

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：32660

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790010

研究課題名(和文) グラフェン/超伝導金属接合の強磁場下に於ける輸送現象の研究

研究課題名(英文) Studies on superconducting transport in graphene/superconductor junction at high magnetic fields

研究代表者

津村 公平 (TSUMURA, KOHEI)

東京理科大学・理学部・助教

研究者番号：70583251

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではグラフェンの有する特異な電子物性に着目し、超伝導状態・量子ホール状態の共存状態の実現とその物性解明を目指した。グラフェンと第二種超伝導体である窒化ニオブ(NbN)との接合構造作製技術開発を行い、グラフェン/Ti/Nb/NbN多層構造による良好なコンタクト形成を実現した。そしてNbN/グラフェン/NbN接合に於いて、強磁場中で前記二状態が共存することを実証した。さらにグラフェン中に誘起された超伝導状態を、光励起下での電子輸送測定によって評価する測定手法を開発した。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we have studied the coexistent state of superconductivity and quantum hall effect (QHE) by exploiting the unique electronic property of graphene. We have established a method to lower the contact resistance between graphene and NbN (type-II superconductor) by using graphene/Ti/Nb/NbN multi-layer construction, and have confirmed the proximity-induced superconducting state coexisting with QHE in graphene at high magnetic fields. Moreover, we have developed a novel probe method for the superconducting state in graphene by utilizing optically created non-equilibrium state and its relaxation.

研究分野：メソスコピック超伝導

キーワード：グラフェン 超伝導近接効果 量子ホール効果 光照射効果

1. 研究開始当初の背景

二次元電子系(2DES)に対して垂直に磁場を印加すると、2DES にはランダウ準位が形成され、ホール抵抗が量子化することは良く知られている。この量子ホール状態に於いては、ランダウ準位占有数に応じた数の伝導チャンネル、量子ホール端状態が試料端に生じる。量子ホール効果を考える場合、通常は常伝導体(N)が電極として取り付けられた状態を考えるが、電極に超伝導体(S)を用いることも可能である。しかし、量子ホール状態が現れるような強磁場中では超伝導状態が破壊されるため、そのようなことはあまり議論されて来なかった。

超伝導体(S)と常伝導金属(N)による SN 接合では、入射電子がホールとして反射される Andreev 反射によって SN 間の電荷輸送が行われる。強磁場中では、量子ホール端状態を介した Andreev 反射が生じ、端状態を介して超伝導電流が流れると理論的に予想されている。この予測以来、量子ホール状態と超伝導状態の相関現象を実験的に検出しようとする試みが行われた。これまで、GaAs/AlGaAs HEMT 構造や InAs 系 HEMT 構造中の 2DES を N として用いた SNS 接合が主な実験の舞台であった。しかしこれらの材料では、(1)電極との良好なコンタクト形成、(2)適度な磁場中での低占有数状態実現といった、前記現象を観測するための基礎的物理条件を両立することができなかった。

本研究ではグラフェン(G)を用いた SG 接合に着目した。我々はグラフェンと Al 電極に関して非常に良好なコンタクト形成手法を有しており、これを応用すれば第二種超伝導体とグラフェンを接合させられるはずである。またグラフェンは比較的大きなサイクロトロンエネルギーを有しており、数テスラの磁場中でもゲート電圧制御によって低占有数状態が実現できる。従って、グラフェンを用いた超伝導接合は超伝導状態・量子ホール状態混在系を実現する最良の舞台となる。

2. 研究の目的

本研究では、これまでの物質系では実現困難であった量子ホール系内での超伝導現象の探索が、グラフェンを用いた新たな接合で可能となることを実証する。そのために、

- (1)グラフェンと様々な電極材料とのコンタクト形成方法を確立し、グラフェン/第二種超伝導体接合を実現する。
- (2)量子ホール状態を介した超伝導現象を輸送測定によって観測し、その特性を実験的に明らかにする。
- (3)超伝導現象にとって本質的な位相という観点から、端状態中の超伝導状態の特性を明らかにする。

3. 研究の方法

量子ホール状態と超伝導状態の混在系を実現するため、NbN/グラフェン接合を作製する。NbN は第二種超伝導体であり、その上部臨界磁場は 18 T 以上になる。本研究で使用する最大磁場 $B = 7$ T においても超伝導状態を保つことが可能である。そこで、

- (1) 最適な試料作製技術を開発するため、
 - ① Nb スパッタ蒸着レートを固定し、導入する N_2 ガス量をパラメータとして、Si 基板上での NbN 成膜条件を最適化した。
 - ② NbN/X/グラフェン多層構造 (X は NbN-グラフェン間に挿入する物質を指す) を用いた、コンタクト形成技術を開発した。

