

年 報

ISSN 0919-3383

**ANNUAL REPORT
OF
THE MURATA SCIENCE FOUNDATION**

No.33 2019.12

公益財団法人 村田学術振興財団
Nagaokakyo-shi Kyoto 617-8555. Japan.

超伝導基板上でのSTM磁性原子操作による マヨラナ粒子の発現メカニズム解明

STM Study of Majorana Particle for Magnetic Atoms on Superconductor Substrate

H30助自108

代表研究者 山田 豊 和 千葉大学 大学院工学研究院 物質科学コース 准教授
*Toyo Kazu Yamada Associate Professor, Graduate School of Engineering,
 Department of Materials Science, Chiba Univ.*

Scanning tunneling microscopy (STM) has an ability to resolve atomic structures of material surface, and simultaneously obtained STM electronic spectroscopy curves show electronic structures at each atomic position. In this study, we have performed three experimental researches using ultra-low-temperature ultra-high vacuum STM setups: (1) careful cleaning treatment of an atomically-flat superconducting Pb(111) surface, (2) Fe single atoms on Pb(111), and (3) Ho single atoms on Pb(111).

- (1) Pb(111) is soft and melt at ~ 600 K, more careful treatments were required compared to noble metal substrate. Ar sputtering beam energy, incident angle, and annealing temperatures were modified. At each cleaning cycle process, time to time, we checked the surface morphology using STM. At low temperatures (below ~ 7.2 K), Pb becomes superconductor. STM tip was set at ~ 0.5 nm above the Pb(111) surface, and we successfully measured the superconducting gap with sharp two peaks (± 1.40 meV) symmetric with respect to the Fermi energy ($= 0$ eV) in STM spectroscopy curves.
- (2) Fe atoms were deposited on the clean Pb(111). We deposited three Fe atoms in a 10×10 nm² area. All Pb(111) surface showed two peaks at $+1.27$ and $+1.40$ meV. The peak amplitude of the two peaks changes at different position, while so far a clear understanding is not obtained. Next step, we will measure the spectra at a larger tip-sample separation of ~ 1.0 nm. Spectra measurements at the closer distance of ~ 0.5 nm may be affected by the tip, and sample signal could be disturbed.
- (3) Ho atoms were deposited on the clean Pb(111). Using a superconducting Pb-tip, we observed two peaks at 2.65 and 2.80 meV, while due to the tip-induced superconducting gap (1.40 eV) the true sample peaks are located at 1.25 and 1.40 meV, identical to the Fe atom case.

研究目的

“情報”は我々の生活に欠かすことのできない存在である。現在、人工知能(AI)研究の発展が目覚ましい。AI搭載自動運転車開発と相まって、市場規模は2015年には1500億円程度

であったが、2030年度90兆円規模が予測される。しかし、既存の素子でAIを作成した際、使用電力は我々人間の脳の実に10万倍の電力を要する。つまり、新材料による新規物性による革新的省エネデバイス開発が、次世代超情報スマート社会実現には必要不可欠である。

現在、全ての情報は「1」「0」で制御される。これに対して、量子力学的重ね合わせ状態を導入し超高速で計算を行うのが量子コンピューターである。超伝導素子を用いて9量子ビット演算まで実現しているが、実用には 10^5 - 10^8 量子ビット動作が必要である。材料として、ダイヤモンド中の欠陥、シリコン量子ドット、同位体シリコンの核スピン等が研究されてきているが、より重要な課題は“ノイズに強固な(robust)量子ビットの集積化”が実現できるかである。新たな材料候補としてマヨラナ粒子がある。粒子の交換によって新しい状態がつけられる。マヨラナ粒子は、物質のエッジ(端)というトポロジカル効果で発現するため原理的にはノイズや不純物による散逸がない。

本研究で我々はfcc(110)超伝導基板上に吸着した磁性原子のエッジ電子状態を計測し、トポロジカル素子実現への基礎的知見を得る。

概 要

今日、スマートフォン等の端末を用いて“情報”は日々の生活に必要不可欠な要素となっている。現在、世界の情報量は3ZB/年である(Z =ゼタ= 10^{21})。人工知能(AI)・自動運転自動車1台で、毎秒1GB/s(G =ギガ= 10^9)の情報が発生するため、2020年:44ZB,2030年:200ZBと情報量は爆発的に増大する。

全情報は、データセンターのHDD(ハードディスクドライブ)で保存される。手のひらサイズで2TBの情報保存できる(T =テラ= 10^{12})。1B(バイト)は8ビットであり、1ビットが1個の磁石である。つまり、次世代・情報社会実現には膨大な磁性物質が必要であるが、地球上の資源には限りがある。

