

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：15301

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2010～2014

課題番号：22103004

研究課題名（和文）空間反転対称性を破る電子流体の新奇現象

研究課題名（英文）Novel phenomena in electronic fluids with broken inversion symmetry

研究代表者

鄭 国慶（Zheng, Guo-qing）

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：50231444

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 201,900,000円

研究成果の概要（和文）：空間反転対称性の破れとスピン軌道相互作用が協奏した系において、様々なトポロジカル量子現象を観測・解明し、以下のような成果を得た。空間反転対称性の破れた超伝導体において、スピン三重項成分を増大させる要因を突き止めた。新種のトポロジカル絶縁体を発見し、また、ドーブしたトポロジカル絶縁体 $Cu_xBi_2Se_3$ がスピン三重項超伝導状態にあることを明らかにした。さらに、化学ドーブの手法では超伝導転移を示さない $KTaO_3$ において電場誘起法により超伝導を発見した。

研究成果の概要（英文）：In the electronic fluids with broken inversion symmetry and strong spin-orbit coupling, we have investigated various topological quantum phenomena and obtained the following results. In noncentrosymmetric superconductors, we clarified the conditions necessary for bringing about a large spin-triplet component. We have succeeded in synthesizing new topological insulators and found that $Cu_xBi_2Se_3$ is a spin-triplet superconductor. We discovered electric-field-effect induced superconductivity in $KTaO_3$ which cannot be made superconducting by conventional chemical doping method.

研究分野：低温物理学・超伝導実験・核磁気共鳴

キーワード：トポロジカル量子現象 空間反転対称性の破れた超伝導体 トポロジカル絶縁体 トポロジカル超伝導
電気二重層トランジスタ

1. 研究開始当初の背景

本研究課題の申請時に、強い反対称スピン軌道相互作用によって現れる特異な超伝導状態が観測され、電気二重層トランジスタを用いた電場誘起超伝導がSrTiO₃で初めて報告された。またトポロジカル状態が生まれる絶縁体がいくつか報告されていた。しかし、これら新奇状態の学理の究明やより優れた機能をもつ新物質の創製が課題となっていた。特に、最新の研究動向を取り入れて、「トポロジカル量子現象」という新しい視点からスピン軌道相互作用の強い電子流体を横断的に研究することにより、新学術領域を形成することが待望されていた。

2. 研究の目的

本計画研究班では、空間反転対称性の破れと強いスピン軌道相互作用(SOI)が織り成す新奇なトポロジカル量子現象を、(1)空間反転対称性の破れた(Noncentrosymmetric, NCS)超伝導体、(2)電場誘起表面超伝導体、(3)トポロジカル絶縁体、において探究することが目的であった。

課題(1)では、パリティの破れによって現れるスピン三重項超伝導の物性解明やスピン三重項成分を増大させる手法の開発、及び新規なNCS超伝導体の開発を目指した。課題(2)では、電気二重層トランジスタの技術により電場誘起超伝導を実現し、ラシュバ型スピン軌道相互作用が電子輸送特性に与える影響を明らかにすることを目指した。課題(3)においては、トポロジカル絶縁体特有の表面状態を観測し、その物性を解明することを目指した。また、Cu_xBi₂Se₃におけるトポロジカル超伝導の確立を目指した。

3. 研究の方法

- (1) NCS 超伝導体 Li₂(Pd_{1-x}Pt_x)₃B において NMR や比熱測定等からスピン三重項超伝導の出現条件を明らかにする。
- (2) NCS 超伝導体 BiPd, LaPtSi, LaPt₂Ge₂ などの超伝導特性を解明し、NCS 超伝導の普遍的な概念を確立させる。
- (3) トポロジカル超伝導体候補物質 Cu_xBi₂Se₃ における超伝導対の対称性を明らかにし、トポロジカル超伝導の物理を確立させる。
- (4) 高いバルク絶縁性を持つトポロジカル絶縁体 Bi_{2-x}Sb_xTe_{3-y}Se_y 単結晶の特性向上とデバイス実験に適応するため結晶の大型化・純良化を目指す。
- (5) 新種のトポロジカル物質である“トポロジカル結晶絶縁体”SnTe の物性を解明し、ドーピングによるトポロジカル超伝導の実現を目指す。

