

氏名	新見 康洋
所属機	大阪大学 大学院理学研究科
研究題	2次元超伝導体を用いた革新的スピントロニクスデバイスの創製

## 1. 研究の目的

スピントロニクスとは、電子の持つスピンの自由度を用いてエレクトロニクスを創出する新しい研究分野であり、21世紀に入って世界的に急進展している。その根幹を担うのが、スピン角運動量の流れ「スピン流」である。スピン流は電荷の流れを伴わないため、次世代低消費電力デバイスへの応用が期待され、さまざまな分野で研究が進んでいる。

スピン流の生成・検出を可能にするのが、「スピンホール効果」である。スピンホール効果とは、スピン軌道相互作用の強い非磁性金属や半導体に電流を流すと、スピナップとスピンドアウンの電子が、電流及びスピンの向きと直交する方向に散乱されて、スピン流を生成する現象のことで、逆にスピン流を流すと電流に変換されるため、スピン流の電氣的検出が可能となる。

これまでに、さまざまな物質でスピンホール効果が観測され、そのスピン流-電流変換効率が議論されてきたが、その大きさは高々数%程度に留まっている。従来のエレクトロニクスデバイスを凌駕するためには、更なる変換効率の上昇が不可欠である。

そこで本研究課題では、超伝導転移する物質を用いて、スピン流-電流変換効率を劇的に上昇させることを目的とする。特に、超伝導転移する原子層物質を用いれば、薄膜化して電界を印加することで、超伝導転移温度を大きく変調でき、更なるスピン流-電流変換効率の増大が期待できる。さらに、グラフェンのようなその他の原子層物質と組み合わせることで、原子層スピントロニクスデバイスを創製することが最終的な目的である。

## 2. 研究の内容(手法、経過、評価など)

本研究課題を達成するために、①薄膜超伝導を得ること、②薄膜超伝導体を、サブマイクロスケールのスピンホール素子に組み込むこと、③薄膜超伝導体とその他の原子層物質（例えば、グラフェン）を自由自在に重ね合わせることで、の3つの実験手法を確立しなければならない。以下にそれらの詳細を説明する。

まず、原子層レベルで薄い超伝導体を得るために、本研究課題では、グラフェンを作製するのと同様のスコッチテープ法を用いた。具体的には、層状超伝導体である NbSe<sub>2</sub> 結晶を、スコッチテープを用いて剥離し、スコッチテープ同士を何度か重ね合わせる。この過程で薄い NbSe<sub>2</sub> 薄膜がスコッチテープ内に作られる。このスコッチテープをシリコン基板に擦りつけることで、NbSe<sub>2</sub> 薄膜を基板に転写できる。NbSe<sub>2</sub> は原子層レベルで薄い、厚みおよそ 300 nm の酸化膜 (SiO<sub>2</sub>) をもつシリコン基板を用いれば、基板から反射する光と NbSe<sub>2</sub> 薄膜表面から反射する光との干渉効果を利用することで厚みを特定できる。本研究では、図 1 に示すように、金属顕微鏡で観測される色の中で、緑色の成分のみを選択し、基板とのコントラスト比を求め、原子間力顕微鏡で測定できる NbSe<sub>2</sub> の厚みと対応付けを行った。NbSe<sub>2</sub> の膜厚が 30 nm 以上ではあまり色の違いが現れないが、30 nm 以下では膜厚が減るにつれて、緑色の成分のコントラスト比に大きな変化が現れていることが分かる。

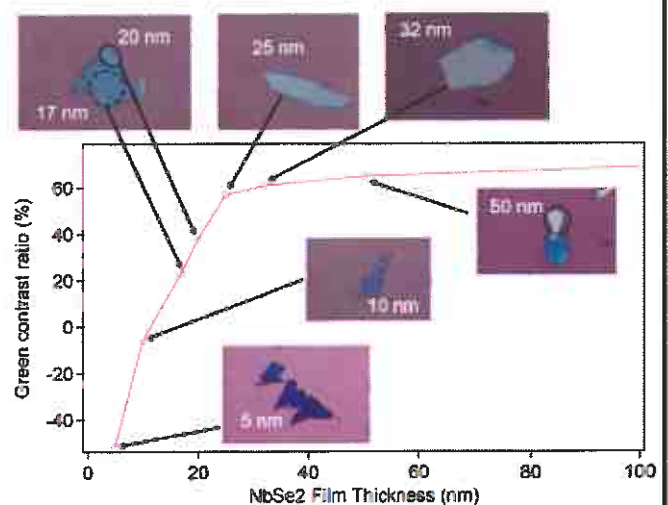


図 1: NbSe<sub>2</sub> 薄膜の厚みと金属顕微鏡下での緑色のコントラスト比の関係。挿入図は基板上的 NbSe<sub>2</sub> の顕微鏡写真。

