

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、トポロジカル半金属における新型準粒子観測や薄膜素子開発、トポロジカル超伝導体の探索、奇周波数クーパ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. トポロジカル半金属

1-1. 新型ノーダル準粒子

トポロジカル半金属中に現れることが知られているディラックおよびワイル粒子は、真空状態において存在する素粒子として提案されたものです。一方で固体は多様な対称性をもち、なかでも空間反転対称性を破るカイラルな結晶構造を持つ物質において、ディラックやワイル粒子とも違う準粒子が存在することが理論的に予言されました。そのような粒子として、粒子の内部自由度がディラック粒子とワイル粒子の中間にある「スピン 1 粒子」や、2 つのワイル粒子が複合した「2 重ワイル粒子」など、高次の自由度をもつ新型の

粒子があります。これらの新型粒子にはディラック・ワイル粒子にはない物性が予想されており、トポロジカル物質の探索に大きな広がりを与えるものとして期待されています。佐藤 (B01 代表者)、相馬 (B01 研究協力者)、安藤 (B01 研究協力者) らは、カイラルな結晶構造を持ち古くから研究がされている CoSi (図 1a) に着目し、その角度分解光電子分光 (ARPES) を行って「スピン 1 粒子」の特徴である平らなバンドと山型のバンドが一点で交差するバンド分散と、「2 重ワイル粒子」の特徴である入れ子になった X 字型バンド分散を、それぞれ明確に分離して観測しました (図 1b)。さらに表面電子状態についても調べ、これらの粒子のバンドの縮退点をつなぐ表面フェルミアーキ電子状態の観測にも成功しました。この結果は、これらの準粒子がそれぞれ異なるカイラリティを持つことを示しており、トポロジカルに頑強な性質の有力な証拠となります [25]。これらの結果より、CoSi が「スピン 1 粒子」と「2 重ワイル粒子」を内包する新しいタイプのトポロジカル半金属であることが実験的に確立しました。今後、このようなカイラル構造を持つ物質における準粒子に起因した特異物性の発現が期待されます。

1-2. ワイル半金属薄膜素子

塚崎 (B01 分担者) は、バルク単結晶を用いた研究でワイル半金属の可能性が指摘された Fe_3Sn_2 の薄膜化研究を行いました。薄膜化技術を適用することで、組成や構造について系統的な研究を行うことができ、さらには異常ホール効果を活用する素子利用の可能性を探索できます。本研究では、結晶相ではない Fe-Sn 混晶相の特性を利用した室温でのホール素子活用に向けた研究を行いました。 Fe_3Sn_2 のバルク単結晶を用いた研究では、線形バンドにギャップ構造が観測され、ワイル半金属である可能性が示唆されました。塚崎らはスパッタリング法を用いて Fe と Sn の組成調整を行う際に、非結晶相の物性測定から開始したところ、組成を $\text{Fe}:\text{Sn}=3:2$ とした非結晶相においても単結晶同等の大きな異常ホール効果を示すこと (図 2)

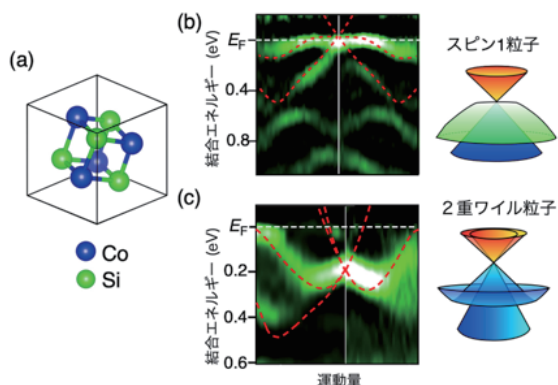


図 1: (a) CoSi の結晶構造. ARPES により観測した (b) スピン 1 粒子と、(c) 2 重ワイル粒子のバンド分散. 赤点線はバンド計算結果 [25].

