

令和元年8月30日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05457

研究課題名(和文) 重い電子系薄膜の界面設計による新奇超伝導相の創成

研究課題名(英文) Emergence of new superconducting phases by designing interfaces of heavy-fermion thin films

研究代表者

笠原 裕一 (Yuichi, Kasahara)

京都大学・理学研究科・准教授

研究者番号：10511941

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 16,800,000円

研究成果の概要(和文)：新しい超伝導現象やトポロジカル現象の探索を目的として、重い電子系物質を用いた人工超格子の作製ならびに電界効果による電子状態制御を行った。重い電子系人工超格子では、三色超格子による空間反転対称性の破れた超伝導体の人工創成、反強磁性体/超伝導体ハイブリッド超格子による反強磁性揺らぎの注入と超強結合超伝導状態の実現、反強磁性の次元制御に成功した。また、電界効果により誘起した2次元超伝導において、磁場中金属状態や超伝導電子対のスピンが層に対し垂直方向に固定されたイジング超伝導状態を発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

人工超格子や電界効果により、バルク物質ではこれまで観測されてこなかった特異な超伝導状態が見出された。特に人工超格子では、トポロジカル超伝導の実現が指摘されている空間反転対称性の破れた超伝導状態を実現し、さらに空間反転対称性の破れの度合いを制御できることを明らかにした。さらに超伝導状態を制御する新しい手法として、反強磁性体との近接効果が有効であることを実証した。電界効果においてもイジング超伝導などの新しい超伝導状態が見出されている。従来の化学合成では実現困難な新しい電子相を探索する強力な手法として今後展開されることが期待される。

研究成果の概要(英文)：We have fabricated artificial superlattices using heavy-fermion compounds and controlled electronic state by electric-field-effect to search novel superconducting and topological phenomena. In heavy-fermion superlattices, we have demonstrated (1) artificial creation of superconductor with broken inversion symmetry, (2) realization of extremely strong-coupling superconductivity in hybrid superlattices comprised of an antiferromagnet and a superconductor, and (3) dimensional control of antiferromagnetism. Also, we have discovered a metallic state induced by weak magnetic field and an Ising superconducting state where spins of paired electrons are polarized perpendicular to the two-dimensional planes.

研究分野：低温物理

キーワード：超伝導 界面制御 強相関電子系

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電子相関が無視できるいわゆる弱相関物質系における超伝導やトポロジカル物質相などの現象はよく理解されているが、電子間の強い相互作用はこれら量子現象に驚くべき変化をもたらし、その代表例が高温超伝導体と分数量子ホール効果状態である。このような強相関物質系における新しい物理的概念・現象の開拓と理解には、新しい物質相の導入が不可欠である。そのようななか、応募者の研究グループは世界で初めて重い電子系超伝導薄膜とそれを用いた人工超格子の作製に成功し、電界誘起超伝導を含めた電場による界面電子相の創成・制御技術を確立してきた。

### 2. 研究の目的

本研究は、我々の研究グループが世界で初めて成功した重い電子系超伝導体薄膜の界面設計と電界効果の手法により、トポロジカル超伝導を含めた新奇超伝導相の創成とその制御を行う。ヘテロ接合や超格子などの人工設計が可能な重い電子系超伝導体薄膜は、トポロジカル超伝導を実現し得る格好かつ未開拓の舞台である。応募者らにノウハウが蓄積された技術を戦略的に展開することで、界面設計による新しい超伝導現象やトポロジカル現象を探索する。

### 3. 研究の方法

以上の目的を達成するために、本研究では以下の4項目を遂行した。

1. 薄膜・人工超格子におけるトポロジカル超伝導相と新奇超伝導相の探索
2. 薄膜・人工超格子における超伝導状態の解明と電界効果
3. 重い電子系薄膜の電子状態その場観測手法の確立

### 4. 研究成果

重い電子系人工超格子における新奇超伝導状態とその制御

重い電子系超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  と2種の通常金属  $\text{YbCoIn}_5$ ,  $\text{YbRhIn}_5$  を交互積層した3色超格子を作製し、従来の化学的物質開発では困難であった空間反転対称性の破れの人工制御が可能であることを実証した。また、空間反転対称性に伴うスピンパリティの混成をも人工制御可能であることが示唆され、空間反転対称性の破れた超伝導体で期待されるトポロジカル超伝導状態の創成にも有効であることが期待される。上部臨界磁場測定の結果、低温高磁場に新しい超伝導相の出現が示唆され、バルク物質では観測されて来なかった高磁場超伝導相、ヘリカル超伝導相が出現している可能性が示唆された。

