

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、新しいトポロジカル半金属・超伝導物質の探索・実証、トポロジカル絶縁体の表面・界面ディラック電子制御、奇周波数クーパー対の理論において進展がありました。これらの成果は、薄膜作製や先端分光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します。

1. トポロジカル超伝導

トポロジカル超伝導体中に現れるマヨラナ束縛状態はトポロジカル量子計算などへの応用から注目されており、これまでドーピングしたトポロジカル絶縁体、ルテニウム酸化物、BCS 超伝導体と半導体ナノワイヤとの接合系などがトポロジカル超伝導体候補として盛んに研究されています。しかしながら、マヨラナ束縛状態の確固たる実験的証拠はまだ得られていません。これまで発見されてきたトポロジカル超伝導候補は超伝導転移温度 (T_c) が低く、より安定したマヨラナ束縛状態の実現のためには、「高温」トポロジカル超伝導体の探索が重要になります。佐藤 (B01 代表者)、相馬 (B01 研究協力者) らは、分子線エピタキシー (MBE) 法によって、銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Bi2212; $T_c = 85$ K) 上にラッシュバ金属である Bi(110) の超薄膜を作製し、超伝導近接効果によって Bi の電子状態に巨大なエネルギーギャップを誘起することに成功しました (図 1)。さらに、このギャップが 85 K 程度まで残ることも明らか

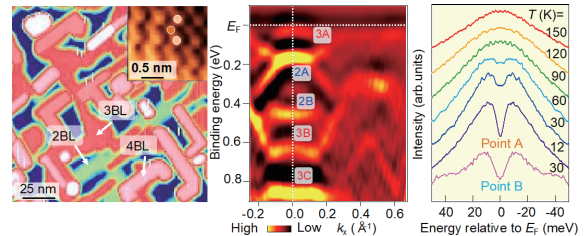


図 1: Bi(110)/Bi2212 の (左)STM 像, (中央)バンド構造, および (右)超伝導近接効果によるエネルギーギャップ [6]

にし、Bi の電子状態が、高温におけるトポロジカル超伝導発現に適していることを見出しました。今後、磁場下におけるマヨラナ束縛状態の検出が期待されます。関連して、佐藤、瀬川 (B01 分担者)、相馬、安藤 (B01 研究協力者) らは、トポロジカル絶縁体上に超伝導単結晶薄膜を作製することに成功し、トポロジカル界面状態に誘起されたエネルギーギャップの観測とトポロジカル超伝導性の検証を進めています。

柏谷 (B01 分担者)、田仲 (B01 分担者) らは、トポロジカル超伝導体の候補物質である Sr_2RuO_4 について、表面インピーダンスに基づくカイラリティと奇周電子対による近接効果の観測を目的に、極低温マイクロ波キャビティ測定を行い、奇周波電子対の効果も考慮した準古典理論との対応を検証しました。その結果、観測された表面インピーダンスは、 s 波超伝導体である Al とは顕著に異なる性質を有し、 T_c 以下で虚部が増加するという結果を得ました (図 2)。準古典理論に基づく解析と比較し、カイラル p 波対称性とは矛盾しない結果を与えることを確認しました [9]。また DC-SQUID 上にマイクロ結晶を載せ、自発磁化を測定する実験を進めましたが、現状では自発磁化を観測するには至っていません [24]。またダイヤモンドを用いた局所磁化測定の観測手法の開発 [15] や、 WTe_2 の結晶において磁気抵抗・磁気振動の観測などを進め [25]、トポロジカル物質の微小結晶の特性解析を行う準備を進めています。

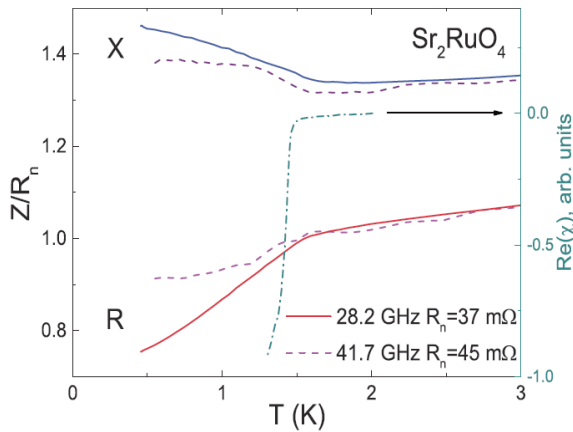


図 2: Sr_2RuO_4 の表面インピーダンス ($Z=R-iX$) の温度依存性. 縦軸はノーマル状態の抵抗値で規格化した. T_c 以下で X の増加が低温まで続く [9].

