

令和 6 年 6 月 22 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13883

研究課題名(和文) ノンコリニア磁性による超伝導の制御

研究課題名(英文) Control of superconductivity by noncollinear magnetism

研究代表者

成田 秀樹(Narita, Hideki)

京都大学・化学研究所・特定助教

研究者番号：80846709

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ノンコリニア(非共線的)な磁気構造による超伝導の制御に向けて、強磁性体、超伝導体、重金属等を含む試料作製を行い、磁性と超伝導の制御を行った。その結果、空間反転対称性の破れた強磁性/超伝導積層膜では、ゼロ磁場において強磁性体の磁化と電流方向に依存して、臨界電流に非相反性が生じる超伝導ダイオード効果を観測することに成功した。また、磁気ドメインやバンド構造の非対称性の制御が超伝導の制御に有効であることを示唆する結果も得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ノンコリニア磁性と超伝導の共存に向けて作製した空間反転対称性の破れた強磁性/超伝導積層膜において、ゼロ磁場超伝導ダイオード効果が観測された。この成果により、ゼロ磁場で超伝導状態のON/OFFが可能となった。したがって、さらにノンコリニア磁性の自由度を導入することは、制御パラメータが増えるだけでなく、漏洩磁場による素子特性の低下を抑制し、超伝導素子の集積化にも有利となることが期待される。また、磁気ドメインやバンド構造の非対称性が超伝導の制御に有効であることを示唆する結果を得たことは、新奇な超伝導素子開発の設計指針となる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have prepared samples containing ferromagnets, superconductors, and heavy metals to control magnetism and superconductivity toward the control of superconductivity by non-collinear magnetic structures.

As a result, we succeeded in observing the superconducting diode effect in ferromagnetic/superconducting multilayers with broken spatial inversion symmetry, in which the critical current is non-reciprocal depending on the magnetization and current direction of the ferromagnet at zero magnetic field. The complex non-reciprocal critical current behavior suggests that it reflects the complexity of the magnetic domains.

The results also suggest that the control of magnetic domain and band structure asymmetry is effective in controlling superconductivity.

研究分野：物性物理学

キーワード：超伝導 ノンコリニア磁性 強相関電子系 スピントロニクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

磁性による超伝導の制御は、低消費電力で動作する超伝導量子コンピュータの応用に向けての重要な技術であるが、一般的な超伝導体は電子間引力を起源とし、磁性は電子間斥力を起源とするため、相反する特性を制御する必要がある。超伝導デバイスの1つである強磁性ジョセフソン接合素子(超伝導/強磁性/超伝導)は、外部磁場無しで両側の超伝導体におけるクーパ対の位相差が、180度だけ異なった状態を実現することが期待される。超伝導体は位相を持ち、弱く結合した2つの超伝導体間に位相差がある場合には、トンネル効果によって位相差に依存したジョセフソン電流が流れる。したがって、このジョセフソン効果を応用すると、磁束を高感度に検出できる超伝導量子干渉計や、多数の電子のコヒーレントな状態で構成される超伝導量子ビットに応用できる可能性がある。

しかし、従来の強磁性ジョセフソン接合素子では、位相の振る舞いは強磁性層の厚さや動作温度で決定づけられており、磁性ジョセフソン接合素子の制御に有効なパラメータの開拓が課題となっている。また、強磁性体は超伝導特性の抑制や、強磁性体からの漏洩磁場によって素子の特性劣化や集積化に限界があるといった課題がある。

一方で、反強磁性の一種であるノンコリニア(非共線的)磁性を用いると、磁気構造におけるヘリシティに関連する自由度等によって超伝導を制御できる可能性が指摘されている。しかし、これまでに超伝導との接合に適したノンコリニア磁性積層薄膜はほとんどなかった。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、ノンコリニアな磁気構造におけるヘリシティに関連する自由度等が、超伝導の位相制御や超伝導状態のON/OFFや超伝導流制御に有効であることを実証することである。

本研究では、従来にはない強磁性体、超伝導体、重金属等を組み合わせた試料において、膜厚、積層順序、積層回数といった自由度も駆使し、ノンコリニア磁気構造と超伝導を共存させた磁性ジョセフソン接合素子を作製することを目指した。

### 3. 研究の方法

本研究では、典型的な強磁性体(Fe, Co, Ni 等)、超伝導体(Nb, V, Ta 等)、重金属(Pt 等)を組み合わせた磁性/超伝導積層膜を作製した。

最初に強磁性と超伝導が共存する試料を作製し、その後、膜厚調整に加え、磁気結合を変調する中間層や隣接する層にスピン軌道相互作用の大きいPt等の重金属を挿入することで、スピンを「ひねる」効果を生み出すジャロシンスキー-守谷(DM)相互作用を顕在化させて、ノンコリニア磁性による超伝導の制御を目指した。代表的な強磁性体としては、磁気モーメントの小さい順にニッケル(Ni)、コバルト(Co)、鉄(Fe)が挙げられるが、一般に強磁性体と超伝導体を組み合わせると、超伝導転移温度( $T_c$ )が低下する傾向がある。そのため、ナノスケールオーダーの超伝導層に対して、強磁性層はできるだけ薄い方が望ましい。しかし、強磁性層がナノスケールオーダーになると強磁性としての特性を失うため、強磁性と超伝導を共存させるために、両者の膜厚のバランスを調整した。