グラフェンはキッシュグラファイトから機械的剥離法によって作製した。電子線描画によって作製したエッチングマスクと酸素プラズマを用いた反応性イオンエッチングによって、一定形状の試料を用いた評価が出来るようにした。

- (2) 強磁場中での NbN/グラフェン/NbN 接合の輸送特性を評価した。

測定は温度 $T \sim 300$ mK にて実施した。グラフェン平面に対して垂直磁場を印加し、電気伝導測定を行った。本研究では、超伝導電流を観測できなかったため、微分抵抗測定を中心として測定を進めた。

また量子ホール状態中の超伝導状態をプローブするために、

- (3) 光励起と輸送測定を組み合わせた新奇プローブ法開発を行った。

本プローブ測定法開発には Al/グラフェン/Al 接合を用い、照射下で同接合中を流れる超伝導電流値を計測することで、照射と超伝導状態との相関関係を検討した。

4. 研究成果

- (1) NbN 成膜とコンタクト形成技術開発

図 1 に NbN の抵抗値の温度依存性を示す。内挿図の通り、NbN の抵抗値は Nb 等の金属とは異なり、温度低下とともに増加する。これは多数の微小クラスターから NbN 膜が構成され、ホッピング伝導によって電気伝導が生じることに対応している。 $T = 10$ K 前後で超伝導転移が見られ、臨界温度(T_c)は N_2 ガス流入量 (図中の数値、単位 sccm) に応じて変化する。図 2 は T_c および $RRR = R_{20K}/R_{285K}$ の N_2 ガス流入量依存性を示し、 RRR が上昇に転じる流量にて T_c は最大となる。これは前述の NbN クラスターサイズと T_c に相関があることを示しており、 N_2 流量による構造変化や RRR から最適な NbN 成膜条件を導けることを示した。

コンタクト形成には、グラフェン/X/NbN 多層構造を用いた。X には、(i) Ti、(ii) Pd、(iii) Ti/Au、(iv) Ti/Nb の 4 種を検討・試作した。過去の報告例では(ii)もしくは、(i)と(ii)の組み合わせが良いとされていたが、Pd を一定条件で成膜することが困難であった。本研究で

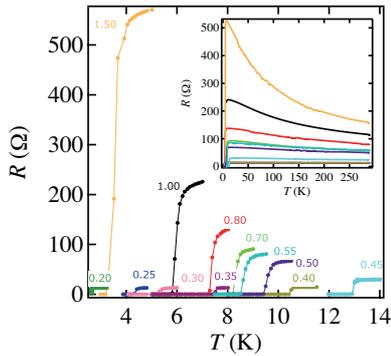


図1：様々な N_2 流量（図中に単位 sccm で記載）で成膜した NbN 抵抗値の温度依存性. 内挿図は室温までを含む、広範囲の温度依存性を示す.

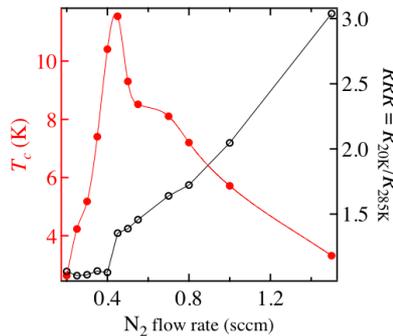


図2：NbN の超伝導臨界温度（赤点）と抵抗比 $RRR = R_{20K}/R_{295K}$ （黒丸）の N_2 流量依存性.

は、(iv)にて安定したコンタクト形成を可能にした。Ti は NbN スパッタ時の Ar/ N_2 混合ガス中の N_2 と反応し、コンタクト抵抗を上昇させる (Mizuno et al., Nat. Commun. 4, 2761 (2013).)。これを防ぐため、まず Nb を Ti 表面に薄くスパッタ蒸着し、そのまま N_2 を導入し、NbN を連続的に成膜した。これにより前記問題を解消し、NbN-グラフェン間の良好なコンタクト形成を実現した。

(2) 量子ホール・超伝導状態混在系の実現

前記技術で作製した NbN/グラフェン/NbN 接合を用い、強磁場中での輸送測定を実施した。図3はゼロバイス抵抗のゲート電圧 (V_g) 依存性を示す。 $B = 0$ T では通常のグラフェンと同様、電荷中性点 $V_g \sim 19$ V 付近に単一の抵抗ピークが見られる。一方で、 $B = 7$ T では同 V_g 位置にランダウ準位に伴う抵抗のディップが現れる。図4は $B = 7$ T で測定した微分抵抗-バイス電圧特性を示す。NbN 電極が超伝導状態では NbN の超伝導ギャップエネルギー以下のゼロバイス近傍で微分抵抗の減少が見られる。一方、NbN 電極を常伝導状態とした場合にはそのような減少は見られない。超伝導状態での微分抵抗減少は NbN/グラフェン界面での Andreev 反射に起因するものであり、グラフェン中に超伝導状態が誘起されたことを意味している。従って、 $B = 7$ T の強磁場中に於いて、量子ホール状態と超伝導状態が共存する物理系をグラフェン中に実現できた。

