

IX-5. 低温物性グループ

教授	神田晶申
准教授	森下將史
助教	友利ひかり (2020年9月～)
大学院生	羽生一貴 (M2) 柄澤聖吾、川口椋、宮崎美樹、柳井力 (M1)
卒研究生	石川真智、楠川将史、田中耀子
研究生	梁昊昀、范福 (2021年3月～ (オンライン))

低温物性（神田・森下）研究室では、『メゾスコピック量子科学』をテーマに掲げ、電子、超伝導渦糸、ヘリウムという3つの量子それぞれがマクロ（巨視的）とミクロ（原子スケール）の中間的なサイズの微小な系（メゾスコピック系）に閉じ込められたときに発現する物性の解明とその応用展開を目指した研究を行っている。メゾスコピック系はミクロな世界を支配する量子力学に基づく現象を巨視的効果として観測可能である点で新奇現象の宝庫であるとともに、ポストシリコンを担う電子デバイスのプラットフォームとして産業応用面でも重要な位置を占める。

2020年度はコロナ禍のために研究活動は大きく制限された。年度前半は大教室で行う少人数の勉強会が主な研究室活動であった。後半から徐々に実験を開始した。2019年度から行われていた自然系学系D棟の耐震改修工事は2020年9月に終了し、12月までにD101、D106-1への装置の移設・立ち上げ等を行った。耐震工事中に快く実験室（自然E102）をお貸しいただいたプラズマグループの皆様に感謝申し上げます。

2020年9月に友利ひかり助教が着任した。また、10月に研究生として入学予定であった范福さん（中国）はコロナ禍で来日が遅れ、2021年3月にオンラインで研究生に入学した。

【1】原子層物質でできたメゾスコピック超伝導体における超伝導状態（柳井、梁、友利、神田）

サイズがミクロンのオーダーのメゾスコピック超伝導体では、渦糸の配置は試料形状や磁場、注入電流などの外部パラメータに大きく依存する。本研究では、原子オーダーで膜厚が均一で乱れが少ない層状超伝導体の原子層膜において、渦糸の量子力学的な性質を発現させ、渦糸の量子状態を外部制御することを目指している。

最初の目標は渦糸の巨視的量子トンネル(MQT)効果を観測することである。渦糸の検出には超伝導状態密度（超伝導ギャップ）の変化を用いる。超伝導ギャップは、メゾスコピック超伝導体に取り付けられた微小トンネル接合を用いたトンネル分光で得る。従来我々が行ってきたアルミニウムでできたメゾスコピック超伝導体の研究では、

MQT を示唆する結果が得られたものの、異なる試料間で結果のばらつきが大きく、MQT の存在を証明するまでに至らなかった。これは、アルミニウム蒸着膜では渦糸をピン留めする構造欠陥がランダムな位置に存在することが主原因である。これに対し、原子層物質では構造欠陥は極めて少ない。さらに、厚さが数層以下の原子層超伝導体で近年発見された量子金属相では、渦糸の位置が量子的に揺らいでいると考えられているので、MQT 観測に好都合だと期待される。そこで、量子金属相における超伝導ギャップの振る舞いを明らかにする実験を行っている。

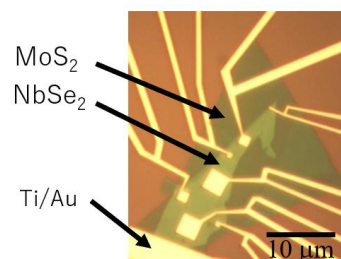


図1 :SIN トンネル接合が取り付けられた NbSe₂ 試料の光学顕微鏡写真。

今年度は厚さ 5 層程度の NbSe₂ に伝導測定用のオーミックコンタクトとトンネル接合が取り付けられた試料 (図 1) を作製し、希釈冷凍機温度で伝導測定を行った。トンネル障壁には 4 層の MoS₂ を用いた。超伝導転移点近傍で電流電圧特性 $V \propto I^\alpha$ のべき指数 α が 1 から 3 に変化するコステリッツ-サウレス転移のユニバーサルジャンプを観測し、低温において明確な超伝導状態密度 (超伝導ギャップ) を得た。しかしながら、量子金属相を示唆するデータは未だ得られていない。

【2】原子層物質の簡便な膜厚決定手法の開発 (友利、宮崎、神田)

