

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2016

課題番号：16K13683

研究課題名(和文) 表面・極薄超伝導体の走査トンネルポテンショメトリ測定

研究課題名(英文) Scanning tunneling potentiometry measurements on surface/ultrathin superconductors

研究代表者

平原 徹(Hirahara, Toru)

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：30451818

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では空間分解可能な電気伝導測定を用いて、表面・極薄超伝導体の高い臨界電流の起源を解明することを最終目的とした。そのために、まず高品質の単一ユニットセル(1UC)超伝導FeSe超薄膜を作製する条件を探索した。そして基板を520℃で加熱しFeとSeを共蒸着することで、ドメインの大きい1UCFeSe薄膜を作製できることを走査トンネル顕微鏡(STM)観察により明らかにした。一方、5Kでの走査トンネル分光(STS)測定では、超伝導特性が局所的に異なっていた。今後走査トンネルポテンショメトリ(STP)測定でこのような超伝導特性の局所的な違いが高い臨界電流にどのように影響しているかを明らかにする。

研究成果の概要(英文)：The purpose of the present research is to unveil the origin of the high critical current in surface/ultrathin superconductors using microscopic electrical conductivity measurements. First, we searched for the condition to grow a high-quality one unit-cell (1UC) thick FeSe superconducting film on SrTiO₃(001) substrate. We found that a large domain 1UC FeSe can be grown by co-depositing Fe and Se at the substrate temperature of 520 degrees from scanning tunneling microscopy (STM) measurements. Furthermore, we found that the superconducting properties of 1UC FeSe film showed local variations from scanning tunneling spectroscopy (STS) measurements at 5 K. We will clarify how these local properties affect the magnitude of the critical current from scanning tunneling potentiometry (STP) measurements in the near future.

研究分野：物性実験(表面・界面)

キーワード：超伝導 超薄膜 走査トンネル顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

電気抵抗が消失する超伝導現象は、省エネ技術として応用上重要であるとともに、波動関数の位相がマクロに揃う量子現象であり、基礎物理としても興味深い。一般に超伝導は物質を薄膜化すると転移温度が下がり、やがて超伝導転移自体が起きなくなると考えられてきた。しかし研究代表者は、In や Pb を原子 1,2 層吸着した Si(111) 表面超構造が ~ 3 K で超伝導になることを超高真空下での 4 端子電気伝導測定で実証した (M. Yamada, T. Hirahara *et al.*, PRL **110**, 237001 (2013))。さらに近年 FeSe 薄膜では、SrTiO₃ 基板の単一ユニットセル(3 原子層厚さ)で、バルクの 8 K をはるかに凌駕する 100 K で超伝導転移をすることが示された (J.-F. Ge *et al.*, Nature Materials **14**, 285 (2015))。またこのような表面・極薄超伝導体は臨界電流密度が $\sim 10^6$ A/cm² と通常の超伝導物質に比べて非常に大きいことが報告されている (T. Uchihashi *et al.*, PRL **107**, 207001 (2011))。臨界電流は一般に超伝導体の不純物(ピンニングセンター)のピン留め力で決まり、表面には単原子ステップや不純物といった原子レベルの欠陥が存在するが、そのピン留め力がなぜ大きいかは理解されていない。さらに不純物を意図的に添加してピンニングセンターの数を増やした場合に、臨界電流がどう変化するかなどの系統的な測定はなされていなかった。

2. 研究の目的

そこで本研究では空間分解可能な電気伝導測定を用いて、表面・極薄超伝導体の高い臨界電流の起源を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

研究代表者はこれまでに低温強磁場型 STM を改良した走査トンネルポテンシオメトリ (STP) 装置を開発した。この装置により従来の超伝導体の磁場中 STM/STS 測定に電流印加中のポテンシャル分布観測という新しい自由度が加わった。この装置を用いて、表面・極薄物質が電流印加により超伝導体破壊する様子をミクロスコピックに測定し、欠陥のピン留め力を系統的に検証することを目指した。測定対象とする系は SrTiO₃ 基板の単一ユニットセル(UC)厚さの FeSe 薄膜とした。