全情報は、2進数“1”,“0”に変換され強磁性磁石のNS極の向きで保存される。手のひらサイズに、より多くの情報を取り込むため、1990

年代から磁石の微細化が進んだ。現在の大きさは約30nmであるが、既存の強磁性磁石だけでは数nmサイズへの加工が困難であり、また「熱ゆらぎ」により磁石は不安定化する。実現へ大きな壁に直面している。

本研究で我々は、次世代・超スマート情報社会を実現するため、超高真空・超低温・走査トンネル顕微鏡(STM)装置を駆使して、超伝導基板上の磁性原子配列で発現するトポロジで保護された電子状態は、どのようにして発現するのか探った。

1個の磁性原子を観察するためには、空気分子は不純物にしかならない。そのため、本実験研究は、全て、超高真空中にて行った。また、1個の原子を観察するためには、1個の原子をのせる基板も原子レベルで平坦でなければならない。つまり、基板にも不純物となる原子・分子があつてはならない。基板の清浄化・平坦化を慎重に行った。

また、1個の原子は、熱ゆらぎで容易に拡散する。さらに、超伝導状態やトポロジカルな電子スピン状態を確認するためには、高いエネルギー分解能を要する。そのため、測定は全て4K以下の極-超低温で行った。

超伝導基板としてPb(111)を使用した。大気中より試料を超高真空中に導入した後、Arイオンスパッタリングで表面不純物を原子層レベルで削りながら、適宜、加熱処理をすることで基板表面の原子を動かし平坦にした。加熱することで、基板の内部から再び不純物が表面に析出した。そのため、スパッタと加熱を繰り返した。ようやく平坦で清浄な表面を得た。しかし、スパッタで使用したArイオンに伴うキャビティが確認された。Arイオン照射角度を変更する事でキャビティの数を極限まで減らした。

このようにして得た、清浄・平坦な基板表面に、超高真空中で基板を極低温に冷やした

状態で磁性原子を吸着した。得られた成果を以下に示す。

Fe/Pb (111)

- ・ Feの蒸着量を $10 \times 10 \text{ nm}^2$ 中に約3個まで減少させることに成功した。
- ・ 1.4 meVピーク確認：Pb (111) 由来のコヒーレントピーク。
- ・ 1.26 meVのピーク確認：Fe原子からPbクーパー対への相互作用により発現。
- ・ Fe原子上のPb (111) 由来のコヒーレントピーク ($\sim 1.4 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は大きくなった。
- ・ Fe原子上のsubgapピーク ($\sim 1.26 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は小さくなった。
- ・ Pb (111) 上のPb (111) 由来のコヒーレントピーク ($\sim 1.4 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は小さくなった。
- ・ Pb (111) 上のsubgapピーク ($\sim 1.26 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は大きくなった。
- ・ Fe原子のPb (111) 表面上の吸着サイトはbridge-site。

Ho/Pb (111)

- ・ Ho蒸着量を $10 \times 10 \text{ nm}^2$ 中に約3個と、Feの蒸着量と同量に制御できた。
- ・ 1.40 meVピーク確認：Pb (111) 由来のコヒーレントピーク。
- ・ 1.25 meVピーク確認：Ho原子からPbのクーパー対への相互作用により発現。
- ・ Ho原子上のPb (111) 由来のコヒーレントピーク ($\sim 1.4 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は大きくなった。
- ・ Ho原子上のsubgapピーク ($\sim 1.26 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は小さくなった。
- ・ Pb (111) 上のPb (111) 由来のコヒーレントピーク ($\sim 1.4 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少に

より強度は小さくなった。

- ・ Pb (111) 上のsubgapピーク ($\sim 1.26 \text{ meV}$) 確認：蒸着量の減少により強度は大きくなった。
- ・ Ho原子のマニピュレーションをPb (111) 表面で行った。

本 文

Pb (111)

Pb (111) 単結晶の清浄化および原子レベルで平坦な表面出しを行った。Arイオンスパッタリング (4 kV, Arイオン入射方向は試料法線から20度) とアニール (フィラメント電流1.5A、フィラメント電圧7.1V。温度約220℃) をクリーニング1サイクルとした。結果をFigure. 1に示す。1サイクルでは、単原子ステップ・テラスは確認できなかった (see Fig. 1A)。4サイクルで、単原子ステップと100 nm以上の原子テラスを確認した (see Fig. 1B)。テラス表面に2種類の黒点を確認した (矢印 in Fig. 1B)。黒矢印で示した深さ200 pm程度の黒点と、灰矢印で示した深さ50 pm程度の黒点を確認した。黒点は、Pb (111) 基板内の残留不純物が表面に析出したことが原因と考えた。清浄化サイクルを9サイクル行った表面をFig. 1Cに示す ($200 \times 200 \text{ nm}^2$)。黒矢印で示す深さ200 pmの黒点は大幅に減少した。一方、灰矢印の深さ50 pm程度

