

酸化物超伝導体/強磁性体接合膜における スピン依存電気伝導

金属材料研究所, 極低温科学センター

野島 勉 (nojima@imr.tohoku.ac.jp)

久野 薫

中村慎太郎

金属材料研究所

小林典男

1. はじめに

近年、非磁性金属や絶縁体を強磁性体で挟んだ系 (F/N/F、F/I/F 接合) において GMR 効果や TMR 効果といったスピンの方向に依存する伝導現象が盛んに研究されている。一方超伝導体 S を用いて同様に実現される強磁性体/超伝導体/強磁性体 (F/S/F) 接合系においても、両側の F 層のスピンの方向を調節することにより、TMR に似た効果や S 層の超伝導性が制御出来る可能性が理論的に示され[1-3]、スピン依存伝導という観点だけでなく超伝導制御という観点からも F/S/F 接合が注目され始めてきた[4,5]。

この F 層のスピンの方向に依存した超伝導の抑制効果は、S 層から F 層へのオーダーパラメタの広がりを考える場合と F 層から S 層への準粒子の広がりを考える場合で、逆になることが知られる。つまり両側の F 層の磁化が反平行になる時、S 層から F 層側へのオーダーパラメタのしみだし効果が大きいと抑制効果が最小[4]となるが、F 層からの S 層へのスピン配向準粒子の拡散効果が大きくなると最大[5]になる。前者では両側の F 層に広がったクーパーペアが両側の逆向き交換場の大きさを感じ、その効果を相殺するためであるのに対し、後者では一方の F 層から S 層に侵入したスピン配向準粒子がもう一方の F 層に抜けにくいこと (界面散乱) が原因となり、S 層中でのスピン (または準粒子) の蓄積が起るためと考えられている (これらの議論は S 層の厚さがコヒーレンス長 ξ やスピン拡散長 δ_s と同程度である場合に限られる)。実際の試料では両方の効果が存在することになるが、どういった場合にどの効果が

有効に作用するかを明らかにするためには F 層の分極率、S 層の ξ や δ_s を考慮にいれた実験、および両方の効果を確認する実験が重要となるがあまり多くの測定例はない。

本研究では S 層としてコヒーレンス長が短く、しみだし効果の影響が小さいと考えられる $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) を、F 層としてスピン分極率 P が 100% 近くに達する $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_4$ (LCMO) を使い、F/S/F や S/F ヘテロ構造を作製することにより、超伝導制御効果の検証を試みた。

2. 実験方法

本研究では RF スパッタ法による成膜、フォトリソグラフィ法、ケミカルエッチング法、リフトオフ法を多段階に組み合わせることで、膜面に平行と垂直の電気抵抗が測定可能な F/S/F デバイス構造の作製を行った。図 1 に F/S/F 接合膜の大まかな作製過程を示す。基板温度 780-750°C で SrTiO_3 (100) 基板

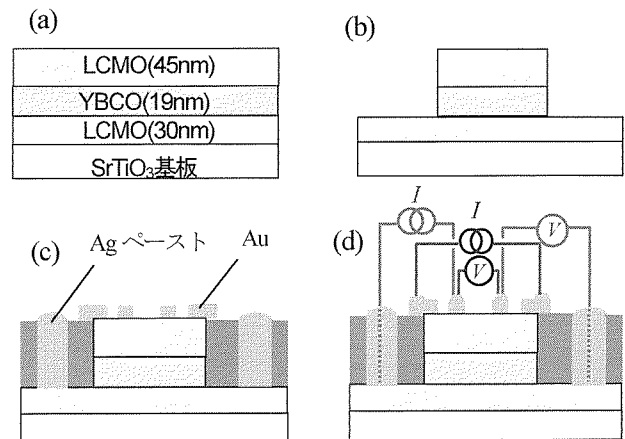


図 1. F/S/F 接合試料作製プロセスの概略図。

上に LCMO(30nm)/YBCO(19nm)/LCMO(45nm)ヘテロ構造を成膜し (図 1(a))、その後、YBCO のみが弱酸に溶解するという特徴を用いて、上の 2 層のみを $400 \times 200 \mu\text{m}^2$ の Island 状にエッチングする (図 1(b))。スパッタとリフトオフを行うことにより、この Island の周りに SiO_x 絶縁層を図 1(c)のように堆積し、最後に Au 電極を作製後 Ag ペーストで端子付けを行った (図 1(d))。S/F 接合膜 (YBCO(38nm)/LCMO(45nm)) に関しては、特に加工は行わず面内抵抗のみを測定した。

