

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14397

研究課題名（和文）トポロジカル超伝導材料におけるスピン輸送現象

研究課題名（英文）Spin transport phenomena in topological superconducting materials

研究代表者

LUSTIKOVA JANA (Lustikova, Jana)

東北大学・先端スピントロニクス研究開発センター・助教

研究者番号：90847964

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、トポロジカルバンド構造を有する超伝導材料に注目し、電子のスピン軌道相互作用と超伝導の不散逸性の協奏の下でのスピン伝搬現象の実験的開拓を行った。トポロジカル超伝導材料と強磁性体の接合構造を有する測定デバイスを構築し、トポロジカル超伝導材料へのスピン注入及び検出実験を行った。強磁性体の接合を用いることで超伝導状態に特有の電気抵抗応答が観測され、その物理機構を検討した。また、結晶基板の磁化緩和や磁歪による薄膜高温超伝導銅酸化物の抵抗率変調を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

低散逸性と超高速の電子情報技術として、超伝導状態における電子スピン（電子の磁気的情報）の輸送現象を活かした「超伝導スピントロニクス」が期待されている。本研究では不散逸性を特徴とする超伝導とスピン電荷変換をもたらす強いスピン軌道相互作用が共存するトポロジカル超伝導材料からスピン輸送測定デバイスを構築し、その超伝導状態におけるスピン輸送の初期結果が得られ、新奇スピン輸送方式を開拓するための指針を与えるものである。また、今回新たに発見した結晶基板の磁性による高温超伝導薄膜の抵抗率変調に関して材料開発応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this research project, we focused on superconducting materials with topological band structures, and explored spin transport phenomena under the interplay of spin orbit interaction and dissipation-free environment. We constructed measurement devices with junctions of topological superconducting materials and ferromagnets, and performed spin injection and detection experiments. We found a resistance response specific to the superconducting state and discussed its origin. In addition, we demonstrated modulation of resistivity in thin film high-temperature superconductor cuprate films by magnetization relaxation and magnetostriction in the crystal substrate.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：超伝導 トポロジカル超伝導体 スピン流 スピントロニクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超伝導の不散逸性を利用した高効率のスピンドラフトは「超伝導スピントロニクス」の究極の目標と言える。これまで主に s 波(Nb, Al 等)超伝導体へのスピン注入の研究が行われてきた。超伝導準粒子(熱励起による超伝導秩序の乱れ)によるスピン伝搬現象が詳細に検討されてきた。また、s 波超伝導体において反対向きのスピンドラフトを組み合わせ通常スピンゼロ(スピン一重項)であるが、強磁性体の近接等によってスピン偏極のクーパ対(スピン三重項)の成分が限られた時間・長さスケールにおいて生成可能なことが示された。スピン三重項クーパ対の特徴を利用した超伝導スピン輸送系を構築するために天然なスピン三重項超伝導物質は望ましいが、スピン三重項超伝導が観測されている物質群をスピントロニクス素子と融合するには様々な技術的な問題がある(材料の希少性、高圧合成の困難性、放射性等が問題となる重い電子系材料)。

近年はトポロジカル物質の理論研究と実験研究が進み、そのエキゾチックな物性が明らかになってきた。トポロジカル材料において電子バンドがトポロジカルに非自明な構造を持ち、ノンゼロのトポロジカル不変量で記述される。真空(トポロジカル不変量=ゼロ)との界面では電子バンドのギャップが閉じ、メタリックなトポロジカル表面状態(エッジ状態)が存在する。トポロジカル超伝導体においては、超伝導秩序変数がトポロジカル不変量を持ち、超伝導体表面では超伝導ギャップが閉じ、アンドレーエフ束縛状態が存在する。トポロジカルバンド構造の実現には原子数が高い元素に共通する強いスピン軌道相互作用が有利であり、周期表の半分近くの元素が使える。これまで多くの物質がトポロジカルな性質を有することが分かってきて、更に多くのトポロジカル材料の発見が予想されている。

これまでトポロジカルバンド構造と超伝導の共存が確認された物質についてほとんどの材料がスピン一重項(s 波)となっており、内部(バルク)では超伝導ギャップを持つトポロジカルに自明な(通常の)超伝導体となっている。一方で試料表面ではスピンヘリカル構造と超伝導が共存することが光電子分光法によって実験的に確認されてきた。表面伝導チャンネルでは反対向きのスピンを持つ電子が反対向きの方向に進み、スピン流の定義と等しくなっている。トポロジカル絶縁体ではこのようなトポロジカル表面状態による巨大なスピン・電荷変換現象が盛んに研究されてきた。研究開始当初においてはトポロジカル表面状態と超伝導が共存する材料におけるスピン流の伝搬・変換現象はあまり実験的に研究されていなかった。そこで本研究ではトポロジカル超伝導材料のスピントロニクス実験の開拓を目指して研究を行った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、トポロジカル超伝導材料におけるスピンドラフトの実験的実証である。申請者がこれまでの研究によって確立してきたスピン注入・検出の実験手法をトポロジカル超伝導材料に適用することによって、超伝導とトポロジカル表面電子状態が共存する材料におけるスピン注入や伝搬の特性を電気測定やスピントロニクス実験技術によって観測・制御することを目指す。これによってトポロジカル超伝導体の物性の理解への貢献を目指すのと同時にトポロジカル超伝導材料の新奇物性の探索による新たなスピントロニクス機能性の実現を狙う。

