

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：32601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03547

研究課題名(和文) 鉄カルコゲナイド単結晶への電気化学的制御による新奇ジョセフソン効果の研究

研究課題名(英文) Emergence and electrochemical control of Josephson effects in microfabricated single crystals of iron chalcogenide superconductors

研究代表者

北野 晴久 (Kitano, Haruhisa)

青山学院大学・理工学部・教授

研究者番号：00313164

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：鉄カルコゲナイド超伝導体は、鉄系超伝導体の最小構成単位となる超伝導層のみ含み、多彩な新奇物性を示す。本研究では、高品質単結晶への微細加工と電気化学的制御を用い、この系に固有な新奇ジョセフソン効果を探査した。微小ブリッジ部の断面積を制御し、磁束量子の発生を抑え、電流印加に伴う超伝導電子対の臨界速度を決定する対破壊電流密度の測定に成功した。さらに、微小接合素子の接合面積を1平方マイクロメートル未満にまで縮め、電流増加に伴う非平衡ジョセフソン電流の増大効果を観測し、電気化学的手法を用いてジョセフソン接合特性を調整できる可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来のジョセフソン効果の研究と応用は、銅酸化物系の固有ジョセフソン効果を除き、超伝導薄膜から作製される素子に限定されてきたが、本研究成果は、高品質単結晶への微細加工と電気化学処理により、ジョセフソン素子が作製できる可能性を示した。また、超伝導輸送電流の理論的限界値を与える対破壊電流密度も、ごく一部の薄膜試料に対する測定に限定されてきたが、本研究成果は高品質な単結晶試料に対して評価できることを実証した。今後、時間反転や空間反転などの対称性が破れた新奇超伝導状態における超伝導電子対の臨界速度を検証するための道が切り拓かれた。

研究成果の概要(英文)：Iron chalcogenide superconductors have minimal superconducting units and show various quantum-mechanical phenomena. We investigate the emergence and control of Josephson effects, intrinsic to this system, by using the microfabrication and electrochemical methods applied to high-quality single crystals.

We succeed in measuring the depairing current density, which determines the critical velocity of the superconducting Cooper pairs, by reducing the cross sectional area of narrow bridge devices and preventing the generation of flux quantum. Furthermore, we observe the dynamical enhancement of non-equilibrium Josephson current in the current-biased short bridge devices with the lateral area less than 1 squared micrometer. This suggests a possibility of the electrochemical adjustment of Josephson junction properties.

研究分野：物性物理、特に超伝導の基礎と応用

キーワード：鉄カルコゲナイド 対破壊電流密度 ジョセフソン効果 スピン軌道相互作用 電気化学

### 1. 研究開始当初の背景

鉄系超伝導体は、銅酸化物系に次ぐ高い転移温度を示す高温超伝導体として精力的に研究されてきた。銅酸化物系と同様に、強い電子相関が本質的に重要である一方、単一バンド描像で記述できた銅酸化物系とは異なり、複数バンドが電気伝導に寄与し、電子のおよび正孔のフェルミ面の両方を考慮すべき複雑な多バンド系超伝導を示す。その中で、Fe(Te,Se)やFeSeなどの鉄カルコゲナイド超伝導体は、発見当初、鉄系超伝導体の中で最も単純な結晶構造を持つことで注目され(図1参照)、研究開始時には、その特異な物性が強い関心を集めていた。

具体的には、電気化学的インターカレーション(M. Burrard-Lucas *et al.*, Nat. Mater. 12 (2012) 15)やイオン液体による電気二重層(以下、EDL)構造を利用した電界キャリア注入(J. Shiogai *et al.*, Nat. Phys. 12 (2016) 42)による超伝導転移温度 $T_c$ の急激な上昇と単原子層薄膜における界面高温超伝導の出現(S. He *et al.*, Nat. Mater. 12 (2013) 605)、強いスピン軌道相互作用(以下、SOIと略記)に由来するトポロジカル量子物性の出現に関する理論予測(N. Hao and J. Hu, Phys. Rev. X 4 (2014) 031053)、さらに従来のBCS機構による運動量空間での弱結合電子対の凝縮と実空間での強束縛電子対形成による Bose-Einstein 凝縮(BEC)の交差領域(BCS-BEC 交差領域)への接近(K. Okazaki *et al.*, Sci. Rep. 4, (2014) 4109)などが報告された。本研究では、これら新奇超伝導現象の宝庫とも言える鉄カルコゲナイド超伝導体に着目した。

