

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ~ 2012

課題番号：23656214

研究課題名（和文）

スピン三重項高温超伝導電子対の研究

研究課題名（英文）

Study on spin-triplet high-temperature superconducting cooper pairs

研究代表者

浅野 秀文 (ASANO HIDEFUMI)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：50262853

研究成果の概要（和文）：

平行なスピンを持った電子同士が合成スピンモーメント $S=1$ のスピン三重項電子対を形成した特異な超伝導状態を高温で発現させることを目的とし、スピン一重項である酸化物、及び窒化物超伝導体と磁性体からなるヘテロ接合構造の作製とその電気的特性を調べた。

まず、構造が単純で良好な界面特性が期待できる無限層構造酸化物超伝導体 $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ の作製検討を行い、超伝導コヒーレンス長が長いこと界面制御に有利な、 a 軸成長膜が得られることを見出した。また、 a 軸成長 $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ 薄膜と強磁性 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ 、及び反強磁性 SrLaVMoO_6 とのヘテロエピタキシャル成長を達成した。

次に、窒化物超伝導体 NbN 接合への磁性層の挿入効果を調べた。極薄(1.0 nm)の強磁性 CoFe 層を挿入した接合では、ゼロ磁場で極小となるジョセフソン臨界電流を有し磁場方向に対して非対称的なフラウンホーファー回折パターンが観測され、極薄強磁性層挿入に伴う接合界面での磁気的不均一性によるスピン三重項超伝導の可能性が示唆された。

研究成果の概要（英文）：

To realize peculiar spin-triplet high-temperature superconducting states, we have investigated preparation and electrical properties of hetero-junctions with spin-singlet oxide, or nitride superconductors and magnetic materials.

Infinite-layer oxide superconducting $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ can be successfully obtained in a -axis oriented thin films, which are favorable for the control of the junction interfaces owing to their long superconducting coherence length. Hetero epitaxial growth between a -axis superconducting $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ films and ferromagnetic $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ or antiferromagnetic SrLaVMoO_6 films was also achieved.

The effect of insertion of ultra-thin magnetic layers in NbN superconducting junctions was examined. The junctions with a 1 nm-thick ferromagnetic CoFe insertion layer exhibited asymmetric Fraunhofer patterns with a minimum of Josephson supercurrent at zero field, which suggests the possibility of existence of spin-triplet cooper pairs due to magnetic inhomogeneity of junction interfaces.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子電気材料工学

キーワード：超伝導、スピン三重項

1. 研究開始当初の背景

近年の磁性と超伝導の双方が密接に関与する重要な研究課題は、スピン三重項超伝導である。従来の超伝導は、合成スピン $S=0$ のスピン一重項の電子対（クーパー対）が担っており、電子対のスピンは反平行であるため、例えば強磁性体界面での交換磁場により、電子対はエネルギー的に不安定になり超伝導は抑制される。これに対して、電子対のスピンが平行 ($S=1$) のスピン三重項超伝導では、状況は一変し、強磁性体との界面でも電子対はより安定で超伝導状態は維持される。従って、スピン三重項超伝導電子対は、磁性および超伝導の相互作用という基礎研究、および双方を活用した応用研究の両面から非常に興味深い。しかしながら、現状では、スピン三重項超伝導は希有な現象であり、磁性と超伝導が共存する物質系において発現するという実験事実以外には、その生成・安定化機構も含めて未解明な点が多く、また、超伝導研究の王道である高温動作化や、デバイス応用を指向した実験研究への展開は全く手付かずの状況にある。

2. 研究の目的

本研究では、超伝導体/磁性体ヘテロ接合の界面を電子が通過する際の磁氣的不均一性に由来するスピン反転、すなわち、界面スピン活性に着目し、界面スピン活性とスピン三重項電子対生成の相関を実験的に検証することにより、最終的には超伝導転移温度 T_c が液体窒素温度 77 K 以上であるスピン三重項高温超伝導の発現を目指す。第一の目的は、スピン三重項超伝導対の生成・安定化機構を解明することである。第二の目的は、スピン三重項超伝導を利用した、新しい動作原理に基づくデバイスの開発・設計指針を提案することである。

3. 研究の方法

スピン三重項超伝導電子対の生成機構の解明とその高温動作化を目指して、スピン一重項超伝導体である酸化物超伝導体、あるいは窒化物超伝導体と磁性体と組み合わせたヘテロ接合を用いた研究を展開する。具体的には、①磁性体側をハーフメタル（反）強磁性体とした接合における超伝導近接効果の観測と解析、②磁性体側をハーフメタル（反）強磁性体/極薄マルチフェロ酸化物層としたトンネル型接合における純スピン三重項超伝導電流の観測と高温動作化の検証、③純スピン三重項超伝導電流の磁場応答特性の解析とデバイス機能の探索という三段階で実験を進める。

