

# YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>/La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> トンネル接合系における スピン注入効果

極低温科学センター 野島 勉 (nojima@imr.tohoku.ac.jp)

## 1. はじめに

超伝導体と常伝導体をトンネル接合した系において、両者の間に電圧をかけトンネル電流を流す場合、超伝導体内部では、界面付近において局所的に準粒子の多い非平衡状態でき、これによって超伝導オーダーパラメタが減少することが知られる(準粒子注入効果)。常伝導体として強磁性金属を用いる場合、トンネル電流はスピン配向準粒子となり、超伝導体内部に単なる準粒子のみならずスピン非平衡状態を引き起こす。さらにこの非平衡スピンは長い緩和時間をもつため、超伝導体中でのより大きな対破壊効果(オーダーパラメタ $\Delta$ の制御)が期待できる。

超伝導体/強磁性体接合におけるスピン配向準粒子トンネリングの研究は、1970年代から始まった。超伝導体としてAlやNb、強磁性体としてFe、Ni、Co、パーマアロイ等を用いた接合においてスピンの保存されてトンネルする現象の確認、およびスピンの超伝導体中で拡散していく様子が確認されている[1-3]。

理論的にはTakahashiら[4]が強磁性/超伝導/強磁性(F/S/F)二重トンネル接合系において両側のF層を電極としてS層に電流を流す時、S層中に非平衡なスピンの蓄積が起こり、これにより超伝導から常伝導への相転移が起こることを等方的なs波超伝導体を用いた計算により示した。これは両側のF層が反平行の時、もしくは片側のF層が非磁性の時、S層でのスピン緩和時間 $\tau_s$ が十分長いという条件下で起こる。同様な計算はd波超伝導体でも行われている[5]。

最近、高温超伝導体であるYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>やDyBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>といった銅酸化物と、巨大磁気抵抗効

果(CMR効果)を示す強磁性体で知られる(La,Sr)MnO<sub>3</sub>、(Nd,Sr)MnO<sub>3</sub>といったマンガン酸化物を組み合わせたトンネル接合で、それまでにならぬ大きなスピン注入の効果が起こることがわかってきた。マンガン酸化物から銅酸化物超伝導体へトンネル電流を流すこと(スピン注入)により、その臨界電流 $I_c$ をゼロにするまで制御できることが報告されている[6-8]。二重交換相互作用を強磁性発現機構としてもつマンガン酸化物の高いスピン分極率が大きなスピン注入効果の要因であると考えられている。しかし、 $I_c=0$ となったときのほかの物理量がどのように変化するかといったことや、スピン注入による超伝導-常伝導相転移に関する事項はまだ実験的には詳細に調べられていない。

マンガン酸化物は銅酸化物と類似したペロブスカイト構造を持ち格子定数も近い。さらにトンネル障壁となる絶縁体にもSrTiO<sub>3</sub>やLaAlO<sub>3</sub>といったペロブスカイト構造を持つものが多い。よって銅酸化物とマンガン酸化物は良好なトンネル接合を作りやすい組み合わせであるといえる。そこで本研究ではLa<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/LaAlO<sub>3</sub>/YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>(LCMO/LAO/YBCO)トンネル接合膜を作製し、YBCO層の臨界電流や電気抵抗転移、および接合間のトンネル特性に対するスピン注入効果を調べることを試みた。

## 2. 実験方法

試料はマグネトロンスパッタ法による成膜、フォトリソグラフィ法とウェットエッチングによる微細加工により作製した。それぞれの粉末ターゲットを用いて、SrTiO<sub>3</sub>基板上にLCMO(80 nm)、

LAO (50 nm)、YBCO (55 nm) を順々に積層することにより、LCMO、LAO に関しては  $a$  軸、YBCO に関しては  $c$  軸配向した3層接合膜を得た。YBCO の超伝導転移温度  $T_c$  ( $R = 0$ ) は 84.3 K、LCMO のキュリー温度  $T_M$  は 192 K である。その後、図 1 (a)(b) に示すような2種類のデバイス構造にそれぞれ加工した。両者とも最上層の YBCO のみが、幅 200  $\mu\text{m}$  のブリッジ、および 1 mm 四方のパッドにそれぞれエッチングされている。これらに対し LCMO/LAO 層上面に図中①と②、YBCO 層上面に③-⑦の端子付けを銀ペーストと金線を用いて行った。ブリッジ型試料では、①と③の間にスピン注入電流  $I_{inj}$  を流しながら、④-⑦の端子を用いた直流四端子法(④⑦が電流  $I$ 、⑤⑥が電圧  $V$ )での YBCO の臨界電流  $I_c$ 、電気抵抗転移  $R(T)$  を測定した。パッド型試料では上記と同様な配置で  $R(T)$  測定を行うことに加え、②と⑤の端子間でトンネル電圧  $V_T(I_{inj})$  の測定を行った。

