

強相関物質のトポロジカル相

前野 悦輝 / 京都大学 大学院理学研究科 教授

計画研究 A01「強相関物質のトポロジカル相」の目的は、電子間の相互作用が強い物質（強相関物質）での、トポロジカルに非自明な量子凝縮状態や量子相転移の研究を格段に深化・発展させることです。本研究では、遷移金属酸化物や重い電子系化合物を主な舞台として、人工超格子や微細加工・接合系も含めて、特にトポロジカル相の出現や物性制御における、電子相関の有効性を明らかにしてきました。

研究テーマとして、主にトポロジカル超伝導体、トポロジカル半金属、トポロジカル磁性体（絶縁体）の3つの軸に沿って進めています（図1）。昨年度から今年度にかけては、トポロジカル磁性体（絶縁体）で以下(3-1)にご紹介する、キタエフ量子スピン液体でのマヨラナ・フェルミオン観測に関して、世界的に注目される顕著な成果を挙げました。

以下では今年度の主な成果をテーマごとにご紹介します。なお、文末の引用文献リストで、[a-d]はH29(2017)年度2月以降、[1-33]はH30(2018)年度の研究項目A01（計画研究と公募研究）の発表論文を発表順に並べたものです。



図1: 計画研究 A01 で扱う主な物質と物性。

【1. トポロジカル超伝導体】

トポロジカル超伝導の研究が世界的に展開される中で、本新学術領域の特徴として、ルテニウム酸化物・重い電子系化合物を含むバルク系での研究成果があげられます。また、薄膜、微細構造、人工超格子系でも独自性の高い成果を挙げています。

(1-1) ルテニウム酸化物のスピント重項超伝導

Sr_2RuO_4 については、一軸性圧力印加による超伝導性の顕著な変化や微細加工・接合系での新現象で進展があり、その多くはまだ論文発表に至っていないものの、トポロジカル超伝導現象を引き出すための活発な研究を展開中です。常伝導相のスピント揺らぎについては、前野 (A01) らのドイツとの国際共同研究による、全波数領域をカバーした定量的な中性子データから、スピント重項超伝導のメカニズムにはスピント揺らぎだけでは不十分というこれまでの認識が検証されました [33]。浅野 (A01)・田仲 (B01)・前野らは、ロシアとの国際共同研究で、 Sr_2RuO_4 の表面インピーダンスの測定を行い、その結果をカイラル p 波超伝導の理論に基づいて解釈しました [21]。また前野・米澤 (A01) らは、JREP 制度で招へいた Bobowski 博士とともに、純良単結晶育成法のさらなる改良にも取り組みました [29]。

浅野らは、多軌道/多バンド超伝導のうち、 s 波スピント重項超伝導は不純物散乱に対して強いこと [14]、また s 波でも $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ や $\text{Sr}_{3-x}\text{SnO}$ で議論されているスピント重項かつ軌道の交換に対して反対称な超伝導は、不純物散乱の下で脆弱であることを示しました [1]。さらに、異常近接効果を示すスピント重項 p 波超伝導と等価な超伝導状態を実現する必要条件を明らかにしました [3,7]。

前野・柏谷 (B01) らは、析出した Ru 金属片 1 個を取り巻く Sr_2RuO_4 微小結晶で、Ru 金属の超伝導転移 (0.5 K) 温度以下での、超伝導競合効果を明らかにしました [2]。この成果については、本誌計画研究 B01 の記事をご覧ください。

また、米澤・前野・田仲 (B01) らは、 Sr_2RuO_4 と強磁性体 Sr_2RuO_3 との接合系での、クーパ対の強磁性体への侵入現象の実験結果を理解するための、スピント重項超伝導理論を展開しました [16]。

(1-2) ネマチック超伝導

超伝導秩序変数が結晶の回転対称性を自発的に破る「ネマチック超伝導」状態については、キャリアドーブしたトポロジカル絶縁体 $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ での

TOPICS

超伝導を中心に米澤がレビュー論文で解説しました [26]。米澤・前野らは、ネマチック超伝導性の制御や Sr_2RuO_4 の電子状態制御に有効な、一軸性圧力印加装置の改良にも取り組みました [31]。