2. トポロジカル半金属

よく知られたトポロジカル半金属の一種であるディラック半金属やワイル半金属は波数空間における縮退が「点」で起こるのに対して、その縮退が 1 次元的な線上で起こる「線ノード半金属」が最近注目され、候補物質の探索が精力的に進められています。佐藤, 相馬, 安藤らは、 Ta_3SiTe_6 という三元化合物物質が、結晶格子の持つ映進対称性によって保護された 2 種類の異なる線ノードを持つことを見出しました (図 3)。また、フェルミ準位近傍では、スピン軌道相互作用によりアワグラスフェルミオン型の特殊なバンド構造が現れることも明らかにしました。今回の実験結果は、結晶の持つノンシンモルフィックな対称性が、トポロジカル半金属の探索において重要であることを示したものです。

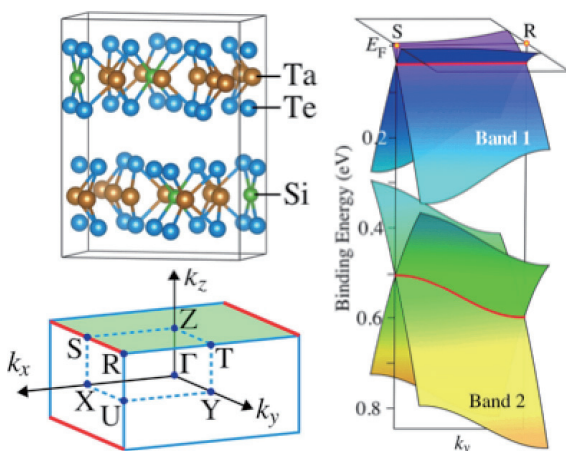


図 3: Ta_3SiTe_6 の結晶構造とブリルアンゾーン. SR 軸上に映進対称性によって保護された線ノードが観測される [11]

また、佐藤, 相馬らは、ホウ素の蜂の巣格子ネットワークを有し、よく知られた超伝導体 MgB_2 ($T_c = 39 \text{ K}$) と同一結晶構造を持つ AlB_2 に着目し、放射光を用いたバルク敏感 ARPES によって、その 3 次元的な電子構造を決定しました [14]。その結果、ディラック粒子の特徴である X 字型バンド分散を明確に観測することに成功し、さらにこのバンドが線ノードを形成することを見出しました (図 4)。これは、 AlB_2 の蜂の巣格子がグラフェンと同様のカイラル対称性を持ち、かつその積層パターンが AA 型であることに起因しています。今後、 $(\text{Mg,Al})\text{B}_2$ において超伝導と線ノードとの関連を明らかにする研究の進展が期待されます。

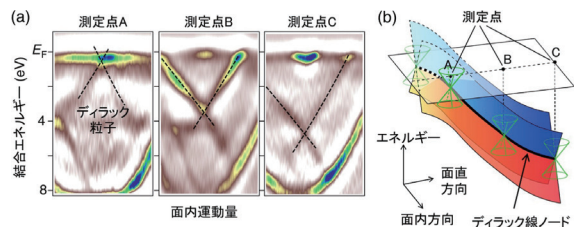


図 4: AlB_2 における (a) ディラック電子分散の k_z 依存性 [14] と (b) 線ノードの模式図

3. トポロジカル絶縁体薄膜素子

塚崎 (B01 分担者) と佐藤らは、MBE と ARPES を活用して、 $(\text{Bi,Sb})_2\text{Se}_3$ 混晶 (BSS) 薄膜の電子構造理解と物性評価を進めてきました。その BSS 薄膜をチャンネルに用いた電界効果型トランジスタの膜厚依存性を詳細に検証して、 E_F 制御を実証しました。特に、試料面直方向に形成された pn 接合の寄与を明らかにし、バルク中の残留電子と残留正孔の空乏層形成をバルク絶縁化に利用できることを示しました [13]。こうした素子動作原理の理解は、BSS 薄膜を用いたトポロジカル表面状態の伝導特性理解に欠かせません。今回、断面構造の素子 (図 5(a)) の BSS 層の厚さ d (nm) を変えて、FET 動作を測定しました。図 5(b) に示すとおり、明瞭な ambipolar 動作を示すピーク構造を R_{xx} に観測しました。この R_{xx} ピークは、電荷中性点の最小状態密度を反映した高抵抗化によるものです。また、8 nm からの膜厚増加に伴って、ピークを示すゲート電圧が負から正にシフトすることがわかります。したがって、この V_G シフトは、上部の p 型 BSS 層の膜厚変化によって、下部層