重い電子系反強磁性体  $\text{CeRhIn}_5$  と通常金属  $\text{YbRhIn}_5$  の超格子を作製することにより、重い電子系反強磁性の2次元閉じ込めに成功し、低次元化による量子臨界点の存在を明らかにした。また、磁場に対する量子臨界性の異方性がバルクとは逆になることが明らかとなった。

重い電子系反強磁性体  $\text{CeRhIn}_5$  と超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  を交互積層した  $\text{CeRhIn}_5/\text{CeCoIn}_5$  ハイブリッド超格子を作製した。層数制御によって量子臨界状態と超伝導が共存することが明らかとなった。さらに圧力印加によって量子臨界状態を精密制御し、量子臨界点近傍において上部臨界磁場の増大を観測した。これより、隣接する磁性層の量子臨界揺らぎが超伝導に大きな影響を及ぼすだけでなく、対形成相互作用を強めることが明らかとなった。

さらに京都大学・石田教授のグループとの共同研究により、重い電子系超格子の核磁気共鳴測定を行うことで、微視的な電子・磁気状態の解明に関する研究を行った。その結果、ハイブリッド超格子と磁性層を含まない超格子との比較から、隣接する反強磁性体  $\text{CeRhIn}_5$  から  $\text{CeCoIn}_5$  へと磁気ゆらぎが注入されていることを微視的に捉えた。

電界効果による新奇超伝導状態の探索

層状窒化物  $\text{ZrNCl}$  および層状カルコゲナイド  $\text{MoS}_2$  を用いた電気二重層トランジスタを作製して電界誘起超伝導を実現し、その超伝導状態を詳細に調べた。 $\text{ZrNCl}$  では僅かな磁場で超伝導状態が壊れ、渦糸の運動による金属状態が実現することが明らかとなった。非常にクリーンな2次元超伝導体の本質的な性質であることが示唆される。 $\text{MoS}_2$  では層に平行な方向の地場に対して極めて強い耐久性を持つことを発見した。理論計算と合わせ、この超伝導体では超伝導電子対のスピンが層に対し垂直方向に固定された、イジング超伝導状態が実現していることを実証した。

重い電子系薄膜の電子状態その場観測手法の確立

トポロジカル超伝導のエッジ状態の観測を目指し、我々が開発した分子線エピタキシー/走査型トンネル顕微鏡 (MBE-STM) 複合装置を用いて重い電子系薄膜のその場電子状態観測を行った。非磁性不純物の  $\text{Zn}$  をドーブした  $\text{CeCoIn}_5$  において、常伝導状態および超伝導状態における局所電子状態を調べた結果、不純物周辺で磁性や束縛状態が誘起されず、重い電子状態もほとんど変化しないことが明らかとなった。これは銅酸化物高温超伝導体とは大きく異なるものであり、遍歴性の強い重い電子系の性質を反映したものであると考えられる。さらに反強磁性体  $\text{CeRhIn}_5$  の MBE-STM 測定を行い、反強磁性状態における重い電子状態形成の証拠を得た。これは数十年来にわたる未解決問題を明らかにする上で極めて重要な知見であり、これまで提出されてきた理論に大きな制約を与えるものである。以上のように MBE-STM を用

いた研究により新しい知見が得られており、酸化などの影響に敏感なエッジ状態などの観測に MBE-STM 測定が有効であることが実証された。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 13 件)

