

クロミウム薄膜の超伝導探索

1615051010 澤武正貴

1. 序論

一般的な超伝導は BCS 理論というものに基づいている。負に帯電した電子が正に帯電した格子の中を運動すると、クーロン引力が働くため、電子と格子の間に相互作用が発生する。このため、電子が移動すると格子が電子に引き寄せられ変形する。これが格子振動を引き起こし、電子のエネルギーが格子に奪われる。また、これが電気抵抗の原因になる。ところが、十分近くに第二の電子が存在すると、この電子は正電荷の濃度の高くなった領域から引力を受け、加速されることになる。つまり、最初の電子が奪われたエネルギーを第二の電子が奪い返すことができるのである。この結果、電子のペア(クーパー対という)で考えれば、エネルギー損失のない状態ができあがる。これが BCS 理論における超伝導の原理である。この BCS 理論では超伝導は磁性と相容れない性質であると考えられてきた。それは磁気モーメントが超伝導体中の電子対を破壊する効果を持つとされているからである。一方で構成元素に磁性イオンを含み、磁性体と超伝導体の両方の性質を持つ物質も存在する。

クロミウム元素(Cr)は $T_N = 311$ K の反強磁性体であるが、薄膜が超伝導を示すとの報告がなされている⁽³⁾⁽⁴⁾。薄膜超伝導体自体の研究例は多く、様々な物質について報告がなされている。しかしこれらは全て膜厚を薄くすると超伝導が消失するものであり、これは膜厚が電子の平均自由行程より薄くなった時に超伝導電子対ができにくくなる事に起因すると考えられている。一方、バルクが超伝導にならない Cr の場合は膜厚と超伝導の有無の関係が逆であるため別の説明が必要である。これまで圧力や磁場、結晶の組成比など様々なパラメーターを駆動力とした量子相転移が報告されてきたが、膜厚をパラメーターとした例はこれまで発見されていない。膜厚は次元性を直接制御できる有効なパラメーターであり、その制御によって誘起される量子相転移は、電子系の全く新しい側面を見せる可能性がある。Cr 薄膜の物性研究がその最初の例となるのか興味を持たれる。

過去の Cr 薄膜の超伝導に関する報告は古く、また電気抵抗やマイスナー効果等の実験データが示され

ていない不十分なものであった。またそれ以降の研究では単結晶薄膜では超伝導は発現するものの転移温度が異なるうえ同じ膜厚の試料で超伝導が起きない試料が存在した。多結晶薄膜では当初の報告と同様の温度で急激な抵抗減少が観測されたがその減少率は非常に小さく超伝導は発現していないなど、まだその発現原理は解明できていない⁽⁵⁾。そこで本研究は Cr 薄膜の超伝導発現の原理を調べるため、様々な種類の Cr 薄膜において電気抵抗測定や X 線回折測定を行った。

2. 実験方法

(1) Cr 薄膜の生成 多結晶薄膜は、 8×10^{-6} Pa の高真空中でイオンビームスパッタ法 (IBS) を用いて、Si 基板上に堆積させた。ターゲットを不活性ガスのイオンによってスパッタ現象を引き起こすため、成膜時はアルゴンガス雰囲気中 ($1.15 \sim 1.17 \times 10^{-2}$ Pa) で行った。成膜した試料はすべて同様に 5nm の Au による酸化防止膜を施し、Cr の膜厚は $t = 5 \sim 200$ nm とした。単結晶薄膜はエピタキシャル成長により膜厚 $t = 5 \sim 400$ nm の範囲で Cr の単結晶膜を成膜した。基板には格子定数、熱膨張率が近い MgO(001) を使用した。成膜にはマグネトロンスパッタリング装置を用いた。成膜時のアルゴンガスの圧力は $0.08 \sim 0.1$ Pa である。

(2) 電気抵抗測定 電気抵抗は直流 4 端子法により測定した。電極付けにはワイヤーボンダー (ハイソル社 MODEL7476D) を使い、多結晶薄膜には金線、単結晶薄膜にはアルミニウム線を電極として接着した。測定は Quantum Design 社の PPMS (Physical Properties Measurement System) とそのオプション機器を用いて $0.2 \sim 350$ K の間で行った。

(3) X 線回折測定 株式会社リガクの SmartLab を用いて X 線反射率測定、ロックンガープ測定、逆格子マッピング測定を行い、薄膜の成膜状況を調べた。

3. 実験結果

(1)多結晶薄膜 X線回折測定から膜厚が小さくなるほどに格子定数も小さくなる傾向があった。図1に示すようにすべての試料でバルクに比べ大きな抵抗率であり膜厚によってその大小が異なるといった2次元電気抵抗の特徴や300K付近での転移点がないなどの振る舞いをした。しかし過去の報告のような1.5Kでの急激な電気抵抗の低下は観測されなかった。