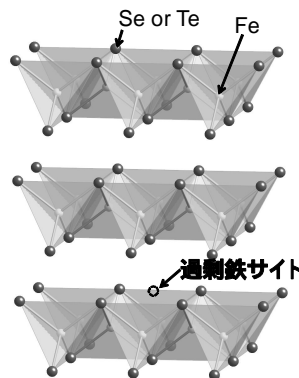


図1 鉄カルコゲナイド超伝導体

### 2. 研究の目的

本研究では、研究代表者が確立した鉄カルコゲナイド超伝導体単結晶試料への微細加工と電気化学処理を組み合わせた実験手法を駆使し、鉄カルコゲナイド超伝導体の多バンド系超伝導に起因する新奇ジョセフソン効果の探査とまだ十分に理解されていない超伝導状態の解明を目指した。具体的には、以下の2つを集中的に調べることを当初の目的とした。

(1) 本研究開始以前の研究で観測しながら詳細が未解明であった、Fe(Se,Te)面間接合素子における固有ジョセフソン接合的挙動の起源を解明する。図1に示すFe(Se,Te)は、他の層状超伝導体とは異なり、トンネル障壁層を結晶構造に持たないが、鉄カルコゲナイド四面体層は界面高温超伝導の舞台でもあり、超伝導状態における面間方向の超伝導相関の解明が重要である。

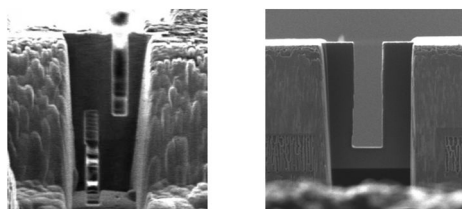
(2) 単結晶へのエッチングで得られる極薄膜部を微細加工してEDL構造を有する微小接合素子を作製し、ゲート電位によってトンネル障壁特性を制御可能な面内型ジョセフソン接合素子のトンネルスペクトロスコピー解析から、多バンド系超伝導に特有な新奇ジョセフソン現象や強いSOIの影響を調べる。

### 3. 研究の方法

本研究を開始する初年度に、研究代表者が主催する研究室の新助教として、鉄カルコゲナイド超伝導体単結晶の作製と高品質化に優れた技術を持つ孫悦氏を迎え、本研究の研究分担者に加えた。これに伴い、本研究に用いる単結晶試料に対して大幅な改善がなされた。

具体的には、当初予定していたLi系スペーサ分子の電気化学的インターカレーションの実施を見送り、代わりにFe(Te,Se)単結晶の過剰鉄除去として、従来の(微細加工+電気化学処理)の手法に加え、単結晶成長後のTe添加熱処理と酸素中熱処理の2つを実施し、過剰鉄の除去効果を格段に高めた。さらに、研究開始以前には、電極作製が困難な微小単結晶しか得られなかったFeSe単結晶の大型化に成功すると共に、Fe(Te,Se)のFeサイトをCoで一部置換した(Fe,Co)(Te,Se)単結晶の作製と過剰鉄除去にも成功した。

得られたFe(Te,Se)とFeSeの2種類の単結晶試料に対して、集束イオンビーム(以下、FIB)装置(JEOL JEM-4010 または、Hitachi High-Tech MI4050)を用いて、面間方向と面内方向の2種類の微小ブリッジ素子を作製した(図2参照)。後述する対破壊電流密度の測定には、ブリッジ断面の電流分布の一樣化と磁束量子の侵入排除に向け、断面サイズを系統的に変えた素子を作製した。一方、面間微小接合素子におけるジョセフソン効果の発現を追求した素子においては、接合断面積の縮小化に取り組むため、透過型電子顕微鏡用の試料作製で用いられてきたFIBピックアップ手法とFIBアシスト堆積法を組み合わせ、新しい素子作製法を開発した。



面間ブリッジ素子 面内ブリッジ素子

図2 FIB 微細加工素子

作製した素子は、無冷媒冷凍機(仁木工芸社 LTS205D-TL50)を用い、微小ブリッジ部や微小

接合部を破損しないよう、0.5K/min 以下の温度勾配で徐冷し、微小電流下の直流電気抵抗とパルス電流下の電流電圧（以下、 $I-V$ ）特性を測定した。さらに、ジョセフソン接合素子のトンネルスペクトロスコピーを調べるため、2つの手法による微分伝導度スペクトルの測定系を立ち上げた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 面間接合素子における固有ジョセフソン接合的挙動の起源解明