## 2. 研究の内容(続きその1)

得られた原子層超伝導体にスピン流を注入し、巨大なスピンホール効果信号を検出するためには、薄膜をさらに幅 300 nm 程度に加工する必要がある。これは、スピンホール効果による信号が超伝導体細線の線幅に反比例することに起因しており、これまでの原子層物質を使用した研究との大きな違いである。サブマイクロメートルの細線を得るために、電子線描画による細線パターンの作製、及びアルゴンイオンエッチング法による細線の削り出しを行い(図2)、電気抵抗の温度依存性、磁場依存性、さらには電流電圧特性の測定を行った(図3)。

細線に加工することで超伝導転移温度は、バルクの  $T_c = 7.2$  K、及び同程度の厚みの薄膜(細線ではない)の  $T_c = 6.5$  K のおよそ半分 ( $T_c = 3.2$  K) まで減少した(図3(a))。これは Ar イオンエッチングによって、NbSe<sub>2</sub> 細線の端で結晶性が乱れているためだと考えられる。また、面内磁場に対する臨界磁場  $H_{cII}$  は約 1.2 T で(図3(b))、この  $H_{cII}$  はスピン輸送測定で Py の磁化状態を制御するのに必要な磁場  $H \sim 0.25$  T (図4、図5 参照) に比べれば十分大きく、スピン輸送測定を行っても、超伝導状態は壊れないことを意味している。さらに臨界電流  $I_c$  は、図3(c)に示す通り、10  $\mu$ A 程度となった。

図3に示したように NbSe<sub>2</sub> 細線が超伝導転移することが明らかになったので、次に同様の厚みをもつ NbSe<sub>2</sub> 薄膜を細線に加工してスピン輸送素子に取り込んだ。具体的には、図4に示すように、幅 100 nm の Py 細線を NbSe<sub>2</sub> 細線に隣接して配置し、2本の細線を、スピン軌道相互作用の弱い Cu 細線で橋渡しする素子を作製した。

図4のスピンホール素子を用いて、まずは超伝導転移温度以上の  $T = 10$  K でスピンホール効果の測定を行った結果、世界で初めて NbSe<sub>2</sub> で逆スピンホール効果の検出に成功した(図5 参照)。外部磁場  $H$  を図4の矢印の方向に印加したとき、Py 細線の磁化が +2500 Oe 以上で正、-2500 Oe 以上で負に飽和していることが異方性磁気抵抗の結果(図5 下図)から分かるが、その磁化状態に応じて NbSe<sub>2</sub> 細線の逆スピンホール信号が正の磁場では負、逆に負の磁場では正となっている。このことは NbSe<sub>2</sub> のスピンホール効果が、過去の単体 Nb や NbN と同様に負であることを表しており、スピン軌道相互作用の強い Nb 原子が、スピンホール効果の発現に重要な役割を果たしていることが分かった。

さらに温度を下げて、NbSe<sub>2</sub> 細線を超伝導転移させようと試みたが、この細線では残念ながら  $T = 2$  K まで超伝導転移しなかった。現在、同様の素子を作製して、超伝導状態における NbSe<sub>2</sub> の逆スピンホール効果の測定を試みているところである。



図2: シリコン基板上の膜厚 22 nm の NbSe<sub>2</sub> (上) と電子線描画装置及び Ar イオンエッチング装置によって加工された幅 300 nm の NbSe<sub>2</sub> 細線 (下)。電極には Ti(5 nm) と Au(100 nm) を用いた。