3. 研究の方法

これまでスピントロニクス分野で研究代表者らが発展させてきたスピンドラフト生成・検出技術(スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗や逆スピンホール効果の測定技術)を発展させ、トポロジカル超伝導材料を利用したスピン輸送測定系を構築し、トポロジカル超伝導材料におけるスピン輸送現象の電氣的検出を2年間計画で達成する。

初年度に、トポロジカル超伝導材料の単結晶を合成し、物性評価を行い、また微細加工法を用いてトポロジカル超伝導材料と強磁性体の接合試料を作製する。この際、多くのトポロジカル材料が特徴とする2次元性とファンデルワールス結晶構造に注目し、スコッチテープ剥離法及び転写法によって面積がマイクロメートルサイズ、厚みがナノメートルスケールの単結晶薄膜試料を得る。その後、第二年度にかけて超伝導を示すトポロジカル材料へのスピン注入をスピンホール効果、スピンポンピングやスピン偏極伝導電子の電氣的注入の手法を利用して行い、その電氣的検出を電気抵抗測定によって達成する。

4. 研究成果

(1) 磁性結晶基板の磁化緩和及び磁歪による高温超伝導エピタキシャル薄膜の磁気抵抗の変調

トポロジカル超伝導材料のスピン트로ニクス実験に先立ち、まず高温・広温域において測定可能な高温超伝導銅酸化物のスピン트로ニクス実験から始めた。スピン注入・検出実験のため超伝導体と磁性体の界面を有するヘテロ構造測定デバイスを作製する。トポロジカル超伝導材料へのスピン注入の研究は極低温での実験が必要になり、その効率的研究の遂行には低温で良好なスピン流応答を示す測定デバイス作製技術及び精密検出法が必要である。そのため、まず磁性基板上に作製された超伝導薄膜の実験に注目する。

分子線エピタキシー法 (molecular beam epitaxy, MBE) によって得られた高温超伝導銅酸化物 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{CuO}_2$ ($x=0.1$, “SLCO”) の良質の単結晶エピタキシャル薄膜 (20 nm) を利用した。ここで SLCO の ab 面内格子定数はペロブスカイト結晶基板 DyScO_3 (110 方位) (“DSO”) の面内格子定数と良く一致することに注目し、DSO 基板上に成膜された SLCO 膜 (DSO|SLCO) を用いた。DSO は低温において反強磁性を示す絶縁体であり、更に、強い結晶磁気異方性を持ち、面内磁場回転によって容易軸 (高帯磁率) と困難軸 (低帯磁率) がスイッチング可能である。エピタキシャル薄膜成長法によってマイクロサイズより大きい面積 (2 mm x 6 mm) の界面を有する試料が得られた。大面積の界面及び超伝導薄膜の nm の厚みが界面効果の検出に適しているためまずはこの試料において研究を行った。

実際、DSO | SLCO の試料において低温で面内の磁場を印加しながら電気抵抗の測定を行った結果、面内磁場回転において SLCO の電気抵抗が巨大な角度変化を示し、更に、磁場回転方向 (時計周り、反時計周り) に対してヒステレシスを観測した。追加実験によって、このような角度変化が銅や白金など通常の金属薄膜においては観測されず、SLCO と DSO のヘテロ構造の特徴であることが分かった。

面内磁場回転は DSO の容易軸 (高磁化) と困難軸 (低磁化) スwitching に相当する。そこで DSO 基板の磁歪 (磁化過程による体積変化) を検討した。スパッタリング法によって DSO 基板上にクロミウムの薄膜歪みゲージを作製し、磁場回転中に容易軸方向の歪み由来のゲージ抵抗変化率 $\Delta R/R \sim 10^{-5}$ を検出した。SLCO の電気抵抗の磁場回転角度依存性と比較した結果、SLCO の電気抵抗が磁歪に直接比例するのではなく、磁歪の符号切り替え (膨張・縮) 及び磁歪の角度変化が大きい磁場回転角度において SLCO の電気抵抗が最大値・最小値を取ることが明らかになった [図 1(a), (b) の黄色の領域]。

