

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 25 日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22740228

研究課題名（和文） 人工超格子による空間反転対称性の破れの制御

研究課題名（英文）

Tuning of inversion symmetry in artificial superlattices

研究代表者 戸 寛明 (SHISHIDO HIROAKI)

大阪府立大学・工学研究科・助教

研究者番号：80549585

研究成果の概要（和文）：CeCoIn<sub>5</sub>は重い電子系物質であり，超伝導転移温度  $T_c=2.3$  K で超伝導を示す．一方で同じ結晶構造を持つYbCoIn<sub>5</sub>ではYbは2価になっており，非磁性となる．我々は重い電子系超伝導体CeCoIn<sub>5</sub>と通常金属YbCoIn<sub>5</sub>の人工超格子の作製に成功した．CeCoIn<sub>5</sub>とYbCoIn<sub>5</sub>の境界面では局所的に反転対称性が破れているにも関わらず，超伝導はCeCoIn<sub>5</sub>が3-1層でも現れることを明らかにした．

研究成果の概要（英文）：CeCoIn<sub>5</sub> is a heavy fermion superconductor with the superconducting transition temperature  $T_c = 2.3$  K. Yb is divalent and hence nonmagnetic in isostructural YbCoIn<sub>5</sub>. We fabricate artificial superlattices of heavy fermion superconductor CeCoIn<sub>5</sub> and normal metal YbCoIn<sub>5</sub>. Superconductivity appears even in 3-1 unit cell thick CeCoIn<sub>5</sub> superlattice, while *local* inversion symmetry breaking occurs at the interface between CeCoIn<sub>5</sub> and YbCoIn<sub>5</sub> layers.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関系，超伝導，重い電子系，人工超格子

## 1. 研究開始当初の背景

希土類やアクチノイドを含む，f電子を持った化合物の中には強い電子相関により伝導電子の有効質量が自由電子の数百倍にも増強された重い電子系と呼ばれる物質群が存在する．重い電子系では今まで知られている中で最も強い電子相関を持った金属状態が実現しており，強相関電子系の典型例として盛んに研究されている．

今まで知られている重い電子系化合物はすべて3次元的な物質であり，2次元と呼べる系は知られていない．我々は重い電子系反強磁性体CeIn<sub>3</sub>と同じ結晶構造を持つf電子を持たない，非磁性の通常金属であるLaIn<sub>3</sub>が交互に積層した人工超格子の製膜を行った．人工超格子CeIn<sub>3</sub>/LaIn<sub>3</sub>においてCeIn<sub>3</sub>層の厚みを薄くすることにより，初めて重い電子系の次元性を人工的に制御し，2次元近藤格子を実現す

ることに成功した。

重い電子系の中には強い電子相関により誘起される異方的な超伝導が現れる物質が存在することが知られている。2次元近藤格子において異方的超伝導がどの様にふるまうのかは明確ではなく、人工超格子による実験的検証が期待されていた。

## 2. 研究の目的

CeCoIn<sub>5</sub>は電子比熱係数が1J/K<sup>2</sup>・molにも達する重い電子系物質であり、超伝導転移温度T<sub>c</sub>=2.3 K以下で異方的超伝導を示す。

(1) CeCoIn<sub>5</sub>の人工超格子の製膜を行い、次元性制御により重い電子を2次元に閉じ込める。2次元近藤格子系における異方的超伝導の振る舞いについて明らかにする。

(2) 人工超格子全体で結晶構造の反転対称性が保たれている場合でもCeCoIn<sub>5</sub>層と通常金属層の境界では“局所的”に反転対称性が破れている。この局所的な反転対称性の破れが異方的超伝導にどのような影響を及ぼすかを明らかにする。

## 3. 研究の方法

(1) 分子線エピタキシー(MBE)法を用いて1x10<sup>-7</sup> Pa以下の超高真空中で、Kセルを用いた加熱蒸着により0.2 Å/sec以下の極めてゆっくりとした蒸着速度で製膜することによりCeCoIn<sub>5</sub>エピタキシャル薄膜の成長に成功した。CeCoIn<sub>5</sub>エピタキシャル薄膜の作製は世界中のいくつかのグループにおいて試みられてきたが、c軸方向のみ方位が揃い、面内方向の方位はバラバラになっているc軸配向膜しか成功していなかった。我々はCeCoIn<sub>5</sub>やCeIn<sub>3</sub>のa軸長と格子のマッチングが極めて良いMgF<sub>2</sub>を基板に用い、その上にエピタキシャル成長の条件が比較的緩くCeCoIn<sub>5</sub>の母物質であるCeIn<sub>3</sub>をバッファ層として蒸着し、更にその上にCeCoIn<sub>5</sub>を蒸着することにより世界に先駆けてCeCoIn<sub>5</sub>のエピタキシャル成長に成功することが出来た。

