

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01876

研究課題名(和文) 時空間反転対称性の破れた超伝導状態の実空間分光測定

研究課題名(英文) Real space spectroscopy of superconducting states without time reversal and space inversion symmetry

研究代表者

吉澤 俊介 (YOSHIZAWA, Shunsuke)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・主任研究員

研究者番号：60583276

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円

研究成果の概要(和文)：半導体表面に形成される原子層超伝導体では面直方向の空間反転対称性が破れている。このような超伝導体において磁場で時間反転対称性も破ったときに生じる現象を調べた。磁場を面に平行にかけたときに臨界磁場が増大することを見だし、そのメカニズムを空間反転対称性の破れに起因するスピン・運動量ロッキングと電子の弾性散乱の観点から説明した。また、そのような電子散乱・干渉によって生じる定在波を走査トンネル顕微鏡で実空間観測し、その奇妙な性質を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

空間反転対称性の無い超伝導体が強い磁場下でも超伝導状態を維持するメカニズムを示したものであり、超伝導体をベースとした量子材料探索に生かされることが期待される。また、走査トンネル顕微鏡で観測される電子定在波がいわば「波動関数の形」に関する情報を反映していることもわかり、超伝導体に限らずさまざまな物質の電子定在波解析において重要な視点を提供すると思われる。

研究成果の概要(英文)：In atomic layer superconductors on semiconductor surfaces, the out-of-plane inversion symmetry is broken. We have investigated the superconducting phenomena when external magnetic fields break the time-reversal symmetry. We found a significant enhancement of critical field for magnetic fields applied parallel to the plane and explained the mechanism in terms of spin-momentum locking and elastic scattering of electrons. We also revealed the strange property of standing waves generated by electron scattering and interference using scanning tunneling microscopy.

研究分野：低温物性、表面科学

キーワード：超伝導 ラッシュバ効果 原子層 走査トンネル顕微鏡 電気伝導 第一原理計算

1. 研究開始当初の背景

空間反転対称性を持たない結晶中では、スピン軌道相互作用のために電子状態のスピン縮退が解け、運動量の関数として固定される。とくに空間反転対称性の破れが Z 軸方向の場合には、スピンは X-Y 面内で固定され、ラシュバ効果とよばれる。このような電子状態で超伝導転移が生じる「ラシュバ超伝導体」では、BCS 理論の枠組みから外れた様々な現象が予想されている[林伸彦, M. Sigrist, 固体物理 **41**(10), 631 (2006)]。代表的なものとして、空間反転対称性に加えて強い磁場で時間反転対称性をも破ったとき、ヘリカル超伝導相とよばれる特異な状態に相転移する可能性がある。これはクーパー対が重心運動量をもった状態であり、超伝導秩序変数が空間的に振動する。この奇妙な状態は、ラシュバ超伝導体で期待される代表的な新奇状態として決まって挙げられるものだが、実験的に観察されていない。

ヘリカル超伝導相は、おおむね「ゼーマン効果 > 超伝導ギャップ」となる強い磁場によって生じるが、通常の超伝導体では渦糸の侵入(軌道対破壊効果)によりもっと低い磁場で超伝導状態が壊れる。したがって、①空間反転対称性を持たない超伝導体で、②何らかの仕組みで軌道対破壊効果を抑えて高磁場まで超伝導を維持する必要がある。さらに、超伝導秩序変数の空間振動を直接観察するには、STM を使った試料表面電子状態の分光イメージングが唯一の方法である。STM を使うためには、③清浄で平坦な表面が得られることが必須である。これまでラシュバ超伝導体(候補)物質として精力的に研究されていたのは、単位胞に対称中心をもたないバルク物質であり、これら①~③の条件をすべて満たすことが困難であった。

2010 年ごろから半導体表面に成長する結晶性の良い原子層物質で超伝導転移するもの(表面原子層超伝導体)が見つかった[T. Uchihashi, *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 013002 (2017)]。①表面では空間反転対称性が破れており、②表面に平行に磁場をかければ渦糸は侵入せず、軌道対破壊効果は無視できると考えられる。また、③ STM に適した清浄で平坦な表面で超伝導が発現しているため、ヘリカル超伝導相を直接観測するには最適の物質といえる。

