

IX－ 5． 低温物性グループ

教 授	神田晶申
准教授	森下將史
研究員	友利ひかり（～2018 年 9 月）
大学院生	星直樹（数理物質科学研究科博士前期課程 2 年）
卒研究生	井上大、柴山昇、島田耕作（物理学類 4 年）

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、渦糸、ヘリウムという 3 つの量子がマクロ（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。神田は微小な超伝導体中の渦糸と 2 次元ディラック電子系であるグラフェン中の電子について研究を行った。数年間にわたって故障していた 3He-4He 希釈冷凍機の修理に成功し、50 mK までの極低温の実験を再開した。森下は研究基盤総合センター低温部門にある最低到達温度 70 μ K の核断熱消磁冷凍機を用いてヘリウム単原子層薄膜における 2 次元量子物性の研究を行った。

【1】メゾスコピック超伝導体における渦糸状態（神田）

超伝導体は第 1 種と第 2 種に分けられる。ともに低磁場では完全反磁性を示すが、臨界磁場以上では、第 1 種超伝導体では超伝導が急に破壊され常伝導状態になるのに対し、第 2 種超伝導体では徐々に超伝導体内に磁束量子（渦糸と呼ばれる）が侵入する磁束（渦糸）状態が生じる。渦糸とは核の周りで超伝導巨視的波動関数の位相が 2π 変化する特異点であり、巨視的（バルク）な超伝導体では三角格子上に配列する。これに対しミクロン程度のサイズのメゾスコピック超伝導体では、渦糸の配置は試料形状に依存し、巨大渦糸状態(GVS)、多重渦糸状態(MVS)といった多彩な渦糸状態が出現する。我々はこれまで、独自に開発した微小トンネル接合法を用いて、数々の新規渦糸状態の初観測に成功した。同時に、磁場誘起の渦糸侵入・排出、一定渦度の GVS－MVS 間転移、異なる MVS 間転移を観測し、渦糸状態の安定性と試料形状の関係を明らかにした。さらに、超伝導体に局所電流を注入することにより、電流誘起の渦糸侵入・排出、一定渦度の GVS－MVS 間転移、異なる MVS 間転移を観測した。局所電流注入（図 1 (a)）は、各渦糸状態のエネルギーを上下することに対応し（図 1 (b)）、ポテンシャルの凹みが十分に小さくなったときに転移が起こると理解できる。注入電流を三角波状に変化させたときの渦糸状態間転移の検出例を図 1 (c)に示す。磁場掃引に比べ電流注入は制御性が高いので、量子状態としての渦糸状態の転移を詳細に調べるこ

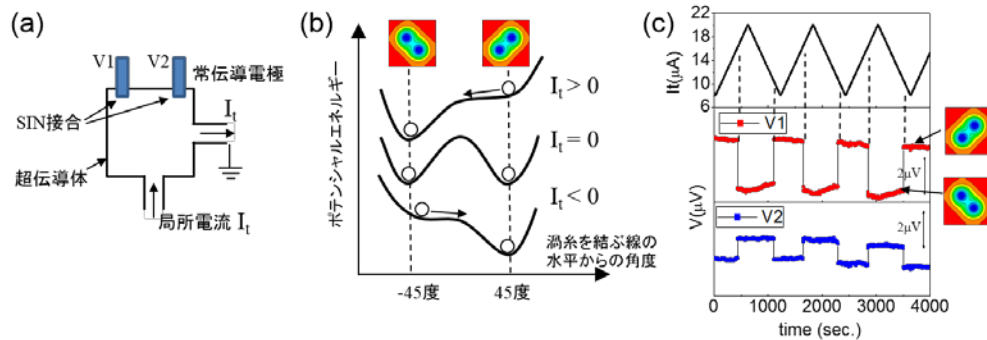


図 1：正方形超伝導薄膜における、局所電流 I_t による MVS 間の 2 状態間転移。(a) 微小トンネル接合法に用いる試料の概略図。(b) 局所電流注入によるエネルギー変化の様子。(c) 注入電流を三角波状に変化させたときの 2 つの微小トンネル接合の電圧の変化。

