

# Спиновая инжекция и эффект гигантской блокировки туннельного тока в гетероструктурах ферромагнетик–сверхпроводник

Э.М. Руденко, И.В. Короташ, Ю.В. Кудрявцев, А.А. Краковный

*Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины  
бульвар Академика Вернадского, 36, г. Киев-142, 03680, ГСП, Украина  
E-mail: emrud@imp.kiev.ua*

М.А. Белоголовский, И.В. Бойло

*Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины  
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина  
E-mail: belogolovskii@rambler.ru*

Статья поступила в редакцию 12 июня 2009 г.

При малых напряжениях смещения в туннельном контакте сверхпроводящего свинца с ферромагнитным сплавом Гейслера  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , в котором величина спиновой поляризации электронов проводимости меняется в широких пределах, обнаружен гигантский рост дифференциального сопротивления. Данный эффект связывается с возникновением неравновесного состояния в пленке свинца вследствие спиновой инжекции в сверхпроводник.

При малих напругах зміщення на тунельному контакті надпровідного свинцю з феромагнітним сплавом Гейслера  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , в якому величина спінової поляризації електронів провідності змінюється в широких межах, виявлено гігантське зростання диференційного опору. Даний ефект пов'язується з виникненням нерівноважного стану у плівці свинцю внаслідок спінової інжекції в надпровідник.

PACS: 72.25.–b Спин-поляризованный транспорт;  
74.78.Fk Многослойники, суперрешетки, гетероструктуры.

Ключевые слова: ферромагнит, сверхпроводник, гетероструктуры, спиновая релаксация, электронное туннелирование.

Исследованию спин-поляризованного транспорта в контактах ферромагнетиков (F) и сверхпроводников (S) в последние годы уделяется большое внимание (см. обзор [1]). Однако ряд вопросов, связанных, главным образом, с магнитными корреляциями в сверхпроводнике вблизи F–S интерфейса в равновесном [2] и неравновесном [3] состояниях остаются нерешенными, а результаты экспериментов по спиновой инжекции в сверхпроводник — противоречивыми. Например, при исследовании магнитотранспортных свойств F–S–F систем в работе [4] обнаружено возрастание сопротивления в состоянии с параллельными намагниченностями ферромагнитных слоев по сравнению с антипараллельной конфигурацией, а в [5] наблюдалось противоположное поведение. Противоречивые результаты (см. [6] и ссылки в ней) получены и относительно влияния сверхпроводящего перехода на характерную длину

спиновой диффузии  $l_{sf} = \sqrt{D\tau_{sf}}$ , где  $D$  — коэффициент диффузии,  $\tau_{sf}$  — время переворота спина. Заметим, что, согласно теории [7], величина  $l_{sf}$  в S-слое и ее поведение с изменением температуры зависят от того, какой из механизмов спиновой релаксации доминирует в данном сверхпроводнике: спин-орбитальное взаимодействие или рассеяние на магнитных примесях. Влияние первого мало меняется при переходе из нормального в сверхпроводящее состояние [3], и в этом случае величина  $\tau_{sf}$  определяется фоновым спектром и растет при уменьшении температуры и энергии электрона [8]. Наличие же даже небольших концентраций магнитных примесей существенно влияет на энергетическую щель сверхпроводника  $\Delta$ , что при очень низких температурах и энергиях должно приводить к уменьшению величины  $\tau_{sf}$  [7]. Отметим, что в большинстве работ исследовались именно F–S–F

системы, для которых существенной, с точки зрения теории [4], является идентичность контактных сопротивлений F-S и S-F переходов, что вряд ли достижимо в эксперименте.

