

令和元年5月8日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2018

課題番号：26287072

研究課題名(和文) 半導体劈開表面に形成された金属単原子層膜の超伝導と磁性の研究

研究課題名(英文) Superconductivity and magnetism in monolayer films formed on cleaved semiconductor surfaces

研究代表者

岡本 徹 (Okamoto, Tohru)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・准教授

研究者番号：60245371

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：外部磁場および磁性不純物は、クーパー対の時間反転対称性を破り、超伝導を壊す働きをすることが知られている。しかし、両者が結びつくことによる効果についてはあまり研究されていない。外部磁場の効果として、軌道効果とパウリ常磁性効果が挙げられるが、磁性体を含む超伝導体においては、第三の効果、すなわち局在磁気モーメントの方向が外部磁場により変化することによる効果が考えられる。本研究では、10%のCeを含むPb合金に対して、ゼロ磁場の超伝導が完全に壊されている状態から、平行磁場によって超伝導を引き起こすことに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、磁場誘起超伝導は数例報告されているが、本研究のものは新しい機構によるものである。また、超伝導の平行磁場に対する応答を調べることにより、近藤一重項の形成の有無を明らかにできることもわかった。近年、ナノスケールのスピントロニクスデバイスへの応用の観点などからも、金属表面に吸着した磁性原子・分子と基板金属の伝導電子との間の近藤一重項の形成が大きく注目されている。下地金属として磁性体に敏感な超伝導体を用いることは、近藤一重項の形成を調べる上で非常に有効な方法であり、今後の研究の進展は応用面からも非常に重要であると思われる。

研究成果の概要(英文)：It is well known that external magnetic fields and magnetic moments of impurities both suppress superconductivity. However, their combined effect on superconductivity has not been elucidated yet. We have studied the superconducting transition in ultrathin Pb films with magnetic impurities grown on a cleaved GaAs(110) surface. It was demonstrated that the transition temperature can be enhanced by external magnetic fields applied parallel to the conducting plane. Furthermore, we found that a Pb-Ce alloy, where superconductivity is totally suppressed at zero-field, actually becomes superconducting in parallel magnetic fields. These phenomena were explained in terms of the suppression of the spin-exchange scattering rate, which can be controlled by the magnetic field.

研究分野：低温物理学

キーワード：表面物性 低温物性 Rashba効果 超伝導

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 我々は、以前の研究において、Pb 単原子層膜の超伝導転移温度の平行磁場依存性が、強い Rashba 効果のもとに形成される秩序変数の位相が空間変化する 2 次元超伝導相に対する計算によって定量的に再現できることを示した (Sekihara *et al.* Phys. Rev. Lett. **111**, 057005 (2013))。Rashba 効果とは、空間反転対称性の破れがスピン軌道相互作用と結びついて生じるスピン分裂効果である。したがって、平行磁場下での超伝導状態の「丈夫さ」の起源が Rashba 効果にあることを検証するためには、スピン軌道相互作用の異なる元素を用いた実験が有効であるが、未だ行われていなかった。

(2) Rashba 効果が強い 2 次元系に対して、Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov 状態に良く似た超伝導状態が予想されているが、この検証のためには秩序パラメータの空間変調の直接観測が最も有効である。

(3) 外部磁場および磁性不純物は、クーパー対の時間反転対称性を破り、超伝導を壊す働きをすることが知られている。しかし、両者が結びつくことによる効果については明らかにされていない。外部磁場の効果として、軌道効果とパウリ常磁性効果が挙げられるが、磁性体を含む超伝導体においては、第三の効果、すなわち局在磁気モーメントの方向が外部磁場により変化することによる効果が考えられる。

2. 研究の目的

(1) Pb 単原子層膜の超伝導状態における Rashba 効果の重要性の検証のため、スピン軌道相互作用が Pb よりも小さな元素の超薄膜の超伝導転移温度の平行磁場依存性を明らかにする。

