

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：13601

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540368

研究課題名(和文)カイラルp波超伝導接合における新導電現象の探索

研究課題名(英文) Search for new electronic transport phenomena in chiral p-wave superconducting junction

研究代表者

神原 浩 (KAMBARA, Hiroshi)

信州大学・学術研究院教育学系・准教授

研究者番号：00313198

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：メカニカルブレイク接合(MCBJ)法によって試料の接合界面抵抗を制御し、カイラルp波超伝導( $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ )接合に特有の量子輸送現象を見出すことを目標としてスタートした。しかし、極低温MCBJ実験の遂行が困難となったため、当初計画とは異なるが、同じRu酸化物である強磁性体 $\text{SrRuO}_3$ ( $T_c = 160$  K)にMCBJ法を適用し、局所電気伝導と磁性との相関を検証する研究を行った。強磁性状態と常磁性状態で電気伝導特性が大きく変化することを見出した。

研究成果の概要(英文)：We started this project to explore new quantum transport phenomena in chiral p-wave superconducting ( $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ ) junctions using mechanically controllable break junction (MCBJ) technique. However, it turned out to be difficult to perform very-low temperature MCBJ experiments. Thus, we carried out transport characteristics measurements of ferromagnetic ruthenium oxide  $\text{SrRuO}_3$  ( $T_c = 160$  K) break junctions to investigate an influence of magnetism on local electronic transport. We observed large change of the differential conductance between the ferromagnetic state and the paramagnetic state.

研究分野：低温物理学

キーワード：ルテニウム酸化物 ブレイク接合 局所電気伝導 強磁性

## 1. 研究開始当初の背景

まず、本研究課題の申請時における研究背景について整理する。

1994年に前野らによって発見された異方的超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  (以下、SRO214 と省略) は、超伝導電子対の対称性が、スピン 3 重項・時間反転対称性の破れたカイラル p 波状態と考えられる、様々な研究結果が報告されていた。電気伝導特性においても、スピン 3 重項超伝導はその内部自由度の豊富さから、スピン 1 重項超伝導にはない特異な性質が期待される。その中の 1 つ、非 s 波超伝導体に特徴的なゼロエネルギー束縛状態 (ZES) は、準粒子の波動関数の内部位相に敏感で、準粒子の干渉効果の結果現れるものであるため、SRO214 の表面・界面状態の研究も精力的に行われてきた。しかし、SRO214 の超伝導は不純物や格子欠陥に対して脆弱であり、走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いた研究は一筋縄ではいかず、かろうじて Pt 金属との点接触実験、3-K 相とよばれる析出 Ru 相を介したトンネル接合実験などが行われてきた。

その中で、研究代表者の以前所属していた産総研・相谷グループで、集束イオンビーム (FIB) 加工により、SRO214 の純良単結晶試料から微細デバイスを削り出す技術が開発され、申請時の前年 (2011 年) までには、(1) SRO214 と Ru の共晶系において、FIB 加工したデバイスで、カイラルドメインに由来すると推測される特異な電流 - 電圧特性 [1] の観測の他、(2) 真空中で破砕した SRO 界面にその場で Au 蒸着を施し、FIB 加工したデバイスで、カイラル p 波超伝導 / 常伝導接合による特徴的な ZES の観測 [2] がなされた。

以上のような経緯を経て、研究代表者は当時、FIB 加工の手法に加え、さらにメカニカルブレイク接合 (MCBJ) によって面内清浄界面を作製する手法を組み合わせることで、SRO214 - SRO214 の接合を作製し、スピン 3 重項超伝導体における準粒子トンネル効果やジョセフソン効果の観測を通して、特異な電気伝導現象の検出を目指すこととした。

## 2. 研究の目的

当初の研究目的は、MCBJ 法により SRO214 - SRO214 の超伝導接合を作製し、伝導面内 (ab 面) 接合の準粒子トンネルスペクトル、およびジョセフソン効果の観測から、カイラル p 波対称性に対する新たな知見を得ることを目指すものであった。SRO がもし、カイラル p 波の対称性をもつのであれば、接合界面における相対位相の変化が全て等しく、従って、常に ZES が観測されるはずであり、方向によっては ZES が観測されない d 波超伝導体と大きな違いがある。また、理論 [3] によれば、カイラル p 波のジョセフソン素子に流れる超伝導臨界電流密度は、カイラリティの向きが揃うことで、低温になるにつれ、飽和するのではなく、増大していくとい