TOPICS

の n 型 Bi_2Se_3 との界面に形成される空乏層が電荷中性点を制御するための外部ゲート電圧 V_G に影響していることを示しています。この結果から、およそ 12 nm 程度の時に、バルク中の残留電荷量が最小となり、 E_F が電荷中性点に制御されたと結論できます。

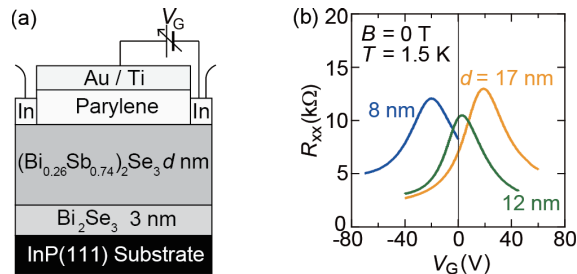


図 5: $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ をチャンネルとする電界効果トランジスタの断面構造図 (a) と膜厚 ($d = 8, 12, 17\text{nm}$) の素子における縦抵抗のゲート電圧依存性 (b)

塚崎らは、この素子構造に磁性不純物として Fe を選択して電気伝導特性評価を行ってきましたが、これまでにヒステリシスを伴う強磁性の発現は観測されていません。一方で、 E_F 制御を確立できたことから、Fe 添加試料の伝導特性を詳細に検証することができるようになりました。Fe 組成と Bi/Sb 比を調整した上で、さらに膜厚を変化させて比較しました。図 6(a) には、 $d = 30\text{nm}$ のバンド分散を示しており、表面状態が維持されていることがわかります。図 6(b) で抵抗の温度依存性を比較すると、 $d = 14\text{nm}$ の試料が絶縁体的な振る舞いを示し、Fe 不添加試料や厚い $d = 30\text{nm}$ 試料と大きく異なることを見出しました。この試料に面直磁場を印加すると (図 6(c,d))、大きな負の磁気抵抗とともに、正の大きなホール抵抗

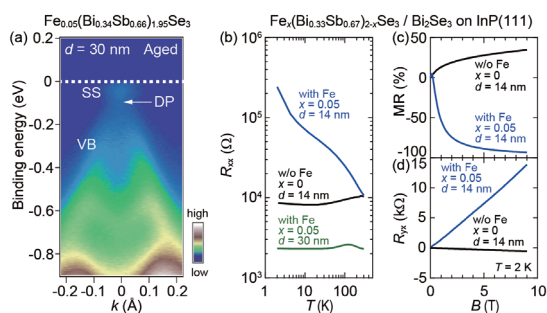


図 6: (a) Fe 添加 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ ($d = 30\text{nm}$) のバンド分散・表面状態が観測される。(b)-(d) Fe 添加 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ ($d = 30\text{nm}$ と 14nm) と Fe 不添加膜の抵抗の温度依存性と 2 K での磁気抵抗及びホール抵抗。

抗を観測しました。この結果は、Fe 添加と磁場印加を合わせることで、電子状態に大きな変化が生じることを示唆しています。これらの (b)-(d) の結果は、磁場誘起によるトポロジカル相転移に起因すると考えられます。今後、この現象の起源を探るべく、ゼロ磁場での絶縁化と磁場印加による電子構造変化を検討していきます。

4. 奇周波数クーパー対の理論

4-1. 新しいバルク・エッジ対応の理論

田仲 (B01 分担者), 田村 (B01 PD) らは、エッジ状態として誘起される奇周波数クーパー対とバルクのグリーン関数の間にスペクトラル・バルクエッジ対応と呼ばれる関係式が成り立つことを提案しました [1]。通常バルク・エッジ対応は、バルクにおける巻きつき数とエッジ状態の数との関係を与えます。一方で本研究は、バルクの巻きつき数をグリーン関数で記述することで有限周波数に拡張したものが、端における奇周波数ペア振幅と、任意の複素周波数において一致することを明らかにしました [1]。また奇周波数クーパー対の低エネルギー構造を解析しました。低周波数極限では奇周波数クーパー対のペア振幅は $F(z) = W/z + \chi z + O(z^3)$ のように書けます (z は複素周波数)。第一項の発散的な振る舞い ($\sim 1/z$) をする奇周波数ペアの係数 W は巻き付き数であり、トポロジカル相を特徴づける整数であることが明らかになりました。一方、特異性をもたない第 2 項 ($\sim z$) の係数 χ はトポロジカル量子転移点に向かって発散し、トポロジカル相転移への不安定性を示すことを明らかにしました [4]。カイラル対称性を持つ 1 次元系の典型例であるキタエフ p 波超伝導モデルや近接効果で結合したナノワイヤのモデルの臨界性は量子イジングモデルと同じ性質を示すことが知られていますが、さらに多様な臨界性があることが明らかになりました。