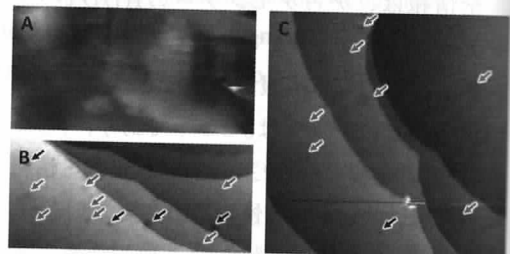


Figure 1 Pb (111) 清浄化 | (A) 1サイクル後のSTM像 ($300 \times 150 \text{ nm}^2$, $V_s = +1.0 \text{ V}$, $I_t = 312 \text{ pA}$)。 (B) 4サイクル後のSTM像 ($100 \times 150 \text{ nm}^2$, $V_s = +1.0 \text{ V}$, $I_t = 268 \text{ pA}$)。 (C) 9サイクル後のSTM像 ($200 \times 200 \text{ nm}^2$, $V_s = +1.0 \text{ V}$, $I_t = 377 \text{ pA}$)。

の黒点はいまだ存在した。Pb中のクーパー対のコヒーレント長は約83 nmである。表面上の不純物は超伝導の巨視的効果に影響すると考え、極力減らす努力をした。

灰矢印で示した深さ50 pmの黒点の原因はArイオンの影響と考えた。Si(111)表面上に成長させたPb多層膜において、ArイオンがPb(111)のギャップ幅(Δ_{Pb})に影響を与えることが報告されている^[1]。Arイオンが表面または表面下にあることでキャビティ構造:Ar-Induced nano-Cavities (AICs)が生成される。今回の我々が確認した、灰矢印の黒点の見え方は先行研究の観察例と酷似していた。

そこで、スパッタ中のArイオンの影響を軽減することを試みた。Arイオンスパッタリング(4 kV, Arイオン入射方向は試料法線から50度へ)を加熱しながら(フィラメント電流1.14 A、フィラメント電圧6.9 V、温度約100-150℃)行った。その後、再度アニール(フィラメント電流1.40 A、フィラメント電圧6.9 V、温度約160-170℃)を行った。200℃以下の温度はパイロメーターで測定不可能なため、220℃まで上昇する時間を計測し、概算で160℃に達する時間を割り出した(5 min)。目標温度に達した瞬間にフィラメントの電源を切った。また、真空度の桁が1つ違うだけで温度の上昇速度が大きく変化した。注意が必要である。

その結果、Arイオンの入射角度により灰矢印の黒点の数を、大きく減少させることに成功した。Arキャビティ構造体は、 $50 \times 50 \text{ nm}^2$ に1個の割合まで減少した。以下に詳細を示す。

この条件でのスパッタ中の試料加熱が無い場合と有る場合のSTM像をFigure. 2に示す。加熱無しでは(see Fig. 2A)、灰矢印で示したAICsが多数みられた。(AICs構造は2種類ある。)しかし、加熱有りの条件では(see Fig. 2B) AICsの数は大幅に減少した。Pb(111)表面に現

れる不純物の影響が無視できる領域に達した。この表面におけるSTM分光測定結果をFig. 2Cに示す(Lock-inアンプ使用)。フェルミ準位の極近傍($< \pm 5 \text{ meV}$)で得た dI/dV 値を青点で示す。横軸は電圧値であるがエネルギー軸[meV]である。フェルミ準位が0 meVである。電子1個のフェルミオンが、超伝導では、電子2個でクーパー対を形成しボゾンとなる。Figure 2Cでは、探針はタンゲステンの常伝導のためフェルミオンである。そのため、試料が超伝導となりボゾン粒子になると、針側のフェルミオン粒子の状態に遷移できない。Fig. 2Cの $\pm 1.40 \text{ meV}$ にはギャップが生じる(超伝導ギャップと呼ばれる)。ギャップ外のエネルギー値で、超伝導は壊れボゾンからフェルミオンに戻る。戻るとW探針のフェルミオン電子状態と遷移するため伝導が生じる。ピークのように見えるのは、

