

令和 3 年 5 月 4 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01866

研究課題名(和文) エピタキシー技術が拓くルテニウム酸化物超伝導体の横断的研究

研究課題名(英文) Study on ruthenate superconductors using epitaxy techniques

研究代表者

打田 正輝(Uchida, Masaki)

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：50721726

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、エピタキシー技術によるルテニウム酸化物超伝導体の実現と薄膜・接合を利用した超伝導状態の解明を目的とした。転移温度が1.2Kを超えるSr₂RuO₄超伝導薄膜の作製に成功し、上部臨界磁場を精密に測定することで、二次元状態においてとりうる超伝導対称性を議論した。また、Sr₂RuO₄同士のジョセフソン接合作製に成功し、ジョセフソン臨界電流の磁場依存性が時間反転対称性を保った振動パターンとなることを明らかにした。さらに、分子線エピタキシー成長によって高品質なRuO₂単結晶薄膜を様々な基板上に作製し、基板からのエピタキシャル歪みを制御することで、T_c = 1.7 Kの超伝導の発現に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果は、転移温度が低く不純物や組成に非常に敏感な酸化物超伝導体の研究において、酸化物分子線エピタキシー技術を用いた新規超伝導体の開拓と、エピタキシャル薄膜やジョセフソン接合を利用した超伝導状態の解明が極めて有効であることを示しており、今後様々な酸化物への応用展開が期待される。

研究成果の概要(英文)：Purposes of this study are to realize ruthenium oxide superconductors by epitaxy technique and to elucidate their superconducting states using thin films and junctions. We have succeeded in growing Sr₂RuO₄ superconducting thin films with a transition temperature exceeding 1.2K, and have discussed possible superconducting symmetries which can be realized in two-dimensional limit by precisely measuring the upper critical magnetic field. We have also succeeded in preparing Sr₂RuO₄-Sr₂RuO₄ Josephson junctions, and have clarified that the magnetic field dependence of the Josephson critical current maintains time-reversal symmetry. Furthermore, by growing high-quality RuO₂ single crystal thin films on various substrates and controlling epitaxial strain from the substrates, we have succeeded in realizing superconductivity at 1.7 K in RuO₂.

研究分野：物性物理学

キーワード：ルテニウム酸化物 薄膜 超伝導体

1. 研究開始当初の背景

ルテニウム酸化物 Sr_2RuO_4 は、銅を含まない超伝導体として 1994 年に発見され、最近までスピン三重項、中でもカイラル p 波 ($p_x \pm ip_y$) の対称性をもつと考えられ、精力的な研究が行われてきた。カイラル p 波超伝導状態は、エッジ・ボルテックスにマヨラナ準粒子をもつトポロジカル超伝導状態であり、トポロジカル量子計算への応用も期待されてきた。一方、高温超伝導銅酸化物とは対照的に、 Sr_2RuO_4 は超伝導薄膜作製が極めて難しく、転移温度の上昇や超伝導対称性の解明を進める上で決定的な役割を果たしてきたジョセフソン接合・キャリアドーピング・エピタキシャル歪み等のテクニックやアイデアは、これまでの 20 年間に渡る研究において全く用いられてこなかった。

2. 研究の目的

研究代表者は、独自の酸化物分子線エピタキシー技術の深化により、 Sr_2RuO_4 超伝導薄膜の安定作製に成功し (M. Uchida *et al.*, *APL Materials* **5**, 106108 (2017))、ジョセフソン接合をはじめとする薄膜接合の利用やエピタキシャル歪み等の基礎的なパラメータの制御によるルテニウム酸化物超伝導体の横断的研究への扉を開いた。本研究では、エピタキシー技術により初めて可能になる Sr_2RuO_4 薄膜接合や類似のルテニウム酸化物超伝導体の作製を進め、転移温度の上昇とメカニズムの解明を目指して研究を進めた。