とができ、量子系としての少数渦糸の研究に最適である。

以前我々が渦糸状態間転移の実験で用いたアルミニウムの蒸着膜では、表面の凹凸に起因する渦糸のランダムなトラップが起こるので、渦糸状態の制御性には限界がある。一方、近年グラフェン等の原子層物質で培われた剥離技術を用いて得られる層状超伝導体の原子層膜は、原子オーダーで膜厚が均一であり、乱れの影響のない超伝導転移が報告されている。我々は、層状超伝導体の一種であるカルコゲナイド物質 NbSe_2 においてメゾスコピック超伝導研究の新展開を目指している。2018 年度は、 NbSe_2 からメゾスコピック超伝導体を形成するための微細加工に関する研究と個々の渦糸の侵入・排出に関する研究を行った。

(1) 収束イオンビームによる微細加工が NbSe_2 の超伝導特性に与える影響の評価

昨年度に引き続き、層状超伝導体を用いたメゾスコピック試料を作製する上で重要となる、微細加工が超伝導特性に与える影響を調べた。産総研ナノプロセッシング施設の収束イオンビーム(FIB)装置を用いて層状超伝導体 NbSe_2 薄膜(厚さ 50 nm 前後)を幅 0.5 μm 、2 μm の細線に加工し、加工前後の超伝導特性を比較した。その結果、FIB 加工によって超伝導転移がステップ状に起こることを見出した。個々のステップの温度は NbSe_2 数層膜の転移温度に対応することから、FIB 加工によって NbSe_2 薄膜の剥離が起こっていると推測される。従来高温超伝導体などの微細加工には FIB が用いられ、FIB 加工によるダメージは表面数ナノメートルの範囲に収まると報告されているが、薄膜の場合には剥離によってさらに広範囲にわたって影響が及ぶことが明らかになった。

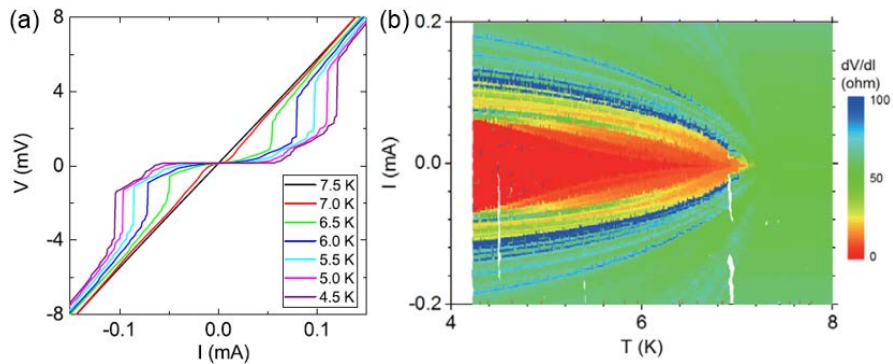


図 2 : RIE によって加工した幅 $0.5\ \mu\text{m}$ の NbSe_2 細線の電流電圧特性(a)と微分抵抗のカラープロット(b)。

(2) 反応性イオンエッチングによる微細加工が NbSe_2 の超伝導特性に与える影響の評価

電子線リソグラフィーでレジスト ZEP520 のマスクを形成し、 CF_4 と O_2 による反応性イオンエッチング(RIE)によって NbSe_2 薄膜を幅 $0.5\ \mu\text{m}$ 、 $2\ \mu\text{m}$ の細線に加工した。幅 $2\ \mu\text{m}$ の試料の超伝導特性はバルク試料とほとんど変化がなかったが、幅 $0.5\ \mu\text{m}$ の場合には電流電圧特性上の高電流領域で位相スリップによる電圧の跳びの数の著しい増加が観測された (図 2)。このことから、RIE によって微細なダメージは生じるものの低バイアス・低温における超伝導特性に対する影響はほとんどないことが確認され、メゾスコピック超伝導試料の形成には RIE が適していることがわかった。

(3) NbSe_2 メゾスコピック超伝導体における渦糸侵入・排出の観測

ファンデルワールスアセンブリ法と RIE を用いて、約 $2\ \mu\text{m}$ 四方の正方形に加工した層状超伝導体 NbSe_2 に $\text{NbSe}_2/\text{MoS}_2/\text{Au}$ の超伝導体/絶縁体/常伝導 (SIN) 接合を取り付けた構造 (図 3 (a)) を作製し、微小トンネル接合法を用いた渦糸侵入・排出の観測