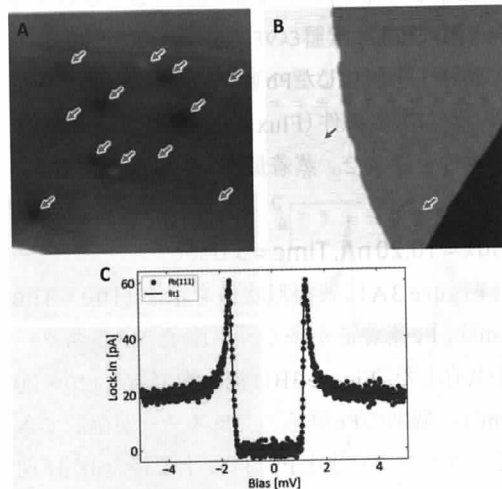


Figure 2 Pb(111) 清浄化 | (A) スパッタ中の加熱無しのSTM像 ($30 \times 30 \text{ nm}^2$, $V_s = +1.0 \text{ V}$, $I_t = 300 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 21.2 \text{ K}$). (B) 加熱有りのSTM像 ($100 \times 100 \text{ nm}^2$, $V_s = +1.0 \text{ V}$, $I_t = 200 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 925 \text{ mK}$). (C) (B)の表面におけるSTS測定結果 ($I_t = 1 \text{ nA}$, $V_s = 5 \text{ mV}$, $V_{\text{mod}} = 25 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$, $T_{\text{STM}} = 496 \text{ mK}$). 黒線は、BCS理論から導き出したDOS関数とFermi-Dirac関数による熱揺らぎの功を合わせた関数によるフィッティング結果(Pythonによるフィッティング)。

ピークのエネルギー値でボゾンからフェルミオンへの変化確率が高いことを示す。

後のFig. 8で示すが、超伝導探針を使用すると、探針側もフェルミ準位にてボゾン粒子状態を持つ。そのため、フェルミ準位にて探針ボゾンと試料ボゾン間の遷移が生じる。これがJosephson伝導である。

一方、探針ボゾン粒子と試料フェルミオン粒子間では遷移が生じないが反射は生じる。そのため、一方が超伝導状態、他方が常伝導状態になった超伝導ギャップから外れたエネルギー位置では反射に由来するピークが発現する (Fig. 8)。Andreev反射と呼ぶ。

Figure 2Cの実験値 (青点) を、BCS理論から導出されるfermionのDOS関数をFermi-Dirac関数で熱によるエネルギーの広がりを考慮した関数でフィッティングした。その結果、ギャップ幅は1.40 meVであり、先行結果と一致した^[1-3]。

Fe/Pb (111)

清浄・平坦化したPb (111) 表面にFe原子を蒸着した。蒸着条件 (Flux, Time) を変化させ、最適条件を探った。蒸着量の多い順に報告する。

Flux = 10.20 nA, Time = 5.0 sec

Figure 3Aに表面形状像を示す ($100 \times 100 \text{ nm}^2$)。Fe蒸着量が多く、単原子とクラスターが共存した。Figure 3Bは拡大像である ($20 \times 20 \text{ nm}^2$)。個別のFe原子とクラスターが確認できる。クラスター上とPb (111) 上で得た dI/dV 曲線をFig. 3C, Dに示す。Figure 2Cで確認したPb (111) ピーク ($\pm 1.40 \text{ meV}$) の近傍とギャップ内に2つの鋭いピーク (1.26 meV, 1.41 meV) を確認した。さらに、外側 ($\sim 2.2 \text{ meV}$) にブロードピークを確認した。1.41 meVピークはPb超伝導を表すコヒーレントピークである。Pb (111) 表面で1.26 meVピークが確認されたことは、Fe

クラスターからPb (111) 表面クーパ対に何らかの影響があることを示す。 $\sim 2.2 \text{ meV}$ ブロードピークは探針の影響である。このピークは、他の実験でも多数確認されている。探針にPb原子が吸着すると、探針側にも超伝導DOSが形成されるが、Pb吸着量が十分でなく不完全な超伝導ギャップを持つ探針になることでブロードピークはしばしば生じる。電圧パルスによる探針調整でブロードピークは消滅した。

Flux = 5.00 nA, Time = 5.0 sec

Fe蒸着量を減らした。クラスターは確認できなかった。Fe原子数は $10 \times 10 \text{ nm}^2$ に10個以上存在した。分光曲線は、同様に1.26 meVと1.41 meVにピークを示した。1.41 meVのPbコヒーレントピークに強度の差異は確認されなかった。しかし、1.26 meVピーク強度は、Fe原子上でPb (111) 基板上でのピーク強度より約20%低かった。1.26 meVピークは、正負バイアスで同じ強度を持っていた。Shiba状態で