В данной работе мы покажем, что эффективное исследование явления спиновой инжекции в сверхпроводниках возможно с помощью более простой и хорошо контролируемой геометрии F-S бислоев, разделенных туннельным барьером (I). Для решения этой задачи было выполнено следующее: 1) для значительного повышения эффективности спиновой инжекции квазичастиц [9] на поверхности несверхпроводящих пленок созданы низкоомные туннельные барьеры (I); 2) чтобы избежать существенного уменьшения длины  $l_{sf}$  вследствие возможного присутствия в сверхпроводнике магнитных примесей, ограничились температурами  $\approx 0,6T_c$  ( $T_c$  — критическая температура сверхпроводника); 3) для исключения подавления энергетической щели  $\Delta$  в S напряжения  $V$ , приложенные к F-I-S контактам, были порядка 0,1 мВ; 4) толщина пленок S (Pb) около 100 нм, при которой, согласно приведенным ниже оценкам, при  $V \approx 0,1$  мВ выполняется необходимое для создания спиновой неравновесности условие [4]  $\tau_E < \tau_T < \tau_{sf}$  ( $\tau_E$  — время энергетической релаксации,  $\tau_T$  — промежуток времени между двумя последовательными процессами туннелирования электронов); 5) в качестве F-слоя использовались пленки сплава Гейслера  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , в котором в зависимости от режимов получения величина спиновой поляризации  $P$  электронов проводимости может меняться от 0 до 100% [10,11]; 6) для сравнительного анализа выполнены контрольные измерения с заменой F-слоя на немагнитный нормальный (N) металлический электрод. В качестве S-электрода мы выбрали свинец (Pb), потому что он, во-первых, является хорошо изученным сверхпроводником с  $s$ -типом симметрии параметра порядка; во-вторых, имеет  $T_c = 7,2$  К, что позволяет получить высокое разрешение сверхпроводящих параметров при температуре жидкого гелия (4,2 К); в-третьих, не диффундирует через окисные барьеры, так как имеет довольно большой ионный радиус; в-четвертых, в достаточной степени химически инертен, поэтому не реагирует на адсорбированные молекулы [12].

Для контрольных N-I-S структур зависимость туннельного тока  $I$  от  $V$  при  $eV$ , малых по сравнению с высотой потенциального барьера, определяется соотношением [12]

$$I(V) = C \int_{\Delta}^{\infty} dE_{\mathbf{k}} N_T(E_{\mathbf{k}}) [f(E_{\mathbf{k}} - eV) - f(E_{\mathbf{k}} + eV)], \quad (1)$$

$$\text{где } C = (eR_{NN})^{-1}, \quad R_{NN} = \left( \frac{4\pi e^2}{\hbar} |T|^2 N^{(1)}(0)N^{(2)}(0) \right)^{-1}$$

— сопротивление контакта в нормальном состоянии,  $T$  — туннельный матричный элемент,  $N^{(1)}(0)$  и

$N^{(2)}(0)$  — плотности электронных состояний на поверхностях Ферми электродов,  $e$  — заряд электрона,  $N_T(E_{\mathbf{k}}) = E_{\mathbf{k}} / |\varepsilon_{\mathbf{k}}|$ ,  $f(E_{\mathbf{k}})$  — функция Ферми-Дирака для электронных состояний с импульсом  $\mathbf{k}$  и энергией  $\varepsilon_{\mathbf{k}} = \sqrt{E_{\mathbf{k}}^2 - \Delta^2}$ . При малых напряжениях ( $V \ll \Delta/e$ ) зависимость (1) можно считать линейной, откуда получаем  $R_{NS} = R_{NN} / \chi(T)$ , где  $R_{NS} = \partial V / \partial I |_{V \rightarrow 0}$ , 
$$\chi(T) = 2 \int_{\Delta}^{\infty} N_T(E) (-\partial f(E) / \partial E) dE.$$

Для N-I-S контакта, если S — свинец, при температуре 4,2 К стандартная теория БКШ дает  $R_{NS} / R_{NN} \approx 6,5$  (рис. 1, штриховая линия), что хорошо согласуется с данными наших измерений для туннельного перехода Sn-I-Pb (кривая 1). Однако замена немагнитного олова на ферромагнетик привела к росту отношения  $R_{NS} / R_{NN}$  до 9 для пленок  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , осажденных на холодную подложку (кривая 2), и до 18 для пленок  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , осажденных на подогретую подложку (кривая 3). Максимальная величина отношения  $R_{NS} / R_{NN}$  для контактов  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ -I-Pb составила 110, если пленки  $\text{Co}_2\text{CrAl}$  получены с применением технологического отжига. Исследованию и интерпретации этого «гигантского» подавления туннельного тока в F-I-S контактах и посвящена данная работа.

