

対称性に基づいた新奇なトポロジカル相の探求

佐藤 宇史 / 東北大学大学院理学研究科 教授

計画研究 B01「対称性に基づいた新奇なトポロジカル相の探求」では、対称性とスピン軌道相互作用を起源とする新しい種類のトポロジカル物質を探索するとともに、トポロジカル物質が発現する新奇量子現象やエキゾチック準粒子の性質を解明することを目的としています。なかでも、ディラック電子・ワイル電子などのエキゾチック準粒子がもたらす新奇物性に重点を置いた研究を推進しています。今年度は、本研究の核となる、複数の新しいトポロジカル半金属物質の発見、トポロジカル絶縁体の表面・界面ディラック電子制御、トポロジカル超伝導の実験・理論において進展がありました。これらの成果は、試料合成、先端分光、第一原理計算などの緊密なネットワークを生かした B01 ならではの連携研究に基づくものです。以下では、今年度の主な成果を紹介いたします。

1. 新奇トポロジカル物質

ディラック半金属とワイル半金属に続いて、新しい種類のトポロジカル半金属として最近注目されているのが線ノード半金属です [1]。ディラック半金属およびワイル半金属では伝導帯と価電子帯が「点」で縮退するのに対して、線ノード半金属では「線」上に縮退が起こります。このような物質の候補物質が理論的に幾つか提案されていますが、実験で実証された例はわずかです。最近、名大の山影らによって、鏡映対称性を有する CaAgX ($X=\text{P}, \text{As}$) が線ノード半金属あるいはトポロジカル絶縁体になることが理論的に予測されました。この予測を受けて、佐藤 (B01 代表者)、相馬 (B01 連携研究者) らは、 CaAgAs においてバルク敏感な軟 X 線を用いた角度分解光電子分光 (ARPES) を行った結果、この物質がフェルミ準位 (E_F) 近傍においてディラックコーンのバルクバンド分散を示す「線ノード型ディラック電子」(図 1) で特徴付けられる、狭ギャッ

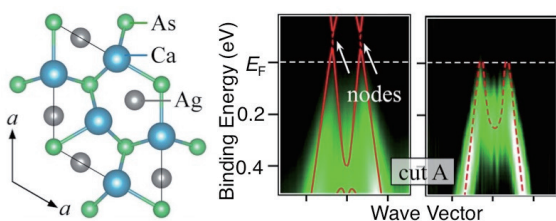


図 1: CaAgAs の結晶構造とディラック型バンド [18]

プのトポロジカル絶縁体であることを見出しました [18]。さらに、線ノードに関連したトーラス型のフェルミ面の観測にも成功し、鏡映対称性と線ノードが密接に関連していることを明らかにしました。今後はトポロジカル表面状態の探索を行う予定です。

新しいトポロジカル物質を探索する手がかりとして、グライド鏡映対称性やらせん対称性などの非共形 (Nonsymmorphic) 対称性が注目されています。トポロジカルには普通の半導体である三方晶テルル (Te) は、結晶に右巻きあるいは左巻きのらせん鎖を有し (図 2)、圧力印加によってトポロジカル絶縁体やワイル半金属に転移することが予測されています。佐藤、相馬、および山内 (D03 公募研究者) らは、 Te 単結晶の ARPES 実験 [2] を行った結果、ブリルアーンゾーンの H 点周辺において、らせん対称性によって保護されたワイルノードを観測しました (図 2)。さらに、らせん構造に起因した空間反転対称性の破れによって、バンドが最大で 0.25 eV のスピン分裂をしていることも明らかになりました [2]。これらの結果は、非共形対称性が、新しいトポロジカル物質の探索や特異物性発現に向けて有用な指針となることを示しています。

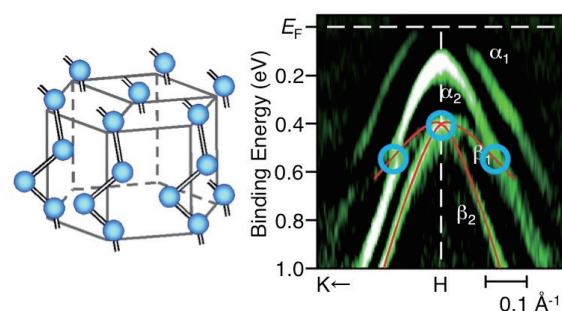


図 2: 三方晶 Te の結晶構造と H 点近傍のバンド分散。らせん対称性によるワイルノードが観測されます [2]。

2. “トポロジカルバルク物質”の電子構造

Pb-Bi-Se 三元系は、 Bi と Te などを含む他の三元系とは異なり、通常の絶縁体 PbSe とトポロジカル絶縁体である Bi_2Se_3 がその構造と類似の構造を保ったまま積層する構造を持ちます。実際に、トポロジカル絶縁体と通常の絶縁体で構成される超格子と考えると矛盾し

