

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 19 日現在

機関番号：92704

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01022

研究課題名（和文）原子層物質における高次トポロジカル現象の解明と制御

研究課題名（英文）Exploring higher-order topological states in van-der-Waals 2D materials

研究代表者

若村 太郎（Wakamura, Taro）

日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子科学イノベーション研究部・研究主任

研究者番号：60898899

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 23,530,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究では、1原子の薄さまで薄くすることが可能な原子層物質の中でも特にトポロジカル物質と呼ばれるWTe₂や、トポロジカル物質かつ超伝導を示すTd-MoTe₂に着目し、電気伝導測定や電流揺らぎ測定を用いてこれらの特異的な物性を解明した。Td-MoTe₂を数原子層レベルにまで薄膜化し、結晶の低対称性に由来する巨大な超伝導非相対称電気伝導効果を観測した。また、膜厚やキャリア密度、移動度及び残留抵抗率比と転移温度の関係を調べ、超伝導ギャップ対称性を議論した。加えて数十nmの厚さのWTe₂にて、これまで原子層物質での報告例が少ない、電流の平均値からのずれである電流揺らぎの観測に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で用いたWTe₂及びTd-MoTe₂のうち、特にTd-MoTe₂では超伝導とトポロジカル物性が共存するため、その超伝導特性の解明は従来の超伝導体とトポロジカル物質を接合したトポロジカル量子計算デバイスに変わる「単物質トポロジカル量子計算デバイス」の実現を前進させるものである。また、電流揺らぎ測定からは電子の散乱強度や粒子性等、通常の電気伝導測定では得られない情報を得ることが可能だが、これまで原子層物質ではほとんど行われてこなかった。本研究の実施により、今後原子層物質を始め多彩な新物質で電流揺らぎ測定を行う基板を構築することが出来、これらが有する未知の解明に貢献することが可能となった。

研究成果の概要（英文）：In this study we explored topological van der Waals materials WTe₂ and Td-MoTe₂ in the thin limit via electrical transport and current fluctuation measurements. We first measured nonreciprocal transport originated from the low dimensionality of Td-MoTe₂, in which the electrical resistance varies depending on the direction of the current. In the superconducting state, we successfully observed giant nonreciprocal signals, which are one of the largest values ever reported. We next investigated the relation between the thickness, carrier density, mobility, residual resistivity ratio and the critical temperature, and discussed a possible superconducting pairing symmetry. We also performed current fluctuation measurements in WTe₂. Current fluctuations are standard deviations of the current, and relevant to scattering of carriers inside the material. While current fluctuations are almost unexplored in van der Waals materials, we could observe them in bulk WTe₂.

研究分野：物性物理学

キーワード：原子層物質 トポロジカル物性 超伝導 メゾスコピック物理

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子層物質である WTe_2 や $T_d\text{-MoTe}_2$ はトポロジカルに非自明なバンド構造を持つ。これらは単原子層で量子スピンホール絶縁体、バルクで高次トポロジカル絶縁体と呼ばれる、素子の特定の端に電子が散逸なく伝導可能なヒンジ状態が現れることが理論的に予測され注目を集めている。加えて $T_d\text{-MoTe}_2$ は低温において超伝導を示すことから、トポロジカル状態と超伝導の共存によるトポロジカル超伝導が単一の物質で実現している可能性がある。従来、トポロジカル超伝導の研究は s 波超伝導体にナノワイヤやトポロジカル物質を接合させることにより行われて来たが、 $T_d\text{-MoTe}_2$ を用いることにより単一物質によるトポロジカル量子計算デバイスを創成することが可能となる。しかし一方、 WTe_2 や $T_d\text{-MoTe}_2$ のトポロジカル物性や超伝導特性に関する研究は緒についたばかりであり、その詳細は多くが未解明である。