2. 研究の目的

本研究提案では平行磁場中に置かれた表面原子層超伝導体をターゲットとし、時間と空間の反転対称性の破れた超伝導状態で期待されるヘリカル超伝導相を STM 分光イメージングにより観測することを目的とした。

3. 研究の方法

平行磁場をかけられる極低温 STM の新規開発を進めつつ、既存装置を活用して平行磁場中に置かれた表面原子層超伝導体で起きる現象を明らかにすべく電気伝導測定と密度汎関数理論計算を合わせて行った。測定対象として、これまでの研究実績を生かすため、転移温度 3 K の表面原子層超伝導体である Si(111)- $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In(以下 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In)を採用した。また、計画の途中で必要性が明らかになった試料品質の改善を進めるとともに、既設の極低温 STM による評価を行った。

4. 研究成果

(1) ラシュバ超伝導体における臨界磁場増大のメカニズムの実証

ゼーマン効果と超伝導ギャップが同程度になる磁場はパウリ極限とよばれる。これは、従来型超伝導体において軌道対破壊効果が無視できるときの常磁性対破壊効果による臨界磁場を与える。 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In に関しては、平行磁場に対する臨界磁場がパウリ極限より大きくなっている可能性が高いことを電気伝導測定から見出していたが[図 1(a)]、それを定量的に説明するメカニズムが明らかでなかった。そこでスピン軌道相互作用を取り込んだ密度汎関数理論計算を行い、バンド構造に基づいて解析を行った。ここで用いた結晶構造モデルは回折実験とも一致を見ている[T. Shirasawa *et al. Phys. Rev. B* **99**, 100502(R) (2019)]。

まず計算から、① エネルギー軸方向に 90 meV 近いフェルミ面分裂がラシュバ効果により生じていることと[図 1(b)]、② フェルミ速度が異方的であることがわかった。フェルミ面の分裂については角度分解光電子分光測定でも確かめられた[T. Kobayashi *et al. Phys. Rev. Lett.* **125**, 176401 (2020)]。

これらの知見から、これまで行ってきた自由電子的なフェルミ面を仮定する解析は不正確だと判断し、計算で得られたフェルミ面の情報を取り込んだ再解析を行った。その結果、非磁性不純物や欠陥によって生じている電子散乱が、スピンの運動量に対して固定されている(スピン運動量ロッキングとよばれる)効果と合わさって実効的にスピン軌道散乱としてはたらくため[図 1(c)]、常磁性対破壊効果が著しく抑制されている、という解釈で定量的に説明できることがわかった[S. Yoshizawa *et al. Nat. Commun.* **12**, 1462 (2021)]。

この成果はラッシュバ超伝導体が強い磁場下でも超伝導状態を維持するメカニズムを示したものであり、本研究計画にとどまらず、トポロジカル超伝導体といった超伝導をベースとした量子材料探索にも生かされる可能性がある。

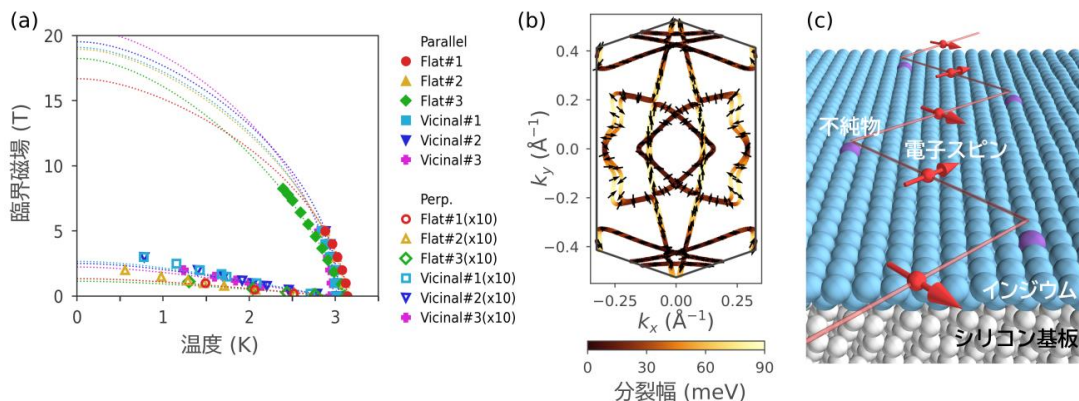


図 1: (a) いくつかの $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In 試料に対して平行磁場(parallel)および垂直磁場(perp.)に対する臨界磁場の温度依存性。電気伝導測定により求めた。(b) スピン軌道相互作用を入れた密度汎関数理論計算で得られた $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In のフェルミ面。(c) 電子散乱によってスピンの方向が変わる状況の模式図。

