超伝導体中の準粒子スピン流による巨大スピンホール効果

ナノスケール物性研究部門 若村 太郎 (現パリ南大学)、大谷 義近

研究の背景

電子が持つ2つの自由度のうち、電荷の自由度に加え、スピンの自由度も利用し新たなエレクトロニクスの構築を目指 すスピントロニクスは、物理学的な興味深さと、より省エネルギーなエレクトロニクスデバイスの実現への期待から、基 礎と応用の両面で近年盛んに研究が行われている。

スピントロニクスで特に重要な量として、上向きスピン(以下、↑スピン)と下向きスピン(同↓スピン)が逆方向に流れ、 実効的に電流は打ち消し合いスピン角運動量の流れのみが生成される純スピン流がある(図 1a)。この純スピン流は、強 磁性体/非磁性体(F/N)接合に電流を流すことによって生成することが可能である(図 1b)。強磁性体中を流れる電流は磁化 の存在によりスピン偏極しているため、電流を構成する↑スピンと↓スピンの数が異なる。一方、非磁性体中では平衡状 態でスピン偏極は存在しないため、↑スピンと↓スピンの数は等しいが、この 2 つの物質の間に電流(スピン注入電流 *D*) を流した場合、強磁性体中における電流のスピン偏極を反映して、非磁性体中においても強磁性体との接合部近傍で↑ス ピンと↓スピンの数が異なる領域が生じる。↑スピンと↓スピンの数は、非磁性体中の F/N 接合から十分離れた領域で は等しくなければならないので、F/N 接合近傍と十分離れた領域との間でスピンの拡散が起きる。図 1b では、F/N 接合 右側の電流が流れていない領域においても↑スピンは濃度が高い接合部分から濃度が低い右側に拡散し、一方↓スピンは 右側から接合部分へ拡散する。この領域では電流は 0 であるが、電子のスピン角運動量の流れ(純スピン流)が生じてい る。

これと異なる手法として、スピンホール効果を用いて純スピン流を生成することも可能である。スピンホール効果は、 スピン軌道相互作用の強い物質に電流を流すと、軌道運動とスピン方向の結合によりスピンの向きに応じて電子の軌道が 曲げられ、電流(Jc)と垂直方向に純スピン流(Js)が生成される現象である(図 1c)。同様の機構により純スピン流を電流に 変換することも可能であり、これを特に逆スピンホール効果と呼ぶ。

このように、F/N接合やスピンホール効果を用いて効率的に純スピン流を生成し、また伝達・検出することはスピントロ ニクスの重要な課題の一つであり、そのために金属や半導体2次元電子ガス、グラフェンといった様々な物質のスピン輸送特 性の研究がこれまで行われてきた。特に、スピンホール効果は磁性体を用いずに容易に電流-純スピン流変換が可能であるた め、スピン軌道相互作用の強い白金やタンタルといった金属でそのスピンホール効果の大きさの評価がなされてきた。



図 1: a, スピン偏極電流とスピン流の概念図。太い矢印は電子の流れる方向を表す。b, 強磁性体/非磁性体接合を用いた純スピン流生成素子。非磁性体中の接合部より右側では↑スピンは左から右に、↓スピンは右から左に流れる。 c, スピンホール効果の概念図。

しかしながら、上記のような常伝導状態の金属やグラフェンといった新物質に比べ、超伝導体中におけるスピン輸送現 象に関する研究(特に実験的研究)に関してはその数が極めて少ない。一方、理論的な研究はいくつか行われており、例え ば超伝導状態におけるスピン緩和時間の増大が予測され[1]、本研究室でその実験的実証に成功した[2]。また特にスピン ホール効果については、超伝導状態でその大きさが非常に増大することが理論的に予測されているため[3]、応用面から も超伝導体中でのスピン輸送、スピンホール効果に関する研究は重要な課題と言える。

本稿では、これまで本研究室で得られた超伝導体中へのスピン注入に関する知見をもとに、今回我々が観測に成功した 超伝導体中でのスピンホール効果に関する実験結果を超伝導体中でのスピン輸送の概念とともに解説する。

