

令和 6 年 5 月 31 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（開拓）

研究期間：2019～2023

課題番号：19H05522・20K20443

研究課題名（和文）クーパー対純スピン流計測の挑戦

研究課題名（英文）Challenge for detection of cooper-pair pure spin current

研究代表者

白石 誠司（Shiraishi, Masashi）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：30397682

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 20,000,000円

研究成果の概要（和文）：鉄ベースの層状超伝導体を対象物質として、その超伝導性の隣接強磁性に対する強靭さ、上部臨界磁場の見積もり、層状物質上の面直磁化多層膜成長、超伝導転移可能なワイル半金属の中で特徴的に発現するスピン編曲の成功を達成し、研究期間の最後に鉄系層状超伝導体の超伝導状態に起因するスピン偏極と考えられる実験結果を得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

4年間の研究期間で、将来的な量子計算技術の構築につながる極めて重要かつ挑戦的課題にも関わらず、多くの技術的基盤を構築でき、目指すクーパー対由来のスピン構造を計測できていることを示唆する実験結果を得るに至るまでに発展した。

研究成果の概要（英文）：We utilized Fe-based layered superconductors. In the project, robustness of superconductivity for ferromagnet, amplitude of H_c of the layer superconductor equipping ferromagnetic films with perpendicular magnetization, and spin detection in Weyl semimetal that can exhibit superconductivity are realized. At the final stage of the project, we obtained an experimental result that suggests successful detection of spin polarization in the layered superconductor.

研究分野：固体物理

キーワード：クーパー対 スピン偏極 超伝導

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

トポロジカル超伝導体(SC-TI)や、単層膜遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)などの原子膜超伝導体を対象とする物性研究は現在極めて重要な研究分野である。代表的な材料としては SC-TI では Cu-doped BiSe₃、TMD では NbSe₂ などが挙げられるが、それらの材料の超伝導状態におけるクーパー対の持つスピン構造は全く不明のままである。これらの超伝導物質ではスピン軌道相互作用によって電子の運動量の向きとスピンの向きが自動的にロッキングを起こすことでクーパー対が自動的に純スピン流になるため超伝導物性と純スピン流物性の融合による新しく大きな魅力を持つ物性物理領域が開拓でき、更にその観測によって超伝導状態のスピン構造をセンシングできるという大きな魅力があるにも関わらず、極めて先進的かつ挑戦的な試みゆえ、全く報告例がない。

2. 研究の目的

本研究では SC-TI や層状超伝導体を対象物質として、その超伝導状態における可能なスピン構造を考察し、実験的にそのスピン構造を検出・同定することで超伝導・トポロジカル物性・スピントロニクス各分野における新たな学術の地平を開拓すると同時に、将来的な量子計算技術を構築する基盤学理を整備することにある。

3. 研究の方法

超伝導カレントを運ぶクーパー対は、2つの電子が互いに運動量が+k と-k の状態でカップルした $|+k, -k\rangle$ 状態である。定数部分は無視するとスピン一重項状態は $|↑↑\rangle$ 、スピン三重項状態は $|↑↓\rangle$ 、 $|↓↑\rangle$ 、 $|↓↓\rangle$ で表現できるのはよく知られた通りであり、更に対象超伝導物質におけるクーパー対のスピン構造を決定することは系の超伝導物性を理解する上で極めて重要な課題であることも論を俟たない。しかし現在 SC-TI や TMD における超伝導状態のスピン構造は全く不明のままである。さて、SC-TI を含むトポロジカル絶縁体(TI)と TMD ではスピン軌道相互作用が起源となって、それぞれスピン運動量ロッキング、バレースピンロッキングが生じる。前者では真空と TI の持つトポロジカル数が異なることから TI と真空の界面でスピン軌道相互作用由来のバンド反転が生じ、それによって電子の運動量の向きに応じて自動的にスピンの向きが決定される。後者では TMD の k 空間に存在する2つのバレー(K点とK'点)に応じてやはりスピン軌道相互作用による効果でスピンの向きが自動的に決定される(ただし TI では材料表面に平行な面内スピンである一方、TMD では原子膜の膜面に垂直な面直スピンである点異なる)。K点とK'点は運動量が互いに逆(+k と-k)の点であるため、本質的には TMD は TI 同様のスピンロッキングを有する。

さてこの条件の下で再度クーパー対のスピン構造を見直すと、超伝導状態にある TI や TMD ではスピン運動量ロッキングから三重項の $|↑↑\rangle$ 、 $|↓↑\rangle$ 、 $|↑↓\rangle$ 、 $|↓↓\rangle$ は許されず、更に運動量が+k か-k かで自動的にスピンの向きが一意に定まることから三重項の残り1つと一重項における状態中の線型結合の第2項が禁止されるため、超伝導状態がスピン一重項/三重項/その混合、などに一切関わらず超伝導カレントが $|↑↑\rangle$ 、 $|↓↓\rangle$ のスピン構造を持ちクーパー対純スピン流となる。このクーパー対純スピン流は散逸がなくそれゆえスピン緩和がない点で、純スピン流物性で研究されてきたスピン緩和による散逸が無視できない従来の純スピン流と根本的に異なる未開拓の物性を有する。この未開拓なクーパー対純スピン流物性理解を通じた超伝導・純スピン流境界領域の開拓が本提案の狙いかつ意義である。更に特筆すべきは、例えば Cu-doped BiSe₃ ではその超伝導状態がトポロジカル由来か否かが議論も続いているが、仮に超伝導状態がバルク由来であった(トポロジカル性がない)場合には上記の論理が成立しないためクーパー対純スピン流は生成できないため本手法はトポロジカルなクーパー対の極めて優れたセンシング技術となる。それ故、将来的な量子計算への応用も強く希求されるマヨラナ超伝導実現への重要な一里塚となる SC-TI 領域におけるこの種の議論に決着をつけることが可能となり、この領域に新たな発展をもたらすことすら可能となる。

