

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17742

研究課題名(和文) 走査型SQUID顕微鏡を用いた強相関電子系超伝導体の研究

研究課題名(英文) Unconventional superconductivity studied by scanning SQUID microscopy

研究代表者

下澤 雅明 (Shimozawa, Masaaki)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：40736162

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、極低温で動作する走査型SQUID顕微鏡の構築に取り組み、その開発に成功した。また、走査型磁気顕微鏡を用いて時間反転対称性の破れたワイルフェルミオン物質Mn₃Snで期待されているベリー位相由来の(遍歴)軌道磁化を直接観測することに取り組んだ。温度依存性、磁場依存性、磁化異方性、試料形状依存性などを測定した結果、軌道磁化が存在すると考えた場合と矛盾しない結果が得られた。さらに、非従来型超伝導体Fe(Se,S)の局所磁化測定も行った。超伝導状態では、渦糸状態を明瞭に観測することに成功したが、超伝導転移温度よりも高温では、前駆ペア形成に起因する反磁性の兆候を観測することができなかった。

研究成果の概要(英文)：We first developed scanning SQUID microscopy system working at very low temperatures. Next, by using such a system, we examined anomalous magnetic properties of the chiral antiferromagnet Mn₃Sn. Our local magnetization measurements demonstrate the possibility that a boundary current arising from the Berry curvature induces an itinerant orbital magnetization in Mn₃Sn. In addition, we have succeeded in detecting the superconducting vortex of the unconventional superconductor Fe(Se,S). However, we cannot observe a signature of pre-formed pairing above the superconducting transition temperature T_c.

研究分野：超伝導

キーワード：磁気顕微鏡 超伝導 トポロジカル ベリー位相

1. 研究開始当初の背景

(1) 強相関電子系では、ゲージ対称性以外に新たな対称性の破れを伴う新奇超伝導体が数多く発見されており、この超伝導体の解明は現在の超伝導研究における中心的な課題の一つである。このような超伝導体を研究する上で、クーパー対の発現機構と密接に関係している超伝導対称性の決定は極めて重要である。しかしながら、これまでの研究の多くは低エネルギー準粒子励起の度合いから超伝導対称性を類推しているだけに過ぎず、超伝導状態でどのような対称性が破れているかという情報を直接的に得ることはできなかった。

(2) ゲージ対称性の破れで磁束の量子化が観測されるように、新奇超伝導体では「時間反転対称性の破れによるカイラルドメイン構造や巨大量子化磁束」や「結晶の回転対称性の破れに起因する半量子化磁束」など、破れている対称性に応じて特徴的な磁気構造が現れることが理論的に指摘されている。したがって、これらの磁気構造を精密に評価することができれば、新奇超伝導体で破れている対称性を直接明らかにすることができる。

(3) このような磁気構造の多くは非常に微弱な磁気信号として現れると予想されているため、その評価には超高感度の磁化測定が重要である。また、この磁気信号は試料内に局所的に分布すると考えられているので、その測定には局所磁場の空間分布を評価できる走査システムが必要である。その上、研究対象である新奇超伝導体の多くは 4.2 K 以下で超伝導になることから、その磁気構造を観測するには極低温においても測定できるシステムが必要不可欠である。これら 3 つの条件を満たす測定システムはこれまでに存在しておらず、新奇超伝導体に特徴的な磁気構造を観測した例はほとんどなかった。

2. 研究の目的

本研究は、極限磁気分解能をもつ走査型 SQUID 顕微鏡が 4.2 K 以下の低温環境下で動作するようなシステムを構築し、それを用いて新たな対称性の破れによって生じる磁気構造の存在を直接的に証明することで、新奇超伝導体の超伝導対称性を決定することを目的とした。これまでに申請者は、この SQUID 顕微鏡を ^4He 冷凍機と組み合わせて、4.2 K 程度の温度領域でなら測定が可能なシステムを構築することに成功している。ここでは、既存のシステムを 1 K プロープ、 ^3He プロープ、希釈冷凍機などと組み合わせることで、極低温環境下での測定を実現させる。

3. 研究の方法

(1) 極低温走査型 SQUID 顕微鏡の構築

超伝導量子干渉素子 (SQUID) を利用した高感度磁束計を、Attocube 社製の走査システム、キャパシタンスカンチレバーと組み合わせることで、走査型 SQUID 顕微鏡を構築する。