4. 研究成果

上記の通り本研究では STP 測定を目指したが、高品質の超伝導 FeSe 薄膜の作製に予想外に時間がかかり、STP 測定を実際に行う段までは至らなかった。

まず、STO 基板の処理条件や FeSe 薄膜の作成条件を変え、薄膜の成長過程を調べた。図 1 に STO 基板上に基板を 430°C にして FeSe を 1.3UC 蒸着したもの(a)、および基板を 520°C にして FeSe を 1.3UC 蒸着したもの(b)の STM 像を示した。測定は液体窒素で冷却した 78K で行った。(a)ではドメインが小さく、あちこちに存在しているのに対して(島状成長)、(b)ではより膜が平らであり、ステップからドメインが成長している様子(ステップフロー成長)が分かる。以後、より平坦性の高い薄膜が作製できる基板温度 520°C 以上を採用することにした。

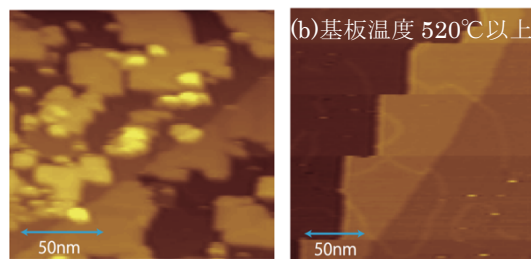


図 1 1.3UC の厚さの FeSe 薄膜の STM 像。基板温度はそれぞれ 430°C 以下(a)、520°C 以上(b)である。

図 2 は図 1(b)のより高分解能の STM 像であるが、Se 原子が正方格子に規則正しく配列している様子が分かる。さらに 78 K で STS 測定を行ったが、STM 探針が安定しなかったので高分解能測定を行うことができず、78 K で超伝導になっているかどうかは判定できなかった。

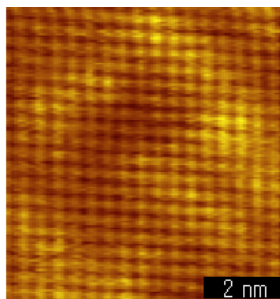


図 2 図 1(b)の高分解能 STM 像。正方格子に規則正しく配列した Se 原子が見えている。

次に液体ヘリウムで冷却して 5 K で STM/STS 測定を試みた。その結果、図 3 に示すようにフェルミ準位近傍で超伝導ギャップおよび準粒子ピークを観測し、5 K では確かに超伝導状態になっていることが観測できた。準粒子ピークとフェルミ準位の間隔で定義される超伝導ギャップ値は ~ 12 meV であり、過去の報告 (Z. F. Wang *et al.*, Nat. Mat. **15**, 968973 (2016), D. Huang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **115**, 017002 (2015), F. Li *et al.*, 2D Mat. **3**, 024002 (2016) など) とほぼ一致している。

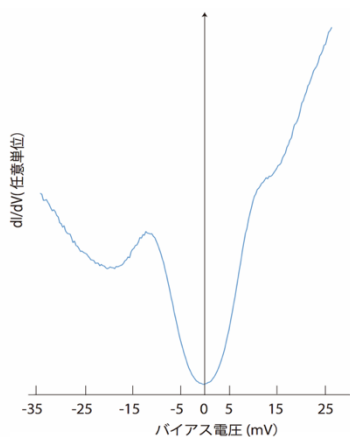


図 3 5 K
で測定され
た、1UC -
FeSe の超
伝導ギャッ
プおよび準
粒子ピーク
構造。

一方、この 1UC FeSe/STO を 5 K で詳細に STM 測定したところ、像に明るい領域と暗い領域の 2 つのコントラストが異なる領域 (図 4(a)) が見られた。詳細な測定によりこのコントラストの違いは形状の違いではなく局所電子状態密度の違いによることが判明した。そして、この 2 つの領域で高分解能 STS 測定を行い両者とも超伝導ギャップが見られたが、明るい領域の方が準粒子ピークが強く、超伝導ギャップが大きい事が分かった (図 4(b), (c))。さらに、試料を 500°C で加熱すると明るい領域が増えることがわかった。加熱によって FeSe/STO 界面の酸素欠陥が増えていることが予想されるので、酸素欠陥による FeSe への電子ドーパ量がミクロスコピックに異なる為コントラストの違いが生じ、さらに超伝導特性に変化が生じたと考えられる。これは、高い転移温度の起源として基板からの電子ドーパが重要であることを支持する結果となった。