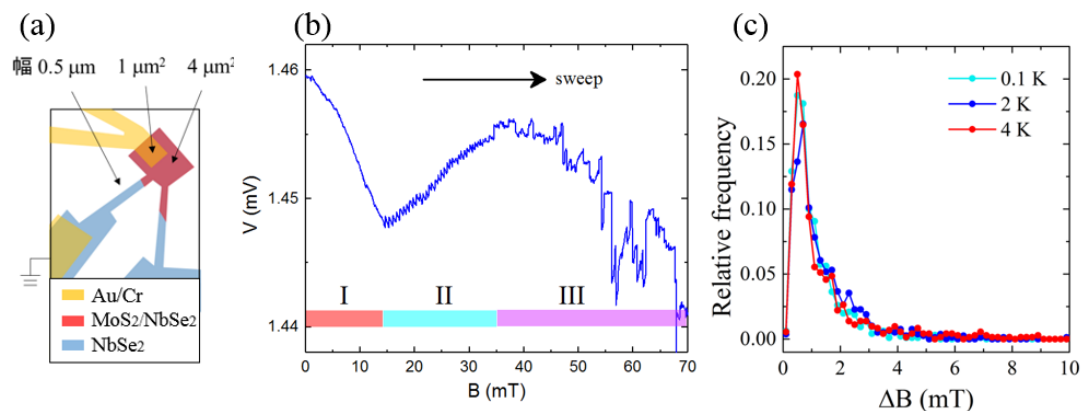


図 3 : (a) NbSe_2 メゾスコピック超伝導体の試料構造。(b)磁場増加時の接合電圧の磁場依存。(c)電圧の跳びの間隔のヒストグラム。

を行った。磁場増加時の SIN 接合にかかる電圧の磁場依存性において、弱磁場領域（図 3 (b) 領域 II）では単一磁束量子に対応する磁場間隔（約 0.5 mT）で規則的な電圧の跳びが見られるのに対し、その他の磁場領域、磁場減少時には不規則な電圧の跳びが見られることを見出した（図 3 (b)）。前者は従来のアルミニウムの試料で見られた振る舞いと同一であるが後者はアルミニウム試料では見られない振る舞いである。後者について、電圧の跳びの間隔はランダムであるように見えるが、そのヒストグラムには単一磁束量子に対応する磁場間隔でピークが見られ、磁束量子の挙動を反映していると考えられる（図 3 (c)）。この原因を磁場侵入深さと接合サイズとの関連を通して検討した。

【2】グラフェン等の原子層物質とその複合構造における物性開拓とデバイス応用への基盤技術開発（神田）

層状物質を劈開して得られる単～数原子の厚さの清浄な原子層膜を任意の順序、角度で積層する技術が発達したのに伴い、これまで存在しなかった新規物質を人工的に形成することが可能になり、さまざまな新規物性が明らかになっている。我々は、以下の原子層膜特有の性質に焦点を絞って研究を行っている。

(1) グラフェンのひずみ効果を用いたバンドギャップ生成

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、ディラック方程式に従って運動する。これに関連し、グラフェンの六方格子のひずみはベクトルポテンシャルと同等の効果を持つという不思議な性質がある。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が、これまで実現されてない。我々は、格子ひずみを使ってグラフェンに実用化可能な大きさの伝導ギャップを生成することを目的とした研究を行っている。

今年度は、昨年に引き続き電子線リソグラフィなどの半導体微細加工技術では実現不可能な微細な周期ひずみ構造を形成することを目指し、ポリスチレンとポリメタクリル酸メチルのブロック共重合体(PS-*b*-PMMA)からなる自己組織化膜を用いてグラフェンに周期ひずみ構造を導入することを目指した研究を行った。先行研究を参考にし、ブロック共重合体の準周期構造形成のための条件だしを行った。

(2) グラフェンの自動検出プログラムの開発

高品質なグラフェンはグラファイトの劈開によって得られるが、光学顕微鏡を用いた目視での劈開グラフェンの探索には多大な労力を要する。そこで、探索を効率的に行うために、LabVIEW を用いた自動探索プログラムを作成した。

