiten der beteiligten Prozesse, die bereits in Abbildung 2.8 illustriert wurden. So verschwinden die Kohärenzfaktoren für Streuprozesse zwischen dem elektronartigen und dem lochartigen Zweig sowohl für elastische als auch für inelastische Streuprozesse bei hohen Impulsüberträgen, weswegen die hauptsächlichen Relaxationsprozesse des Ladungs-Nichtgleichgewichts für Energien nahe des Gaps  $\Delta_0$  stattfinden. Zusätzlich erwartet man für das Tieftemperaturregime,

dass die inelastischen Beiträge gegenüber den elastischen Streuprozessen zwischen den beiden Zweigen vernachlässigbar sind [85]. Wird mit der angelegten Injektorspannung  $\Delta_0/e$  überschritten, nimmt das injizierte Ladungs-Nichtgleichgewicht kontinuierlich von Null an zu. Gleichzeitig divergiert für  $E \to \Delta_0$  sowohl die elastische Relaxationsrate, die durch die Anisotropie des Gaps zustande kommt [86], als auch die, die ihren Ursprung in der magnetischen Paarbrechung aus Gleichung (19) hat. Sobald man  $\Delta_0$  überschreitet, stellt sich folglich ein Gleichgewichtszustand zwischen Erzeugung und Relaxation des Nichtgleichgewichts ein, wobei die elastische Relaxationsrate für hohe Energien allerdings schnell abnimmt. Andererseits nimmt für höhere Spannungswerte die Energie-Relaxation durch inelastische Streuprozesse zu, wodurch sich die Ladungs-Relaxation in einen zweistufigen Prozess umwandelt [25]. Quasiteilchen werden erst durch inelastische Streuprozesse "abgekühlt" und wandern dabei auf dem elektronartigen Zweig bis in die Nähe von  $\Delta_0$ , wo sie dann durch elastische Streuung den Zweig wechseln und damit das Ladungs-Nichtgleichgewicht verringern (vergleiche Abbildung 2.8). Geht man davon aus, dass sich die inelastischen Streuprozesse durch Elektron-Phonon-Streuung im Debye-Modell beschreiben lassen, dann folgt eine schnelle Zunahme der inelastischen Rate, da für höhere Energien wesentlich mehr Phononen zur Verfügung stehen. Als Konsequenz fällt das nichtlokale Leitwertsignal nach seinem anfänglichen Anstieg und dem Überschreiten eines Maximalwerts wieder ab. Der Spannungswert des Leitwertmaximums entspricht dabei ungefähr dem Übergang zwischen den anfänglich dominierenden elastischen Streuprozessen und den zweistufigen Prozessen, bei denen die inelastische Energie-Relaxation die elastische Relaxation begünstigt. Die von uns beobachtete, detaillierte Energieabhängigkeit des Ladungs-Nichtgleichgewichts ist in dieser Form neu und bestätigt das durch Clarke und Tinkham geprägte Bild [25]. Um einen quantitativen Zusammenhang zwischen der vorhandenen mikroskopischen Theorie und unseren Daten herzustellen, wurden numerische Simulationen durchgeführt [81], in denen die Boltzmann-Gleichung der Quasiteilchenverteilung mittels numerischer Iteration gelöst wurde. Hierfür wurde weitestgehend das Vorgehen aus Referenz [70] übernommen und die eindimensionale Form der Boltzmann-Gleichung [67,70]

$$\frac{\partial f}{\partial t} - v_{\rm g} D_{\rm N} \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} = \gamma_{\rm tun} - \gamma_{\rm el} - \gamma_{\rm in} \tag{20}$$

verwendet (siehe [73]). Beispielhaft zeigt Abbildung 5.3(b) ein Ergebnis dieser Herangehensweise. Obwohl der allgemeine Signalverlauf der Messdaten in Größe und Form von der numerischen Simulation qualitativ richtig wiedergegeben wird (mit einer Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*} \sim 5 \ \mu m$  und einem breiten Maximum bei  $V_{inj} \approx 400 \ \mu V$ ), ist die Übereinstimmung im Detail eher schlecht. So ist zum Beispiel die Steigung der berechneten Energieabhängigkeit, sowohl vor als auch nach dem Maximum zu steil. Diese Abweichungen sind ein Hinweis darauf, dass die Annahmen der Simulation [73] (auf die hier nicht im Detail eingegangen werden soll) noch nicht einwandfrei mit den tatsächlichen Relaxationsmechanismen übereinstimmen.

Aus den Überlegungen zu den am Charge Imbalance beteiligten Prozessen folgt direkt die gefundene Temperaturabhängigkeit, beziehungsweise das Fehlen der selbigen. Elastische Relaxation hängt nur sehr schwach über  $\Delta$  von der Temperatur ab und die inelas-

tische Relaxation ist ebenfalls näherungsweise temperaturunabhängig, da aufgrund der Bosefaktoren in dem hier betrachteten Temperaturbereich nahezu ausschließlich Phononen erzeugt und nicht absorbiert werden. Folglich ergibt sich die Relaxationsrate und damit auch  $\lambda_{Q^*}$ , wie von uns beobachtet, faktisch über den ganzen Spannungsbereich als temperaturunabhängig.

Da die Position des Leitwertmaximums, wie in Abbildung 5.2(a) zu sehen ist, nur sehr schwach vom Kontaktabstand abhängt, haben wir während der gesamten Datenanalyse in Abschnitt 5.1 eine Vereinfachung gemacht, die man aufgrund der vorhandenen Energie-Relaxation mit Vorsicht behandeln muss. Wir haben die Energie der Quasiteilchen mit der angelegten Spannung gleichgesetzt und damit angenommen, dass  $\lambda_{Q^*}$  und  $\tau_{Q^*}$  spektrale Größen sind, die sich durch eine einfache Energieabhängigkeit beschreiben lassen. Dies stimmt jedoch nicht, da beide Größen von den genauen Verhältnissen – der Nichtgleichgewichtsverteilung und der Spannungskonfiguration – an den vermessenen Kontakten abhängen und es während des Relaxationsprozesses zu Energieumverteilungseffekten kommt. Der Fehler durch diese Vereinfachung sollte in Bezug auf die gemachten Beobachtungen jedoch nur von geringer Bedeutung sein, da die Hauptbeiträge der inelastischen Prozesse für große Spannungen zustande kommen, bei denen die in die Berechnung von  $\tau_{Q^*}$  eingehende relative Gruppengeschwindigkeit nahezu konstant 1 ist.

Als Nächstes wollen wir uns auf die Magnetfeldabhängigkeit konzentrieren. Wie bereits erwähnt, führt das Aufbrechen der Cooper-Paare im angelegten Magnetfeld zu einem zusätzlichen Beitrag zur elastischen Relaxationsrate [65,71,72,83,84]. Dies äußert sich darin, dass mit zunehmendem Magnetfeld *B* die anfängliche Steigung des differentiellen Leitwerts abnimmt und außerdem das Maximum, also der Übergang zum zweistufigen Prozess, zu höheren Spannungen verschoben wird. Der magnetische Beitrag zur Relaxationsrate ist dabei direkt proportional zum Paarbrechungsparameter  $\Gamma$  und folgt der theoretisch vorhergesagten Energieabhängigkeit, ohne dass die genaue Beschaffenheit der jeweiligen Probe eine Rolle spielt. Der von uns für tiefe Temperaturen beobachtete Zusammenhang  $\tau_{Q^*}^{-1} \propto \Gamma$  unterscheidet sich dabei deutlich von der für  $T \to T_c$ gültigen Näherung [65]  $\tau_{Q^*}^{-1} \propto (1 + 2\tau_{\rm E}\Gamma/\hbar)^{1/2}$ , bei der  $\tau_{\rm E}$  die Energie-Relaxationsrate ist. In unseren Untersuchungen dominiert die magnetische Relaxation selbst für sehr kleine Felder (bei denen die spektralen Eigenschaften des Supraleiters noch nahezu unverändert von der Paarbrechung sind) den Abbau des Ladungs-Nichtgleichgewichts.

Dies bringt uns zu unserem letzten Punkt, dem Einfluss des CI-Signals auf die Beobachtung anderer Phänomene. Vergleichen wir das Ladungs-Nichtgleichgewichtssignal zuerst mit dem Signal kohärenten Transports innerhalb des Gaps, wie es beispielsweise durch nichtlokale Andreev-Reflexion und Elektronentransfer entstehen würde. Wie wir gesehen haben, bleibt der Einfluss des Ladungs-Nichtgleichgewichts auf den Subgap-Leitwert selbst mit angelegtem Magnetfeld und resultierendem Zeeman-Effekt vernachlässigbar. Dies liegt daran, dass selbst für mäßig starke Paarbrechungseffekte der Supraleiter immer noch ein wohldefiniertes Gap hat, das zur Quasiteilchenanregung überschritten werden muss. Darüber hinaus lag für unsere Beobachtungen, die Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  stets eine Größenordnung über der Kohärenzlänge der Cooper-Paare ( $\xi_S \approx 100 \text{ nm}$ ). Die Untersuchung der Spannungs- beziehungsweise Abstandsabhängigkeit sollte also ein gutes Kriterium sein, um Charge Imbalance von kohärentem nichtlokalem Transport zu unterscheiden.

Vergleicht man allerdings die Spindiffusionslänge (die für spinabhängigen Transport die entscheidende charakteristische Längenskala darstellt) mit unseren Beobachtungen, so erkennt man, dass es in diesem Fall äußerst problematisch ist, die zugrunde liegenden Prozesse zu unterscheiden. Denn spinabhängiger Quasiteilchentransport beinhaltet notwendigerweise die Injektion und Detektion mittels ferromagnetischer Kontakte, welche normalerweise dazu führen, dass auf den Supraleiter ein endliches Streufeld wirkt. Wie wir gesehen haben würde ein magnetisches Feld von ungefähr 100 mT jedoch schon ausreichen, um die Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  genauso kurz werden zu lassen wie die typische Spindiffusionslänge in dünnen Aluminiumfilmen ( $\lambda_{\rm sf} \approx 1000$  nm) [37,38]. Um eventuelle Streufeldauswirkungen ausschließen zu können, muss für die experimentelle Unterscheidung dieser beiden Signaltypen deshalb sehr große Sorgfalt aufgebracht werden. Diese Problematik wird uns gleich im nächsten Abschnitt noch einmal im Detail beschäftigen, da für die Untersuchungen unserer Eisen/Aluminium-Proben genau diese Situation eintritt.

# 5.2 Nichtlokaler Transport in F/S-Hybridstrukturen

In diesem Unterkapitel konzentrieren wir uns auf die Messung der Ferromagnet-Supraleiter-Hybridstrukturen. Der besondere Schwerpunkt liegt hierbei auf den Messungen des Subgap-Bereichs, da einige der in diesem Energiebereich auftretenden Prozesse (zum Beispiel die nichtlokale Andreev-Reflexion) potentielle Anwendungen für die Quanten-Informationsverarbeitung haben. Neben den bekannten symmetrischen Ladungs-Nichtgleichgewichtssignalen, die für Bias-Spannungen größer  $\Delta/e$  aufgrund der Injektion von Quasiteilchen zustande kommen, haben wir innerhalb des Subgap-Bereichs asymmetrische Signaturen im differentiellen nichtlokalen Leitwert beobachtet, die nahe des Gaps auftreten und eine ungewöhnliche Magnetfeldabhängigkeit aufweisen.