作製した F/S/F 接合、S/F 接合試料の電気抵抗測定による YBCO 層の超伝導転移温度 T_c (転移の midpoint で定義) はそれぞれ 57.5 K、87 K、SQUID 磁化測定装置を用いた磁化測定より得られた LCMO 層のキュリー温度 T_M は 188.5 K、スピンは分極率 P は 86%であった。尚、各層はすべて完全に c 軸配向している。

F/S/F 接合膜試料では、上下の F 層のスピンの方向が平行・反平行な状態をそれぞれ実現する必要がある。本研究では上下の強磁性層の膜厚や成膜温度に違いを持たせることにより、保磁力差を持たせ、膜面に平行な外部磁場を変化させることによりスピンの方向を調節した。

3. 結果と考察

図 2 に、 $T = 50 \text{ K}$ 、 70 K における LCMO(30nm)/YBCO(19nm)/LCMO(45nm) (F/S/F)接合試料の磁化 M と面内電気抵抗 R_{CIP} の磁場 H 依存性の測定例を示す。 $M(H)$ 曲線において、 $\pm 200 \sim 300 \text{ Oe}$ の磁場領域で小さなステップ状の振る舞いが見られる。これは上下の F 層の保持力 (スイッチング磁場) の違いによって現われる現象であり、この狭い磁場領域で上下の F 層の磁化が反平行、それ以外の高磁場領域では平行になっていることを示す。注目したいのは、磁場の上昇時と下降時のスピンの反平行になる 2 つの磁場領域の両方で、 $R_{\text{CIP}}(H)$ の上昇が観測されることである。転移前 ($T = 70 \text{ K}$) ではこのような急激な変化が観測されないことから、これらの異常はスピンの方向に依存した超伝導状態の変化を示したものである。特に面内電気抵抗の上昇は両 F 層のスピ