Для дальнейшего анализа принципиально важна оценка характерных времен  $\tau_E$ ,  $\tau_T$  и  $\tau_{sf}$  для конкретных туннельных структур. Заметим, что равновесное распределение электронов по энергии (и по спину) будет успевать восстанавливаться в образце только в том случае, когда  $\tau_T > \tau_E (\tau_{sf})$ . При этом наличие электрона с избыточной энергией (либо спином) повлияет на процесс туннелирования следующего электрона лишь в том случае, если они окажутся на рас-

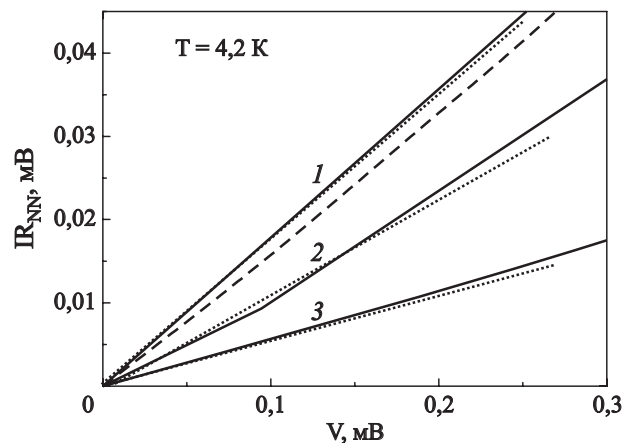


Рис. 1. Взаимосвязь  $IR_{NN}$  и напряжения  $V$  для туннельных контактов Sn-I-Pb (кривая 1) и  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ -I-Pb (кривые 2 и 3, объяснения в тексте) при 4,2 К. Штриховая линия — стандартный результат теории БКШ для N-I-Pb структуры при 4,2 К. Точечными линиями показаны касательные к характеристикам при нулевом напряжении.

стоянии менее  $l_E$  (либо  $l_{sf}$ ) друг от друга. Таким образом, для указанных релаксационных процессов величина искомого промежутка времени  $\tau_T$  между двумя последовательными процессами туннелирования электронов отличается и может быть рассчитана по формуле  $\tau_T^{(E, sf)} = e / (IS^{(E, sf)} / A)$ , где  $A$  — площадь туннельного перехода, в нашем случае равная  $4 \cdot 10^{-8} \text{ м}^2$ ,  $S^{(E, sf)} = l_{(E, sf)}^2$ .

Рассмотрим типичный N–I–S контакт Sn–I–Pb с немагнитным оловом в качестве инжектора ( $R_{NN} \approx 1 \text{ Ом}$ ). При 4,2 К в Pb  $\tau_E^{-1} \approx 10^{11} \text{ с}^{-1}$  [13], тогда длина энергетической релаксации  $l_E = (v_F l \tau_E / 3)^{1/2} \approx 10^{-7} \text{ м}$  ( $v_F \approx 10^6 \text{ м/с}$  — фермиевская скорость электронов в свинце,  $l \approx 10^{-8} \text{ м}$  — длина свободного пробега), и для  $V \sim 0,1 \text{ мВ}$  из данных рис. 1 находим  $\tau_T^{(E)} \approx 10^{-8} \text{ с}$ . Сравним с  $\tau_E = 10^{-11} \text{ с}$ , убеждаемся, что в промежутке между двумя последовательными процессами туннелирования электрона в контакте Sn–I–Pb в электронной подсистеме полностью восстанавливается равновесие по энергии.