#### 5.2.1 Probendesign und Messkonfiguration

Bei den in diesem Kapitel vermessenen Proben handelt es sich größtenteils (bis auf Fe-6, Fe-9 und Fe-10) um dieselben Al/Al<sub>2</sub>O3/Fe-Hybridstrukturen, die bereits für die Charakterisierung der gebundenen Andreev-Zustände in Abschnitt 4.3 benutzt wurden. Einziger Unterschied ist die veränderte Messkonfiguration, da im Folgenden nicht mehr



Abbildung 5.5: Koloriertes Elektronenmikroskopiebild eines Kontaktpaars, zusammen mit einem Schema der Messkonfiguration, beziehungsweise der Magnetisierungskonfiguration der Eisenkontakte.

die lokalen Signale eines einzelnen Kontakts betrachtet werden, sondern das Wechselspiel zwischen Injektion an einem Kontakt A und Detektion der nichtlokalen Auswirkungen auf einen Kontakt B. Abbildung 5.5(b) zeigt ein nachkoloriertes Elektronenmikroskopiebild einer der vermessenen Proben, wobei die benutzte Messkonfiguration, sowie die Magnetisierungskonfiguration der Eisenkontakte schematisch eingezeichnet sind. Betrachtet man zwei benachbarte Eisenkontakte – die man stark vereinfacht als Einzeldomänen mit klar definierter Ausrichtung annehmen kann – so können dadurch, dass sich die Koerzitivfelder der beiden Kontakte aufgrund ihrer Filmbreite unterscheiden, vier stabile Magnetisierungskonfigurationen für B = 0 erreicht werden (wovon jeweils zwei äquivalent sind: parallel  $\uparrow\uparrow, \downarrow\downarrow$  und anti-parallel  $\downarrow\uparrow, \uparrow\downarrow$ ). Die benutzte Messkonfiguration ist analog zu den Messungen des Ladungs-Nichtgleichgewichts.

## 5.2.2 Magnetisierungsabhängigkeit

Abbildung 5.6 zeigt Messpunkte (Symbole) des nichtlokalen differentiellen Leitwerts  $dI_{det}/dV_{inj}$  von Probe Fe-1 als Funktion der angelegten Injektorspannung  $V_{inj}$  bei B = 0. Wie für die von uns benutzten Aluminiumfilme üblich ist  $\Delta \approx 200 \ \mu eV$ . Dies ist gerade auch in etwa der Spannungsbereich bei dem in Teilbild (a) – parallele Magnetisierung der beiden Kontakte – asymmetrische Signalverläufe zu sehen sind (negativer Leitwert für negative Spannung und positiver Leitwert für positive Spannung). Bevor wir diese Asymmetrien, die nahe des Gaps auftreten, im Detail betrachten, wollen wir uns auf das symmetrische Signal für große Spannungen  $|eV_{inj}| > |\Delta|$  konzentrieren. Qualitativ stimmt die Zunahme des nichtlokalen Leitwerts in diesem Bereich mit dem in Abbildung 5.1(a) für das Ladungs-Nichtgleichgewicht beobachtete Verhalten überein. Vergleicht man für die ferromagnetische Probe das Signal für die parallele und die anti-parallele Magnetisierungsausrichtung (Abbildung 5.6(a) und (b)) so erkennt man, dass im parallelen Fall die Steigung des betreffenden Leitwertsignals als Funktion der angelegten Spannung steiler ist, wofür es zwei alternative Erklärungsmodelle gibt: zum einen könnte es sich bei diesem Unterschied um ein echtes Spindiffussionssignal handeln



**Abbildung 5.6:** Nichtlokaler differentieller Leitwert ( $d \approx 100$  nm) von Probe Fe-1 (Symbole) als Funktion der angelegten Injektorspannung bei B=0 in paralleler (a) und anti-paralleler (b) Magnetisierungskonfiguration der beiden beteiligten Eisenkontakte. Die durchgezogenen Linien sind qualitative Fits zu dem theoretischen Modell aus Referenz [21] (siehe Text).

und zum anderen könnte es ein Effekt von im anti-parallelen Fall verstärkt auftretenden Streufeldern sein, die ähnlich auf die Relaxation des Ladungs-Nichtgleichgewichts wirken wie ein kleines angelegtes Magnetfeld (siehe Abschnitt 5.1.1). In Bezug auf den Energiebereich nahe des Gaps unterscheiden sich die beiden Magnetisierungsfälle durch das Auftreten oder Ausbleiben der Asymmetrie im nichtlokalen differentiellen Leitwert. Dieses Verhalten stimmt qualitativ mit den Vorhersagen von Kalenkov und Zaikin [21] überein (siehe Fits), die den nichtlokalen Transport (EC und CAR) über gebundene Andreev-Zustände betrachten. Eine quantitative Auswertung unserer Daten ist mit dieser Theorie jedoch aus mehreren Gründen nicht möglich. Zum einen beschreibt das benutzte Modell ein ballistisches System, während unsere Filme diffusiv sind und zum anderen sind bisher noch mehrere der notwendigen Fit-Parameter nicht eindeutig bestimmbar. Aus diesem Grund wurde der gezeigte Fit so durchgeführt, dass Teilbild (a) nach Einsetzen der aus dem Experiment bekannten Parameter gefittet wurde, während für Teilbild (b) dieselben Werte übernommen wurden, und nur der Winkel  $\varphi$  zwischen den beiden Magnetisierungen manuell um 180° gedreht wurde. Im Gegensatz zu den Ergebnissen aus Abschnitt 4.3 ist der hier bestimmte Spin-Mischwinkel mit  $|\theta_S| \approx 0.05\pi$ klein und deutet somit auf eine im Vergleich zu den Hotspots dickere Oxidbarriere hin [61], deren Signatur im lokalen Transport durch die BCS-Singularitäten überdeckt worden wäre. Da die Modellierung nicht berücksichtigt, daß die Nichtgleichgewichtsrelaxationszeit  $\tau_{Q^*}$  energieabhängig ist, weicht der gezeigte Fit für Spannungen oberhalb der Gap-Energie von den Messkurven ab.



# 5.2.3 Magnetfeldabhängigkeit

**Abbildung 5.7:** Vergleich des nichtlokalen differentiellen Leitwerts zwischen einer (a) N/Sund (b) F/S-Hybridstruktur ähnlicher Geometrie in Abhängigkeit des angelegten Magnetfelds.

Im Folgenden wollen wir noch einmal auf das symmetrische Signal für große Spannungen  $|eV_{inj}| > |\Delta|$  eingehen und vergleichen, wie sich die Ferromagnet-Supraleiter-Hybridstrukturen von den Normalleiter/Supraleiter-Hybridstrukturen des vorhergehenden Unterkapitels abheben. Abbildung 5.7 stellt die Messdaten des nichtlokalen differentiellen Leitwerts von Probe Cu-3 denen von Probe Fe-1 gegenüber. Da es sich in beiden Fällen um ähnliche Geometrien mit dünnem Aluminiumfilm  $(t_{Al} \lesssim 15 \text{ nm})$ handelt, liegt ein qualitativer Vergleich der Abhängigkeit vom angelegten Feld nahe. Während in den Kupfer-Proben auch für hohe angelegte Magnetfelder das CI-Signal erst bei der Gapenergie  $\Delta_0$  einsetzt, kommt es in den Eisen-Proben zusätzlich zu den Beiträgen bei hohen Energien zu den bereits beobachteten Asymmetrien, die sowohl ihre Form als auch ihre Position mit dem angelegten Magnetfeld ändern. Die genaue Betrachtung der entsprechenden Magnetfeldabhängigkeiten der Asymmetrien wollen wir aber zunächst zurückstellen und uns hier auf den Vergleich der Signale bei hohen Spannungswerten beschränken. Im Unterschied zur Kupfer-Probe, für die das symmetrische Signal für B = 0 am größten ist und dann monoton mit dem angelegten Magnetfeld abnimmt, durchläuft die Signalamplitude hoher Spannungen in der Eisen-Probe einen komplexen Zyklus: Für kleine angelegte Magnetfelder nimmt die Amplitude zunächst zu, bis sie etwa bei B = 100 mT ihren Maximalwert durchläuft und wieder abnimmt. Ein angelegtes Feld von B = 200 mT hat dabei in etwa den gleichen Effekt wie B = 0in paralleler Magnetisierungskonfiguration. Dieses Verhalten lässt sich durch die Annahme lokaler Streufelder erklären, die zunächst von dem angelegten äußeren Feld kompensiert werden müssen (dies wäre hier bei  $B \approx 100 \text{ mT}$  der Fall).

Nun wollen wir uns die Magnetfeld- und die Abstandsabhängigkeit der asymmetrischen



**Abbildung 5.8:** Normierter nichtlokaler differentieller Leitwert von Probe Fe-8 als Funktion der angelegten Injektorspannung  $V_{inj}$  für verschiedene Magnetfelder B.

Signaturen nahe des Gaps im Detail anschauen und betrachten dafür die Messergebnisse einer Probe mit fünf Kontakten in verschiedenen Abständen (Probe Fe-8). In diesem Zusammenhang ist der Hinweis wichtig, dass die Koerzitivfeldstärke für unsere Eisenproben in etwa 50 mT beträgt und dass deshalb für Magnetfelder B, die diesen Wert überschreiten, die Magnetisierung des Films stets parallel zum äußeren Feld ist. Abbildung 5.8 zeigt ein typisches Magnetfeldverhalten des normierten nichtlokalen differentiellen Leitwerts als Funktion der Injektorspannung  $V_{inj}$ . Für Kontaktabstände größer  $d \approx 500$  nm ist bei B = 0 zunächst keine Asymmetrie zu sehen. Mit zunehmendem Feld entwickelt sich dann ein asymmetrisches Signal, wobei der Peak mit positiven Vorzeichen bei negativer Injektorspannung ( $V_{\rm inj} \approx -200 \ \mu V$ ) auftritt und die Signale unabhängig vom Vorzeichen von B sind. Die Amplitude der Asymmetrie wächst bis zu einem Maximalwert, ohne dass sich dabei die Peakposition verändert, und erst dann beginnt sich die Struktur zu verbreitern, während die Amplitude wieder abnimmt und der Peakschwerpunkt nach innen (zu betragsmäßig kleineren Spannungswerten) wandert. Auffällig ist, dass die beiden asymmetrischen Peaks nicht vollständig punktsymmetrisch sind. Zum einen unterscheiden sich ihre Amplituden: so beträgt der Maximalwert bei einem angelegten Magnetfeld von |B| = 0.75 T für den Peak bei negativer Injektorspannung  $(V_{inj} < 0)$  etwa 69  $\Omega$ , während der Minimalwert für den Peak bei positiver Injektorspannung  $(V_{inj} > 0)$  bei  $-54 \Omega$  liegt. Zum anderen gewinnt man bei relativ hohen Magnetfeldern (beispielsweise für |B| = 1.75 T) den Eindruck, dass der Peak bei  $(V_{ini} > 0)$  aus einer Uberlagerung von zwei zueinander verschobenen Beiträgen besteht, während man dies bei dem gegenüberliegenden Peak weniger deutlich erkennt. Überschreitet man das kritische Feld  $B_c \approx 2.15$  T des Supraleiters, so verschwinden die asymmetrischen Signaturen und es kommt zu einem konstanten, spannungsunabhängigen Leitwert (nicht gezeigt).



Abbildung 5.9: Farbkodierte Auftragung des lokalen (a), beziehungsweise des normierten nichtlokalen (b) differentiellen Leitwerts in Abhängigkeit der Injektorspannung  $V_{inj}$  und des angelegten Magnetfelds B. Die eingezeichneten Linien geben den theoretischen Verlauf [58] des Paarpotentials (gestrichelte Linie) und der beiden Zeeman-Bänder wieder.