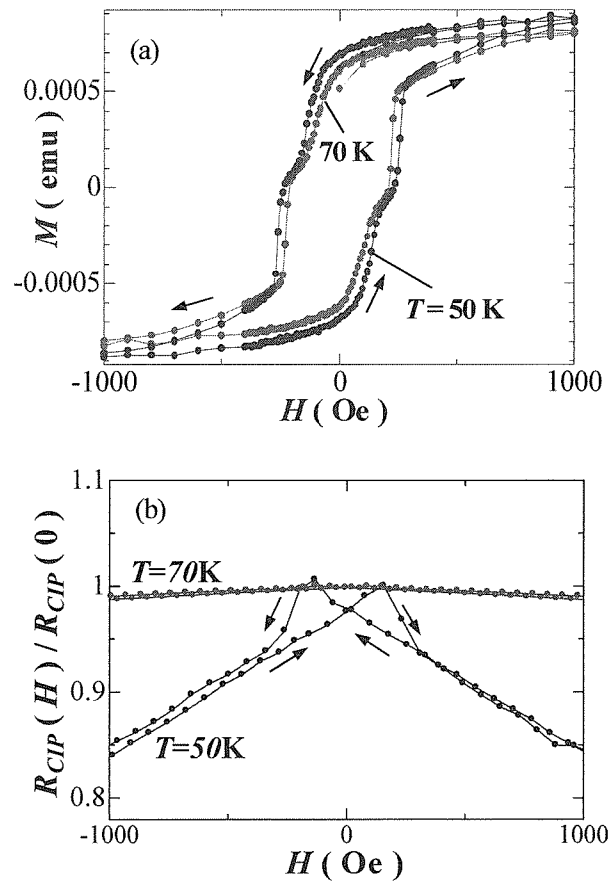


図 2. LCMO/YBCO/LCMO 接合膜の(a)磁化 M と(b)面内抵抗 R_{CIP} の磁場依存性。

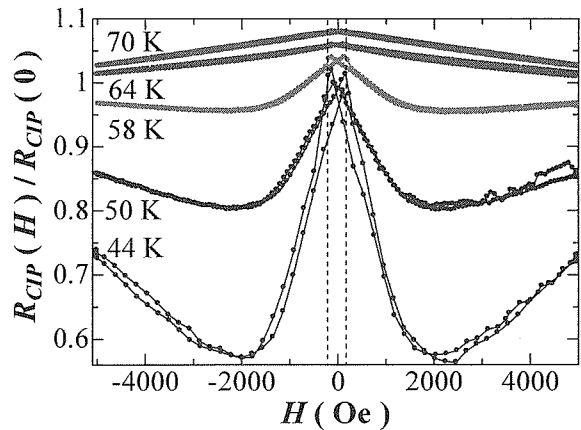


図 3. LCMO/YBCO/LCMO 接合膜の広い温度、磁場範囲における面内抵抗 R_{CIP} の磁場依存性。

が反平行の時、超伝導が抑制されることを意味する。図 3 に広い温度における R_{CIP} の磁場依存性を示す。温度の下降とともにスピン反平行状態での電気抵抗が相対的に上昇していることがわかる。これは温度の低下とともに S 層中超伝導電子の割合が増え、その抑制効果も大きく現われるためであると解釈できる。

この超伝導の抑制効果が、F/S/F 接合膜の両側のF層のスピンの反平行状態に関係していることをさらに確認するため、S/F 接合膜を用いて同様な測定を行った。図4にYBCO(38nm)/LCMO(45nm) (S/F)接合試料の $T=90\text{ K}$ での $M(H)$ 、 $T=86.3\text{ K}$ と 91 K における、零磁場付近の抵抗で規格化した $R_{CP}(H)$ をそれぞれ示す。それぞれの図に見られるように、超伝導転移前、転移後において試料1でみられたようなピーク状の振る舞いは観測されていない。代わりに超伝導転移後の $R(H)$ 曲線では、LCMO層の保磁力(スイッチング)磁場に対応する磁場で R_{CP} の減少が見られる。この結果は、単にスピンの方向が変わるだけでは、F/S/F 接合試料に見られたような超伝導の抑制にはつながらず、むしろ超伝導の回復を引き起こしていることを示している。LCMO層の磁化が反転する際、LCMO層に多数の磁区が存在することにより、一時的にYBCO層の受ける交換場の効果が弱まったことによるものと考え、この R_{CP} の減少はうまく説明できる。よって、YBCO/LCMOの界面付近

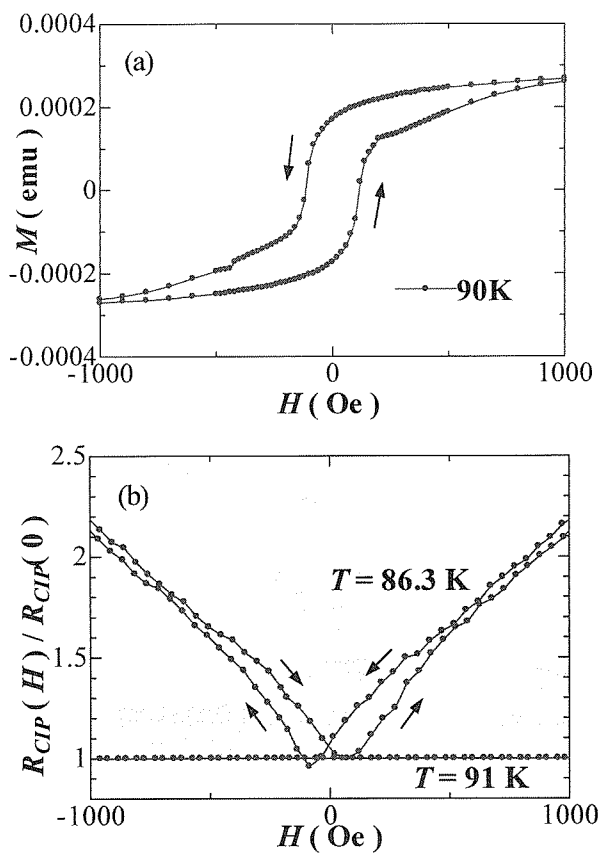


図4. YBCO/LCMO 接合膜の(a)磁化 M と(b)面内抵抗 R_{CP} の磁場依存性。

では、オーダーパラメタのしみだし効果もおこっていることがわかる。F/S/F層でもこの超伝導を回復させる効果も同様に起こっているものと考えられるが、両側のF層が反平行なことによる抑制効果の方がこれを上回っており、結果として、図2の R_{CP} の上昇が観測されたものと解釈出来る。