2. 研究の目的

このような背景を踏まえ、本研究では WTe_2 及び $T_d\text{-MoTe}_2$ が示すトポロジカル物性及び超伝導特性を、高品質な素子作製技術と電気伝導測定及び電流揺らぎ測定を融合させることにより解明する。 WTe_2 及び $T_d\text{-MoTe}_2$ は大気中で極めて不安定であるため、これらを劈開し劣化させることなく測定可能な素子を作製するための技術の確立に取り組む。また測定に関して、従来広く行われている電気伝導測定に加え、これまで原子層物質を始めとする新物質に対してはほとんど行われて来なかった電流揺らぎ測定を実施することにより、電子が散乱に弱いバルク状態と散乱に強いヒンジ状態の同定に挑戦する。

3. 研究の方法

本研究では高品質な WTe_2 及び MoTe_2 単結晶を機械的剥離法により数原子層～数十 nm に薄膜化し、六方晶窒化ホウ素を用いて予め SiO_2 基板上に作製した金属電極上に転写することにより素子を作製した (図 1)。 WTe_2 や $T_d\text{-MoTe}_2$ の劣化を避けるため、機械的剥離と電極上への転写の工程はグローブボックス内においてアルゴン雰囲気下で行った。電気伝導測定はヘリウム 3 冷凍機で素子を最低温度 230 mK まで冷却し、ロックインアンプ及びプリアンプを用いて実施した。また、電流揺らぎ測定は無冷媒希釈冷凍機中で行い、素子から得られた電圧信号を室温アンプで増幅し、スペクトラムアナライザを用いて周波数解析した。



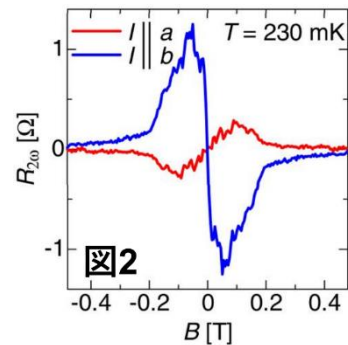
4. 研究成果

(1) 巨大な超伝導非相反電気伝導効果の観測

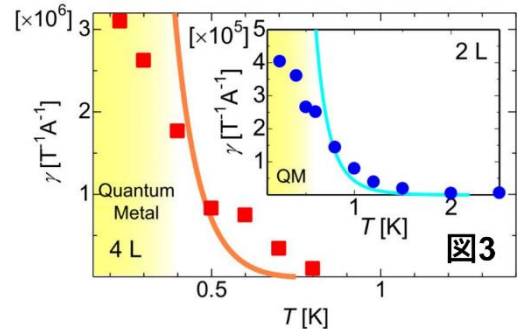
$T_d\text{-MoTe}_2$ において、空間反転対称性を持たない超伝導体で有限磁場下にて生じる超伝導非相反電気伝導効果の測定を行い、これまで報告された中で最大級の非相反信号生成効率を達成した。

低温における $T_d\text{-MoTe}_2$ や WTe_2 は特に数原子層の薄さにした場合、 ab 面に垂直な鏡映面のみを有する極めて低対称な構造を取る。この結晶構造はこれまで超伝導非相反電気伝導現象の観測に用いられた超伝導体と比較しさらに対称性が低いため、先行研究よりも大きな効果が期待出来る。数原子層の $T_d\text{-MoTe}_2$ を用いて測定を実施したところ、電流 I_0 を鏡映面に垂直に流した場合 ($I//b$) のみ大きな非相反電気伝導抵抗 ($R_{2\omega}$) を観測した (図 2)。この結晶の鏡映面と電流、及び外部磁場 B の方向の間の関係は非相反電気伝導効果が要求する条件と一致する。 $R_{2\omega}$ と同時に観測した縦抵抗の線形成分 R_{ω} を用いて、非相反電気伝導効果の大きさを評価するパラメータ $\gamma = 2R_{2\omega}/(R_{\omega}BI_0)$ を計算したところ、 $3.1 \times 10^6 \text{ T}^{-1}\text{A}^{-1}$ となり、先行研究の NbSe_2 や MoS_2 で報告された値と比較して 2 桁以上大きく、ドーパされた SrTiO_3 と並び超伝導非相反電気伝導においてこれまでに観測された最大級の γ の値が得られた。