3. 研究の方法

Sr_2RuO_4 の超伝導は転移温度自体 ($T_c \sim 1.5\text{K}$) が低く、かつ不純物及び組成に大変敏感であるため、超伝導薄膜の作製は極めて難しい。高品質薄膜作製に向く分子線エピタキシー法では、いかに高純度の Ru フラックスを安定して供給できるかが長年の大きな課題であった。研究代表者は、電子線ビーム加熱を利用した酸化物分子線エピタキシー成長について装置の立ち上げと成膜技術の蓄積を進め、世界で初めて Sr_2RuO_4 超伝導薄膜の安定作製に成功した。本研究では、この技術を生かして、(1)超伝導状態のキャリア変調と相図作製、(2)エピタキシャル応力を受けた超伝導薄膜の作製と転移温度の制御、(3)新規ルテニウム酸化物薄膜の高品質作製と超伝導化、の三項目の研究を進めた。

4. 研究成果

本研究により、分子線エピタキシー法を用いた Sr_2RuO_4 の薄膜作製については、転移温度が $T_c = 1.2\text{K}$ を超える超伝導薄膜の作製に成功できるようになった。この超伝導薄膜の上部臨界磁場の方位角依存性を精密に測定したところ、その超伝導状態が次元クロスオーバーの領域に位置していることが確認された。さらに、 c 軸方向の上部臨界磁場がバルクと比較して異常な増大を示す一方で、 ab 面内方向では相対的に上部臨界磁場が抑制される振る舞いが明らかになった。この事実は、スピン三重項の場合には、 Sr_2RuO_4 薄膜では ab 面内方向にパウリリミットが存在していることを意味している。すなわち、薄膜化による空間反転対称性の破れにしたがって d ベクトルの方位がバルクの c 軸方向から ab 面内方向へと変化している可能性が明らかになった (M. Uchida *et al.*, *Phys. Rev. B* **99**, 161111(R) (2019))。

また、この転移温度が $T_c = 1.2 \text{ K}$ を超える高品質薄膜にレーザー微細加工を施すことで弱結合型のジョセフソン接合を作製した。これにより、 $I_c R_n$ 積が大幅に向上したオーバードンプ型の接合が得られた。特にこれまでのバルク単結晶を用いた接合は全て Sr_2RuO_4 と s 波超伝導体との接合となっていたが、 Sr_2RuO_4 同士のジョセフソン接合作製に初めて成功した。ジョセフソン臨界電流の磁場依存性は時間反転対称性を保った振動パターンとなっており、 $I_c R_n$ 積の温度依存性は Ambegaokar-Baratov の式で表される s 波ともカイラル p 波とも異なる非自明なものとなっていることが明らかになった (M. Uchida *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 035107 (2020))。