Fe(Te,Se)単結晶に対して図2に示す面間微小ブリッジ素子を作製し、その $I-V$ 特性を測定すると、低減衰型ジョセフソン接合に特徴的なヒステリシス挙動が観測された（S. Ayukawa *et al.*, JPS Conf. Proc., 1 (2014) 012123）。この振舞いは、銅酸化物超伝導体などの固有ジョセフソン接合系のうち、超伝導層間の結合が強い物質（例えば、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  など、Y. Kubo *et al.* J. Appl. Phys. 109 (2011) 033912）で観測される挙動と類似し、別の鉄系超伝導体  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$  の同様な面間微小ブリッジ素子の $I-V$ 特性でも類似の挙動（H. Kashiwaya *et al.*, Appl. Phys. Lett. 96 (2010) 202504）が報告されたことから、Fe(Te,Se)が固有ジョセフソン接合系を形成する可能性が示唆された。しかしながら、Fe(Te,Se)の結晶構造には超伝導層しか含まれず、結晶中の何がトンネル障壁層の役割を果たすのか未解明であった。

我々は、試料合成時に導入される過剰鉄の存在に着目し、微細加工後に行う電気化学処理により局所的かつ系統的に過剰鉄を減少させる手法と単結晶成長後のTe添加熱処理により過剰鉄を大幅に減少させる手法の2つを用いて、微小ブリッジ素子の $I-V$ 特性における残留過剰鉄の影響を検証した。その結果、残留過剰鉄の減少と共に履歴領域が拡大すること、および後者の手法で過剰鉄を大幅に減少させた高品質単結晶を用い、ブリッジ側面部にスリット（溝）がない面内ブリッジ素子を作製し、その $I-V$ 特性が巨大履歴を示すことを発見した。これは、ヒステリシス挙動が超伝導層間のジョセフソン結合と無関係であり、むしろ電圧状態で発生するジュール熱と相関することを強く示唆する。我々は、面間微小ブリッジに対して、繰り返し周波数を系統的に変えながら $I-V$ 特性を測定し、周波数増大と共に履歴領域が縮小することを確認し、 $I-V$ 特性から求めた弦抵抗  $V(I)/I$  (chordal resistance) の電流依存性が直流電気抵抗の温度依存性とよく一致することを突き止めた。

以上より、Fe(Te,Se)は固有ジョセフソン接合系を形成せず、 $I-V$ 特性に現れる履歴挙動は、電圧状態で発生するジュール熱により微小ブリッジが局所的に温度上昇する効果に起因するとの結論を得た。この結果、電圧状態にスイッチする直前の電流値は、ジョセフソン電流よりもむしろ超伝導ブリッジの臨界電流と関係することが判明した。

##### (2) 対破壊電流極限への到達

Fe(Te,Se)単結晶の面間微小ブリッジ素子の $I-V$ 特性から求めた臨界電流密度は、バルク単結晶における磁化測定から拡張 Bean 模型を用いて得られる面内臨界電流密度よりも1桁程度大きいことが判明した。有限磁場下の磁化測定から求められる臨界電流密度は、第2種超伝導体の混合状態において試料内に侵入する磁束量子が、ピン止め力に打ち勝って運動し始めるデビニング臨界電流密度に相当することを考慮すると、ゼロ磁場中の $I-V$ 特性から直接測定された臨界電流密度は、通常は測定困難と考えられる、超伝導電流を輸送する超伝導電子対が臨界速度を超えて破壊される対破壊臨界電流密度に対応することが強く示唆される。

GL理論における対破壊電流密度は、 $T_c$ 近傍で  $j_c \propto (1 - T/T_c)^{3/2}$  のような温度依存性を示し、我々の結果は  $0.8T_c \leq T \leq T_c$  の範囲でこれとよく一致する（図3参照）。さらに、GL理論の対破壊電流密度の表式 ( $j_c = c\phi_0/12\sqrt{3}\pi^2\xi(0)\lambda(0)^2$ ) と別の実験から報告された面間方向のコヒーレンス長  $\xi_c(0)$  と磁場侵入長  $\lambda_c(0)$  を用いて、面間対破壊電流密度の理論値 ( $j_c(0) \sim 2 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup>) を求め、熱処理によって過剰鉄を十分に除去した単結晶に対する測定結果 ( $1.3 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup>,  $T = 0.3T_c$ ) とよく整合することを確認した。

これに関連して、薄くて幅の狭いブリッジ素子（幅  $w$ 、高さ  $h$ ）における実効的な磁場侵入長を表す Pearl 長  $\Lambda = (2\lambda^2/h)$  がブリッジ幅  $w$  よりも小さい ( $\Lambda > w$ ) 場合、ブリッジ内の超伝導電流密度がほぼ一様となり、かつ電流印加に伴う磁束量子の侵入を回避でき、結果として対破壊電流極限に到達できることが、微細加工されたYBCO薄膜素子で報告された（S. Nawaz *et al.*, Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 167004）。我々は、電気化学的手法を用いて過剰鉄の残留量を系統的に変えながら、 $\Lambda > w$  の条件を満たす面間微小ブリッジ素子を複数作製し、その対破壊電流密度を決定した。その結果、残留過剰鉄の減少と共に  $T_c$  が上昇すると、対破壊電流密度が指数関数的に急増大することが分かった。これは、過剰鉄が強い磁気モーメントを持ち、スピン-重項の超伝導電子対を強く破壊する役割を担っていることを強く示唆する。