- (6) 電気二重層トランジスタによる静電的キャリアドープ技術をさらに高め、最初に発見された SrTiO₃ の電場誘起超伝導と酸素欠損ドープによるバルク超伝導との相違を浮き彫りにする。
- (7) SrTiO₃ とはスピン軌道相互作用の効果や電子状態が違う他の物質表面で電場誘起超伝導を発現させ、SrTiO₃ 表面超伝導との違いを明らかにする。

4. 研究成果

(1) 空間反転対称性の破れた超伝導体

Li₂(Pt_{1-x}Pd_x)₃B:

表題物質系においてNMR測定、結晶構造解析及びバンド計算を行い、 $x > 0.8$ の領域ではPt(Pd)B₆八面体の歪みが急激に増大した結果スピン軌道相互作用が急激に増大することを見出した。これがスピン三重項状態出現の原因であることを突き止め、トポロジカルな性質を示しうる空間反転対称性の破れた超伝導体を開発する新たな指針を得た。

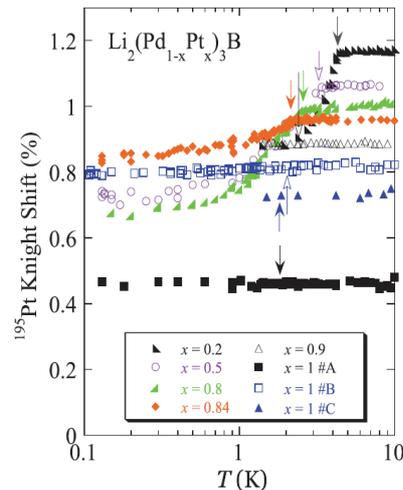


図1: Li₂(Pt_{1-x}Pd_x)₃B におけるナイトシフトの温度依存性。矢印は超伝導転移温度を示す

- (2) 他の空間反転対称性の破れた超伝導体:
上の項目で得た結晶の歪みが反対称スピン軌道相互作用を最も効果的に制御するという知見で、BiPd, LaPtSiなど他のNCS超伝導体の特性を説明できた。また、空間反転対称性の破れが報告されていたLaPt₂Ge₂の結晶構造や電子状態を計画D班の連携研究者と共同で明らかにし、超伝導転移温度を4倍ほど上昇させることに成功した。
- (3) キャリアをドープしたトポロジカル絶縁体:
Cu_xBi₂Se₃の超伝導状態においてNMR測定を行った結果、スピン磁化率の異方性を発見し、クーパー対がスピン三重項状態にあることを明らかにした。

(4) 理想的なトポジカル絶縁体の開発:

バルクの絶縁性が高く、導電性が表面状態で支配される「理想的トポジカル絶縁体」として扱える物質 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ の開発に世界に先駆けて成功した。その上、公募班員との共同研究により、 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ に Sb を加えて最適化した混晶系で、表面電子状態によるスピン分極の観測に成功した。また、トポジカル絶縁体の関連物質として、トポジカル量子相転移点にある TlBiSeS について、バルクのバンドがディラック的分散を示す Dirac 半金属としての興味深い性質を、磁場に比例する大きな磁気抵抗として観測した。

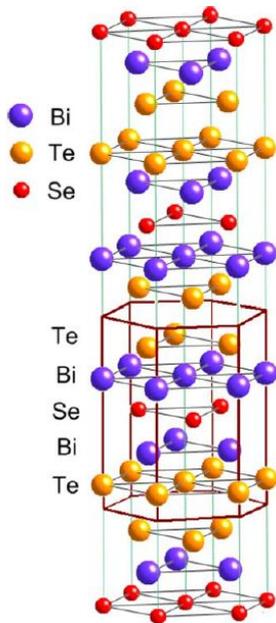


図 2: $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ の結晶構造

(5) 大型備品による成果:

MBE 装置によって Bi_2Se_3 の純良超薄膜試料を作製し、表面状態ではトポジカルな起源によって伝導チャンネルが保護されていることを示す現象を観測した。その後、表面状態の移動度を低下させずにゲーティングによる電子状態の制御ができる技術の開発に成功している。