作製した膜のエピタキシャル性は反射高速電子線回折(RHEED)でのシャープなストリークパターンの観測、薄膜x線回折により確認された。またその電気抵抗率の絶対値はバルク単結晶の値と同程度であり、温度依存性もバルク単結晶の振る舞いを良く再現した。超伝導特性についても約1.9 Kでゼロ抵抗を示した。これらの結果は作製したエピタキシャル膜が純良であることを示している。

(2) 同様の手法でYbCoIn<sub>5</sub>のエピタキシャル薄膜の製膜を行った。エピタキシャル性はRHEEDでのシャープなストリークパターンの観測および薄膜x線回折により確かめられた。

バルク単結晶ではYbCoIn<sub>5</sub>においてYbは2価的であり、4f<sup>14</sup>配置となってf軌道は閉殻となり、非磁性の通常金属となることが報告されている。YbCoIn<sub>5</sub>薄膜においても通常金属であることが低温までの電気抵抗測定から確認された。

(3) 我々はMBE法を用いて重い電子系超伝導体人工超格子CeCoIn<sub>5</sub>/YbCoIn<sub>5</sub>の製膜を行った。YbCoIn<sub>5</sub>を5層(約4nm)CeCoIn<sub>5</sub>層の間に挟むことにより、層間のCe同士に働くRKKY相互作用は面内の1%以下に減少しほぼ無視できる。また、4nmの厚みはコヒーレンス長の倍を越しており、超伝導に関してもCeCoIn<sub>5</sub>層に閉じ込められていると考えられる。作製した人工超格子のエピタキシャル性はRHEEDでのシャープなストリークパターンの観測および薄膜x線回折により確かめられた。超格子構造はx線回折におけるサテライトピークの観測により確かめられた。

CeCoIn<sub>5</sub>を1層、YbCoIn<sub>5</sub>を5層交互に積層させた人工超格子CeCoIn<sub>5</sub>(1)/YbCoIn<sub>5</sub>(5)の高解像度透過電子顕微鏡(TEM)像を図1に示す。

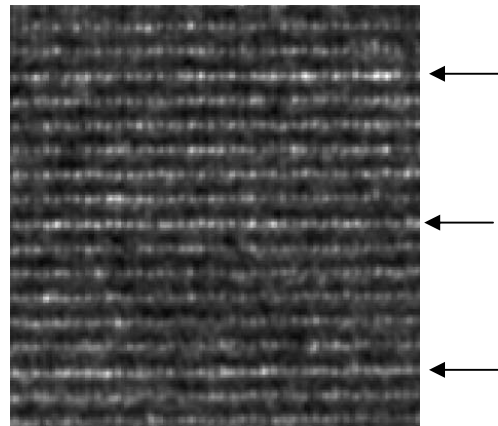


図1 CeCoIn<sub>5</sub>(1)/YbCoIn<sub>5</sub>(5)のTEM像。明るいスポットがCe原子に対応する。Ce原子層を矢印で示す。

明るいスポットがCe原子に対応しており、Ce原子層を矢印で示す。図1に示した3周期のCe層すべてが乱れることなく一直線に並んでいることがわかる。これはCeCoIn<sub>5</sub>が1層という究極的に薄い膜においても超格子構造が乱れることなく設計通りに実現していることを示している。

#### 4. 研究成果

(1) 得られた人工超格子膜に対し、低温までの電気抵抗率測定を行った。電気抵抗率の絶対値はすべての膜において同程度であり、超格子化しても純良性がそれほど劣化していないことが解る。

バルク単結晶では40 K付近に近藤効果に伴う電気抵抗の極大が現れる。CeCoIn<sub>5</sub>層が薄くなっていくにしたがって相対的にYbCoIn<sub>5</sub>層の電気抵抗率に及ぼす影響が大きくなり、通常金属的な振る舞いに近づいていく。しかしながら近藤効果による抵抗の極大はすべての人工超格子に残っており、ほぼ同じ40 K付近に現れる。もしCeとYbの置換が大規模に起こっていた場合、希釈系の近藤効果としてよく知られている、電気抵抗率が降温と共に増大し、低温でユニタリティ極限の一定値に落ち着く振る舞いが現れるはずである。我々の人工超格子で確認された振る舞いは希釈系の振る舞いとは大きく異なっており、これは乱れの少ない超格子構造が実現していることを示している。