TOPICS

ないトポロジカル界面状態の二次元的バンド構造がARPESで観測されており、この物質はトポロジカルな界面状態がバルク物性として観測できる“トポロジカルバルク物質”であることが期待されています。瀬川 (B01 分担者)、安藤 (B01 連携研究者) らは Bi_2Se_3 の単位構造である Quintuple Layer が2つ重なった物質である $(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_6$ について、第一原理計算によってトポロジカルな起源をもつ界面状態が現れることを初めて確かめました [19] (図3)。また、実験で知られていた Pb-Bi 相互置換が計算でも確かめられ、その効果を入れて初めて表面状態を再現しました。

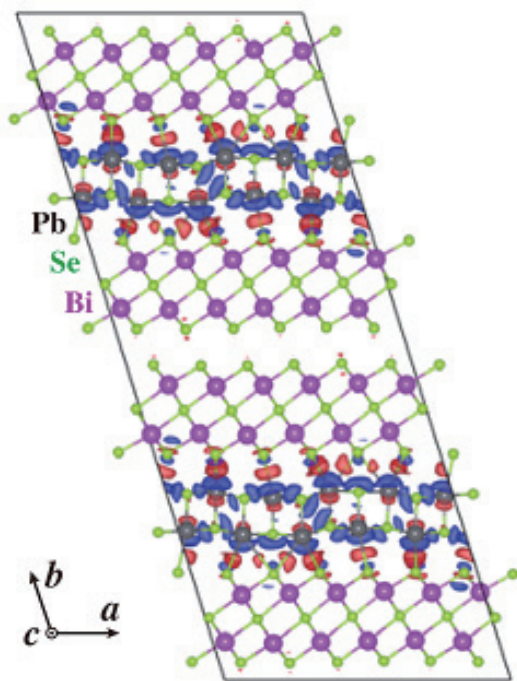


図3: $(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_6$ の単位胞の結晶構造と、計算された電子分布 [19]。青い部分では電子密度が減少し、赤い部分では増加している。

3. トポロジカル超伝導接合

柏谷 (B01 分担)、野村 (B01 公募研究者)、および前野 (A01 代表者) らは、トポロジカル超伝導体の最有力候補である Sr_2RuO_4 の、Ru インクルージョンを含む 3K 相に関して、微小結晶を DC-SQUID に組み込むデバイスの作製に成功し、s 波超伝導である Ru 金属が超伝導転移することによる自発磁化を検出するための測定を行い、自発磁化や、Kaneyasu-Sigrist モデルによるチューブ状のボルテックスは観測されないという結果を得ました (図4)。これは時間反転対称性を破るカイラル p 波から期待される結果とはコンシステントではないため、 Sr_2RuO_4 が時間反転対称性を破らない状態である可能性も示唆されます [14]。

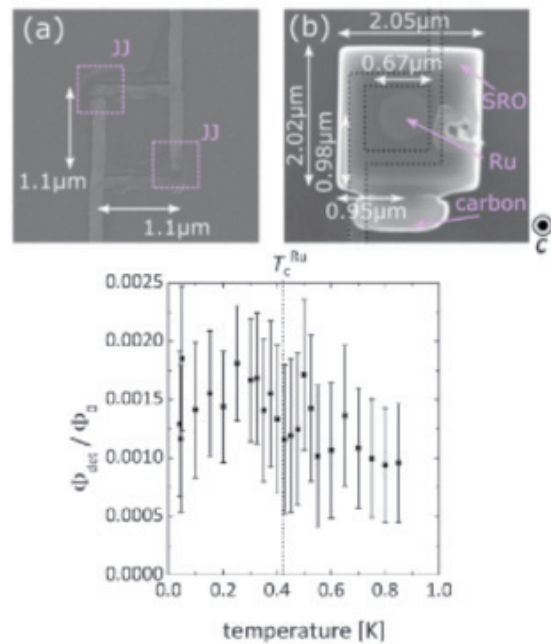


図4: (上図)SRO/Ru 界面における自発磁化を観測するためのデバイスの走査顕微鏡像 [14]。(下図)界面での位相フラストレーションが無いことが示唆されます。