TOPICS

を見出しました [23]。磁場印加で生じるホール抵抗の大きさは、通常利用される Si 系の半導体ホール素子の性能と同等であることがわかりました。また、Fe-Sn のホール抵抗の温度変化は非常に小さく、強磁性転移温度以下であれば、安定して利用できることがわかりました。さらに、磁場検出素子として重要なノイズ特性についても評価したところ、1kHz 以下の低周波数まで利用できることを確認しました [4]。これらの特性は、室温以上の強磁性転移温度を持つ磁性ワイル半金属物質群が、バンドトポロジーに由来する異常ホール効果などの際立った物性を示し、室温での素子利用に有望であることを示唆しています。ワイル半金属候補物質としてホイスラー合金なども理論的な検討がなされているため、バルク物質や薄膜を用いた物性研究の今後のさらなる展開が期待されます。

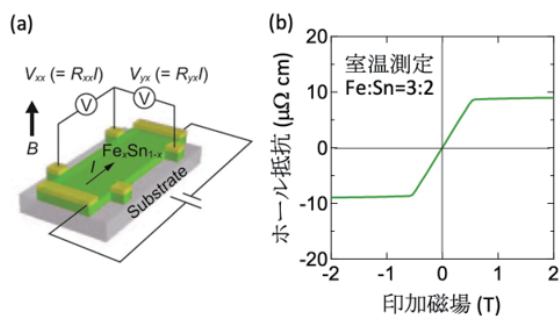


図 2: Fe-Sn ホール素子の模式図 (a) と室温で測定したホール抵抗の磁場依存性 (b) [23]。

2. トポロジカル超伝導

2-1. トポロジカル超伝導体実現の新しい方法

マヨラナ粒子を内包するトポロジカル超伝導体の実現方法としてこれまで一般的に用いられているのが、超伝導近接効果を用いる方法です。この方法では、例えば、トポロジカル絶縁体と超伝導体を接合した場合、超伝導体側からトポロジカル絶縁体側にクーパー対が侵入することで、二つの物質のあいだの界面付近に存在するディラック電子が超伝導化されます。この超伝導化されたディラック電子が、マヨラナ粒子検出の鍵となります。しかしながらこの方法では、マヨラナ粒子が物質内部の界面付近に埋もれてしまうため、STM などを用いた場合でも、その検出が難しいという大きな課題がありました。佐藤、相馬、瀬川 (B01 分担者)、山内 (D01 公募)、安藤らは、トポロジカル絶縁体 TlBiSe₂ の上に、分子線エピタキシー法

を用いて Pb 超伝導薄膜を成長させることに成功し、ARPES を用いて Pb 表面のバンド分散を調べた結果、Pb 薄膜とトポロジカル絶縁体の界面に埋もれて全く見えないはずのディラックコーンバンドが、Pb 表面において明確に観測されることを明らかにしました [1] (図 3)。このことは、もともとトポロジカル絶縁体の表面に局在していたディラック電子が、Pb との接合によって Pb 側に移動することを示しています。さらに、Pb 薄膜の超伝導転移温度 (~6 K) 以下で超高分解能測定を行ったところ、ディラックコーンにおいて超伝導ギャップが明確に観測されました。これらの結果は、これまで不可欠と考えられてきた超伝導近接効果を用いずとも、トポロジカル超伝導が実現できることを強く示唆しています。さらにこの結果は、普通の超伝導体としてよく知られる Pb の薄膜にトポロジカル絶縁体を接合しただけで、Pb がトポロジカル超伝導体に変換できることを示唆しています。今回の結果は、「超伝導近接効果を用いる」というこれまでの常識とは異なり、接合した超伝導体そのものをトポロジカル超伝導体に変えるという新しい方向性を示すものです。このアイデアは汎用性が高く、他のさまざまな超伝導体とトポロジカル絶縁体の組み合わせにも適用できると考えられます。

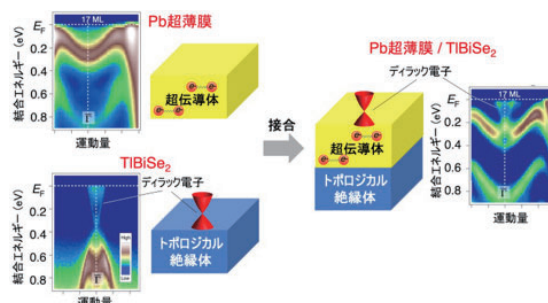


図 3: Pb/TlBiSe₂ の ARPES 結果 [1]。Pb 超伝導薄膜 (左上) と TlBiSe₂ (左下) の接合により、もともと TlBiSe₂ 表面にあったディラック電子状態が、Pb 超薄膜側に移動する (右)。

