

# 表面状態超伝導

理学系研究科・物理学専攻 長谷川研究室  
長谷川 修司

半導体結晶表面上に 1, 2 原子層の金属原子が吸着すると、基板の原子も巻き込んで再配列が起こって原子が規則正しく並んで「表面超構造」ができ、表面だけに局在する 2 次元電子バンド（表面状態）を形成する。最近、それが超伝導に転移することが発見された。1, 2 原子層という極限的な薄さの 2 次元電子系であり、また結晶表面では空間反転対称性が破れた状態なので、特異な超伝導特性が期待されている。本研究では、当研究室で新しく開発された「磁場印加型超高真空サブケルビン・マイクロ 4 端子プローブ装置」で表面状態超伝導の磁気輸送特性を測定した。

## 1. はじめに

Si(111) 結晶表面上に 1 原子層程度の金属原子が吸着して形成される表面超構造は、それが作る表面電子状態が究極の薄さの 2 次元電子系であるために従来から盛んに研究されてきた。さらに、これらの電子系は空間反転対称性の破れた系であり、そのためスピン分裂した表面状態ができることが明らかになり（ラシュバ効果）、さらに注目を集めている。最近、In または Pb が Si(111) 表面上で作る表面状態に超伝導転移が見られることが報告され[1]、単原子層レベルの究極に薄い超伝導、あるいは空間反転対称性の破れた超伝導として興味もたれている。論文[1]では走査トンネル分光（STS）による超伝導ギャップの観測であったが、論文[2]では、Si(111)- $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In 表面において超伝導電流の観測もなされ、STM 探針近傍だけではなく表面全体にわたってコヒーレントな超伝導状態が実現していることも明らかになった。ラシュバ・スピン分裂した電子系でクーパー対を作った場合、パリティが破れているため、シングレット状態とトリプレット状態の混合状態となり、特異な物性を示すことが期待されている。

そこで本研究では、我々が開発した超高真空極低温強磁場下でのマイクロ 4 端子法による「その場」表面電気伝導測定を可能にする「サブケルビ

ン・マイクロ 4 端子プローブ装置」を用い[3]、Si(111)- $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In に加えて Si(111)-Striped InCommensurate(SIC)-Pb 表面においても電気伝導測定を行った。その結果、SIC-Pb においても  $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の場合[2]と同様に、STS 測定から決定される  $T_c=1.83$  K[1]より低い、 $T_c=1.10$  K で超伝導転移が観測された。また、 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In と合わせて、様々な条件で作成した表面において、面抵抗値の温度依存性や印加磁場依存性を調べ、臨界磁場やコヒーレンス長などの超伝導パラメータを決定した[4]。

## 2. 実験装置

当研究室では、超高真空中で表面超構造を保ちながら *in situ* でその電気抵抗を測定する「マイクロ 4 端子プローブ装置」を開発してきた[5]。その装置では、図 1 に示すような端子間隔が  $10\mu\text{m}$  程度の 4 端子プローブを、ピエゾ駆動で試料表面にソフトに接触させて 4 端子電気伝導測定が可能となっている。

さらに、図 2 に示す装置によって、超高真空中で  $0.8$  K まで端子と試料を冷却でき、試料表面に垂直方向の磁場を  $7$  T まで印加できる装置も建設し[3]、今回の表面状態超伝導の研究を行った。そ