4. トポロジカル絶縁体薄膜素子

塚崎 (B01 分担者) と佐藤らは、分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて、 $(\text{Bi,Sb})_2\text{Se}_3$ 混晶を形成し、組成による E_F 制御を実現しました [20]。その薄膜をチャネルに用いた電界効果型トランジスタを作製することで、より精密に E_F の位置を外部電場で制御できるようになります。この基盤技術は、表面状態の伝導を観測するために不可欠です。今回、断面構造の素子 (図5左) を作製したところ、明瞭な ambipolar 動作を観測しました (図5右)。縦抵抗がピークを持ち、その時のゲート電圧においてホール抵抗はほぼゼロとなっています。磁場を印加することでホール抵抗は、負のゲート電圧下で正に増大し、正の電圧下で負に増大しました。このことは、表面状態の電荷中性点をゲート電圧で制御できたことを意味しています。これ

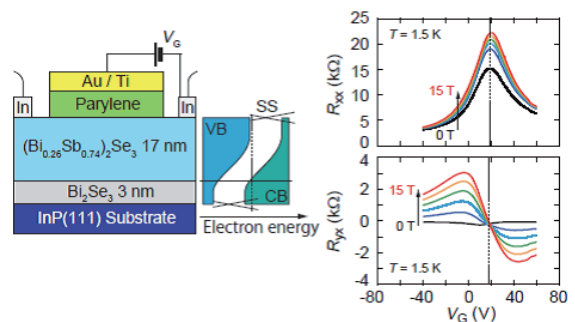


図5: $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ をチャネルとする電界効果トランジスタの断面構造図 (左) と縦抵抗 (右上) とホール抵抗 (右下) のゲート電圧依存性 [20]。

までの Bi_2Se_3 ベースの薄膜研究では、バルク中の欠陥に由来する電子伝導が支配的でしたが、チャンネルを $(\text{Bi,Sb})_2\text{Se}_3$ 混晶にすることで初めて、外部電界による表面状態の E_F 制御が可能になりました [20]。

塚崎らは、磁性不純物添加について、鉄をドーパントに選択して研究を行ってきました。図 6(a) に示すように、磁気抵抗の形状は Sb 組成（すなわち E_F の位置）に依存します。特に、 E_F がバルクギャップ内と予想される試料 ($x = 0.70$) では、負の大きな磁気抵抗が観測され、現在その起源について検討しています。一方、(b) に示すホール抵抗では、異常ホール効果が観測されず、磁化測定においても強磁性の発現を示唆する結果は得られませんでした。先行研究では、 Bi_2Se_3 への Fe 添加による表面状態のギャップ観測の報告がなされていますが、少なくとも今回の電気伝導評価において磁気的性質の関わる特性は得られていません。今後、 $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ 系での量子異常ホール効果研究に多く用いられる Cr など他の磁性不純物添加について検討します。

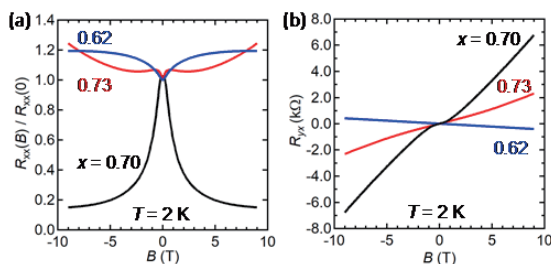


図 6: (a),(b) $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ に Fe を 2% 添加した薄膜から得られる磁気抵抗比とホール抵抗 ($T = 2\text{ K}$)。

これまでの基盤技術開発では、(1) $(\text{Bi,Sb})_2\text{Se}_3$ 混晶化による E_F 制御、(2) 電界効果による E_F 制御、(3) In 添加によるトポロジカル相転移を観測してきました。今後、磁性の付加を実現することで、 Bi_2Se_3 ベース薄膜を用いた量子異常ホール効果とトポロジカル相転移の研究を行います。

5. スピン 3 重項超伝導の理論

5-1. Sr_2RuO_4 のジョセフソン効果の理論

田仲 (B01 分担者)、柏谷、および浅野 (A01 分担者) らは、スピン一重項超伝導体とスピン三重項超伝導体 Sr_2RuO_4 のジョセフソン効果の計算を行いました [4]。 Sr_2RuO_4 は 3 軌道モデルで表して、スピン軌道相互作用をバルクおよび界面に仮定し、ジョセフソン電流の計算は Recursive Green 関数を用いて行いました。超伝導体の対称性としては、時間反転対称性を破