- Yuichi Kasahara, Kazuhiko Kuroki, Shoji Yamanaka, Yasujiro Taguchi, Unconventional superconductivity in electron-doped layered metal nitride halides  $MNX$  ( $M = \text{Ti, Zr, Hf}$ ;  $X = \text{Cl, Br, I}$ ), *Physica C*, 査読有、514 巻、2016、354-367  
DOI: 10.1016/j.physc.2015.02.022
- R. H. Zadik, Y. Takabayashi, G. Klupp, R. H. Colman, A. Y. Ganin, A. Potocnik, P. Jeglic, D. Arcon, P. Matus, K. Kamaras, Y. Kasahara, Y. Iwasa, A. N. Fitch, Y. Ohishi, G. Garbarino, K. Kato, M. J. Rosseinsky, K. Prassides, Optimized unconventional superconductivity in a molecular Jahn-Teller metal, *Science Advances*, 査読有、1 巻、2015、e1500059/1-9  
DOI: 10.1126/sciadv.1500059
- Y. Saito, Y. Nakamura, M. S. Bahramy, Y. Kohama, J. T. Ye, Y. Kasahara, Y. Nakagawa, M. Onga, M. Tokunaga, T. Nojima, Y. Yanase, Y. Iwasa, Superconductivity protected by spin-valley locking in ion-gated  $\text{MoS}_2$ , *Nature Physics*, 査読有、12 巻、2016、144-149  
DOI: 10.1038/NPHYS53580
- Le Duc Ahn, Pham Nam Hai, Yuichi Kasahara, Yuichi Kasahara, Yoshihiro Iwasa, Masaaki Tanaka, Modulation of ferromagnetism in  $(\text{In,Fe})\text{As}$  quantum wells via electrically controlled deformation of the electron wave function, *Physical Review B*, 査読有、92 巻、2015、161201(R)/1-5  
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.161201
- Y. Saito, Y. Kasahara, J. T. Ye, Y. Iwasa, T. Nojima, Metallic ground state in an ion-gated two-dimensional superconductor, *Science*, 査読有、350 巻、2015、409-413  
DOI: 10.1126/science.1259440
- L. Zheng, X. Miao, Y. Sakai, M. Izumi, H. Goto, S. Nishiyama, E. Uesugi, Y. Kasahara, Y. Iwasa, Y. Kubozono, Emergence of Multiple Superconducting Phases in  $(\text{NH}_3)_y\text{M}_x\text{FeSe}$  ( $M: \text{Na and Li}$ ), *Scientific reports*, 査読有、5 巻、2015、12774/1-8  
DOI: 10.1038/srep12774
- T. Ishii, R. Toda, Y. Hanaoka, Y. Tokiwa, M. Shimozawa, Y. Kasahara, R. Endo, T. Terashima, A. H. Nevidomskyy, T. Shibauchi, Y. Matsuda, Tuning the Magnetic Quantum Criticality of Artificial Kondo Superlattices  $\text{CeRhIn}_5/\text{YbRhIn}_5$ , *Physical Review Letters*, 査読有、116 巻、2016、206401/1-5  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.206401
- T. Watashige, S. Arsejjevic, T. Yamashita, D. Terazawa, T. Onishi, L. Opherden, S. Kasahara, Y. Tokiwa, Y. Kasahara, T. Shibauchi, H. von Lohneysen, J. Wosnitza, Y. Matsuda, Quasiparticle Excitations in the Superconducting State of  $\text{FeSe}$  Probed by Thermal Hall Conductivity in the Vicinity of the BCS-BEC Crossover, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、86 巻、2017、14707/1-5  
10.7566/JPSJ.86.014707
- Y. Kasahara, Y. Takeuchi, R. H. Zadik, Y. Takabayashi, R. H. Colman, R. D. McDonald, M. J. Rosseinsky, K. Prassides, Y. Iwasa, Upper critical field reaches 90 tesla near the Mott transition in fulleride superconductors, *Nature Communications*, 査読有、8 巻、2017、14467/1-5  
10.1038/ncomms14467
- T. Yamashita, T. Takenaka, Y. Tokiwa, J. A. Wilcox, Y. Mizukami, D. Terazawa, Y. Kasahara, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Konczykowski, S. Seiro, H. S. Jeevan, C. Geibel, C. Putzke, T. Onishi, H. Ikeda, A. Carrington, T. Shibauchi, Y. Matsuda, Fully gapped superconductivity with no sign change in the prototypical heavy-fermion  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ , *Science Advances*, 査読有、3 巻、2017、e161667/1-7  
DOI: 10.1126/sciadv.1601667
- T. Takenaka, Y. Mizukami, J. A. Wilcox, M. Konczykowski, S. Seiro, C. Geibel, Y. Tokiwa, Y. Kasahara, C. Putzke, Y. Matsuda, A. Carrington, T. Shibauchi, Full-Gap Superconductivity Robust against Disorder in Heavy-Fermion  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ , *Physical Review Letters*, 査読有、119 巻、2017、077001/1-5  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.119.077001
- M. Naritsuka, P. F. S. Rosa, Y. Luo, Y. Kasahara, Y. Tokiwa, T. Ishii, S. Miyake, T. Terashima, T. Shibauchi, F. Ronning, J. D. Thompson, Y. Matsuda, Emergent exotic superconductivity in artificially engineered tricolor Kondo superlattices, *Physical Review B*, 査読有、96 巻、2017、174512/1-10