(2) 試料品質の向上による電子定在波の観測

上に述べた成果は原子層超伝導体の物性解明の意味では大きな進展であるが、同時に、現状の $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の試料品質では電子散乱の効果が無視できず、ヘリカル超伝導相が抑制されていることが予想された。そこで電子散乱の原因となる欠陥の少ないインジウム原子層超伝導体を作製するため、蒸着・熱処理条件を調整するとともに、極低温走査トンネル顕微鏡測定により結晶構造や電子散乱の詳細を調べた。その結果、欠陥の少ない領域[図 2(a)]においてこれまで観測することができなかった電子定在波を明瞭に観測することができた[図 2(b)]。電子定在波に含まれる周波数成分をフーリエ変換解析により調べたところ、 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ 単位胞より細かな定在波が支配的であるという、一見すると奇妙な現象が観測された[図 2(c)]。この現象は結晶運動量の波数をもつ単なる平面波状態どうしの干渉としては理解できず、結晶運動量の高調波成分を含むブロッホ状態どうしの干渉として理解されることがわかった。密度汎関数理論によるシミュレーションからもこの解釈を支持する結果が得られた。

ここで観測されたような電子定在波は準粒子干渉ともよばれ、STM のデータから運動量空間の電子構造を調べる目的で広く利用されている。したがって、われわれの結果は、電子定在波がいわば「波動関数の形」に関する情報を反映していることを明瞭に示しており、超伝導体に限らずさまざまな物質の電子定在波解析において重要な視点を提供すると思われる。

当初の目的であるヘリカル超伝導相の観測はまだ実現できていないが、 ^3He 温度で動作する STM 装置の製作は進めてきた。本研究成果で得られた時空間反転対称性の破れた超伝導状態に関する知見と試料品質向上を足がかりとして、観測に向けて研究を継続する予定である。