(1-3) アンチペロブスカイト酸化物の超伝導

アンチペロブスカイト酸化物は、3次元ディラック電子を持つトポロジカル結晶絶縁体の候補です。前野・米澤・佐藤昌 (D01) らはキャリアドープした $\text{Sr}_{3-x}\text{SnO}$ でアンチペロブスカイト酸化物では初めての超伝導を発見しましたが、今年度は、試料合成法の改良により超伝導転移温度と Sr 欠損量との関係を明らかにしました [32]。

(1-4) 重い電子系化合物および超格子における超伝導と磁性

土師 (Topo-Q PD)・笠原 (A01)・寺嶋 (A01)・松田 (A01) らは、世界に類を見ない希土類薄膜作製装置、および走査型トンネル顕微鏡の複合装置を用いて、重い電子系化合物の薄膜や人工超格子の研究を展開しています。準2次元ラインノードをもち、広義にはトポロジカル超伝導体と分類される CeCoIn_5 において、非磁性不純物効果が銅酸化物高温超伝導体とは本質的に異なること [b]、また、姉妹物質である CeRhIn_5 の磁気秩序状態において、 f 電子がフェルミ面形成に寄与することを明らかにしました [30]。 CeCoIn_5 と CeRhIn_5 を用いた超格子では、隣接する CeRhIn_5 磁性層の磁気揺らぎにより CeCoIn_5 超伝導層の超伝導対相互作用が増強されるという、これまでにない方法で超伝導状態が制御できることを明らかにしました [11]。

(1-5) その他のトポロジカル超伝導

近藤 (公募研究 A01) らは、角度分解光電子分光法 (ARPES) によって、鉄系超伝導体 $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ ($x=0.45$) の表面状態の電子分散と超伝導ギャップを観測し、トポロジカル超伝導性を明らかにしました [6]。

空間反転対称性のない超伝導体 PbTaSe_2 はトポロジカル超伝導体の候補の一つであり、最近盛んに研究されています。俣野 (A01)・鄭 (A01) らは、その超伝導対称性を NMR 法を用いて研究し、フルギャップのスピナー重項超伝導体であることを明らかにしました [8]。

藤本 (A01)・水島 (D01) らは、ワイル超伝導・ディ

ラック超伝導において、格子変形由来のカイラル電磁場によって誘起される新奇現象の理論研究を進展させ、擬似的カイラル磁場が、それと平行な方向に超伝導流を発生させることを見出しました [4]。これはワイル半金属で予言されているカイラル磁気効果の超伝導版のような効果といえます。ワイル半金属のカイラル磁気効果は、現実の物質では実現しないことが知られていますが、超伝導の場合は、無散逸な超伝導流であるので、実現可能です。

また、藤本・水島らは、ワイル半金属におけるカイラル異常現象の重要な例である負の磁気抵抗に類似した現象が、ワイル超伝導において擬似的磁場によって実現可能であることを示し、負の磁気熱抵抗として実験的に観測可能であることを明らかにしました [25]。

【2. トポロジカル半金属等】

(2-1) アンチペロブスカイト酸化物のディラック電子

米澤・前野らは、超伝導体 $\text{Sr}_{3-x}\text{SnO}$ 及び母物質 Sr_3SnO の NMR 測定から、母物質でディラック電子系を特徴づける状態密度を明らかにしました [18]。また、北川 (A01)・高木 (A01) らは、アンチペロブスカイト構造酸化物 Sr_3PbO が理論計算通りの3次元ディラック電子を持つことを、量子振動とホール伝導から明らかにしました [19]。

打田 (公募研究 A01) らは、ディラック半金属 $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$ の高品質の薄膜化に成功し、組成制御によるトポロジカルディラック半金属から自明な絶縁体へのトポロジカル相転移や、ゲート制御による量子ホール状態を実現しました [13, 15]。

(2-2) トポロジカル近藤絶縁体

トポロジカル近藤絶縁体は強相関トポロジカル相の典型例のひとつです。松田・笠原らはトポロジカル近藤絶縁体の候補物質である YbB_{12} において、磁化および電気抵抗の量子振動を観測し、さらに量子振動の起源が試料内部の絶縁体状態に由来するものであることを明らかにしました [24]。量子振動は金属の「顔」とも言うべきフェルミ面の存在を示す直接的な証拠を与え、フェルミ面を持たない絶縁体では通常観測は期待されません。本研究における「絶縁体の量子振動」の観測は前例がなく、従来の常識を覆すものです [24]。