2-2. ジョセフソン効果によるトポロジカル結晶超伝導の検出

カイラル *p* 波超伝導体と長らく信じられてきた Sr₂RuO₄ の時間反転対称性の破れに関しては、μSR などの実験が時間反転破れを主張しているのに対して、走査 SQUID などでは時間反転破れが検出されないという不一致が存在しました。柏谷 (B01 分担者)、田仲 (B01 分担者)、佐藤 (D01 分

担者)、前野 (A01 代表者) らは、ジョセフソン効果により時間反転対称性を精密に計測する手法を提案し、それを適用することにより Sr_2RuO_4 が時間反転対称性を破らない超伝導であることを明らかにしました。まず非従来型超伝導と s 波超伝導体のジョセフソン関係においては、非従来型超伝導体が時間反転対称性を破る場合にのみ $\cos$ 項が有限になりますが、この項が臨界電流 (I_c) の外部磁場 (H) 依存性においてどのような影響を与えるのかを理論的に解析しました。その結果、平面型の接合、およびコーナー接合において、 I_c - H パターンの電流磁場反転 (CFI) 対称性と非従来型超伝導体の時間反転対称性が対応することを明らかにしました。一方実験においては $\text{Sr}_2\text{RuO}_4/\text{Nb}$ 接合を作製し、サイズ依存性からドメイン運動に影響を受けない素子サイズと磁場範囲を明らかにしました。そのうえでドメイン運動の影響を排除した I_c - H 特性を精密に測定し、結果として I_c - H 特性の CFI 反転対称性が厳密に保たれている実験結果を得ることができ (図 4)、 Sr_2RuO_4 の時間反転対称性が破れていないことを証明しました。このことは、 Sr_2RuO_4 がドメイン構造を有するヘリカル対称性の可能性が高く、結晶の鏡映対称性も併せて考慮した場合、エッジに結晶対称性により保護された 2 つのマヨラナゼロモードを有するトポロジカル結晶超伝導体と考えられることを示しています [8]。他に、磁性をドーブしたトポロジカル絶縁体上のジョセフソン効果によるマヨラナ準粒子形成の実験的検出 [2] や、エッジ電流検出のためのダイヤモンドセンシング技術の開発を進めました [24]。

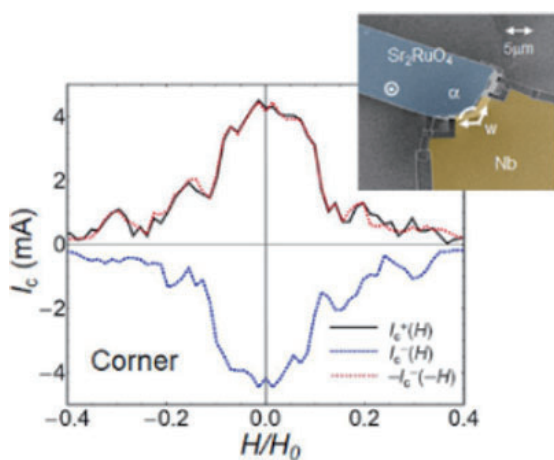


図 4: $\text{Sr}_2\text{RuO}_4/\text{Nb}$ コーナージョセフソン接合における I_c - H 特性 [8]。負側の I_c - H (青線) に対して電流および磁場反転した $-I_c(-H)$ (赤線) が正側の $I_c(H)$ (黒線) と一致することより時間反転対称性が破れていないことが示されている。挿入図は接合の走査イオン顕微鏡像。

2-3. 磁気ドーブしたトポロジカル絶縁体上の超伝導接合の理論

田仲らは、Bo・田仲らが 2018 年に開発したグリーン関数の方法を用いることで、磁気ドーブしたトポロジカル絶縁体上の超伝導体接合におけるジョセフソン効果の計算を行いました。化学ポテンシャルと磁化の大きさを制御しながら、(I) 常伝導状態が絶縁体的で超伝導状態がトポロジカルに自明な場合、(II) 常伝導状態が絶縁体的で超伝導状態がトポロジカルな場合、(III) 常伝導状態が金属的で超伝導状態がトポロジカルな場合の 3 つの場合について、ジョセフソン電流の温度依存性を計算しました。その結果、トポロジカル超伝導の領域では、カイラルマヨラナフェルミオンの存在により低温でジョセフソン電流が大きく増加し、この振る舞いが化学ポテンシャルに対して鋭敏な状況が (II) の場合であることが明らかになりました [7]。