実験結果

本研究では、スピン軌道相互作用が強いニオブの合金である窒化ニオブ(NbN)を超伝導体として使用し、NbN に超伝 導状態と常伝導状態の両方でスピン注入を行い、逆スピンホール効果によって生成される信号が超伝導状態と常伝導状態 でどのように変化するのかについて考察した。図 2a に実験で用いた素子の概略図を示す。この素子は強磁性体(ニッケル-鉄合金、Py: Permalloy)/非磁性体(銅、Cu)/超伝導体(NbN)で構成され、強磁性体/非磁性体間に電流(スピン注入電流 *D*を 流すことにより、強磁性体/超伝導体部分を架橋する Cu 中に純スピン流が生成される。生成された純スピン流は非平衡状 態にあり、急速に緩和することでエネルギー利得が高くなるため、スピン軌道相互作用が小さい Cu の下に NbN などス ピン軌道相互作用が大きい物質を挿入すると、Cu 中を流れるスピン流の一部は NbN に吸収される。このような手法を 用いることにより、スピン軌道相互作用が大きい物質に純スピン流を注入することが出来る(スピン吸収法)。注入された スピン流は、NbN 中で逆スピンホール効果により電流に変換され、NbN 両端に電圧を生じる。注入されたスピン流の向き をベクトルで Js、スピン偏極方向を s、逆スピンホール効果によって生じる電流を Jc とすると、これらの間の関係は

 $\mathbf{Jc} \propto \mathbf{s} \times \mathbf{Js}$ (1)

で表される。NbN の強いスピン軌道相互作用により、スピン流は NbN に吸収された直後、面内方向に広がる前に緩和し 電流に変換されてしまうため、Js の向きは図 2a で NbN/Cu 界面に垂直方向になる。このため NbN の長軸方向の両端で 電圧を観測するためには、(1)の関係から s の向きを NbN の長軸方向に垂直に向ける必要がある。s はスピン流を発生さ せる強磁性体の磁化方向を反映するため、実際の測定では強磁性体の長軸方向に垂直方向に面内外部磁場 H を印加し、s の方向に対する NbN 両端の電圧の依存性を測定することにより、逆スピンホール信号が得られる。

まず初めに、この素子の NbN の超伝導転移温度(*T*_C = 10 K)よりも高い温度(20 K)における常伝導状態の NbN の逆ス ピンホール信号を図 2b 上に示す。NbN 細線両端に生じる電圧をスピン注入電流で規格化した逆スピンホール信号は、強 磁性体の磁化状態を反映して外部磁場の負側と正側で逆符号を生じ、また強磁性体の磁化が飽和する磁場以上の磁場では s の向きも一定となるため、一定の信号を生じる。強磁性体の磁化状態との対応は、図 2b 下の強磁性体の異方性磁気抵抗 効果との対応からも分かる。



図 2: a, 超伝導 NbN における逆スピンホール効果観測のための素子構造。b, *T* = 20 K での逆スピンホール信号(上図)と Py の異方性磁気抵抗(下図)。c, *T* = 3 K での逆スピンホール信号(赤線)と比較のための *T* = 20 K での逆スピンホール信号(青線、緑線)。d, *T* = 3 K と *T* = 20 K での逆スピンホール信号のスピン注入電流(*I*)依存性。

次に、素子を $T_{\rm C}$ よりも十分低温の 3 K まで冷却し、同様の測定を行った。その結果、超伝導状態の NbN においても 逆スピンホール信号を観測し、さらにスピン注入電流 I を小さくしていくにつれ、逆スピンホール信号は大きく増大した (図 2c)。特に I=10 nA では逆スピンホール信号が常伝導状態のそれに比べ 2000 倍以上になった (図 2d)。このような逆 スピンホール信号の異常な電流依存性は常伝導状態の同様の実験では観測されなかった (図 2c, d)。

超伝導状態で観測された信号が実際に逆スピンホール効果に由来するものであるかどうかを調べるため、式(1)に従い 信号の外部磁場角度依存性について測定した。角度 θ を図3a挿入図のように定義すると、逆スピンホール信号は $\Delta R_{ISHE}(\theta) = \Delta R_{ISHE} (\theta=0)sin\theta$ のように θ に対して正弦曲線を描く(ΔR_{ISHE} は図2bのように定義)。外部磁場の角度を変え、 測定された信号を角度 θ に対してプロットすると、図3aのように測定された信号は実際に正弦曲線(青い太線)に非常に 良く一致した。このことからも、測定された信号が逆スピンホール効果に由来するものであることが分かる。



図 3: a, 超伝導状態で観測された信号の角度依存性(赤点)と理論から予想される正弦曲線(青線)。b, T=3Kにおける2つの 異なる *d*を持った素子からの逆スピンホール信号。c, 同、T=20Kにおける2つの素子の逆スピンホール信号。