(2) 人工超格子においてCeCoIn<sub>5</sub>層が薄くなるのにもなって $T_c$ は減少する。しかしながらCeCoIn<sub>5</sub>層が3層の人工超格子まではゼロ抵抗が現れ、2層、1層の膜においても、ゼロ抵抗こそ観測されなかったが超伝導転移に伴う電気抵抗率の折れ曲がり観測された。c軸方向(人工超格子の積層方向)の上部臨界磁場 $H_{c2}$ はバルク単結晶と同程度であり、また $T_c$ 付近での傾きも大きい。このことは人工超格子における超伝導を担っているのは重い電子であることが解る。

人工超格子全体としては結晶構造に対する空間反転対称性が保たれているが、CeCoIn<sub>5</sub>とYbCoIn<sub>5</sub>の境界では局所的に空間反転対称性が破れている。つまりCeCoIn<sub>5</sub>層が3層の膜は真ん中の空間反転対称性が保たれている層と上下の境界の局所的な反転対称性が破れている2つの層からなると考えることが出来る。2層膜においては2層とも局所的な反転対称性が破れている。それにもかかわらず、重い電子系の異方的な超伝導が発現することが本研究により明らかになった。

(3) 面内方向(薄膜と平行な方向)の $H_{c2}$ は $T_c$ 付近でほぼ垂直に立ち上がっている。また面内から面間への $H_{c2}$ の角度依存性を調べると $T_c$ 付近では薄膜と平行な方向で $H_{c2}$ に鋭いカスプが現れる。これらは2次元超伝導で期待される振舞いであり、人工超格子において重い電子が2次元に閉じ込められていることを明確に

示している。

低温においては $H_{c2}$ は有効質量モデルで良く再現される3次元的な異方性を示す。これは低温では強いパウリ常磁性効果により $H_{c2}$ が制限されるため、 $H_{c2}$ の異方性はパウリ常磁性の異方性を反映したものとなるためである。我々が作製した人工超格子は伝導的にはバルク単結晶とほぼ同様な3次元的なものであるため、パウリ常磁性もバルク単結晶とほぼ同様であると理解される。このことはまた、人工超格子においてもパウリ常磁性効果が強く効いていることを示している。

(4)  $T_c$ はCeCoIn<sub>5</sub>層の厚みを薄くしていくにしたがって急激に低下していく。これに対して $H_{c2}$ はゆっくりとした減少しか示していない。そのため $H_{c2}/T_c$ は2次元化に伴い急激に増大する。これは2次元閉じ込めにより(1)強結合超伝導が実現、(2)超格子における局所的な反転対称性の破れによる $H_{c2}$ の上昇、(3)局所的な反転対称性の破れに伴う空間的に変調した超伝導状態の実現による $H_{c2}$ の上昇、のいずれかが起こっていると考えられる。

#### 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7件)

1. R. Okazaki, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Konczykowski, Y. Haga, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, Y. Yanase, T. Shibauchi, Y. Matsuda  
Anomalous low-field diamagnetic response in ultraclean URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> superconductor  
Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012081/1-012081/4  
査読あり
2. Y. Mizukami, H. Shishido, T. Shibauchi, M. Shimozawa, S. Yasumoto, D. Watanabe, M. Yamashita, H. Ikeda, T. Terashima, H. Kontani, Y. Matsuda  
Extremely strong-coupling superconductivity in artificial two-dimensional Kondo lattices  
Nature Physics **7** (2011) 849-853  
査読あり
3. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi, M. Shimozawa, Y. Mizukami, Y. Yanase, T. Shibauchi, Y. Matsuda, H. Kontani, Y. Haga, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, Y. Yanase, T. Shibauchi, Y. Matsuda  
Anomalous low-field diamagnetic response in ultraclean URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> superconductor  
Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012081/1-012081/4  
査読あり