従来はごく一部の薄膜試料にだけ実施されてきた対破壊電流密度測定が、我々の手法により、高品質単結晶試料に適用できることが示されたことを受け、上記の手法を面内ブリッジ素子に適用し、対破壊電流密度の異方性を決定することを新たな研究目標に加えた。しかしながら、へき

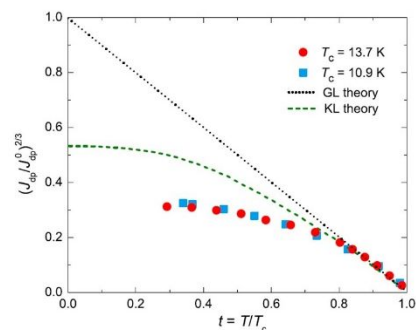


図3 面間対破壊電流密度

開面への垂直加工だけで作製される単純な面内ブリッジ素子では、 $\Lambda > w$ の条件を満たすのはほぼ不可能なことが判明し、図2に示す、ブリッジ側面部への追加加工で面内ブリッジの高さ $h$ を制御する手法を採用した。さらに、面間の対破壊電流密度よりも数倍大きい電流密度を測定する場合、電圧状態のジュール熱も増大するため、測定中の素子特性劣化や破損が頻繁に発生する事態となった。このため、パルス波形が出力できる交流電流源 (Keithley 6221) とナノボルトメーター (Keithley 2182) を専用トリガリングで接続し、100  $\mu$ s のパルス幅と3 s の繰返し周期で間欠的にパルス電流を印加し、30  $\mu$ V の閾値電圧で臨界電流を決定する測定系を構築し、可能な限りジュール熱を抑制する工夫を行った。

ブリッジ側面部への追加加工によって同一素子のブリッジ高さ $h$ を系統的に変えることに成功し、 $w/\Lambda > 10 \rightarrow w/\Lambda \sim 2$ まで条件が改善されると、面内方向の臨界電流密度が系統的に増大することを確認した。さらに、低温側で破綻するGL理論を微視的な超伝導ギャップ方程式の数値計算によって改善するKL (Kupriyanov and Lukichev) 理論から計算される対破壊電流密度の温度依存性と $0.5T_c \leq T \leq T_c$ の温度範囲でよく一致する結果を得た。 $w/\Lambda \sim 2$ という素子形状に由来する電流密度の弱い空間分布のため、絶対値に関する曖昧さは残るが、少なくとも $T \sim 0.5T_c$ までは、面内方向も対破壊電流極限に到達していると考えられる。面間方向の場合と同様に過剰鉄の残留量を変えた複数素子を用いて、最低温での対破壊電流密度の異方性を評価すると、磁場侵入長の異方性 (M. Bendele *et al*, Phys Rev B 81 (2010) 224520) とほぼ同じ値 ( $j_c^{ab}/j_c^c \sim \lambda_c/\lambda_{ab} \sim 3$ ) を示すことが判明した。一方、 $\Lambda > w$ の条件を満たす素子では、FIB追加加工時のダメージと考えられる超伝導特性の劣化と臨界電流密度の低下が判明した。今後、ArイオンミリングによるFIBダメージ層の除去や機械式剥離法による単結晶薄膜の利用など、 $\Lambda > w$ の条件を満たす高品質面内ブリッジ素子の作製に取り組んでいく必要がある。