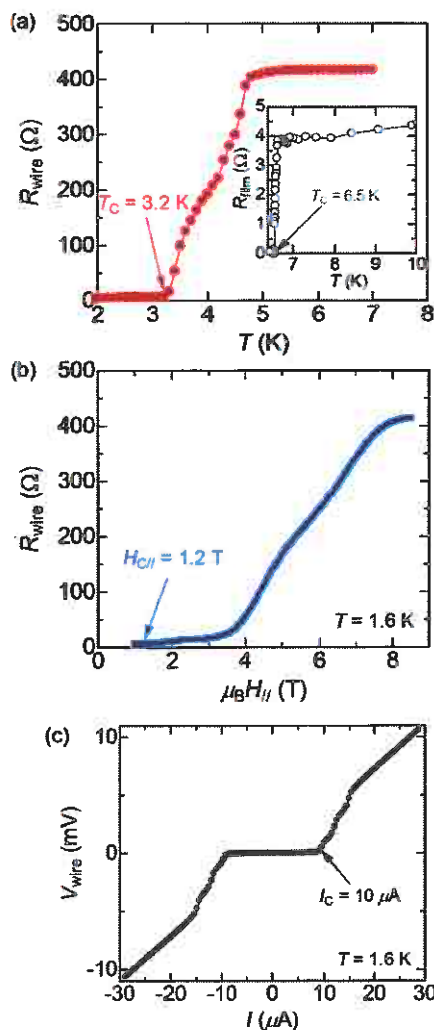


図3: (a) NbSe<sub>2</sub> 細線の電気抵抗の温度依存性。  $T_c = 3.2$  K となった。挿入図は膜厚 25 nm の NbSe<sub>2</sub> 薄膜の電気抵抗の温度依存性。  $T_c = 6.5$  K はバルク ( $T_c = 7.2$  K) よりわずかに小さい。(b)  $T = 1.6$  K における NbSe<sub>2</sub> 細線の電気抵抗の面内磁場依存性。(c)  $T = 1.6$  K における NbSe<sub>2</sub> 細線の電流電圧特性。

## 2. 研究の内容(続きその2)

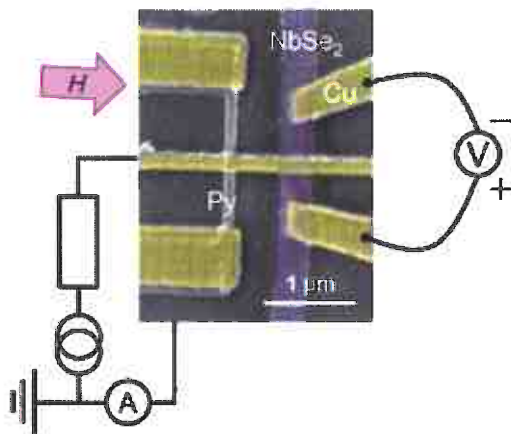


図4: NbSe<sub>2</sub> 細線を組み込んだスピンホール素子。

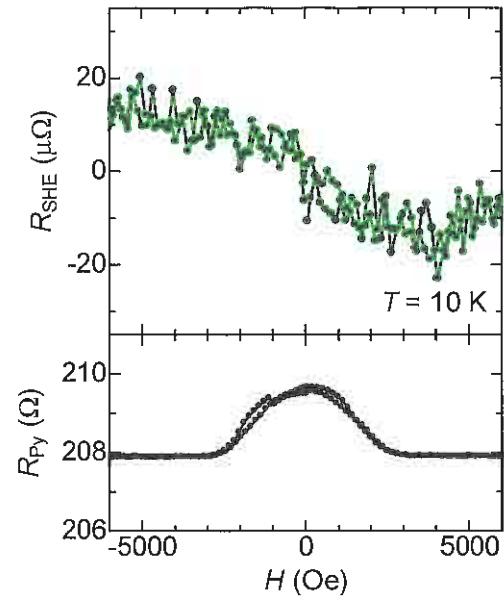


図5:  $T=10\text{ K}$  における NbSe<sub>2</sub> 細線の逆スピンホール効果(上図)と Py 細線の異方性磁気抵抗(下図)。この図から NbSe<sub>2</sub> のスピンホール効果の符号が、単体 Nb や NbN と同様に負であることが分かる。

将来的には、図4のスピン流を伝搬させる Cu 細線の部分を、スピン軌道相互作用が弱く、電界で電子密度の変調が可能なグラフェンに置き換え、電界を印加することで、 $T_C$  やスピン流の ON・OFF が制御可能なスピン流デバイス(図6参照)を作製する予定である。