の装置の冷却系の模式図を図3に示す。

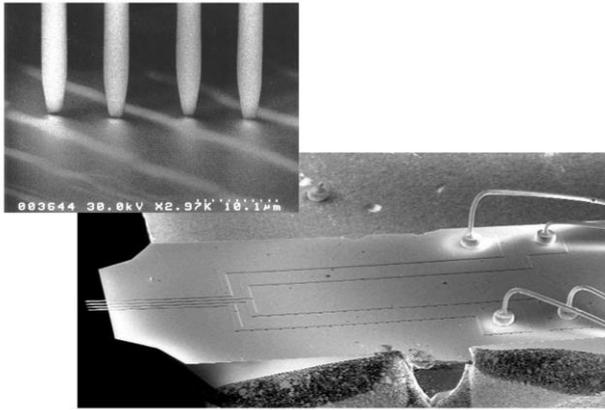


図1. マイクロ4端子プローブのSEM像[5]。

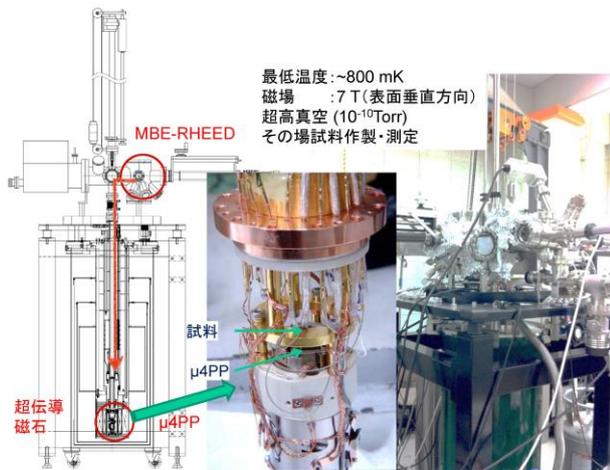


図2. 磁場印加型超高真空サブケルビン・マイクロ4端子プローブ装置[3]。

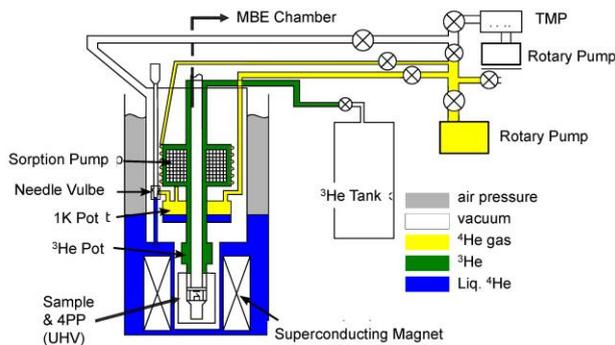


図3. 磁場印加型超高真空サブケルビン・マイクロ4端子プローブ装置の冷却系の模式図[3]。現在は<sup>3</sup>Heの代わりに<sup>4</sup>Heのみで実験を行っている。

### 3. インジウム吸着 Si(111)表面

1原子層程度のインジウム (In) を Si(111)結晶表面に吸着させると吸着量に依存してさまざまな周期の表面超構造が形成される[6]。図4に示すように、1/3原子層 (monolayer, ML) の場合には、

Si(111)面の格子定数を基準にして $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 周期でIn原子が並び、1 MLの吸着量では $4 \times 1$ 周期、2 MLでは、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ 周期の表面超構造が形成されることが知られている。 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造では、In原子が離れているので絶縁的な表面電子状態をとり、 $4 \times 1$ 構造では、In原子が特定の方向に4列で並んでストライプ構造を作るので、その原子列方向にだけ金属的な擬1次元金属電子状態をとる。 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ 構造は、等方的な2次元金属状態を取ることが知られている[6]。

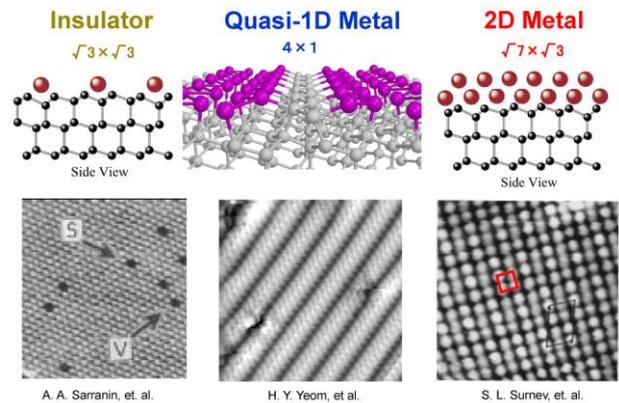


図4. Si(111)結晶表面上にInが、それぞれ1/3原子層[7]、1原子層[8]、2原子層[9]吸着したときに形成される3種類の表面超構造である $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 、 $4 \times 1$ 、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ の原子配列模式図とSTM像。

これらの表面構造の電気抵抗をマイクロ4端子プローブで測定した結果が図5である[10]。まず、構造の違いによって、室温での面抵抗が数桁にわたって異なっている。図1に示したプローブで、表面に極めて敏感に測定していることが分かる。さらに興味深いのは、電気抵抗の温度依存性である。 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  (と $\sqrt{31} \times \sqrt{31}$ ) 構造では、冷却にともなって抵抗が短調に増加しており、確かに絶縁体 (あるいは半導体) 的な性質を示している。 $4 \times 1$  構造では、擬1次元金属系に特有なパイエルズ不安定性による金属絶縁体転移が150 K近傍で起こって[8]、それより低温で抵抗が急増している。 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  構造のみ、冷却にともなって抵抗が減少して金属的な性質を示している。光電子分光法で解明されていたそれぞれの表面電子状態の性質に