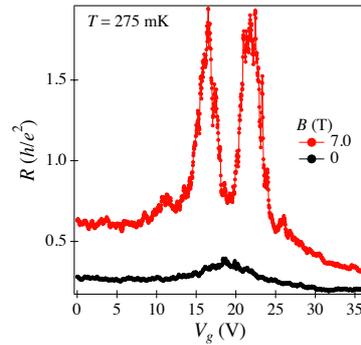


図3： $B = 0$ T（黒点）と 7 T（赤点）の NbN/グラフェン/NbN 接合のゼロバイス抵抗のゲート電圧依存性.

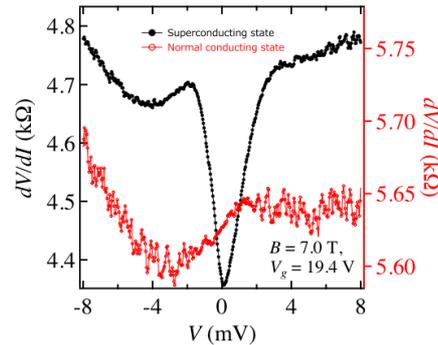


図4：NbN 電極が超伝導状態（黒点）と常伝導状態（赤点）に於ける、NbN/グラフェン/NbN 接合の微分抵抗-バイス電圧特性.

(3) 光照射下での輸送測定による超伝導状態のプロープ手法開発

波長 $1.310 \mu\text{m}$ の CW 光を Al/グラフェン/Al 接合に照射し、接合を流れる超伝導臨界電流値 (I_c) の光照射パワー (P) 変化を $T = 40$ mK にて測定した。図5(a)が I_c のノーマル抵抗 (R_n) の P 依存性で、 P 増加に対して I_c は単調減少するが、 R_n はほぼ一定値のまま変化しない。グラフェン中の電子密度 (n_s) が変化すると R_n もそれに応じた変化を示すため、光照射による I_c 減少は n_s 変化によるものではない。図5(b)は I_c 、 R_n の温度依存性を示し、 P 依存性と同様、温度上昇に伴って I_c は単調減少するが R_n は変化しない。これより、光照射下での I_c 変化は、光照射によって生成された非平衡キャリアがもたらす電子温度上昇によるものであると考えられる。 I_c の P 依存性と T 依存性の比較から求めた、グラフェンに入射する光パワーと電子温度の関係は図6の通りである。図中の赤線はフィッティング曲線で、 $P \propto T^3$ であることがわかる。これは不純物散乱の存在するグラフェン内における電子-音響フォノン散乱による熱緩和の観点から理解できる。従って、光励起に伴う非平衡キャリアエネルギー分布が、グラフェン中に誘起された超伝導状態に影響を及ぼすことが明らかとなった。本手法を量子ホール状態中の超伝導状態に対して応用すれば、同状態のプロープが可能となると期待できる。本成果は、論文投稿予定である。

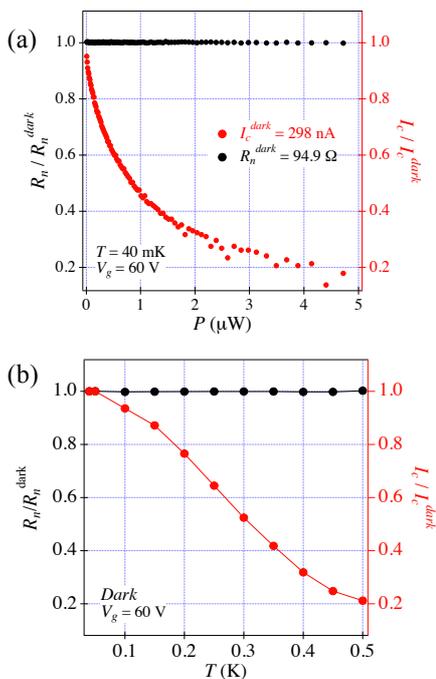


図5： $T = 40$ mKでの測定値で規格化したAl/グラフェン/Al接合を流れる超伝導臨界電流値（赤点）とノーマル抵抗（黒点）の(a)照射パワー依存性と(b)温度依存性。