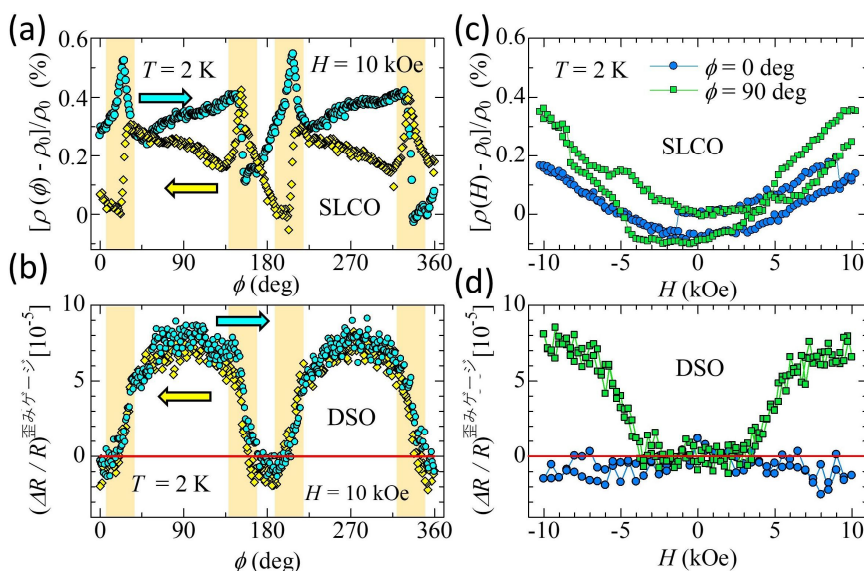


図 1 SLCO|DSO 試料における SLCO の磁場中の電気抵抗 (a),(c) 及び DSO 基板の磁歪 (b),(d)。(a),(b) は磁場の大きさを固定した面内磁場回転角度依存性、(c),(d) は磁場の方向を固定した磁場強度依存性を示す。

上記において磁場回転中の DSO 基板の磁化構造の変化が重要なことが分かった。磁場方向を固定したとき (容易軸: $\phi = 90$ deg, 困難軸: $\phi = 0$ deg) の SLCO の電気抵抗 [図 1(c)] と DSO の磁歪 [図 1(d)] の磁場強度依存性から、磁歪については符号や強度は大きく異なる (およそ 7 倍) のに対して SLCO の電気抵抗は同じような磁場依存性を持ち、容易軸方向の抵抗変化率は困難軸方向のおおよそ 2 倍程度しかならなかった。磁場方向を固定した場合は SLCO の電気抵抗が磁場中の基板の膨張・縮にตอบสนองすると考えられる。実際、エピタキシャル基板として格子定数変化がわずか +1.1% の KTaO_3 や -1.0% の SrTiO_3 の基板を用いると SLCO の電気抵抗率が DSO 基板に比べてそれぞれ 3 倍や 4 倍以上増加することが知られている。

それに対して、磁場回転測定における磁化配置の変化の詳細を図2で示す。磁場の回転角度を変えた後 SLC0 の電気抵抗を記録するまでのディレイを1秒から10秒まで延長していくと、SLC0 の電気抵抗の角度変化やヒステシスが徐々に消える[図2(a)]。DSO の交流磁化測定によって、低温において DSO の磁化緩和時間 τ_{Dy} が数秒スケールであることを明らかにし[図2(b)]、観測された SLC0 の電気抵抗緩和時間と良く一致する。従って、DSO 磁性基板の緩やかな磁化緩和(磁場回転後の磁化配列の変化)が SLC0 の電気抵抗を変調させている。

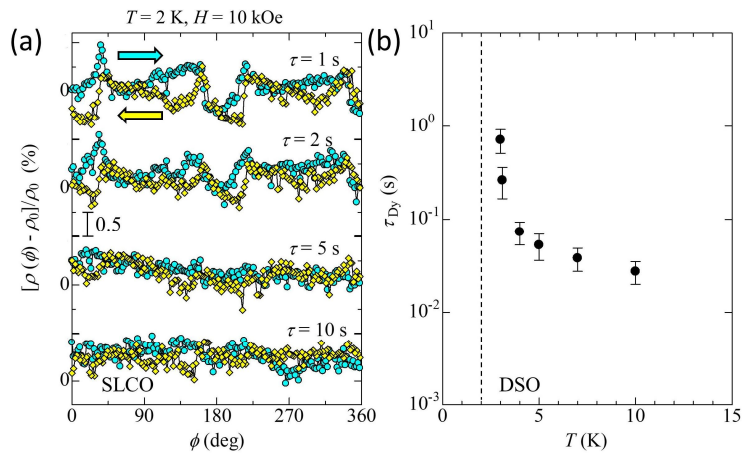


図2 (a) DSO 基板上の SLC0 電気抵抗の面内磁場回転変化の緩和時間 と(b) DSO の磁化緩和時間 τ_{Dy} の関係。

SLC0 とその母体物質 SrCuO₂ は、多くの銅酸化物高温超伝導体が有するペロブスカイト結晶構造と異なり、「無限層構造」(infinite layer structure)を有する。CuO₂ 面と Sr 原子の面が交互に繰り返す単純な構造となっており、銅酸化物の物性や CuO₂ 面の d 波超伝導の本質を研究するのに最も適している構造の一つである。本研究は結晶基板の磁性や磁化緩和によって無限層構造の銅酸化物薄膜の電子物性が変調可能なことを示した [J. Lustikova et al., Jpn. J. Appl. Phys. **61**, 040904 (2022)]。