3. 奇周波数クーパー対の理論

3-1. バルクエッジ対応とスペクトラル分解

超伝導体表面に形成される表面アンドレーエフ束縛状態とバルクのトポロジカル不変量の間には 1 対 1 の関係があります。特に d 波超伝導体のようなノードを持つ超伝導体においてゼロエネルギー状態とバルクのトポロジカル不変量が指数定理で結びつくことが示されています (2011 年佐藤・田仲ら)。また、ゼロエネルギー状態が存在するときに奇周波数クーパー対が存在することも示されています (2007 年田仲ら)。しかし、奇周波数ペアに関する明確なバルクエッジ対応は確立していませんでした。

田村 (B01 PD)、田仲らは、カイラル対称性が存在する場合に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予言して、Kitaev 鎖やスピン軌道相互作用のあるナノワイヤ超伝導近接効果系などの代表的なモデルに対して数値的に (ある場合は解析的に) 成り立つことを示しました [20]。その結果、低周波数極限では奇周波数クーパー対のペア振幅は $F(z) = W/z + \chi z + O(z^3)$ (z は複素周波数) と表せることがわかりました。第一項の発散的な振る舞い ($\sim 1/z$) をする係数 W は巻き付き数であり、トポロジカル相においてのみゼロでな

TOPICS

い整数になります。一方、特異性を持たない第2項($\sim z$)の係数 χ は常に存在するもので、この係数はトポロジカル量子転移点に向かって発散して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 [20]。この理論により奇周波数クーパー対の総和がバルクの系で定義される c 数で議論できるようになり、奇周波数クーパー対のスペクトラル解析が飛躍的に進展しました。

3-2. Kitaev 鎖超伝導と奇周波数ペアの理論

高木、田村、田仲は、1次元 p 波超伝導モデルである Kitaev 鎖における奇周波数クーパー対を数値的に調べました [3]。その結果、奇周波数ペアはマヨラナフェルミオンと1対1の対応関係を持つことが示され、またトポロジカル量子臨界点においては、奇周波数ペアが半無限 Kitaev 鎖のバルク領域へと広がることを明らかにしました。トポロジカル量子転移点ではギャップレス超伝導状態になり、本来スピン3重項 p 波超伝導しかないバルク領域においても奇周波数ペアが存在するという新奇な効果を示しました。この性質は、スピン軌道相互作用のあるナノワイヤなどの様々なトポロジカル超伝導に普遍的に表れると期待されます [3]。

3-3. 異常近接効果

異常近接効果とは、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、近接効果により DN 領域で準粒子状態密度が零エネルギーでピークを持つ現象です (2014年田仲・柏谷)。さらにこの起源は、奇周波数はスピン3重項 s 波によることが明らかにされました (2017年田仲)。そこで、2つの超伝導電極が接合した場合において拡散伝導領域 (DN) における状態密度の計算を行った (図5) 結果、従来型 s 波超伝導の場合は近接効果の担い手はスピン1重項 s 波となり、位相差が0の時に近接効果が強められゼロエネルギーの状態密度はギャップ構造を示す一方で、位相差が π の場合は近接効果は弱められてゼロエネルギーの状態密度は常伝導状態の値へと戻ることがわかりました。 p 波超伝導の場合は近接効果の担い手はスピン3重項 s 波となり、準粒子状態密度はゼロエネルギーでピーク構造を持ちます。このとき、位相差が0の場合はゼロエネルギー状態が接合系に一樣に広がるのに対して、 π の場合は DN の中心で干渉効果により状態密度は常伝導

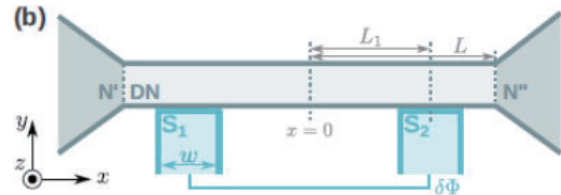


図5: 2つの超伝導電極が接合した超伝導接合の模式図 [14]。バリア障壁はS/DN界面にのみ存在し、超伝導体は $x = \pm L_1$ においてDNに接合されており、位相差 $\delta\Phi$ を持つ。

状態の値となることを見出しました。ゼロエネルギー状態の位相干渉を特徴づける位相干渉長は、従来型の近接効果では非弾性散乱の強度で決まりますが、 p 波超伝導体の場合は非弾性散乱の強度に加えて共鳴の強さ (バリアーの高さ) も強く影響することがわかりました (田仲、浅野 (A01 分担者) [14])。