う予測があった。これらの実験的検証を目的として、本研究課題を開始した。

また実験方法である MCBJ 法とは、金属細線や薄片に用いてこられた手法で、試料を固定した基板をピエゾ素子等により微小変形させ、試料間接合距離を原子間距離程度で制御する手法である。高真空中で接合を作製するため、極めて清浄な超伝導接合を得ることができる。当時、SRO214 の FIB 加工によるプロセスでは、数  $\mu\text{m}$  程度以下の幅に微細加工することは困難であったため、過去に Bi 系高温超伝導体で適用された例もある、MCBJ 法を適用することとした。

しかし、研究代表者の所属する大学では、液体ヘリウムを用いた低温実験を行うことが事実上不可能であること、また研究開始当初、世界情勢により液体ヘリウム価格が大変高騰し、液体ヘリウムを用いた実験が他研究所においても困難であったこと、などの理由から、まず、無冷媒 GM (Gifford-McMahon) 冷凍機を用いた MCBJ 実験装置の開発を第 1 目標に設定した。しかし、研究開始から試行を繰り返し、実験を行った結果、原子接点レベルの接合制御において、GM 冷凍機の機械的振動の影響を除去することが困難であり、GM 冷凍機を用いて数 K 以下の低温下での安定した MCBJ 実験を行うことは困難であると判断するに至ることとなった。

従って、最終年度は SRO214 の超伝導状態における当初の計画から軌道修正を行い、液体窒素 (77 K) を用いた “静かな” 環境で MCBJ 法を適用し、SRO214 と同系統の Ru 酸化物  $\text{SrRuO}_3$  (以下、SRO113 と省略) の微細接合における電気伝導特性測定による研究を行うこととした。SRO113 は、160 K 以下で強磁性状態に相転移するルテニウム酸化物磁性体であり、Ru 酸化物における MCBJ 法の適用可否を調べるだけでなく、室温から 77 K までの温度変化により、強磁性状態と常磁性状態を温度により制御することで、磁性と電気伝導の相関を MCBJ 法で検出できる可能性がある。強磁性体における微細接合は、最近、Ni 細線で観測された特徴的な微分コンダクタンス曲線が、近藤効果に由来する Fano カーブと解釈されている研究結果 [4] があり、Ni という純金属における接合と、SRO113 という強相関電子系酸化物磁性体による比較により、新しい観点でその現象を捉え直すこともできると期待される。

## 3. 研究の方法

本研究で用いる MCBJ 法は、試料を基板に固定しておき、その基板をピエゾ素子等により微小変形させるものであるため、試料間接合距離は、基板と探針を用いる STM に比べて、外部振動に対して安定である。まず、液体窒素を用いたクライオスタットによる、MCBJ 装置の開発と金細線を用いたテスト実験を行い、そこで、MCBJ 実験技術を確立した後、GM 冷凍機を用いた低温 MCBJ 装置

の開発を行うという順序で進めることとした。(しかし、研究期間中、前述のように、GM 冷凍機を用いた MCBJ 実験は機械的振動の影響を取り除くことが困難であると判断するに至った。)電気伝導特性は、MCBJ 法により制御した試料の微細接合において、交流変調法により、バイアス電圧に対して、微分コンダクタンススペクトルを測定することで調べた。

#### 4. 研究成果

##### (1) Au 原子ナノ接点における量子化コンダクタンスの安定性

液体窒素温度、高真空下で作動する 77K - MCBJ 実験装置を作製し、動作テストを兼ねて、Au 原子におけるナノ接点を作製し、コンダクタンストレースカーブから量子化コンダクタンス ( $G_0 = 2e^2/h = 1/12.9 [1/k\Omega]$ ) とその整数倍におけるステップを確認した。また、破断の過程で、量子化コンダクタンス付近の値に留まる滞在時間の測定から量子化値の安定性を調べた。

##### (2) GM 冷凍機を用いた無冷媒 MCBJ 実験装置の開発

液体ヘリウムを使用しない無冷媒 GM 冷凍機で低温・高真空下における MCBJ 実験を行えるよう、GM 冷凍機 - MCBJ 実験装置の開発に取り組んだ。試料を破断させる過程において、基板湾曲用の粗動機構は、クライオスタット底部にアクセスロッドを取り付け、外部からマイクロメータシャフトを回転させる機構とした。GM 冷凍機の機械振動の影響を除去するため、ベースプレート(最低温度部分)から「ばねつり方式」によって GM 冷凍機ヘッドをつり下げ、熱リンクを兼ねた銅薄板のダンパーを取り付けた。GM 冷凍機ヘッドを「直付け」した場合に比べて、振動の影響は大幅に改善された。しかし、Au や Sn 試料におけるナノ接点では、振動により 10 ~ 20% 程度の電流値のゆらぎが生じてしまうことが分かった。ごく稀に、Au においては振動の影響をほぼ無視できる場合もあったが、GM 冷凍機を用いて、原子接点レベルの接合実験を安定して行うことは困難であると判断するに至った。