超伝導特性の評価には、超伝導転移温度( $T_c$ )、臨界電流、臨界磁場測定が有効であるが、時間・空間反転対称性が同時に破れた場合は、ある方向に電流を流した場合には超伝導状態(ゼロ抵抗の状態)になり、逆向きの電流の場合には、常伝導状態(有限抵抗の状態)になる超伝導ダイオード効果の観測が期待できる。したがって、非対称な多層膜構造や超格子構造の試料では、超伝導ダイオード効果を利用し

て、磁性と超伝導の評価も行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) Co を挿入した超伝導多層膜の作製

超伝導体であるニオブ (Nb)、バナジウム (V)、タンタル (Ta) の膜厚を 4.5 nm に固定し、バナジウム (V) の間に強磁性の臨界膜厚に近い厚さの強磁性体 (FM = Ni, Co, Fe) を挿入し、[Nb/V/FM/V/Ta] から成る多層膜を作製し、強磁性と超伝導の共存を試みた。

その結果、Co (1.7 nm) を挿入した [Nb(4.5 nm)/V(4.5 nm)/Co(1.7 nm)/V(4.5 nm)/Ta(4.5 nm)]<sub>20</sub> では、 $T_c$  は 2.6 K であり、 $T_c$  前後の磁化測定から強磁性と超伝導が共存する試料が作製できていることが確認できた。Co の磁化測定から、正方向の臨界電流密度と負方向の臨界電流密度の差分である非相反臨界電流密度の磁場依存性は、磁場に対して符号反転を伴う複雑な振る舞いをするのが分かった。この複雑な非相反臨界電流の振る舞いは、磁気ドメインの複雑さを反映している可能性がある。一方で、Co の磁化変化のマイナーループを利用すると、臨界電流密度および非相反臨界電流密度の磁場依存性が磁場方向に対してシフトし、ゼロ磁場においても有限の非相反臨界電流密度が得られた。さらに、磁化方向の正負で超伝導ダイオード効果の極性を制御することができるという新しい知見を得た。

この結果は、時間・空間反転対称性の破れを利用することで、超伝導状態の ON/OFF や超伝導流制御ができることを示している。今後、さらに磁性層の膜厚や組み合わせを最適化していくことは、ノンコリニア磁性の持つヘリシティに関連する自由度や、磁気ドメインを用いた超伝導の新しい制御パラメータの開拓に有効であると考えられる。

##### (2) Fe と Pt を挿入した超伝導超格子の作製

また、Co を挿入した系の実験結果を踏まえ、超伝導を維持できるように Fe の膜厚を薄くし、超格子中における Fe の割合を減らすために挿入回数を減らすことを試みた。重金属である Pt を組み合わせた Pt/Fe/Pt というユニットを超伝導体と組み合わせることで、Fe から直接的にクーパ対に交換磁場を作用させるのではなく、Pt に Fe からの近接効果による磁気モーメントを誘起し、Pt を介してクーパ対に効果的に交換磁場とスピン軌道相互作用を作用させることを目指した。

その結果、ゼロ磁場における巨大な非相反臨界電流の観測とその磁化制御に成功した。この巨大な非相反性は、第一原理計算の結果を踏まえると、電子バンドが非対称になっており、クーパ対に対して交換磁場とスピン軌道相互作用が効果的に作用していることを示唆している。

上記の Co 系と Fe/Pt 系の試料は、ノンコリニア磁性と超伝導が共存する試料作製の過程で得られたものであるが、強磁性による超伝導状態の ON/OFF や超伝導流制御を実証することに成功した。

また、ジョセフソン接合素子の作製手法を確立し、ノンコリニア磁性が期待される Co 系と Fe/Pt 系の試料等を用いたジョセフソン接合素子を作製したが、位相の変化の証拠となる臨界電流密度の温度依存性に現れるディップ構造の観測には至らなかったため、さらなる試料、素子加工プロセスの最適化が必要だと考えられる。

一方で、磁気ドメインや多極子秩序が超伝導の制御に有効な新しい制御パラメータになりうることを示すことができた。これらの自由度に加え、ノンコリニア磁性のヘリシティに関連する自由度をさらに組み合わせることは、超伝導デバイスの新機能を開拓する上で有効であると考えられる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Narita Hideki, Ishizuka Jun, Kan Daisuke, Shimakawa Yuichi, Yanase Youichi, Ono Teruo	4. 巻 35
2. 論文標題 Magnetization Control of Zero Field Intrinsic Superconducting Diode Effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adma.202304083	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 Sekiguchi Fumiya, Narita Hideki, Hirori Hideki, Ono Teruo, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 15
2. 論文標題 Anomalous behavior of critical current in a superconducting film triggered by DC plus terahertz current	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-024-48738-8	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 -