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.174512

M. Naritsuka, P. F. S. Rosa, Y. Luo, Y. Kasahara, Y. Tokiwa, T. Ishii, S. Miyake, T. Terashima, T. Shibauchi, F. Ronning, J. D. Thompson, Y. Matsuda, Tuning the Pairing Interaction in a d-Wave Superconductor by Paramagnons Injected through Interfaces, Physical Review Letters, 査読有、2018、187002/1-6

DOI: 10.1103/PhysRevLett.120.187002

〔学会発表〕(計 24 件)

1. 笠原裕一、羽田崇人、吉田将郎、中野匡規、濱畑裕紀、竹延大志、岩佐義宏、金属カーボンナノチューブ薄膜における逆スピンホール効果、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16 日
2. 成塚政裕、遠藤僚太、戸田琳太郎、石井智大、下澤雅明、花岡洋祐、笠原成、常盤欣文、笠原裕一、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、CeCoIn<sub>5</sub> 系トリコロール超格子によるグローバルな空間反転対称性の破れの導入、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、大阪、2015 年 9 月 17 日
3. 石井智大、遠藤僚太、戸田琳太郎、成塚政裕、下澤雅明、花岡洋祐、笠原成、常盤欣文、笠原裕一、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、重い電子系ハイブリット超格子 CeRhIn<sub>5</sub>/CeCoIn<sub>5</sub> における輸送測定、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、大阪、2015 年 9 月 17 日
4. 花岡洋祐、綿重達哉、成塚政裕、笠原成、笠原裕一、芝内孝禎、寺嶋孝仁、花栗哲郎、松田祐司、重い電子系化合物 CeCoIn<sub>5</sub> エピタキシャル薄膜の STM/STS 測定 II、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、大阪、2015 年 9 月 17 日
5. Y. Kasahara、Fine tuning of the quantum criticality in the heavy fermion superlattices CeRhIn<sub>5</sub>/YbRhIn<sub>5</sub>、TMU International Symposium on “New Quantum Phases Emerging from Novel Crystal Structure”、首都大学東京、2015 年 9 月 25 日
6. 笠原裕一、フラーレン化合物におけるモット転移近傍の超伝導、2015 年日本化学会中国四国支部大会、岡山大学、2015 年 11 月 15 日 (招待講演)
7. Y. Kasahara、D. Terazawa, Y. Yamashita, T. Onishi, Y. Tokiwa, T. Terashima, Y. Matsuda, J. Wilcox, C. Putzke, A. Carrington, H. S. Jeevan, S. Seiro, C. Geibel, Y. Haga, Evidence for fully-gapped superconductivity in heavy-fermion CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>、The American Physical Society March Meeting 2016、Baltimore, MA, U.S.A.、2016 年 3 月 17 日
8. M. Naritsuka, T. Ishii, R. Toda, S. Kasahara, Y. Kasahara, Y. Tokiwa, T. Terashima, Y. Matsuda, Hybrid heavy-fermion superlattices of CeCoIn<sub>5</sub>/CeRhIn<sub>5</sub>、The American Physical Society March Meeting 2016、Baltimore, MA, U.S.A.、2016 年 3 月 17 日
9. 石井智大、戸田琳太郎、鳥井陽平、成塚政裕、下澤雅明、花岡洋祐、笠原成、常盤欣文、笠原裕一、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、ハイブリット超格子 CeRhIn<sub>5</sub>/CeCoIn<sub>5</sub> における量子臨界性、日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学、宮城、2016 年 3 月 21 日
10. 鳥井陽平、石井智大、戸田琳太郎、成塚政裕、下澤雅明、花岡洋祐、笠原成、常盤欣文、笠原裕一、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、ハイブリット超格子 CeRhIn<sub>5</sub>/CeCoIn<sub>5</sub> の超伝導特性、日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学、宮城、2016 年 3 月 21 日
11. 大西隆史、寺澤大樹、山下卓也、笠原裕一、常盤欣文、橘高俊一郎、榊原俊郎、H. S. Jeevan, C. Geibel, M. Konczykowski, 芳賀芳範、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、極低温熱伝導率測定からみた重い電子系超伝導体 CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の超伝導ギャップ構造、日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学、宮城、2016 年 3 月 21 日
12. 笠原裕一、重い電子系人工超格子による磁性および超伝導の制御とエピタキシャル薄膜における in situ STM 測定、物性研短期研究会「走査トンネル顕微鏡による物性研究の現状と展望」、東京大学物性研究所、千葉、2016 年 10 月 31 日 (招待講演)
13. 笠原裕一、近藤超格子におけるエキゾチック超伝導相、新学術領域研究「トポロジックが紡ぐ物質科学のフロンティア」第 2 回領域研究会、東北大学、宮城、2016 年 12 月 17 日
14. Y. Kasahara, M. Naritsuka, T. Ishii, S. Miyake, T. Terashima, Y. Matsuda, Y. Tokiwa, M. Shimozawa, T. Shibauchi, Tunable global inversion symmetry breaking and superconductivity in tricolor Kondo superlattices、The American Physical Society March Meeting 2017、New Orleans, LA, USA、2017 年 03 月 12 日
15. 笠原裕一、Exotic superconductivity in Kondo superlattices、CEMS Topical Meeting on Emergent 2D Materials 2017 (招待講演)、2017 年 7 月 21 日
16. 末松知夏、土師将裕、鳥井陽平、笠原成、笠原裕一、寺嶋孝仁、芝内孝禎、花栗哲郎、松田祐司、STM から見る近藤格子系 CeCoIn<sub>5</sub> における磁性不純物周りの電子状態、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 22 日
17. 土師将裕、末松知夏、鳥井陽平、笠原成、笠原裕一、花栗哲郎、芝内孝禎、寺嶋孝仁、松田祐司、STM から見る重い電子系超伝導体 CeCoIn<sub>5</sub> における磁性不純物効果、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 22 日
18. 鳥井陽平、末松知夏、土師将裕、笠原成、笠原裕一、寺嶋孝仁、芝内孝禎、花栗哲郎、松田祐司、重い電子系化合物 CeRhIn<sub>5</sub> 薄膜の STM/STS 測定、日本物理学会 2017 年秋季大会、

