

令和 2 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14112

研究課題名（和文）強磁性体に誘起された超伝導のスピン物性

研究課題名（英文）Superconducting in ferromagnetic materials induced by proximity effect

研究代表者

河口 真志（Kawaguchi, Masashi）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・助教

研究者番号：90792325

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、超伝導スピントロニクスを目指して、強いスピン軌道相互作用を持つタングステンにおいてみられる超伝導状態について研究を行った。その結果、タングステンの超伝導状態においては、通常のスピンシングレットの超伝導体においてみられるスピン吸収の抑制がみられないことが明らかになった。また、窒化モリブデンとの積層構造においては、超伝導転移温度の上昇がみられることがわかった。更に、強磁性体コバルトとの近接効果を調べたところ、タングステン上では窒化モリブデンに比べて臨界磁場が大きくなることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

社会の情報化が高度に発展する中で、従来の半導体デバイスを超えるような高効率な情報処理方法が模索されている。その中で現れてきたスピントロニクスや量子情報といった分野に貢献するべく、本研究は行われた。今回取り扱った超伝導体におけるスピン輸送については新たな情報処理技術につながる可能性があるものの未解明な部分があり、本研究の成果はその理解を進めることになると期待される。

研究成果の概要（英文）：In this project, we studied the superconducting states in tungsten with strong spin-orbit interactions for superconducting spintronics. In a tungsten, it was found that the spin absorption is not suppressed even under the superconducting state, implying that tungsten is not a conventional spin singlet superconductor. In addition, the superconducting transition temperature increases in the layered structure with molybdenum nitride. Furthermore, the proximity effect of ferromagnetic cobalt on superconducting was investigated, and it was found that the critical magnetic field of W/Co is larger than that of MoN/Co.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 超伝導 スピントリプレット

1. 研究開始当初の背景

電子の持つ性質の一つであるスピンの着目し、スピンを積極的に制御しようというスピントロニクス分野が大きな盛り上がりを見せており、スピンホール効果や、スピンゼーベック効果、スピン軌道トルク等、電子のスピンの重要な役割を果たす多彩な物理現象が発見され盛んに研究されてきている。その中で、スピンの散逸して情報を失うまでの長さであるスピン拡散長が多くの物質において非常に短いことが課題として存在していた。例えば、スピン拡散長は、典型的な良導体である Cu においても室温で数百 nm 程度に留まることが知られている。そのため、本研究課題においては、超伝導における電子スピンの振る舞いに焦点を当てた。超伝導体内では伝導電子のスピン緩和時間が長いことが既に知られており[1, 2]、更に、クーパ対によるスピン輸送が実現できれば、無散逸・長距離のスピン輸送が期待できる。

超伝導とスピンの関係についての研究は既に行われてきており、超伝導状態におけるスピン緩和時間の増大や、電流が物質中でスピン角運動量の流れであるスピン流に変換される現象であるスピンホール効果が、超伝導中では一定の条件で大きく増強されることが明らかとなってきた。これらの結果は、超伝導体がスピントロニクスの応用上においても有望であることを示している。しかしながら、それらの研究は超伝導体中において超伝導を担っているクーパ対ではなく、励起状態であるボゴリューボフ準粒子に焦点を当てて行われてきた。超伝導体中のボゴリューボフ準粒子はそれ自体物理として興味深い対象である。しかしながら、準粒子は有限の寿命を持ち、散乱を受け、またクーパ対ではないために超伝導の持つ量子性と電子のスピンの関係について調査するには適切ではない。そこで本研究では超伝導におけるクーパ対とスピンの関係を明らかにするべく、スピントリプレットと言われる状態の超伝導に焦点を当てた。

ほとんど全ての超伝導体では、クーパ対はそれを成す二つの電子のスピンの反平行を向くスピンシングレット状態にあると考えられている。これに対してスピントリプレット状態はクーパ対を成す二つの電子のスピンの平行にそろった状態であり、正味の角運動量を持つ。このため、スピントリプレット状態ではクーパ対によるスピン輸送、角運動量の輸送を期待することができる。