T_c 近傍での面内抵抗 R_{CP} は、主にYBCO膜の電気抵抗特性を表すのに対し、 T_c 以下での面間抵抗 R_{CPP} はYBCO層とLCMO層の間のトンネル抵抗となり、YBCOの超伝導ギャップの発達を反映した物理量となる(YBCO層とLCMO層の間にバリア層が存在しないため、一見Andreev反射の効果を含んだ特性になるように思えるが、スピン分極率が高い場合はこの影響が無視出来、通常のトンネル接合の特性が得られることが知られている[6])。そこでF/S/F接合試料の R_{CPP} の測定を行い、両側のF層のスピンの平行と反平行の場合での、超伝導ギャップの変化を調べた。図5に20 K から70 K までの $R_{CPP}(H)$ を規格化プロットしたものを示す(見やすくするために、20 K のデータを基準に0.005ずつ上に平行移動している)。 T_c 以上の高温では、 $M(H)$ 曲線にステップ状の振る舞いが現れる200 ~ 300 Oeの磁場領域付近で、 $R_{CPP}(H)$

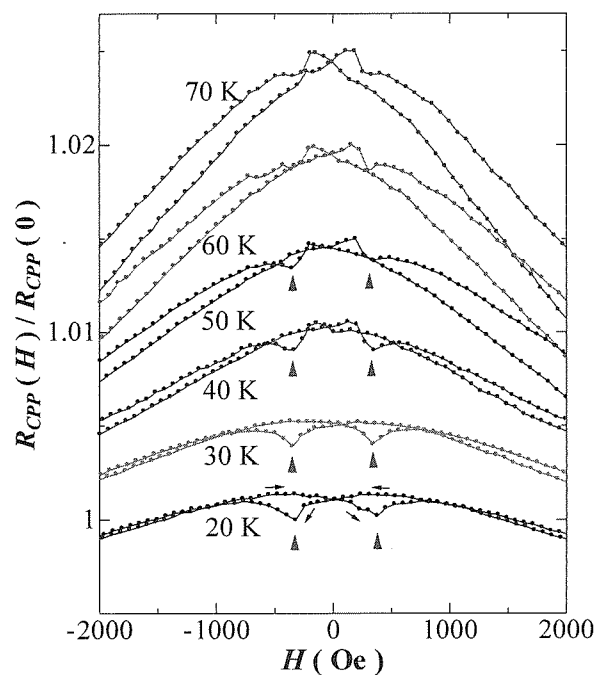


図5. LCMO/YBCO/LCMO 接合膜の面間抵抗 R_{CPP} の磁場依存性 (20 K のデータを基準に縦軸を0.05 ずつ移動)。

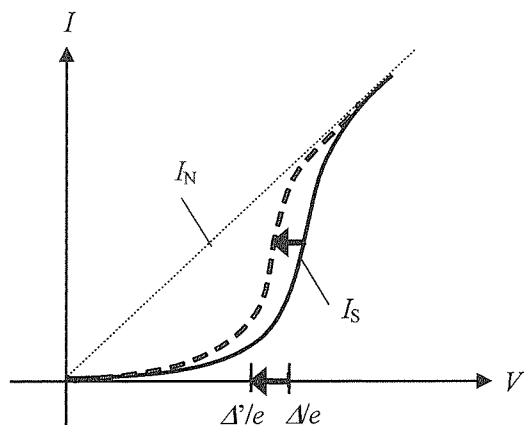


図6. 予測されるトンネル I - V 特性の模式図

が小さなピークを示す。これは通常の GMR 効果と同様である。しかし、温度の下降とともに、ピークは徐々に小さくなり、dip 状の振る舞いに変わる事がわかる。この dip 状の振る舞いは、超伝導-常伝導(強磁性)接合のトンネル I - V 特性を考えることで、理解できる。よく知られているように超伝導状態の I - V 特性はトンネル電圧が Δe (Δ は超伝導ギャップエネルギー) に達した時点で電流が上昇し、オーミックな特性に漸近するという非線形な振る舞いをする(図 6 の実線)。ここで超伝導が抑制された場合、 I - V 特性は低電圧側に移動することになる(図 6 の点線)。これはコンダクタンスの増加、すなわち電気抵抗の減少を意味し、図 5 の低温での dip 状の振る舞いを説明する。よって、dip の存在は F 層のスピンの向きが反平行になった時、超伝導が抑制されることが Δ の減少からも確認できたことを意味する。酸化物を用いた F/S/F 系におけるこういったトンネル抵抗の振る舞いは今回初めて観測されたものである。

以上述べてきた通り、本研究では、F/S/F 接合の上下 F 層のスピンの向きが反平行になることの効果が超伝導の抑制効果が現われることを、面内電気抵抗 R_{CP} と面間電気抵抗 R_{CPP} の両方で確認できた。これは 1 章で述べた通り、YBCO と LCMO の組み合わせではしみだし効果も存在するものの、F 層からの S 層へのスピン配向準粒子の拡散効果がより大きいことを示す。しかし R_{CP} と R_{CPP} の測定では測定中の電流の方向が違いうことに起因して、抑制効果の起源が多少異なると考えられる。 R_{CPP} の測定では電流(電