(2) 超伝導秩序パラメータの空間変調を調べることなどを将来展望として、走査トンネル顕微鏡による構造観察とエネルギー分光測定、および同一試料・状態に対するマクロな電気伝導測定を強磁場・極低温で行うことのできるシステムを開発する。

(3) 磁性体を含む超伝導超薄膜において、局在磁気モーメントを外部磁場により制御したときの超伝導状態への影響を明らかにする。

3. 研究の方法

基礎となる技術は我々が独自に開発してきたものであり、電気伝導測定には、GaAs などの単結晶の劈開、急冷蒸着、磁場中での試料の回転を“その場”で行うことのできるシステムを組み込んだ自作のヘリウム 3 冷凍機 (0.5 K) を用いる。あらかじめ側面電極をつけておいた半導体単結晶試料を極低温・超高真空の環境下で劈開し、その場で急冷凝縮法による金属超薄膜の作製を行った後、劈開表面をホールバーに見立てた 4 端子測定を行う。このような手法は他のグループでは全く行われていない。

4. 研究成果

(1) GaAs 劈開表面基板上的 Al, Bi, In の超薄膜に対して超伝導転移温度の平行磁場依存性を測定した。スピン軌道相互作用が非常に小さい Al の超薄膜では、Pauli 限界で説明できる超伝導転移温度の大きな平行磁場依存性が観測された。一方で、原子番号が Pb とほぼ等しい Bi の超薄膜では、超伝導転移温度は Pb と同程度にしか変化しなかった。

In の場合には、Pb の場合と同様に、単原子層領域まで超伝導を観測することができた。平行磁場の 2 乗にほぼ比例する超伝導転移温度の変化の大きさは、Pauli 限界から予想される変化よりは十分に小さいものの、Pb 単原子層膜の場合よりも 1 桁程度大きく (右図) Pb 単原子層膜に対する解析で用いた Rashba スピン分裂が弾

性散乱確率と比べて十分に大きいことを前提としたモデルを適用することができなかった。そこで、Rashba スピン分裂が小さな場合も扱えるようにモデルの拡張を行い、改めて解析を行ったところ、実験結果を定量的に再現することに成功した。

まとめると、平行磁場による超薄膜の超伝導転移温度の変化は、スピン軌道相互作用の大きな元素ほど小さくなることが明らかになり、Sekihara *et al.* Phys. Rev. Lett. **111**, 057005 (2013)において我々が提唱したモデルを支持する結果となった。

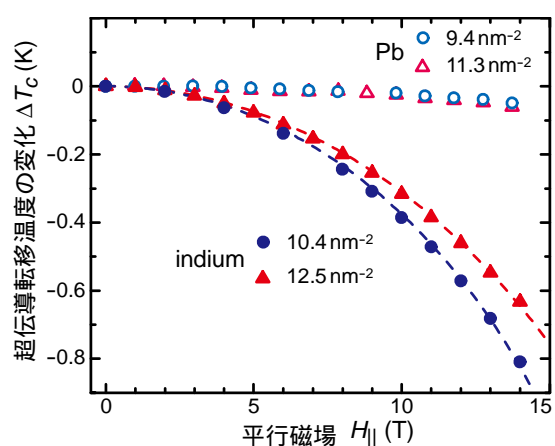


図 1 : 超伝導転移温度の平行磁場依存性

(2) 走査トンネル顕微鏡による構造観察とエネルギー分光測定および同一試料・状態に対するマクロな電気伝導測定を強磁場・極低温で行うことのできるシステムを構築した。その性能・有効性を確かめるために、InSb 劈開基板上に 0.01 原子層程度の Fe を蒸着させることにより誘起した表面反転層 2 次元電子系に対して測定を行った。整数量子ホール効果の明確な電気伝導測定とともに、走査トンネル分光によりシャープなランダウ準位の観測に成功した。今後、超伝導超薄膜の研究に使用する計画である。