さらに、エピタキシャル歪みを用いた新規ルテニウム酸化物超伝導体の開拓に成功した。ルチル型酸化物 RuO_2 は非常に伝導度の高い金属であり、電極・温度計・触媒等の様々な用途に利用されてきた。さらに近年、本物質は、高い秩序温度をもつ反強磁性体並びにトポロジカル線ノード半金属の候補物質としても注目を集めている。分子線エピタキシー成長によって高品質な RuO_2 単結晶薄膜を様々な基板上に作製し、基板からのエピタキシャル歪みを制御することで、 $T_c = 1.7 \text{ K}$ の超伝導の発現に成功した。超伝導転移温度と格子定数変化の関係を系統的にマッピングすることで、特定の Ru-O 結合が短くなることで超伝導が発現していることが明らかになった。本結果は、このような単純な遷移金属酸化物においてエピタキシャル歪みが超伝導の開拓に極めて有効であることを強く示している (M. Uchida *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 147001 (2020))。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件／うち国際共著 4件／うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, R. Kurihara, K. Akiba, M. Kriener, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, and M. Kawasaki	4. 巻 10
2. 論文標題 Quantized surface transport in topological Dirac semimetal films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2564-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-10499-0	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 Y. Nakazawa, M. Uchida, S. Nishihaya, S. Sato, A. Nakao, J. Matsuno, and M. Kawasaki	4. 巻 7
2. 論文標題 Molecular beam epitaxy of three-dimensionally thick Dirac semimetal Cd ₃ As ₂ films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 071109-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5098529	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 K. Tanaka, J. Falson, Y. Kozuka, M. Uchida, D. Maryenko, J. T. Ye, Y. Iwasa, A. Tsukazaki, J. H. Smet, and M. Kawasaki	4. 巻 115
2. 論文標題 Ballistic transport in periodically modulated MgZnO/ZnO two-dimensional electron systems	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 153101-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5121005	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 M. Uchida, T. Koretsune, S. Sato, M. Kriener, Y. Nakazawa, S. Nishihaya, Y. Taguchi, R. Arita, and M. Kawasaki	4. 巻 100
2. 論文標題 Ferromagnetic state above room temperature in a proximitized topological Dirac semimetal	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245148-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.245148	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 M. Uchida, I. Sakuraba, M. Kawamura, M. Ide, K. S. Takahashi, Y. Tokura, and M. Kawasaki	4. 巻 101
2. 論文標題 Characterization of Sr ₂ RuO ₄ Josephson junctions made of epitaxial films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035107-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.035107	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 E. B. Lochocki, H. Paik, M. Uchida, D. G. Schlom, and K. M. Shen	4. 巻 112
2. 論文標題 Controlling surface carrier density by illumination in the transparent conductor La-doped BaSnO ₃	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 181603-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5020716	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 S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, M. Kriener, Y. Kozuka, Y. Taguchi, and M. Kawasaki	4. 巻 4
2. 論文標題 Gate-tuned quantum Hall states in Dirac semimetal (Cd _{1-x} Zn _x) ₃ As ₂	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 ear5668-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.aar5668	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 該当する

1. 著者名 S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, K. Akiba, M. Kriener, Y. Kozuka, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, and M. Kawasaki	4. 巻 97
2. 論文標題 Negative magnetoresistance suppressed through topological phase transition in (Cd _{1-x} Zn _x) ₃ As ₂ films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245103-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.97.245103	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. Matsuoka, M. Nakano, M. Uchida, M. Kawasaki, and Y. Iwasa	4. 巻 98
2. 論文標題 Signatures of charge-order correlations in transport properties of electron-doped cuprate superconductors	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144506-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.144506	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 R. Nishino, Y. Kozuka, F. Kagawa, M. Uchida, M. Kawasaki	4. 巻 113
2. 論文標題 Ferroelectric field control of charge density in oxide films with polarization reversal by electric double layer	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 143501-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5047558	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 M. Uchida, M. Ide, M. Kawamura, K. S. Takahashi, Y. Kozuka, Y. Tokura, M. Kawasaki	4. 巻 99
2. 論文標題 Anomalous enhancement of upper critical field in Sr ₂ RuO ₄ thin films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 161111-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.161111	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 -