### 3. 結果と考察

ブリッジ型試料において  $I_{inj}$  を加えながら YBCO 層の  $I$ - $V$  測定を行った典型的な結果を図 2 に示す(ここで  $I_{inj}$  の値は正符号であるが、これはスピン注入電流を LCMO 層から YBCO 層に流したことを意味する)。

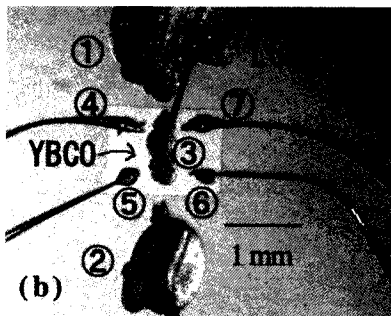
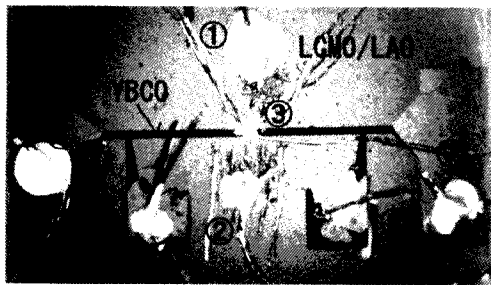


図1(b) 最上層の YBCO のみを加工した LCMO/LAO/YBCO 接合膜、(a)ブリッジ型 (b)パッド型

を意味する)。  $I_{inj}$  値を増やしていくに従って電圧の生じない電流領域(超伝導領域)の幅が減少し、最後には図 2 の挿入図に示すようオーミックな  $I$ - $V$  特性 ( $I_{inj} = 6.9 \text{ mA}$ ) が現れることがわかる。この結果はスピン注入により、超伝導状態が壊れたことを示す。同様な結果は、  $I_{inj}$  の正負両符号の測定した全ての温度 (80 K - 60 K) において得られた。

各  $I_{inj}$  において、  $+1 \mu\text{V}$ 、  $-1 \mu\text{V}$  の電圧が生じた電流値をそれぞれ  $I_c^+$ 、  $I_c^-$  とし、その絶対値の平均値  $(I_c^+ - I_c^-)/2$  で定義した臨界電流  $I_c$  の  $I_{inj}$  依存性を図 3 に示す。上記の  $I$ - $V$  特性で述べたとおり、  $I_c$  は  $I_{inj}$  によって制御される。GL 理論により  $I_c \propto \Delta^3$  であることから、スピン注入によりオーダ

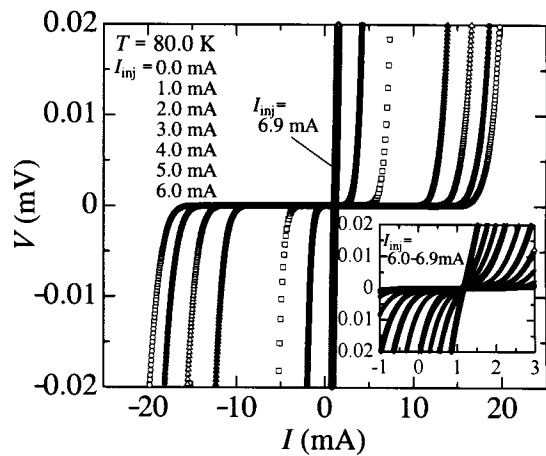


図2 ブリッジ型試料においてスピン注入電流  $I_{inj}$  を加えながら同時に測定した YBCO 層の  $I$ - $V$  特性 ( $I_{inj} = 0$ -6.9 mA)、挿入図:  $I_{inj} = 6.0$ -6.9 mA (0.1 mA 間隔) における、YBCO 層の  $I$ - $V$  特性の拡大図