現在までに、スパッタ装置、リアクティブイオンエッチング、フォトリソグラフィなどを使って、数 μm の直径を持つ微小 SQUID 素子の作製に成功している。また、化学エッチング法などを用いて、極低温でも発熱することなく、磁気センサーと試料との距離を精密に評価することができるキャパシタンスカンチレバーの作製にも成功している。これらを ^4He 冷凍機と組み合わせて 4.2 K でなら微弱な磁気信号を実空間上にマッピングすることが可能になっているが、研究対象である新奇超伝導体の多くは極低温で超伝導になるので、これらの測定にはより低温でも動作する SQUID 顕微鏡の開発が必要となる。

本研究では、1 K プロープ、 ^3He プロープ、希釈冷凍機などの冷凍機と既存の SQUID 顕微鏡を組み合わせることで、極低温環境下での測定ができるように改造する。

(2) カイラル反強磁性体 Mn_3Sn の研究

走査型磁気顕微鏡を用いて時間反転対称性の破れたワイルフェルミオン物質 Mn_3Sn で期待されるベリー位相由来の (遍歴) 軌道磁化を直接観測することに取り組む。

この実験の重要な点は、(遍歴) 軌道磁化と (局在) スピン磁化が異なる空間分布を示すことに着目し、試料の各場所における局所磁化を精密に評価することで、全体の磁化から軌道磁化を抽出しようとする点である。

(3) $\text{Fe}(\text{Se,S})$ 超伝導体における渦糸の観測

走査型 SQUID 顕微鏡を用いて、非従来型超伝導体である $\text{Fe}(\text{Se,S})$ の局所磁化測定を行う。

清浄な試料表面を得るために、試料の劈開条件を導出する。

高濃度の S ドープ領域では、超伝導転移温度が 4.2 K よりも低いので、1 K システムなどと組み合わせた極低温走査型 SQUID 顕微鏡を用いる。

4. 研究成果

(1) 極低温走査型 SQUID 顕微鏡の構築

既存のシステムを改造することで、4.2 K 以下でも動作する走査型 SQUID 顕微鏡の開発を行った。下記 (3) で説明するように、2 K 程度の温度領域で $\text{Fe}(\text{Se,S})$ の渦糸を観測することに成功しており、その磁気感度はおよそ 10^{-5} G であることが分かった。この値は、

これまでの走査型ホール素子顕微鏡にくらべて3桁ほど優れている。

(2) カイラル反強磁性体 Mn_3Sn の研究

走査型磁気顕微鏡を用いて、時間反転対称性の破れたワイルフェルミオン物質 Mn_3Sn で期待されているベリー位相由来の(遍歴)軌道磁化を直接観測することに取り組んだ。この軌道磁化は、一般的に知られているスピン磁化と異なる空間分布を示す。そこで我々は、試料の各場所における局所磁化を精密に評価することで、スピン磁化から遍歴的な軌道磁化を抽出することに世界で初めて成功した。本研究によって軌道磁化とスピン磁化が互いに逆方向を向いていることが分かり、この結果は第1原理計算による理論とよく一致している。また、先行研究の異常ホール伝導度が温度を下げるにつれて増大するので、軌道磁化も低温で大きくなることが期待されている。幅広い温度領域(室温から低温)で局所磁化を測定した結果、低温で軌道磁化が増大することを確認した。現在これらの内容をまとめており、近日中に論文を投稿する予定である。

(3) $Fe(Se,S)$ 超伝導体における渦糸の観測

新たに開発した走査型 SQUID 顕微鏡を用いて、非従来型超伝導体である $Fe(Se,S)$ の局所磁化測定を行った。この物質群では、超伝導転移温度よりも高い温度から磁化率が低下し始めることがバルクの磁化測定から報告されている。この結果は、超伝導のクーパー対が部分的に形成され始めて、マイスナー効果(反磁性)が現れているのが理由だと解釈されている。このような超伝導の前駆現象を明らかにするためには、試料の磁化分布を精密に評価することが必要である。

そこで本研究では、 $Fe(Se,S)$ の局所磁化測定を行った。超伝導状態においては、渦糸状態を明瞭に観測することに成功したが、超伝導転移温度よりも高温では、反磁性の兆候を観測することができなかった。先行研究によると、この前駆現象は低磁場よりも高磁場において明瞭に観測される。それ故、前駆現象を観測することができなかったのは、ゼロ磁場近傍で磁化測定を行ったことが原因だと思われる。今後は、走査型ホール素子顕微鏡で高磁場下での局所磁化測定を行う予定である。

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 10 件)

Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi,
M. Shimozawa, M. Yamashita, N. Kurita,
H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome,
T. Shibauchi, and Y. Matsuda: “Unusual

thermal Hall effect in a Kitaev spin liquid candidate $\alpha\text{-RuCl}_3$ ”, Phys. Rev. Lett. **120**, 217205 (2018), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.217205>

Hiroaki Shishido, Shogo Yamada, Kaori Sugii, Masaaki Shimozawa, Youichi Yanase, and Minoru Yamashita:

“Anomalous suppression in the de Haas-van Alphen oscillations of $CeCoIn_5$ at ultra-low temperatures”, Phys. Rev. Lett. **120**, 177201 (2018), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.177201>

M. Naritsuka, T. Ishii, S. Miyake, Y. Tokiwa, R. Toda, M. Shimozawa, T. Terashima, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and Y. Kasahara: “Emergent exotic superconductivity in artificially engineered tricolor Kondo superlattices”, Phys. Rev. B **96**, 174512 (2017), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.174512>

*M. Shimozawa, *K. Hashimoto, A. Ueda, Y. Suzuki, K. Sugii, S. Yamada, Y. Imai, R. Kobayashi, K. Itoh, S. Iguchi, M. Naka, S. Ishihara, H. Mori, T. Sasaki, and M. Yamashita: “Quantum-disordered state of magnetic and electric dipoles in an organic Mott system”, Nat. Commun. **8**, 1821 (2017), Nature Publishing Group, 査読有, <https://doi.org/10.1038/s41467-017-01849-x>, *: corresponding authors

T. Yamanaka, M. Shimozawa, H. Shishido, S. Kitagawa, H. Ikeda, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, and K. Ishida: “Magnetic and superconducting properties of the heavy-fermion $CeCoIn_5$ epitaxial film probed by nuclear quadrupole resonance”, Phys. Rev. B **96**, 060507(R) (2017), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.060507>

T. Yamanaka, M. Shimozawa, R. Endo, Y. Mizukami, H. Shishido, T. Terashima, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and K. Ishida: “NMR studies on heavy fermion and conventional metal superlattices $CeCoIn_5/YbCoIn_5$ ”, Journal of Physics: Conf. Series **807**, 012004 (2017), IOP Publishing, 査読有, <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/1742-6596/807/1/012004>

K. Sugii, M. Shimozawa, D. Watanabe, Y. Suzuki, M. Halim, N. Kimata, Y. Matsumoto, S. Nakatsuji, and M. Yamashita: “Thermal Hall Effect in a Phonon-Grass $Ba_3CuSb_2O_9$ ”, Phys. Rev. Lett. **118**, 145902 (2016), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.145902>

D. Watanabe, K. Sugii, M. Shimozawa, Y. Suzuki, T. Yajima, H. Ishikawa, Z. Hiroi, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and M. Yamashita: “Emergence of nontrivial magnetic excitations in a spin-liquid state of kagome volborthite”, PNAS **113**, 8653-8657 (2016), National Academy of Sciences, 査読有, <https://doi.org/10.1073/pnas.1524076113>
T. Ishii, R. Toda, Y. Hanaoka, Y. Tokiwa, M. Shimozawa, Y. Kasahara, R. Endo, T. Terashima, H. Nevidomskyy, T. Shibauchi, and Y. Matsuda: “Tuning the Magnetic Quantum Criticality of Artificial Kondo Superlattices CeRhIn₅/YbRhIn₅”, Phys. Rev. Lett. **116**, 206401 (2016), American Physical Society, 査読有, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.206401>
*M. Shimozawa, S. K. Goh, T. Shibauchi, and *Y. Matsuda: From Kondo Lattices to Kondo Superlattices, Rep. Prog. Phys. **79**, 74503 (2016), IOP Publishing, 査読有, <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/0034-4885/79/7/074503>, *: corresponding authors

〔学会発表〕(計 43 件)

