

令和元年6月20日現在

機関番号：13301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17744

研究課題名(和文)超低温STMによる空間変調された超伝導状態の直接観察

研究課題名(英文) Direct observations of spatially modulated superconductivities with ultra-low-temperature STM

研究代表者

吉田 靖雄 (Yoshida, Yasuo)

金沢大学・数物科学系・准教授

研究者番号：10589790

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)：本研究は、超低温・強磁場で動作する走査トンネル顕微鏡を開発し、一般的に均一な性質を示す超伝導現象の空間的な変調構造を実空間で直接捉えることを目的としていた。本研究で開発したSTMは、グラファイトの原子分解能を得る程度の解像度を得ることができたが、超低温・強磁場でのノイズレベルには今後の改善を要する。一方、³He冷凍機ベースのSTMを用いて、表面において誘起されたCo原子軌道の秩序構造を世界で初めて観察した。第一原理計算から、バルクでは伝導電子によって遮蔽された局在Co原子間のクーロン斥力が、表面においては遮蔽効果が薄れることで増強され、この現象が引き起こされることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で発見された、表面誘起の軌道秩序現象は、これまで直接的な観察が困難だった原子軌道の物理現象を直接的に視覚的に捉えた成果である。そのため、今回と同様な測定を通して、物質の機能発現に重要な役割を担う、原子軌道の物理現象の理解が今後更に深まることが期待される。また、今回見つかった表面誘起の軌道秩序現象は、電子がどの原子軌道を占有するのかという、軌道の自由度を有する物質の表面においては普遍的に起こりうる現象であり、今後、超伝導や磁性との関係が明らかになれば、新たな機能を有するスマートマテリアルの開発・設計にも大いに役立つ可能性を秘めている。

研究成果の概要(英文)：We constructed ultra-low-temperature and high magnetic field scanning tunneling microscope to observe spatial modulations of superconducting properties in exotic superconductors. We succeeded to observe atomically resolved graphite surface but the resolution and noise level of the system should be improved in the future especially in the mK temperature range and at high magnetic fields. By using the other mK STM, we discovered surface-induced orbital ordering of Co 3d orbitals at the cleaved surface of a strongly correlated superconductor for the first time. Because of screened electrostatic potentials of localized 3d orbitals, this orbital ordering may not show up in bulk. However at the surface, due to the effective reduction of the electron density, the screening of the potential by conduction electrons are weak and therefore, the orbital degree of freedom is lifted and ordering occurs. This scenario was confirmed by first principle calculations done with our collaborators.

研究分野：低温物理、表面物理

キーワード：超伝導 走査トンネル顕微鏡 重い電子系 表面物理

1. 研究開始当初の背景

一般的な金属の超伝導を非常に良く説明する BCS 理論ではクーパーペアが運動量を持たないことが仮定されており、これまでに発見されたほぼ全ての超伝導物質で正しいと考えられている。一方、Fulde と Ferrell、そして Larkin と Ovchinnikov は 40 年以上前に有限の運動量を持つクーパーペアによる超伝導を考察した。このような超伝導は、彼らの名前の頭文字をとって FFLO 超伝導と呼ばれる。この新奇な超伝導状態の実験的な例は近年まで見つかっていなかったが、2003 年に重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 の超低温・強磁場領域において出現しているのではないかと報告がなされ、注目を集めた。その後、様々な物性測定が行われたが、現在までこの新たな相で FFLO 超伝導が実現しているかどうか、結論は出ていない。FFLO 超伝導を特徴付ける空間変調構造の実空間観測はなされていないことが原因であると考えられる。従来のマクロな測定方法では、これらの問題に最終的な答えを与えることは困難であり、実空間における原子スケールでの解像度を持ち、超伝導特性や磁気秩序の情報を調べる事が出来る走査トンネル顕微鏡 (STM) による研究が待たれている。しかしながら、この“FFLO 超伝導相”(300 mK 以下の超低温、12 テスラまで面内強磁場) にアクセスするためには、 ^3He - ^4He 希釈冷凍機(以降、単に希釈冷凍機)と超伝導マグネットを組み合わせた装置が必要となる。そこで、本研究では希釈冷凍機と 14 テスラの強磁場マグネットを組み合わせて新たに STM を開発し、FFLO 超伝導特性の空間変調構造の実空間観測を目指すことを目標として研究が開始された。

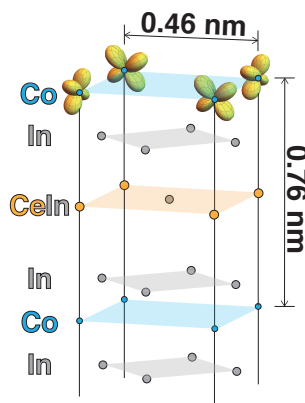


図 1. CeCoIn_5 の結晶構造と表面で誘起された d 軌道の軌道秩序 (反強 dxz - dyz 軌道秩序) の模式図。

2. 研究の目的

超低温・面内強磁場の STM を開発し、走査トンネル顕微鏡/分光 (STM/S) による局所電子状態・超伝導ギャップの測定とスピン偏極 STM を用いた磁気秩序の観察を通して、 CeCoIn_5 の“FFLO 超伝導相”では本当に FFLO 超伝導が実現しているのかという事に対する結論を与えることを第一目標とした。

