

令和 3 年 5 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23414

研究課題名（和文）スピン流を用いた高温超伝導物質のスピン励起の観測

研究課題名（英文）Spin current as a probe for spin excitations in high temperature 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） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：高温超伝導体の超伝導発現におけるスピン励起の役割が長く研究されてきた。本研究では、電子スピンの流れである「スピン流」による高温超伝導物質のスピン励起の検出を目指し、高温超伝導物質へのスピン注入実験を行った。銅酸化物高温超伝導体及び鉄系超伝導体に強磁性金属の薄膜を製膜し、超伝導体|強磁性体の構造を作製し、マイクロ波照射によるスピン流注入実験を行った。超伝導物質に注入されたスピン流を強磁性薄膜の磁気緩和定数を通して検出したところ、銅酸化物では超伝導転移温度近傍、鉄系超伝導では構造相転移温度以下における変化が観測され、その物理的機構を検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高温超伝導物質の中では、高温超伝導銅酸化物及び鉄系超伝導体の超伝導転移温度が最も高い。両者におけるスピン励起の超伝導状態との関係について共通点及び相違点を明らかにすることによって、超伝導転移温度の向上に向けた物質設計指針が得られると期待されている。本研究の学術的意味は高温超伝導物質のスピン物性プローブとしてスピン流に注目することにある。中性子散乱や核磁気共鳴など従来の実験手法とは異なるエネルギーや長さスケールをプローブし、高温超伝導体におけるスピン励起の多角的理解に貢献する。

研究成果の概要（英文）：The role of spin excitations in the appearance of superconductivity in high-temperature superconductors has been long discussed. In this study, we aim to observe spin excitations in high-temperature superconducting materials by the injection of spin current. The samples are high-temperature cuprates and iron-based superconductors coated with a thin film of ferromagnetic metal. By applying microwaves to the ferromagnetic coating, spin current injected into the superconductor material is estimated from the magnetic damping constant. As a result, we observed a change in damping constant close to the superconducting transition temperature in cuprate materials and below the structural transition temperature in iron-based materials. We have considered the origin of this effect.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：超伝導 銅酸化物 鉄系超伝導 スピン流 スピントロニクス スピン注入

## 1. 研究開始当初の背景

高温超伝導物質の中では、高温超伝導銅酸化物及び鉄系超伝導体の超伝導転移温度が最も高く、50 K を超えている。両者において、母体物質が反強磁性を示し、キャリアをドーピングすることによって、最適濃度において超伝導が発現する。縦軸を温度、横軸をキャリア濃度にした相図において、超伝導相が反強磁性相の近傍に存在する(図1)。超伝導が現れる領域では、長距離反強磁性秩序が壊れていても、反強磁性スピンゆらぎが残っている[P. Dai, Rev. Mod. Phys. 87, 890 (2015)]。特に、銅酸化物超伝導物質において母体物質の示す局在磁性(モット絶縁性)が超伝導発現において重要な役割を果たすと考えられている。一方で2008年に発見された鉄系超伝導体の母体物質は遍歴磁性を示す。両者におけるスピン励起の超伝導状態との関係について共通点及び相違点を明らかにすることによって、高温超伝導が実現されるための必要条件の解明が期待されている[J. Hu, Sci Bull. 61, 561 (2016)]。

そこで、本研究では高温超伝導物質のスピン励起のプロープとしてスピン流に注目し、超伝導物質へのスピン注入及び検出実験を試みる。「スピン流」は電流を伴わない純粋な電子スピンの流れである。スピントロニクス分野においては特に高効率な磁気メモリや発電技術など、主にテクノロジーや応用の観点から注目されてきた。一方でスピン流はスピン励起の特性を調べることに適している強力な物性プローブである。スピン流の注入によって、注入先の物質の動的帯磁率やスピンの状態密度の観測が可能である。これらの情報は、磁気秩序と協奏している高温超伝導を理解するために重要な情報である。特に、通常の電流が伝搬できない絶縁体においても、スピン励起を有すればスピン流は伝搬する。また、導体においては逆スピンホール効果によってスピン流が電流に変換され、電気的検出が可能である。このようにスピン流をプローブとして高温超伝導物質に注入し、その応答を調べることによって、高温超伝導メカニズムの理解につながる新しい手段を得る。

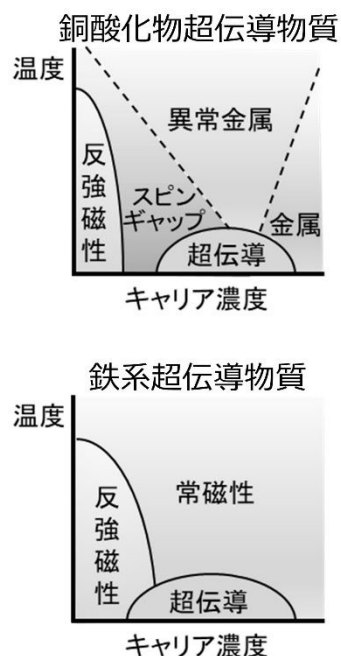


図1 高温超伝導の電子状態相図(概念図)