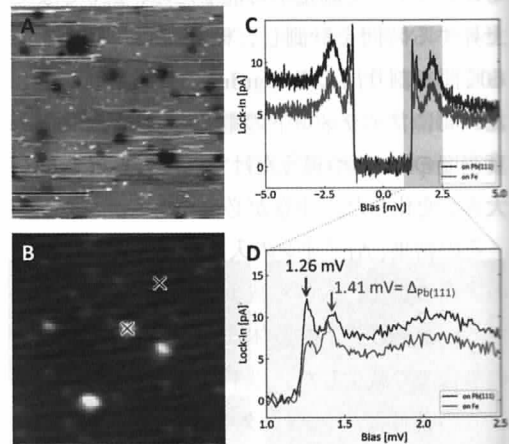


Figure 3 Fe (Flux = 10.20 nA, Time = 5.0 sec) / Pb (111) (A) STM像 ($100 \times 100 \text{ nm}^2$, $V_s = +0.1 \text{ V}$, $I_t = 300 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 29 \text{ mK}$)。 (B) STM像 ($20 \times 20 \text{ nm}^2$, $V_s = +0.5 \text{ V}$, $I_t = 400 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 30 \text{ mK}$)。 (C) (D) Fig. 4.1 (B) 中のバツ印上でのSTS測定結果 ($I_t = 1 \text{ nA}$, $V_s = 5 \text{ mV}$, $V_{\text{mod}} = 25 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$)。赤: 鉄クラスター上、黒: Pb (111) 上。

あれば正負非対称なピーク強度を持つ。また、Shiba状態は磁性不純物上のみにも局在する。今回確認された1.26 meVピークはShiba状態ではないと考える。現状、1.26 meVピークの発現由来は特定できない。

Flux = 4.98 nA, Time = 2.0 sec

蒸着量をさらに減少した。10 × 10 nm²に約8個にした (see Fig. 4)。同様に、Fe原子上とPb(111)上で分光測定を行った。1.26 meVピーク強度はFig. 3と同様の差であったが、1.41 meVピークでは、Fe原子上で得た分光曲線現れるPbコヒーレントピーク強度の方が、Pb(111)上でのコヒーレントピーク強度より約30%高かった。この1.41 meVピーク強度さは、Fe原子密度10 × 10 nm²に約8個以下で生じた。さらに、Fig. 4Aで示すように、Pb(111)上のAr cavity (AICs)からFe原子までの直線上でdI/dV曲線を計測し、横軸：エネルギー軸 [meV]、縦軸：直線上の位置、色でピーク強度を示す。(see Fig. 4B)。すると、AICsとFe原子上の分光曲線が酷似していた。AICsにて、1.26 meVピーク強度は減少し、1.41 meVピーク強度は増加していた。このことは、AICsによるクーパー対散乱とFe原子によるクーパー対散乱には、密接な関係があることを示唆する。

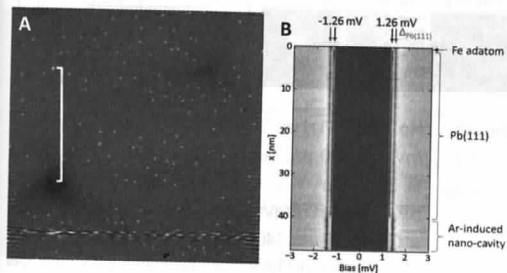


Figure 4 Fe (Flux = 4.98 nA, Time = 2.0 sec) / Pb(111) | (A) STM像 (100 × 100 nm², V_S = +0.1 V, I_t = 300 pA, T_{STM} = 31 mK)。 (B) Line Spectroscopy測定結果 (I_t = 2 nA, V_S = 3 mV, V_{mod} = 15 uV, f_{mod} = 1994 Hz)。

Flux = 2.97 nA, Time = 1.5 sec

Fe蒸着量を10 × 10 nm²に約3個まで減らした (see Fig. 5A, B)。これが現状制御できるギリギリの蒸着量である。Figure 5Aに示すようにAICsが少なくとも4つ確認できる。

この試料に対しても同様にFe原子上 (赤) とPb(111)上 (黒) でSTS測定を行った (see Fig. 5C, D)。この測定では、1.27 meVと1.41 meVピーク強度差が、Fig. 4より顕著に表れた。蒸着量減少により、Fe原子上では、Pbコヒーレントピーク (1.40 meV) 強度は増加、subgapピーク (1.26 meV) 強度は減少した。Pb(111)上では、Pbコヒーレントピーク (1.40 meV) 強度は減少、subgapピーク (1.26 meV) 強度は増加した。

subgapピークが実空間のどこにも局在しているか確認するためdI/dV mapを測定した (see Fig. 6)。Figure 6AはSTM形状像である。白輝点のFe原子が見えるが、Fe原子の両脇に黒点が観察できる。この黒点は全てのFe原子で確認できた。Figure 6A中のNo.1-3の3種類が確認できた。黒点吸着方向は120度ずつ異なる。Pb(111)の6