### (3) Fe(Te,Se)単結晶における電気抵抗率の異方性と残留過剰鉄の寄与

上記(1)と(2)の研究成果を得る過程で、Fe(Te,Se)単結晶の面間ブリッジ素子の常伝導電気抵抗の温度依存性が過剰鉄の残留量に強く依存することが判明した。銅酸化物系など異方性の大きい層状超伝導体の場合、面内と面間の電気抵抗率の同時測定はほぼ不可能であり、電極配置を変えた2種類の単結晶試料を用意するのが一般的である。しかしながら、Fe(Te,Se)の場合、試料間で過剰鉄残留量が異なるだけでなく、同一試料でも残留過剰鉄の試料内分布が残る可能性があるため、同一試料かつ測定領域に明確な重複がある状況下で電気抵抗率の異方性を調べるべきである。幸い、図2に示す面間微小ブリッジ素子ならば、ブリッジ側面部へ溝加工をする前の測定から面内の情報が得られ、溝加工後、面内測定で調べた領域の一部の面間応答が調べられる。超伝導臨界電流の測定とは異なり、常伝導状態では微小電流下の微小電圧測定のため、微小ブリッジ部の電流分布はほぼ一様と見なせる。このため、電圧端子間のFIB加工された部分を複数の直方体ブロックに分解し、測定結果を各ブロックの電気抵抗の合成抵抗として表すことにより、同一部分の面内電気抵抗率 $\rho_{ab}$ と面間電気抵抗率 $\rho_c$ を決定することが出来る。

本研究の開始以前に、この手法による電気抵抗率の異方性を評価したが(寛大輝他, 日本物理学会2014年秋季大会, 9aPS-113)、当時は過剰鉄の除去が必ずしも十分ではなかった。本研究では、熱処理時のTe添加量を系統的に変えて過剰鉄残留量を調節した3種類の単結晶試料を用い、上記の方法で電気抵抗率の異方性を調べた。その結果、残留過剰鉄が多い場合、 $T_c$ 直上での異方性が $\rho_c/\rho_{ab}(T_c) \sim 50 - 100$ となった以前の結果を再現し、残留過剰鉄が減少すると $\rho_c/\rho_{ab}(T_c) \lesssim 20$ まで減少することが分かった。すなわち、過剰鉄は面内だけでなく面間に対しても電気抵抗の強い散乱源として働くことが判明した。

本研究で用意した単結晶試料と同時に熱処理され、残留過剰鉄量がほぼ同じと見なせる別の単結晶試料に対して、50 T以上の強磁場中で上部臨界磁場を測定し(中国、Wuhan National High Magnetic Field Centerとの国際共同研究)、コヒーレンス長の異方性 $\xi_{ab}/\xi_c$ が評価された。これを我々の結果と比較し、Drude理論とGL理論を組み合わせた議論から、鉄カルコゲナイド超伝導体で未解決の超伝導状態と常伝導状態の異方性不一致の原因を突き止めた。常伝導電気抵抗に寄与する散乱時間が比較的大きな異方性( $T_c$ 直上で $\tau_{ab}/\tau_c \sim 8$ )を示すことが原因である。さらに、この異方性は過剰鉄の残留量に依存しないことが判明した。散乱時間が異方性を示す起源は未解明だが、少なくとも過剰鉄による散乱は本質的に等方的であり、過剰鉄が結晶中でクラスター化してもその磁性は常磁性的であることが示唆された。

同様な手法を用いてFeSe単結晶の電気抵抗率の異方性を評価し、Fe(Te,Se)よりも強い異方性( $\rho_c/\rho_{ab}(T_c) \lesssim 100$ )を観測した。これは、第一原理計算によるバンド計算の予測とも一致し、FeSeの方がFe(Te,Se)よりも電子状態の擬2次元性が強いことが確認された。

### (4) 面間微小接合素子におけるジョセフソン効果の発現

本研究開始時に検討された、Fe(Te,Se)単結晶における固有ジョセフソン接合系の可能性は、研究成果(1)において完全に払拭された。したがって、本研究が目指す、多バンド系超伝導に起因する新奇ジョセフソン効果の探査には、微小接合構造を人工的に導入するジョセフソン接合の作製が重要となる。この場合、当初予定していた面内接合よりも、臨界電流密度の小さい面間接合の方が、ジョセフソン効果の発現に有利であると予想された。このため、研究計画を一部見直し、面間ブリッジ素子に対するブリッジ断面の縮小化に取り組んだ。しかしながら、従来の面間ブリッジ素子(図2参照)の場合、素子基板からやや離れた結晶中の、最も機械的応力が集中

する部分に微小ブリッジが形成される。このため、ブリッジ断面を縮小すると、極低温までの降温過程で発生する熱収縮歪で素子が破損する事故が多発した。

この問題を回避するには、薄膜ベースの微小接合素子と同様に、素子基板の直上で基板と平行に微小ブリッジ部分を形成すべきであると考え、透過型電子顕微鏡観察に用いる微小結晶片 (lamella) を取り出す場合と同様に、結晶の  $c$  軸に平行な面を持つ微小結晶片を FIB で切り出し、Si 基板上に取り出す手法を採用した。研究開始 2 年目に導入された新 FIB 装置 (Hitachi High-Tech MI4050) では、従来の C デポジション (カーボン堆積) 銃に加え、Pt デポジション銃が搭載され、取り出した微小結晶片への Pt 配線が可能になった。