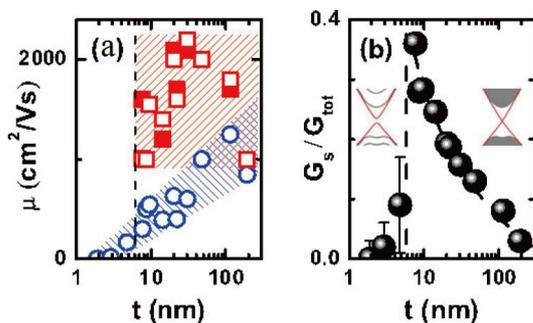


図 3: Bi_2Se_3 薄膜の (a) 移動度, (b) 表面伝導度の膜厚依存性

(6) 新トポジカル超伝導体候補物質の発見:

通常の絶縁体である PbSe 層とトポジカル絶縁体である Bi_2Se_3 層がそれぞれ結晶構造を保ちつつブロックを形成して積層する Pb-Bi-Se 系化合物で、 $(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_{12}$ となる化合物の単結晶合成に成功した。 Bi_2Se_3 層が 2 層積層した化合物について、電気化学的に銅をインターカレートした試料で超伝導を示すことを見出した。

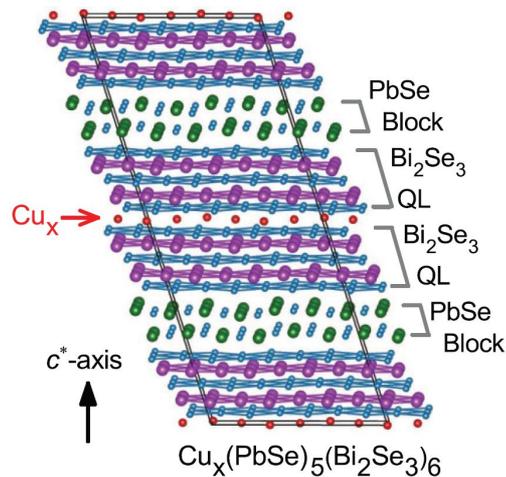


図 4: $(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_{12}$ の結晶構造

(7) トポジカル結晶絶縁体と関連超伝導体発:

トポジカル結晶絶縁体の候補物質 SnTe のエッジ状態を量子振動から実証し、 In ドープ系超伝導の組成依存性を明らかにするとともに、トポジカル超伝導状態を示唆するギャップ内状態密度を観測した。

(8) トポジカル近藤絶縁体の理論計算:

トポジカル近藤絶縁体 SmB_6 に対し $\text{LDA}+\text{U}$ 計算を実行し、トポジカル転移において重要な役割を果たす伝導バンドが、フォノン異常に対しても本質的な役割を担っていることを明らかにした。

(9) 電場誘起二次元超伝導の実証:

$\text{SrTiO}_3(100)$ での電場誘起超伝導が理想的な二次元超伝導であることを計画研究との共同研究により世界で始めて明らかにした。また、伝導キャリア面密度の制御範囲を約 2 桁に及ぶまで拡張し、すべてにおいて金属伝導を得ることに成功した。特に $\text{Ti}3d$ 軌道の混成効果によって増強されたラッシュバ型スピン軌道相互作用を反映した磁気抵抗の面内異方性を初めて観測した。また、 $\text{SrTiO}_3(100), (110), (111)$ のそれぞれの面で電気二重層トランジスタを作製し、電場誘起超伝導を起こすことを明らかにした。

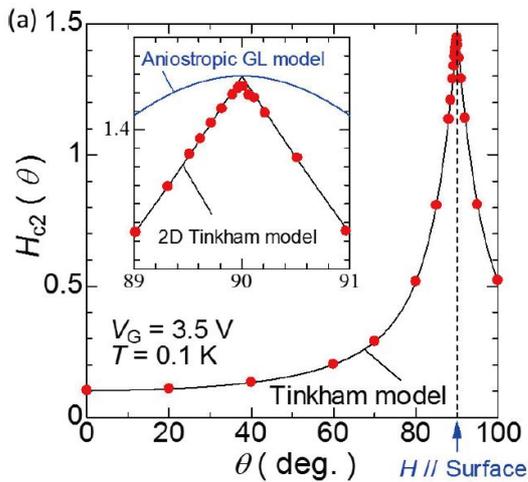


図 5 : SrTiO₃ 電気二重層トランジスタにおける電場誘起超伝導の上。部臨界磁場の方位依存性

(10) 新規電場誘起超伝導体の発見:

化学ドーピング的手法では超伝導が報告されていない KTaO₃ において、その(100)表面での超伝導を電場誘起により発見した。また、モット絶縁体を母物質にもつ銅酸化物超伝導体 YBa₂Cu₃O_y 系薄膜の超伝導転移温度を絶縁体領域まで可逆的に変化させること、無限層 La ドープ SrCuO₂ 超薄膜の電気抵抗を減少させることに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計64件)

* すべての論文に査読有。

S. Maeda, K. Matano, R. Yatagai, T. Oguchi and G.-q. Zheng, Superconductivity and the electronic phase diagram of LaP_{1-2x}Ge_{2+x}. Phys. Rev. B **91**, 174516-1-7, (2015), doi/10.1103/PhysRevB.91.174516

M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa and Y. Ando, Large linear magnetoresistance in the Dirac semimetal TlBiSSe, Phys. Rev. B **91**, (2015) 041203, DOI: 10.1103/PhysRevB.91.041203

Y. Ando, T. Hamasaki, T. Kurokawa, K. Ichiba, F. Yang, M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando and M. Shiraiishi,

Electrical Detection of the Spin Polarization Due to Charge Flow in the Surface State of the Topological Insulator Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.7}Se_{1.3}, Nano Letters **14**, (2014), 6226-6230, DOI:10.1021/nl502546c

F. Yang, A.A. Taskin, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ohno, K. Matsumoto and Y. Ando, Top gating of epitaxial (Bi_{1-x}Sb_x)₂Te₃ topological insulator thin films, Appl. Phys. Lett. **104**, (2014), 161614, DOI:10.1063/1.4873397

K. Matano, K. Arima, S. Maeda, Y. Nishikubo, K. Kudo, M. Nohara, and G.-q.

Zheng: Spin-singlet superconductivity with a full gap in locally noncentrosymmetric SrPtAs, Phys. Rev. B **89**, 140504(R) -1-4, (2014), DOI:10.1103/PhysRevB.89.140504

K. Ueno, H. Shimotani, H. T. Yuan, J. T. Ye, M. Kawasaki, Y. Iwasa, Field-induced superconductivity in electric double layer transistors, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 032001-1-16, (2014), doi/abs/10.7566/JPSJ.83.032001

K. Ueno, T. Nojima, S. Yonezawa, M. Kawasaki, Y. Iwasa, Y. Maeno, Effective thickness of two-dimensional superconductivity in a tunable triangular quantum well of SrTiO₃, Phys. Rev. B **89**, 020508-1-5, (2014), doi.org/10.1103/PhysRevB.89.020508

M. Novak, S. Sasaki, M. Kriener, K. Segawa, Y. Ando, Unusual nature of fully gapped superconductivity in In-doped SnTe, Phys. Rev. B **88**, 140502-1-5, (2013), doi.org/10.1103/PhysRevB.88.140502

K. Matano, S. Maeda, H. Sawaoka, Y. Muro, T. Takabatake, B. Joshi, S. Ramakrishnan, K. Kawashima, J. Akimitsu, G.-q. Zheng, NMR and NQR Studies on Non-centrosymmetric Superconductors Re₇B₃, LaBiPt, and BiPd, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 084711-1-5, (2013), doi.org/10.7566/JPSJ.82.084711

Y. Tanaka, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, Z. Ren, M. Novak, K. Segawa, Y. Ando, Tunability of the k-space Location of the Dirac Cones in the Topological Crystalline Insulator Pb_{1-x}Sn_xTe, Phys. Rev. B **87**, 155105-1-5, (2013), doi.org/10.1103/PhysRevB.87.155105

S. Harada, J. J. Zhou, Y. G. Yao, Y. Inada, G.-q. Zheng, Abrupt enhancement of noncentrosymmetry and appearance of a spin-triplet superconducting state in Li₂(Pd_{1-x}Pt_x)₃B beyond x=0.8, Phys. Rev. B **86**, 220502(R)-1-5, (2012), doi.org/10.1103/PhysRevB.86.220502

S. Sasaki, Z. Ren, A. A. Taskin, K. Segawa, L. Fu, Y. Ando, Odd-Parity Pairing and Topological Superconductivity in a Strongly Spin-Orbit Coupled Semiconductor, Phys. Rev. Lett., **109**, 217004-1-5, (2012), doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.217004