続いて、超伝導が測定された信号にどのように影響を与えているかについて調べた。NbN のような通常の金属超伝導 体では、電子はスピン一重項クーパー対を組んでおり、これらはスピン角運動量を運ぶことができない。そのため、超伝 導体中でのスピン輸送は超伝導準粒子が担うことになる。Cu から NbN に注入された純スピン流は、逆スピンホール効 果によって準粒子流へと変換され、NbN 細線の長軸方向へ拡散していく。超伝導準粒子は電子的励起と正孔的励起の重 ね合わせとして存在し、有限温度においてクーパー対の一部が壊れ準粒子が励起された平衡状態ではこの2つの励起が等 しく存在しているため、実効的な電荷は存在しない。一方逆スピンホール効果によって余分な準粒子流が生じた場合、こ の平衡状態が破れ、準粒子の化学ポテンシャルは平衡状態からずれるため、電子的励起と正孔的励起との間で電荷不均衡 状態が生まれる。この準粒子の化学ポテンシャルは、超伝導体にトンネル接合を介して常伝導体を用いた電極を取り付け ることにより測定することが出来る。超伝導体内部には電場は存在しないため、超伝導体では逆スピンホール効果によっ て生成された準粒子の化学ポテンシャルを検出することにより、スピンホール効果の存在を確認することが可能である [3]。本研究に用いた素子では、NbN/Cu界面に NbN の絶縁性の膜が生じていることが想定されるため、本研究で Cu電 極を用いて測定された信号も、逆スピンホール効果によって生じた準粒子の化学ポテンシャルを測定していると考えられ る。この測定される準粒子の化学ポテンシャルの大きさは、電荷不均衡状態の緩和により、逆スピンホール効果が生じて いる部分(ここでは NbN/Cu 接合直下)から Cu 電極までの距離(以下、d とする)に依存する。常伝導金属に於いては d に 対する信号の依存性は存在しないため、信号のは依存性を調べることにより、超伝導がこの現象に実際に寄与しているか どうかを調べることが出来る。以上の想定を元に、我々は2つの異なるdをもつデバイスの信号を比較した。ここで基準 となる準粒子の非平衡状態にある化学ポテンシャルが緩和する長さとして、Al の電荷不均衡長(5 μm)を用いた。この値 を参考に、d の値として一つの素子では d = 400 nm とし、もう一つの素子では d =10 μm とした。NbN の電子-フォノ ン結合は Al のそれよりも強いため、NbN の電荷不均衡長は Al のものよりも小さくなることが考えられるが、2 つのデ バイスの d の値は大きく異なるため、その場合でも測定される信号に差を見ることが可能である。図 3b に、NbN が超伝 導状態にある場合の信号を示す。d = 400 nm の素子が大きな信号を示しているのに対し、d = 10 μm の素子ではそのよ

うな信号を確認出来ない。一方、図 3c のように、NbN が常伝導状態にある場合には 2 つの素子から測定された信号はほぼ同様の値を示した。このことからも、超伝導がこの巨大な逆スピンホール信号の観測に寄与していることが確認された。

まとめ

紙面の都合により駆け足となってしまったが、本稿では超伝導NbNにおける巨大なスピンホール効果の観測について 解説した。実験結果については、特に超伝導状態における逆スピンホール信号の異常な電流依存性を既存の理論で全て説 明することが出来ず、今後の理論研究が待たれる。また実験面では、NbN/Cu界面の制御が本効果の測定において非常に 重要であり、またこれにより超伝導近接効果を正しく評価することが出来ることから、安定したNbN/Cu界面の作製は今 後の素子作製での課題である。本稿で取り上げることの出来なかった本研究成果の詳細については[4]を参照されたい。

謝辞

本研究は東京大学物性研究所大谷研究室と名古屋大学工学研究科藤巻研究室赤池宏之准教授、藤巻朗教授、東北大学金 属材料研究所 Bauer 研究室の高橋三郎助教、日本原子力研究機構先端基礎研究センターの前川禎通センター長との共同 研究として行われました。素子作製の面では特に赤池准教授に様々なアドバイスを頂き、またニオブやニオブ系合金の特 性や加工に関する有益な情報を教えていただきました。本研究の元となる理論提言を行なわれた高橋助教、前川センター 長には実験データに関する理論的解釈の点でお力添えを頂きこの場を借りて御礼申し上げます。また大谷研究室の新見康 洋元助教(現大阪大学准教授)、大森康智君(大学院博士課程)には一部計算や実験結果に関する議論など研究の様々な面で ご協力いただきました。感謝申し上げます。

- [1] T. Yamashita, S. Takahashi, H. Imamura and S. Maekawa, Phys. Rev. B 65 172509 (2002).
- [2] T. Wakamura et al., Phys. Rev. Lett. 112, 036602 (2014).
- [3] S. Takahashi and S. Maekawa, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 010110 (2012).
- [4] T. Wakamura et al., Nat. Mater. 14, 675 (2015).