これにより、ブリッジ断面積を最小  $0.03 \mu\text{m}^2$  まで縮小した面間微小接合素子の作製と降温時の素子破損事故の回避に成功した。さらに、FIB 装置内の試料ステージ回転機構を利用して、ブリッジ部分の加工に用いられる矩形加工枠を 45 度回転させて、ブリッジ部分に局所的くびれ構造を作製し、接合長が  $\xi$  程度になると形成されるジョセフソン接合の実現を目指した。接合部 (すなわち、ブリッジ内のくびれ部分) の断面積  $S$  が  $1 \mu\text{m}^2$  以上の場合、対破壊電流密度測定と同様に、 $I-V$  特性に大きなヒステリシスが観測されたが、 $S < 1 \mu\text{m}^2$  を満たす微小接合素子では、 $I-V$  特性が定性的に変化した (図 4 (a) 参照)。この場合の臨界電流  $I_c$  の温度依存性をジョセフソン接合素子の解析で多用される Ambegaokar-Baratoff の理論式でフィッティングした結果、STM で観測された超伝導ギャップ値よりもやや小さいギャップ値  $\Delta(0)$  と実測よりも 1 桁程度小さい常伝導抵抗値  $R_n$  を用いれば、 $I_c(T)$  の実験結果を再現できることが判明した (図 4 (b) 参照)。

$I-V$  特性が定性的に変化する原因を追究した結果、この  $I-V$  特性は、非常に短い接合部で生じる非平衡超伝導現象による一種の超伝導増強効果として説明できることが分かった。この効果では、臨界電流近傍の低電圧領域 (例えば、 $\tau_E$  を非弾性散乱時間として、 $V \ll \hbar/2e\tau_E$ ) で、実際の  $R_n$  よりも十分小さい弦抵抗を持つ非線形電圧状態が発生し、我々が観測した実測よりも約 1 桁小さい  $R_n$  で再現される  $I_c(T)$  の結果を良く説明する。すなわち、 $S < 1 \mu\text{m}^2$  を満たす、非常に短い面間微小接合素子では、ジョセフソン効果が部分的に発現することが示された。

さらに、研究成果 (3) で得られた FeSe の強い擬二次元性を考慮し、FeSe の面間微小接合素子を同様な手法で作製し、その  $I-V$  特性を評価した。予想通り、 $S > 1 \mu\text{m}^2$  の接合素子において Fe(Te,Se) よりも約 1 桁小さい  $I_c R_n$  積を得たが、 $S < 1 \mu\text{m}^2$  の接合素子では Fe(Te,Se) に比べて明確な  $I-V$  特性の定性的変化は観測されず、 $I_c R_n$  積の減少も Fe(Te,Se) に比べて非常に小さかった。FeSe 素子の場合、ブリッジ部に局所的くびれ部を作っていないこと、Fe(Te,Se) に比べて  $T_c$  が小さく、相対的に高温側のみ観測していることなど、いくつか考慮すべき差異が残るが、現時点では Fe(Te,Se) の方がジョセフソン接合の実現に有利と判断される。

当初の研究計画に含まれていた、電気化学エッチングや EDL 構造を用いた接合特性の制御については、当初、微細加工と組み合わせた局所的かつ電気化学的な過剰鉄除去 (K. Okada *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. 57 (2018) 040305) で用いられたイオン液体 (BMITFB) で予備実験を進めたが、エッチング効果や電界印加効果を一切確認できなかったため、上記 (2) および (3) で挙げた研究課題の遂行を優先させた。しかしながら、本研究最終年度において、別のイオン液体 (DEME-TFSI) を用い、顕著なエッチング効果が確認された。上述の Fe(Te,Se) 面間微小接合素子の場合、FIB 加工による接合面積の制御だけで理想的なジョセフソン接合特性を得るのは非常に難しいことが判明したが、今後、電気化学的エッチングと EDL 構造による電界印加効果を組み合わせれば、接合特性を微調整できる可能性がある。

最後に、ジョセフソン接合素子のトンネルスペクトロスコーピー実施に向け、2 つの手法による微分伝導度スペクトルの測定系を立ち上げ、Fe(Te,Se) と Pt 間の超伝導/常伝導界面における微分伝導度スペクトルを測定した。本研究実施期間中に、Fe(Te,Se) がトポロジカル表面超伝導体と見なせる (P. Zhang *et al.* Science 360 (2018) 182) ことが報告され、マヨラナ準粒子束縛状態の検出可能性に関する検討が始まった。Fe(Te,Se)/Pt 接合の微分伝導度スペクトルにもその痕跡が観測される可能性があり、現在、観測条件について精査中である。