その予備的な実験として、原子層超伝導体である NbSe<sub>2</sub> とグラフェンを重ね合わせた素子を、スタンプ法を用いて作製し、電気抵抗測定を行った。図7にその一例を示す。電流をグラフェン(挿入図中 I<sup>+</sup>) から NbSe<sub>2</sub> 薄膜(I<sup>-</sup>) に流し、グラフェン(V<sup>+</sup>) と NbSe<sub>2</sub> (V<sup>-</sup>) 間の電圧降下を観測している。グラフェンの抵抗が NbSe<sub>2</sub> 薄膜に比べて大きいため、基本的にはグラフェンで生じる電圧降下を測定しているが、NbSe<sub>2</sub> が超伝導転移する 7 K 付近で、大きな抵抗の減少が観測されている。これは NbSe<sub>2</sub> 薄膜の超伝導転移に起因するものであり、グラフェンと NbSe<sub>2</sub> がスタンプ法により電氣的に接続し、電圧降下が生じている。



図6: 2次元原子層超伝導スピンホール素子を利用した超高感度磁気センサの概念図。

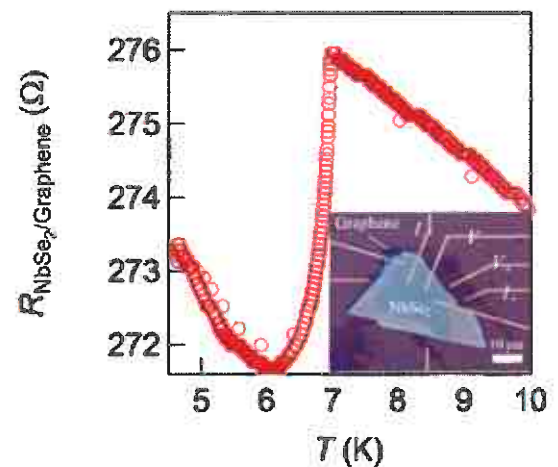


図7: グラフェンと NbSe<sub>2</sub> 薄膜をスタンプ法で重ね合わせた素子の電気抵抗の温度依存性。およそ 7 K で NbSe<sub>2</sub> が超伝導転移し、電気抵抗が突然減少している。

### 3. 研究の結論、今後の課題

本研究課題では、2次元原子層超伝導体とスピン流を組み合わせ、非常に大きなスピン流電流変換効率を生み出すこと、また層状超伝導体に電界を印加することで、超伝導体転移温度を上昇させ、スピン流電流変換効率をさらに増幅させることを目指して素子作製、及びその特性評価を行った。当初の目的通り、原子層超伝導体である NbSe<sub>2</sub> 薄膜を、スピン流素子に組み込むために、超伝導特性を維持したまま NbSe<sub>2</sub> を細線にすること、さらにスピン流注入の素子を作製し、実際にスピンホール効果の測定を行い、超伝導転移温度以上ではあるものの、NbSe<sub>2</sub> を用いて初めて逆スピンホール効果の測定に成功した。NbSe<sub>2</sub> のスピンホール効果の符号は単体 Nb や NbN と同様に負となり、Nb のスピン軌道相互作用が支配的であることが分かった。現在、超伝導転移温度以下での NbSe<sub>2</sub> 細線の逆スピンホール効果の測定を試みているところである。

また、本研究ではまだ達成できていないが、大気暴露に弱い FeSe に関しても、平成 28 年度末に納品したグローブボックスを用いれば、NbSe<sub>2</sub> 薄膜と同様な加工が可能となる。グローブボックス内の酸素・水分濃度は 1ppm 以下に制御できるため、FeSe 表面の酸素及び水分による劣化がない。現在、グローブボックス内で劈開、蒸着ができるように準備中で、こちらに関しても NbSe<sub>2</sub> と同様に、進展が期待できる。さらに FeSe は NbSe<sub>2</sub> に比べて圧倒的に電界効果が大きく 10 倍近く  $T_c$  を増強できるため、NbSe<sub>2</sub> の超伝導転移温度以下で巨大スピンホール効果が観測されれば、直ちに FeSe 薄膜を用いた研究に取り掛かる予定である。

