

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：82401

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20362

研究課題名（和文）NbSe₂原子層の超伝導状態に現れる非従来性研究課題名（英文）Unconventional nature of superconducting NbSe₂ atomic layers

研究代表者

成塚 政裕（Masahiro, Naritsuka）

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：20960173

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：層状超伝導体NbSe₂を対象に、原子層までの薄膜化や異種積層が超伝導状態に与える影響を明らかにすることを目的に研究を行った。分子線エピタキシー(MBE)と走査型トンネル顕微鏡分光(SI-STM)を組み合わせることにより、グラフェン上に成長したNbSe₂には自然と層間にひねり角度が導入され、ひねり角度に応じて超伝導状態が変化することを見出した。ひねり積層試料では、超伝導ギャップ内に残留状態がみられ、その起源はグラフェンとNbSe₂のフェルミ面の重なりが生じる波数において超伝導近接効果が生じ、結果としてNbSe₂の超伝導ギャップ内に生じた低エネルギー励起であると示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、NbSe₂単層膜とグラフェンのひねり積層が超伝導状態に与える影響を明らかにすることに成功した。特に、運動量空間でのフェルミ面の重なりを通じた超伝導近接効果を提案しており、積層のひねり角度を変えることで超伝導状態を連続的に調節できる可能性を示唆している。超伝導ツイストロニクスと呼ぶべき本研究成果は、数多く知られる層状物質の超伝導状態に適用できる新たな知見を提供し、今後の2次元超伝導体の新たな制御方法の指針となる重要な結果といえる。

研究成果の概要（英文）：The research aimed to elucidate the effects of thinning down to atomic layers and hetero-stacking on the superconducting state of the layered superconductor NbSe₂. By combining molecular beam epitaxy (MBE) and scanning tunneling microscopy spectroscopy (SI-STM), it was found that the superconductivity changes by the twist angle between NbSe₂ and graphene layers, which is naturally introduced during growth. In the twisted bilayer samples, residual states were observed within the superconducting gap. The origin of these states was shown to be low-energy excitations in NbSe₂, resulting from the superconducting proximity effect occurring at wave numbers where the Fermi surfaces of graphene and NbSe₂ overlap.

研究分野：物性実験

キーワード：超伝導 原子層薄膜 ツイストロニクス 走査型トンネル顕微鏡 分子線エピタキシー

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

3次元的な層状超伝導体を原子層程度まで薄くすること、異種物質と接合することにより元々の従来型超伝導状態とは質的に異なる超伝導状態が発現しうる。その代表例としてセレン化ニオブ(NbSe_2)の原子層薄膜における回転対称性の破れた超伝導状態が挙げられる。この系の回転対称性の破れは、薄膜化に伴う構造や電子状態の変化が重要であると考えられる。しかしながら、原子層薄膜の清浄表面を計測する難易度から、超伝導状態の電子状態がどのように影響を受けているかは明らかになっていなかった。

2. 研究の目的

本研究では、バルクでは従来型超伝導状態を示す NbSe_2 を対象に、原子層までの薄膜化や原子層同士の積層によってどのように非従来さが誘起されたかを明らかにすることを目的とする。原子層薄膜の清浄表面の測定が難しかった NbSe_2 を分子線エピタキシー法(MBE)と走査型トンネル顕微鏡分光測定(SI-STM)を組み合わせることで実現し、フェルミエネルギー近傍の詳細な電子状態の情報から現象の鍵となる因子を同定する。

3. 研究の方法

大気中で容易に劣化し超伝導特性を失ってしまう NbSe_2 単層膜を、超高真空中のボトムアップの手法である MBE を用いて成膜する。続いて、超高真空スーツケースを用いて試料を大気暴露することなく STM 装置に搬送し、希釈冷凍機温度の超低温にて超伝導状態の SI-STM 測定を行う。先行研究では、試料面内方向の外部磁場印加下で回転対称性の破れた超伝導状態が報告されているため、外部磁場によって超伝導相-常伝導相を制御し、超伝導状態に由来する回転対称性の破れを検出する。

4. 研究成果

MBE を用いてグラフェン上に広く平滑な NbSe_2 単層膜の作製に成功した。高品質な NbSe_2 単層膜作製には、シリコンカーバイド上にエピタキシャルグラフェン層を成長させたものが適切であるという知見を得た。試料搬送のために、MBE 装置のロードロックチャンバを拡張し、超高真空スーツケースと組み合わせることで、 $1 \times 10^{-8} \text{Pa}$ 台の超高真空を保ったままの薄膜試料搬送を実現した。搬送した試料に対し超低温 STM 測定を行い、 NbSe_2 単層膜の電子状態の観察を行うことに成功した。図 1 に示すように、 NbSe_2 単層膜で期待される電荷密度波秩序(CDW)、明確なコヒーレンスピークを持った超伝導ギャップが得られた(図 2(a))。典型的な NbSe_2 単層膜のアイランドサイズは数十 nm~百数十 nm 程度で、超伝導ギャップサイズは、アイランド毎に $100 \sim 300 \mu\text{eV}$ 程度と異なることが明らかになった。