Vergleicht man die Magnetfeldabhängigkeit dieser Probe mit der von Probe Fe-1 aus Abbildung 5.7(b) dann fällt vor allem ein deutlicher Unterschied für Spannungen oberhalb der Gap-Energie auf. Während Probe Fe-1 eine Signalform aufweist, die dem Ladungs-Nichtgleichgewichtssignal normalleitender Proben gleicht, zeigt Probe Fe-8 eine zusätzliche Asymmetrie zwischen den Signalen für  $V_{inj} > \Delta/e$  und  $V_{inj} < \Delta/e$ , deren Ursprung bisher ungeklärt ist. Wir wollen uns hier jedoch auf die Betrachtung der Asymmetrien nahe des Gaps beschränken, da sie im Gegensatz zu der äußeren Asymmetrie systematisch für alle Eisenproben auftraten.

Abbildung 5.9 zeigt die differentiellen Leitwertdaten von Probe Fe-8 in einer farbkodierten Auftragung in Abhängigkeit des angelegten Magnetfelds *B* und der Injektorspannung  $V_{\rm inj}$ . In Teilbild (a) sind die lokalen Leitwertdaten  $dI_{\rm inj}/dV_{\rm inj}$  aufgetragen, wobei man deutlich die Aufspaltung der Elektronen-Zustandsdichten aufgrund des Zeeman-Effekts erkennen kann. Die eingezeichnete gestrichelte Linie repräsentiert die theoretische Abhängigkeit des Paarpotentials  $\Delta(B)$  [58] (beziehungsweise die durchgezogenen Linien, die der beiden Zeeman-Bänder  $\Delta(B) \pm \mu_B B$ ) vom angelegten Magnetfeld *B*. Trägt man die gleichen Linien in die nichtlokalen Leitwertdaten  $dI_{\rm det}/dV_{\rm inj}$  im Teilbild (b) ein, so ergibt sich augenscheinlich ein Zusammenhang zwischen den Asymmetrien und der Zeeman-Aufspaltung der spinpolarisierten Zustandsdichten, da die asymmetrischen Signale gerade vom Verlauf der Zeeman-Bänder begrenzt werden.



#### 5.2.4 Abstandsabhängigkeit

Abbildung 5.10: (a) Normierter nichtlokaler differentieller Leitwert in Abhängigkeit der Injektorspannung  $V_{inj}$  für verschiedene Abstände d. (b) Auftragung der Peakhöhe, des linken Peaks aus Teilbild (a) ( $V_{inj} < 0$ ) als Funktion des angelegten Magnetfelds B für verschiedene Abstände d, wobei die grau hinterlegten Datenpunkte dem gezeigten Feld (B = 1 T) entsprechen.

Im Folgenden betrachten wir die Abstandsabhängigkeit der nichtlokalen Asymmetrien. Abbildung 5.10(a) stellt die Situation des normierten nichtlokalen differentiellen Leitwerts für verschiedene Abstände d bei B = 1 T und T = 50 mK dar. Die Amplitude der gemessenen Asymmetrien fällt mit dem Abstand d ab, während die Signalform und Peakposition nahezu gleich bleiben – einzige Ausnahme bildet in unseren Messungen das Signal für den kleinsten Abstand mit  $d \approx 525$  nm, welches etwas nach innen verschoben ist und sich auch im sonstigen Verhalten leicht von den Signalen der anderen Kontaktkonfigurationen unterscheidet (worauf wir später noch im Detail eingehen). Teilbild (b) zeigt eine Auswertung der Peakhöhe des Peaks mit  $V_{inj} < 0$  als Funktion des angelegten Magnetfelds für verschiedene Abstände d. Klar zu erkennen ist, dass das Magnetfeld, bei dem das Leitwertmaximum auftritt, abstandsabhängig ist und mit zunehmender Entfernung hin zu größeren Feldern schiebt.

In Abbildung 5.11(a) ist anstelle der Höhe des entsprechenden Peaks, die von ihm begrenzte Fläche in Funktion des angelegten Magnetfelds aufgetragen (wobei die Flächen jeweils dadurch ermittelt wurden, dass die Injektorspannung auf die Energielücke  $\Delta_0$ des entsprechenden Kontakts normiert wurde, und dann die Messdaten je nach untersuchtem Peak von  $eV_{inj} = \pm 1.5\Delta_0$  bis 0 numerisch integriert wurden). Die Peakfläche nimmt mit dem angelegten Magnetfeld beständig zu, bis für  $B \approx 1.5 - 1.75$  T der Maximalwert erreicht wird, und die Fläche dann wieder zurück auf Null geht. Auch hier weicht das Verhalten des kürzesten Abstands d = 525 nm deutlich von den anderen



Abbildung 5.11: (a) Auftragung der normierten Peakfläche – desselben Peaks wie in 5.10(b) – als Funktion des angelegten Magnetfelds *B* für verschiedene Abstände *d*. (b) Semilogarithmische Auftragung der normierten Peakfläche als Funktion des Abstands *d* für verschiedene Magnetfelder *B*. Bei den durchgezogenen Linien handelt es sich um exponentielle Fits zur Bestimmung der Relaxationslänge  $\lambda$ .

Konfigurationen ab, da bei ihm das Anwachsen der Fläche bereits bei B = 0.5 T zu stagnieren beginnt. Wie in Teilbild (b) – der halb-logarithmischen Auftragung derselben Daten – als Funktion des Abstands für verschiedene Magnetfelder zu sehen ist, könnte dies damit zusammenhängen, dass es möglicherweise zwei verschiedene Relaxationslängen für das Abklingen der beobachteten Asymmetrien gibt: einen schnellen Abfall, der bis etwa  $d \approx 1500$  nm stattfindet (beispielsweise gut zu erkennen für die schwarzen Symbole für B = 0.25 T) und dann einen langsameren Abfall für größere Abstände. Die durchgezogenen Linien sind exponentielle Fits an die Datenpunkte für Entfernungen größer 1  $\mu$ m (also ohne den entsprechenden Wert bei d = 525 nm), aus denen eine langreichweitige Relaxationslänge  $\lambda$  bestimmt wird. Um den eventuell ebenfalls vorhandenen schnellen Signalabfall für kleine Abstände (beispielhaft gefittet durch die gestrichelte schwarze Linie:  $\lambda' \approx 0.37 \lambda$ ) im Detail zu untersuchen, wäre ein anderes Probendesign notwendig, weshalb wir hier unseren Schwerpunkt auf die Ergebnisse für große Abstände legen wollen. Wie zu erkennen ist, ist die Übereinstimmung zwischen Datenpunkten und Fits für Magnetfelder bis  $B \approx 1.5$  T durchaus überzeugend. Nähert man sich dem kritischen Feld  $B_c \approx 2.15$  T noch weiter an, wird die Streuung der Datenpunkte und damit die Fitqualität jedoch schlechter.

In Abbildung 5.12(a) wird die auf diese Weise aus verschiedenen charakteristischen Größen (Peakhöhe, Peakfläche) ermittelte Relaxationslänge  $\lambda$  als Funktion des Magnetfelds B gezeigt. Unabhängig davon, welchen der beiden Peaks und ob man die Peakhöhe oder die Peakfläche betrachtet, ergibt sich ein sehr ähnliches Bild. Die Relaxationslänge  $\lambda$ beträgt ungefähr 2  $\mu$ m bei kleinen Magnetfeldern und nimmt bis  $B \approx 1.5$  T annä-



Abbildung 5.12: (a) Auftragung der Relaxationslänge  $\lambda$  als Funktion des angelegten Magnetfelds *B* für verschiedene charakteristische Größen. (b) Auftragung der aus Peakfläche  $\mathcal{A}$ und -höhe *h* grob abgeschätzten Peakbreite ( $b = \mathcal{A}/h$ ) als Funktion des normierten Magnetfelds  $B/B_c$  für alle vermessenen Kontaktkonfigurationen der 9 betrachteten Proben.

hernd linear mit dem angelegten Feld auf etwa 7  $\mu$ m zu. Für noch höhere Magnetfelder sollte man die Aussagekraft der gezeigten Datenpunkte mit Vorsicht bewerten, da die ihnen zugrunde liegenden Fits – wie erwähnt – problematisch sind. Ebenfalls in Teilbild (a) eingezeichnet ist ein für Probe Fe-4 ermittelter Wert der Relaxationslänge, der ganz gut in das allgemeine Bild passt. An dieser Probe wurde allerdings nur ein einziger Magnetfeldwert ausführlich (in fünf verschiedenen Kontaktkonfigurationen) vermessen:  $\lambda \approx 5.8 \ \mu m$  für B = 0.5 T. Des Weiteren sind wir der Frage nachgegangen, ob die Steigung der Relaxationslänge als Funktion des angelegten Magnetfelds von der Temperatur abhängt. Da die Datenpunkte für 350 mK jedoch im Rahmen der Messgenauigkeit auf denen für 50 mK liegen, scheint das nicht der Fall zu sein. Der ausschlaggebende Relaxationsmechanismus ist demnach weitestgehend temperaturunabhängig. Nicht für alle vermessenen Proben standen mehrere Kontaktkonfigurationen in unterschiedlichen Abständen zur Verfügung, weswegen nicht für jede Probe eine magnetfeldabhängige Relaxationslänge bestimmt werden konnte. Teilbild (b) zeigt die Auftragung einer mit einfachen Mitteln aus Peakfläche  $\mathcal{A}$  und Peakhöhe h abgeschätzten Peakbreite  $(b = \mathcal{A}/h)$  als Funktion des normierten Magnetfelds  $B/B_c$ , wobei für mittlere Felder  $(B \sim 0.3 - 0.7 B_c)$  alle 24 vermessenen Kontaktkonfigurationen grob dem gleichen Trend folgen. Das beobachtete Verhalten in diesem Magnetfeldbereich ist also für alle Proben sehr ähnlich.

#### 5.2.5 Temperaturabhängigkeit

Die Temperaturabhängigkeit der beobachteten Asymmetrien ist in Abbildung 5.13(a) beispielhaft für den Abstand d = 1005 nm dargestellt. Wie man das von thermischen



Abbildung 5.13: (a) Normierter nichtlokaler differentieller Leitwert (für das Kontaktpaar mit d = 1005 nm) als Funktion der angelegten Injektorspannung  $V_{inj}$  für verschiedene Temperaturen T. (b) Relative Peakfläche ( $\mathcal{A}_T/\mathcal{A}_{T=50\text{mK}}$ ) beider Peaks ( $V_{inj} < 0$  und  $V_{inj} > 0$ ) als Funktion der Temperatur für verschiedene Abstände d. Die durchgezogene Linie ist als Orientierungshilfe gedacht.

Verschmierungseffekten erwartet, verbreitern sich die beiden asymmetrischen Signaturen, während ihre Amplitude gleichzeitig abnimmt. Jedoch handelt es sich bei dem beobachteten Temperatureffekt nicht um eine rein thermische Verschmierung, da die Peakfläche  $\mathcal{A}$  mit der Temperatur abnimmt. Diese Abnahme wird in Teilbild 5.13(b) jeweils für beide Peaks und für die verschiedenen Abstände d dadurch illustriert, dass das relative Verhältnis der Peakfläche bei der Temperatur T zur Peakfläche bei T = 50 mK als Funktion der Temperatur aufgetragen ist. Trotz starker Streuung scheint es einen universellen Trend für alle Abstände zu geben.

# 5.2.6 Diskussion

Für die in diesem Kapitel im nichtlokalen Leitwertspektrum nahe des Gaps beobachteten Asymmetrien und ihre Magnetfeldabhängigkeit gibt es zur Zeit zwei alternative Erklärungsmodelle, die wir hier nacheinander kurz erläutern wollen. Beide Modelle haben die Annahme gemeinsam, dass es zu einer spinabhängigen Zustandsdichte im Supraleiter kommt, die die nichtlokalen Transportprozesse beeinflusst. Der Unterschied zwischen unseren beiden Erklärungsansätzen ist allerdings der Ursprung dieser zusätzlich zur Verfügung stehenden Zustände. Zum einen gibt es die Möglichkeit, dass sie mit gebundenen Andreev-Zuständen und somit mit Spin-Mixing an den Grenzflächen zusammenhängen, und zum anderen könnte es auch ein Effekt sein, der schlicht auf die Zeeman-Aufspaltung der Zustandsdichten im Supraleiter zurückgeht.