- hi, and Y. Matsuda  
Evolution of Paramagnetic Quasiparticle Excitations Emerged in the High-Field Superconducting Phase of  $\text{CeCoIn}_5$   
Physical Review Letters **106** (2011) 137004-1 – 137004-4  
査読あり
4. S. Kasahara, T. Shibauchi, K. Hashimoto, K. Ikada, S. Tonegawa, R. Okazaki, H. Shishido, H. Ikeda, H. Takaya, K. Hirata, T. Terashima, and Y. Matsuda  
Evolution from non-Fermi to Fermi-liquid transport via isovalent doping in  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  superconductors  
Physical Review B **81** (2010) 184519-1 – 14519-5  
査読あり
  5. R. Okazaki, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Konczykowski, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Ōnuki, Y. Yanase, T. Shibauchi, and Y. Matsuda  
Anomalous Temperature Dependence of Lower Critical Field in Ultraclean  $\text{URu}_2\text{Si}_2$   
Journal of the Physical Society of Japan **79** (2010) 084705-1 – 084705-7  
査読あり
  6. 宍戸寛明, 芝内孝禎, 寺嶋孝仁, 松田祐司  
重い電子の2次元閉じこめ  
日本物理学会誌 **65** (2010) 877-881  
査読あり
  7. 宍戸寛明  
「2次元の重い電子」の実現と可能性  
月刊 マテリアルステージ **115** (2010) 877-881  
査読なし
- [学会発表] (計7件)
1. H. Shishido, Y. Mizukami, T. Shibauchi, M. Shimozawa, S. Yasumoto, D. Watanabe, M. Yamashita, H. Ikeda, T. Terashima, H. Kontani, Y. Matsuda  
Extremely strong coupling superconductivity in artificial superlattices  $\text{CeCoIn}_5(n)/\text{YbCoIn}_5(m)$   
Pathbreaking Phase Sciences in Superconductivity 2012  
2012/1/13 大阪
  2. H. Shishido, T. Shibauchi, K. Yasu, T. Kato, Y. Mizukami, H. Kontani, T. Terashima, Y. Matsuda  
Two-Dimensional Confinement of Heavy Fermions in Artificial Superlattices  $\text{CeIn}_3(m)/\text{LaIn}_3(n)$   
TOKIMEKI 2011 International workshop on heavy fermions  
2011/11/25 大阪
  3. H. Shishido, T. Shibauchi, K. Yasu, T. Kato, Y. Mizukami, H. Kontani, T. Terashima, Y. Matsuda  
Two-Dimensional Confinement of Heavy Fermions in Artificial Superlattices  $\text{CeIn}_3(m)/\text{LaIn}_3(n)$   
The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems  
2011/8/31 Cambridge, UK
  4. H. Shishido, Y. Mizukami, T. Shibauchi, M. Shimozawa, S. Yasumoto, D. Watanabe, M. Yamashita, H. Ikeda, T. Terashima, H. Kontani, Y. Matsuda  
Tuning the dimensionality of the heavy fermion antiferromagnet  $\text{CeIn}_3$  and superconductor  $\text{CeCoIn}_5$  (招待講演)  
SKKU-APCTP International Symposium on heavy electrons and novel quantum phases  
2011/8/16 ソウル, 韓国
  5. H. Shishido, T. Shibauchi, K. Yasu, T. Kato, H. Kontani, T. Terashima, Y. Matsuda  
Two-dimensional Confinement of Heavy Fermions in Artificial Superlattices (招待講演)  
American Physical Society : March meeting  
2011/3/21 Dallas, USA
  6. H. Shishido, T. Shibauchi, K. Yasu, T. Kato, H. Kontani, T. Terashima, Y. Matsuda  
Two-dimensional Confinement of Heavy Fermions in Artificial Superlattice  
重い電子国際会議  
2010/9/19 東京
  7. H. Shishido, A. F. Bangura, A. I. Coldea, S. Tonegawa, K. Hashimoto, S. Kasahara, P. M. C. Rourke, H. Ikeda, T. Terashima, R. Settai, Y. Ōnuki, D. Vignolles, C.

Proust, B. Vignolle, A. McCollam, Y.  
Matsuda, T. Shibauchi, A. Carrington  
Evolution of Fermi surface  
in  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{Px})_2$  revealed by the  
dHvA effects  
International Conference on  
Strongly Correlated Electron  
Systems 2010  
2010/6/28 Santa Fe, USA

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

宍戸 寛明 (SHISHIDO HIROAKI)  
大阪府立大学・工学研究科・助教  
研究者番号：80549585

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：