4. 研究成果

(1) 無限層構造超伝導薄膜の作製

スピン三重項超伝導の発現の舞台となるヘテロ接合における超伝導体としては、酸化物超伝導体の中で最も単純な構造するため良好な界面特性が期待できること、及び電子ドープ系であるため還元雰囲気で作製されるハーフメタル材料との積層化に有利なことから、無限層構造酸化物超伝導体 $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ を用いることとした。まず、 $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ 薄膜をスパッタリング法により、各種単結晶基板、及びバッファ層上へ成長させたところ、格子不整合の小さい (<3%) 基板、バッファ層上では、 CuO_2 面が基板面に平行な c 軸成長膜が、格子不整合の大きい基板上では、 CuO_2 面が基板面に垂直な a 軸成長膜が得られることが分かった。無限層構造の超伝導薄膜において、超伝導コヒーレンス長が長い (4.5 nm) ため異種物質との積層化に有利な、 a 軸成長膜が得られたのは、本研究が初めてである。また、無限層構造酸化物超伝導体では、酸素量の制御と超伝導化が困難とされていたが、歪みの精密制御と成長後の H_2 中での還元アニールにより、 c 軸成長膜、及び a 軸成長膜双方の超伝導化 (~ 25 K) を達成している。

(2) ヘテロ接合構造の作製検討

スピン三重項電子対生成のためには、接合界面での磁氣的不均一性に由来するスピン反転の制御が不可欠である。この役割を担う磁性層として、強磁性ハーフメタル $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ (強磁性転移温度 $T_C\text{-FM} = 620$ K) と反強磁性ハーフメタル SrLaVMoO_6 (反強磁性転移温度 $T_N = 125$ K) を用いた。まず、それぞれの単一薄膜を格子整合単結晶基板上へ成長させたところ、コヒーレントなエピタキシャル成長が生じ、良好な磁氣的・電氣的特性が得られることが分かった。次に、これらの磁性薄膜と、先に実現した a 軸成長 $\text{Sr}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{CuO}_2$ 薄膜とのヘテロエピ成長に成功し、スピン三重項電子対の高温生成用の酸化物ヘテロ接合作製に向けた基本技術として確立した。

(3) 強磁性/反強磁性交換結合とその応用

スピン三重項電子対生成のためのスピン反転制御の新しい手法として、強磁性/反強磁性交換結合が考えられる。強磁性層と反強磁性層の積層構造で構成される交換結合膜は、各層の厚さを制御することによりスピン反転の精密制御が可能であり、漏洩磁場を発生しない反強磁性層を超伝導体との界面に配置することで、磁場による超伝導の破壊効果を完全に抑制できる利点を有している。この観点から、窒化物超伝導体の中で最も T_c が高い ($T_c = 16$ K) NbN とのエピタキシャル成長が可能な、ホイスラー合金系強磁性/反強磁性交換結合膜を検討した。成長温度により界面構

造を制御したホイスラー合金系強磁性/反強磁性積層膜における磁気特性の評価から、優れた交換結合特性が得られることを明らかにした。本研究のホイスラー合金系強磁性/反強磁性交換結合膜は、NbN 超伝導接合におけるスピン反転層として有用であり、スピン三重項超伝導電子対の生成機構の解明に向けた重要な手法と考えられる。

(4) NbN 接合への強磁性 CoFe 層挿入効果

s 波スピン三重項超伝導体 NbN と MgO バリア層を用いてジョセフソン接合を作製し、バリア層界面への極薄の強磁性 CoFe 層の挿入効果を調べた。強磁性 CoFe 層厚を系統的に変化させたジョセフソン接合特性の評価から、次の結果を得た。(a)強磁性 CoFe 層を挿入しない接合においては、通常ジョセフソン臨界電流 I_c の磁場依存性、即ち、ゼロ磁場で最大の I_c を示し磁場の正負方向に対して対称的なフラウンホーファー回折パターンが観測されるのに対し、(b)1.0 nm の強磁性 CoFe 層を挿入した接合では、ゼロ磁場で極小となる I_c を示し磁場の正負方向に対して非対称的なフラウンホーファー回折パターンが観測された。後者の挙動は、極薄強磁性層挿入に伴う接合界面での磁気的不均一性によるスピン三重項超伝導の可能性を示唆している。しかしながら、現時点では、本実験におけるスピン三重項超伝導電子対生成の詳細なメカニズムは未解明である。今後、ホイスラー合金系反強磁性/強磁性交換結合膜を挿入した NbN 超伝導接合、及び a 軸成長 Sr_{0.9}La_{0.1}CuO₂ 薄膜と強磁性 Sr₂CrReO₆、反強磁性 SrLaVMoO₆ との酸化物へテロ接合における検討を行うことにより、スピン三重項超伝導電子対の高温動作化への指針が得られるものと期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