(3) 母体の超伝導体として Pb 超薄膜を用いれば、軌道効果とパウリ常磁性効果にかき消されてしまうことなしに、磁性体を通じた磁場の超伝導への影響を調べることができる。

最も顕著な振舞いは、磁性不純物として Ce を用いた場合に観測された。ただし、Ce と Pb との磁気相互作用は弱く、単体 Pb 超薄膜表面上に Ce 原子を吸着させるだけでは、強い効果が得られなかったため、合金の超薄膜 ($d = 1.1 \text{ nm}$) を作製した。7.4% の Ce を含む合金超薄膜では、ゼロ磁場中の超伝導転移温度は Pb 単体膜の値 ($\sim 3 \text{ K}$) から 0.6 K へ大きく引き下げられたが、平行磁場の印加により大きく上昇することが明らかになった。さらに、10% の Ce を含む合金超薄膜では、ゼロ磁場中では超伝導の兆候は見られず、強い平行磁場を印加したときにだけ超伝導が観測された。

磁場によって超伝導が壊されることは 1914 年の Kamerlingh Onnes の実験以降、広く知られているが、磁場によって超伝導が誘起される現象はこれまでに数例しか報告されていない。スピン三重項超伝導体と考えられている URhGe を除くと、いずれも Jaccarino-Peter (JP) 機構によって説明されている。JP 機構では、伝導電子は磁性元素の局在磁気モーメントとの交換相互作用に由来する平均場の影響を受ける。交換相互作用の符号が反強磁性的である場合、外部磁場は磁性体からの平均場によるパウリ常磁性効果を打ち消すことになり、外部磁場の大きさが適当な範囲にあるときに超伝導が出現することになる。

しかし、我々の系では、パウリ常磁性効果は非常に抑制されていると考えている。単体 Pb 超薄膜におけるパウリ限界による臨界磁場は 100 T 程度と見積もられており、今回の磁場誘起超伝導に要した磁場よりも 2 桁大きい。平均場がゼロであるはずのゼロ磁場で超伝導が最も不安定であることなども併せると、今回観測した磁場誘起超伝導が JP 機構によるものだとはいえない。

伝導電子と磁性不純物との交換相互作用は、平均場を与えるだけでなく、磁気散乱を引き起こすことにより超伝導を破壊する。Kharitonov と Feigelman (KF) は、この効果の磁場依存性を詳細に計算し、磁場による超伝導転移温度の上昇と磁場誘起超伝導の可能性を指摘した。彼らの理論は我々の実験結果をよく説明する。KF の計算によれば、磁場効果は磁性体のスピンの小さいほど大きい。Ce のスピンは $1/2$ であり、顕著な磁場効果が観測できた原因の一つであると考えている。

磁気モーメントと伝導電子との相互作用は、4f より 3d 遷移元素の方が大きい。実際、Ce の場合とは対照的に、Mn や Cr をわずかに蒸着するだけで Pb 超薄膜の超伝導転移温度は大きく下がる。しかし、Mn や Cr を Pb 超薄膜に直接乗せた場合には、Ce で見られたような平行磁場による超伝導転移温度の上昇は見られなかった。交換相互作用が強すぎるために近藤一重項が形成され、磁気モーメントが見かけ上消失したためだと考えられる。近藤一重項の形成はクーパー対に参加する電子の数を減らし、実効的な斥力として働く。近藤温度が下がるほど、フェルミ面近くの電子の寄与が大きくなって、不純物量に対して超伝導転移温度が敏感に変化する。一方で、近藤温度が十分に小さい場合には、感度は交換相互作用の大きさの自乗に比例する。Ce の場合は、この領域にあると考えている。Mn の局在スピンと伝導電子との交換結合を