2017年9月22日

19. 仲嶺元輝, 山中隆義, 北川俊作, 石田憲二, 石井智大, 成塚政裕, 鳥井陽平, 下澤雅明, 宍戸寛明, 笠原成, 常盤欣文, 笠原裕一, 水上雄太, 芝内孝禎, 寺嶋孝仁, 松田祐司、NMR/NQRによる重い電子系人工超格子  $\text{CeCoIn}_5/\text{CeRhIn}_5$  及び  $\text{CeRhIn}_5$  単結晶膜の磁気状態の研究、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 22 日
20. 成塚政裕, 石井智大, 三宅聡平, 下澤雅明, 芝内孝禎, 常盤欣文, P.F.S. Rosa, Y. Luo, F. Ronning, J.D Thompson, 笠原裕一, 寺嶋孝仁, 松田祐司、重い電子系  $\text{CeCoIn}_5/\text{CeRhIn}_5$  ハイブリッド超格子の圧力下における上部臨界磁場精密角度依存性、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 22 日
21. 橋本浩法, 土師将裕, 柏谷聡, 三宅亮, 芳賀芳範, 寺嶋孝仁, 芝内孝禎, 笠原裕一, 松田祐司、Micro SQUID を用いた  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  におけるカイラルエッジ電流の検出、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 22 日
22. 成塚政裕, 三宅聡平, 下澤雅明, 芝内孝禎, 笠原裕一, 寺嶋孝仁, 松田祐司、 $\text{CeCoIn}_5/\text{CeIn}_3$  近藤超格子の超伝導状態、日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 24 日
23. 仲嶺元輝, 山中隆義, 北川俊作, 石田憲二, 石井智大, 成塚政裕, 鳥井陽平, 下澤雅明, 宍戸寛明, 笠原成, 常盤欣文, 笠原裕一, 水上雄太, 芝内孝禎, 寺嶋孝仁, 松田祐司、 $^{115}\text{In}$ -NMR/NQR で観る人工超格子  $\text{CeCoIn}_5/\text{CeRhIn}_5$  及びエピタキシャル膜  $\text{CeRhIn}_5$  の磁気構造の層数依存性、日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 24 日
24. 末松知夏, 佐野大樹, 鳥井陽平, 土師将裕, 笠原成, 笠原裕一, 寺嶋孝仁, 芝内孝禎, 花栗哲郎, 松田祐司、STM を用いた  $\text{CeRhIn}_5$  における混成ギャップの観測、日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 24 日

〔図書〕(計 1 件)

笠原裕一、超伝導磁束状態の物理(4.6.1 フラーレン超伝導体)、裳華房、2017

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://kotai2.scphys.kyoto-u.ac.jp/index.php?Top>

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：成塚政裕

ローマ字氏名：Masahiro Naritsuka

研究協力者氏名：寺嶋孝仁

ローマ字氏名：Takahito Terashima

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。