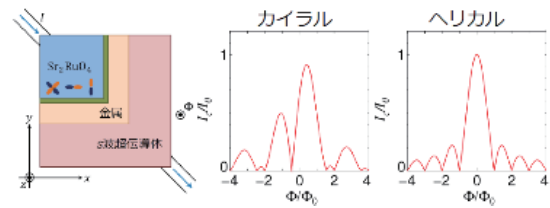


図 7: Sr_2RuO_4 と s 波超伝導体を含むコーナー接合 [4]。

るカイラル p 波とヘリカル p 波 (4 種類の既約表現) を選びました。カイラル p 波超伝導では電流・位相差依存性に $\cos(\Phi)$ 依存性が現れます。図 7 に示すようなコーナー接合を作るとカイラル p 波では外部磁束 Φ の関数として最大ジョセフソン電流は正と負で非対称な値をとります [6]。これに対して、ヘリカル p 波のペアでは既約表現によって零磁場で極小 (極大) になる場合がありますが、基本的に Φ の関数として正と負で対称になります [4]。同様の計算をコーナー SQUID に対して行った場合も、コーナー接合同様に、カイラル p 波の場合は磁場に対する依存性は非対称になるのに対して、ヘリカル p 波では対称になります。この計算結果は、スピン三重項超伝導体 Sr_2RuO_4 の d ベクトルの方向性を含む対称性を決定するうえで重要です。

5-2. 超伝導体接合における電流揺らぎの理論

田村 (B01 PD) と田仲らは、異方的超伝導体に弱い不純物散乱がある場合に、常伝導金属と接合した際のコンダクタンス、過剰電流、電流揺らぎ (ショットノイズ) の計算を 2 次元異方的超伝導体に対して準古典 Green 関数により系統的に行いました [6]。過剰電流とは、十分電圧が大きい時の超伝導状態と常伝導状態の電流の差のことです。表面アンドレーエフ束縛状態が現れる d_{xy} 波や p_x 波の接合では、過剰電流が現れ、かつ零電圧でのノイズ / 電流の比は零になることが知られていました。また零エネルギー表面アンドレーエフ束縛状態が存在する時には必ず奇周波数ペアの存在を伴うことは広く知られています。スピン三重項 p 波の場合は s 波の奇周波数ペアが並進対称性の破れで生じますが、スピン一重項 d 波の場合は p 波の奇周波数ペアが生じることになり、不純物散乱に対する影響が異なることが期待されます (Y. Tanaka et al., JPSJ **81** (2012) 011013)。実際に計算結果によれば、 p_x 波の場合は零電圧ノイズ / 電流の比は全く影響を受けないのに対して、 d_{xy} 波の場合は、零からずれて有限の値になります。また過剰電流も p_x 波の場合は全く不純物散乱の影響を受けないことが示されました。