## 2. 研究の目的

本研究の目的は高温超伝導物質におけるスピン注入・スピン伝搬をスピントロニクス手法によって実験的に実証することである。得られた知見によって高温超伝導体におけるスピン励起の多角的理解を深めることを目指し、高温超伝導材料の超伝導発現におけるスピン励起の役割解明への貢献及びスピン流を用いた超伝導特性の制御を期待する。具体的に以下の二つの目標を設定する。

銅酸化物高温超伝導体及び鉄系超伝導物質へスピン流注入効率を実験的に検証する。

スピン流をプローブとして用いて、銅酸化物高温超伝導及び鉄系超伝導の相図におけるスピン注入効率と超伝導状態の関係を明らかにする。

スピントロニクス研究のこれまでの注目点として、磁性絶縁体、重い金属、トポロジカル絶縁体の表面状態、常磁性絶縁体や超伝導体など、様々な物質におけるスピン流の伝搬性質やスピン流・電流変換現象が挙げられる。個々の物質のスピン状態やスピン励起の特徴によって、スピン流の伝搬性が異なる。スピン起動相互作用の強い白金やスピン・運動量ロッキングを有するトポロジカル絶縁体の表面電子状態においてはスピン流伝搬距離が短く、大なスピン流・電流変換現象が観測されている。スピン励起のダンピングが非常に小さいフェリ磁性絶縁体  $Y_3Fe_5O_{12}$  において、絶縁体であってもスピン流は局在スピンのスピン波によって伝搬する。一方で、長距離磁気秩序を示さない常磁性絶縁体  $Gd_3Ga_5O_{12}$  においてもスピン流の効率的伝搬が報告されている[K. Oyanagi, Nat. Commun. 10, 4740 (2019)]。スピン流はスピン励起を有する環境においてのみ注入・伝搬可能であり、スピンを運ぶキャリアが存在しない場合はスピン注入効率が非常に小さくなることが知られている。

以上のことから、スピン流をプローブとして利用することによって、注入先の物質におけるスピンキャリアの状態密度や伝搬距離が評価できる。そこで、高温超伝導において中心的な役割を

果たしていると考えられているスピン励起の役割をスピン流によってプローブすることを提案する。

### 3. 研究の方法

本研究では銅酸化物高温超伝導体及び鉄系超伝導体に注目し、高温超伝導物質 | 強磁性体の接合構造を用いて純粋スピン流の注入及び検出実験によって高温超伝導物質におけるスピン励起ダイナミクスの観測を行った。具体的には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、いわゆるスピンプンピング手法を主なツールとして利用した [J. Lustikova, J. Appl. Phys. 116, 153902 (2014); J. Lustikova, J. Appl. Phys. 117, 073901 (2015); J. Lustikova, Phys. Rev. B 92, 224436 (2015)]。スピンプンピング法はマイクロ波照射によるスピン流注入方法である。高温超伝導体の表面に磁性金属の薄膜を製膜し、磁場  $H$  を印加しながらマイクロ波を照射し、磁性薄膜の強磁性共鳴において強磁性体の磁化ダイナミクスに起因し界面の交換相互作用を通して隣接させた物質の電子にスピン角運動量が受け渡される (図2)。注入されるスピン流を強磁性薄膜の磁気緩和定数を通して検出できる (図3)。超伝導転移温度前後や構造相転移温度前後における磁気緩和定数を系統的に調べ、その温度変化などからスピン注入効率の変化評価し、超伝導相図上のスピン励起とスピン注入効率の関係を解明する。

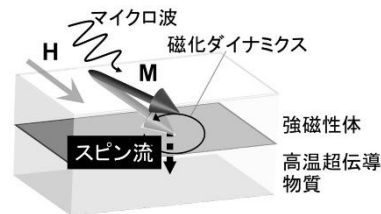


図2 高温超伝導物質におけるスピンプンピング実験の概略図

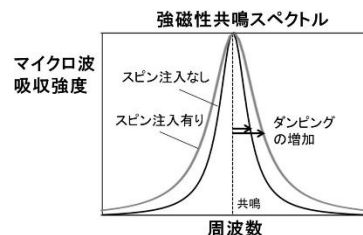


図3 スピンプンピング実験におけるスピン注入効率の評価の概略図

具体的にはスパッタ法によって製膜した強磁性金属 Ni-Fe 合金 (厚み 6 nm の薄膜) を高温超伝導物質と隣接させ、マイクロ波導波路に固定し、面内磁場を印加した状態でネットワークアナライザで  $S_{11}$  パラメータの周波数依存性を測定した。各温度及び各磁場において観測された強磁性共鳴スペクトルをローレンツ関数でフィットし、強磁性共鳴ピークの周波数  $f$  依存性における半値幅  $\Delta f$  を求め、磁場  $H$  依存性における半値幅  $\Delta H$  に換算し、 $\Delta H$  の周波数依存性から磁気緩和定数 (ギルバートダンピング係数) を求めた：