スコッチテープ法と薄膜転写・積層手法の確立により、グラフェンを始めとする様々な原子層物質を組み合わせた積層構造が盛んに研究されている。このような原子層物質の研究では、膜厚は重要なパラメータであるため、試料の正確な層数決定が求められる。従来は原子間力顕微鏡 (AFM)、顕微ラマン分光、光学顕微鏡像が原子層膜の層数決定に用いられてきた。AFM とラマン分光では正確な膜厚が決定できるものの、大気中で不安定な物質には使えないという欠点がある。一方、光学顕微鏡像を用いる方法では、光学顕微鏡をグローブボックス中に設置することにより大気中で不安定な物質にも適用できる。しかし、この方法では基板と試料のコントラスト差を利用しているため、撮影条件によって基板と試料のコントラスト差が変動し、層数決定に任意性が出る。このような撮影条件による任意性を排除し、光学顕微鏡による観察のみで簡便に層数を決定する手法として、Fresnel の法則から計算したコントラストの層数依存性と顕微鏡撮像システム固有のコントラストの明るさ依存から個々の原子層物質の層数を求める方法を開発し、実験結果とよく一致することを示した。

【3】格子ひずみを用いたグラフェンの物性制御 (友利、神田)

炭素の 2 次元原子層膜であるグラフェン中の伝導電子は、質量ゼロのディラック方程式によって記述される。これに関連し、グラフェンの六方格子のひずみはゲージ場 (ベクトルポテンシャル) を生じるというグラフェン特有の性質がある。このひずみ効果をうまく使うと、グラフェンを高速電子デバイスに応用するために不可欠となる

質の良い伝導ギャップを生成できることが理論予測されている。また、グラフェンに周期的に歪みを導入したひずみ超格子では、フラットバンドが形成されることが理論的に示されている。フラットバンドは磁性や超伝導等の多体効果が発現する舞台として近年特に注目されており、ひずみによってグラフェンの物性が制御できる可能性がある。本研究では、周期格子ひずみを使ってグラフェンに実用化可能な大きさである 400 meV 以上の伝導ギャップを生成することを目的としている。

実験ではレジストナノ凹凸構造の上にグラフェンを転写することでグラフェンに 1 軸周期歪みを導入し、電気伝導の温度依存を調べた。その結果、グラフェンのジグザグ方向に歪みを導入した場合には金属伝導が見られるのに対し、アームチェア方向に近い方向に歪みを導入した場合に半導体的な電気伝導が生じることを見出した。これまでに周期 40 nm の周期歪みで最大 0.18 eV のバンドギャップを観測した (図 2)。

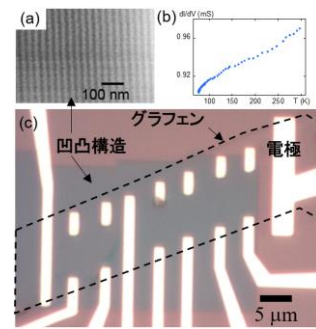


図 2 : (a) 周期 40 nm のレジスト凹凸構造。(b) ひずみグラフェンのコンダクタンスの温度依存。(c) 試料の光学顕微鏡写真。

【4】グラフェンの歪み方位を簡便に決定する方法の開発 (友利、中村、神田)

これまでの研究で、ラマンスペクトルの G バンド、2D バンドの偏光依存性からグラフェンの歪み方位を簡便に決定する方法を開発し、角度決定精度を従来の 10 倍の 0.1 度まで高めることに成功した。今年度はその成果を論文として公表した。

【5】電子線照射したグラフェンのラマン分光 (石川、友利)

グラフェンのラマンスペクトルには、グラファイト系材料に特徴的な G バンド、2D バンドが現れ、結晶に欠陥を含む場合はこれらに追加して D バンドも現れる。D バンドと G バンドの強度比 I_D/I_G は結晶の欠陥量を示す指標となる。また、G バンドに対する 2D バンドのピーク位置のグラフから、グラフェンの格子ひずみや電荷ドーピングに関

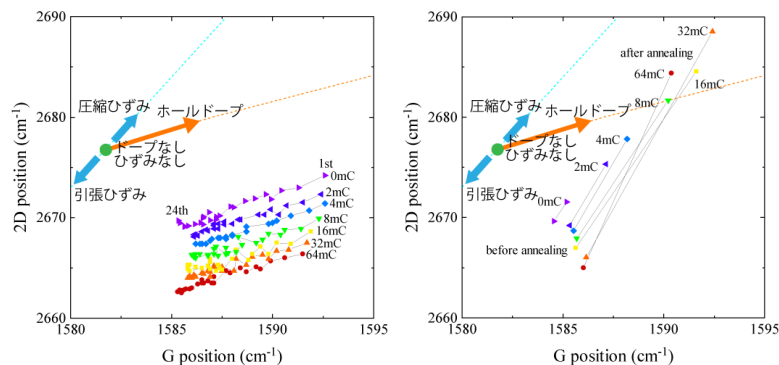


図 3 : (左) レーザー照射 (ラマンマッピング) の繰り返しによる G バンド、2D バンド位置の変化。(右) アニールによる G バンド、2D バンド位置の変化。

