

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13512

研究課題名（和文）動力学に基づいた準安定超伝導状態の創出

研究課題名（英文）Kinetic approach to metastable superconductivity

研究代表者

大池 広志 (Oike, Hiroshi)

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：70725283

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、電流パルスを用いた超急冷法によって、超伝導とエネルギー的に競合する秩序（競合秩序）の形成を避けることで、超伝導を実現することに成功した。これにより、従来の熱力学に基づく超伝導探索とは異なる、動力学に基づいた超伝導探索指針を実証した。原理実証は遷移金属ダイカルコゲナイドIrTe<sub>2</sub>を用いて行ったが、スズ系合金でも同様の方法で超伝導の生成に成功しており、本研究課題の成果の波及効果が期待される。さらに、IrTe<sub>2</sub>における競合秩序形成過程を詳細に調べることで、相転移が断続的に進行することを明らかにした。この結果は、相転移の動力学の研究に対して新たな知見を与えるものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

100年以上にわたり超伝導状態を示す新物質の探索が行われてきたが、その際に主に用いられてきた方法は、対象物質の化学組成や圧力を変化させることであった。本研究課題において動力学に基づいた超伝導探索法が実証されたことにより、これまで超伝導状態にはならないと考えられていた化学組成の物質が、超伝導状態を示す候補物質になることが分かった。これは、超伝導探索という研究テーマに対して、新たな切り口が拓かれたことを意味する。さらに、電流パルスによる超伝導-非超伝導状態の書き換えに成功したことは、物質中に超伝導回路を生成/消去する技術開発へと繋がることが期待される。

研究成果の概要（英文）：In strongly correlated electron systems, the emergence of superconductivity is often inhibited by the formation of a thermodynamically more stable magnetic/charge order. In the present study, we kinetically avoid the competing order with rapid cooling, and thereby successfully induce metastable but persistent superconductivity. The proof-of-concept has been demonstrated in a transition-metal dichalcogenide IrTe<sub>2</sub>, and metastable superconductivity is also induced in Ge-doped Sn based on the concept. Thus, our work provides some of the materials that have been categorized as non-superconducting with a fresh chance to yield metastable superconducting behavior. Furthermore, by studying the kinetic process of competing order in IrTe<sub>2</sub>, we found that the phase transition progresses intermittently. This result gives a new insight to physics of phase transition kinetics.

研究分野：物性物理学

キーワード：超伝導 強相関電子系 非平衡 準安定 急冷 メモリ機能

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

1911年の超伝導発見から現在に至るまで、様々な物質系で超伝導探索が行われている。その中でも、1986年の銅酸化物高温超伝導の発見以降は、特に強相関電子系が超伝導探索の舞台として特に注目されている。強相関電子系は、電子間の強い反発力を起源として電子対を形成し、超伝導を発現し得る。しかしその一方で、電子間の強い反発力によるエネルギー損を避けるために、電子集団はその内部自由度(電荷・スピン・軌道)の秩序化を示す。このようなエネルギー的に競合する秩序相の存在により、超伝導形成が期待されていながらも実際には超伝導が観測されない物質が多い。過去に発見されたほとんど全ての超伝導物質は、超伝導を最安定状態にするという探索指針に基づいている。電子相の自由エネルギーは組成や圧力などの熱力学パラメータに依存する。したがって、母物質/常圧では競合する秩序相の自由エネルギーが最も低くても、超伝導相が最安定になる熱力学パラメータ領域に到達すれば超伝導相を実現することができる。

しかし、最安定相を熱力学パラメータで制御することが、唯一の相制御法ではない。自由エネルギー的には最安定ではなくても、観測できる時間スケールでは最安定状態へと変化しない状態(準安定状態)であれば、あたかも安定に存在する物質として扱うことができる。このような相制御法を用いれば、準安定状態として超伝導を実現できることが期待される。

### 2. 研究の目的

本研究では、「急冷によって競合する秩序相の形成を避けることで、準安定状態として超伝導を生成する。」という新たな超伝導探索指針を実証することを目的とした。従来の超伝導探索は、加圧や元素置換を用いて、超伝導が最安定相になる熱力学パラメータ領域を探するという指針に基づいている。これに対し本研究では、すでに調べられている熱力学パラメータ領域において、準安定状態として超伝導を実現することを狙う。このような点で、本研究で実証する超伝導探索指針は、従来の指針とは異なっている。