Abbildung 5.14(a) illustriert schematisch, dass das Vorhandensein einer spinabhängi-



Abbildung 5.14: (a) schematische Darstellung des Einflusses von lokalen spinabhängigen Einteilchen-Zuständen auf die nichtlokalen Transportprozesse, (b) Illustration der Entstehung der asymmetrischen Subgap-Features durch das Wechselspiel von EC und CAR (siehe [20]).

gen Einteilchen-Zustandsdichte an den Grenzflächen die Wahrscheinlichkeit für nichtlokale Transportprozesse verändert. Wie theoretisch gezeigt wurde [20, 21], führt eine solche Situation zu asymmetrischen Subgap-Features, die auf das Zusammenspiel von CAR und EC zurückzuführen sind. In Teilbild (b) sind die verschiedenen Beiträge der nichtlokalen Transportprozesse für das Tunnellimit im Fall paralleler Magnetisierung der beiden ferromagnetischen Kontakte skizziert: während der Prozess des Elektronentransfers von einer einzigen Spin-Familie abhängt und dessen Beitrag deshalb spinpolarisiert ist, werden für die nichtlokale Andreev-Reflexion immer resonante Prozesse mit Beteiligung beider Spin-Bänder benötigt. In der Summe (EC+CAR) kann es also zu einem asymmetrischen Gesamtsignal kommen.

## Modell 1

Nehmen wir zuerst an, die spinabhängige Zustandsdichte wäre darauf zurückzuführen, dass an den Grenzflächen gebundene Andreev-Zustände auftreten, die über die Kohärenzlänge  $\xi_S$  in den Supraleiter hineinreichen. Mit diesem Modell würde sich das in Abbildung 5.6 gezeigte Szenario für B = 0 (das Umschalten zwischen fehlender Asymmetrie im anti-parallelen Magnetisierungszustand der beiden Eisen-Kontakte und klar erkennbarer Asymmetrie im parallelen Fall) sehr einfach beschreiben lassen. Während der Beitrag durch Elektronen-Kotunneln im Fall paralleler Magnetisierung noch asymmetrisch ist, wird er durch die anti-parallele Einstellung ebenfalls symmetrisch, so dass die Summe aus CAR und EC nicht länger asymmetrisch sein kann (siehe [20]).

Jedoch ist es schwierig, durch die Annahme gebundener Andreev-Zustände an den Grenzflächen das Signalverhalten für höhere Magnetfelder (mit Anwachsen der Signal-



Abbildung 5.15: Simulationsergebnisse für die Theorie von Kalenkov und Zaikin ( $\mathcal{T} \approx 0.1$ ): (a) lokaler und (b) nichtlokaler Transport. Bei geeigneter Parameterwahl ergibt sich eine Abhängigkeit des nichtlokalen Signals vom Winkel  $\varphi$  zwischen den beiden Magnetisierungen.

Amplitude, Schieben der Peakpositionen und Aufweiten der Peaks), sowie die sehr hohe Relaxationslänge und deren Zunahme im Magnetfeld zu erklären. Obwohl in den zitierten theoretischen Abhandlungen keine expliziten Vorhersagen zur Magnetfeldabhängigkeit gemacht wurden, kann man beispielsweise die Arbeit von Metalidis et al. [20] um einen Zeeman-Term erweitern. In diesem Fall findet man, als einzige Auswirkung auf die Signalform eine Verschiebung der Peakpositionen um die Zeeman-Energie  $\mu_B B$  [87]. Das beobachtete Anwachsen der Amplitude kann also durch einen bloßen Magnetfeldterm nicht erklärt werden. Abbildung 5.15(b) zeigt jedoch, dass bei einer geeigneten Wahl der Parameter im Modell von Kalenkov und Zaikin [21] ein Umklappen, Verschwinden und Anwachsen der Asymmetrie dadurch simuliert werden kann, dass der Winkel  $\varphi$  zwischen den Magnetisierungen der beiden Kontakte verändert wird. Im Experiment ließe sich eine solche graduelle Winkeländerung eventuell darauf zurückführen, dass die Eisenkontakte aufgrund der besprochenen Wölbung über den Aluminiumfilm – siehe Abbildung 4.4(b) – möglicherweise nicht vollständig kollinear magnetisiert sind und deshalb erst im angelegten Magnetfeld eine kontinuierliche Ausrichtung der Magnetisierung stattfindet.

Ein weiteres Erklärungsszenario für das Anwachsen der Signale im Magnetfeld besteht darin, dass die gefundene Asymmetrie nicht auf ein einzelnes Paar gebundener Andreev-Zustände zurückgeht, sondern dass sie das Resultat einer ganzen Verteilung von gebundenen Zuständen verschiedener Spin-Mischwinkel ist, die sich im Magnetfeld individuell unterschiedlich verhalten und deren Beiträge zum Gesamtsignal sich deshalb je nach angelegtem Feld aufaddieren oder gegenseitig aufheben. Als Hinweis auf eine solche Andreev-Bound-State-Verteilung können die Beobachtungen des vorherigen Kapitels – dass der Spin-Mischwinkel sehr empfindlich von der Beschaffenheit der Grenzfläche abhängt – interpretiert werden. Wenn einige höhertransparente Hotspots dafür verantwortlich sind, dass man klare Bound-State-Signaturen hoher Spin-Mischwinkel im lokalen Transport beobachten kann, liegt die Vermutung nahe, dass die flächendeckend niedrige Transparenz des restlichen Kontakts zu einer ganzen Verteilung gebundener Zustände mit kleinen Spin-Mischwinkeln, das heißt, nahe des Gaps, – siehe Abbildung 5.15(a) – führt. (Die Signalbeiträge aufgrund dieser gebundenen Zustände mit  $\theta_S < 0.5\pi$  unterscheiden sich in den lokalen Transportmessungen jedoch kaum von den BCS-Singularitäten des Tunnelkontakts.) Allerdings ist es auch mit dieser komplexen Begründung nicht offensichtlich, warum die Relaxationslänge derart groß ist ( $\lambda \approx 2 \ \mu m \gg \xi_S \approx 100 \ nm$ ) und im Magnetfeld sogar noch zunimmt. Eventuell könnte man in diesem Zusammenhang damit argumentieren, dass die Eindringtiefe der virtuellen Quasiteilchen  $\xi_S$  nahe des Gaps mit

$$\xi_S = \xi_0 \left( 1 - \frac{\varepsilon^2}{\Delta^2} \right)^{-1/4} \tag{21}$$

divergiert [62], und dass deshalb die zusätzlichen lokalen Einteilchen-Zustände weit in den Supraleiter hineinreichen.

#### Modell 2

Unser alternatives Erklärungsmodell geht auf die Beobachtung zurück, dass das nichtlokale Signal gerade innerhalb des Bereichs auftritt, der von den beiden Zeeman-Bändern begrenzt wird, und dass manche asymmetrische Peaks in hohen Magnetfeldern in zwei Beiträge aufspalten, sowie dass die Fläche  $\mathcal{A}$  der Peaks mit der Temperatur abnimmt und die Relaxationslänge  $\lambda$  mit dem angelegten Magnetfeld annähernd linear zunimmt. All dies sind Hinweise auf einen Zusammenhang zwischen der Zeeman-Aufspaltung



Abbildung 5.16: Illustration der spinabhängigen Zustandsdichte die aufgrund eines (a) gebundenen Andreev-Zustands, beziehungsweise (b) der Zeeman-Aufspaltung zustande kommt.



Abbildung 5.17: Auf Gleichung (6) zurückgehende Modellierung der Leitwertspektren im angelegten Magnetfeld B: (a) lokaler differentieller Leitwert generiert aus der Summe der beiden beitragenden Spin-Bänder, (b) nichtlokaler differentieller Leitwert generiert aus der entsprechenden Differenz

und den beobachteten Asymmetrien. Abbildung 5.16 vergleicht die spinabhängige Zustandsdichte, die durch den Zeeman-Effekt zustande kommt, mit der Zustandsdichte, die man aufgrund eines gebundenen Andreev-Zustands erhalten würde. Für Energien  $|\varepsilon|/\Delta \leq 1.3$  (solange in Teilbild (b) das zweite Spinband aufgrund der Zeeman-Aufspaltung noch nicht beiträgt) ergibt sich in beiden Fällen ein ähnlicher Verlauf.

Abbildung 5.17 zeigt die Ergebnisse eines – im Folgenden beschriebenen – phänomenologischen Modells, das das Magnetfeldverhalten der asymmetrischen Subgap-Features trotz stark vereinfachter Annahmen qualitativ gut beschreibt. In Teilbild (a) ist das theoretisch vorhergesagte Verhalten des lokalen differentiellen Leitwerts  $dI_{inj}/dV_{inj}$  als Funktion des angelegten Magnetfelds und der Injektorspannung farbkodiert dargestellt (wobei der gezeigte Colorplot dadurch generiert wurde, dass zunächst die aufgenommene Messkurve für B = 0 (Abbildung 5.9) gefittet wurde und dann die Fit-Parameter, die sich aufgrund von Gleichung (6) ergeben, mit Ausnahme von  $\Delta$ ,  $\Gamma$  und B für alle weiteren Magnetfeldwerte konstant gehalten wurden). Bei der Darstellung aus Teilbild (a) handelt es sich also um eine Veranschaulichung, wie sich die ursprüngliche Messkurve laut theoretischer Vorhersagen im Magnetfeld verändert. Vergleicht man dies mit den tatsächlichen Messdaten, so erkennt man eine überzeugende Übereinstimmung. Zur Modellierung des nichtlokalen differentiellen Leitwerts  $dI_{det}/dV_{inj}$  wurden die gleichen Annahmen wie in Teilbild (a) gemacht, nur wurde für Abbildung 5.17(b) nicht, wie in dem Modell von Tedrow und Meservey üblich, die Summe der beiden zum Ge-

60

samtsignal beitragenden Spin-Bänder gebildet, sondern deren Differenz. Außer dieser konzeptionellen Änderung (Differenz statt Summe) – die wir damit motivieren, dass unter Umständen der Beitrag des ersten Spinbands vom Beitrag des zweiten kompensiert wird – wurde jedoch keiner der Fit-Parameter verändert. Obwohl die Übereinstimmung zwischen diesem phänomenologischen Ansatz und den beobachteten Messdaten für den Subgap-Bereich überzeugend ist, bedarf ein zufriedenstellendes quantitatives Modell einigen theoretischen Aufwands und steht zur Zeit noch nicht zur Verfügung.