3. 研究の方法

現有の超低温 STM を、超伝導マグネット導入、室温から超低温までの試料・探針の交換機構、およびその段階的な予備冷却機構の設計・導入を行う。また、清浄表面を得るために、超高真空チャンバー内での劈開機構を作成し、室温で STM による評価を行う。立ち上げた装置を用いて、FFLO 超伝導に起因する超伝導特性の空間変調を観察することを最初の目標とする。更に、磁性探針を導入し、スピン偏極 STM から反強磁性秩序の観察を行い、超伝導と磁性の共存がどのように起こっているかを実空間において明らかにする。

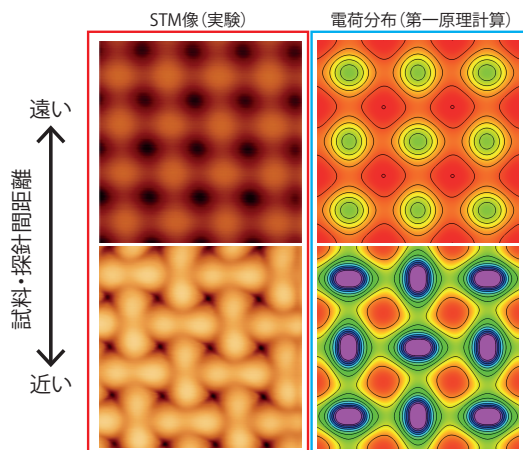


図 2. CeCoIn_5 の Co 最表面における探針・試料間距離に依存した STM 像の変化と、第一計算によって得られた試料表面からの距離に依存した電荷分布。実験と理論計算が非常に良く一致しており、ダンベル状の STM 像が dxz - dyz 軌道秩序によるものであることが示されている。

4. 研究成果

当初の目標であった、面内強磁場印加型の希釈冷凍機 STM の開発が、計画通りに進まず、当初の目標であった CeCoIn_5 の劈開表面の面内磁場中での測定まで至っていない。遅延が起こった理由としては、現有の希釈冷凍機の修理、STM ヘッドのデザインのやり直し・製作・評価など計画した当初には想定していなかった修正箇所が、研究開始後に明らかになり、計画以上の時間が必要となったためである。現在、

装置は 14 テスラの面内強磁場、低温 1.5 K までの動作が確認されている。装置は、現在も開発段階にあり、早期の完成を目指し研究を進めている。

一方で、重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 を超高真空中で、ab 面に沿って劈開し、現有の ^3He 冷凍機ベースの STM を用いて観察を行った。CeIn 面での STM 測定において、試料・探針間距離を通常より極端に小さくした結果、これまでの報告では見られていなかった Ce 原子の可視化に成功した。探針が遠い時に 4p 軌道に価電子を持つ In のみが観察され、探針を近づけると 5d 軌道に価電子を持つ Ce 原子が見えるということから考えると、この観察は STM の軌道選択性によるものであると考えられる。一方、Co 面で同様な測定を行ったところ、Co の原子像がダンベル状に変化し、そのダンベルが原子サイト間で交互に向きを変えることが明らかになった。Co 原子は、4s 軌道と 3d 軌道が価電子を持つことから、Co 原子の形状の変化は、探針を近づけることで、3d 軌道を観察した結果であると考えられる。この実験結果を説明するために、第一原理計算を行ったところ、表面で増強されたクーロン相互作用によって、バルクでは縮退している dxz と dyz 軌道の縮退が解け、表面近傍でのみ軌道秩序が起こる可能性が示唆された。更に第一原理結果を元に、探針・試料間距離依存の STM 像をシミュレートした結果、実験結果を良く再現することが明らかになった。表面で起こる軌道秩序という新しい現象を観察しただけでなく、軌道秩序の実空間観察に成功した初めての成果である。この内容は、主な発表論文 5 において論文として公表済みである。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 10 件)