このような巨大な超伝導非相反電気伝導効果の起源を調べるため、超伝導体におけるボルテックスラチェット効果を仮定したモデルで実験結果の解析を試みた。その結果、図 3 の通り特に最低温度と T_c の中間温度領域で理論と実験結果が良い一致を示し、超伝導非相反電気伝導効果がボルテックスのラチェット運動により生じていることを証明した。加えて、特に 2L の素子において超伝導非相反電気伝導をゲート電圧により制御することに成功した。本研究結果により成果欄[1],[5],[9]の成果を達成した。



(2) $T_d\text{-MoTe}_2$ の超伝導特性の膜厚依存性とギャップ対称性の解明

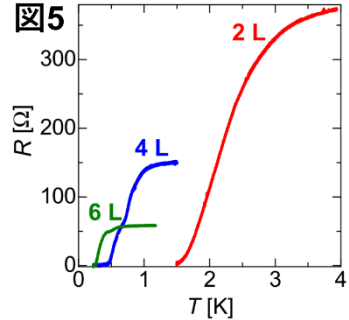
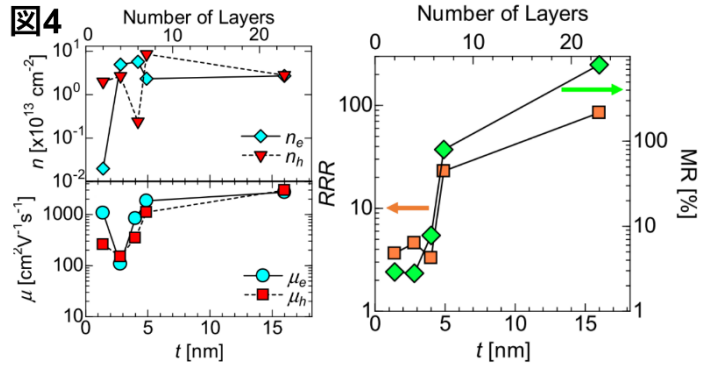


T_d -MoTe₂ において膜厚と超伝導転移温度(T_c)、フェルミ準位、移動度及び室温と 4 K での抵抗の比である残留磁気抵抗比(RRR)の間の関係を明らかにし、第一原理計算結果との比較から先行研究で指摘されている s_{\pm} 型の超伝導ギャップ発現の可能性について議論した。

図 4 のように、磁気抵抗測定から得られた各膜厚におけるキャリア密度(電子: n_e 、ホール: n_h)と移動度(電子: μ_e 、ホール: μ_h)は膜厚に対して不規則に変化する一方、RRR はほぼ一様に膜厚と共に減少する。一方、異なる膜厚(2 L ~ 6 L)における電気抵抗の温度依存性(図 5)から、 T_c は膜厚が低下するほど上昇する。このように膜質が低下しても T_c が低下しないことは、超伝導の不純物散乱に対する強固さを示し、従来型の s 波超伝導状態の発現を示唆する。

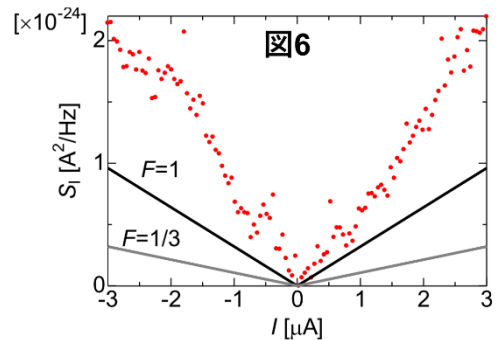
これに加え、原子層物質の特性を生かして膜厚を数原子層レベルにまで薄くすることにより、電場の遮蔽効果を抑制して外部からのゲート電圧により抵抗や T_c を制御することに成功した。この抵抗のゲート依存性と上記のキャリア密度から、各素子におけるフェルミ準位を求めることが出来る。これを第一原理計算によって得られた 2,4 原子層の T_d -MoTe₂ のエネルギーバンド及び状態密度と比較すると、電子とホールの両方のバンドがフェルミ面に無い場合でも高い T_c が実現されていることが分かり、実験結果は s_{\pm} 波の超伝導ギャップ対称性と矛盾することが判明し、従来の s 波超伝導の可能性が高いことを示した。本研究結果は現在論文投稿中である。本研究結果により成果欄[2],[6],[7],[8]の成果を創出した。