Masaaki Shimozawa, Kaori Sugii, Jun Kondo, Yoshitaka Suzuki, Minoru Yamashita, Taketomo Nakamura, Shingo Katsumoto, Yasuhiro Tada, Muhammad Ikhlas, Tomoya Higo, Takahiro Tomita, Satoru Nakatsuji, Marcin Konczykowski, Yuji Matsuda, Kiyotaka Mukasa, Kohei Matsuura, Yuta Mizukami, Takasada Shibauchi: “Anomalous magnetization of the chiral antiferromagnet Mn₃Sn” APS March Meeting 2018 (2018)
M. Shimozawa, K. Sugii, Y. Imai, J. Kondo, Y. Suzuki, M. Yamashita, T. Nakamura, S. Katsumoto, M. Ikhlas, T. Higo, T. Tomita, N. Kiyohara, S. Nakatsuji, M. Konczykowski, Y. Matsuda, K. Mukasa, K. Matsuura, Y. Mizukami, T. Shibauchi: “Anomalous thermal and magnetic properties of the chiral antiferromagnet Mn₃Sn”, ISSP Workshop: Novel phenomena in quantum materials driven by multipoles and topology (2018)
杉井かおり, 下澤雅明, 赤澤仁寿, 近藤潤, 富田崇弘, A. A. Nugroho, 中辻知, 山下穰: 「カイラル反強磁性体 Mn₃Ge の磁場中熱輸送特性」, 2018 年日本物理学会年次大会 (2018)
向笠清隆, 下澤雅明, 山下穰, 小山 大介, 河端美樹, 河合淳, 笠原成, 松田祐司, 杉村優一, 松浦康平, 水上雄太, 芝内孝禎: 「走査型磁気顕微鏡を用いた超伝導体における時間反転対称

性の破れの検証」, 2018 年日本物理学会年次大会 (2018)
向笠清隆, 下澤雅明, 鈴木喜貴, 杉井かおり, 近藤潤, 山下穰, 多田靖啓, 中村壮智, 勝本信吾, Muhammad Ikhlas, 富田崇弘, 肥後友也, 中辻知, Marcin Konczykowski, 松田祐司, 松浦康平, 水上雄太, 芝内孝禎: 「カイラル反強磁性体 Mn₃Sn における表面状態の観測」, 2017 年日本物理学会秋季大会 (2017)
近藤潤, 下澤雅明, 杉井かおり, 山下穰, 上田顕, 森初果, 木俣基, 橋本顕一郎, 井口敏, 佐々木孝彦: 「電子-プロトン相関型 Cat-TTF 系における量子スピン液体状態と量子常誘電状態の関係」, 2017 年日本物理学会秋季大会 (2017)
下澤雅明, 橋本顕一郎, 上田 顕, 鈴木喜貴, 杉井かおり, 山田章悟, 今井悠介, 小林亮太, 伊藤桂介, 井口 敏, 中 惇, 石原純夫, 森 初 果, 佐々木孝彦, 山下 穰: 「水素結合系モット絶縁体における量子常誘電・量子常磁性状態の実現」, 多自由度・多階層性が協奏する物質材料システムの科学 (2017)
近藤潤, 下澤雅明, 杉井かおり, 山下穰, 上田顕, 森初果, 木俣基, 杉浦菜理, 寺嶋太一, 宇治進也: 「プロトン-電子相関系における量子スピン液体状態: 元素置換効果の考察」, 2017 年日本物理学会年次大会 (2017)
向笠清隆, 下澤雅明, 鈴木喜貴, 山下穰, Muhammad Ikhlas, 富田崇弘, 肥後友也, 中辻知, Marcin Konczykowski, 松田祐司, 松浦康平, 水上雄太, 芝内孝禎, 近藤潤, 杉井かおり, 中村壮智, 勝本信吾: 「カイラル反強磁性体 Mn₃Sn の局所磁化測定」, 2017 年日本物理学会年次大会 (2017)
M. Shimozawa, K. Sugii, Y. Imai, J. Kondo, Y. Suzuki, M. Yamashita, T. Nakamura, S. Katsumoto, M. Ikhlas, T. Higo, T. Tomita, N. Kiyohara, S. Nakatsuji, M. Konczykowski, Y. Matsuda, M. Mukasa, K. Matsuura, Y. Mizukami, T. Shibauchi: “Anomalous thermal and magnetic properties of the chiral antiferromagnet Mn₃Sn”, TPFC2017 (招待講演, 2017)
M. Shimozawa, K. Hashimoto, A. Ueda, Y. Suzuki, K. Sugii, S. Yamada, Y. Imai, R. Kobayashi, K. Itoh, S. Iguchi, M. Naka, S. Ishihara, H. Mori, T. Sasaki, and M. Yamashita: “Quantum spin liquid induced by entangled electron-proton degrees of freedom”, CEMS-QPEC Symposium on Emergent Quantum Materials (2017)

他 32 報

〔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〕

研究室のホームページ
(<http://yamashita.issp.u-tokyo.ac.jp/>)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

下澤 雅明 (SHIMOZAWA MASA AKI)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号：40736162

(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

()