

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610091

研究課題名(和文)超伝導ボルテックスへのスピン注入による新しい長距離伝搬スピン流の実現

研究課題名(英文)Realization of vortex spin current by spin injection into superconductors

研究代表者

塩見 雄毅 (SHIOMI, Yuki)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：10633969

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：第二種超伝導体においては、外部磁場が内部を貫通し局所的に超伝導状態を壊すことでその周りを超伝導電流が渦のように流れる超伝導ボルテックスが生じる。本研究では、超伝導ボルテックスの流れによるスピン流の創成を目指して研究を行った。試料としてs波超伝導体やd波超伝導体の薄膜と強磁性絶縁体薄膜の超伝導|強磁性二層膜を作製し、温度勾配やマイクロ波照射による超伝導体へのスピン流注入実験を行った。超伝導体内に注入されたスピン流をスピン流-電流変換現象を通じて電氣的に検出したところ、超伝導状態に特有の電気信号が観測された。この信号が超伝導ボルテックスと関係していることを示し、物理的機構を詳細に検討した。

研究成果の概要(英文)：In type-II superconductors, superconducting vortices appear by penetration of external magnetic fields in superconductors. In this study, we aim to realize a novel spin current using the flow of superconducting vortices. The samples are bilayers of s-wave superconductor|ferromagnet and d-wave superconductor|ferromagnet. By applying temperature gradient or microwaves to the ferromagnetic layer, spin current was injected from the ferromagnet to the adjacent superconductor. The vortex spin current in superconductors was measured via a spin-to-charge conversion effect in superconductors. As a result, we observed an electric signal in superconducting states, which was never observed in normal states. From additional experiments, we showed that this electric signal observed only in superconducting states is related to dynamics of superconducting vortices. We have discussed microscopic mechanisms of this novel effects.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：超伝導 ボルテックス スピン流 スピントロニクス 量子渦

1. 研究開始当初の背景

近年スピントロニクス分野において、電子のスピ角運動量の流れであるスピン流に関する研究が盛んに行われている。特に、近年達成された強磁性“絶縁体”から常磁性金属へのスピン流注入は、スピン流注入の本質が伝導電子の流れではなく、界面での角運動量保存に基づく角運動量の受け渡しであることを示している。角運動量保存則の普遍性を考えると、今まで利用されていない角運動量への変換も可能と期待される。

本研究では、角運動量を持つ対象物として超伝導ボルテックスに注目し、スピン注入実験を試みる。超伝導ボルテックスにおいては、クーパ対を組んだ電子が磁束の周りを公転しているため角運動量を持つ。研究代表者は物質科学、特に遷移金属酸化物の知識・合成技術を有すると共に、スピン流物理の最先端を走る研究室に所属しスピン流生成・検出実験において成果を上げている。それらの技術を駆使し、超伝導体と強磁性絶縁体との接合を作製し、スピン注入実験を行う。

2. 研究の目的

本研究では、超伝導ボルテックスへのスピン注入を実験的に実現し、超伝導ボルテックスの流れを利用したスピン流の創製を目指す。超伝導ボルテックスは、磁束量子の周りをクーパ対が公転しており、角運動量を持つ。隣接させた強磁性絶縁体からスピン角運動量を注入すると、角運動量保存則により超伝導ボルテックスへのスピン注入が達成される。超伝導ボルテックスが運ぶ角運動量の流れはトポロジによって保護されており、省散逸で長距離伝搬が原理的に可能である。本研究ではボルテックスによるスピン流伝搬を実際に観測し、これまでエレクトロニクスに実用

化されてきた超伝導状態の、スピントロニクスとしての新しい可能性を見出す。

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流生成・検出技術（スピンプンピング、スピンゼーベック効果、逆スピホール効果の測定技術）を進展させ、超伝導ボルテックスへのスピン注入と、ボルテックス・フローに伴うスピン流の伝搬を2ヶ年計画で達成する。

初年度に、パルスレーザー堆積（PLD）法やスパッタ法を用いて強磁性絶縁体 | 超伝導体接合試料を作製する。その後、第二年度にかけて超伝導ボルテックスへのスピン注入をマイクロ波照射によるスピンプンピング効果、および温度勾配を利用したスピンゼーベック効果の手法を利用して行い、その電気的検出を起電力（ホール効果）測定によって達成する。