これに加え、原子層物質の特性を生かして膜厚を数原子層レベルにまで薄くすることにより、電場の遮蔽効果を抑制して外部からのゲート電圧により抵抗や T_c を制御することに成功した。この抵抗のゲート依存性と上記のキャリア密度から、各素子におけるフェルミ準位を求めることが出来る。これを第一原理計算によって得られた 2,4 原子層の T_d -MoTe₂ のエネルギーバンド及び状態密度と比較すると、電子とホールの両方のバンドがフェルミ面に無い場合でも高い T_c が実現されていることが分かり、実験結果は s_{\pm} 波の超伝導ギャップ対称性と矛盾することが判明し、従来の s 波超伝導の可能性が高いことを示した。本研究結果は現在論文投稿中である。本研究結果により成果欄[2],[6],[7],[8]の成果を創出した。



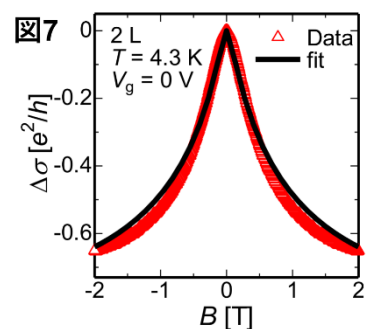
(3) WTe₂におけるショットノイズの観測

数十 nm の WTe₂ を用いてバルク状態の電流揺らぎ測定を実施した。電流バイアス下において極低温で測定した電圧揺らぎを室温アンプにて増幅し、得られた信号をスペクトラムアナライザで解析したところ、電流に比例する電流揺らぎを観測した(図 6)。パワースペクトル密度 S_I と電流の間の比例定数であるファノ因子(F)は通常の拡散的な伝導をする金属中の電子における $F=1/3$ となることが期待されるが、実際に算出された値はポアソン統計に従う粒子のファノ因子 $F=1$ よりもさらに大きな値となった。この値が真に物理的に正しいかを判断するため、トンネル接合テスト素子を作製し、測定系の確認と調整を行った。



(4) T_d -MoTe₂におけるスピン軌道相互作用の大きさの評価

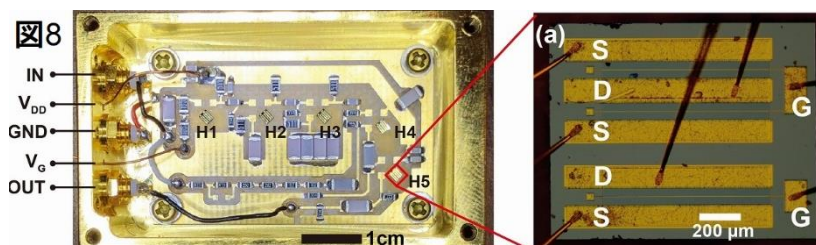
スピントロニクスへの応用やトポロジカル物性で重要な役割を果たすスピン軌道相互作用の大きさを弱反局在効果の測定を用いて T_d -MoTe₂ において評価した。図 7 に 2 L の T_d -MoTe₂ における弱反局在効果の実験結果及び Hikami-Larkin-Nagaoka (HLN) の理論式に基づくフィッティングを示す。理論式は実験結果をよく再現していることが分かる。このフィッティングから L_{sf} を求めることが出来、9 nm と算出された。このような解析を 4 L と 6 L の素子に対しても行い、 L_{so} 及び L_{sf} が膜厚に対してこれらが減少することを明らかにした。