従って電気抵抗の違いが見られた。

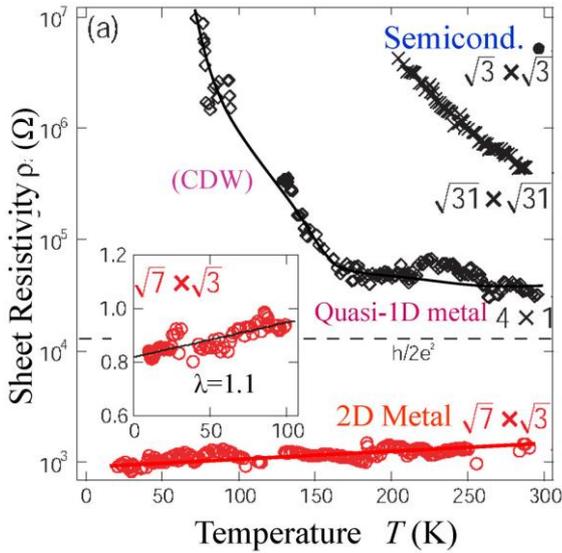


図 5. インジウム吸着 Si(111)表面超構造の面抵抗率の温度依存性[10].

$\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  表面超構造を図 2 の装置を使ってさらに低温まで冷却して面抵抗を測定した結果が図 6 である。2.8 K 付近で抵抗が消失して超伝導になっている。バルク超伝導体で見られるシャープな超伝導転移と異なり、超伝導転移温度よりはるかに高い温度領域で抵抗の減少が顕著に見られた。これは低次元系に特有な大きな超伝導ゆらぎに起因している。Aslamazov-Larkin および Maki-Thompson の補正を考慮して求めた転移温度は 2.77 K であり、先行研究[2]の結果を再現した。しかし、STS での超伝導ギャップ形成開始温度

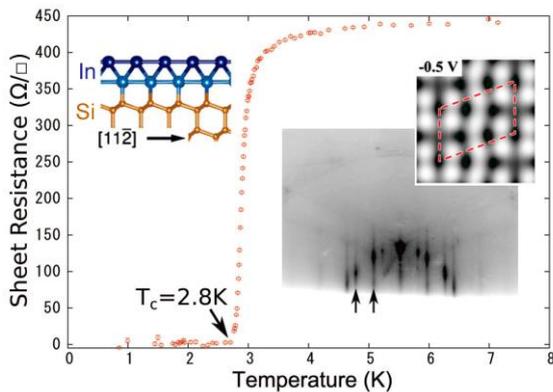


図 6. Si(111)- $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ (rect)-In 表面超構造 (挿入図: RHEED パターン) の面抵抗率の極低温での温度依存性[4]. 挿入図 (構造モデルの断面図と STM シミュレーション像) は文献 Ref [11].

(3.18 K) より低い。STS では局所的な超伝導ギャップ形成を検出するが、伝導測定では長距離にわたるコヒーレントな超伝導状態の形成が必要なので、転移温度がやや低温になると考えられる。

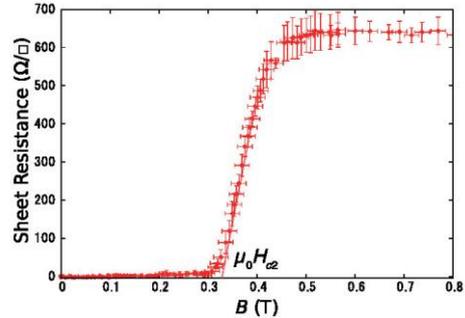


図 7. Si(111)- $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ (rect)-In 表面超構造の  $T=0.8$  K での面抵抗率の垂直印加磁場依存性[4].

図 7 は、最低温度 0.8 K に維持したまま表面に垂直に磁場を印加したときの面抵抗の変化である。0.3 T 程度の磁場で超伝導が破れることがわかる。これが上部臨界磁場  $H_{c2}$  に相当し、この値の温度依存性から Ginzburg-Landau (GL) コヒーレンス長  $\xi_{GL}$  が求められ、 $\xi_{GL}=25 \pm 7$  nm を得た。一方、角度分解光電子分光法と STS によるバンドパラメータから求めた Pippard のコヒーレンス長は 610 nm とはるかに長い。これはキャリアの平均自由行程が短く、 $\xi_{GL}$  程度になっていることを意味している。これは構造的な欠陥のためだけでなく、2次元系に由来する大きなゆらぎのためにコヒーレンス長が非常に短くなっていると考えられる。

#### 4. 鉛吸着 Si(111) 表面

図 8 の相図に示すように、1 原子層前後の Pb を Si(111) 表面に吸着させたときにもやはり様々な周期を持つ表面超構造が形成されることが知られている[12]。このうち HIC 相と SIC 相が STS によって超伝導ギャップが開くことが報告された[1]。図 9 が、われわれの装置で測定した面抵抗の温度変化であり、1.1 K 付近で超伝導転移を起こしていることが確認された。しかし、この臨界温度は STS で決められた臨界温度(1.83 K)より低く、