バルクのスピン3重項超伝導体は希少ですが、スピン軌道相互作用を有効に用いれば銅酸化物超伝導体のようなスピン1重項 d 波超伝導体接合においてもゼロエネルギー状態からスピン3重項クーパー対を作り出すことが可能となり、異常近接効果は存在することが示されました [19]。

- [1] "Conversion of a conventional superconductor into a topological superconductor by topological proximity effect" C. X. Trang, N. Shimamura, K. Nakayama, S. Souma, K. Sugawara, I. Watanabe, K. Yamauchi, T. Oguchi, K. Segawa, T. Takahashi, Y. Ando, T. Sato, Nature Communications, **11**, 159 (Jan. 2020).
- [2] "Unusual superconducting proximity effect in magnetically doped topological Josephson junctions" R. Yano, M. Koyanagi, H. Kashiwaya, K. Tsumura, H. T. Hirose, T. Sasagawa, Y. Asano, S. Kashiwaya, Journal of the Physical Society of Japan **89**, 034702 (Feb. 2020).
- [3] "Odd-frequency pairing and proximity effect in Kitaev chain systems including topological critical point" D. Takagi, S. Tamura, Y. Tanaka, Physical Review B **101**, 024509-1-15 (Jan. 2020).
- [4] "Low-frequency noise measurements on Fe-Sn Hall sensors" J. Shiogai, Z. Jin, Y. Satake, F. Fujiwara, A. Tsukazaki, Applied Physics Express **12**, 123001-1-5 (Nov. 2019).
- [5] "Unusual change in the Dirac-cone energy band upon a two-step magnetic transition in CeBi" H. Oinuma, S. Souma, K. Nakayama, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Yoshida, A. Ochiai, T. Takahashi, T. Sato, Physical Review B **100**, 125122-1-7 (Sep. 2019).
- [6] "Theory of the Josephson current on a magnetically doped topological insulator" T. Toki, S. Nakosai, Y. Tanaka, Y. Kawaguchi,