Im Weiteren wollen wir uns mit der Relaxationsrate  $\lambda$  beschäftigen und diskutieren, inwieweit deren ungewöhnliche Magnetfeldabhängigkeit durch die Zeeman-Aufspaltung der Zustandsdichten erklärt werden kann. Geht man davon aus, dass der Relaxationsmechanismus für die beobachteten Asymmetrien damit zusammenhängt, dass Elektronen von einem Spin-Band in das andere streuen, dann wäre es verständlich, dass dieser Prozess mit dem angelegten Magnetfeld und der daraus resultierenden zunehmenden Trennung der Spin-Bänder schwächer wird. Generell lassen sich Relaxationslängen von einigen  $\mu$ m einfacher durch "Zeeman-Aufspaltung" motivieren, als durch gebundene Andreev-Zustände an den Grenzflächen. Während gebundene Zustände nur sehr lokal begrenzt über die Längenskala  $\xi_S$  zu einer Zustandsdichte für Quasiteilchen führen, kommt es durch die Zeeman-Aufspaltung zu einer Aufspaltung der Zustandsdichte über die gesamte Ausdehnung des Supraleiters – das heißt, der Transport über die Länge dwürde in diesem Modell über die Propagation von Quasiteilchen ablaufen, während die nichtlokalen Prozesse lokal an den Grenzflächen auftreten können [21]. Der Ursprung des asymmetrischen Signals wäre somit Spintransport im Supraleiter, wobei die gefundene Relaxationslänge auch im Vergleich zur Spindiffusionslänge im normalleitenden Zustand erstaunlich groß ist ( $\lambda \approx 2 \,\mu m \gg \lambda_{sf} \approx 350 \,nm$ ). Allerdings ist es zur Zeit noch offen, wie sich die Spindiffusionslänge im supraleitenden Zustand verändern sollte, da es hierzu widersprüchliche experimentelle Untersuchungen gibt (während beispielsweise Poli et al. eine drastische Abnahme von  $\lambda_{sf}$  beobachtet haben [29], fanden Yang et al. eine stark verlängerte Lebensdauer für spinpolarisierte Ladungsträger [88]). In diesem Zusammenhang stellt sich unter anderem die Frage, welche Rolle Spin-Bahn-Streuung, beziehungsweise Spin-Flip-Streuung (an magnetischen Störstellen) spielen. Da überdies unklar ist, welche Moden des Nichtgleichgewichts am Spintransport beteiligt sind, ist auch die Beobachtung des nächsten Unterkapitels – dass die Relaxationslänge des Energie-Nichtgleichgewichts in etwa der der beobachteten Asymmetrien entspricht – von Bedeutung. Dies könnte ein Indiz auf die zur Relaxation führenden Mechanismen sein.

Natürlich können die von uns beobachteten Signalverläufe und ihre Abhängigkeiten auch auf eine Kombination der beiden Modelle 1 und 2 zurückgehen; so ist es durchaus denkbar, dass für kleine Abstände der Einfluss gebundener Andreev-Zustände (der schnell mit zunehmender Distanz abfällt) dominiert, während für größere Entfernungen die Effekte der Zeeman-Aufspaltung ausschlaggebend sind. Hierfür würde beispielsweise sprechen, dass in Abbildung 5.11 bei B = 0.25 T zwei unterschiedliche Relaxationslängen zu erkennen sind ( $\lambda' \approx 0.7 \ \mu$ m für kleine Abstände und  $\lambda \approx 2 \ \mu$ m für große Abstände).

# 5.3 Nichtlokaler Transport 2 (Energie-Nichtgleichgewicht)



Um den Effekt des Energie-Nichtgleichgewichts zu charakterisieren, untersuchen wir, wie sich das lokale Leitwertspektrum eines Detektorkontakts verändert, je nachdem wieviele Nichtgleichgewichtsquasiteilchen an einem zweiten, benachbarten Kontakt injiziert werden (siehe Schema). Da dieser Effekt jedoch nicht vorrangig im Fokus dieser Arbeit stand, wurden die im Folgenden gezeigten Messungen nur stichprobenartig für einige Kontaktpaare durchgeführt.

## 5.3.1 Energie-Nichtgleichgewicht in N/S-Hybridstrukturen

Abbildung 5.18(a) zeigt den differentiellen nichtlokalen Leitwert  $g_{det}$  des linken Kontakts der in Abbildung 4.2 gezeigten Probe Cu-1 als Funktion der lokalen Bias-Spannung  $V_{\text{det}}$ , wobei die Injektorspannung  $V_{\text{inj}}$  am direkt daneben liegenden Kontakt ( $d = 1 \ \mu \text{m}$ ) variiert wurde. Wir wollen unsere Aufmerksamkeit auf den Spannungsbereich richten, in dem die BCS-Singularitäten auftreten. Wie man an den ausgewählten, in Teilbild (a) gezeigten Kurven erkennen kann, verringert sich zum einen das Gap mit anwachsender Injektorspannung (um bis zu  $\approx 5\%$ ) und zum anderen schmiert der entsprechende Peak im Leitwertspektrum gleichzeitig leicht aus. Das Ausschmieren kann dabei zwei grundlegend verschiedene Erklärungen haben: eine Erwärmung des normalleitenden Detektorkontakts aufgrund der Quasiteilchen, die aus dem Supraleiter austreten [89] oder eine verstärkte Paarbrechung aufgrund der veränderten Lebensdauer der Quasiteilchen im Supraleiter [34]. Unsere Datenlage lässt es jedoch nicht zu, diese beiden alternativen Szenarien, in denen sich entweder Eigenschaften des Normalleiters oder des Supraleiters verändern, zu unterscheiden. Abbildung 5.18(b) zeigt den normierten Wert des Paarpotentials  $\Delta_{\rm det}/\Delta_0$  aufgetragen über die am Injektorkontakt angelegte Spannung  $V_{inj}$  (wobei die Werte für  $\Delta_{det}$  mittels Fits zu Gleichung 6 ermittelt wurden). Solange die angelegte Spannung noch nicht ausreicht, um Quasiteilchen zu injizieren, ist kein Einfluss auf das Paarpotential festzustellen, das heißt für  $eV_{inj} < \Delta_0 \approx 200 \ \mu eV$ bleibt  $\Delta_{det}$  nahezu konstant. Überschreitet man diesen Energiewert, fällt das Paarpotential relativ schnell um ein paar Prozent ab, bevor sich die Abnahme für höhere Spannungswerte verlangsamt. Die beschriebene Unterdrückung des Gaps lässt sich mittels der Selbstkonsistenzgleichung des Paarpotentials (12) verstehen. Für Injektorspannungen nahe  $\Delta$  werden aufgrund der Divergenz der Einteilchen-Zustandsdichte eine große Anzahl von Quasiteilchen injiziert, welche obendrein besonders effektiv darin sind das Gap zu reduzieren; dies äußert sich in der Energieabhängigkeit des Nenners



Abbildung 5.18: a) Differentieller Leitwert  $g_{det}$  des linken Kontakts von Probe Cu-1 als Funktion der angelegten Bias-Spannung  $V_{det}$  in Abhängigkeit der Injektorspannung  $V_{inj}$ , die am nächstgelegenen Kontakt (d=1  $\mu$ m) zusätzlich aufgeprägt wurde. b) Normiertes Paarpotential  $\Delta_{det}/\Delta_0$  des Detektorkontakts aufgetragen über  $V_{inj}$ , wobei die durchgezogene Linie ein Fit zur Selbstkonsistenzgleichung des Paarpotentials (12) ist.

im Integral von Gleichung (12). Die durchgezogene Linie zeigt einen Fit zu dieser Gleichung, wobei die Kopplungskonstante  $\mathcal{V}$  über die aus der Literatur bekannten Debye-Temperatur von Aluminium [90] und aus dem gemessenen Paarpotential  $\Delta_0$  berechnet wurde. Obwohl die Energieabhängigkeit der Verteilungsfunktion  $f(\zeta)$  mittels numerischer Simulationen bestimmt werden kann, haben wir uns für die gezeigten Fits der Einfachheit halber darauf beschränkt, eine stark genäherte Verteilungsfunktion anzunehmen (bei der wir von einer kastenförmigen Funktion mit  $f = f_0$  im Intervall von  $\Delta$ bis  $\Delta - eV_{inj}$  und sonst f = 0 ausgehen). Trotz dieser drastischen Vereinfachung, die es uns erlaubt das entsprechende Integral in Gleichung (12) analytisch zu lösen, werden die Messdaten vom Fit gut wiedergegeben, wobei der spannungsunabhängige Wert  $f_0$  einen Anhaltspunkt für die Stärke des Energie-Nichtgleichgewichtseffekts darstellt (hier  $f_0 \approx 1.9\%$  für  $d \approx 1 \ \mu m$ ).

Abbildung 5.19 veranschaulicht die gemachte Vereinfachung am Beispiel einer Simulation des longitudinalen Anteils der Nichtgleichgewichtsverteilung (wobei das Volumen des Aluminiumstreifens zwischen Injektor- und Detektorkontakt mit  $30 \times 100 \times 9000 (\text{nm})^3$ angenommen wurde und ansonsten die gleichen Simulationsparameter wie in Referenz [73] benutzt wurden: Temperatur T = 0.05 K, Elektron-Phonon-Streurate im Sinne von Referenz [70]  $\tau_{0el-ph} = 100$  ns und lokale Leitwerte  $|G| = 300 \ \mu\text{S}$ ). In Teilbild (a) sind die simulierten longitudinalen Nichtgleichgewichtsverteilungen  $f_L$  [81](durchgezogene Linien) dem beschriebenen vereinfachten Kastenmodell mit festem  $f_0$  (gestrichelte Linien) als Funktion der Energie  $\zeta$  und für verschiedene Injektorspannungen  $V_{inj}$  gegenübergestellt. Wie bereits erwähnt hängt die Effizienz mit der die Quasiteilchen das Gap reduzieren von ihrer Energie ab, so dass sich für die beiden verglichenen Verteilungen (der simulierten realistischen Nichtgleichgewichtsverteilung und dem einfachen



Abbildung 5.19: (a) Gegenüberstellung der simulierten longitudinalen Nichtgleichgewichtsverteilung  $f_L$  [81](durchgezogene Linien) mit dem beschriebenen vereinfachten Kastenmodell (gestrichelte Linien) als Funktion der Energie  $\zeta$  und für verschiedene Injektorspannungen  $V_{\text{inj}}$ . (b) Normiertes Paarpotential  $\Delta_{\text{det}}/\Delta_0$  des Detektorkontakts aufgetragen über  $V_{\text{inj}}$ , wobei die Symbole die Ergebnisse der numerischen Simulation darstellen, während die durchgezogene Linie ein Fit mit dem vereinfachten Kastenmodell aus Teilbild (a) ist.

Kastenmodell) die, in Teilbild (b) gezeigte, Abhängigkeit des normierten Paarpotentials  $\Delta_{\text{det}}/\Delta_0$  des Detektorkontakts von der Injektorspannung  $V_{\text{inj}}$  ergibt. Trotz stark vereinfachter Annahmen beschreibt der Fit mit festem  $f_0$  die Daten der Simulation qualitativ richtig, weshalb davon ausgegangen werden kann, dass ein Fit mit diesem Modell auch die Messdaten gut beschreibt.