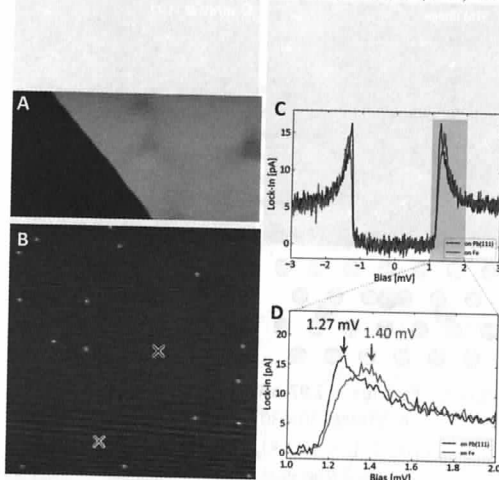


Figure 5 Fe (Flux = 2.97 nA, Time = 1.5 sec) / Pb(111) | (A) STM像 (100 × 200 nm², V_S = +1.0 V, I_t = 500 pA, T_{STM} = 44 mK)。 (B) STM像 (50 × 50 nm², V_S = +0.1 V, I_t = 300 pA, T_{STM} = 56 mK) (C) (D) Fig.4.1 (B) 中のバツ印上でのSTS測定結果 (I_t = 2 nA, V_S = 3 mV, V_{mod} = 15 uV, f_{mod} = 1994 Hz)。赤：鉄原子上、黒：Pb(111)上。

回対称性を考えると、Fe原子はFig. 6Bのようなbridge-site吸着にあると考える。Fe原子両脇の黒点は、探針側にFe原子が吸着したことにより、Pb(111)上のFe原子スピン偏極度ベクトルを検出したことに由来するかもしれない。

dI/dV map (Fig. 6C)を見ると、+1.27 meVのsubgap状態ピークはFe原子に局在しているように見えるが、原子1個を拡大して計測したdI/dV mapは、Fe原子周辺のPb(111)(エッジ)にsubgap状態がリング状に局在していることが分かった(see Fig. 6D, E)。Fe原子上では、subgap状態の強度は減少していた。

Ho/Pb(111)

3d磁性金属ではFe原子の研究と共に、より高いスピン磁気モーメントを有する4f遷移金属Ho原子の研究を行った。

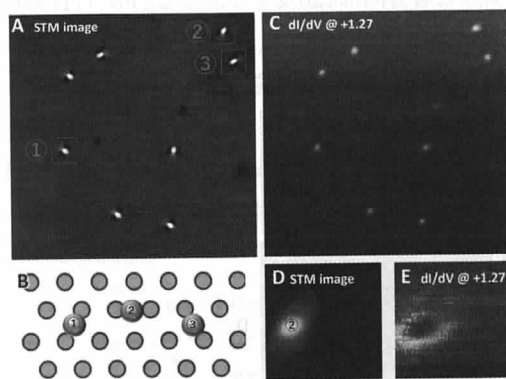


Figure 6 Fe (Flux = 2.97 nA, Time = 1.5 sec) / Pb(111) | (A) STM像 ($30 \times 30 \text{ nm}^2$, $V_S = +1.27 \text{ mV}$, $I_t = 300 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 15.2 \text{ K}$)。 (B) Fig.4.6 (A) から考えられるFe原子の吸着サイトモデル。①②③、いずれもBridge-site。 (C) Lock-In dI/dV像 ($30 \times 30 \text{ nm}^2$, $V_S = +1.27 \text{ mV}$, $I_t = 300 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 15.2 \text{ K}$, $V_{\text{mod}} = 15 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$) (D) STM像 ($2 \times 2 \text{ nm}^2$, $V_S = +1.27 \text{ mV}$, $I_t = 2 \text{ nA}$, $T_{\text{STM}} = 35 \text{ mK}$)。 (E) Lock-In dI/dV像 ($2 \times 2 \text{ nm}^2$, $V_S = +1.27 \text{ mV}$, $I_t = 2 \text{ nA}$, $V_{\text{mod}} = 15 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$, $T_{\text{STM}} = 35 \text{ mK}$)。

Flux=4.98 nA, Time=2.0 sec

Figure 7Aに示すように蒸着量は $10 \times 10 \text{ nm}^2$ に約3個と、Fe蒸着量とほぼ同量をPb(111)上に吸着した。

Ho原子実験では、探針先端にPbが吸着し超電導探針となった。結果、Fig. 7C, Dに示すように分光曲線は、探針側の超電導ギャップ分(1.40 meV)だけ開いた値を示す。つまり、Pbコヒーレントピークは $1.40 + 1.40 = 2.80 \text{ meV}$ に、subgapピークは $1.26 + 1.40 = 2.66 \text{ meV}$ に現れる。探針も超電導である場合、超電導状態が起因となったピーク(コヒーレントピークやSubgapピーク)の強度が増強され、エネルギー分解能が向上することが知られているため^[2,4]、超伝導探針で測定を行った。

STM電子分光結果をFig. 7C, Dに示す。Ho原子もFe原子と同様、Ho原子上ではPbコヒーレントピーク(1.40 meV)強度は増加し、subgapピーク(1.25 meV)強度は減少した。反対に、