格子欠陥や CDW の位相欠陥などが少ない領域に対し、外部磁場を印加し測定を行ったところ、試料面垂直方向の磁場印加では超伝導ギャップが単調に抑制される一方で、試料面内方向では超伝導ギャップに変化がほとんど現れないことが分かった(図 2(a)~(c))。この結果は、 NbSe_2 単層膜のバレー偏極したフェルミ面に由来するイジング超伝導性を意味しており、我々が知る限り NbSe_2 単層膜での明確なイジング性の確認は初めての成果である。 NbSe_2 の ab 面内における磁場印加方向依存性についても測定を行ったが、先行研究で期待される 2 回回転対称な振る舞いは見られなかった。

グラフェン上の NbSe_2 単層膜の STM 像を詳細に調べると、アイランドごとに NbSe_2 がグラフェンの結晶軸に対してひねり角度を持って積層することが明らかになった。このひねり角度は MBE による成長時に自然と導入されるため制御することはできないものの、STM を用いたその場観察により同じ組成の異なるひねり角度の積層を比較することが可能である。研究開始当初には想定していなかった展開であるが、異なるひねり角度で超伝導状態の違いが現れることを見出したため、ひねり角度

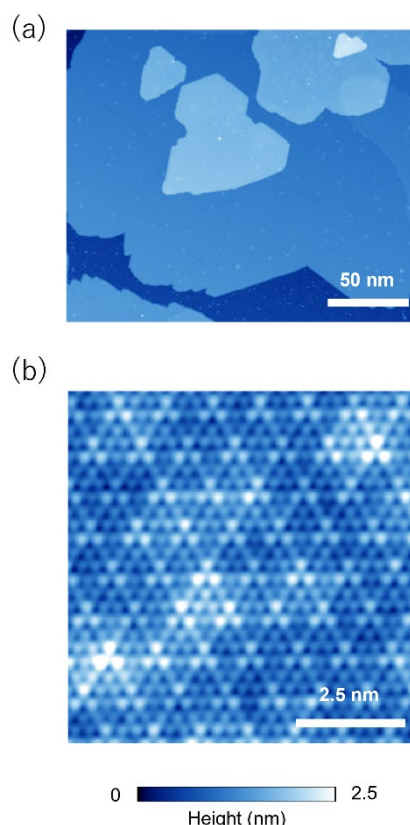


図 1: NbSe_2 単層膜の STM 像。(a) グラフェン基板(最も色の濃い領域)の上に、 NbSe_2 の単層膜や二層膜がアイランド成長している様子が分かる。(b) NbSe_2 単層膜の拡大図。 NbSe_2 に特徴的な CDW を反映した 3×3 の周期的なパターンが見られる。

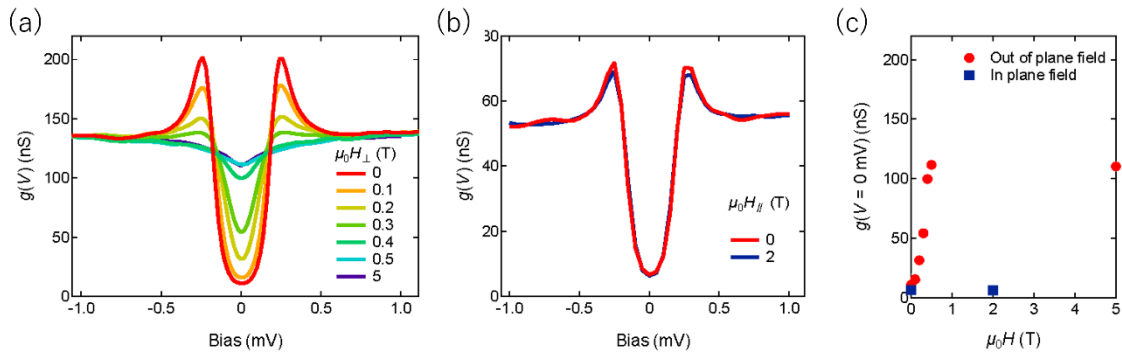


図 2: NbSe₂ 単層膜のトンネルスペクトル $g(V)$ の磁場依存性。(a) 薄膜に垂直方向に磁場を印加すると超伝導ギャップは抑制される。(b) 薄膜面内方向に磁場を印加した場合には超伝導ギャップサイズはほとんど変化しない。(c) フェルミエネルギーにおける $g(V)$ の磁場依存性。NbSe₂ 単層膜のイジング超伝導性反映した高い異方性が確認できる。