自動検索プログラムでは、劈開で得られたグラファイト片が多数付着したシリコン基板全面の光学顕微鏡写真（1 センチ角の基板に対し約 1000 枚）を自動的に撮影し、

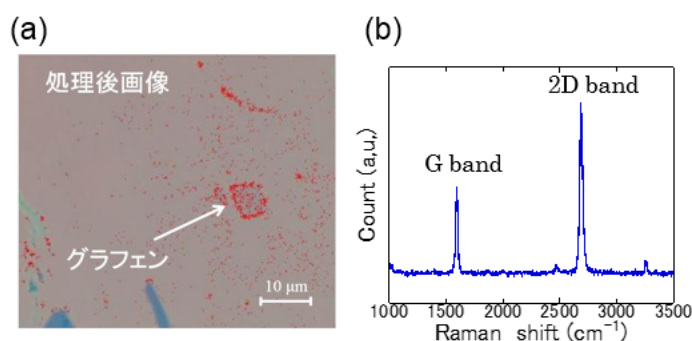


図4：(a)自動探索プログラムによって発見したグラフェン。グラフェンと判定された部分が赤く塗りつぶされる。(b)見つかったグラフェンのラマンスペクトル。

像の RGB 値から、グラフェンの可能性の高い領域を自動的に色分けする。例を図4に示す。ラマン分光によって、色分けされた領域がグラフェンであることを確認した。

(3) グラフェンと超伝導体の接合におけるアンドレーエフ反射

超伝導体と常伝導体の接合に常伝導体側から入射した電子は、接合界面で他の電子とクーパ対を形成して超伝導体に侵入する。この際、電荷保存の要請から常伝導体側にホールが反射される（アンドレーエフ反射）。常伝導体として通常の金属を用いた場合は、運動量保存から反射ホールが入射電子と同じ経路を辿る遡及反射が起きる。一方常伝導体としてグラフェンを用いた場合には、フェルミ準位がディラック点近傍にある時に鏡面反射が起きると理論予測されている。このグラフェン特有の鏡面アンドレーエフ反射は未だ観測されていない。観測が困難である主な原因として、グラフェン上の荷電不純物によるディラック点ゆらぎが挙げられる。このディラック点ゆらぎを抑制するためには、グラフェンの表面をクリーンな状態に保ちながら接合を作製することと、六方晶窒化ホウ素（hBN）でグラフェンを挟み込むことが必要であると考えた。そこで本研究では、鏡面アンドレーエフ反射の観測に向けて、グラフェン/層状超伝導体接合を両面から hBN で挟み込む構造を、エッチングやリソグラフィーを行わずに作製する方法を考案し、実際に試料を作製した。

【3】グラファイト上ヘリウム単原子層薄膜における2次元量子物性（森下）

原子レベルで平坦なグラファイト表面に吸着した単原子層ヘリウム薄膜は、理想的な2次元系を与える。面密度(単位表面積当たりの吸着量)により、吸着構造が多彩に変化することも、この系の特徴である。低面密度領域では大きな零点振動のために、ヘリウム原子は局在せず、流体として振る舞う。面密度を増していくと、原子間のハードコア斥力、吸着ポテンシャルの凹凸、の2つの効果の協力により $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 相と呼ばれる整合相に固化する。さらに面密度を増大させると、ヘリウム4 (⁴He) 薄膜の場合には、domain wall と呼ばれる構造をとると考えられている。