【3. トポロジカル磁性体】

(3-1) キタエフ・ハニカム格子でのスピ液体

マヨラナ・フェルミオンが実現しうる系である、キタエフ量子スピ液体に関する研究を著しく進展させました。強いスピ軌道相互作用に起因する有効磁気モーメント $J_{\text{eff}}=1/2$ のイオンが、ハニカム(ハチの巣)格子にある場合、キタエフ・ハイゼンベルグ模型に必要な異方的相互作用(キタエフ型相互作用)が主要になると考えられています。理論の美しさと、現実物質で実現できる可能性があるため、非常に魅力的なテーマです。(Li,Na)₂IrO₃ や α -RuCl₃ などが有力な候補物質ですが、いずれも低温で磁気秩序化してスピ液体性を失います。

しかし、北川・高木らは、イリジウム酸化物で極低温まで磁気転移しない、キタエフ候補物質初のスピナー軌道液体物質 H₃LiIr₂O₆ を発見しました [c]。マヨラナ粒子に関係があると思われる奇妙な磁場依存フェルミ統計が、比熱・磁化・NMR で観測されており、現実のキタエフ物質マヨラナ研究の進展が期待されます。

また、笠原・松田・那須 (D02) らは、 α -RuCl₃ の磁気転移が磁場で抑制されることを利用して、低温までスピ液体性を維持することに成功し、熱ホール伝導度が量子化することを明らかにしました [12, 17]。その量子化値は量子ホール効果状態で期待される値の 1/2 倍であり、「半整数熱量子ホール効果」の観測に世界で初めて成功しました。このような半整数量子化はマヨラナ・フェルミオンおよび非可換エニオンの直接的な証拠を与えるものです (図 2)。詳細は本誌のトピックスを御覧ください。

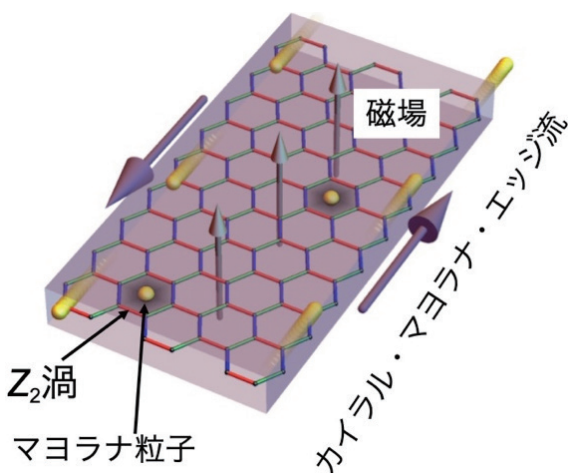


図 2: 半整数熱量子ホール効果状態の概念図 [17]。試料の端にはカイラル・マヨラナ・エッジ流、試料内部にはマヨラナ・フェルミオンと Z₂ 渦の複合粒子である非可換エニオンが生ずる。

また、宇田川 (A01) らはキタエフ模型の厳密解を拡張し、動的相関関数の厳密な解析的表式を導きました。解析解に基づいてダイナミクスを網羅的に調べた結果、不純物周りで、キタエフスピ液体特有の励起である Vison に起因するゼロエネルギー共鳴という現象を見出しました [27]。この共鳴現象は NMR を用いて検出することが可能であり、スピ液体相とその素励起の同定に用いることができます。

(3-2) パイロクロア格子酸化物等

松田・笠原らは、パイロクロア酸化物 Pr₂Zr₂O₇ について、量子スピ液体状態における低エネルギースピ励起を熱輸送測定により調べ、磁気モノポール、トポロジカル欠陥である電気モノポール、ギャップレスなフォトン励起などの創発準粒子の存在を明らかにしました [10]。

また、宇田川らはパイロクロア磁性体の磁気構造因子に現れる半月構造 (図 3) の起源を明らかにしました [22]。この半月構造は、スピ液体の一つの形態であるクーロン相に近いことを示すと解釈できます。この特徴を示す系に外部的な摂動を与えることにより、スピ液体相を実現できる可能性があります。この解釈に基づき、スピネル磁性体 AB₂O₄(A=Zn, Hg, Mg; B=Cr, Fe) の中性子回折像の構造を議論しました。