4. 研究成果

(1) スパッタ法による強磁性絶縁体Y3Fe5012薄膜の作製とスピン流生成特性の評価（成果論文、）

超伝導体薄膜の作製に先立ち、まずスピン流生成源となる強磁性絶縁体単結晶薄膜の作製から始めた。超伝導体へのスピン流注入の研究は極低温での実験が必要になり、その効率的な遂行には低温で良好なスピン流生成特性を示す高品質強磁性絶縁体薄膜が必要である。本研究では、酸素をプロセスガスとして用いた反応性スパッタ法により厚さ約100nmのY3Fe5012単結晶薄膜の作製に成功した。X線測定や透過電子顕微鏡による結晶性評価、強磁性共鳴特性や磁化特性などの磁性評価を行い良質な試料であることを確認した。その後、スピンプンピング法やスピンゼーベ

ック効果を用いてスピン流生成効率が良好であることを示した。

(2) 純粋なスピン流注入誘起起電力を測定する手法の確立 (成果論文、)

マイクロ波照射や温度勾配を利用したスピン流生成現象の測定においては、スピン流生成源となる強磁性体の輸送現象の重畳が問題となる。特に、本研究で用いるY3Fe5012薄膜においては近接した金属膜において磁気近接効果による強磁性輸送現象が問題になることが報告されている。従って、純粋なスピン流現象を電氣的に検出する手法の確立が重要である。本研究では、有効な3つの方法を確立した。1つ目は、強磁性輸送現象の小さい強磁性体を選択することである。組成の異なるCo-Fe合金薄膜を代表例として用い、異方性磁気抵抗効果 (AMR) の小さい強磁性材料が有効であることを示した。2つ目の手法は、強磁性転移点直下を利用することである。強磁性輸送現象の温度変化 (臨界現象) とスピン流生成現象の温度変化の違いを利用することで強磁性転移点付近が純粋なスピン流現象を計測するのに有効であることを示した。3つ目は、縦方向電圧と横方向電圧を同時に計測する4端子測定法を利用することである。強磁性輸送現象が縦方向にも観測される一方、スピン流現象は横 (ホール) 方向にしか見られないことを利用し、計算解析により両者を分離する手法を見出した。

(3) 銅酸化物超伝導体La₂-xSrxCuO₄ | 強磁性金属二層薄膜の作製とスピン注入実験

(2)で確立した手法を用いて銅酸化物高温超伝導体La₂-xSrxCuO₄薄膜に対してスピン流注入実験を行った。ここでPLD法により良質な単結晶La₂-xSrxCuO₄薄膜試料を作製した。Co-Fe強磁性金属膜を蒸着しスピン注入実験

を行ったが、銅酸化物超伝導体はスピン軌道相互作用が非常に弱いために、スピン流に由来する起電力信号は観測されなかった。銅酸化物薄膜の膜厚を変化させたり、強磁性層の物質を変化させたり、追加実験をいくつか試みたが全ての場合でスピン流-電流変換効果 (逆スピンホール効果) に由来する起電力は測定精度内で観測されなかった。

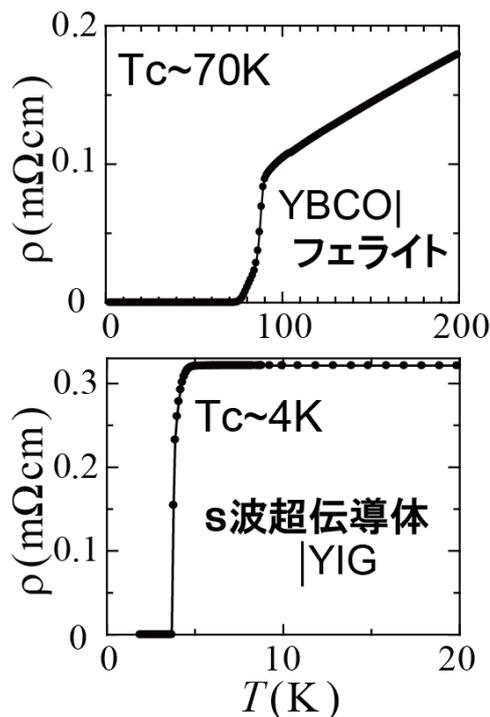
(4) スピン流検出を飛躍的に効率化する試料構造の発見 (成果論文、)