当初、このスピントリプレット状態を実現していると考えられる物質系が少数ながら存在していた[3]。その中でも、本研究では強磁性体への浸み出しによって現れるとされていたスピントリプレット超伝導を研究対象とした。超伝導体と常伝導金属の接合系ではクーパ対の浸み出しによって、常伝導金属側に超伝導が現れることが知られている。しかしながら、強磁性金属においてはスピンの平行にそろえる強力な交換結合が存在し、スピンシングレットのクーパ対は数 nm 程度しか浸み出せないと考えられている。ところが、超伝導/強磁性の接合において接合界面に磁化がねじれたような層を挿入することで、超伝導がスピンシングレットであってもクーパ対がねじられてスピントリプレットのクーパ対が出現することが理論的に提案された。その後、実際に、実験によっていくつかの物質系においてスピントリプレットによる可能性が高い強磁性への長い超伝導侵入長が観測された。しかしながら、これらの実験においては、超伝導についての情報は侵入長しかなく、スピンのトリプレットでありスピン輸送が起きるのかは調べられて来なかった。更には、磁化がねじれた層なしに長い侵入長が実現された系も発見され、そもそもこの長い侵入長が現れる条件も明らかではなかった。

2. 研究の目的

本研究では、スピントリプレット状態におけるスピン輸送の実現に向けて、強磁性/超伝導接合系における超伝導の振る舞いの理解を目的とした。それに向けて、強磁性/超伝導接合系としては、非常に長い超伝導侵入長が報告されている W/Co[3]に着目し、超伝導状態に対する強いスピン軌道相互作用の影響の理解や、その強磁性とのかかわりについて理解を深めることを指針として研究を行った。

3. 研究の方法

(1)当初、長い超伝導侵入長が報告されていた W/Co について、まずは超伝導となる W 側に着目し、その超伝導状態におけるスピン輸送の理解を深めるため、スピン注入の実験を行った。スピン注入では、超伝導に対する近接効果が少ないとされる非局所スピンバルブ構造を用いて実験を行っていった。通常、物質に対してスピンを注入する場合には強磁性体が用いられるが、強磁性体を直接対象物質に接合する場合には強磁性体による近接効果や、電流の分流などが結果に影響を及ぼす。非局所スピンバルブ構造では、強磁性体と対象物質を Cu 等の良導体で橋渡しすることによって近接効果の影響を抑えてスピンを注入することができる(図1)。

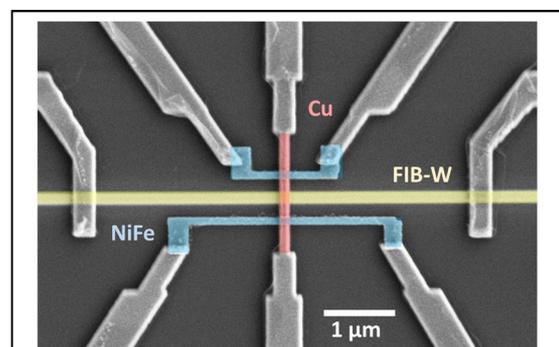


図1.素子の電子顕微鏡写真。強磁性体(青)から Cu(赤)を通して W(黄)にスピン流が流れる。

この構造を用いて、強磁性 Co との接合において長い超伝導侵入長が報告されていた収束イオンビームを用いて作製された W 細線の超伝導状態におけるスピン吸収とスピン吸収に伴って生じる起電力について調査を行った。

(2)(1)の収束イオンビームによって製膜した W についての結果を受けて、スパッタ製膜した W について多層膜における超伝導状態について調査を行った。スパッタ製膜した W は、十分に厚みが薄い場合には 相であるが、ある程度の厚み以上になると 相へと相転移を起こし、スピンホール効果の大きさを示すスピンホール角が小さくなることや、また超伝導転移温度が 相に比べて 相ではかなり小さくなることが知られていた。非局所スピンバルブ構造は、物質のスピン物性を調べるには適した構造ではあるものの、加工技術の制約によって、対象物質の厚みがある程度以上である必要がある。そこで、スパッタ製膜した W については、多層膜を作製し強いスピン軌道相互作用が超伝導状態へと及ぼす影響を調査した。