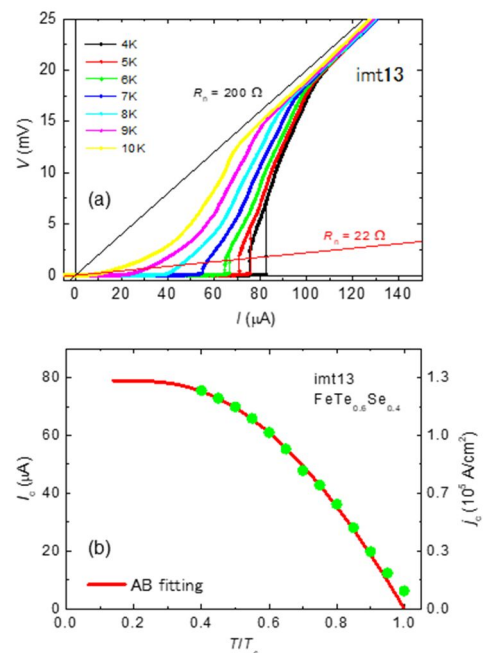


図 4 (a) 面間微小接合素子の  $I-V$  特性  
(b) 臨界電流の温度依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sun Yue, Ohnuma Haruka, Ayukawa Shin-ya, Noji Takashi, Koike Yoji, Tamegai Tsuyoshi, Kitano Haruhisa	4. 巻 101
2. 論文標題 Achieving the depairing limit along the c axis in Fe <sub>1+y</sub> Te <sub>1-x</sub> Se <sub>x</sub> single crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134516
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.134516	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sun Yue, Pan Yongqiang, Zhou Nan, Xing Xiangzhuo, Shi Zhixiang, Wang Jinhua, Zhu Zengwei, Sugimoto Akira, Ekino Toshikazu, Tamegai Tsuyoshi, Kitano Haruhisa	4. 巻 103
2. 論文標題 Comparative study of superconducting and normal-state anisotropy in Fe <sub>1+y</sub> Te <sub>0.6</sub> Se <sub>0.4</sub> superconductors with controlled amounts of interstitial excess Fe	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224506
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.224506	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Takamaro Miyazawa, Naoki Tadokoro, Shumpei Horikawa, Tsuyoshi Tamegai, Yue Sun and Haruhisa Kitano	4. 巻 -
2. 論文標題 Focused ion beam microfabrication of single-crystal nanobridge toward Fe(Te,Se)-based Josephson device	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計27件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 峯直輝, 孫悦, 堀川舜平, 平祥樹, 為ヶ井強, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Te,Se)単結晶の面内微小ブリッジ素子の作製と対破壊電流密度測定
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1 . 発表者名 Y. Sun, H. Ohnuma, S. Ayukawa, T. Noji, Y. Koike, T. Tamegai, H. Kitano
2 . 発表標題 Achieving the depairing limit along c-axis in Fe(Te, Se) single crystals
3 . 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 T. Miyazawa, N. Tadokoro, T. Tamegai, Y. Sun, H. Kitano
2 . 発表標題 Focused ion beam microfabrication of single-crystal nanobridge toward Fe(Te,Se)-based Josephson device
3 . 学会等名 The 33rd International Symposium on Superconductivity (ISS2020) (国際学会)
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 Y. Sun, N. Mine, T. Miyazawa, T. Tamegai, H. Kitano
2 . 発表標題 Depairing $J_c$ and its anisotropy of Fe(Te,Se) single crystals
3 . 学会等名 The 33rd International Symposium on Superconductivity (ISS2020) (国際学会)
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 Y. Sun, T. Miyazawa, T. Tamegai, H. Kitano
2 . 発表標題 Out-of-plane transport property of FeSe single crystal
3 . 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4 . 発表年 2021年