4. 研究成果

まず候補物質として層状超伝導体 FeSe に Te を加えた FeTeSe を選んだ。その理由は FeTeSe の超伝導転移温度が比較的高い(14K程度)上に、FeTeSe はバルクが s 波超伝導である一方、Te の大きなスピン軌道相互作用(SOI)によって「トポロジカル絶縁体の正常状態に、隣接する超伝導体からの近接効果で超伝導を起こせばカイラル p 波動的な状況になり、渦糸芯などにマヨラナが出現する」という Fu と Kane による予言を1つの物質で実現できるステージであるからである。FeTeSe 中にカイラル p 波動的なスピン構造が存在できるとして、まずスピン計測に必要な強磁性金属電極に対する超伝導の強靭さを見積もるために Co/Pt 多層膜からなる面直磁化を持つ膜を作製した。Co/Pt 多層膜は層状物質の上にもかかわらず室温に至るまで強磁性を有することが異常ホール効果測定から見出された。さらにこの多層膜を電極として、FeTeSe がもちうるスピン構造が外部磁場に対してどの程度強靭でありうるかを考えるために、FeTeSe 薄膜に面直・面内

磁場を印加して上部臨界磁場を見積もったところ、面内方向が 145 T、面直方向が 65 T と見積もられた。これは先行研究の非磁性電極を用いた場合と比べてほぼ同程度であり、強磁性電極は FeTeSe の超伝導性に影響を与えないことが理解できる。以上の結果は論文として Applied Physics Express 誌に掲載された。

次にこの Co/Pt 面直磁化膜がスピン計測に用いることができるかどうかを検証するために、層状ワイル半金属で、ゲート電界印加によって超伝導に転移する WTe₂ を対象材料として実験を行った。WTe₂ 上においても Co/Pt 多層膜は室温に至るまで強磁性を有することを検証したのち、WTe₂ の持つ構造的な反転対称性の破れに起因して発生する面直スピン偏極を Co/Pt 多層膜のスピンを利用した電気的スピン計測法によって測定することを目指した。実験的には室温に至るまでスピン信号を電気的に計測することに成功し、対照実験からもこの結果の正当性を実証できた。この結果は Advanced Electronic Materials 誌に論文として掲載された。

最後に上記2つの結果を融合する形で FeTeSe の超伝導状態におけるスピン計測実験を行った。また予備実験段階ではあるが、超伝導状態で発生するクーパー対由来のスピン構造を電気的に計測できていることを示唆する結果を得ている。

以上から 4 年間の研究期間で、極めて挑戦的課題にも関わらず、多くの技術的基盤を構築でき、目指すクーパー対由来のスピン構造を計測できていることを示唆する実験結果を得るに至るまでに発展した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 K. Ohnishi, M. Aoki, R. Ohshima, E. Shigematsu, Y. Ando, T. Takenobu and M. Shiraishi	4. 巻 9
2. 論文標題 All-electric spin device operation using the Weyl semimetal, WTe ₂ , at room temperature	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2200647
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/aelm.202200647	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 -

1. 著者名 S. Gupta, R. Ohshima, Y. ANdo, T. Endo, Y. Miyata and M. Shiraishi	4. 巻 120
2. 論文標題 Electrical transport properties of atomically thin WSe ₂ using perpendicular magnetic anisotropy metal contacts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 13102
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0079223	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 -

1. 著者名 K. Ohnishi, S. Gupta, S. Kasahara, Y. Kasahara, Y. Matsuda, E. Shigematsu, R. Ohshima, Y. Ando and M. Shiraishi	4. 巻 14
2. 論文標題 Observation of a superconducting state of a topological superconductor candidate, FeTe _{0.6} Se _{0.4} , equipping ferromagnetic electrodes with perpendicular magnetic anisotropy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 93002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -

1. 著者名 G. Sachin, F. Rortais, R. Ohshima, Y. Ando, T. Endo, Y. Miyata and M. Shiraishi	4. 巻 13
2. 論文標題 Approaching barrier free contacts to monolayer MoS ₂ based field effect transistor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 13-1~13-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41427-021-00284-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 白石誠司、大西康介、青木基、大島諒、重松英、安藤裕一郎、竹延大志
2. 発表標題 ワイル半金属WTe2における室温スピン計測の実現
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 K. Ohnishi, M. Aoki, E. Shigematsu, R. Ohshima, Y. Ando, T. Takenobu and M. Shiraishi
2. 発表標題 All-electric measurement of perpendicularly spin polarization in Weyl semimetal, WTe2, at room temperature.
3. 学会等名 MMM 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Ohnishi, S. Gupta E. Shigematsu, R. Ohshima, Y. Ando, M. Shiraishi, S. Kasahara, Y. Kasahara, Y. Matsuda
2. 発表標題 Measurement of the upper critical field of possible Ising-type topological superconductor FeTe0.6Se0.4 with PMA electrodes
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

京都大学からのプレスリリース https://www.t.kyoto-u.ac.jp/ja/research/topics/52qrm1 プレスリリース内容がマイナビニュースで紹介されたもの https://news.mynavi.jp/techplus/article/20221012-2479343/ 原子膜半導体のスピン機能開拓に前進 https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research-news/2021-02-09
--

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
---------	---------