(3)(2)における W 多層膜の超伝導についての結果を受けて、同様の多層膜について、強磁性体との接合によって超伝導がどのような影響を受けるか調査を行った。これは、当初着目していた収束イオンビームで製膜された W については強磁性体への超伝導侵入長が非常に長いことが知られていた系からの類推で、スパッタ製膜した W について、強磁性体との接合においてもスピントリプレット状態の超伝導が実現されていることを期待したものである。

4. 研究成果

(1)収束イオンビームによって作製した W について、非局所スピンバルブによるスピン吸収の実験を行った。その結果、超伝導転移温度前後において、スピン吸収の大きさが変わらないことが明らかになった。スピンシングレット状態の超伝導体窒化ニオブ NbN においては、超伝導転移によってスピン吸収が抑制されることが知られている。これは、電子が超伝導体中にクーパ対を形成して侵入する場合には、対を作る電子のスピンが反平行のスピンシングレット状態のクーパ対を作り出す必要があるため、クーパ対となって持ち去られる正味のスピンの量は 0 となり、スピンが偏った状態が解消されないことを意味している。このことを踏まえ、W において超伝導転移によるスピン吸収の抑制がみられないことは、W 中にスピントリプレット状態としてスピンが吸収されている可能性を示唆している。これが真実であるとする、強磁性体/超伝導体接合におけるスピントリプレット状態の生成に新たな側面を付け加える成果と言えます。超伝導スピントロニクスへの更なる研究の進展につながると考えられる。ただし、この結果には二つ注意が必要な点がある。一つは、超伝導状態においても、スピン吸収が起きるメカニズムが知られている点である。これは、超伝導励起状態であるボゴリューボフ準粒子としてスピンが持ち去られる場合があるため、0 でないスピン吸収が起きるというメカニズムである。これによるスピン吸収では、電子が励起状態として超伝導体に侵入する必要があるために、超伝導ギャップの大きさにスピン吸収の大きさが依存する。従って、何らかの原因で W 表面において超伝導ギャップが極めて小さくなるようなことが起きると、この結果を説明する可能性がある。もう一つは、W を製膜するために収束イオンビームを用いた場合に、製膜された W 以外の部分に残留した物質の影響で比較的大きなスピン吸収が起きることがあることが、後の実験で明らかになったことである。スピン吸収の内大きな部分が W 以外の部分で起きている場合には測定精度の問題で超伝導転移によるスピン吸収の抑制が観測されない可能性がある。いずれにしても、収束イオンビームを用いて製膜した W へのスピン吸収については更なる研究が必要である。

(2)収束イオンビームを用いた W へのスピン吸収の実験から残留物資の影響が大きいことが明らかになったため、製膜方法としてスパッタを用いた W についても、多層膜の超伝導状態を調査した。スパッタ製膜した W には二つの相、相と相があり、膜厚が薄い場合に現れる相ではスピンホール効果が大きく、また超伝導転移温度も高いことが知られている。そのため、相の W を対象の物質とした調査を行った。相が出現する厚みは 5 nm 未満の領域に限られるが、超伝導体に一般的な性質として厚みが薄くなることで超伝導転移温度が低下するため、その領域における転移温度は 1.5 K 以下程度となり、装置の関係上簡単に測定ができなかった。そのため、超伝導体として知られている窒化モリブデン MoN 層の上に W を製膜した二層膜について、その転移温度や臨界磁場を調査した。その結果、MoN/W 二層膜の超伝導転移温度は合計膜厚が同じ大きさの MoN 単層膜よりも大きな転移温度を示すことが明らかになった。さらにその転移温度はバルクの相 W で報告されている転移温度よりも高いため、二層膜であることが転移温度の向上に影響している可能性を示している。W 等の重い金属層と別の物質による界面にはその大きなスピン軌道相互作用と構造の非対称性に起因してスピンと運動量が結びつく特殊な電子状態が現れるとされており、更にその電子状態において現れる特殊な超伝導体についても研究が行われてきている。この結果は界面に発生する特殊な超伝導状態についての発展を促すものと期待される。