する情報が得られることが分かっている。

友利らの先行研究において、電子線を照射されたグラフェンの I_D/I_G は、ラマン分光時のレーザー照射の繰り返しやアニールで減少することが発見された。この 2 つのラマンスペクトルの変化には違いが見られるが、その詳細は明らかになっていない。そこで本研究では電子線照射によって欠陥を与えられたグラフェンへラマンマッピングやアニールを行うことで起きる変化をラマンスペクトルの詳細な解析によって明らかにすることを目的として実験を行った。測定の結果、電子線照射によってグラフェンに引張りひずみが導入されること、ラマンマッピングの繰り返しによって結晶中のホールドープが緩和されることがわかった。また、アニールによって結晶のひずみが緩和されるが、ホールドープ量はほとんど変化しないことが明らかになった (図 3)。

【6】多層グラフェンを用いたファンデルワールスコンタクトの形成と評価 (羽生、楠川、神田)

近年の原子層科学の発展に伴い、単層のみでなく多層の原子層物質の電気伝導も注目を集めている。多層の原子層物質への電極接続の方法には、原子層物質の上に電極を形成するトップコンタクトと原子層物質の下に電極を形成するボトムコンタクトの 2 種類の方法があり、バックゲートを用いる場合には、キャリア密度が変化する膜下面に電極が直接つながるボトムコンタクトの方が適している。一方、通常の電極では、金属蒸着に伴う表面凹凸のためにボトムコンタクトの接触抵抗が高くなる傾向があり、デバイス動作に悪影響を及ぼす。これを解決するため、表面に凹凸がないと期待される多層グラフェンをボトムコンタクト電極に用いることが有効であると考え、その有効性を確かめる実験を行った。様々なデバイス構造について室温での電気伝導を測定したが、現時点では多層グラフェンボトムコンタクトの有効性を十分に示すには至っていない。

【7】多層の原子層物質のコンタクト抵抗の評価 (楠川、羽生、神田)

通常、電気抵抗 (率) は 4 端子法で測定される。4 端子法では、試料の両端に取り付けられた電流端子間に電流を流し、試料から突き出た 2 つの電圧端子間の電圧を測定する。電流端子間の電圧を測定する 2 端子法に比べて、配線やコンタクトの抵抗を含まない正確な試料抵抗を測定することができる。しかし、試料から突き出た電圧端子を形成することが困難な場合もある。その場合には簡易的に、試料の電流経路上に電圧端子が覆いかぶさった電極配置が使われる。このような電極接続が標準となっている研究分野がある一方で、電圧端子を電流経路に直接取り付ける影響はこれまで詳細には議論されていない。そこで、本研究では、4 端子測定において、電流経路に電極を接続した影響を明らかにすることを目的として実験を行った。

実験では、フォトリソグラフィ等の半導体微細加工技術と原子層物質のへき開・転写法を用いて、短冊状に並んだ多数の金電極 (幅 3 μm 、間隔 3 μm) の上に細長い長

方形の多層グラフェン（幅 5 μm 、厚さ 30 nm 程度）が載った構造を作製した。この試料の隣り合った金電極間の 4 端子抵抗、2 端子抵抗と各電極—多層グラフェン間のコンタクト抵抗をプローバーを用いて室温・真空中で測定した。測定データから、電流の一部が電圧コンタクト内に流れ込んでいることが示唆されたが、定量的な解析には至っていない。

【8】 graphite 上 ^4He 薄膜 吸着第2原子層の吸着構造（森下）

graphite 表面に吸着した ^4He 薄膜の第1、第2原子層は低温で固化を生じ、面密度(吸着量)により吸着基盤である graphite 表面や第1原子層の周期性を反映した多彩な吸着構造をとる。吸着第2原子層では低面密度の流体相から面密度を増大させていくと、 ^3He 薄膜同様に、1原子層目に対し整合で、4/7という面密度比をもつ固相に固化するものと信じられている。ねじれ振子を用いた動的応答測定では、この面密度で ^4He 薄膜は超流動を示すことも明らかになっており、固体なのに超流動、即ち、空間対称性の破れと超流動性が共存した、古くから理論予測されている「超固体」が実現されているのではと注目されている。しかし一方、理論計算では4/7という面密度では固相が存在しないことが、多数のグループにより示されており、論争となっている。