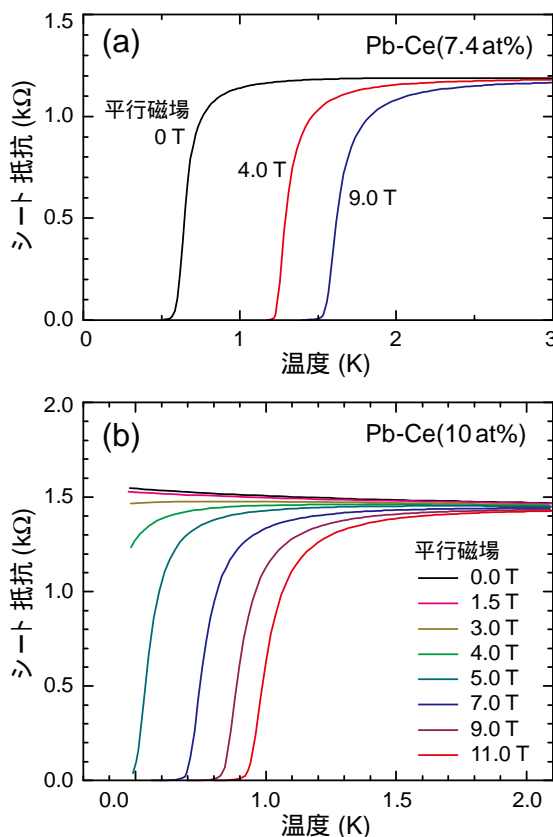


図 2 : Pb-Ce 合金超薄膜で観測された磁場誘起超伝導。(a) 7.4% の Ce を含む合金超薄膜のシート抵抗の温度依存性。平行磁場の印加とともに超伝導転移が高温側にシフトしている。(b) 10% の Ce を含む合金超薄膜のシート抵抗の温度依存性。この試料ではゼロ磁場では超伝導は観測されず、平行磁場中でのみ超伝導が出現する。

弱めるために、Pb 超薄膜の表面を約 1 原子層の Au で覆い、その上から Mn を蒸着した。Mn 蒸着に対する超伝導転移温度の減少率は Au を挟まない場合よりもさらに大きくなり、平行磁場に対する超伝導転移温度の上昇が観測されるようになった。ただし、変化量は KF の理論に基づく計算値よりも小さく、近藤一重項の形成が部分的に緩んだ領域にあると理解できる。

5 . 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計 8 件)

M. Niwata, R. Masutomi, T. Okamoto, Magnetic-field-induced superconductivity in ultrathin Pb films with magnetic impurities, *Physical Review Letters* **119**, 257001 (2017 年、査読有).

DOI:10.1103/PhysRevLett.119.257001

岡本徹、枘富龍一、単原子層超伝導と空間反転対称性の破れ、*固体物理* **52**, 97-103 (2017 年、依頼を受けて発表、査読有).

T. Sekihara, T. Miyake, R. Masutomi, T. Okamoto, Effect of parallel magnetic field on superconductivity of ultrathin metal films grown on a cleaved GaAs surface, *Journal of the Physical Society of Japan* **84**, 064710 (2015 年、査読有).

DOI: 10.7566/JPSJ.84.064710

R. Masutomi, T. Okamoto: Adsorbate-induced quantum Hall system probed by scanning tunneling spectroscopy combined with transport measurements, *Applied Physics Letters* **106**, 251602 (2015 年、査読有、selected as Editor's Picks).

DOI:10.1063/1.4922990

岡本徹、枘富龍一、劈開表面における電子輸送現象、*表面科学* **36**, 118-123 (2015 年、依頼を受けて発表、査読有).

DOI:10.1380/jsssj.36.118

〔学会発表〕(計 13 件)

R. Masutomi, S. Tashiro, T. Okamoto, Y. Yanase, Observation of crossover from a complex-stripe phase to a helical phase in multiple one-atomic-layer films, 31th International Conference on the Physics of Semiconductors, (2018 年).

〔その他〕

ホームページ等

<http://dolphin.phys.s.u-tokyo.ac.jp/>

6 . 研究組織

(2)研究協力者

研究協力者氏名：枘富 龍一

ローマ字氏名：(MASUTOMI, Ryuichi)

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。