### 3. 研究の方法

(1) 動力学に基づいた超伝導探索指針を実証する物質を選定するため、二つの基準を設定した。一つ目は、低温では電子が規則正しく配列した「競合秩序」と呼ばれる状態(超伝導の発現を阻害している秩序状態)になるが、圧力や化学組成の変化によって競合秩序がなくなり、超伝導状態が発現されることである。二つ目は、ある温度域で競合秩序が急激に形成されることである。競合秩序が形成される温度域を急冷によって短い時間で通過すると、競合秩序が形成されないまま低温に到達することができる。超伝導の発現を阻害していた競合秩序が急冷によってなくなると、低温では超伝導状態が生成されることが期待される。本研究課題では、これらの基準を満たす物質の一例として、遷移金属ダイカルコゲナイド  $\text{IrTe}_2$  を用いて実験を行った。

(2) 高い冷却速度を実現するために、薄片試料を基板(シリコンまたはプラスチック)に乗せ、電気パルスの印加により試料を急加熱し、パルス終了直後に起こる試料から基板への急激な熱拡散を利用した。図1に示すような  $\text{IrTe}_2$  の薄片試料にパルス電流を加えたところ、試料温度は瞬時に 2.4 K から 400 K まで上昇し(図1b)、パルス電流が終了後には  $10^7 \text{K/sec}$  を超える速度で 2.4 K まで冷却される。

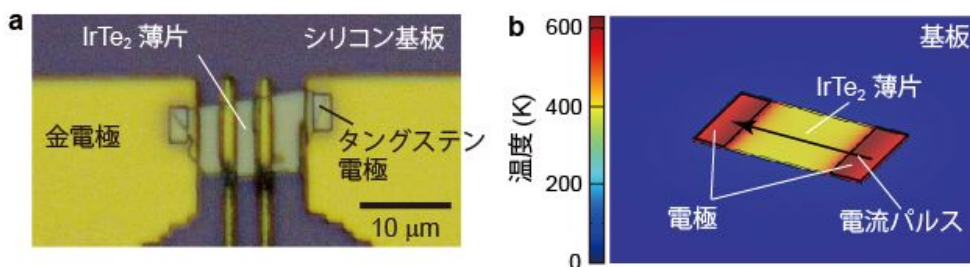


図1 実験手法の概略 (a) 実験で用いた  $\text{IrTe}_2$  の薄片試料と電極の顕微鏡像。(b) パルス電流を加えている間の試料温度のシミュレーション結果。  $\text{IrTe}_2$  の薄片試料の温度が 400 K 程度に上昇している。

### 4. 研究成果

徐冷後の電気抵抗率がゼロにならない試料に対してパルス電流を用いた急冷を適用すると、低温でゼロ抵抗状態を示した(図2)。これは、本研究で提唱した超伝導生成法に基づいて、超伝導状態を生成することに成功したことを意味している。

次に、この超伝導生成法を用いて、  $\text{IrTe}_2$  が示す新たな機能性の創出を試みた。急冷により超伝導状態を生成した後、急冷用のパルス電流よりも低い強度と長い時間のパルス電流を加え、試料温度を 50 K から 280 K の間で保つと、パルス電流の終了後に電気抵抗率は有限の値を示した(図3a)。これは、超伝導と競合する秩序状態が形成される温度域に試料温度を保持したことにより、超伝導が消去されたためであると考えられる。このように、2種類のパルス電流で超伝導状態の生成と消去を繰り返すことに成功し、「超伝導-非超伝導状態を不揮発的に書き換えるメ

メモリ機能（超伝導不揮発メモリ機能）」が実証された(図3b)。従来の超伝導生成法に基づくと、超伝導状態の生成と消去には、化学組成や圧力を変化させる機構を対象物質と組み合わせる必要があった。しかし、今回の超伝導状態の生成と消去を行うパルス電流は、超伝導状態を検出するための回路を用いて加えることができるため、単純なデバイス構造でメモリ機能を実現可能である。

これらの急冷実験を行った際に、複数の試料での測定結果を比較したところ、試料の大きさを小さくするほど、超伝導と競合する秩序の形成に必要な冷却速度が低くなることを見出した。この結果は、試料の大きさが超伝導の生成に関わる相転移現象の動力学を制御するパラメータであることを意味している。このように、研究計画時には予想していなかった原理を示すことに成功した。