4/7という面密度近傍に整合固相が存在するか否かについて、実験面から明確な回答を与えるために、 ^3He を少量混入しての熱容量測定を行った。純粋な ^4He 薄膜の熱容量は phonon の寄与のみで小さいのに対し、溶解した ^3He は可動であれば Fermi 流体として振る舞い、大きな熱容量をもち、母体である ^4He 薄膜が固相なのか流体相なのか明確になると期待されるためである。過去の測定では、 ^3He の混入量が多すぎたために薄膜が ^3He 濃厚相と ^3He 気薄相への相分離を生じ、結論が不明確であった。そこでまず、4/7の面密度で ^3He 混入量を変えての熱容量測定を行い、相分離に対する ^3He 臨界濃度が 0.7%程度であることを明らかにした。その上で、確実に相分離を生じないよう、 ^3He を 0.2%程度に減じて熱容量測定を行った。その結果、少なくとも吸着第3原子層が生成し始める面密度まで、第2原子層内で ^3He 原子が可動であることが結論された。

吸着第3原子層生成の直前で第2原子層が固化していることは中性子散乱の結果から明確であり、この面密度でも ^3He が可動であることは一見矛盾する。この面密度では超流動性も観測されていない。今回の測定を含め、様々な実験結果を精査すると、1原子層目に対し2/3および3/4の面密度の整合固相に固化していると思なすことが相当である。2/3相は striped domain wall 構造と見なせる構造であり、3/4相も同様な構造を取り得る。吸着第1原子層において domain wall 構造が流動性を有するとの知見を考慮に入れると、吸着第2原子層においても striped domain wall 構造の一部が流動性を有し、その中で ^3He が1次元 Fermi 流体として振舞っている可能性は高い。従来、この面密度領域は1原子層目に対し不整合な固相と信じられていたが、中性子散乱の結果等を再検討すると、不整合な固相への構造相転移は第4原子層生成とはほぼ同時に生ずると見るのが自然であることも明らかとなった。

当初の問題であった4/7の面密度でも溶解した ^3He は可動である。整合固相であるが超流

動性を示しているから溶解した ^3He が可動であるとの見方もできそうであるが、超固体では構成粒子が弁別不可であるとの要請が生じ、超固体の中では ^3He は可動ではないことが期待される。従って、理論予測通り、4/7の面密度では流体相であり、この面密度で観測されている超流動現象は2次元流体相の KT 転移によるものと考えるのが自然であると結論される。

^3He 薄膜と ^4He 薄膜で固化を生ずる面密度や構造が全く異なることになるが、これは零点振動の大きさの違いを反映したものである。He 薄膜では、原子間のハードコア斥力が固化の主要な機構を担っているためである。

【9】 graphite 上 ^4He 単原子層薄膜の動的応答測定 (柄澤、森下)

グラファイト表面に吸着した単原子層の ^4He 固相薄膜に、 ^3He を少量混入して観測された異常な熱容量の解釈として、吸着構造の domain wall 内のみが固化せずに流動性をもち、この原子レベルサイズの幅をもつ規則的制限空間内を ^3He が運動し、1次元 Fermi 流体や Dirac 粒子系として振る舞っている可能性を提案している。domain wall 内の流動性について、より直接的な検証として、水晶振動子を用いた動的応答測定を試みている。初期段階で、domain wall 内の ^4He の超流動転移、さらに低温で薄膜全体の超流動転移を強く示唆する観測が為されたものの、再現性に乏しい問題に直面している。原因として考え得る可能性の一つは振動振幅が大き過ぎることである。graphite 基盤の格子定数に比して、数 nm 程度の振動振幅は大き過ぎ、domain wall 構造を崩している可能性が高い。振動振幅を減ずるには単純に駆動電圧を減ずれば済むはずであるが、駆動電圧、出力電圧ともに μV オーダーの微弱信号であり、crosstalk の影響などもあり単純ではない。さまざまな対策により、0.1 nm 程度まで振動振幅を減ずることに成功したが、まだ再現性は十分ではない。今後さらなる工夫を試みる必要がある。