(3)の結果を受け、銅酸化物高温超伝導体へのスピン注入実験を行うには、スピン流効果を大幅に増幅する新しい試料構造の開発が必要となった。本研究では、室温で強磁性を示す(La, Sr)MnO₃薄膜と、電気伝導性のよいSrRuO₃薄膜を超格子多層膜構造とすることで、スピン流誘起起電力信号が二層膜構造に比べて10倍以上増幅することを見出した。これは超格子多層膜構造がスピン流に対して直列増幅回路となっていることに由来する。また、この構造において、低温で2つの物質間の磁氣的相互作用によって巨大なヒステリシスをもつ異常ホール効果を観測した。

(5) 強磁性絶縁体 | 超伝導体試料の作製とスピン注入実験 (論文2編準備中)

以上の結果を踏まえると、超伝導体 | 強磁性絶縁体接合試料の構成材料として、(i)スピン軌道相互作用の強いs波超伝導体とスピン流生成効率の高い強磁性絶縁体Y3Fe5012薄膜の組み合わせ、(ii)銅酸化物高温超伝導体と強磁性絶縁体の単結晶積層膜が有望だと考えられる。(i)はY3Fe5012(YIG)薄膜にスパッタ法により合金系s波超伝導体を成膜して作製し、(ii)についてはPLD法によりYBa₂Cu₃O_{7-x}(YBCO)単結晶薄膜とフェライト単結晶薄膜の積層膜を作製した。下図に、作

製した（一部の）試料の抵抗率の温度変化を示す。



図：(上) YBCO | フェライト強磁性体超伝導体薄膜の抵抗率の温度変化。(下) s波超伝導体 | YIG の抵抗率の温度変化。

上図に示すように、明瞭な超伝導転移が見られた。これらの試料において、温度勾配を面直方向に印加する縦型スピナーベック効果を利用したスピン注入実験を行った。結果として、(i)と(ii)の両方の場合において、超伝導領域において常伝導領域で見られなかった起電力信号を超伝導薄膜上で観測した。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論文準備を進めている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計8件）

“Dispersion-type Hall resistance in InSb|Pt hybrid systems”

Scientific Reports 6, 22085 (2016).

Y. Shiomi and E. Saitoh, 査読有

“Enhanced inverse spin Hall contribution at high microwave power levels in La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃/SrRuO₃ epitaxial bilayers”

Appl. Phys. Lett. 107, 152408 (2015).

S.M. Haidar, Y. Shiomi, J. Lustikova, and E. Saitoh, 査読有

“Vector spectroscopy for spin pumping” Phys. Rev. B 92, 224436 (2015).

J. Lustikova, Y. Shiomi, and E. Saitoh, 査読有

“Anomalous Hall effect with giant hysteresis loop in

La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃|SrRuO₃ superlattices” Phys. Rev. B 92, 024418 (2015).

Y. Shiomi, Y. Handa, T. Kikkawa, and E. Saitoh, 査読有

“Transverse thermoelectric effect in La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃|SrRuO₃ superlattices” Appl. Phys. Lett. 106, 232403 (2015).

Y. Shiomi, Y. Handa, T. Kikkawa, and E. Saitoh, 査読有

“Reducing galvanomagnetic effects in spin pumping measurement with Co₇₅Fe₂₅ as a spin injector”

J. Appl. Phys. 117, 183906 (2015).

S.M. Haidar, R. Iguchi, A. Yagmur, J.

Lustikova, Y. Shiomi, and E. Saitoh, 査読有

“Spectral shape deformation in inverse spin Hall voltage in Y₃Fe₅O₁₂|Pt bilayers at high microwave power levels”

J. Appl. Phys. 117, 073901 (2015).

J. Lustikova, Y. Shiomi, Y. Handa, and E.

Saitoh, 査読有

“ Spin current generation from sputtered
Y3Fe5O12 films”

J. Appl. Phys. 116, 153902 (2014).

J. Lustikova, Y. Shiomi, Z. Qiu, T. Kikkawa,
R. Iguchi, K. Uchida, and E. Saitoh, 査読
有

〔学会発表〕（計1件）

日本物理学会 第70回年次大会(2015年3月
21-24日)、早稲田大学（東京都新宿区）

「La0.67Sr0.33MnO3|SrRuO3 酸化物超格子に
おけるネルンスト効果」 塩見雄毅、半田優、
吉川貴史、齊藤英治

6 . 研究組織

(1)研究代表者

塩見 雄毅 (SHIOMI, Yuki)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：10633969