^4He 単原子層膜にごく少量の ^3He を混入しての熱容量測定から、domain wall と呼ばれる、ごく一部の規則的な構造のみが流動性を有する状態となっている可能性を指摘している。これは微細で規則的な制限空間内を運動する ^3He の系を実現していることを意味する。domain wall は1次元的な構造と蜂の巣構造をとることが知られており、 ^3He はそれぞれ1次元 Fermi 流体、2次元 Dirac 粒子系として振る舞うことが期待される。この仮説を検証する意味で、純粋な ^4He 薄膜について水晶マイクロバランス法を用いた動的応答測定により、domain wall の流動性の直接的検出を目指して実験を行っている。 ^4He 薄膜は吸着基盤を振動させた際、低温で摩擦力が減少するために、吸着基盤である graphite から質量が離脱するスリップと呼ばれる現象を示す。 ^4He 単原子層薄膜では 10 K 以上の温度域で既にスリップを生じている。昨年度の実験において、 ^4He 薄膜は domain wall 構造が期待される面密度領域においてのみ、温度の降下とともに、離脱していた質量が振動基盤に再結合し、さらに低温で再び離脱する現象を観測している。このうち、振動基盤に対する質量の再結合は、domain wall 内の流体が超流動相に転移し、スリップする固体部分に対して超流動成分が対向流を生ずることにより、実質的に質量の離脱が抑制されているとのモデルで説明することができる。domain wall 構造の期待される面密度領域でのみ生ずる現象であることも考慮すると、domain wall が流動性を示すとの仮説を非常に強く支持するものであると言える。一方、さらに低温での質量の再離脱現象については、その起源が明らかになっていない。その後の測定により、基盤の振動振幅を増やすほど、再離脱は高温で生ずることが明らかとなった。これは、擾乱を与えるほど低温相への移行が高温で生ずることを意味し、一見不可思議な結果であるが、この結果は低温相への移行が振動によって誘起されているものであることを示している。一方、質量の再離脱を生ずる温度で、振動子のエネルギー散逸はピークを示す。様々な面密度で測定を行った結果、このピークの高さはピークを与える温度に反比例し、さらにドライブ振幅を変えても1本の線に載ることも明らかとなった。この関係が何を意味するのかは不明であるが、質量再離脱現象の起源解明において大きなヒントになるものと考えている。

<学位論文>

(修士論文) 数理物質科学研究科、2019 年 3 月

1. 星直樹：動的応答測定によるグラファイト上単原子層ヘリウム異常比熱の解明

(卒業論文) 物理学類、2019 年 3 月

1. 井上大：メゾスコピック層状超伝導体の微細加工による形成と単一量子渦糸の検出
2. 柴山昇：グラフェンへの周期 2 軸ひずみ導入のための自己組織化ナノ凹凸構造の形成
3. 島田耕作：新奇超伝導近接効果の観測に向けたグラフェン/層状超伝導体接合の作製

<論文>

1. K. Yarimizu, H. Tomori, K. Watanabe, T. Taniguchi, and A. Kanda, “Electron transport in a

bilayer graphene/layered superconductor NbSe₂ junction: effect of work function difference”, J. Phys: Conf. Ser. 969 (2018) 012147 (5 pages).

2. Y. Takane and A. Kanda, “Andreev reflection in a proximity junction of graphene: Influence of a naturally formed pn junction”, J. Phys: Conf. Ser. 969 (2018) 012155 (5 pages).
3. N. Hoshi, D. Inoue, H. Sonoda, D. Yabe, H. Tomori, A. Kanda, “Response of a superconductor NbSe₂ flake to magnetic field detected with small tunnel junctions”, J. Phys: Conf. Ser. in press.
4. H. Tomori, N. Hoshi, D. Inoue, A. Kanda, “Influence of focused-ion-beam microfabrication on superconducting transition in exfoliated thin films of layered superconductor NbSe₂”, J. Phys: Conf. Ser. in press.
5. H. Tomori, N. Hoshi, D. Inoue, A. Kanda, “Influence of microfabrication on superconducting properties of exfoliated thin films of layered superconductor NbSe₂: reactive ion etching”, J. Phys: Conf. Ser. in press.

<著書>

1. A. Kanda and H. Tomori, “Experimental approaches to graphene electron transport for device applications”, in “Physics and Chemistry of Graphene: Nanographene to Graphene 2nd ed.” (edited by T. Enoki and T. Ando), Chapter 3, Pan Stanford Publishing, in press.

<講演>

(国際会議)

1. Hikari Tomori, Akinobu Kanda, “Spatial Distribution of Graphene Lattice Strain Induced with Nanoscale Rods”, 31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2018), Sapporo, Nov. 13-16, 2018.
2. Naoki Hoshi, Dai Inoue, Hikari Tomori, Akinobu Kanda, “Detecting Vortex Penetration and Expulsion in Mesoscopic Thin Layered Superconductor NbSe₂ Using Small Tunnel Junctions”, 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018), Tsukuba, Dec. 12-14, 2018.
3. Hikari Tomori, Naoki Hoshi, Dai Inoue, Akinobu Kanda, “Influence of Microfabrication on Superconducting Properties of Exfoliated Thin Films of Layered Superconductor NbSe₂: Reactive Ion Etching”, 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018), Tsukuba, Dec. 12-14, 2018.
4. Hikari Tomori, Naoki Hoshi, Dai Inoue, Akinobu Kanda, “Influence of Microfabrication on Superconducting Characteristics of Exfoliated Thin Films of Layered Superconductor NbSe₂: Focused Ion Beam”, 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018),

Tsukuba, Dec. 12-14, 2018.