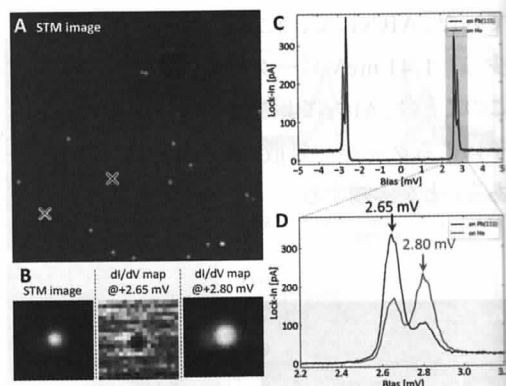


Figure 7 Ho / Pb(111) | (A) STM像 ($30 \times 30 \text{ nm}^2$, $V_S = +1.27 \text{ mV}$, $I_t = 300 \text{ pA}$, $T_{\text{STM}} = 15.2 \text{ K}$)。 (B) 左から、STM像 ($5 \times 5 \text{ nm}^2$, $V_S = +2.80 \text{ mV}$, $I_t = 1 \text{ nA}$, $T_{\text{STM}} = 740 \text{ mK}$)、Lock-In dI/dV像 ($5 \times 5 \text{ nm}^2$, $V_S = +2.65 \text{ mV}$, $I_t = 0.3 \text{ nA}$, $T_{\text{STM}} = 740 \text{ mK}$, $V_{\text{mod}} = 15 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$)、Lock-In dI/dV像 ($5 \times 5 \text{ nm}^2$, $V_S = +2.80 \text{ mV}$, $I_t = 1 \text{ nA}$, $T_{\text{STM}} = 740 \text{ mK}$, $V_{\text{mod}} = 15 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$)。 (C) (D) (A) 中のバツ印上でのSTS測定結果 ($I_t = 2 \text{ nA}$, $V_S = 5 \text{ mV}$, $V_{\text{mod}} = 15 \text{ uV}$, $f_{\text{mod}} = 1994 \text{ Hz}$)。赤: Ho原子上、黒: Pb(111)上。

Pb(111)上ではPbコヒーレントピーク強度は減少し、subgapピーク強度は増加した。磁性原子種によらないことが分かった。ある種のトポロジカルな形状(エッジ対称性)に起因しているのかもしれない。現状では推測の域をでない。

最後に、超伝導探針を用いた際に、超伝導ギャップ内のフェルミ準位近傍で確認した、ピーク強度の低いピークについて説明する(see Fig. 8)。コヒーレントピークの僅か1%しかない。拡大した dI/dV 曲線をFig. 8Bに示す。0.00 meVに鋭いピーク、-1.40 meV、+1.40 meVのエネルギー的に対称な位置にピークが確認できた。0.00 meVのピークはJosephson伝導(試料クーバー対ボゾンと探針クーバー対ボゾン間の遷移)を示す。一方、片方が超伝導ボゾンで、他方がコヒーレントピーク位置で($\Delta_{tip} = \pm 1.40$ meV)でフェルミオンになると、フェルミオン電子はAndreev反射されるため、-1.40 meV、+1.40 meVピークが生じたと考える。一周期のみが表れている。Josephson伝導とAndreev反射の模式図をFig. 8C,Dに示す。

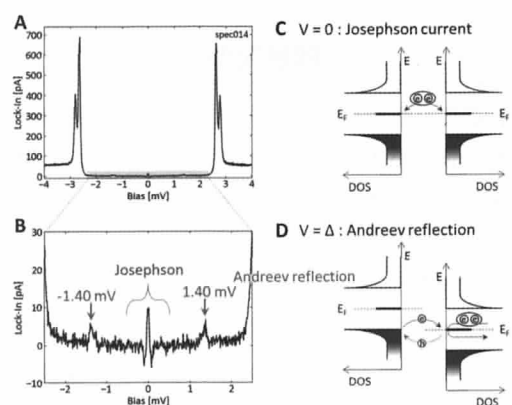


Figure 8 Ho / Pb (111) | (A) (B) Fig7 (A) 中のPb (111) 上でのSTS測定結果 ($I_t = 2$ nA, $V_s = 4$ mV, $V_{mod} = 40$ uV, $f_{mod} = 1994$ Hz)。 (C) Josephson currentの現れる場合の模式図。 (D) Andreev reflectionが現れる場合の模式図。