## 5.3.2 Energie-Nichtgleichgewicht in F/S-Hybridstrukturen

Analog zu Probe Cu-1 wollen wir die entsprechenden Abhängigkeiten für Probe Fe-8 in der Kontakt-Konfiguration mit  $d \approx 1 \ \mu m$  betrachten. Abbildung 5.20(a) zeigt das Paarpotential des Detektorkontakts als Funktion der Injektorspannung. Wie in Teilbild (a) anhand des gezeigten Fits (hier  $f_0 \approx 4.0\%$  für  $d \approx 1 \ \mu m$ ) zu sehen ist, entspricht die Abnahme des Paarpotentials als Funktion der angelegten Spannung auch im Fall ferromagnetischer Abgriffe gut den Vorhersagen der Selbstkonsistenzgleichung (12). Teilbild (b) zeigt eine farbkodierte Auftragung des lokalen differentiellen Leitwerts des Detektorkontakts  $dI_{det}/dV_{det}$  als Funktion der beiden Spannungen  $V_{inj}$  und  $V_{det}$  (die durchgezogene Linie ist der Fit aus Teilbild (a), der den Verlauf des Paarpotentials angibt). Da die gezeigten Daten für ein angelegtes Magnetfeld von B = 1 T aufgenommen wurden, erkennt man deutlich die Zeeman-Aufspaltung der beiden Spin-Bänder. Neben der Reduktion des Gaps für hohe Spannung  $V_{inj} \gtrsim 200 \ \mu V$  kommt es auch hier gleichzeitig zu einem verstärkten Verbreiterungseffekt der jeweiligen lokalen Messkurven. Dies lässt sich in Übereinstimmung mit Referenz [34] durch einen spannungsabhängigen



Abbildung 5.20: zu Abbildung 5.18 analoge Betrachtung für ein Kontaktpaar der Probe Fe-8 ( $d \approx 1 \ \mu$ m): (a) Verringerung des Paarpotentials  $\Delta_{det}$  in Funktion der Injektorspannung  $V_{inj}$ , wobei die durchgezogene Linie ein Fit zur Selbstkonsistenzgleichung des Paarpotentials (12) ist. (b) Farbkodierte Auftragung des differentiellen lokalen Leitwerts in Abhängigkeit der beiden Kontaktspannungen  $V_{inj}$  und  $V_{det}$ . Bei der eingezeichneten schwarzen Linie handelt es sich um den Fit aus Teilbild (a).

Paarbrechungsparameter der Lebensdauerverbreiterung  $\Gamma_{\rm LT}$  beschreiben. Des Weiteren haben Arutyunov et al. in der zitierten Arbeit auch die Relaxationslänge des Energie-Nichtgleichgewichts  $\lambda_T$  bestimmt, wobei sie für ihre Strukturen  $\lambda_T = 40 \pm 20 \ \mu {\rm m}$  bei B = 0 gefunden haben. Zwar können wir für Probe Fe-8 den entsprechenden Wert nicht zuverlässig bestimmen, da nur zwei unterschiedliche Kontaktabstände auf den Effekt des Energie-Nichtgleichgewichts hin vermessen wurden, jedoch ermöglichen es die beiden ermittelten Werte ( $f_0 \approx 4.0\%$  für  $d \approx 1 \ \mu {\rm m}$  und  $f_0 \approx 0.6\%$  für  $d \approx 8 \ \mu {\rm m}$ ) die Größe des exponentiellen Abfalls zumindest als groben Anhaltspunkt abzuschätzen: aus dem Verhältnis  $f_0(1 \ \mu {\rm m})/f_0(8 \ \mu {\rm m})$  erhält man  $\lambda_T \sim 4.3 \ \mu {\rm m}$  bei B = 1 T.



In diesem Unterkapitel betrachten wir den nichtlokalen differentiellen Leitwert  $dI_{\text{det}}/dV_{\text{inj}}$ als Funktion der beiden Bias-Spannungen  $V_{\text{inj}}$  und  $V_{\text{det}}$  (siehe Schema).



Abbildung 5.21: (a) Nichtlokaler differentieller Leitwert  $dI_{\text{det}}/dV_{\text{inj}}$  als Funktion der angelegten Spannung  $V_{\text{inj}}$  für verschiedene Spannungen  $V_{\text{det}}$ . (b) Farbkodierte Auftragung derselben Daten. Die durchgezogene Linie zeigt den Verlauf der Gap-Reduktion aufgrund des Energie-Nichtgleichgewichts.

In Abbildung 5.21(a) sind für einige ausgewählte  $V_{det}$ -Werte die resultierenden Leitwertkurven  $dI_{det}/dV_{inj}(V_{inj})$  dargestellt, während Teilbild (b) einen Überblick der gesamten Messdaten in farbkodierter Auftragung zeigt. Betrachtet man in Abbildung 5.21(a) zunächst die Messkurven für  $|V_{det}| \approx 60 \ \mu V$ , so erkennt man die aus den bisherigen Untersuchungen bekannte Asymmetrie. Allerdings prägt die Spannung  $V_{det}$  ein zusätzliches, ebenfalls asymmetrisches Signal auf. Dies äußert sich beispielsweise in der Spannungsabhängigkeit des nichtlokalen Leitwerts für hohe Spannungen  $V_{inj} \approx 600 \ \mu V$ , oder darin wie sich die Peakform entwickelt. Betrachtet man die  $dV_{det}/dV_{inj}(V_{inj})$ -Messkurven



Abbildung 5.22: Veranschaulichung des Vorgehens für die numerische Zerlegung der Signalbeiträge: (a) mittels Interpolation der Messkurven (Abbildung 5.21) konstruierte Abhängigkeit des nichtlokalen differentiellen Leitwerts  $dI_{det}/dV_{inj}$  von der Spannung  $V_{det}$  für verschiedene Spannungen  $V_{inj}$ . (b) Zerlegung der entsprechenden Kurve für  $V_{inj} = -200 \ \mu$ V in ihren symmetrischen und asymmetrischen Anteil.

genauer, so erkennt man, dass es sich vermutlich um die Summe zweier getrennter Signalbeiträge handelt: eines Beitrags der unabhängig von der Spannung  $V_{det}$  ist, und eines zweiten bis zu fünfmal so hohen Beitrags, der asymmetrisch in  $V_{det}$  ist.

In Abbildung 5.23 haben wir diese beiden Anteile anhand ihrer Symmetrieeigenschaften, wie in Abbildung 5.22 verdeutlicht, numerisch zerlegt. Zuerst wurde aus den Messkurven mittels Interpolation die Abhängigkeit des nichtlokalen differentiellen Leitwerts  $dI_{\rm det}/dV_{\rm inj}$  von der Spannung  $V_{\rm det}$  für verschiedene Spannungen  $V_{\rm inj}$  konstruiert und dann wurden diese Kurven numerisch in ihren symmetrischen und asymmetrischen Teil zerlegt. Dass es in Abbildung 5.23(a) – der Darstellung des symmetrischen Anteils (der bekannten Asymmetrie) – nahe  $|eV_{det}| \approx |\Delta|$  zu einer scheinbaren Abnahme des nichtlokalen Leitwerts kommt, lässt sich wahrscheinlich darauf zurückführen, dass das abzuziehende Signal an dieser Stelle gerade seinen, nur durch wenige Messpunkte charakterisierten, Maximalwert hat – siehe Teilbild (b) – und es deshalb rechnerisch schwer ist, den deutlich kleineren Beitrag vom größeren zu trennen. Sieht man von dieser Schwäche der numerischen Zerlegung ab, kann man feststellen, dass die in diesem Kapitel bisher beschriebenen Asymmetrien nicht von einer zusätzlichen Spannung am Detektorkontakt beeinflusst werden. Der Ursprung des zweiten überlagerten Signals – Abbildung 5.23(b) – ist bisher noch nicht geklärt, wobei es interessanterweise gerade dann zu einer sehr hohen Leitwertamplitude kommt, wenn für beide Spannungen gleichzeitig in etwa die Gap-Energie erreicht wird. Das gefundene vier-Quadrantenverhalten (vergleiche Abbildung 5.24) in Kombination mit der Tatsache, dass wir dieses zusätz-


Abbildung 5.23: Nach Symmetrieeigenschaften numerisch zerlegte Beiträge zum nichtlokalen differentiellen Leitwert  $dV_{det}/dV_{inj}$  aus Teilbild 5.21(b): (a) zu  $V_{det}$  achsensymmetrischer Beitrag, (b) punktsymmetrischer Beitrag. Die durchgezogene Linie zeigt den Verlauf der Gap-Reduktion aufgrund des Energie-Nichtgleichgewichts.

liche Signal auch in Kupfer-Aluminium-Tunnelkontakten beobachtet haben, legt die Vermutung nahe, dass es sich um einen Effekt der dynamischen Coulomb-Blockade [91] handeln könnte. Die genaue Untersuchung dieses Signals wird genauso wie die detaillierte Untersuchung des Energie-Nichtgleichgewichts Gegenstand zukünftiger Experimente sein.



Abbildung 5.24: Illustration des von Golubev et al. [91] als Konsequenz dynamischer Coulomb-Blockade vorhergesagten vier-Quadrantenverhaltens des nichtlokalen differentiellen Leitwerts einer Normalleiter/Supraleiter-Hybridstruktur.

#### 6 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden verschiedene Messungen des lokalen und nichtlokalen Transports in nanostrukturierten Supraleiter-Ferromagnet-Hybridstrukturen vorgestellt und mit analogen Messungen in Supraleiter/Normalleiter-Hybridstrukturen ähnlicher Geometrie verglichen.

In den lokalen Leitwertspektren haben wir klare Belege für gebundene Andreev-Oberflächenzustände an spinaktiven Grenzflächen zwischen Supraleitern und Ferromagneten gefunden, und gezeigt, dass diese Zustände es ermöglichen die grenzflächenabhängige Phasenverschiebung zwischen den beiden Spinbändern, den Spin-Mischwinkel  $\theta_S$ , zu bestimmen. Des Weiteren konnten wir zeigen, dass für ultradünne Tunnelbarrieren im Einklang mit den theoretischen Vorhersagen Spin-Mischwinkel in der Größenordnung von  $\pi$  auftreten. Diese Beobachtung legt nahe, dass es zukünftig mit Hilfe verbesserter Hybrid-Strukturen möglich werden könnte, kontrolliert große Phasenverschiebungen zu erzeugen.

Bei den Betrachtungen des nichtlokalen Transports sind wir zuerst der Fragestellung nachgegangen, wie sich das Ladungs-Nichtgleichgewichtssignal für tiefe Temperaturen  $(T \ll T_C)$  verhält. Hierzu haben wir die Relaxationslänge des Ladungs-Nichtgleichgewichts  $\lambda_{Q^*}$  in mehreren Supraleiter/Normalleiter-Hybridstrukturen als Funktion der angelegten Bias-Spannung V, des Magnetfelds B und der Temperatur T bestimmt. Wie vorhergesagt sind mehrere Relaxationsprozesse am Abklingen des Ladungs-Nichtgleichgewichts beteiligt. So beobachtet man als Funktion der angelegten Spannung einen Übergang von überwiegend elastischer Streuung - in der Nähe der Bandlücke zu einem zweistufigen inelastischen Relaxationsprozess für höhere Bias-Spannungen. Die Magnetfeldabhängigkeit der Relaxationslänge entspricht mit bemerkenswerter Genauigkeit den theoretischen Voraussagen und unterscheidet sich klar von den bekannten Ergebnissen für das Temperaturregime nahe der kritischen Temperatur. Anders als im Fall der signifikanten Magnetfeldabhängigkeit ist für Temperaturen bis etwa 0.5 K praktisch kein Einfluss der Temperatur auf die Relaxationslänge  $\lambda_{Q^*}$  zu erkennen.