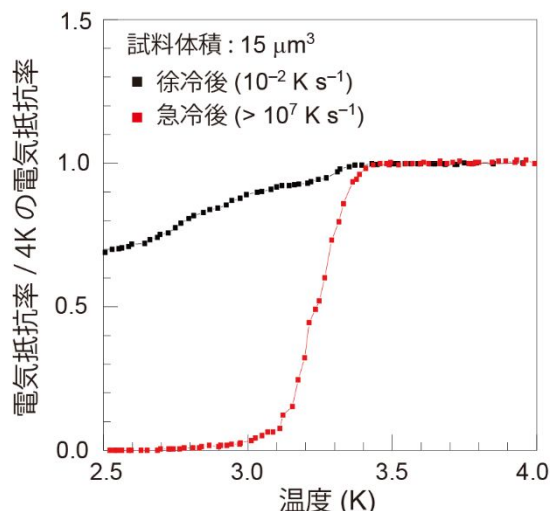


図2 急冷による超伝導の生成。徐冷後はゼロ抵抗状態を示さないのに対し、急冷後はゼロ抵抗状態を示している。

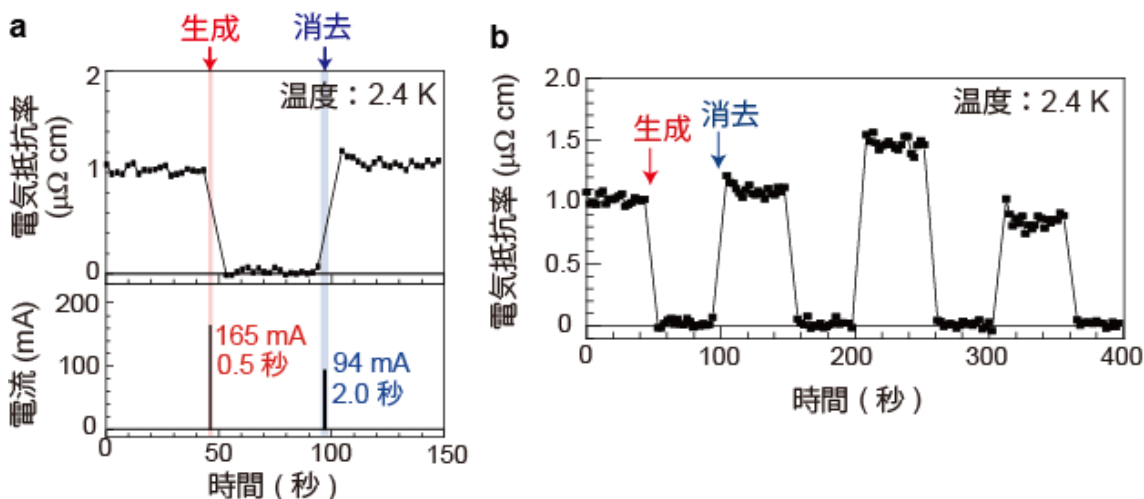


図3 超伝導不揮発メモリの動作実証 (a) 電気抵抗率と電流の時間変化。165mA の電流を 1.5 秒流すと、電気抵抗率がゼロの超伝導状態が生成され、94mA の電流を 2.0 秒流すと超伝導状態が消去された。(b) パルス電流を用いた超伝導の生成/消去の繰り返し動作。

超伝導の発現が競合秩序形成の回避によるものであることを示すために、光学顕微鏡を用いて IrTe<sub>2</sub> の実空間観測を行った。可視光域では競合秩序形成を捉えることができなかったが、ラマン分光を用いて可視光よりも 2 桁程度低いエネルギー領域を調べたところ、格子振動の周波数の変化として競合秩序の形成が観測された。この結果を踏まえ、ラマン顕微鏡を用いて、競合秩序形成ダイナミクスの可視化を行った。秩序形成ダイナミクスは試料が小さいほど遅く、小さい試料中には 2K においても競合秩序が形成されていない領域が観測された。この結果は、秩序形成の回避によって生成された過冷却状態が、最低温において準安定状態として存在することを示している。このように、急冷下で生成されたゼロ抵抗状態が競合秩序形成の回避に起因することを明らかにし、超伝導探索指針を実証した。

さらに、本研究課題で示した超伝導生成法をスズ系合金試料に適用し、同様の原理で準安定超伝導状態を生成することに成功した。このように、動力学に基づいた超伝導生成法は、他の物質系にも適用できることが示され、波及効果が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Oike Hiroshi, Kamitani Manabu, Tokura Yoshinori, Kagawa Fumitaka	4. 巻 4
2. 論文標題 Kinetic approach to superconductivity hidden behind a competing order	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eaa03489
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.aau3489	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3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大池広志
2. 発表標題 急冷を用いた超伝導探索
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大池広志
2. 発表標題 非平衡動力学に基づいた不揮発量子相制御
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

超伝導不揮発メモリの実現 - 書き換え可能な超伝導量子コンピュータへの応用に期待 -  
[http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws\\_201810091106205951671417.html](http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_201810091106205951671417.html)

Rapid cooling reveals superpowers  
[http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20181228\\_2018winter\\_FH/](http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20181228_2018winter_FH/)

Nature research highlights, 05 October 2018, "How to persuade a reluctant metal to take on a superpower"  
<https://www.nature.com/articles/d41586-018-06964-3>

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