- ① H. Akatsuka, K. Sakuma, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Growth and properties of *a*-axis oriented thin films of infinite-layer Sr_{1-x}La_xCuO₂” 査読有り、IEEE Transactions on Applied Superconductivity, PP (2013) 4MPD-04 (電子版)
- ② N. Fukatani, K. Inagaki, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Structural and magnetic properties in Heusler-type ferromagnet/antiferromagnet bilayers”, 査読有り、*J. Appl. Phys.*, **113** (2013) 17C103-1-3.
- ③ N. Fukatani, H. Fujita, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Antiferromagnetic Heusler Ru₂MnGe Epitaxial thin films showing Neel temperatures up to 353 K”, 査読有り、*IEEE Transactions on Magnetism*, **48** (2012) 3211-3214.
- ④ H. Matsushima, H. Gotoh, Y. Takeda, K. Ueda, and H. Asano, “Magnetic and Electronic Properties of Double Perovskite Sr_{2-x}La_xVMoO₆”, 査読有り、*Japanese Journal of Applied Physics*, **50** (2011) 103004-1-5.
- ⑤ T. Miyawaki, K. Takahashi, N. Fukatani, K. Ueda, and H. Asano, “Inter-layer exchange coupling in Fe₂CrSi/Fe₂VSi multilayers fabricated on MgAl₂O₄ substrates”, 査読有り、*IEEE Transactions on Magnetism*, **47** (2011) 2643-2645.
- ⑥ N. Fukatani, K. Ueda and H. Asano, “Epitaxial strain and antiferromagnetism in Heusler Fe₂VSi thin films”, 査読有り、*J. Appl. Phys.*, **109** (2011) 073911-1-6.
- ⑦ H. Matsushima, H. Gotoh, T. Miyawaki, K. Ueda and H. Asano, “Fabrication and physical properties of double perovskite SrLaVMoO₆ thin films” 査読有り、*Journal of Applied Physics*, **109** (2011) 07E321-1-3.

[学会発表] (計 45 件)

- ① 吉原健彦, 高木涼真, 深谷直人, 宮脇哲也, 植田研二, 浅野秀文, “超伝導 NbN 薄膜上に作製した交換結合膜の磁気特性” 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 神奈川工科大学 (2013) 3月 27-30 日.
- ② H. Akatsuka, K. Sakuma, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Growth and properties of *a*-axis oriented thin films of infinite-layer Sr_{1-x}La_xCuO₂” Applied Superconductivity Conference, Portland, Oct.7-12 (2012).
- ③ 赤塚寛之, 作間啓太, 宮脇哲也, 植田研二, 浅野秀文, “無限層構造 Sr_{1-x}La_xCuO₂” 2012 秋季第 73 回応用物理学会学術講演会 松山大学 (2012) 9月 11-14 日.
- ④ H. Akatsuka, K. Sakuma, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Growth of *a*-axis oriented thin films of infinite-layer Sr_{1-x}La_xCuO₂” The 19th International Conference on Magnetism with SCES(ICM). Busan (Korea), Jul. 8-13, (2012)
- ⑤ R. Zenzai, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Fabrication and properties of double perovskite

SrLaVRuO₆” The 19th International Conference on Magnetism with SCES(ICM). Busan (Korea), Jul. 8-13, (2012).

- ⑥ K. Sanbou, K. Sakuma, T. Miyawaki, K. Ueda and H. Asano, “Epitaxial thin films of ordered double perovskite SrLaVMoO₆” Materials Research Society (2012 MRS Spring Meeting), San Francisco (U.S.A), Apr. 9-13, (2012).
- ⑦ 赤塚寛之, 作間啓太, 植田研二, 浅野秀文, “銅酸化物超伝導体 Sr_{0.9}La_{0.1}CuO₂ 薄膜の面内構造評価” 平成 23 年度ナノネット報告会 分子科学研究所 (2012) 3 月 31 日.
- ⑧ 吉原健彦, 新野貴士, 北條貴之, 作間啓太, 宮脇哲也, 植田研二, 浅野秀文, 駒崎洋亮, 角田匡清, “超伝導 NbN / 磁性接合の界面スピン分極率測定” 平成 23 年度ナノネット報告会 分子科学研究所 (2012) 3 月 31 日.
- ⑨ 杉本望実, 深谷直人, 吉原健彦, 宮脇哲也, 植田研二, 田中信夫, 浅野秀文, “三元同時スパッタリング法による LaPtBi 薄膜の作製”, 第 35 回日本磁気学会学術講演会 朱鷺メッセ (2011) 9 月 27-30 日.
- ⑩ 作間啓太, 赤塚寛之, 植田研二, 浅野秀文, “Ba_xSr_{1-x}TiO₃ 格子整合バッファ層を用いた無限層 Sr_{1-x}La_xCuO₂ 薄膜の作製とその特性”, 2011 秋季第 72 回応用物理学会 山形大学 (2011) 8 月 29 日-9 月 2 日.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

浅野秀文 (ASANO HIDEFUMI)
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：50262853

(2) 研究分担者

植田研二 (UEDA KENJI)
名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：10393737

(3) 連携研究者

なし