【10】 音叉型水晶振動子を用いた低温用気体圧力計の開発 (柄澤、森下)

吸着ヘリウム薄膜の実験では、低温でも動作する高感度の圧力計が必須である。従来、変位型の静電容量圧力計が用いられてきたが、感度を高めると大型化し、扱いにくいものになる問題があった。動的応答測定に用いている音叉型水晶振動子は高い Q 値を有するため、微小な圧力にも鋭敏に反応し、さらに小型なので試料セル内に封じるだけで使用できる利便性も期待される。

実際にヘリウムガスを試料として低温で圧力測定に使用したところ、共鳴周波数の変化や共鳴の鋭さを表す Q 値は流体力学または気体運動論を用いてほぼ定量的に再現することができ、1 Pa 程度以上の圧力領域であれば、信頼性が高く、扱いやすい圧力計として使用できることが明らかとなった。より低圧で使用できれば利用価値は格段に向上するが、圧力感度はあるものの精度に課題が残っている。これは、振動子表面に吸着したヘリウム薄膜の影響が無視できないためである。

<学位論文>

(修士論文) 数理物質科学研究科、2020年3月

1. 羽生 一貴: 「多層グラフェンを用いたファンデルワールスコンタクトの形成と評価」
(卒業論文) 物理学類、2020年3月
1. 石川 真智: 「電子線照射したグラフェンのラマン分光」
2. 楠川 将史: 「多層の原子層物質のコンタクト抵抗の評価」
3. 田中 耀子: 「水晶振動子を用いた超流動ヘリウムの研究」

<論文>

1. Masahiko Hayashi, Hideo Yoshioka, Hikari Tomori, and Akinobu Kanda, "Theory of the Strain Engineering of Graphene Nanoconstrictions", J. Phys. Soc. Jpn. 90, 023701 (2021).
2. Hikari Tomori, Kazushi Nakamura, Akinobu Kanda, "Improved method for determining crystallographic orientation of strained graphene by Raman spectroscopy ", Appl. Phys. Express 13 075006 (2020).

<学会発表>

(国際会議)

1. Hikari Tomori, Kazushi Nakamura, Akinobu Kanda, "Improved method for measuring crystal orientation of strained graphene using polarization dependence of Raman G band and 2D bands", APS March Meeting, Online, March 17, 2021.

(国内会議)

1. 友利 ひかり、宮崎 実樹、神田 晶申: 「原子層物質の簡便な膜厚決定手法の開発」、2021年第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン、2021年3月19日
2. 林正彦、吉岡英生、友利ひかり、神田晶申、「グラフェン・ナノコンストリクションの電気伝導におけるひずみ導入効果の理論」、日本物理学会第76回年次大会、オンライン、2021年3月19日
3. 友利ひかり: 「ひずみ超格子によるグラフェンの電気伝導制御」、第13回九大2D物質研究会「界面超結晶の成長と評価」、オンライン、2021年2月23日(依頼講演)
4. 神田晶申: 「超伝導原子層物質の特異な超伝導状態の観測と制御」、第13回九大2D物質研究会「界面超結晶の成長と評価」、オンライン、2021年2月23日(依頼講演)
5. 羽生一貴、梁昊昀、友利ひかり、神田晶申: 「多層の原子層物質の電気伝導測定のための多層グラフェン電極の形成」、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン、2020年9月11日
6. 柄澤聖吾、森下将史, 「Graphite 上単原子層 4 He 薄膜 Domain Wall 内における流動性の

動的応答測定による検証」, 日本物理学会 第 76 回年次大会 (オンライン, 2021 年 3 月 13 日).

7. 森下將史, 「Graphite 上 4 He 薄膜吸着第 2 原子層整合固相の有無」, 日本物理学会 第 76 回年次大会 (オンライン, 2021 年 3 月 13 日).
8. 柄澤聖吾、岡裕一郎、森下將史, 「音叉型水晶振動子を用いた低温用気体圧力計の開発 II」, 日本物理学会 2020 年秋期大会 (オンライン, 2020 年 9 月 11 日).

<外部資金>

1. 神田晶申: 「原子層超伝導体におけるメゾスコピック渦糸状態の量子性の検出」、池谷科学技術振興財団研究助成 (2020.4~2021.7)、直接経費 150 万円
2. 神田晶申: 科学研究費補助金 基盤研究 B 「回転角制御モアレ系 2 層グラフェンの作製と電子状態の観察」(研究代表者: 田中悟 (九州大学)) (2019.4~2022.3)、直接経費 50 万円