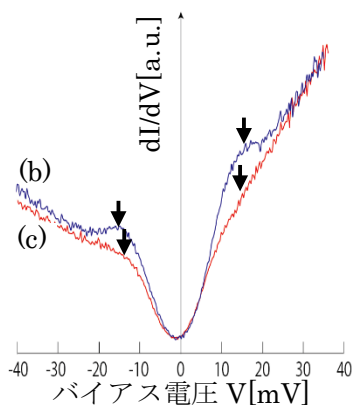
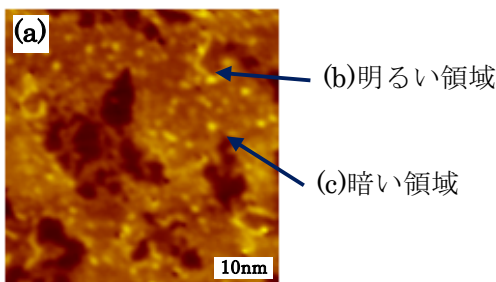


図 4: (a)
FeSe の STM
像 (5K)。(b)、(c) はそ
れぞれ STM
像の明るい領
域、暗い領域
で測定した
STS スペク
トル
矢印は超伝導
ギャップのピ
ーク位置。

このように表面上でミクロスコピックに超伝導特性が異なることが明らかになったので、今後実際に STP 測定を行うことで超伝導電流がどのようにこのような局所的な状態の違いに影響されるかを詳しく調べ、高い臨界電流の起源を探る予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

① T. Hirahara, S. V. Ereemeev, T. Shirasawa, Y. Okuyama, T. Kubo, R. Nakanishi, R. Akiyama, A. Takayama, T. Hajiri, S. Ideta, M. Matsunami, K. Sumida, K. Miyamoto, Y. Takagi, K. Tanaka, T. Okuda, T. Yokoyama, S. Kimura, S. Hasegawa, and E. V. Chulkov, "Large-gap magnetic topological heterostructure formed by subsurface incorporation of a ferromagnetic layer", 査読有, Nano Letters, published online (2017).

10.1021/acs.nanolett.7b00560

② Y. Okuyama, Y. Sugiyama, S. Ideta, K. Tanaka, and T. Hirahara, "Growth and Atomic Structure of Tellurium Thin Films Grown on Bi₂Te₃", 査読有, Applied Surface Science **398**, 125 (2017).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2016.11.196>

③ T. Nakamura, R. Yoshino, R. Hobar, S. Hasegawa, and T. Hirahara, "Development of a Convenient in situ UHV Scanning Tunneling Potentiometry System Using a Tip Holder Equipped with Current-Injection Wires", 査読有, e-Jour. Surf. Sci. Nanotech **14**, 216 (2016).

<http://doi.org/10.1380/ejsnt.2016.216>

[学会発表] (計 18 件)

① T. Hirahara, "Inducing magnetism in topological insulators by self organized incorporation of a ferromagnetic layer", Physics at the borderline between 1D and 2D (招待講演), 2017 年 3 月 3 日, Bad Honnef (Germany).

② T. Hirahara, "Dirac Electrons in Condensed Matter Physics", IOP Publishing Young Researchers' Meeting: Frontiers in Fundamental and Applied Physics (招待講演), 2017 年 02 月 18 日 Tokyo (Japan).

③ 平原 徹, "ビスマス系超薄膜・ヘテロ接合の電子構造とスピン物性", 日本磁気学会第 62 回スピンエレクトロニクス専門研究会 (招待講演), 2017 年 01 月 13 日, 京都大学.

④ 平原 徹, "トポロジカル絶縁体/磁性絶縁体超薄膜ヘテロ構造:磁化によるディラ

ックコーン変調に向けて”, 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」(招待講演), 2016年10月31日, 東大物性研.

⑤ T. Hirahara, “The Rashba and quantum size effects in ultrathin Bi films”, AVS 63rd International Symposium & Exhibition(招待講演), 2016年11月07日, Nashville (USA).