Den Abschluss der vorgestellten Arbeit bilden die Messungen des nichtlokalen Transports in Ferromagnet-Supraleiter-Hybridstrukturen. Neben den symmetrischen Signalbeiträgen, die für Bias-Spannungen größer  $\Delta/e$  aufgrund der Injektion von Quasiteilchen zustande kommen, haben wir asymmetrische Leitwertsignaturen beobachtet, die nahe des Gaps auftreten und eine ungewöhnliche Abhängigkeit von der Magnetisierung der Eisenkontakte und vom angelegten Magnetfeld aufweisen. So konnte für B = 0je nach Magnetisierungskonfiguration der beiden an der Messung beteiligten Eisenkontakte (parallel/anti-parallel) ein unterschiedlicher Signalverlauf gefunden werden. Qualitativ stimmen unsere Beobachtungen mit den Vorhersagen von Kalenkov und Zaikin [21] überein, die sich auf das Wechselspiel von nichtlokaler Andreev-Reflexion und Elektronen-Kotunneln an Grenzflächen mit endlichem Spin-Mischwinkel beziehen. Das Verhalten der asymmetrischen Leitwertsignaturen im angelegten magnetischen Feld ist kontra-intuitiv, da die Signalamplitude mit ansteigendem Feld zunächst zunimmt und erst nach Überschreiten eines Maximalwerts abfällt, während sich gleichzeitig der betreffende Peak verbreitert – beziehungsweise sogar in zwei zueinander verschobene Beiträge aufspaltet. Bemerkenswert ist, dass die asymmetrischen Signalbeiträge in nichtlokaler Geometrie von den beiden – in den lokalen Messungen deutlich zu erkennenden – Zeeman-Bändern der spinaufgespaltenen Zustandsdichte begrenzt werden. Das zur Zeit wahrscheinlichste Erklärungsmodell für diese Asymmetrien besteht in einer Aufspaltung der supraleitenden Zustandsdichte aufgrund des Zeeman-Effekts, die durch die damit zur Verfügung stehenden spinabhängigen Zustände dazu führt, dass die Wahrscheinlichkeit für Elektronentransfer und nichtlokale Andreev-Reflexion erhöht wird. Von besonderer Bedeutung ist die Beobachtung der großen Relaxationslänge dieses Signals (einige  $\mu$ m) und die damit verbundene Frage nach den verantwortlichen Relaxationsmechanismen, die ohne tragfähige theoretische Modelle nicht abschließend beantwortet werden kann.

Da die hier präsentierten Ergebnisse zu weitergehenden Fragestellungen führen, soll nun noch ein kurzer Ausblick gegeben werden, welche fortführenden Experimente für die nahe Zukunft in der Arbeitsgruppe "Physikalische Eigenschaften von Nanostrukturen" geplant sind. In Bezug auf die gebundenen Andreev-Oberflächenzustände soll durch den Einsatz eines ferromagnetischen Isolators geklärt werden, ob sich zum einen die Erzeugung der gebundenen Zustände räumlich von ihrer Detektion trennen lässt, und zum anderen, ob man durch epitaktisch gewachsene Grenzflächen, das Auftreten klar reproduzierbarer Spin-Mischwinkel erreichen kann. Ein weiterer Schwerpunkt der momentanen Bemühungen besteht darin, Strukturen herzustellen, bei denen an derselben Probe sowohl normalleitende-, als auch ferromagnetische Tunnelkontakte zur Verfügung stehen. Dies würde es durch Differenzmessungen ermöglichen eindeutige Aussagen über das Ladungs-Nichtgleichgewichtssignal, beziehungsweise das Spindiffusionssignal in Supraleiter-Ferromagnet-Hybridstrukturen zu treffen, da man dann diese beiden Beiträge messtechnisch trennen könnte. Ein anderer Schwerpunkt besteht darin, den Effekt der nichtlokalen Andreev-Reflexion zu nutzen, um den Ordnungsparameter des unkonventionellen Supraleiters  $Sr_2RuO_4$  zu untersuchen. Überdies sollen in Kürze die in Kapitel 5.4 kurz angesprochenen Untersuchungen zum Einfluss der Dynamischen Coulomb Blockade auf den nichtlokalen Transport in Supraleiter/Normalleiter-Hybridstrukturen abgeschlossen werden.

#### Literatur

- [1] P. Recher and D. Loss. Creation of nonlocal spin-entangled electrons via Andreev tunneling, Coulomb blockade, and resonant transport. J. Supercond. 15(2002), 49
- [2] N. M. Chtchelkatchev, G. Blatter, G. B. Lesovik, and T. Martin. Bell inequalities and entanglement in solid-state devices. Phys. Rev. B 66(2002), 161320
- [3] Cristina Bena, Smitha Vishveshwara, Leon Balents, and Matthew P. A. Fisher. Quantum Entanglement in Carbon Nanotubes. Phys. Rev. Lett. 89(2002), 037901
- [4] Elsa Prada and Fernando Sols. Entangled electron current through finite size normal-superconductor tunneling structures. Eur. Phys. J. B 40(2004), 379
- [5] G. Burkard. Spin-entangled electrons in solid-state systems. J. Phys.: Condens. Matter 19(2007), 233202
- [6] D. Beckmann, H. B. Weber, and H. v. Löhneysen. Evidence for crossed Andreev reflection in superconductor-ferromagnet hybrid structures. Phys. Rev. Lett. 93(2004), 197003
- [7] J. M. Byers and M. E. Flatté. Probing Spatial Correlations with Nanoscale Two-Contact Tunneling. Phys. Rev. Lett. 74(1995), 306
- [8] Guy Deutscher and Denis Feinberg. coupling superconducting-ferromagnetic point contacts by andreev reflection. Appl. Phys. Lett. **76**(2000), 487
- [9] D. Beckmann and H. v. Löhneysen. Negative four-terminal resistance as a probe of crossed Andreev reflection. Appl. Phys. A 89(2007), 603
- [10] S. Russo, M. Kroug, T. M. Klapwijk, and A. F. Morpurgo. Experimental Observation of Bias-Dependent Nonlocal Andreev Reflection. Phys. Rev. Lett. 95(2005), 027002
- [11] P. Cadden-Zimansky and V. Chandrasekhar. Nonlocal Correlations in Normal-Metal Superconducting Systems. Phys. Rev. Lett. 97(2006), 237003
- [12] P. Cadden-Zimansky, Z. Jiang, and V. Chandrasekhar. Charge imbalance, crossed Andreev reflection and elastic co-tunnelling in ferromagnet/superconductor/normal-metal structures. New J. Phys. 9(2007), 116
- [13] P. Cadden-Zimansky, J. Wei, and V. Chandrasekhar. Cooper-pair-mediated coherence between two normal metals. Nature Physics 5(2009), 393
- [14] Itay Asulin, Ofer Yuli, Gad Koren, and Oded Millo. Evidence for crossed Andreev reflections in bilayers of (100) YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> and the itinerant ferromagnet SrRuO<sub>3</sub>. Phys. Rev. B **74**(2006), 092501

- [15] A. Kleine, A. Baumgartner, J. Trbovic, and C. Schönenberger. Contact resistance dependence of crossed Andreev reflection. Europhys. Lett. 87(2009), 27011
- [16] L. Hofstetter, S. Csonka, J. Nygård, and C. Schönenberger. Cooper pair splitter realized in a two-quantum-dot Y-junction. Nature 461(2009), 960
- [17] L. G. Herrmann, F. Portier, P. Roche, A. Levy Yeyati, T. Kontos, and C. Strunk. Carbon Nanotubes as Cooper-Pair Beam Splitters. Phys. Rev. Lett. 104(2010), 026801
- [18] J. Brauer, F. Hübler, M. Smetanin, D. Beckmann, and H. v. Löhneysen. Nonlocal transport in normal-metal/superconductor hybrid structures: Role of interference and interaction. Phys. Rev. B 81(2010), 024515
- [19] A. Levy Yeyati, F. S. Bergeret, A. Martin-Rodero, and T. M. Klapwijk. *Entangled Andreev pairs and collective excitations in nanoscale superconductors*. Nature Physics 3(2007), 455
- [20] Georgo Metalidis, Matthias Eschrig, Roland Grein, and Gerd Schön. Nonlocal conductance via overlapping Andreev bound states in ferromagnet-superconductor heterostructures. Phys. Rev. B 82(2010), 180503
- [21] Mikhail S. Kalenkov and Andrei D. Zaikin. Crossed Andreev reflection at spinactive interfaces. Phys. Rev. B 76(2007), 224506
- [22] D. S. Golubev, M. S. Kalenkov, and A. D. Zaikin. Crossed Andreev reflection and charge imbalance in diffusive NSN structures. Phys. Rev. Lett. 103(2009), 067006
- [23] J. Brauer. Lokaler und nichtlokaler Transport in Supraleiter-Normalleiter Hybridstrukturen. Dissertation (2009)
- [24] J. Clarke. Experimental Observation of Pair-Quasiparticle Potential Difference in Nonequilibrium Superconductors. Phys. Rev. Lett. 28(1972), 1363
- [25] M. Tinkham and J. Clarke. Theory of Pair-Quasiparticle Potential Difference in Nonequilibrium Superconductors. Phys. Rev. Lett. 28(1972), 1366
- [26] D. N. Langenberg and A. I. Larkin. Nonequilibrium Superconductivity (North-Holland, 1986)
- [27] M. Johnson. Spin coupled resistance observed in ferromagnet-superconductorferromagnet trilayers. Appl. Phys. Lett. 65(1994), 1460
- [28] S. O. Valenzuela and M. Tinkham. Direct electronic measurement of the spin Hall effect. Nature 442(2006), 176
- [29] N. Poli, J. P. Morten, M. Urech, Arne Brataas, D. B. Haviland, and V. Korenivski. Spin Injection and Relaxation in a Mesoscopic Superconductor. Phys. Rev. Lett. 100(2008), 136601

- [30] P. S. Luo, T. Crozes, B. Gilles, S. Rajauria, B. Pannetier, and H. Courtois. Spin-value effect of spin-accumulation resistance in a double ferromagnet/superconductor junction. Phys. Rev. B 79(2009), 140508(R)
- [31] R. Yagi. Charge imbalance observed in voltage-biased superconductor-normal tunnel junctions. Phys. Rev. B 73(2006), 134507
- [32] K. Tsuboi and R. Yagi. Charge Imbalance Relaxation Due to Pair Breaking Perturbation by Magnetic Field. J. Phys. Soc. Jpn. 79(2010), 013704
- [33] A. Kleine, A. Baumgartner, J. Trbovic, D. S. Golubev, A. D. Zaikin, and C. Schönenberger. Magnetic field and contact resistance dependence of non-local charge imbalance. Nanotechnology 21(2010), 274002
- [34] K. Arutyunov, H.-P. Auraneva, and A. Vasenko. Spatially resolved measurement of nonequilibrium quasiparticle relaxation in superconducting Al. Phys. Rev. B 83(2011), 4
- [35] Mark Johnson and R. H. Silsbee. interfacial charge-spin coupling: injection and detection of spin magnetization in metals. Phys. Rev. Lett. 55(1985), 1790
- [36] T. Valet and A. Fert. Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers. Phys. Rev. B 48(1993), 7099
- [37] F. J. Jedema, H. B. Heersche, A. T. Filip, J. J. A. Baselmans, and B. J. van Wees. electrical detection of spin precession in a metallic mesoscopic spin valve. Nature 416(2002), 713
- [38] F. J. Jedema, M. S. Nijboer, A. T. Filip, and B. J. van Wees. spin injection and spin accumulation in all-metal mesoscopic spin valves. Phys. Rev. B 67(2003), 085319
- [39] R. S. Keizer, S. T. B. Goennenwein, T. M. Klapwijk, G. Miao, G. Xiao, and A. Gupta. A spin triplet supercurrent through the half-metallic ferromagnet CrO2. Nature 439(2006), 825
- [40] F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov. Long-Range Proximity Effects in Superconductor-Ferromagnet Structures. Phys. Rev. Lett. 86(2001), 4096
- [41] M. Eschrig, J. Kopu, J. C. Cuevas, and G. Schön. Theory of Half-Metal/Superconductor Heterostructures. Phys. Rev. Lett. 90(2003), 137003
- [42] F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov. Odd triplet superconductivity and related phenomena in superconductor-ferromagnet structures. Rev. Mod. Phys. 77(2005), 1321
- [43] A. I. Buzdin. Proximity effects in superconductor-ferromagnet heterostructures. Rev. Mod. Phys. 77(2005), 935