$$H = H_0 + (4 / \Delta f)$$

ここで  $H_0$  強磁性薄膜の空間的不均一性等に由来する項と考えられており、また、 $\Delta H$  は強磁性共鳴の磁場・周波数関係から求められる磁気回転比である。対照試料として酸化膜付きのシリコン基板に成膜した Ni-Fe 薄膜を用いた。シリコン酸化膜 (厚み ~ 250 nm) は基板へのスピン注入を防止するため、酸化膜付きシリコン基板上の強磁性共鳴の線幅は Ni-Fe の内在的磁気緩和に相当すると考えられる。上記の方法で磁気緩和定数の温度依存性並びに組成依存性を系統的に調べることによって、スピン注入効率と超伝導相図の関係を明らかにする。

### 4. 研究成果

#### (1) 測定システムの立ち上げ

初年度に新規導入されたプローブステーションにおいて、300 K から 10 K までの広い温度領域においてマイクロ波照射実験及び電気輸送測定を可能とする実験環境を立ち上げ、低温までスピンプンピング実験を可能とする導波路設計及び磁性薄膜の強磁性共鳴の観測に成功した。実験環境を整えた上で、バルクの銅酸化物超伝導単結晶と強磁性薄膜のヘテロ構造を作製し、単結晶の上で成膜された強磁性薄膜でも磁気性質は保たれていることが確認できた。

#### (2) 銅酸化物高温超伝導体におけるスピン注入観測

銅酸化物高温超伝導体 | Ni-Fe 薄膜構造において室温から低温 20 K まで明瞭な強磁性共鳴の観測に成功した。また、酸化膜付きシリコン基板 | Ni-Fe 基板の対照試料に比べて銅酸化物高温超伝導体 | Ni-Fe 試料における磁気緩和定数が増大しており、銅酸化物高温超伝導体へのスピン注入の観測に成功した。一方で超伝導体 | Ni-Fe 薄膜及び酸化膜付きシリコン基板 | Ni-Fe 薄膜における磁気緩和定数が低温において大幅に増加し、超伝導転移温度近傍におけるスピン注入効率の評価の障壁となっていた。これは専攻研究によっても報告されている現象であり、Ni-Fe 合金の酸化や酸化物との界面における反強磁性相に由来すると指摘されている [Y. Zhao, Sci. Rep. 6, 22890 (2016); L. Frangou, Phys. Rev. B 95, 054416 (2017); O. Gladii, Phys. Rev. B 98, 094422 (2018)]。

上記の問題を回避するために、Ni-Fe 薄膜を両方側から金の薄膜(5 nm)に挟み、低温における磁気緩和定数の増加を抑制することができた。金のスピン拡散長は 30 ~ 100 nm [M. Isasa, Phys. Rev. B 91, 024402 (2015)]のため、5 nm の薄膜はスピン流に対して透明なチャンネルとして考えることができる。通常のスペーサーとして用いられる銅の場合はその酸化によるスピン・電荷変換現象を考慮する必要があるため[H. An, Nat. Commun. 7, 13069 (2016); H. Tsai, Sci. Rep. 8, 5564 (2018); D. Go, Phys. Rev. B, 103, L121113 (2021)]、今回は利用を避けた。

このように改善した構造： Au(5 nm) | Ni-Fe(6 nm) | Au(5 nm) | 銅酸化物高温超伝導体においてスピン注入実験を行い、図 4(a)に示すように低温まで明瞭な強磁性共鳴が観測され、また、低温における Ni-Fe の内在的磁気緩和定数の増大は回避できた。図 4(b)のように各温度において強磁性共鳴の半値幅の周波数依存性から磁気緩和定数を求めた。対象の銅酸化物高温超伝導体の電気抵抗の温度変化及び磁気緩和定数の温度変化をそれぞれ図 4(c)及び 4(d)に示している。超伝導転移温度付近では磁気緩和定数が減少し、超伝導転移温度以下では再び高温側の値のレベルに回復することが分かる。この結果は超伝導転移温度付近では超伝導体の動的帯磁率が減少し、スピン注入効率が低下する可能性を示唆している。また、超伝導転移温度以下の振る舞いについては強磁性体と超伝導体界面における Andreev 反射による準粒子の束縛状態がスピン注入効率の増大に寄与することが提案されている[M. A. Silaev, Phys. Rev. B 102, 180502(R) (2020)]。実際は他の銅酸化物高温超伝導体においても超伝導転移温度付近におけるスピン流注入効率の抑制及び超伝導転移温度以下におけるスピン注入効率の増大が報告されており[S.J. Carreira, preprint: arXiv:2009.03196v2]、本研究との相違点を検討し、現在追加実験を進めている。