TOPICS

- [1] "トポロジカル絶縁体・半金属の創成", 佐藤宇史, パリティ「物理科学この一年」2018年1月号.
- [2] "Band splitting and Weyl nodes in trigonal tellurium studied by angle-resolved photoemission spectroscopy and density functional theory" K. Nakayama, M. Kuno, K. Yamauchi, S. Souma, K. Sugawara, T. Oguchi, T. Sato, T. Takahashi, Physical Review B **95**, 125204-1-5 (Mar. 2017).
- [3] "Nonreciprocal charge transport in noncentrosymmetric superconductors", R. Wakatsuki, Y. Saito, S. Hoshino, Y. M. Itahashi, T. Ideue, M. Ezawa, Y. Iwasa, N. Nagaosa, Science Advances **3**, e1602390-1-9 (Apr. 2017).
- [4] "Josephson effect in a multiorbital model for Sr_2RuO_4 " K. Kawai, K. Yada, Y. Tanaka, Y. Asano, A. A. Golubov, S. Kashiwaya, Physical Review B **95**, 174518-1-11 (May. 2017).
- [5] "Topological superconductors: a review", M. Sato, Y. Ando, Reports on Progress in Physics **80**, 076501-1-43 (May. 2017).
- [6] "Current fluctuations in unconventional superconductor junctions with impurity scattering" P. Burset, B. Lu, S. Tamura, Y. Tanaka, Physical Review B **95**, 224502-1-9 (Jun. 2017).
- [7] "Crossing-line-node semimetals: General theory and application to rare-earth trihydrides" S. Kobayashi, Y. Yamakawa, A. Yamakage, T. Inohara, Y. Okamoto, Y. Tanaka, Physical Review B **95**, 245208-1-15 (Jun. 2017).
- [8] "Magnetic thermal conductivity far above the Néel temperature in the Kitaev-magnet candidate $\alpha - \text{RuCl}_3$ " D. Hirobe, M. Sato, Y. Shiomi, H. Tanaka, E. Saitoh, Physical Review B **95**, 241112(R)-1-6 (Jun. 2017).
- [9] "Three-dimensional band structure of LaSb and CeSb: Absence of band inversion" H. Oinuma, S. Souma, D. Takane, T. Nakamura, K. Nakayama, T. Mitsuhashi, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Yoshida, A. Ochiai, T. Takahashi, T. Sato, Physical Review B **96**, 041120-1-5 (Jul. 2017).
- [10] "Oscillatory Nernst effect in Pt[ferrite]cuprate-superconductor trilayer films" Y. Shiomi, J. Lustikova, E. Saitoh, Scientific Reports **7**, 5358-1-8 (Jul. 2017).
- [11] "Current-Nonlinear Hall Effect and Spin-Orbit Torque Magnetization Switching in a Magnetic Topological Insulator" K. Yasuda, A. Tsukazaki, R. Yoshimi, K. Kondou, K. S. Takahashi, Y. Otani, M. Kawasaki, Y. Tokura, Physical Review Letters **119**, 137204-1-5 (Sep. 2017).
- [12] "Tailoring tricolor structure of magnetic topological insulator for robust axion insulator" M. Mogi, M. Kawamura, A. Tsukazaki, R. Yoshimi, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, Science Advances **3**, eaao1669-1-6 (Oct. 2017).
- [13] "Experimental evidence consistent with a magnon Nernst effect in the antiferromagnetic insulator MnPS_3 " Y. Shiomi, R. Takashima, E. Saitoh, Physical Review B **96**, 134425-1-9 (Oct. 2017).
- [14] "Investigation of the Vortex States of Sr_2RuO_4 -Ru Eutectic Microplates Using DC-SQUIDS" D. Sakuma, Y. Nago, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, Y. Maeno, H. Takayanagi, Journal of the Physical Society of Japan **86**, 114708-1-6 (Oct. 2017).
- [15] "Spin Seebeck effect in the polar antiferromagnet $\alpha - \text{Cu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ " Y. Shiomi, R. Takashima, D. Okuyama, G. Gitgeatpong, P. Piyawongwatthana, K. Matan, T. J. Sato, E. Saitoh, Physical Review B **96**, 180414(R)-1-5 (Nov. 2017).
- [16] "Two-dimensional Dirac semimetal phase in undoped one-monolayer FeSe film" S. Kanayama, K. Nakayama, G. N. Phan, M. Kuno, K. Sugawara, T. Takahashi, T. Sato, Physical Review B **96**, 220509(R)-1-5 (Dec. 2017).
- [17] "Quantized chiral edge conduction on domain walls of a magnetic topological insulator" K. Yasuda, M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, F. Kagawa, Y. Tokura, Science **358**, 1311-1-5 (Dec. 2017).
- [18] "Observation of Dirac-like energy band and ring-torus Fermi surface associated with the nodal line in topological insulator CaAgAs " D. Takane, K. Nakayama, S. Souma, T. Wada, Y. Okamoto, K. Takenaka, Y. Yamakawa, A. Yamakage, T. Mitsuhashi, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Takahashi, T. Sato, npj Quantum Materials **3**, 1-1-6 (Jan. 2018).
- [19] "Topological interface states in the natural heterostructure $(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_6$ with Bi_{pb} defects", H. Momida, G. Bihlmayer, S. Blügel, K. Segawa, Y. Ando, and T. Oguchi, Phys. Rev. B **97**, 035113 (Jan. 2018).
- [20] "Fermi-level tuning of the Dirac surface state in $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ thin films" Y. Satake, J. Shiogai, D. Takane, K. Yamada, K. Fujiwara, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, A. Tsukazaki, Journal of Physics: Condensed Matter **30**, 085501-1-6 (Feb. 2018).
- [21] "Selective fabrication of free-standing ABA and ABC trilayer graphene with/without Dirac-cone energy band" K. Sugawara, N. Yamamura, K. Matsuda, W. Norimatsu, M. Kusunoki, T. Sato, and T. Takahashi NPG Asia Materials **10**, e466 (Feb. 2018).