(3)(2)で構造に起因した転移温度の上昇が確認された MoN/W 二層膜について、その上に強磁性体の Co を更に積層させることで、超伝導状態に対する強磁性体の近接効果について調査を行った。MoN や、MoN/Cu、MoN/W いずれについても Co を上に積層することで超伝導転移温度が低下す

る傾向が見られた。これは、強磁性体である Co の近接効果によって、超伝導状態が壊される傾向があることを示している。このとき、二層膜 MoN/Co と三層膜 MoN/W/Co においては超伝導転移温度に系統的な差は見られなかった。一方で、超伝導転移温度がほとんど同じであるにもかかわらず、MoN/Co に比べて MoN/W/Co では臨界磁場が大きくなることが明らかになった。この結果については、MoN/Co と MoN/W/Co について、強磁性接合による超伝導への影響が異なっていることを示しており、スピントリプレット状態との関連が疑われ、今後の研究の進展が期待される。

< 参考資料 >

- [1] S. Takahashi, et al., Phys. Rev. Lett. 82, 3911 (1999).
- [2] H. Yang, et al., Nature Materials 9, 586 (2010).
- [3] J. Wang, et al., Nature Physics 6, 389 (2010).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ishikuro Yuto, Kawaguchi Masashi, Lau Yong-Chang, Nakatani Yoshinobu, Hayashi Masamitsu	4. 巻 11
2. 論文標題 Domain-wall resistance in CoFeB-based heterostructures with interface Dzyaloshinskii-Moriya interaction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 073001 ~ 073001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.7567/APEX.11.073001	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 Marui Yukihiro, Kawaguchi Masashi, Hayashi Masamitsu	4. 巻 11
2. 論文標題 Optical detection of spin-orbit torque and current-induced heating	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 093001 ~ 093001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.7567/APEX.11.093001	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 Hirose Hana, Ito Naoto, Kawaguchi Masashi, Lau Yong-Chang, Hayashi Masamitsu	4. 巻 113
2. 論文標題 Circular photogalvanic effect in Cu/Bi bilayers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 222404 ~ 222404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1063/1.5047418	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 Ishikuro Yuto, Kawaguchi Masashi, Kato Naoaki, Lau Yong-Chang, Hayashi Masamitsu	4. 巻 99
2. 論文標題 Dzyaloshinskii-Moriya interaction and spin-orbit torque at the Ir/Co interface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134421-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.134421	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 Kawada Takuya, Kawaguchi Masashi, Hayashi Masamitsu	4. 巻 99
2. 論文標題 Unidirectional planar Hall voltages induced by surface acoustic waves in ferromagnetic thin films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184435-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.184435	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 Kato Naoaki, Kawaguchi Masashi, Lau Yong-Chang, Kikuchi Toru, Nakatani Yoshinobu, Hayashi Masamitsu	4. 巻 122
2. 論文標題 Current-Induced Modulation of the Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya Interaction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 257205-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.257205	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 Lau Yong-Chang, Chi Zhendong, Taniguchi Tomohiro, Kawaguchi Masashi, Shibata Goro, Kawamura Naomi, Suzuki Motohiro, Fukami Shunsuke, Fujimori Atsushi, Ohno Hideo, Hayashi Masamitsu	4. 巻 3
2. 論文標題 Giant perpendicular magnetic anisotropy in Ir/Co/Pt multilayers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 104419-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.104419	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 Ishikuro Yuto, Kawaguchi Masashi, Taniguchi Tomohiro, Hayashi Masamitsu	4. 巻 101
2. 論文標題 Highly efficient spin-orbit torque in Pt/Co/Ir multilayers with antiferromagnetic interlayer exchange coupling	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 014404-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.014404	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 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 河口真志、丸井幸博、廣瀬葉菜、林将光
2. 発表標題 光によるスピン軌道物理の観測
3. 学会等名 日本磁気学会 第220回研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 河口真志、丸井幸博、廣瀬葉菜、川田拓弥、梶山陸、林将光
2. 発表標題 光で観るスピン軌道相互作用
3. 学会等名 応用物理学会スピントロニクス研究会日本磁気学会スピントロニクス専門研究会共同主催研究会「スピンオービトロニクスの新展開」（招待講演）
4. 発表年 2019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
---------------------------	-----------------------	----