A. A. Taskin, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando, Manifestation of Topological Protection in Transport Properties of Epitaxial Bi₂Se₃ Thin Films, Phys. Rev. Lett. **109**, 066803-1-5, (2012), doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.066803

Z. Ren, A. A. Taskin, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando, Fermi level tuning and a large activation

gap achieved in the topological insulator $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ by Sn doping, *Phys. Rev. B*, **85**, 155301-1-6, (2012), doi.org/10.1103/PhysRevB.85.155301

S. Sasaki, M. Kriener, K. Segawa, K. Yada, Y. Tanaka, M. Sato, Y. Ando, Topological Superconductivity in $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 217001-1-5, (2011), doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.217001

Z. Ren, A.A. Taskin, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando, Optimizing $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ solid solutions to approach the intrinsic topological insulator regime, *Phys. Rev. B* **84**, 165311-1-6, (2011), doi.org/10.1103/PhysRevB.84.165311

Z. Ren, A.A. Taskin, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando, Observations of two-dimensional quantum oscillations and ambipolar transport in the topological insulator Bi_2Se_3 achieved by Cd doping, *Phys. Rev. B* **84**, 075316-1-6, (2011), doi.org/10.1103/PhysRevB.84.075316

M. Kriener, K. Segawa, Z. Ren, S. Sasaki, S. Wada, S. Kuwabata, Y. Ando, Electrochemical synthesis and superconducting phase diagram of $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, *Phys. Rev. B* **84**, 054513-1-5, (2011), doi.org/10.1103/PhysRevB.84.054513

K. Ueno, S. Nakamura, H. Shimotani, H. T. Yuan, N. Kimura, T. Nojima, H. Aoki, Y. Iwasa, M. Kawasaki, Discovery of superconductivity in KTaO_3 by electrostatic carrier doping, *Nature Nanotechnology* **6**, 408-412, (2011), doi:10.1038/nnano.2011.78

M. Kriener, K. Segawa, Z. Ren, S. Sasaki, Y. Ando, Bulk Superconducting Phase with a Full Energy Gap in the Doped Topological Insulator $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 127004-1-4, (2011), doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.127004

[学会発表] (計49件)

* 発表は、すべて招待講演

T. Nojima, Metallic ground states and enhanced upper critical fields in electric-field-induced superconductors, 15th International Workshop on Vortex Matter in Superconductors, 2015年5月14日, El Escorial (Spain)

G.-q. Zheng, NMR Results on topological superconductors, Quantum Materials Symposium 2015, 2015年2月9日, Muju (Korea)

K. Segawa, Experimental Research on Topological Insulators, International conference on topological quantum phenomena, 2014年12月20日, 京都大学 (京都市)

G.-q. Zheng, NMR studies of topological superconductors, International Conference on Topological Quantum Materials Physics, 2014年12月18日, 京都大学 (京都府京都市)

K. Ueno, Electric double layer transistor on oxide: device development and manipulation of superconductivity, 27th International Symposium on Superconductivity, 2014年11月25日 - 27日, タワーホール船堀 (東京都江戸川区)

T. Nojima, Electric-Field-Induced Superconductivity as a New Platform of Two Dimensional Quantum State, Ushimado International Workshop on Physics and Chemistry of Novel Superconductors and Related Materials, 2014年11月8日 - 10日, Hotel 'Limani' (岡山県瀬戸内市)

K. Ueno, Development of New Superconductor and Two Dimensional Superconductivity by Electrostatic Carrier Doping Method, Second International Conference of Young Researchers on Advanced Materials, 2014年10月24日 - 29日, Haiko (China)

K. Ueno, Electric field-effect control of superconductivity: materials development and peculiar superconductivity in two dimension, Fusion Conference: Oxide Thin Film for Advanced Energy and Information Applications, 2014年7月13日-16日, Chicago (USA)

G.-q. Zheng, Noncentrosymmetric superconductors: a possible route to topological superconductivity, International Workshop on Interface Science, 2013年12月10日, 岡山大学 (岡山県岡山市)