In の場合と同様に、局所的な超伝導ギャップ形成と長距離にわたるコヒーレントな超伝導状態の形成には温度差が生じることが原因と考えられる。

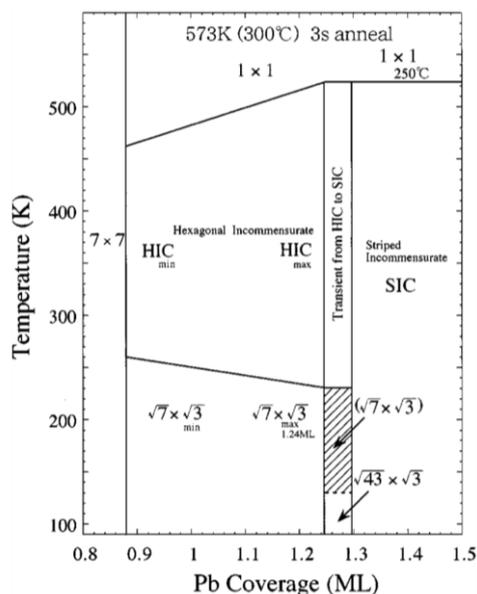


図 8. 鉛吸着 Si(111) 表面の温度-吸着量相図[12]。HIC; hexagonal incommensurate 相、SIC; striped incommensurate 相。

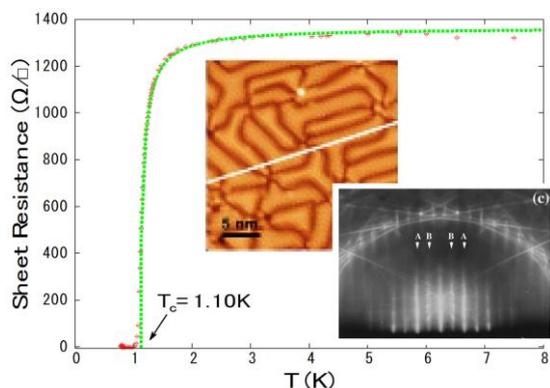


図 9. Si(111)-SIC-Pb 表面超構造の面抵抗率の極低温での温度依存性[4]。挿入図は、この表面の STM 像[1]と RHEED パターン[12]。

In の場合と同様に垂直磁場を印加して臨界磁場を測定し、コヒーレンス長を求めた。この系においても超伝導コヒーレンス長はバンド構造から見積もられる値ではなく、キャリアの平均自由行程によって制限された dirty な超伝導であることが明らかになった。これはドメイン境界などの構造欠陥だけでなく、2次元性に由来する大きなゆらぎが起因していると考えられる。

## 5. 今後の展望

ここまでの研究では、空間反転対称性の破れた超伝導状態の証拠をつかむことはできていない。そのためには、表面に平行方向に磁場を印加する必要があるが、現在の装置では不可能なので、将来の課題である。また、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ -In 表面構造では、磁性不純物による表面状態での近藤効果が電気抵抗の特微的な変化として検出されているが[13]、磁性不純物の超伝導に及ぼす影響など興味深いテーマとなろう。また、最近盛んに研究されているトポジカル絶縁体の表面状態での超低温電子輸送特性も研究中であり、運動量・スピンの結合したヘリカル表面状態の超伝導などに研究を挙げたいと考えている。

## 参考文献

- [1] T. Zhang *et al.*, Nat. Phys. **6**, 104 (2010).
- [2] T. Uchihashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **107**, 207001 (2011).
- [3] M. Yamada, *et al.*, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **10**, 400 (2012).
- [4] M. Yamada, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 237001 ('13).
- [5] T. Tanikawa, *et al.*, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **1**, 50 ('03).
- [6] S. Hasegawa, *et al.*, Prog. Surf. Sci. **60**, 89 (1999).
- [7] A. A. Saranin, *et al.*, Surf. Sci **388**, 299 (1997).
- [8] H. W. Yeom, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4898 (1999).
- [9] J. Kraft, *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 5384 (1997).
- [10] S. Yamazaki, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 116802 ('11).
- [11] J. W. Park, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 166102 ('12).
- [12] K. Horikoshi, *et al.*, Phys. Rev. B **60**, 13287 ('99).
- [13] K. Takase, Doctor Thesis (東京大学, 2009).

## 著者紹介



氏名 長谷川 修司

専門分野 表面物理学。現在は、結晶表面でのスピン流の研究を進める。趣味はさまざまな学外活動。