(2) トポロジカル超伝導材料 | 強磁性体のヘテロ構造測定デバイスの作製及びスピン輸送計測

以上の結果によって、試料基板の磁性やその磁化緩和過程による超伝導薄膜の磁気抵抗の変調を検出し、トポロジカル超伝導材料に応用した。トポロジカルバンド構造が確認されている及び予想されているいくつかのトポロジカル超伝導候補物質に注目し、一部は結晶成長によって合成し、一部は単結晶メーカーから購入し、物性評価を行い、超伝導転移温度が先行研究と一致する材料を手に入れた。これらの物質群が有するファンデルワールス積層結晶構造の特徴を利用し、剥離法(スコッチテープ法)によって厚み 100 nm 程度の単結晶薄膜試料を作製した。その後転写法を用いて微細加工(電子描画等)によってシリコン基板上に作製した電極と組み合わせ、トポロジカル超伝導材料のマイクロメートルスケール電気輸送測定デバイスを実現した。剥離法及び転写法によって表面が平らな良質の薄膜単結晶が得られ、接合構造の作製に良好である。実際、剥離法によって得られた薄膜試料ではバルク結晶と一致する超伝導転移温度を確認できた。

図3には作製した一部の測定デバイスの光学顕微鏡像及び電気抵抗の温度変化を示す。ゼロ抵抗は到達していない一方で明瞭な超伝導転移が見られた。超伝導体を強磁性金属と接合させる場合近接効果によって界面近傍において超伝導秩序が抑制され、超伝導転移温度が減少することは知られている。一方で本研究で作製した測定デバイスにおいて電極材料を常磁性金属(金)から強磁性金属に換えた場合、超伝導転移温度の減少が観測されず、得られた薄膜試料は強磁性体近接効果に対してロバストである。これらの測定デバイスにおいて、磁場の方向や大きさを変えながら磁気抵抗測定を行い、強磁性金属の電極を有する試料では超伝導領域において常伝導領域で見られなかった磁気抵抗の応答を観測した。また、この応答は非磁性電極を有する試料においては見られなかった。いくつかの追加実験や解析によりその信号の起源を議論した。現在はこれらの成果を発表するための論文準備を進めている。

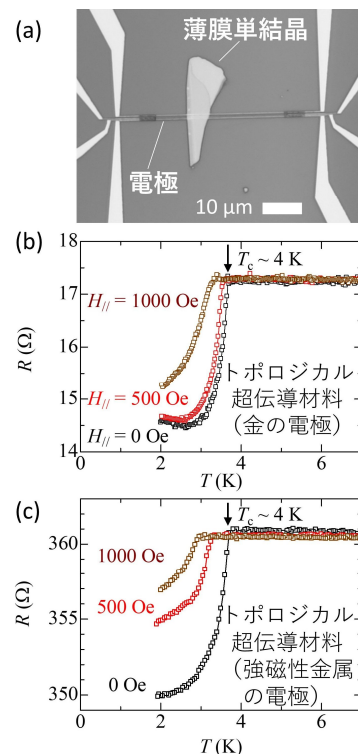


図3 (a)トポロジカル超伝導材料の薄膜単結晶から作製した電気輸送測定デバイスの光学顕微鏡像。(b)金の電極、(c)強磁性金属の電極を使ったときの超伝導体デバイスの電気抵抗の温度変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Jana Lustikova, Rui-Feng Wang, Yong Zhong, ShuZe Wang, Akichika Kumatani, Xu-Cun Ma, Qi-Kun Xue and Yong P. Chen	4. 巻 61
2. 論文標題 Magnetotransport of thin film Sr1-xLaxCuO2 on (110) DyScO3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 40904
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac50bc	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Transport phenomena in superconductor/magnet hybrids
3. 学会等名 Tohoku University - Riken 2nd collaborative workshop “Math meets Quantum Materials”（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Spin valve devices with van der Waals superconductor materials
3. 学会等名 The 4th International Symposium for The Core Research Cluster for Spintronics（国際学会）
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Magnetotransport in Sr1-xLaxCuO2 thin film on (110) DyScO3
3. 学会等名 The 5th Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	Purdue University			
中国	Tsinghua University			