の超伝導状態に与える影響について研究を進めた。得られた 24 度、28 度、0 度のひねり積層において測定を行い、24 度、28 度といったカイラルな積層では、超伝導状態でフェルミエネルギーに有限の残留状態密度が観測され、超伝導状態が異方的になっていることが示唆された。この残留状態密度の詳細な空間依存性を調べるために、準粒子干渉効果測定を行ったところ、NbSe₂ やグラフェンの結晶軸方向から捻じれたカイラルなパターンが観測された(図 3(a))。このカイラルなパターンは磁場により超伝導を抑制すると消失する。図 3(b)に 24 度のひねり積層におけるグラフェンと NbSe₂ のフェルミ面を示すが、青色の四角で示す NbSe₂ の還元ブリルアンゾーン内で、6 つのグラフェンのフェルミ面と NbSe₂ の Γ 点周りのフェルミ面が交差する。この交差する点を結ぶ散乱ベクトルは図 3(a)に示すカイラルなパターンを特徴づける波数とよく一致していることが分かった。以上の結果は、フェルミ面の重なる波数において超伝導近接効果によってグラフェンに超伝導が誘起され、一方で、NbSe₂ の超伝導ギャップが同じ波数で抑制されたことによって、ギャップ内の低エネルギー励起であるボゴリューボフ準粒子が生じたというシナリオによって理解できると考えている。

以上の結果は、原子層超伝導体の性質を積層のひねり角度によって制御できることを意味している。特に NbSe₂ やグラフェンのような層間結合がファンデルワールス力によって弱く結合した層状物質は、ひねり角度を連続的に変化されるため超伝導特性を連続的に後天的に調節できる新たな制御方法として期待が持たれる。フェルミ面の重なりを考えることで、その定性的な振る舞いが予測できるようになったため、今後様々な応用に向けての展開が期待されよう。

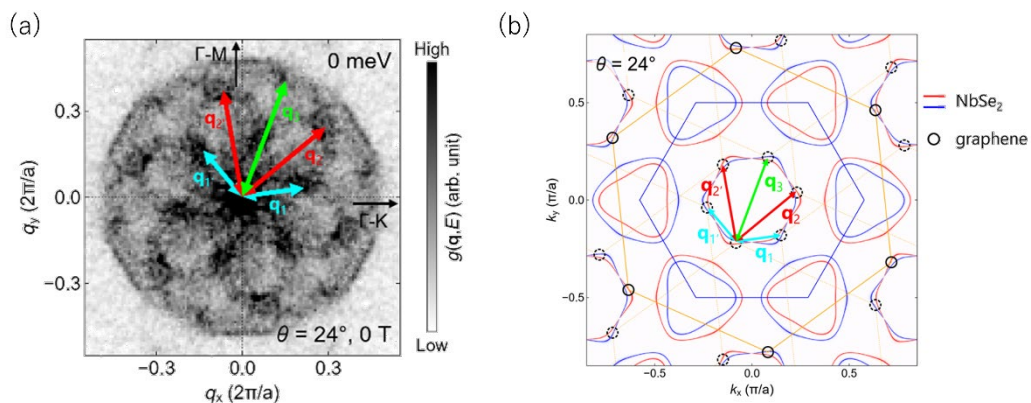


図 3: (a) ひねり角度 24 度の積層試料で得られたボゴリューボフ準粒子干渉パターン。黒矢印で示す NbSe₂ の結晶軸に対し、鏡映対称性を破ったカイラルなシグナルが観測された。(b) 運動量空間でのひねり積層の電子状態。赤色と青色のラインで示す NbSe₂ のフェルミ面に対し、黒丸で示すグラフェンのフェルミ面が重なる様子が見て取れる。この 6 カ所の重なり同士を結ぶ波数は(a)の色矢印で示すカイラルな BQPI の波数とよい一致がみられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 成塚政裕, 町田理, 花栗哲郎
2. 発表標題 単層NbSe2薄膜の超伝導状態における準粒子干渉イメージング
3. 学会等名 日本物理学会春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 成塚政裕
2. 発表標題 単層NbSe2の分子線エピタキシー成長と走査トンネル分光イメージング
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」第2回量子物質開発フォーラム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 M. Naritsuka, T. Machida, and T. Hanaguri
2. 発表標題 Symmetry breaking in quasiparticle interference imaging of superconducting monolayer NbSe2
3. 学会等名 The 13th TOYOTA RIKEN International Workshop: Integrated Spectroscopy for Strong Electron Correlation -Theory, Computation and Experiment (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------