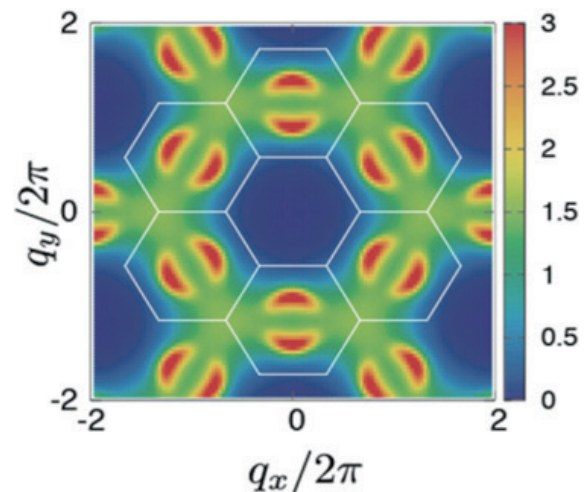


図 3: パイロクロア磁性体の磁気構造因子と半月構造 [22]。

以上述べたように、本計画研究 A01 は、《研究項目 A: トポロジーと強相関》の柱として、公募研究 A01 (4 件)・D02 (4 件) との連携や他の研究項目との間での共同研究で様々な成果を挙げました。さらに、国際共同研究の展開も含め、強相関系でのト

TOPICS

ポロジカル物質科学の分野で世界を先導する研究成果を発信しています。

● H29(2017) 年度 2月以降の計画研究 A01 発表論文

- [a] "Structural characterisation of high-mobility Cd_3As_2 films crystallised on SrTiO_3 ", Y. Nakazawa, M. Uchida, S. Nishihaya, M. Kriener, Y. Kozuka, Y. Taguchi, M. Kawasaki, *Sci. Rep.* **8**, 2244-1-6 (Feb. 2018).
- [b] "In Situ STM Observation of Nonmagnetic Impurity Effect in MBE-grown CeCoIn_5 Films", M. Haze, Y. Torii, R. Peters, S. Kasahara, Y. Kasahara, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, *J. Phys. Soc. Jpn* **87**, 034702-1-6 (Feb. 2018).
- [c] "A spin-orbital-entangled quantum liquid on a honeycomb lattice", K. Kitagawa, T. Takayama, Y. Matsumoto, A. Kato, R. Takano, Y. Kishimoto, S. Bette, R. Dinnebier, G. Jackeli, H. Takagi, *Nature* **554**, 341-345 (Feb. 2018).
- [d] "Topological properties and functionalities in oxide thin films and interfaces", M. Uchida, M. Kawasaki, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 143001-1-12 (Mar. 2018).

● H30(2018) 年度の研究項目 A01 発表論文 (発表順)

- [1] "Dirty two-band superconductivity with interband pairing order", Y. Asano, A. Sasaki, A. A. Golubov, *New J. Phys.* **20**, 043020-1-10 (Apr. 2018).
- [2] "Magnetization measurements of Sr_2RuO_4 -Ru eutectic microplates using dc-SQUIDs", Y. Nago, D. Sakuma, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, Y. Maeno, H. Takayanagi, *J. Phys: Conf. Series* **969**, 012040-1-5 (Apr. 2018).
- [3] "Index theorem for the flat Andreev bound states at a dirty surface of a nodal superconductor", S. Ikegaya, Y. Asano, *J. Phys.: Conf. Series* **969**, 012079-1-6 (Apr. 2018).
- [4] "Charge/spin supercurrent and the Fulde-Ferrell state induced by crystal deformation in Weyl/Dirac superconductors", Taiki Matsushita, T. Liu, T. Mizushima, S. Fujimoto, *Phys. Rev.* **B97**, 134519-1-11 (Apr. 2018).
- [5] "Minimal Conductance Quantization in a Normal-Metal/Unconventional-Superconductor Junction", S. Ikegaya, Y. Asano, *J. Low Temp. Phys.* **191**, 96-104 (Apr. 2018).
- [6] "Observation of topological superconductivity

on the surface of an iron-based superconductor", P. Zhang, K. Yaji, T. Hashimoto, Y. Ota, T. Kondo, K. Okazaki, Z. Wang, J. Wen, G. D. Gu, H. Ding, S. Shin, *Science* **360**, 182-186 (Apr. 2018).