荷) が実質的に S 層を通過する。この際、片方の F 層から S 層へスピン up (または down) のキャリアが侵入し、S 層からもう片方の F 層へスピン down (または up) のキャリアが放出される。結果として Takahashi らによって提案されているよう[3]、S 層内にスピンの蓄積が起こりこの効果で超伝導は抑制されことになる。一方、 R_{CP} の測定では各層が並列抵抗になっているとみなされるため、面間に電圧はほとんどかかっていない(平均的には電荷の通過はない)。このような状況では、中央の S 層に一方向のスピンだけ蓄積されるということは起こりにくい。現時点では詳しいことはわからないが、GMR 効果との類推から、 R_{CP} の結果を説明する機構としては S/F 界面における準粒子の散乱が原因として挙げられる。熱的に励起した準粒子が片方の F 層から中央の S 層を横切ってもう一方の F 層に運動する過程において(すべての準粒子の平均的な層間運動量はゼロ)、両側の F 層のスピンの向きが揃っているとき、一方の F 層から S 層に入った準粒子は、あまり大きな散乱を受けずにもう一方の F 層中へと向かうであろう。しかし、反平行のとき、主となる状態密度のスピンの方向が両側の F 層で違うため、侵入した準粒子はもう一方の S/F 界面で散乱されることになる。このことは、S 層中での準粒子の滞在時間を増やし、結果として S 層中の準粒子密度を増加させることになる。これによって S 層の超伝導が抑制されるのかもしれない。

4. まとめ

本研究では銅酸化物高温超伝導体の $YBa_2Cu_3O_y$ 、Mn 酸化物強磁性体の $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_4$ を使い、F/S/F ヘテロ構造を作製し、面内抵抗および面間抵抗の測定を行うことにより、強磁性層のスピンの相対的な方向と T_c の関係を調べた。その結果上下の F 層のスピンの方向が反平行になる磁場で、超伝導が抑制される効果を、面内抵抗の増加、超伝導ギャップの減少という 2 つの側面から観測することに成功した。しかし得られた抵抗変化は予想されたものより小さいものであった。この原因としてオーダーパラメタのしみだし効果による超伝導の回復に加え、本研究

ではS層の膜厚がコヒーレンス長に比べて大きかったことも挙げられる。今後、膜厚をいろいろと変えた研究を行うことが課題であろう。

参考文献

- [1] L. R. Tagirov, Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 2058.
- [2] I. Baladié et al., Phys. Rev. B 63 (2001) 054518.
- [3] S. Takahashi, H. Imamura, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3911.
- [4] A. Yu. Rusanov, et al., Phys. Rev. B 73 (2006) 060505.
- [5] J. Y. Gu, et al., Phys. Rev. Lett. 89 (2002) 267001.
- [6] R. J. Soulen et al., Science 282 (1998) 85.