Выполним подобные оценки для гетероструктуры  $\text{Co}_2\text{CrAl–I–Pb}$  F–I–S типа с  $R_{NS} / R_{NN} \approx 18$  и  $R_{NN} \approx 0,1 \text{ Ом}$  (рис. 1, кривая 3). В достаточно чистом Pb определяющим фактором при 4,2 К является спин-орбитальное взаимодействие, которое приводит к сильной энергетической зависимости  $\tau_{sf}$ . При  $V \sim 0,1 \text{ мВ}$  и температуре 4,2 К полагаем  $\tau_{sf}^{-1} \approx 10^8 \text{ с}^{-1}$  [14], тогда  $l_{sf} = (v_F l \tau_{sf} / 3)^{1/2} \approx 10^{-6} - 10^{-5} \text{ м}$  и  $\tau_T^{(sf)} \approx 10^{-12} \text{ с}$ , что намного меньше  $\tau_{sf} = 10^{-8} \text{ с}$ . Следовательно, в данном случае чрезвычайно важным является учет неравновесности в спиновой подсистеме. Подобный же анализ показывает, что внутри каждой спиновой подсистемы энергетическая релаксация происходит намного быстрее, чем появление нового протуннелировавшего электрона, и, следовательно, этим фактором (в отличие от спиновой аккумуляции) можно пренебречь.

Итак, при малых напряжениях смещения на контактах  $\text{Co}_2\text{CrAl–I–Pb}$  в пленке Pb имеем две неравновесные функции распределения для противоположных направлений электронного спина  $g_{k\uparrow}$  и  $g_{k\downarrow}$  [15], и формула (1) для туннельного зарядового тока теперь принимает вид

$$I(V) = \sum_s \left\{ C_s \int_{\Delta}^{\infty} dE_{\mathbf{k}} N_T(E_{\mathbf{k}}) \times [f_0(E_{\mathbf{k}} - eV) - g_{\mathbf{k},s} + g_{\mathbf{k},-s} - f_0(E_{\mathbf{k}} + eV)] \right\}, \quad (2)$$

где  $C_s = \frac{2\pi e}{\hbar} |T|^2 N_s^{(1)}(0) N_s^{(2)}(0)$ ,  $N_s^{(1)}(0)$  — плотности электронных состояний на поверхностях Ферми ферромагнетика, которые вследствие стонеровского расщепления электронных зон зависят от спинового индекса  $s$ , принимающего значения  $+1(\uparrow)$  и  $-1(\downarrow)$ . Соответственно, для спинового тока

$$I_s(V) = \sum_s \left\{ s C_s \int_{\Delta}^{\infty} dE_{\mathbf{k}} N_T(E_{\mathbf{k}}) \times [f_0(E_{\mathbf{k}} - eV) - g_{\mathbf{k},s} + g_{\mathbf{k},-s} - f_0(E_{\mathbf{k}} + eV)] \right\}. \quad (3)$$

Поскольку в нашем случае толщины пленок Pb ( $d \approx 10^{-7} \text{ м}$ ) намного меньше характерной длины  $l_{sf}$  ( $10^{-6} - 10^{-5} \text{ м}$ ), функции  $g_{\mathbf{k},\uparrow}$  и  $g_{\mathbf{k},\downarrow}$  являются однородными внутри сверхпроводника и могут описываться равновесными фермиевскими функциями  $f_0(E_{\mathbf{k}})$  с разными значениями химического потенциала для двух спиновых подсистем  $\mu_{\uparrow} = \mu_s + \delta\mu$  и  $\mu_{\downarrow} = \mu_s - \delta\mu$ . При  $V \ll \Delta/e$   $\delta\mu$  намного меньше величины энергетической щели  $\Delta$ , и спиновый ток может быть оценен как

$$I_s = (C_{\uparrow} - C_{\downarrow}) \chi(T) eV - (C_{\uparrow} + C_{\downarrow}) \chi(T) \delta\mu. \quad (4)$$