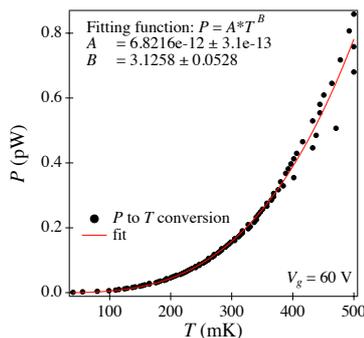


図6：グラフェンに入射する光パワーと電子温度の関係。赤線はフィッティング結果を示し、用いた関数と値は図中に記載した。

得られた研究成果と今後の展望

グラフェンに対して電極を接続することは、基礎研究・応用の両者にとって本質的に重要である。本研究では、Ti 薄膜層挿入を中心技術として、多様な金属との良好なコンタクト形成が可能となることを示した。特に、NbN といった第二種超伝導体とも良好なコンタクト形成が可能であることを実証し、超伝導状態・量子ホール状態の混在系という興味深い状態を実現できることも示した。超伝導に本質的な位相という観点から現象を理解するまでには至らなかったが、その舞台を確実に構築することはできた。今後、さらにデータ解析を進めることでグラフェン固有の電子物性に起因した超伝導現象を立証できるものと期待している。また本研究で編み出された、光励起下での電子輸送測定による超伝導状態のプロブ手法は、光と超伝導状態を繋ぐ新たなデバイスへの展開も期待できるものである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 10 件)

- ① K. Tsumura, N. Furukawa, H. Ito, E. Watanabe, D. Tsuya, and H. Takayanagi, “Superconducting transport through graphene-based Josephson junction under near infrared photoexcitation”, 12th European Conference on Applied Superconductivity, Sep., 2015, Lyon (France). (Oral (にてアクセプト済))
- ② 津村公平、古川直紀、伊藤宙陸、渡辺英一郎、津谷大樹、高柳英明、“グラフェン/超伝導体接合に対する光照射効果のゲート電圧変化”、11pA2-2、第62回応用物理学会春季学術講演会、2015年3月11日、東海大学湘南キャンパス。
- ③ 上保淳敬、津村公平、高柳英明、“グラフェンを用いた交差アンドレーエフ反射検出器の作製”、11pA2-1、第62回応用物理学会春季学術講演会、2015年3月11日、東海大学湘南キャンパス。
- ④ K. Tsumura, N. Furukawa, H. Ito, E. Watanabe, D. Tsuya, and H. Takayanagi, “Optical effect on proximity-induced superconductivity in graphene”, The 9th International Symposium on Intrinsic Josephson Effects and THz Plasma Oscillations in High-Tc Superconductors, Kyoto University, Japan, Dec. 2, 2014.
- ⑤ 日暮優、本間心人、伊藤宙陸、津村公平、野田武司、高柳英明、“自己形成 InAs ナノリングを介した超伝導接合における高周波特性”、18p-A21-14、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャンパス、2014年9月18日。
- ⑥ 本間心人、日暮優、伊藤宙陸、津村公平、野田武司、高柳英明、“自己形成 InAs ナノリングにおける In 添加量による伝導特性の変化”、18p-A21-15、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャンパス、2014年9月18日。
- ⑦ 平林元樹、上保淳敬、津村公平、高柳英明、“グラフェン幅変化に伴うグラフェン/超伝導金属接合の輸送特性変化”、18p-A21-16、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャンパス、2014年9月18日。
- ⑧ 古川直紀、津村公平、渡辺英一郎、津谷大樹、高柳英明、“グラフェン/超伝導体接合に対する光照射に伴う超伝導臨界電流値の変化”、18p-A21-17、第75

回応用物理学会秋季学術講演会、北海道
大学札幌キャンパス、2014年9月1
8日。

- ⑨ 津村公平、古川直紀、大杉正樹、高柳英
明、“グラフェンを用いた超伝導量子干
渉計 (SQUID) の作製”、文部科学省ナ
ノテクノロジープラットフォーム平成
25年度成果報告会、東京工業大学、2
013年10月17日。

- ⑩ K. Tsumura, N. Furukawa, M. Hirabayashi,
H. Migita, M. Ohsugi, E. Watanabe, D.
Tsuya, and H. Takayanagi, “Fabrication
and Characterization of Graphene-based
Superconducting Device”, NIMS
CONFERENCE 2013, Epochal Tsukuba,
Jul. 2, 2013.

6. 研究組織

(1)研究代表者

津村 公平 (TSUMURA KOHEI)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学
科・助教

研究者番号：70583251