1. Masahiro Haze, Hung-Hsiang Yang, Kanta Asakawa, Nobuyuki Watanabe, Ryosuke Yamamoto, **Yasuo Yoshida***, Yukio Hasegawa
“Bulk ferromagnetic tips for spin-polarized scanning tunneling microscopy”
Rev. Sci. Instrum. 90, 013704 (2019)
DOI: <https://doi.org/10.1063/1.5063759>
2. Yuji Inagaki, Tatsuya Kawae, Naoko Sakai, Naoyuki Kawame, Takao Goto, Jun Yamauchi, **Yasuo Yoshida**, Yutaka Fujii, Takashi Kambe, Yuko Hosokoshi, Béatrice Grenier, Jean-Paul Boucher, “Phase Diagram and Soliton Picture of an Ideal Spin-Peierls Compound D-F5PNN”, J. Phys. Soc. Jpn. 86, 113706 (2017)
DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.113706>
3. M. Haze, **Y. Yoshida***, Y. Hasegawa, “Experimental verification of the rotational type of chiral spin spiral structure by spin-polarized scanning tunneling microscopy” Sci. Rep. 7, 13269 (2017).
DOI: <https://doi.org/10.1038/s41598-017-13329-9>
4. Ben Warner, Tobias G. Gill, Vasile Caciuc, Nicolae Atodiresei, Antoine Fleurence, **Yasuo Yoshida**, Yukio Hasegawa, Stefan Blügel, Yukiko Yamada-Takamura, Cyrus F. Hirjibehedin, “Guided Molecular Assembly on a Locally Reactive 2D Material” Advanced Materials, 29, 1703929 (2017)
5. Howon Kim, **Yasuo Yoshida***, Chi-Cheng Lee, Tay-Rong Chang, Horng-Tay Jeng, Hsin Lin, Yoshinori Haga, Zachary Fisk, Yukio Hasegawa, Sci. Adv. 3, eaao0362 (2017).
DOI: 10.1126/sciadv.aao0362
6. 吉田靖雄*, 土師将裕, 長谷川幸雄, 「スピン分解走査トンネル顕微鏡による表面磁性の研究」、表面科学 38, 508 (2017).
7. M. Haze, **Y. Yoshida***, Y. Hasegawa, “Role of the substrate in the formation of chiral magnetic structures driven by the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction”, Phys. Rev. **95**, 060415(R) (2017) .
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.060415
8. Y. Nakanishi-Ohno, M. Haze, **Y. Yoshida**, K. Hukushima, Y. Hasegawa, M. Okada*, “Compressed sensing for efficient observation of quasi-particle interference using scanning tunneling microscopy /spectroscopy” J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 093702 (2016).
DOI: 10.7566/JPSJ.85.093702
9. D. Serrate*, **Y. Yoshida**, M. Moro-Lagares, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, “Spin-sensitive shape asymmetry of adatoms on non-collinear magnetic substrates” Phys. Rev. B. **93**, 125424 (2016) .
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.125424
10. S. Yamamoto, **Y. Yoshida***, H. Imada, Y. Kim, Y. Hasegawa
“Direct visualization of surface phase of oxygen molecules physisorbed on Ag(111) surface: a two-dimensional quantum spin system”
Phys. Rev. B **93**, 081408(R) (2016) .
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.081408

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

[学会発表] (計 8 件)

1. (招待講演) 吉田靖雄 「スピン分解走査トンネル顕微鏡による表面磁性の研究」
2018 年日本表面真空学会学術講演会
会誌賞受賞講演、2018 年 11 月 21 日
2. (招待講演) 吉田靖雄 「トンネルギャップ依存イメージングで明らかにする軌道自由度の物理」
2018 年日本表面真空学会学術講演会シンポジウム「プローブ顕微鏡による表面研究の最前線」、2018 年 11 月 19 日
3. (招待講演) 吉田靖雄 “Surface-induced orbital ordering in a strongly-correlated superconductor revealed by gap-dependent scanning tunneling microscopy”
14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) & 26th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM26), Sendai, Japan, 仙台国際会議場、2018 年 10 月 23 日
4. (招待講演) 吉田靖雄
「ジャロシンスキー守谷相互作用による Mn 超薄膜のカイラルらせん磁性」
第 73 回日本物理学会年次大会, 東京理科大学、2018 年 3 月 17 日
5. (招待講演) 吉田靖雄 “Real-space observation of surface-assisted orbital order in the heavy fermion compound CeCoIn₅”
The 28th International Conference on Low-Temperature Physics, Gothenburg, Sweden, 2017 年 8 月 12 日
6. (招待講演) 吉田靖雄 “Emergence of surface orbital ordering in the heavy fermion superconductor CeCoIn₅”
Superstripes 2017, Ischia, Italy, 2017 年 6 月 5 日
7. (招待講演) 吉田靖雄 「スパースモデリングによる準粒子干渉計測の高速化・高精度化」第 81 回先端計測オープンセミナー, 物質・材料研究機構, 千現地区, 2017 年 01 月 29 日
8. (招待講演) 吉田靖雄 「スピン分解走査トンネル顕微鏡による表面磁性の研究」
日本表面科学会関東支部 第 4 回関東支部セミナー「走査型プローブ顕微鏡のフロンティア～実用材料表面計測入門から最新物性問題への挑戦まで～」東京大学理学部化学館, 2016 年 10 月 18 日

[図書] (計 1 件)

1. Yukio Hasegawa, Masahiro Haze, Yasuo Yoshida, “Nanoscale Magnetic Imaging”, Comprehensive Nanoscience and Nanotechnology (Second Edition), edited by M.S.J.Hashmi, (Elsevier, 2019), Volume 4, 2019, Pages 53-66
ISBN 978-0-12-812296-9

[産業財産権]

該当なし。

[その他]

ホームページ等

<http://ltpphys.w3.kanazawa-u.ac.jp/yoshida/>

※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。