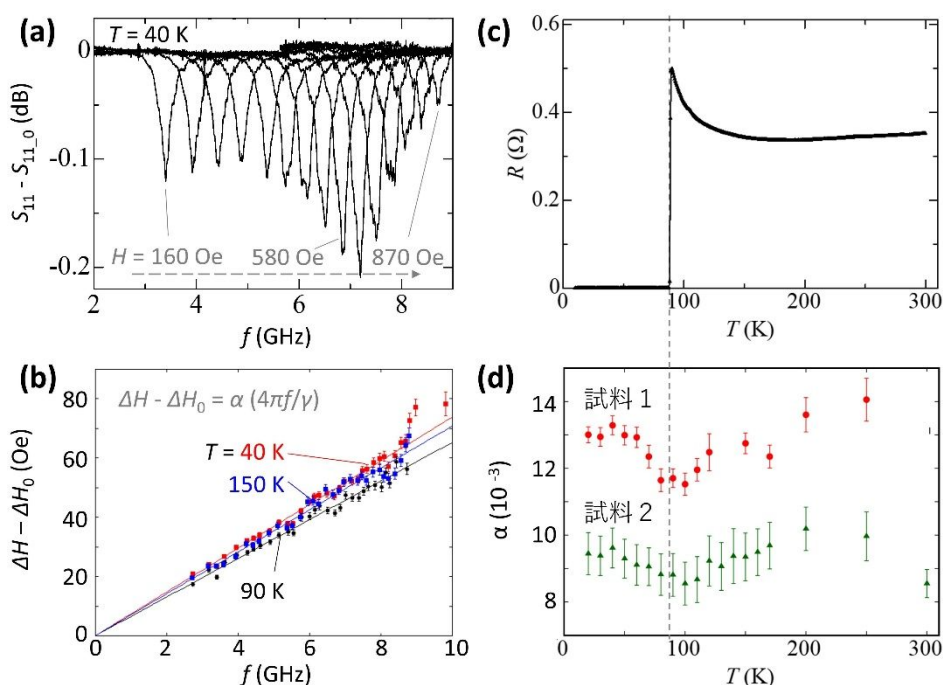


図4 高温超伝導銅酸化物 | 強磁性体の構造におけるスピン注入実験結果。(a)温度40 K・各磁場における強磁性共鳴のスペクトル。(b)各温度における半値幅の周波数依存性及び磁気緩和定数の解析。(c)高温超伝導銅酸化物の電気抵抗の温度変化。(d)磁気緩和率の温度変化。試料 1 及び試料2は同等の構造を持つ。

### (3) 鉄系超伝導体におけるスピン注入観測

鉄系超伝導体 | 強磁性体の界面を有する構造を作製し、上記のアプローチを適用することによって、鉄系超伝導体の構造相転移温度以下においてスピン注入効率の変化を示唆するデータを観測した。対象の鉄系超伝導物質において構造相転移を伴ってストライプ型の異方的スピン揺らぎが実現することは知られており[T. Urata, Phys. Rev. B 93, 014507 (2016); Q. Wang, Nat. Commun. 7, 12182 (2016); I. I. Gimazov, JETP 129, 81 (2019)]、非磁性不純物のドーピングによって構造相転移温度が異なる結晶との比較によってスピン注入効率との関連性を検討した。

以上の結果の物理的起源について考察および追加実験を進めており、論文執筆を間近に控えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 磁性絶縁体   超伝導量子渦系における非相反電気応答
3. 学会等名 第27回渦系物理ワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Spin-dependent transport phenomena in superconducting materials
3. 学会等名 The 3rd Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics（国際学会）
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Vortex rectenna powered by environmental fluctuations
3. 学会等名 AIMR Workshop on Quantum Materials and Spintronics: Spin, Topology and Superconductivity（国際学会）
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Oscillatory Nernst effect in Pt ferrite cuprate-superconductor trilayer films
3. 学会等名 東北大金研-CROSSワークショップ「J-PARCとJRR-3の相補利用による偏極中性子科学の新展開」
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Rectification effects in a superconducting vortex liquid with magnet proximity
3. 学会等名 PQSEI/Birck Nanotechnology Center/Spintronics Seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

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)
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Spin Transport and Excitations in MBE-grown Fe-based High Tc Superconductors
3. 学会等名 Tohoku-Tsinghua Joint Conference 2020 on Matching Fund Projects 2019 and 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年～2021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			