K. Segawa, Ionic-liquid gating experiment on topological insulators, International Workshop for Young Researchers on Topological Quantum Phenomena in Condensed Matter with Broken Symmetries 2013, 2013年10月22日-26日, Culture Resort Festone (沖縄県宜野湾市)

G.-q. Zheng, NMR investigations of correlated and topological superconductors, Superconductivity: the Second Century, 2013年8月5日-30日, Stockholm (Sweden)

K. Ueno, Electric-field-induced superconductivity on an oxide/electrolyte interface, CIFAR, Quantum Material Program Meeting, 2013年5月9日 Vancouver (Canada)

K. Ueno, Two-dimensional superconductivity at an electrolyte/insulator interface, 2013 MRS Spring Meeting, 2013年4月1日-5日, San Francisco (USA)

G.-q. Zheng, Novel superconducting state in non-centrosymmetric $\text{Li}_2(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3\text{B}$ due to

strong spin-orbit coupling, Kavli International Workshop on Critical behavior of lattice models in atomic and molecular, condensed matter and particle, 2012年7月23日-8月31日, Beijing (China)

G.-q. Zheng, NMR study of spin-triplet superconductivity in non-centrosymmetric superconductors, International Conference on Materials and Mechanism of Superconductivity (M2S 2012), 2012年7月29日-8月3日, Washington DC (USA)

K. Segawa, Physical properties of bulk-superconducting $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, International Workshop for Young Researchers on Topological Quantum Phenomena in Condensed Matter with Broken Symmetries, 2011年11月2日-5日, Laforet Biwako (滋賀県守山市)

K. Ueno, Development of a New Superconductor by Electric Field Effect, BIT's 1st Annual World Congress of Nano-S&T, 2011年10月23日-26日, Dalian (China)

K. Segawa, Physical properties of bulk-superconducting $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, 24th International Conference on Superconductivity (ISS2011), 2011年10月24日-26日, タワーホール船堀 (東京都江戸川区)

G.-q. Zheng, Non-centrosymmetric compounds as possible candidates for topological superconductors, Kavli International Workshop on "Topological Insulator and Topological Superconductor, 2011年8月24日, Beijing (China)

K. Segawa, Experimental study of three-dimensional topological insulators/superconductors, APCTP Focus Program on Quantum Condensation (QC12), 2011年8月18日, Pohang (Korea)

[図書] (計 1 件)

安藤陽一、トポロジカル絶縁体入門、講談社、2014、242頁

[その他]

ホームページ

新学術領域研究「トポロジカル量子」ホームページ

日本語版

<http://www.topological-qp.jp/>

英語版

<http://www.topological-qp.jp/english/index.html>

研究室ホームページ

http://www.physics.okayama-u.ac.jp/zheng_ho_mepage/history.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鄭 国慶 (ZHENG, Guo-qing)
岡山大学・大学院自然科学研究科・教授
研究者番号: 50231444

(2) 研究分担者

上野 和紀 (UENO, Kazunori)
東京大学・大学院総合文化研究科・准教授
研究者番号: 10396509

瀬川 耕司 (SEGAWA, Kouji)
大阪大学・産業科学研究所・准教授
研究者番号: 20371297

野島 勉 (NOJIMA, Tsutomu)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号: 80222199

稲田 佳彦 (INADA, Yoshihiko)
岡山大学・大学院教育学研究科(研究院)・教授
研究者番号: 80273572

獅子堂 達也 (SHISHIDOU, Tatsuya)
広島大学・先端物質科学研究科・助教
研究者番号: 20363046

(3) 連携研究者

安藤 陽一 (ANDO, Yoichi) [H23-26] ; H22
は研究分担者
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号: 90371286

永長 直人 (NAGAOSA, Naoto)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号: 60164406

岩佐 義宏 (IWASA, Yoshihiro)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号: 20184864

花栗 哲郎 (HANAGURI, Tetsuo) [H25-26]
理化学研究所・創発物性科学研究センター
チームリーダー
研究者番号: 40251326

長田 俊人 (OSADA, Toshihito) [H25-26]
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号: 00192526

俣野 和明 (MATANO, Kazuaki) [H24-26]
岡山大学・大学院自然科学研究科・助教
研究者番号: 70630945

横谷 尚睦 (YOKOYA, Takayoshi) [H22-23]
岡山大学・大学院自然科学研究科・教授
研究者番号: 90311646