Ho原子操作

STM探針によるHo原子マニピュレーションを試みた。STM探針を原子に近づけ、探針を移動させることで任意の位置に原子を移動させる技術である。通常のSTM像測定時、探針は試料表面からやや離れた位置にある(セットポイント: $V_s = +2.64$ mV, $I_t = 170$ pA)。しかし、操作する際は、Ho原子上に探針を移動し、トンネル電流を $I_t = 8000$ pAまで増大させる。フィードバック機構により探針先端が ~ 200 pm試料表面に接近する。この試料探針間距離を保持したまま、横方向に探針を移動する。探針-Ho原子間の引力を用いてHo原子を動かす。Figure 9Aには4個のHo monomerがある。Monomerを移動し、Fig. 9Bに示すように2個のdimerを作製した。STM電子分光を計測した(see Fig. 9C,D)。両者の電子状態に大きな差はなく、monomerとdimerは同じ電子状態を持つと考える。

なお、Pb(111)上のFe原子でも原子操作を試みたがFe原子は動かなかった。

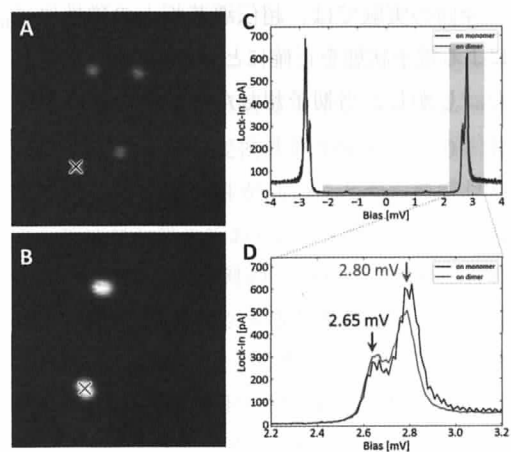


Figure 9 Ho / Pb (111) | (A) STM像 (10×10 nm², $V_s = +2.64$ mV, $I_t = 170$ pA, $T_{STM} = 37$ mK)。 (B) STM像 (10×10 nm², $V_s = +4$ mV, $I_t = 200$ pA, $T_{STM} = 37$ mK)。 (C) (D) Fig9 (A,B) 中のバツ印上でのSTS測定結果 ($I_t = 1$ nA, $V_s = 4$ mV, $V_{mod} = 40$ uV, $f_{mod} = 1994$ Hz)。赤: Ho dimer上、黒: Ho monomer上。

参考文献

- [1] Jeon, S. et al. Observation of Majorana fermions in ferromagnetic atomic chains on a superconductor. *Science*, 346, 1259327 (2014).
- [2] Ji, S. H. et al. Application of magnetic atom induced bound states in superconducting gap for chemical identification of single magnetic atoms. *Appl. Phys. Lett.* 96, 166-168 (2010).
- [3] Ruby, M. et al. End States and Subgap Structure in Proximity-Coupled Chains of Magnetic Adatoms. *Phys. Rev. Lett.* 115, 1-5 (2015).
- [4] Song, S. Y. & Seo, J. Observation of enhanced superconductivity in the vicinity of Ar-induced nano-cavities in Pb (111). *Sci. Rep.* 7, 1-8 (2017).

今後の研究の見通し

STMによるPb(111)表面の清浄化と原子テラスの作製ができた。またSTM電子分光から超伝導ギャップの発現も確認した。磁性原子吸着により、ギャップ内に新たなsubgap電子状態ピークの発現を確認した。しかし、ピークのエネルギー位置がフェルミ準位を挟んで対称的であり非対称ではなかったためShiba状態ではなかった。

今回の実験では、超伝導基板上の磁性原子による電子状態を正確にとらえることに成功した。しかし、当初予想した磁性原子種に依存

したギャップ内単位は確認できなかった。原因の一つは、今回全てのSTM電子分光はトンネル抵抗=約 $10^7\Omega$ ($V_s = 1\text{ mV}$, $I_t = 100\text{ pA}$)で行った。このトンネル抵抗での探針試料間距離は極めて小さい。通常、金属基板上での分光は $10^9\Omega$ で行う。探針が試料に近すぎるため、探針の影響が試料におよび、試料表面上での電子状態の違いが検出できなかった可能性が高い。

今後、STM電子分光の探針試料間距離依存性を実施する。

本助成金による主な発表論文、著書名

- 1) Well-Ordered Monolayer Growth of Crown-Ether Ring Molecules on Cu (111) in Ultra-High Vacuum: A STM, UPS, and DFT Study, Ryohei Nemoto, Peter Krueger, Ayu Novita Putri Hartini, Takuya Hosokai, Masaki Horie, Satoshi Kera, and Toyo Kazu Yamada, *The Journal of Physical Chemistry C* 123, 18939-18950 (2019).
DOI: 10.1021/acs.jpcc.9b03335
- 2) Fabrication of tungsten tip probes within 3 s by using flame etching, Takayuki Yamaguchi, Eiichi Inami, Yuto Goto, Yuta Sakai, Satoru Sasaki, Teruaki Ohno, and Toyo Kazu Yamada, *Review of Scientific Instruments* 90, 063701 (2019).
DOI: 10.1063/1.5085251