1. 発表者名 深山雄基, 加藤輝, 平祥樹, 堀川舜平, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 Fe <sub>1-x+y</sub> Co <sub>x</sub> Te <sub>0.6</sub> Se <sub>0.4</sub> 単結晶における過剰鉄除去とCo置換効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮沢貴麿, 田所直紀, 為ヶ井強, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 FIBピックアップ法による鉄カルコゲナイド超伝導体の面間ナノブリッジ素子の作製と電流電圧特性
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神保恒太郎, 峯直輝, 孫悦, 為ヶ井強, 北野晴久
2. 発表標題 BaFe <sub>2</sub> (As <sub>1-x</sub> P <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> 単結晶における面間微小ブリッジの作製と臨界電流密度測定
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 峯直輝, 孫悦, 堀川舜平, 平祥樹, 為ヶ井強, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Te,Se)単結晶の面内微小ブリッジ素子の作製と対破壊電流密度測定
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 Y. Sun, H. Ohnuma, S. Ayukawa, T. Noji, Y. Koike, T. Tamegai, H. Kitano
2. 発表標題 Achieving the depairing limit along c-axis in Fe(Te, Se) single crystals
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Miyazawa, N. Tadokoro, T. Tamegai, Y. Sun, H. Kitano
2. 発表標題 Focused ion beam microfabrication of single-crystal nanobridge toward Fe(Te,Se)-based Josephson device
3. 学会等名 The 33rd International Symposium on Superconductivity (ISS2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Sun, N. Mine, T. Miyazawa, T. Tamegai, H. Kitano
2. 発表標題 Depairing $J_c$ and its anisotropy of Fe(Te,Se) single crystals
3. 学会等名 The 33rd International Symposium on Superconductivity (ISS2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮沢貴磨, 田所直紀, 為ヶ井強, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 FIBピックアップ法による鉄カルコゲナイド超伝導体の面間ナノブリッジ素子の作製と電流電圧特性
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 深山雄基, 加藤輝, 平祥樹, 堀川舜平, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 Fe <sub>1-x</sub> Co <sub>y</sub> TeO <sub>0.6</sub> Se <sub>0.4</sub> 単結晶における過剰鉄除去とCo置換効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Sun, T. Miyazawa, T. Tamegai, H. Kitano
2. 発表標題 Out-of-plane transport property of FeSe single crystal
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 峯直輝, 大沼遥, 孫悦, 堀川舜平, 野地尚, 小池洋二, 為ヶ井強, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Te,Se)単結晶微小ブリッジに対する電気化学的過剰鉄制御と対破壊電流密度測定
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮沢貴磨, 堀川舜平, 為ヶ井強, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Te,Se)単結晶微小ブリッジを用いた面間ジョセフソン接合素子の作製
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sun Yue, Horikawa Shunpei, Kitano Haruhisa, and Tamegai Tsuyoshi
2. 発表標題 Revisiting the annealing effect of $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ single crystals
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sun, N. Mine, T. Miyazawa, H. Ohnuma, T. Noji, Y. Koike, T. Tamegai, and H. Kitano
2. 発表標題 Interlayer Charge Dynamics of High-Quality $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ Single Crystals in the Normal and Superconducting States
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sun, H. Ohnuma, S. Ayukawa, T. Noji, Y. Koike, T. Tamegai, H. Kitano
2. 発表標題 Achieving the depairing limit along c-axis in $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ single crystals
3. 学会等名 第27回渦糸物理ワークショップ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮沢貴磨, 田所直紀, 為ヶ井強, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 ピックアップ法による鉄カルコゲナイド微小試料の作製と面間微小ブリッジの電流圧特性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 峯直輝, 孫悦, 堀川舜平, 平祥樹, 為ヶ井強, 北野晴久
2. 発表標題 アニール処理されたFe(Te,Se)単結晶における過剰鉄除去効果と微小ブリッジによる面内臨界電流密度測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Sun, H. Ohnuma, S. Ayukawa, T. Noji, Y. Koike, T. Tamegai, H. Kitano
2. 発表標題 Achieving the depairing limit of iron chalcogenide superconductors
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大沼遥, 岡田一宏, 高木友宏, 野地尚, 小池洋二, 為ヶ井強, 鮎川晋也, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Se,Te)単結晶における電気化学的過剰鉄の制御と固有ジョセフソン接合的挙動の研究
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大沼遥, 岡田一宏, 高木友宏, 野地尚, 小池洋二, 鮎川晋也, 為ヶ井強, 孫悦, 北野晴久
2. 発表標題 Fe(Se,Te)単結晶の面内微小接合素子の作製と電気化学的キャリア制御
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sun Yue, Ohnuma Haruka, Mine Naoki, Kitano Haruhisa, Tamegai Tsuyoshi
2. 発表標題 Superconducting and normal state anisotropy of Fe(Te,Se) single crystals
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大沼遥, 孫悦, 峯直輝, 野地尚, 小池洋二, 為ヶ井強, 鮎川晋也, 北野晴久
2. 発表標題 FeTexSe1-x単結晶への微細加工素子を用いた対破壊電流密度測定
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

青山学院大学工学部物理科学科・北野研究室ホームページ <a href="http://www.phys.aoyama.ac.jp/~w3-kitano/index.html">http://www.phys.aoyama.ac.jp/~w3-kitano/index.html</a>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	孫悦  (Sun Yue)  (30824180)	青山学院大学・工学部・助教    (32601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
中国	WHMFC	Southeast University		