- [7] "Symmetry conditions of a nodal superconductor for generating robust flat-band Andreev bound states at its dirty surface", S. Ikegaya, S. Kobayashi, Y. Asano, *Phys. Rev. B* **97**, 174501-1-9 (May. 2018).
- [8] "Fully gapped spin-singlet superconductivity in noncentrosymmetric PbTaSe_2 : ^{207}Pb nuclear magnetic resonance study", S. Maeda, K. Matano, G.Q. Zheng, *Phys. Rev. B* **97**, 184510-1-5 (May 2018).
- [9] "Charge disproportionation of mixed-valent Cr triggered by Bi lone-pair effect in the A-site-ordered perovskite $\text{BiCu}_3\text{Cr}_4\text{O}_{12}$ ", M. Etter, M. Isobe, H. Sakurai, A. Yaresko, R.E. Dinnebier, H. Takagi, *Phys. Rev. B* **97**, 195111-1-7 (May 2018).
- [10] "Discovery of Emergent Photon and Monopoles in a Quantum Spin Liquid", Y. Tokiwa, T. Yamashita, D. Terazawa, K. Kimura, Y. Kasahara, T. Onishi, Y. Kato, M. Halim, P. Gegenwart, T. Shibauchi, S. Nakatsuji, E-G Moon, Y. Matsuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 064702-1-5 (May 2018).
- [11] "Tuning the Pairing Interaction in a d-Wave Superconductor by Paramagnons Injected through Interfaces", M. Naritsuka, P.F.S. Rosa, Yongkang Luo, Y. Kasahara, Y. Tokiwa, T. Ishii, S. Miyake, T. Terashima, T. Shibauchi, F. Ronning, J.D. Thompson, Y. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 187002-1-6 (May 2018).
- [12] "Unusual Thermal Hall Effect in a Kitaev Spin Liquid Candidate α - RuCl_3 ", Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimozawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, Y. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 217205-1-6 (May 2018).
- [13] "Gate-tuned quantum Hall states in Dirac semimetal $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$ ", S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, M. Kriener, Y. Kozuka, Y. Taguchi, M. Kawasaki, *Science Advances* **18**, eaar5668-1-26 (May 2018).
- [14] "Green's-function theory of dirty two-band superconductivity", Y. Asano, A. A. Golubov, *Phys. Rev. B* **97**, 214508-1-15 (Jun. 2018).
- [15] "Negative magnetoresistance suppressed