4-2. 異常近接効果

田村と田仲は、奇周波数スピン 3 重項ペアが作り出す異常近接効果の研究を行いました。奇周波数クーパー対の示す顕著な現象の中に、異常近接効果と呼ばれるものがあります。拡散伝導領域の金属 (DN) とスピン 3 重項超伝導体の接合においては、近接効果により DN 領域に奇周波数ス

ピン 3 重項 s 波のペアが浸入して準粒子状態密度が零エネルギーでピークを持つ異常近接効果が表れます。これは、DN 中の準粒子状態の零エネルギーにおいてギャップを持つ従来型の近接効果（スピン 1 重項 s 波によるもの）とは顕著に異なり異常近接効果と呼ばれています。超伝導体界面に形成される零エネルギーアンドレーエフ束縛状態（ZESABS）によって奇周波数スピン 3 重項 s 波クーパー対が界面で増幅されて、近接効果として DN 領域に浸入することに対応しています。これに対してスピン 1 重項の d 波超伝導体においては、ZESABS は界面に存在しますが、奇周波数クーパー対の対称性がスピン 1 重項 p 波であるために、DN 中への近接効果は起こらないことが知られていました。今回超伝導体領域にスピン軌道相互作用がある場合についての研究を行った結果（図 7）、基板上に存在するスピン 1 重項 d 波超伝導体接合系においては、ラシュバスピ軌道相互作用が十分に大きくなると、スピン 3 重項 s 波のクーパー対が作り出されるために、DN 上に浸入することができるようになり、異常近接効果が現れることが明らかになりました [2]。

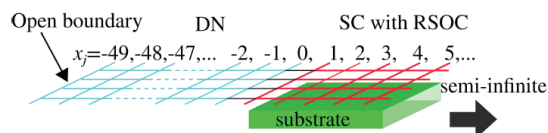


図 7: ラシュバスピ軌道相互作用の効果を取り入れて異常近接効果を計算したモデル [2]

- [1] "Odd-frequency pairs in chiral symmetric systems: spectral bulk-boundary correspondence and topological criticality", S. Tamura, S. Hoshino, Y. Tanaka, arXiv:1809.05687.
- [2] "Theory of proximity effect in two-dimensional unconventional superconductor with Rashba spin-orbit interaction", S. Tamura, Y. Tanaka, arXiv:1804.04018.
- [3] "Current-driven magnetization switching in ferromagnetic bulk Rashba semiconductor (Ge,Mn)Te" R. Yoshimi, K. Yasuda, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, Science Advances **4**, eaat9989 (Dec. 2018).
- [4] "Pulsed-laser deposition of InSe thin films for the detection of thickness-dependent bandgap modification" D. Zheng, J. Shiogai, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, Applied Physics Letters **113**, 253501-1-4 (Dec. 2018).
- [5] "Emergence of interfacial conduction and ferromagnetism in MnTe/InP" R. Watanabe, R. Yoshimi, M. Shirai, T. Tanigaki, M. Kawamura, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, R. Arita, M. Kawasaki, Y. Tokura, Applied Physics Letters **113**, 181602-1-4 (Nov. 2018).
- [6] "Ultrathin bismuth film on high-temperature cuprate superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ as a candidate of topological superconductor" N. Shimamura, K. Sugawara, S. Sucharitakul, S. Souma, K. Iwaya, K. Nakayama, C. X. Trang, K. Yamauchi, T. Oguchi, K. Kudo, T. Noji, Y. Koike, T. Takahashi, T. Hanaguri, T. Sato, ACS Nano **12**, 10977-10983 (Oct. 2018).
- [7] "Observation of Dirac-like energy band and unusual spectral line shape in quasi-one-dimensional superconductor $\text{Tl}_2\text{Mo}_6\text{Se}_6$ " K. Nakayama, Z. Wang, C. X. Trang, S. Souma, E. D. L. Rienks, T. Takahashi, Y. Ando, T. Sato, Physical Review B **98**, 140502(R)-1-5 (Oct. 2018).
- [8] "Topological quantum phase transition in magnetic topological insulator upon magnetization rotation" M. Kawamura, M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, Physical Review B **98**, 140404(R)-1-5 (Oct. 2018).
- [9] "Local impedance on a rough surface of a chiral p-wave superconductor" S. V. Bakurskiy, Y. V. Fominov, A. F. Shevchun, Y. Asano, Y. Tanaka, M. Y. Kupriyanov, A. A. Golubov, M. R. Trunin, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, Y. Maeno, Physical Review B **98**, 134508-1-16 (Oct. 2018).
- [10] "Pseudogap, Fermi arc, and Peierls-insulating phase induced by 3D-2D crossover in monolayer VSe_2 " Y. Umemoto, K. Sugawara, Y. Nakata, T. Takahashi, T. Sato, Nano Research 2018, 12274-1-5 (Sep. 2018).