さらにグラフェンと層状超伝導体を重ね合わせた図 6 のようなデバイスを作製し、実際にわずかな磁化揺らぎを検出できる超高感度磁気センサを開発するところまでが本研究課題の目的であるが、現段階ではグラフェンと NbSe<sub>2</sub> を重ね合わせて電気抵抗を測るところまでしか達成できていない。これに関しては、微細加工を施したグラフェン細線と層状超伝導体細線をさらに精度よく重ね合わせることができれば、十分に達成できると考えられる。



#### 4. 成果の価値(とくに判りやすく書いて下さい)

##### 4. 1. 社会的価値

本研究課題では「2次元超伝導体を用いた革新的スピントロニクスデバイスの創製」という研究構想の土台となる「2次元原子層超伝導体を用いたスピンホール素子の作製」を、当研究助成金を用いて遂行させて頂いた。現段階では、2次元原子層超伝導体を用いたサブミクロンスケールのスピンホール素子作製プロセスを、ようやく確立しつつある状況ではあるが、本研究の最終的な目標が達成され、超伝導体転移温度を電界効果により飛躍的に上昇させることができれば、超伝導体を用いたデバイスの利用が、2027年に開通予定の超電導リニアモーターカーのように、より身近なものとなる。

またこれまで微小磁化の測定は、超伝導量子干渉計(SQUID)に依存していたが、本研究構想が達成されれば、SQUIDの感度を超える超高感度磁気センサをより高い温度で実現することが可能となる。

##### 4. 2. 学術的価値

スピントロニクス研究において、超伝導を実現するには低温が必要、かつ磁性を排除するという特性から、あまり積極的に用いられることはなかったが、近年の微細加工技術の発展により、よりミクロなスケールで、超伝導体接合や、強磁性体を加工することが可能となり、これまで理論的にしか扱われてこなかったモデルを実現できるようになってきた。その中でも本研究課題では特に、電界で自由に超伝導転移温度を制御できる、2次元原子層超伝導体を用いたスピントロニクス素子作製プロセスの確立を目指して研究を遂行し、ようやくその目処が立ちつつある状況である。

「超伝導スピントロニクス研究」はまさに産声を上げたばかりで、最終的には、超伝導スピントロニクスの学理の構築を行うとともに、 $T_c$ 以下で大きく増大する超伝導スピンホール効果の特性を上手く活かした応用研究の道筋をつけたいと考えている。

##### 4. 3. 成果論文(本研究で得られた論文等を年代順に書いて下さい。未発表のものは公表予定を書いて下さい)

- [1] 河村智哉, 日野航佑, Paul Noël, 前田正博, 竹下俊平, 荒川智紀, 新見康洋, 小林研介, 「NbSe<sub>2</sub> 薄膜へのスピン注入の試み」, 日本物理学会第71回年次大会, 東北学院大学, 2016年3月.
- [2] 竹下俊平, 河村智哉, 日野航佑, Paul Noël, 荒川智紀, 新見康洋, 小林研介, 「NbSe<sub>2</sub>/グラフェンを用いたスピンホール素子の作製の試み」, 日本物理学会第71回年次大会, 東北学院大学, 2016年3月.
- [3] Y. Niimi, "Spin Hall effects in strong spin-orbit materials (nonmagnet, ferromagnet, spin-glass, and superconductors) (invited)", 5th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2016), Turkey, April 2016.
- [4] T. Kawamura, M. Maeda, K. Hino, P. Noël, S. Takeshita, T. Arakawa, Y. Niimi and K. Kobayashi, "Fabrication of NbSe<sub>2</sub> narrow wire aiming for spin injection", 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS 9), Kobe, August (2016).
- [5] 河村智哉, 河上司, Paul Noël, 日野航佑, 竹下俊平, 荒川智紀, 新見康洋, 小林研介, 「NbSe<sub>2</sub> 薄膜へのスピン流注入」, 日本物理学会第72回年次大会, 大阪大学, 2017年3月.
- [6] 新見康洋, 「超伝導薄膜におけるスピン輸送測定」, 日本物理学会第72回年次大会, 大阪大学, 2017年3月.
- [7] S. Iwakiri, Y. Niimi, and K. Kobayashi, "Dynamics of pure spin current in high-frequency quantum regime", Applied Physics Express **10**, 053001 (2017).