- through a topological phase transition in $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$ ", S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, K. Akiba, M. Kriener, Y. Kozuka, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, M. Kawasaki, *Phys. Rev. B* **97**, 245103-1-13 (Jun. 2018).
- [16] "Theory of tunneling spectroscopy of normal metal/ferromagnet/spin-triplet superconductor junctions", L. A. B. Olde Olthof, S.-I. Suzuki, A. A. Golubov, M. Kunieda, S. Yonezawa, Y. Maeno, Y. Tanaka, *Phys. Rev. B* **98**, 014508-1-11 (Jul. 2018).
- [17] "Majorana quantization and half-integer thermal quantum Hall effect in a Kitaev spin liquid", Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, Sixiao Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, Y. Matsuda, *Nature* **559**, 227–231 (Jul. 2018).
- [18] "Normal-state properties of the antiperovskite oxide $\text{Sr}_{3-x}\text{SnO}$ revealed by ^{119}Sn -NMR", S. Kitagawa, K. Ishida, M. Oudah, J. N. Hausmann, A. Ikeda, S. Yonezawa, Y. Maeno, *Phys. Rev. B* **98**, 100503(R)-1-5 (Sep. 2018).
- [19] "Magnetotransport in Sr_3PbO antiperovskite", S. Suetsugu, K. Hayama, A. W. Rost, J. Nuss, C. Mühle, J. Kim, K. Kitagawa, H. Takagi, *Phys. Rev. B* **98**, 115203-1-6 (Sep. 2018).
- [20] "Infrared phonon spectra of quasi-one-dimensional Ta_2NiSe_5 and Ta_2NiS_5 ", T. I. Larkin, R. D. Dawson, M. Höppner, T. Takayama, M. Isobe, Y.-L. Mathis, H. Takagi, B. Keimer, A. V. Boris, *Phys. Rev. B* **98**, 125113-1-9 (Sep. 2018).
- [21] "Local impedance on a rough surface of a chiral p -wave superconductor", S. V. Bakurskiy, Ya. V. Fominov, A. F. Shevchun, Y. Asano, Y. Tanaka, M. Yu. Kupriyanov, A. A. Golubov, M. R. Trunin, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, Y. Maeno, *Phys. Rev. B* **98**, 134508-1-16 (Oct. 2018).
- [22] "Magnetic clustering, half-moons, and shadow pinch points as signals of a proximate Coulomb phase in frustrated Heisenberg magnets", T. Mizoguchi, L.D.C. Jaubert, R. Moessner, M. Udagawa, *Phys. Rev. B* **98**, 144446-1-22 (Oct. 2018).
- [23] "Orbital-selective metal-insulator transition lifting the t_{2g} band hybridization in the Hund metal $\text{Sr}_3(\text{Ru}_{1-x}\text{Mn}_x)_2\text{O}_7$ ", M. Nakayama, T. Kondo, K. Kuroda, C. Bareille, M. D. Watson, S. Kunisada, R. Noguchi, T. K. Kim, M. Hoesch, Y. Yoshida, S. Shin, *Phys. Rev. B* **98**, 161102(R)-1-5 (Oct. 2018).
- [24] "Quantum oscillations of electrical resistivity in an insulator", Z. Xiang, Y. Kasahara, T. Asaba, B. Lawson, C. Tinsman, L. Chen, K. Sugimoto, S. Kawaguchi, Y. Sato, G. Li, S. Yao, Y. L. Chen, F. Iga, John Singleton, Y. Matsuda, Lu Li, *Science* **362**, 65–69 (Oct. 2018).
- [25] "Negative Thermal Magnetoresistivity as a Signature of a Chiral Anomaly in Weyl Superconductors", T. Kobayashi, T. Matsushita, T. Mizushima, A. Tsuruta, S. Fujimoto, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 207002-1-6 (Nov. 2018).
- [26] "Nematic Superconductivity in Doped Bi_2Se_3 Topological Superconductors", S. Yonezawa, *Condensed Matter* **4**, 4010002-1-20 (Dec. 2018).
- [27] "Vison-Majorana complex zero-energy resonance in the Kitaev spin liquid", M. Udagawa, *Phys. Rev. B* **98**, 220404(R)-1-5 (Dec. 2018).
- [28] "Monoclinic SrIrO_3 -a Dirac semimetal produced by non-symmorphic symmetry and spin-orbit coupling", T. Takayama, A. N. Yaresko, H. Takagi, *J. Phys.: Cond. Matter* **31**, 074001-1-7 (Dec. 2018).
- [29] "Improved Single-Crystal Growth of Sr_2RuO_4 ", J. S. Bobowski, N. Kikugawa, T. Miyoshi, H. Suwa, H.-S. Xu, S. Yonezawa, D.A. Sokolov, A.P. Mackenzie, Y. Maeno, *Condens. Matter* **4**, 4010006-1-11 (Jan. 2019).
- [30] "Direct Evidence for the Existence of Heavy Quasiparticles in the Magnetically Ordered Phase of CeRhIn_5 ", M. Haze, R. Peters, Y. Torii, T. Suematsu, D. Sano, M. Naritsuka, Y. Kasahara, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 014706-1-4 (Jan. 2019).
- [31] "Piezoelectric-based uniaxial strain cell with high strain throughput and homogeneity", I. Kostylev, S. Yonezawa, Y. Maeno, *J. Appl. Phys.* **125**, 082535-1-10 (Jan. 2019).
- [32] "Evolution of Superconductivity with Sr-Deficiency in Antiperovskite Oxide $\text{Sr}_{3-x}\text{SnO}$ ", M. Oudah, J.N. Hausmann, S. Kitao, A. Ikeda, S. Yonezawa, M. Seto, and Y. Maeno, *Sci. Rep.* **9** 1831 (Feb. 2019).
- [33] "Spin fluctuations in Sr_2RuO_4 from polarized neutron scattering: Implications for superconductivity", P. Steffens, Y. Sidis, J. Kulda, Z.Q. Mao, Y. Maeno, I. I. Mazin, and M. Braden, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 047004-1-6 (Feb. 2019).