- Physical Review B **100**, 104518-1-11 (Sep. 2019).
- [7] "Spin-orbital hallmarks of unconventional superconductors without inversion symmetry" Y. Fukaya, [S. Tamura](#), K. Yada, [Y. Tanaka](#), P. Gentile, M. Cuoco, Physical Review B **100**, 104524-1-15 (Sep. 2019).
 - [8] "Time-reversal invariant superconductivity of Sr_2RuO_4 revealed by Josephson effects" [S. Kashiwaya](#), K. Saitoh, H. Kashiwaya, M. Koyanagi, [M. Sato](#), K. Yada, [Y. Tanaka](#), [Y. Maeno](#), Physical Review B **100**, 094530-1-9 (Sep. 2019).
 - [9] "Quantum anomalous Hall effect driven by magnetic proximity coupling in all-telluride based heterostructure" R. Watanabe, [R. Yoshimi](#), M. Kawamura, M. Mogi, [A. Tsukazaki](#), X. Z. Yu, K. Nakajima, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, Applied Physics Letters **115**, 102403-1-5 (Sep. 2019).
 - [10] "Electronic structure of a $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{FeTe}$ heterostructure: implications for unconventional superconductivity" K. Owada, K. Nakayama, R. Tsubono, K. Shigekawa, K. Sugawara, T. Takahashi, [T. Sato](#), Physical Review B **100**, 064518-1-5 (Aug. 2019).
 - [11] "Majorana multipole response of topological superconductors" S. Kobayashi, [A. Yamakage](#), [Y. Tanaka](#), [M. Sato](#), Physical Review Letters **123**, 097002-1-6 (Aug. 2019).
 - [12] "Dimensionality reduction and band quantization induced by potassium intercalation in 17-HfTe_2 " Y. Nakata, K. Sugawara, A. Chainani, [K. Yamauchi](#), K. Nakayama, [S. Souma](#), P.-Y. Chuang, C.-M. Cheng, T. Oguchi, K. Ueno, T. Takahashi, [T. Sato](#), Physical Review Materials **3**, 071001(R)-1-6 (Jul. 2019).
 - [13] "Dichotomy of superconductivity between monolayer FeS and FeSe " K. Shigekawa, K. Nakayama, M. Kuno, G. N. Phan, K. Owada, K. Sugawara, T. Takahashi, [T. Sato](#), Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **116**, 24470-24474 (Jul. 2019).
 - [14] "Effects of phase coherence on local density of states in superconducting proximity structures" S. Suzuki, A. A. Golubov, [Y. Asano](#), [Y. Tanaka](#), Physical Review B **100**, 024511-1-11 (Jul. 2019).
 - [15] "Large anomalous Hall effect in topological insulators with proximitized ferromagnetic insulators" M. Mogi, T. Nakajima, V. Ukleev, [A. Tsukazaki](#), [R. Yoshimi](#), M. Kawamura, K. S. Takahashi, T. Hanashima, K. Kakurai, T. Arima, M. Kawasaki, Y. Tokura, Physical Review Letters **123**, 016804-1-6 (Jul. 2019).
 - [16] "Monolayer VTe_2 : incommensurate Fermi surface nesting and suppression of charge density waves" K. Sugawara, Y. Nakata, K. Fujii, K. Nakayama, [S. Souma](#), T. Takahashi, [T. Sato](#), Physical Review B **99**, 241404(R)-1-6 (Jun. 2019).
 - [17] "Evidence for bulk nodal loops and universality of Dirac-node arc surface states in ZrGeX_c ($X_c=\text{S, Se, Te}$)" T. Nakamura, [S. Souma](#), Z. Wang, [K. Yamauchi](#), D. Takane, H. Oinuma, K. Nakayama, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Oguchi, T. Takahashi, [Y. Ando](#), [T. Sato](#), Physical Review B **99**, 245105-1-11 (Jun. 2019).
 - [18] "Nonreciprocal charge transport at topological insulator/superconductor interface" K. Yasuda, H. Yasuda, T. Liang, [R. Yoshimi](#), [A. Tsukazaki](#), K. S. Takahashi, [N. Nagaosa](#), M. Kawasaki, Y. Tokura, Nature Communications **10**, 2734-1-6 (Jun. 2019).
 - [19] "Theory of the proximity effect in two-dimensional unconventional superconductors with Rashba spin-orbit interaction" [S. Tamura](#), [Y. Tanaka](#), Physical Review B **99**, 184501-1-21 (May 2019).
 - [20] "Odd-frequency pairs in chiral symmetric systems: Spectral bulk-boundary correspondence and topological criticality" [S. Tamura](#), S. Hoshino, [Y. Tanaka](#), Physical Review B **99**, 184512-1-17 (May 2019).
 - [21] "Nanomosaic of topological Dirac states on the surface of $\text{Pb}_5\text{Bi}_{24}\text{Se}_{41}$ observed by nano-ARPES" K. Nakayama, [S. Souma](#), C. X. Trang, D. Takane, C. Chen, J. Avila, T. Takahashi, S. Sasaki, [K. Segawa](#), M. C. Asensio, [Y. Ando](#), [T. Sato](#), Nano Letters **19**, 3737-3742 (Apr. 2019).
 - [22] "Ferromagnetic $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ thin films fabricated by co-sputtering" K. Fujiwara, J. Ikeda, J. Shiogai, T. Seki, K. Takanashi, [A. Tsukazaki](#), Japanese Journal of Applied Physics **58**, 050912-1-4 (Apr. 2019).
 - [23] "Fe-Sn nanocrystalline films for flexible magnetic sensors with high thermal stability" Y. Satake, F. Fujiwara, J. Shiogai, T. Seki, [A. Tsukazaki](#), Scientific Reports **9**, 3282-1-7 (Mar. 2019).
 - [24] "Finite-pulse-width effect on quantum sensing for an asynchronous alternating-current magnetic field to dynamical decoupling sequences" T. Ishikawa, A. Yoshizawa, Y. Mawatari, [S. Kashiwaya](#), H. Watanabe, J. Appl. Phys. **126**, 064504-1-5 (Mar. 2019).
 - [25] "Observation of chiral fermions with a large topological charge and associated Fermi-arc surface states in CoSi " D. Takane, Z. Wang, [S. Souma](#), K. Nakayama, T. Nakamura, H. Oinuma, Y. Nakata, H. Iwasawa, C. Cacho, T. Kim, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Takahashi, [Y. Ando](#), [T. Sato](#), Physical Review Letters **122**, 076402-1-6 (Feb. 2019).
 - [26] "Magnetic topological insulators" Y. Tokura, K. Yasuda, [A. Tsukazaki](#), Nature Reviews Physics **1**, 126-143 (Jan. 2019).