⑥ 田中友晃, 芳野諒, 平原徹, “SrTiO₃ 基板上の単一ユニットセル FeSe の電子状態:表面超構造依存性”, 日本物理学会 第72回年次大会, 2017年03月17日, 大阪大学.

⑦ 奥山裕磨, S. V. Eremeev, 白澤徹郎, 杉山裕弥, 角田一樹, 宮本幸治, 奥田太一, 出田真一郎, 田中清尚, E. V. Chulkov, 平原徹, “トポロジカル絶縁体/磁性絶縁体超薄膜へテロ接合 I: 結晶構造と電子状態”, 日本物理学会 第72回年次大会, 2017年03月18日, 大阪大学.

⑧ 中西亮介, 秋山了太, 奥山裕磨, 高木康多, S. V. Eremeev, E. V. Chulkov, 横山利彦, 長谷川修司, 平原徹, “トポロジカル絶縁体/磁性絶縁体超薄膜へテロ接合 II: 磁化特性”, 日本物理学会 第72回年次大会, 2017年03月18日, 大阪大学.

⑨ Y. Okuyama, S. V. Eremeev, R. Nakanishi, R. Akiyama, T. Shirasawa, Y. Sugiyama, K. Sumida, K. Miyamoto, T. Okuda, S. Ideta, K. Tanaka, E. V. Chulkov, S. Hasegawa, and T. Hirahara, “Heterostructure of a topological insulator/magnetic insulator ultrathin film”, IOP Publishing Young Researchers' Meeting: Frontiers in Fundamental and Applied Physics, 2017年02月18日, Tokyo (Japan).

⑩ T. Tanaka, R. Yoshino, and T. Hirahara, “Local Superconducting Properties of a Single Unit-Cell FeSe Thin Film on SrTiO₃”, IOP Publishing Young Researchers' Meeting: Frontiers in Fundamental and Applied Physics, 2017年02月18日, Tokyo (Japan).

⑪ 田中友晃, 芳野諒, 平原徹, “単一ユニットセル FeSe の構造と電子状態:STM/STS 観察”, 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」, 2016年10月31日, 東大物性研.

⑫ 田中友晃, 芳野諒, 平原徹, “単一ユニットセル FeSe の構造と電子状態:STM/STS 観察”, 日本表面科学会関東支部 第4回関東支部セミナー, 2016年10月18日, 東京大学.

⑬ 奥山裕磨, 杉山裕弥, 出田真一郎, 田中清尚, 平原徹, “Bi₂Te₃ 基板上における Te 単結晶薄膜の作成と電子状態測定”, 日本物理学会 2016年秋季大会, 2016年09月13日, 金沢大学.

⑭ 芳野諒, 田中友晃, 平原徹, “RHEED と STM による SrTiO₃ 上の 1UC-FeSe の成長過程と構造評価”, 日本物理学会 2016年秋季大会, 2016年09月13日, 金沢大学.

⑮ 杉山裕弥, 奥山裕磨, 出田真一郎, 田中清尚, C. Bernard, T. Greber, 平原徹, “h-BN 上へのスタネンの作製と評価”, 日本物理学会 2016年秋季大会, 2016年09月13日, 金沢大学.

⑯ 田中友晃, 芳野諒, 平原徹, “単一ユニットセル FeSe の構造と電子状態:STM/STS 観察”, 日本物理学会 2016年秋季大会, 2016年09月13日, 金沢大学.

⑰ 田中友晃, 芳野諒, 平原徹, “SrTiO₃ 基板上の FeSe 薄膜の作成と構造評価”, 日本表面科学会第1回関東支部講演大会, 2016年04月09日, 東京大学.

⑱ 奥山裕磨, 杉山裕弥, 平原徹, “Bi₂Te₃ 基板上の Te 薄膜の成長と電子状態”, 日本表面科学会第1回関東支部講演大会, 2016年04月09日, 東京大学.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]

ホームページ等

<http://www.surfnano.phys.titech.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

平原 徹 (HIRAHARA, Toru)
東京工業大学・理学院・准教授
研究者番号：30451818

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：

(4)研究協力者

芳野 諒 (YOSHINO, Ryo)
田中 友晃 (TANAKA, Tomoaki)