(5) 電流ゆらぎ測定技術の開発

本研究課題のショットノイズ測定のための技術基盤として、高精度の電流ゆらぎ測定技術の開発を行った。電流ゆらぎ測定では、LC 共鳴回路を用いて特定周波数のゆらぎのみを評価する簡便な方法と、電流電圧変換回路を用いて広い周波数帯域のゆらぎスペクトルを取得して測定したいショットノイズと $1/f$ ノイズなど測定対象外のノイズを分離して正確に評価する方法がある。本研究では、後者の広帯域電流ゆらぎ測定のための電流電圧変換回路を低ノイズ化し、より精密にショットノイズを評価するための測定系を開発した(図 8)。この取り組みにより、従来

(Hashisaka *et al.*, Review of Scientific Instruments **85**, 054704 (2014).)と比較して一桁以上ノイズフロアが低い電流ゆらぎ測定が達成され、本研究を含む様々な原子層物質のショットノイズ測定に適する精密計測技術が確立された(成果欄[3],[4]参照)。



まとめと将来展望

本研究課題により特に T_d -MoTe₂ が持つ興味深い超伝導物性と結晶の対称性が輸送現象に及ぼす影響について解明することが出来た。将来的には超伝導のギャップ形状の同定など、更なる詳細な超伝導物性の解明を進める予定である。一方、トポロジカルな物性の解明に関しては道半ばである。特に電流揺らぎ測定に関しては当初の予想より実験が困難であったため物理的な議論に耐えられる程の信頼性のあるデータを得るまでに至らなかった。しかし、本研究課題で原子層物質を用いた電流揺らぎ測定に使用可能な測定系を一定程度形にすることが出来たため、これを今後は調整・改良し、本来の最終目標であった電流揺らぎを用いたトポロジカル物性の解明に繋げていきたい。

研究成果

論文

- [1] [T. Wakamura](#), [M. Hashisaka](#), S. Hoshino, M. Bard, S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki, and N. Kumada, “Gate-tunable giant superconducting nonreciprocal transport in few-layer T_d -MoTe₂”, *Physical Review Research* **6**, 013132 (2024).
- [2] [T. Wakamura](#), [M. Hashisaka](#), Y. Nomura, M. Bard, S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki, and N. Kumada, “Superconducting properties of few-layer T_d -MoTe₂”, submitted.
- [3] H. Bohuslavskiy, [M. Hashisaka](#), T. Shimizu, T. Akiho, K. Muraki and N. Kumada, “Fast time-domain current measurement for quantum dot charge sensing using a homemade cryogenic transimpedance amplifier”, *Applied Physics Letters* **121**, 184003 (2022).
- [4] T. Shimizu, [M. Hashisaka](#), H. Bohuslavskiy, T. Akiho, N. Kumada, S. Katsumoto, and K. Muraki, “Homemade-HEMT-based transimpedance amplifier for high-resolution shot-noise measurements”, *Review of Scientific Instruments* **92**, 124715 (2021).

主な学会発表

- [5] 若村太郎 (招待講演)
「原子層物質における多彩な超伝導現象」(第 70 回応用物理学会 春季学術講演会)
- [6] [T. Wakamura](#) (招待講演)
“Novel superconducting properties of few-layer T_d -MoTe₂”, International Workshop on Materials Science.
- [7] 若村太郎 (招待講演)
「原子層物質 T_d -MoTe₂ における新奇な超伝導物性」(岩手大学短期研究会「岩手スピン若手研究会」)
- [8] [T. Wakamura](#), [M. Hashisaka](#), Y. Nomura, M. Bard, S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki and N. Kumada, “Novel superconducting properties of few-layer T_d -MoTe₂”, The 25th International Conference on the Electronic Properties of Two-Dimensional Systems.
- [9] [T. Wakamura](#), [M. Hashisaka](#), S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki and N. Kumada, “Giant nonreciprocal charge transport in superconducting few-layer T_d -MoTe₂”, 29th International Conference on Low Temperature Physics.