Поскольку  $d \ll l_{sf}$ , на пути от одной границы сверхпроводника до другой электрон не успевает перевернуть свой спин. Рассеяние с переворотом спина на самих границах пленки также ничтожно мало [16]. Следовательно, спиновые состояния электронов в пленке S практически не меняются. Учитывая также, что  $\tau_{sf} \gg \tau_T^{(sf)}$ , считаем, что стационарное состояние в сверхпроводнике возможно только при условии обращения в нуль спинового тока между F и S слоями. Из этого условия находим  $\delta\mu$ :

$$\delta\mu = \frac{C_{\uparrow} - C_{\downarrow}}{C_{\uparrow} + C_{\downarrow}} eV,$$

и величину туннельного тока  $I$  из F в S:

$$I = \frac{4C_{\uparrow}C_{\downarrow}}{C_{\uparrow} + C_{\downarrow}} \chi(T) eV.$$

Откуда

$$R_{NS}(T) = \frac{C_{\uparrow} + C_{\downarrow}}{4e\chi(T)C_{\uparrow}C_{\downarrow}}. \quad (5)$$

Сопротивление этого же контакта в нормальном состоянии можно определить исходя из асимптотического поведения его вольт-амперной характеристики при напряжениях смещения выше напряжений, соответствующих границе фононного спектра сверхпроводника (для Pb  $V > 10 \text{ мВ}$ ), и при температуре, несколько превышающей  $T_c$ . При этом следует учесть: 1) влияние спин-орбитального взаимодействия на спин инжектированного в металл электрона резко усиливается по мере увеличения его энергии и температуры образца [8] (это должно приводить к радикальному уменьшению времени  $\tau_{sf}$ ); 2) в нормальном состоянии (в отличие от сверхпроводящего) неспаренные электроны с одинаковыми направлениями спинов участвуют в процессе токопереноса. Поэтому мы предполагаем, что в этих условиях эффект спиновой блокировки исчезает и

для исследуемой гетероструктуры справедливо соотношение  $I = (C_{\uparrow} + C_{\downarrow})eV$ . В ферромагнитном электроде

$$P = \frac{N_{\uparrow}^{(1)}(0) - N_{\downarrow}^{(1)}(0)}{N_{\uparrow}^{(1)}(0) + N_{\downarrow}^{(1)}(0)} = \frac{C_{\uparrow} - C_{\downarrow}}{C_{\uparrow} + C_{\downarrow}}$$

и из формулы (5) получаем связь между отношением  $R_{NS} / R_{NN}$  и величиной спиновой поляризации  $P$  тока:

$$\frac{R_{NS}}{R_{NN}}(T) = \frac{1}{(1 - P^2)\chi(T)}. \quad (6)$$

На рис. 2 представлен график зависимости отношения  $R_{NS} / R_{NN}$  от величины  $P$  для туннельного контакта F–I–Pb сверхпроводящего свинца с ферромагнетиком при температуре 4,2 К. С помощью этой кривой находим, что величина спиновой поляризации  $P$  туннельного тока в контакте на основе пленки  $\text{Co}_2\text{CrAl}$  с  $R_{NS} / R_{NN} \approx 9$  (рис. 1, кривая 2) составляет 12%, для контакта с  $R_{NS} / R_{NN} \approx 18$  (рис. 1, кривая 3) — 80%, а для контакта со значением  $R_{NS} / R_{NN} \approx 110$  величина  $P$  достигает 96%.

Таким образом, в низкоомных туннельных F–I–S структурах нами впервые обнаружено отклонение величины отношения дифференциальных сопротивлений  $R_{NS} / R_{NN}$  от величины, предсказываемой стандартной теорией БКШ для туннельного N–I–S контакта. Наблюдаемый эффект может быть объяснен возникновением гигантской блокировки спин-поляризованного туннельного тока в гетероструктурах ферромагнетик–сверхпроводник. Это явление неравновесной сверхпроводимости использовано нами для определения величины спиновой поляризации тока из ферромагнитного инжектора.