- [44] Trupti S. Khaire, Mazin A. Khasawneh, W. P. Pratt, and Norman O. Birge. Observation of Spin-Triplet Superconductivity in Co-Based Josephson Junctions. Phys. Rev. Lett. 104(2010), 137002
- [45] A. Millis, D. Rainer, and J. A. Sauls. Quasiclassical theory of superconductivity near magnetically active interfaces. Phys. Rev. B 38(1988), 4504
- [46] M. Eschrig and T. Löfwander. Triplet supercurrents in clean and disordered halfmetallic ferromagnets. Nature Phys. 4(2008), 138
- [47] Guy Deutscher. Andreev-Saint-James reflections: A probe of cuprate superconductors. Rev. Mod. Phys. 77(2005), 109
- [48] Yukio Tanaka and Satoshi Kashiwaya. Theory of Tunneling Spectroscopy of d-Wave Superconductors. Phys. Rev. Lett. 74(1995), 3451
- [49] Satoshi Kashiwaya, Yukio Tanaka, Masao Koyanagi, Hiroshi Takashima, and Koji Kajimura. Origin of zero-bias conductance peaks in high-Tc superconductors. Phys. Rev. B 51(1995), 1350
- [50] Masashi Yamashiro, Yukio Tanaka, and Satoshi Kashiwaya. Theory of tunneling spectroscopy in superconducting  $Sr_2RuO_4$ . Phys. Rev. B 56(1997), 7847
- [51] F. Laube, G. Goll, H. v. Löhneysen, M. Fogelström, and F. Lichtenberg. Spin-Triplet Superconductivity in Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> Probed by Andreev Reflection. Phys. Rev. Lett. 84(2000), 1595
- [52] Erhai Zhao, Tomas Löfwander, and J. A. Sauls. Nonequilibrium superconductivity near spin-active interfaces. Phys. Rev. B 70(2004), 134510
- [53] D. Beckmann. Electronic Transport Properties of Superconductor-Ferromagnet Hybrid Structures. Chapter 9, CFN Lectures on Functional Nanostructures - Volume 2, Springer Verlag (2011)
- [54] M. Eschrig. Spin-polarized supercurrents for spintronics. Physics Today (January 2011)
- [55] D. Beckmann. Electronic Transport Properties of Superconductor Ferromagnet Hybrid Structures. Habilitationsschrift (2009)
- [56] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of Superconductivity. Phys. Rev. 108(1957), 1175
- [57] P. M. Tedrow and R. Meservey. Spin-Dependent Tunneling into Ferromagnetic Nickel. Phys. Rev. Lett. 26(1971), 192
- [58] A. A. Abrikosov and L. P. Gor'kov. Zh. Eksp. Teor. Fiz. **39**(1960), 1781
- [59] Kazumi Maki. Pauli Paramagnetism and Superconducting State. II. Prog. Theor. Phys. 32(1964), 29

- [60] G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk. Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions: Excess current, charge imbalance, and supercurrent conversion. Phys. Rev. B 25(1982), 4515
- [61] Roland Grein, Tomas Löfwander, Georgo Metalidis, and Matthias Eschrig. Theory of superconductor-ferromagnet point-contact spectra: The case of strong spin polarization. Phys. Rev. B 81(2010), 094508
- [62] D. Feinberg. Andreev scattering and cotunneling between two superconductornormal metal interfaces: the dirty limit. Eur. Phys. J. B 36(2003), 419
- [63] M. Tinkham. Tunneling Generation, Relaxation, and Tunneling Detection of Hole-Electron Imbalance in Superconductors. Phys. Rev. B 6(1972), 1747
- [64] C. J. Pethick and H. Smith. Relaxation and collective motion in superconductors: a two-fluid description. Ann. Phys. 119(1979), 133
- [65] A. Schmid and G. Schön. Linearized kinetic equations and relaxation processes of a superconductor near Tc. J. Low Temp. Phys. 20(1975), 207
- [66] M. Tinkham. Introduction to Superconductivity (McGraw-Hill, New York, 1975)
- [67] O. Entin-Wohlman and R. Orbach. On the microscopic and Boltzmann equation approaches to nonequilibrium superconductors. Ann. Phys. (N.Y.) 122(1979), 64
- [68] J. N. Ullom, P. A. Fisher, and M. Nahum. Energy-dependent quasiparticle group velocity in a superconductor. Phys. Rev. B 58(1998), 8225
- [69] S. B. Kaplan, C. C. Chi, D. N. Langenberg, J. J. Chang, S. Jafarey, and D. J. Scalapino. Quasiparticle and phonon lifetimes in superconductors. Phys. Rev. B 14(1976), 4854
- [70] C. C. Chi and John Clarke. Quasiparticle branch mixing rates in superconducting aluminum. Phys. Rev. B 19(1979), 4495
- [71] Thomas R. Lemberger and John Clarke. Charge-imbalance relaxation in the presence of a pair-breaking interaction in superconducting AlEr films. Phys. Rev. B 23(1981), 1088
- [72] Thomas R. Lemberger and John Clarke. Charge-imbalance relaxation in the presence of a pair-breaking supercurrent in dirty, superconducting Al films. Phys. Rev. B 23(1981), 1100
- [73] F. Hübler, J. Camirand Lemyre, D. Beckmann, and H. v. Löhneysen. Charge imbalance in superconductors in the low-temperature limit. Phys. Rev. B 81(2010), 184524
- [74] F. Hübler. Transportmessungen in Supraleiter-Ferromagnet Hybridstrukturen. Diplomarbeit (2008)

- [75] F. Hübler, M. J. Wolf, D. Beckmann, and H. v. Löhneysen. Observation of Andreev bound states at spin-active interfaces. arXiv:1012.3867 (2010)
- [76] Kazumi Maki. The Behavior of Superconducting Thin Films in the Presence of Magnetic Fields and Currents. Prog. Theor. Phys. 31(1964), 731
- [77] R. Meservey and P. M. Tedrow. Measurements of the Kinetic Inductance of Superconducting Linear Structures. J. Appl. Phys. 40(1969), 2028
- [78] M. Münzenberg and J. S. Moodera. Superconductor-ferromagnet tunneling measurements indicate sp -spin and d -spin currents. Phys. Rev. B 70(2004), 060402
- [79] S. Skalski, O. Betbeder-Matibet, and P. R. Weiss. Properties of Superconducting Alloys Containing Paramagnetic Impurities. Phys. Rev. 136(1964), A1500
- [80] R. Meservey, P. M. Tedrow, and Ronald C. Bruno. Tunneling measurements on spin-paired superconductors with spin-orbit scattering. Phys. Rev. B 11(1975), 4224
- [81] D. Beckmann. private communication
- [82] Thomas R. Lemberger. Theory of the Low-Voltage Impedance of Superconductor-Insulator-Normal Metal Tunnel Junctions. Phys. Rev. Lett. 52(1984), 1029
- [83] S. N. Artemenko, A. F. Volkov, and A. V. Zaitsev. On the contribution of the superconductor to the resistance of a superconductor-normal metal system. J. Low Temp. Phys. 30(1978), 487
- [84] Yositake Takane and Yasushi Nagato. Magnetic Field Effect on Charge Imbalance Conversion in Superconducting Wires. J. Phys. Soc. Jpn. 77(2008), 093713
- [85] Yositake Takane. Charge Imbalance Relaxation in Superconductors at Low Temperatures. J. Phys. Soc. Jpn. 75(2006), 023706
- [86] C. C. Chi and John Clarke. Addendum to "Quasiparticle branch mixing rates in superconducting aluminum". Phys. Rev. B 21(1980), 333
- [87] G. Metalidis, R. Grein, and M. Eschrig. private communication
- [88] Hyunsoo Yang, See-Hun Yang, Saburo Takahashi, Sadamichi Maekawa, and Stuart S. P. Parkin. Extremely long quasiparticle spin lifetimes in superconducting aluminium using MgO tunnel spin injectors. Nature Mat. 9(2010), 586
- [89] Y. Takane. Influence of Charge and Energy Imbalance on the Tunneling Current through a Superconductor-Normal Metal Junction. J. Phys. Soc. Jpn. 76(2007), 043701
- [90] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. Solid State Physics (W. B. Saunders Company, 1976)

[91] Dmitri S. Golubev and Andrei D. Zaikin. Shot noise and Coulomb effects on nonlocal electron transport in normal-metal/superconductor/normal-metal heterostructures. Phys. Rev. B 82(2010), 134508

# A Zusatzinformationen

### A.1 Benutzte Probenzuordnung

Proben-Pseudonym	Prozessierungsname	Messzeitpunkt
Cu-1	J2-C2-S3	Aug. 2009
Cu-2	J2-A4-S1	Sep. 2009
Cu-3	X1-A7-S1	Sep. 2009
Fe-1	V2-D1-S2	Nov. 2009
Fe-2	V2-D1-S3	Dez. 2009
Fe-3	FH04-B2-S2	Feb. 2009
Fe-4	H1-E4-S3	Juni 2009
Fe-5	MW03-A1-S1	Mai 2010
Fe-6	MW04-F1-S2	Juli 2010
Fe-7	MW04-F4-S1	Juli 2010
Fe-8	MW15-T4-S1	Juli 2011
Fe-9	MW04-F4-S3	Juli 2010
Fe-10	MW14-D-S2	Feb 2011

 Tabelle 1.1: Zuordnung von Proben-Pseudonym und Prozessierungsname.

# Danksagung

Zum Gelingen dieser Arbeit haben unzählige Kollegen, Freunde und Bekannte beigetragen.

An erster Stelle möchte ich mich bei Herrn von Löhneysen dafür bedanken, dass er es mir ermöglicht hat auf diesem interessanten Themengebiet zu forschen, und dass es für ihn selbstverständlich war, mich über den Tellerrand des ursprünglich geplanten Projekts hinausschauen zu lassen. Herrn Schön möchte ich dafür danken, dass er bereit war, das Korreferat für diese Arbeit zu übernehmen.

Mein größter Dank jedoch gilt Detlef Beckmann, der mich während der letzten Jahre betreut und unterstützt hat. Ihm möchte ich nicht nur für seine überaus kompetente fachliche Hilfe danken, sondern auch dafür, dass er meine zahlreichen Ideen und Anträge mitgetragen hat und mir so die Möglichkeit gab immer wieder Neuland zu erkunden.

Neben Detlef Beckmann und Herrn von Löhneysen, möchte ich auch Jakob Brauer und Michael Wolf für die sehr angenehme und fruchtbare Atmosphäre innerhalb unserer Arbeitsgruppe danken. Des Weiteren möchte ich mich bei Julien Camirand Lemyre bedanken, der mit uns im Rahmen seines Gastaufenthalts an der Untersuchung des Ladungs-Nichtgleichgewichts gearbeitet hat. Thorsten Scherer, Di Wang und Maxim Smetanin danke ich für die Charakterisierung unserer Filmsyteme mittels Transmissionselektronenmikroskopie und Röntgenanalyse.

Wie bei den meisten experimentellen Arbeiten waren es jedoch auch bei mir nicht nur die Kollegen der direkten Arbeitsgruppe die meinen Laboralltag geprägt haben. Ich möchte mich deshalb bei all den netten Menschen des INTs bedanken, die für mich die Durchführung dieser Arbeit zu einer angenehmen Erfahrung gemacht haben. Außerdem möchte ich den Postdocs und Mitdoktoranden an PI, IFP und TFP für den regen Gedankenaustausch und die schönen gemeinsamen Tagungen und Seminare danken.

Yoshi Maeno und seiner Arbeitsgruppe, danke ich für die Gastfreundschaft und gute Zusammenarbeit während meines Aufenthalts in Japan. Dem Deutschen Akademischen Auslandsdienst, dem Karlsruher House of Young Scientists und der Kyoto Universität danke ich für die Unterstützung durch ihre Fördermaßnahmen.