(2)単結晶薄膜 電気抵抗率において図2に示すように300K付近での磁気転移がある試料とない試料があった。反強磁性転移がない試料はすべて膜厚が50nm以下であり、多結晶薄膜同様バルクよりも大きな抵抗率を示した。膜厚50nmの試料は過去に超伝導を発現した試料も含め3種類用意したが、新しく計測した2つの試料はバルクに近い値を示した。超伝導を示した試料ももう一度計測しなおしたが今回の計測では超伝導を示さなかった。X線回折測定から、膜厚が薄いほど格子ひずみが大きいとわかったが格子定数の大きさと膜厚の関連性は発見できなかった。

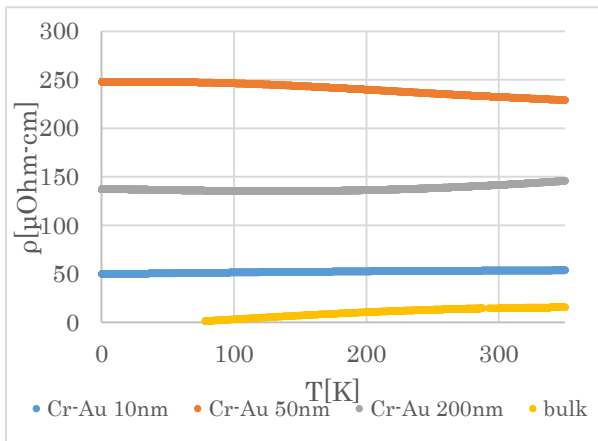


図1 電気抵抗率の温度依存性(多結晶)

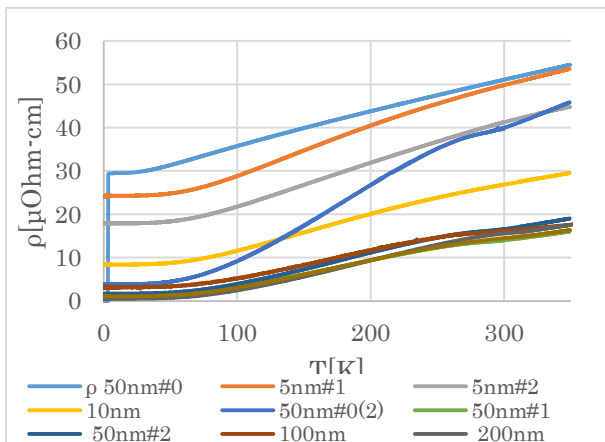


図2 電気抵抗率の温度依存性(単結晶)

4. 結論

本研究では過去の報告にあるようにCr薄膜が超伝導を発現するのか、またその発現原理はどのようなものであるかを調べるためにいくつかの計測を行った。多結晶薄膜の電気抵抗は全体的に二次元的挙動は見せたものの超伝導は発現しなかった。また過去の報告にある1.5Kでの抵抗減少がみられないことから以前観測された抵抗減少は電極に使用した1.2Kで超伝導を発現するアルミニウムもしくは表面に形成された酸化被膜によるものであると考えられ、Cr多結晶薄膜は超伝導を発現するとは考えにくい。一方、単結晶薄膜では過去に実際に超伝導が発現した試料のデータがあり同条件で膜厚のみを変化させたものの計測を行ったが、他の試料からは超伝導が観測されないうえに、同じ膜厚の別の試料からも観測されていないこと、膜厚が薄くなるにつれて格子ひずみが大きいことなどから、基板(MgO)とCrの格子定数のギャップからくる格子ひずみによって反強磁性が抑制され、それによって磁気層転移近傍でクーパー対が形成されることでCr薄膜の超伝導が発現していると予想される。

参考文献

- 1)D. B. McWhan, and T. M. Rice : “Pressure dependence of itinerant antiferromagnetism in chromium”, Phys. Rev. Lett, Vol.19, No.15 p.846 (1967)
- 2)M. Ohashi, and G. Oomi : “Simple experimental procedure under quasihydrostatic pressure up to 15 GPa at low temperature”, Jpn. J. Appl. Phys. Vol.48, No.7R, 070221 (2009)
- 3)P. H. Schmidt, R. N. Castellano, H. Barz, and B. T. Matthias, : “Superconducting ion beam sputtered chromium metal thin films”, Physics Letters ,Vol.41A ,No.4,p.367 (1972)
- 4)P. H. Schmidt, R. N. Castellano, H. Barz, A. S. Cooper, and E. G. Spencer : “Variation of superconducting transition temperatures of transition-metal thin films deposited with the noble gases”, J. Appl. Phys, Vol44, No.4,p.1833 (1973)
- 5)M. Ohashi ,K. Ohashi.,M. Sawabu, M. Miyagawa, T. Kubota, K. Takanashi : “Unconventional drop in the electrical resistance of chromium metal thin films at low temperature”, Physics Letters, Vol.380A , No.38, p.3133 (2016)