

Si(111)-($\sqrt{7}\times\sqrt{3}$)-In 表面超伝導体への CuPc/F₁₆CuPc による表面ドーピング

山田洋一¹, 角直也¹, 佐々木正洋¹, 吉澤俊介², 内橋隆²

筑波大学数理物質科学研究科¹, 物質材料研究開発機構²

[背景]

In 吸着 Si(111)-($\sqrt{7}\times\sqrt{3}$)表面超構造 ($\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In) は約 3K で表面超伝導を示す [1]。最近、 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In 上にフタロシアニン(Pc)を吸着させると、中心金属や被覆率に依存して超伝導転移温度 T_c が変化することが報告された [2]。これは分子のスピンの磁気モーメントや表面へのホール供給が影響していると考えられているが、その機構は十分に解明されていない。そこで本研究では、中心金属のスピン状態は同一でアクセプター性の異なる銅フタロシアニン(CuPc)とフッ化銅フタロシアニン(F₁₆CuPc)によるドーピングを比較することで転移温度変化の機構解明を目指す。

[実験方法]

実験は全て超高真空中で行った。 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In は、清浄な Si(111)-7×7 表面に In を蒸着した後、300℃で 10 秒間加熱することで作製した。CuPc と F₁₆CuPc はそれぞれ単層程度蒸着した。それぞれの試料の構造は STM を用いて計測し、電子状態は PF-BL13B において角度分解光電子分光を行った。電気伝導計測はミニプローバーにより in-situ で、1.6K から室温の範囲で計測した。STM、LEED、電子状態計測は常伝導状態の室温で行った。

[実験結果]

Fig.1(a)に $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の STM 像を示す。所々に欠陥が生じているが、過去の報告と同様の表面構造が確認され、約 3.0K で超伝導転移を示すことを確認した。Fig.1(b)に $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In 上に作製した F₁₆CuPc 単分子層の STM 像を示す。F₁₆CuPc は CuPc と同様によくオーダーした単分子層を形成した。Fig.2 に、 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In への F₁₆CuPc を蒸着に伴う電気伝導の変化を示す。F₁₆CuPc 吸着 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の超伝導転移温度は、蒸着量の増加に伴い低下し、単層で 2.2K まで減少した。これは、いずれの被覆率においても転移温度の上昇が見られた CuPc の場合とは対照的である。

Fig.3 に $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In 上に F₁₆CuPc 及び CuPc を 1ML 蒸着した場合の光電子スペクトルを示す。CuPc 単分子層ではフェルミ準位近傍に分子由来の状態が位置し、状態密度の増大が見られた。E_F 付近の状態に分散はほとんど見られなかったため、これは基板からの電荷移動により、部分占有された LUMO による状態だと考えられる。電荷移動の結果、 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In はホールドーピングされており、さらに分子-基板複合状態の形成により E_F の状態密度が高くなっている。このような要因で超伝導転移温度が上昇したと考えられる。一方、F₁₆CuPc 単分子層の分子軌道は E_F から離れた位置に観察された。F₁₆CuPc の場合は、基板と分子間の電荷移動は起こらなかったと考えられるが、この場合、中心 Cu のスピンと伝導電子の交換相互作用の影響により超伝導転移温度が低下したものと考えられる。

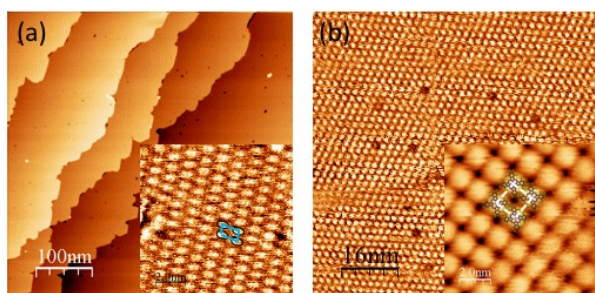


Fig.1 $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の STM 像(左)と F₁₆CuPc を蒸着した際の STM 像(右)

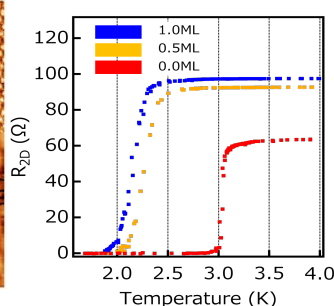


Fig.2. F₁₆CuPc を蒸着した際の電気抵抗の温度依存性

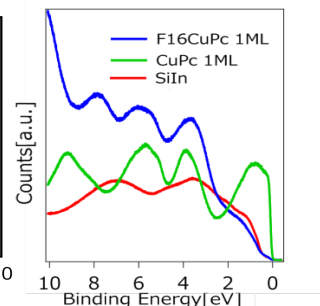


Fig.3. CuPc, F₁₆CuPc ML の光電子スペクトル

- [1] T. Uchihashi et al., *Phys. Rev. Lett.* 107, 207001 (2011),
- [2] S. Yoshizawa, et. al., *cond-mat*> arXiv:1608.06688c