5. (*Invited Talk*) Masashi Morishita, Masatoshi Umemoto, Junko Taniguchi and Masaru Suzuki, “QCM Measurements on Submonolayer ^4He Films on Graphite”, International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (Tokyo, July 26, 2018).

(国内会議)

1. 友利ひかり, 中村和史, 田中貴弘, 神田晶申, 「自己組織化膜を用いたグラフェンへの格子ひずみ導入」, 日本物理学会 2018 年秋季大会, 同志社大学京田辺キャンパス (京都府京田辺市), 2018 年 9 月 9-12 日 (発表 10 日)。10pK301-2 日本物理学会講演概要集第 73 巻第 2 号 pp1295
2. 星直樹、矢部大輔、友利ひかり、渡邊賢司、谷口尚、神田晶申、「層状物質 NbSe₂ 劈開膜の微細加工が伝導特性に与える影響 I: 反応性イオンエッチング」第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 (愛知県名古屋市)、2018 年 9 月 18-21 日 19a-311-11
3. 友利ひかり、星直樹、矢部大輔、渡邊賢司、谷口尚、神田晶申、「層状物質 NbSe₂ 劈開膜の微細加工が伝導特性に与える影響 II: 収束イオンビーム加工」第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 (愛知県名古屋市)、2018 年 9 月 18-21 日 19a-311-12
4. 神田晶申、友利ひかり、星直樹、井上大、「層状超伝導体薄膜の形状加工が超伝導特性に与える影響の評価」、第 26 回渦糸物理国内会議 (福島県いわき市)、2018 年 12 月 3-5 日
5. 友利ひかり、神田晶申、星直樹、井上大、渡邊賢司、谷口尚「層状超伝導体薄膜の形状加工が超伝導特性に与える影響の評価: 収束イオンビーム加工」、第 26 回渦糸物理国内会議 (福島県いわき市)、2018 年 12 月 3-5 日
6. (招待講演) 神田晶申、「層状超伝導体原子層膜を用いた渦糸量子状態操作」、第 11 回九大 2D 物質研究会 (福岡市)、2019 年 2 月 22 日
7. 友利ひかり、星直樹、井上大、神田晶申「超伝導体 NbSe₂ 細線における Bloch nose 的振舞いの観測」、日本物理学会第 74 回年次大会 (九州大学伊都キャンパス)、2019 年 3 月 14-17 日
8. 友利ひかり、星直樹、井上大、渡邊賢司、谷口尚、神田晶申「収束イオンビーム微細加工による NbSe₂ 劈開膜の超伝導転移温度の低下」日本物理学会第 74 回年次大会 (九州大学伊都キャンパス)、2019 年 3 月 15 日
9. 森下將史、梅本匡敏、谷口淳子、鈴木 勝、「グラファイト上ヘリウム単原子層薄膜における動的応答測定 II」, 日本物理学会 2018 年秋期大会 (同志社大学, 2018 年 9 月 10 日)。
10. (シンポジウム講演) 森下將史, 「ヘリウム 4 単原子層膜における domain wall の流動性」, 日本

物理学会第 47 回年会（九州大学, 2019 年 3 月 16 日）.

<外部資金>

1. 神田晶申：科学研究費補助金 新学術領域研究 「電荷／スピンハイブリッド量子科学の研究」（H27～H31）、直接経費 530 万円
2. 森下將史：科学研究費補助金 基盤研究(C)「2次元量子固体の構造操作による量子現象の発現と解明」（H28～H30）、直接経費 350 万円
3. 神田晶申：筑波大学研究基盤支援プログラム（タイプB）「メゾスコピック超伝導体における渦糸状態操作と量子技術への展開」、184 万円