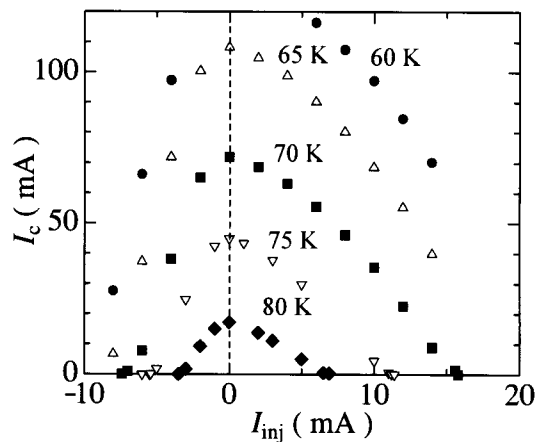


図3 ブリッジ型試料における YBCO 層の臨界電流  $I_c$  のスピン注入電流  $I_{inj}$  依存性

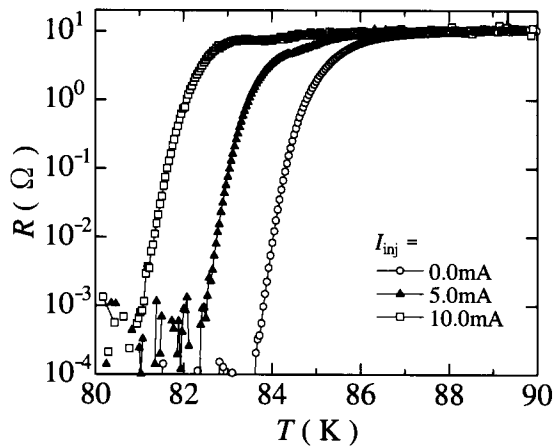


図4 パッド型試料においてスピン注入電流 $I_{inj}$ を加えながら同時に測定したYBCO層の電気抵抗転移

パラメタが制御可能であることがわかる。 $I_c(I_{inj} = 0)/I_{inj}(I_c = 0)$ によって定義されるゲイン $G$ は65.0Kにおいて13.1となり、今ままである報告例のなかでも高い値となる[6-8]。本研究で作製した試料の $G$ が大きな値を示す理由として、超伝導層表面から端子③により $c$ 軸方向に直接スピン注入電流を取り出していることが挙げられる。これによりスピン注入電流が $YBa_2Cu_3O_y$ を通過する距離は最短となるためスピン緩和が押さえられ、おおきな $G$ が得られたものと考えられる(他の報告例では、超伝導側のスピン注入用端子と接合部の距離がmmのオーダー)。

図4にパッド型試料において、スピン注入しながらYBCO層の $R(T)$ を測定した結果を示す。磁場をかけた際に起こる超伝導ゆらぎやflux flow抵抗による抵抗転移のブロードニング現象とは対照的に、 $I_{inj}$ の増加とともに $R(T)$ 曲線が低温側に単に平行移動していることがわかる。 $R(T)$ の転移幅が $I_{inj}$ によりほとんど変わらないこの現象はスピン注入により $T_c$ が減少していることを示している。同様な結果はブリッジ型試料においても得られた。電気抵抗が出始める温度を $T_c$ とし、 $T_c - I_{inj}$ の関係をプロットすると、図3における $I_{inj}(I_c = 0)$ と温度の関係と極めてよい一致を示す。これは、 $I_c = 0$ のところ実際に超伝導状態から常伝導状態への相転移が起こっていることを表す。

スピン注入による相転移の性質を調べるために、

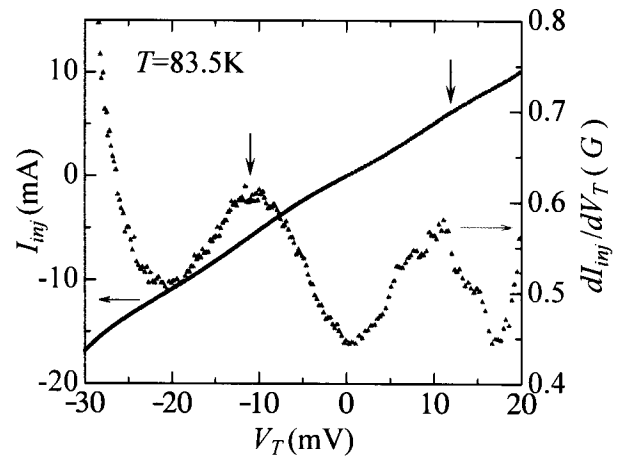


図5 パッド型試料におけるトンネル特性の測定例( $T = 83.5$  K)

YBCO層-LCMO層間のトンネル特性の測定を行った。図5にパッド型試料における $I_{inj} - V_T$ 測定の代表的な結果を示す。 $V_T$ の増減に対し $I_{inj}$ が小さな肩を持って折れ曲がる現象が見られる(図中矢印)。この $I_{inj} - V_T$ 曲線を電圧 $V_T$ で微分したものを同時にプロットすると、確かにこの肩の見えるところで $dI_{inj}/dV_T$ がピークとなる。このピーク位置での $I_{inj}$ を $I_{injS}$ として温度 $T$ との関係をプロットすると、 $I_{injS}(T)$ は、図4の結果から得られた $T_c(I_{inj})$ の関数と一致する。これより、 $I_{inj} - V_T$ 曲線の折れ曲がるふるまいが、相転移を特徴付けていることがわかった。