TOPICS

- [11] "Observation of band crossings protected by nonsymmorphic symmetry in the layered ternary telluride Ta_3SiTe_6 " T. Sato, Z. Wang, K. Nakayama, S. Souma, D. Takane, Y. Nakata, H. Iwasawa, C. Cacho, T. Kim, T. Takahashi, Y. Ando, *Physical Review B* **98**, 121111(R)-1-6 (Sep. 2018).
- [12] "Ferromagnetic insulator $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ thin films with perpendicular remanence" M. Mogi, A. Tsukazaki, Y. Kaneko, R. Yoshimi, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura *APL Materials* **6**, 091104-1-8 (Sep. 2018).
- [13] "Effect of the depletion region in topological insulator heterostructures for ambipolar field-effect transistor" Y. Satake, J. Shiogai, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, *Physical Review B* **98**, 125415-1-7 (Sep. 2018).
- [14] "Observation of a Dirac nodal line in AlB_2 " D. Takane, S. Souma, K. Nakayama, T. Nakamura, H. Oinuma, K. Hori, K. Horiba, H. Kumigashira, N. Kimura, T. Takahashi, T. Sato, *Physical Review B* **98**, 041105(R)-1-5 (Jul. 2018).
- [15] "Influence of dynamical decoupling sequences with finite-width pulses on quantum sensing for AC magnetometry" T. Ishikawa, A. Yoshizawa, Y. Mawatari, H. Watanabe, S. Kashiwaya, *Physical Review Applied*, **10**, 054059-1-8 (Jul. 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, *Physical Review B* **98**, 014508-1-11 (Jul. 2018).
- [17] "Electromagnetic effects induced by a time-dependent axion field" K. Taguchi, T. Imaeda, T. Hajiri, T. Shiraishi, Y. Tanaka, N. Kitajima, T. Naka, *Physical Review B* **97**, 214409-1-6 (Jun. 2018).
- [18] "Spontaneous modulation of superconducting phase in Kitaev ladder" S. Nakosai, Y. Tanaka, T. K. Ng, N. Nagaosa, *Journal of the Physical Society of Japan* **87**, 083702-1-5 (Jun. 2018).
- [19] "Study on Green's function on topological insulator surface" B. Lu, Y. Tanaka, *Philosophical Transactions of the Royal Society A* **376**, 20150246-1-17 (Jun. 2018).
- [20] "Anisotropic band splitting in monolayer NbSe_2 : implications for superconductivity and charge density wave" Y. Nakata, K. Sugawara, S. Ichinokura, Y. Okada, T. Hitosugi, T. Koretsune, K. Ueno, S. Hasegawa, T. Takahashi, T. Sato, *npj 2D Materials and Applications* **2**, 12-1-6 (May 2018).
- [21] "Interorbital topological superconductivity in spin-orbit coupled superconductors with inversion symmetry breaking" Y. Fukaya, S. Tamura, K. Yada, Y. Tanaka, P. Gentile, M. Cuoco, *Physical Review B* **97**, 174522-1-17 (May 2018).
- [22] "Ultrathin bismuth film on 1T-TaS₂: structural transition and charge-density-wave proximity effect" K. Yamada, S. Souma, K. Yamauchi, N. Shimamura, K. Sugawara, C. X. Trang, T. Oguchi, K. Ueno, T. Takahashi, T. Sato, *Nano Letters* **18**, 3235–3240 (Apr. 2018).
- [23] "Local density of states in two-dimensional topological superconductors under a magnetic field: Signature of an exterior Majorana bound state" S. Suzuki, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, *Physical Review B* **97**, 144516-1-14 (Apr. 2018).
- [24] "Magnetization measurements of Sr_2RuO_4 -Ru eutectic microplates using dc-SQUIDs" Y. Nago, Y. D. Sakuma, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, Y. Maeno, H. Takayanagi, *Journal of Physics Conference Series* **969**, UNSP 012040 (Apr. 2018).
- [25] "Extremely large magnetoresistance in a high-quality WTe_2 grown by flux method" K. Tsumura, R. Yano, H. Kashiwaya, M. Koyanagi, S. Masubuchi, T. Machida, H. Namiki, T. Sasagawa, S. Kashiwaya, *Journal of Physics Conference Series* **969**, UNSP 012134 (Apr. 2018).