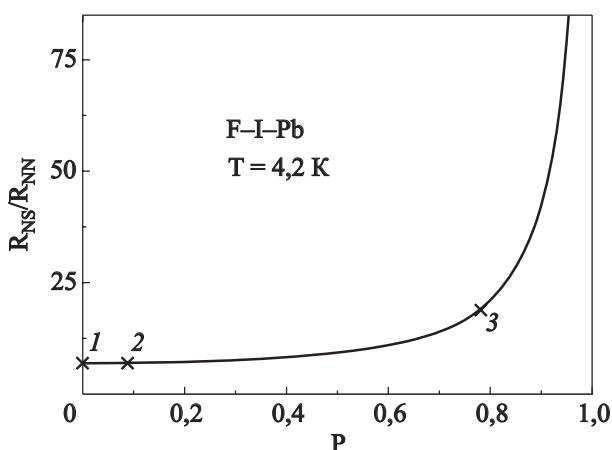


Рис. 2. Зависимость отношения  $R_{NS}/R_{NN}$  от величины спиновой поляризации  $P$  для туннельных контактов F–I–Pb при 4,2 К. Крестиками показаны значения  $P$  для туннельного Sn–I–Pb контакта (1) и гетероструктур с пленками  $\text{Co}_2\text{CrAl}$  (2 и 3). Указанные номера соответствуют номерам кривых на рис. 1.

1. A.I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 935 (2005); F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005).
2. V.N. Krivoruchko and E.A. Koshina, *Phys. Rev.* **B66**, 014521 (2002).
3. T. Yamashita, S. Takahashi, H. Imamura, and S. Maekawa, *Phys. Rev.* **B65**, 172509 (2002).
4. S. Takahashi, H. Imamura, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3911 (1999).
5. J. Zhu, X. Cheng, C. Boone, and I.N. Krivorotov, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 027004 (2009).
6. N. Poli, J.P. Morten, M. Urech, A. Brataas, D.B. Haviland, and V. Korenivski, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 136601 (2008).
7. J.P. Morten, A. Brataas, and W. Belzig, *Phys. Rev.* **B70**, 212508 (2004); J.P. Morten, A. Brataas, and W. Belzig, *Phys. Rev.* **B72**, 014510 (2005).
8. J. Fabian and S. Das Sarma, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1211 (1999).
9. E.I. Rashba, *Semicond. Sci. Technol.* **23**, 114015 (2008).
10. Y. Miura, K. Nagao, and M. Shirai, *Phys. Rev.* **B69**, 144413 (2004).
11. Y.V. Kudryavtsev, V.N. Uvarov, V.A. Oksenenko, Y.P. Lee, J.B. Kim, Y.H. Hyun, K.W. Kim, J.Y. Rhee, and J. Dubowik, *Phys. Rev.* **B77**, 195104 (2008).
12. Е.Л. Вольф, *Принципы электронной туннельной спектроскопии*. Перевод с англ., Наукова Думка, Киев (1990).
13. В.В. Шмидт, *Введение в физику сверхпроводников*, § 53, Изд. 2-е, испр. и доп., МЦНМО, Москва (2000).
14. I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
15. А.Г. Аронов, *Письма в ЖЭТФ* **24**, 37 (1976).
16. В.Ф. Гантмахер, И.Б. Левинсон, *Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках*, Наука, Москва (1984).

### Spin injection and giant blocking tunneling-current effect in ferromagnet–superconductor heterostructures

E.M. Rudenko, I.V. Korotash, Y.V. Kudryavtsev, A.A. Krakovny, M.A. Belogolovskii, and I.V. Boylo

At low bias a giant increase in resistance is observed in the tunnel junction, formed by superconducting lead and ferromagnetic Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ , where the spin polarization of conduction electrons changes over wide limits. The effect is responsible for by the nonequilibrium state appeared in the lead film due to spin injection into the superconductor.

PACS: **72.25.–b** Spin polarized transport; 74.78.Fk Multilayers, superlattices, heterostructures.

Keywords: ferromagnet, superconductor, heterostructures, spin relaxation, electron tunneling.