1. 著者名 Narita Hideki, Ishizuka Jun, Kawarazaki Ryo, Kan Daisuke, Shiota Yoichi, Moriyama Takahiro, Shimakawa Yuichi, Ognev Alexey V., Samardak Alexander S., Yanase Youichi, Ono Teruo	4. 巻 17
2. 論文標題 Field-free superconducting diode effect in noncentrosymmetric superconductor/ferromagnet multilayers	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 823 ~ 828
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41565-022-01159-4	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 該当する

1. 著者名 H. Narita, T. Ono	4. 巻 2024
2. 論文標題 Superconducting diode effect in artificial superlattices	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 JSAP Review	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11470/jsaprev.240206	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 成田秀樹, 小野輝男	4. 巻 93
2. 論文標題 人工超格子における超伝導ダイオード効果	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 応用物理	6. 最初と最後の頁 82-88
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11470/oubutsu.93.2_82	査読の有無 無
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18件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 Zero-field superconducting diode effect in ferromagnet-superconductor hybrids
3. 学会等名 The Superconducting spintronics 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Narita, J. Ishizuka, R. Kawarazaki, D. Kan, Y. Shiota, T. Moriyama, Y. Shimakawa, A. V. Ognev, A. S. Samardak, Y. Yanase, T. Ono
2. 発表標題 Field-free superconducting diode effect in polar superconductor/ferromagnet multilayers
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Narita, J. Ishizuka, R. Kawarazaki, D. Kan, Y. Shiota, T. Moriyama, Y. Shimakawa, A. V. Ognev, A. S. Samardak, Y. Yanase, T. Ono
2. 発表標題 Superconducting Diode Effect in Ferromagnet-inserted Noncentrosymmetric Superconducting Multilayers
3. 学会等名 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM)2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 河原崎 諒, 菅 大介, 塩田 陽一, 森山 貴広, 島川 祐一, A. V. Ognev, A. S. Samardak, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 強磁性ドーピングした超伝導多層膜における非相反臨界電流
3. 学会等名 応用物理学会 2022年年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 Control of the superconducting diode effect by ferromagnetic materials
3. 学会等名 28th Vortex Physics Workshop Japan (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 Zero-field superconducting diode effect in superconducting/ferromagnetic multilayers
3. 学会等名 KIKEN workshop 2022 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 超伝導/強磁性多層膜におけるゼロ磁場超伝導ダイオード効果
3. 学会等名 第6回 高温超伝導フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 菅 大介, 島川 祐一, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 Fe系超伝導超格子における非相反臨界電流
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 河原崎 諒, 菅 大介, 塩田 陽一, 森山 貴広, 島川 祐一, A. V. Ognev, A. S. Samardak, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 超伝導/強磁性多層膜における超伝導ダイオード効果
3. 学会等名 応用物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 河原崎 諒, 菅 大介, 塩田 陽一, 森山 貴広, 島川 祐一, A. V. Ognev, A. S. Samardak, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 極性構造を持つ超伝導/強磁性多層膜における超伝導ダイオード効果
3. 学会等名 NanospecFY2021mini
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 河原崎 諒, 菅 大介, 塩田 陽一, 森山 貴広, 島川 祐一, A. V. Ognev, A. S. Samardak, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 極性ハイブリッド超伝導多層膜における非相反臨界電流の磁化制御
3. 学会等名 日本物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 河原崎 諒, 菅 大介, 塩田 陽一, 森山 貴広, 島川 祐一, A. V. Ognev, A. S. Samardak, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 Field-free superconducting diode effect in noncentrosymmetric superconductor/ferromagnet multilayers
3. 学会等名 The 24th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (ICMFS-2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 関口 文哉, 成田 秀樹, 廣理 英基, 小野 輝男, 金光 義彦
2. 発表標題 テラヘルツ励起による超伝導ダイオードの臨界電流変化
3. 学会等名 日本物理学会 2023年年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 成田 秀樹, 石塚 淳, 菅 大介, 島川 祐一, 柳瀬 陽一, 小野 輝男
2. 発表標題 多元素超格子における超伝導ダイオード効果の磁化制御
3. 学会等名 日本物理学会 2023年年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 H. Narita, J. Ishizuka, D. Kan, Y. Shimakawa, Y. Yanase, T. Ono
2. 発表標題 Control of non-reciprocal current by ferromagnetism
3. 学会等名 InterMag2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 成田 秀樹
2. 発表標題 ゼロ磁場超伝導ダイオード効果
3. 学会等名 超伝導分科会 第68回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 Magnetization control of zero-field superconducting diode effect
3. 学会等名 The 36th International Symposium on Superconductivity (ISS2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 H. Narita
2. 発表標題 Magnetization-mediated superconducting diode effect
3. 学会等名 11th International Symposium on Metallic Multilayers (MML 2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023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
---------	---------