以上の実験結果を $s$ 波超伝導を用いたTakahashiら[4]と、 $d$ 波超伝導を用いたYoshidaら[5]のトンネル特性の計算結果と比較する。Takahashiらの計算では $T = 0$ 付近を除いたほとんどの温度域で、 $dI/dV_T$ は $V_T$ の増加とともに超伝導ギャップに対応するコヒーレンスピークを示した後、不連続に飛び常伝導状態になる。つまり超伝導状態の $I - V_T$ 曲線は連続的に折れ曲がって常伝導状態のものにつながる。この現象はトンネル電流の表式

$$I \propto D_F(0) \int_{\Delta}^{\infty} D_S(E) [f(E - eV) - f(E + eV)] dE$$

の中の $D_S$ に含まれる超伝導ギャップ $\Delta$ が連続的に0になることを意味することより、2次相転移である。一方Yoshidaらの研究では常伝導状態に移る電圧で $I - V_T$ 曲線が不連続に飛び、1次相転移

が予言されている (ただしこの計算は  $T = 0.5T_c$  のみの温度に限られている)。本研究でのトンネル測定では、電流による熱ノイズの影響で、正確に測定されたトンネル電圧  $V_T$  は  $\sim 30$  mV 以下である。この結果 81 K 以上の温度範囲でしか  $I_{ij} - V_T$  曲線のスピン注入による異常を観測できなかった。その範囲での実験では 1 次相転移的な飛びは観測されない。以上のことから  $d$  波超伝導体で知られる YBCO においても少なくとも  $T_c$  近傍においては、スピン注入による超伝導-常伝導転移は 2 次転移的であると考えられる。

低温 (80 K 以下) での  $dI_{ij}/dV_T - V_T$  特性にも、測定電圧の範囲内でピークは観測された。しかし、その電圧値の温度変化を 81K 以上の温度範囲に外挿すると 5 mV 以下となり、さらに  $I_{ij}(T)$  の相境界上の電圧にはつながらない。よってこれは超伝導ギャップに相当するコヒーレンスピークと思われる。スピン注入による異常は低温ではより高電圧側で観測されるものと考えられる。今後トンネル接合のサイズを小さくすることにより発熱が押さえられれば、より低温領域までトンネル特性が広い電圧範囲で測定でき、1 次転移が観測される可能性はある。

## 5. まとめ

高温超伝導体である  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  と、CMR 効果を示すことで知られる  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  を用いた超伝導/強磁性トンネル接合を作製し、 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  から  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  へ電流を流しながら、スピン注入を行うことにより、その超伝導特性への影響を調べた。スピン注入により  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  の臨界電流を制御し、常伝導状態に相転移させることに成功した。トンネル電圧 ( $V_T$ ) のスピン注入電流 ( $I_{ij}$ ) 依存性の測定により、スピン注入電流による超伝導-常伝導相転移が起きる際、 $I_{ij} - V_T$  曲線に 2 次相転移を示唆する折れ曲がりがおきることが  $T_c$  近傍の高温領域で見出された。今後、トンネル接合のサイズを小さくしてこの相転移の性質をより低温で観測する必要がある。

## 謝辞

ここで紹介した内容は、岩田充 (極低温科学センター)、中村慎太郎 (極低温科学センター)、小林典男 (金属材料研究所) 各氏との共同研究による成果である。実験結果については高橋三郎 (金属材料研究所)、山下太郎 (金属材料研究所) 両氏にも議論していただいた。ここに感謝申し上げます。

## 参考文献

- [1] P. M. Tedrow and R. Meservey, Phys. Rev. B 7, (1973) 318.
- [2] M. Johnson and R. H. Silsbee, Phys. Rev. B 37, (1988) 5326.
- [3] M. Johnson, Appl. Phys. Lett. 65, (1994) 1460.
- [4] S. Takahashi, H. Imamura, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 82, (1999) 3911.
- [5] N. Yoshida *et al.*, Phys. Rev. B 63, (2000) 24509.
- [6] V. A. Vas'ko *et al.*, Phys. Rev. Lett. 78, (1997) 1134.
- [7] Z. W. Dong *et al.*, Appl. Phys. Lett. 71, (1997) 1718.
- [8] N. -C. Yeh *et al.*, Phys. Rev. B 60, (1999) 10522.