〔学会発表〕 計22件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 M. Uchida
2. 発表標題 Quantization of Surface Conduction in Topological Semimetal Films
3. 学会等名 The Future of Topological Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Uchida
2. 発表標題 Quantized Transport in Topological Semimetal Surfaces
3. 学会等名 Strongly Correlated Electron Systems 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Uchida
2. 発表標題 Sr2RuO4 Josephson junctions fabricated from epitaxial films
3. 学会等名 Oxide Superspin Workshop 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Uchida, Y. Nakazawa, S. Nishihaya, K. Akiba, M. Kriener, Y. Kozuka, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, N. Nagaosa, Y. Tokura, and M. Kawasaki
2. 発表標題 Quantum Hall Effect in Topological Semimetal Films
3. 学会等名 The 7th International Workshop on Emergent Phenomena in Quantum Hall Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 砒化物ディラック半金属薄膜の量子輸送現象に関する実験的研究
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 Quantized Surface Transport in Topological Semimetal Films
3. 学会等名 第43回日本磁気学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 トポロジカル半金属表面における量子化伝導現象
3. 学会等名 第11回トポロジー連携研究会「トポロジカル半金属」（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Uchida, S. Nishihaya, Y. Nakazawa, R. Kurihara, K. Akiba, M. Kriener, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, and M. Kawasaki
2. 発表標題 Quantized Surface Transport Observed in Cd ₃ As ₂ Films
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Uchida, I. Sakuraba, M. Kawamura, M. Ide, K. Takahashi, Y. Tokura, M. Kawasaki
2. 発表標題 Sr ₂ RuO ₄ superconducting state as revealed by film and junction experiments
3. 学会等名 CEMS Symposium on “Emergent Quantum Materials 2019”（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大野瑞貴, 打田正輝, 栗原綾佑, M.-T. Huebsch, T. Yu, 中澤佑介, 佐藤慎, Markus Kriener, 三宅厚志, 田口康二郎, 有田亮太郎, 徳永将史, 川崎雅司
2. 発表標題 磁性半金属EuSb2薄膜の量子輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤慎, 打田正輝, 栗原綾佑, 中澤佑介, M. Kriener, 三宅厚志, M.S.Bahramy, 田口康二郎, 徳永将史, 川崎雅司
2. 発表標題 磁性半金属EuAs薄膜における異常ホール効果の解明
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 打田正輝, 桜庭一啓, 川村稔, 井出元晴, 高橋圭, 十倉好紀, 川崎雅司
2. 発表標題 r2RuO4薄膜を用いた弱結合ジョセフソン接合の特性評価
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 トポロジカル半金属薄膜における量子化表面伝導
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 Masaki Uchida
2 . 発表標題 Quantum transport phenomena in topological semimetal films
3 . 学会等名 8th CEMS Topical Research Camp on ‘Symmetry and Topology’ (招待講演)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 M. Uchida, I. Sakuraba, M. Kawamura, M. Ide, K. Takahashi, Y. Tokura, M. Kawasaki
2 . 発表標題 Sr2RuO4 Josephson junctions built in epitaxial films
3 . 学会等名 2019 American Physical Society March Meeting (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Y. Nakazawa, M. Uchida, S. Nishihaya, S. Sato, M. Kawasaki
2 . 発表標題 Quantum transport properties of Cd3As2 films with low carrier density
3 . 学会等名 2019 American Physical Society March Meeting (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, R. Kurihara, K. Akiba, M. Kriener, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, M. Kawasaki
2 . 発表標題 Weyl orbit quantum Hall states observed in Dirac semimetal Cd3As2 thin films
3 . 学会等名 2019 American Physical Society March Meeting (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤慎, 打田正輝, 中澤佑介, 西早辰一, 川崎雅司
2. 発表標題 新規磁性半導体EuAs薄膜の作製と磁気輸送特性の評価
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤慎, 打田正輝, 中澤佑介, 西早辰一, 川崎雅司
2. 発表標題 分子線エピタキシー法による新規磁性半導体EuAs薄膜の作製
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中澤佑介, 打田正輝, 西早辰一, 佐藤慎, 川崎雅司
2. 発表標題 分子線エピタキシー法により作製したCd ₃ As ₂ 薄膜の量子輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西早辰一, 打田正輝, 中澤佑介, 栗原綾佑, M. Kriener, 三宅厚志, 田口康二郎, 徳永将史, 川崎雅司
2. 発表標題 ディラック半金属(Cd _{1-x} Zn _x) ₃ As ₂ 薄膜における表面量子輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masaki Uchida
2. 発表標題 Domain Wall Conduction at All-in-all-out Antiferromagnetic Iridate Heterointerface
3. 学会等名 CIMTEC 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018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