##### (3) SrRuO<sub>3</sub> の微細接合における微分コンダクタンスの温度変化

SRO113 はペロブスカイト構造をもつ Ru 酸化物であり、 $T_c = 160 K$  の強磁性転移に伴い、バルクの電気抵抗の温度変化にはキックが現れることが知られている。本研究では SRO113 の多結晶試料を用い、MCBJ 法により微細接合を形成し、電気伝導特性測定を、強磁性転移温度以下の 77 K と転移温度以上の 220 K において行った。

ゼロ磁場で測定を行ったところ、図 1 のように強磁性状態の 77 K においては、 $\pm 0.2 \sim 0.5 eV$  程度のエネルギースケールで微分

コンダクタンス値が大きく(約 50 ~ 80% 程度)

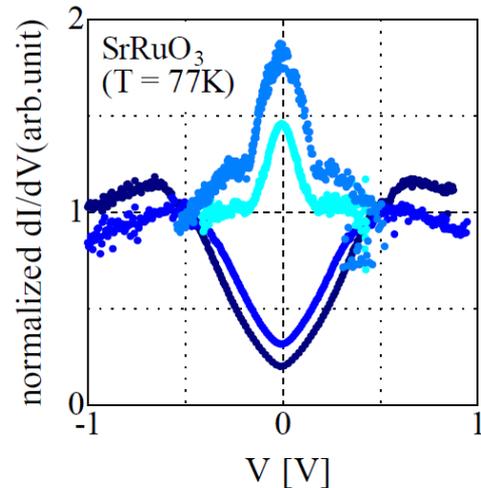


図 1. SrRuO<sub>3</sub> 微細接合の強磁性状態における微分コンダクタンス (バイアス電圧 - 0.5 V の値で規格化)

変化するディップ構造とピーク構造の 2 種類が観測された。それに対して、220 K の常磁性状態では、図 2 のように、微分コンダクタンス値の変化は小さくなる(25% 程度以下)ことが分かった。温度によるスミアリングの影響があったとしても、約 100 K では、0.01 eV 程度のエネルギー変化量にすぎないことを考慮すると、微分コンダクタンスの温度変化は電子状態の本質的な違いを反映したものである可能性が高いと考えられる。

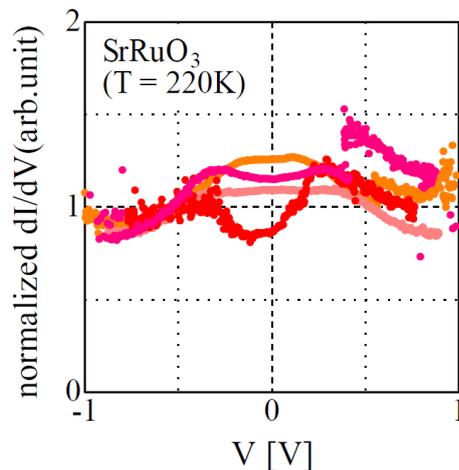


図 2. SrRuO<sub>3</sub> 微細接合の常磁性状態における微分コンダクタンス (バイアス電圧 - 0.5 V の値で規格化)

強磁性状態でコンダクタンスの大きな変化を示す原因として、最も単純なモデルとしては、接合を挟んでスピンの向きが平行である場合と反平行である場合の 2 種類からディップとピークの 2 種類が類推されることであ

る。過去に、Ni 細線における関口氏らのシミュレーション結果 [5] によると、スピン平行の場合、微分コンダクタンスはピークを示し、一方、反平行の場合は、微分コンダクタンスはディップを示すと計算されている。しかし、Ni の場合は、 $T_c = 631 \text{ K}$  であり、また他の多くの強磁性体も  $T_c$  は  $600 \sim 1400 \text{ K}$  と高いため、これまでは実際に強磁性状態と常磁性状態を温度変化により実験で検証することは困難であった。その点、SRO113 の強磁性転移温度は  $T_c = 160 \text{ K}$  と程よく低く、強磁性状態と常磁性状態の相違を、温度変化により実際に測定することができたことは、本研究の最も強調すべき点である。また同時に、金属細線ではなくルテニウム酸化物試料においても MCBJ 法を適用し、微細接合で電気伝導特性測定が可能であることが分かった点も本研究の成果の 1 つである。