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 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Bohuslavskyi Heorhii, Hashisaka Masayuki, Shimizu Takase, Akiho Takafumi, Muraki Koji, Kumada Norio	4. 巻 121
2. 論文標題 Fast time-domain current measurement for quantum dot charge sensing using a homemade cryogenic transimpedance amplifier	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 184003 ~ 184003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0118391	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 Takase Shimizu, Masayuki Hashisaka, Heorhii Bohuslavskyi, Takafumi Akiho, Norio Kumada, Shingo Katsumoto, and Koji Muraki	4. 巻 92
2. 論文標題 Homemade-HEMT-based transimpedance amplifier for high-resolution shot-noise measurements	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 124715-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0076196	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 Wakamura T., Hashisaka M., Hoshino S., Bard M., Okazaki S., Sasagawa T., Taniguchi T., Watanabe K., Muraki K., Kumada N.	4. 巻 6
2. 論文標題 Gate-tunable giant superconducting nonreciprocal transport in few-layer $T\text{MoTe}_2$	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 013132-1-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.6.013132	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 若村太郎, 橋坂昌幸, 岡崎尚太, 笹川崇男, 谷口尚, 渡邊健司, 村木康二, 熊田倫雄
2. 発表標題 超伝導MoTe ₂ における巨大な非相反電気伝導現象
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若村太郎
2. 発表標題 原子層物質における多彩な超伝導現象
3. 学会等名 第70回応用物理学会 春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Wakamura, M. Hashisaka, S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki and N. Kumada
2. 発表標題 Giant nonreciprocal charge transport in superconducting few-layer Td-MoTe ₂
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若村太郎, 橋坂昌幸, 岡崎尚太, 笹川崇男, 谷口尚, 渡邊健司, 村木康二, 熊田倫雄
2. 発表標題 トポロジカル物質MoTe ₂ 薄膜における超伝導特性
3. 学会等名 東大物性研短期研究会「固体におけるエニオンと分数統計粒子研究の最前線」
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 若村太郎, 橋坂昌幸, 岡崎尚太, 笹川崇男, 谷口尚, 渡邊賢司, 村木康二, 熊田倫雄
2. 発表標題 1T'-MoTe ₂ における低温磁気輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Heorhii Bohuslavskyi, 橋坂昌幸, 清水貴勢, 秋保貴史, 村木康二, 熊田倫雄
2. 発表標題 量子ドット電荷状態の自作低温電流アンプによる高速読み出し手法
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Wakamura
2. 発表標題 Novel superconducting properties of few-layer Td-MoTe2
3. 学会等名 International workshop on materials science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 若村太郎, 橋坂昌幸, 野村悠祐, M. Bard, 岡崎尚太, 笹川崇男, 谷口尚, 渡邊賢司, 村木康二, 熊田倫雄
2. 発表標題 数原子層Td-MoTe2における新奇な超伝導物性
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Wakamura, M. Hashisaka, Y. Nomura, M. Bard, S. Okazaki, T. Sasagawa, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Muraki and N. Kumada
2. 発表標題 Novel superconducting properties of few-layer Td-MoTe2
3. 学会等名 The 25th International Conference on the Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 若村太郎
2. 発表標題 原子層物質Td-MoTe2における新奇的な超伝導物性
3. 学会等名 岩手大学短期研究会「岩手スピン若手研究会」(招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究分担者個人ホームページ http://www.brl.ntt.co.jp/people/hashisaka.masayuki/index.html 研究代表者及び研究分担者が所属するグループページ http://www.brl.ntt.co.jp/group/butsuryo-g/index-j.html</p>
--

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	橋坂 昌幸 (Hashisaka Masayuki) (80550649)	東京大学・物性研究所・准教授 (12601)	

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