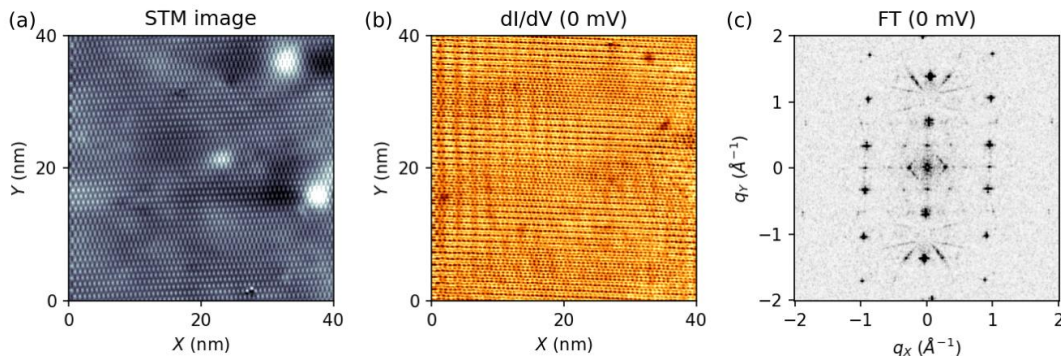


図 2: (a) $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の STM 像 (b) ゼロバイアスにおける微分伝導度像。電子定在波が可視化されている。(c) ゼロバイアス微分伝導度像のフーリエ変換。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yoshizawa Shunsuke, Kobayashi Takahiro, Nakata Yoshitaka, Yaji Koichiro, Yokota Kenta, Komori Fumio, Shin Shik, Sakamoto Kazuyuki, Uchihashi Takashi	4. 巻 12
2. 論文標題 Atomic-layer Rashba-type superconductor protected by dynamic spin-momentum locking	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1462
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-021-21642-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi Takahiro, Nakata Yoshitaka, Yaji Koichiro, Shishidou Tatsuya, Agterberg Daniel, Yoshizawa Shunsuke, Komori Fumio, Shin Shik, Weinert Michael, Uchihashi Takashi, Sakamoto Kazuyuki	4. 巻 125
2. 論文標題 Orbital Angular Momentum Induced Spin Polarization of 2D Metallic Bands	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 176401
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.125.176401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Uchihashi Takashi, Yoshizawa Shunsuke, Minamitani Emi, Watanabe Satoshi, Takagi Yasumasa, and Yokoyama Toshihiko	4. 巻 4
2. 論文標題 Persistent superconductivity in atomic layer-magnetic molecule van der Waals heterostructures: a comparative study	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Molecular Systems Design & Engineering	6. 最初と最後の頁 511-518
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C9ME00017H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shirasawa Tetsuroh, Yoshizawa Shunsuke, Takahashi Toshio, Uchihashi Takashi	4. 巻 99
2. 論文標題 Structure determination of the Si(111)- 7×3 -In atomic-layer superconductor	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 100502(R)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.100502	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 吉澤俊介
2. 発表標題 シリコン表面インジウム原子層の結晶構造と超伝導状態
3. 学会等名 物性研究所ワークショップ「ナノスケール物性科学の最先端と新展開」（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 東陽一、吉澤俊介、内橋隆
2. 発表標題 原子層結晶 Si(111)-(7×3)-In の超伝導における乱れと異方性の効果
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉澤俊介、鷲坂恵介
2. 発表標題 インジウム原子層における電子定在波の極低温走査トンネル顕微鏡観測
3. 学会等名 NIMS先端計測シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉澤俊介
2. 発表標題 半導体表面原子層の結晶構造・電子構造・超伝導：走査トンネル顕微鏡から見えるもの
3. 学会等名 SPRING-8ユーザー協同顕微ナノ材料科学研究会 日本表面真空学会放射光表面科学研究部会 日本表面真空学会プローブ顕微鏡研究部会 合同シンポジウム（NANOSPEC 2021）（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉澤俊介、鷲坂恵介
2. 発表標題 In/Si(111) におけるプロッホ波干渉の STM 観測
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉澤俊介
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡による原子層超伝導体の電子状態計測
3. 学会等名 SCTM2020 ワークショップ「超伝導物質、トポロジカル物質」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉澤 俊介, 内橋 隆
2. 発表標題 原子層超伝導体 Si(111)-(7×3)-In における対破壊効果の解析
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉澤 俊介, 内橋 隆
2. 発表標題 原子層超伝導体 Si(111)-(7×3)-In のラシュバ効果と臨界磁場
3. 学会等名 2019年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉澤 俊介, 鷺坂 恵介, 藤田 大介, 内橋 隆
2. 発表標題 幾何学的位相解析による不整合変調構造の解析
3. 学会等名 第2回日本表面真空学会若手部会研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉澤 俊介
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡で見る超伝導体表面構造と量子磁束
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Yoshizawa, Keisuke Sagisaka, Daisuke Fujita, Takashi Uchihashi
2. 発表標題 Visualizing the Uniaxial Incommensurate Structure of Si(111)-(7×3)-In by using Scanning Tunneling Microscopy
3. 学会等名 ACSIN-14 & ICSPM26 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉澤 俊介, 鷺坂 恵介, 藤田 大介, 内橋 隆
2. 発表標題 Si(111)- 7×3 -In 表面における静電遮蔽効果の STM 観測
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉澤 俊介, 鷺坂 恵介, 藤田 大介, 内橋 隆
2. 発表標題 STM観察とDFT計算によるインジウム原子層超伝導体の結晶構造決定
3. 学会等名 第26回渦糸物理国内会議
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 東陽一, 吉澤俊介, 内橋隆
2. 発表標題 平行磁場中の二次元ラッシュバ系における超伝導転移線への非磁性散乱効果
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>[プレスリリース] 磁場に強い超伝導を実現する新たなメカニズムを発見(2021-03-05) https://www.nims.go.jp/news/press/2021/03/202103050.html</p>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------