今後は、先のシンプルなスピン平行・反平行モデルで微分コンダクタンスの変化を説明できるものかどうか、実験的に検証するため、強磁性状態、常磁性状態のそれぞれの状態において、外部から磁場を印加し、微分コンダクタンスの磁場応答を測定することを計画しており、現在も本研究を継続、進展させている。また、 $\pm 0.2 \sim 0.5 \text{ V}$  程度で現れる特徴的な微分コンダクタンスの変化は、磁性の起源となる電子状態密度と密接に関わっているはずであり、理論計算によるアプローチも進めていくべきことと考えている。

#### (4) Ni 細線の微細接合における微分コンダクタンス測定

Ni 細線の微細接合における微分コンダクタンス測定においては、最近、九州大学河江グループの家永らによって、 $20 \text{ K}$  以下の低温では、近藤効果を起源とした Fano 効果に由来すると考えられる特徴的な微分コンダクタンスカーブが観測されることが報告された [4]。実験的には、数原子から 50 原子程度まで Fano カーブが観測されていると報告されており、磁性不純物を含んだ合金ではなく純金属においても近藤効果が観測されることで注目を浴びている。微分コンダクタンスの特徴的なカーブが、温度変化に伴いどう変化するか調べるため、我々は  $77 \text{ K}$  以上の高温で、 $77 \text{ K}$  - MCBJ 実験装置を用いた、Ni 細線接合における微分コンダクタンス測定を行った。図 3 は、 $77 \text{ K}$  における Ni 微細接合の微分コンダクタンスであり、 $77 \text{ K}$  においても、ゼロバイアス電圧付近に特徴的なカーブが観測されることが分かった。ただし、家永らによって報告された特徴的なコンダクタンスカーブの半値幅に比べて、測定値は 4 ~ 8 倍と大きく、現段階では単純に温度によるスマリングでは説明できないものと考えられる。従って、我々が測定した  $77 \text{ K}$  のカーブは、Fano 効果を起源とするものではない可能性も高いが、先の(3)の SRO113 と同様、Ni 細線においてもスピン平行・反平

行モデルの可能性を含めて、磁場応答による実験研究を進めていく計画である。

今後、MCBJ 法を用いた Ni と SRO113 における微細接合の電気伝導特性測定による相補的な研究によって、磁性と電気伝導の相関現象を追究していく予定である。

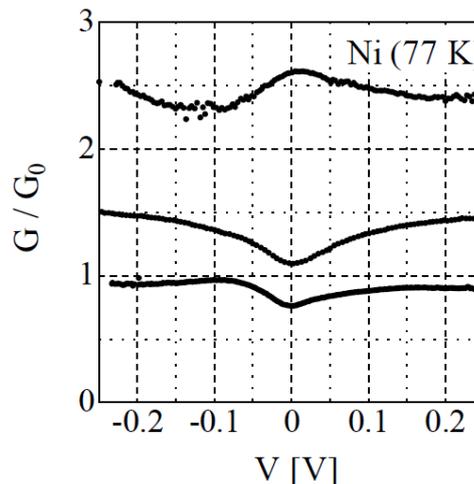


図 3. Ni 微細接合における微分コンダクタンス (量子化コンダクタンス値  $G_0$  で規格化)

#### <引用文献>

- [1] H. Kambara, S. Kashiwaya, H. Yaguchi, Y. Asano, Y. Tanaka, and Y. Maeno, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 267003-1 -4 (2008).
- [2] S. Kashiwaya, H. Kashiwaya, H. Kambara, T. Furuta, H. Yaguchi, Y. Tanaka, and Y. Maeno, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 077003-1 -4 (2011).
- [3] Y. Asano and K. Katabuchi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 1974-1977 (2002).
- [4] K. Ienaga, N. Nakashima, Y. Inagaki, H. Tsujii, S. Honda, T. Kimura, and T. Kawae, *Phys. Rev. B* **86**, 064404-1 -4 (2012).
- [5] K. Sekiguchi, A. Yamaguchi, H. Miyajima, A. Hirohata, and S. Usui, *Phys. Rev. B* **78**, 224418-1 -5 (2008).

#### 5 . 主な発表論文等

{ その他 }

研究室紹介ホームページアドレス

<http://www.shinshu-u.ac.jp/faculty/education/course/science/labo/physics/02.html>

#### 6 . 研究組織

(1)研究代表者

神原 浩 (KAMBARA, Hiroshi)

信州大学・学術研究院教育学系・准教授

研究者番号：00313198