

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03862

研究課題名（和文）トポロジカル超伝導体CuxBi2Se3の物性解明

研究課題名（英文）Study of the topological superconductor CuxBi2Se3

研究代表者

侯野 和明（Matano, Kazuaki）

岡山大学・自然科学学域・助教

研究者番号：70630945

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：トポロジカル超伝導体CuxBi2Se3の超伝導特性を解明する目的で試料生成及び物性測定を行った。高品質の単結晶試料の育成に成功し、物性測定を行うことができた。測定の結果、トポロジカル超伝導体の特徴付けるスピン三重項超伝導状態についての新たな知見を得ることができた。CuxBi2Se3においてはスピン三重項超伝導状態が特定の方向に固定されるピン止めが起きるが、その物性は不明であった。本研究においてスピン三重項超伝導のピン止めが磁場によって制御できることを世界で初めて発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では基礎科学的興味及び応用上の有用性から注目を集めているスピン三重項超伝導の物性の一端を明らかにすることができた。スピン三重項超伝導は実例の少なさから研究はほとんど進んでいなかった。また、他に研究されているスピン三重項超伝導とは異なり本研究対象のCuxBi2Se3には強磁性的な電子相関が存在しない。本研究対象はそれらとは異なる起源を持つと予測されるが、その物性を明らかにすることができた本研究はスピン三重項超伝導研究を前進させることができたと言える。

研究成果の概要（英文）：In order to study the superconducting properties of the topological superconductor CuxBi2Se3, sample generation and physical property measurements were conducted. Successful growth of high-quality single crystal samples enabled the performance of physical property measurements. The results of the measurements provided new insights into the spin-triplet superconducting state that characterizes topological superconductors. In CuxBi2Se3, spin-triplet superconducting state is fixed in a certain direction, but properties of pinning were unknown. In this study, it was discovered for the first time in the world that the pinning of spin-triplet superconductivity in CuxBi2Se3 can be controlled by a magnetic field.

研究分野：超伝導

キーワード：トポロジカル超伝導 スピン三重項超伝導

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

数学の概念であるトポロジー(位相幾何学)の考え方を物性に応用したトポロジカル相の研究は現代物理学の主要なテーマのひとつになっている。フェルミ面のトポロジーに起因して、バルクが絶縁体で表面に金属状態が現れるトポロジカル絶縁体が有名であるが、そのアナロジーとして提案されたトポロジカル超伝導体は、バルクと表面で異なる超伝導状態を持つことなどが期待されていた。

トポロジカル超伝導体はこれまで数例しか発見されていないスピン三重項超伝導体であることが期待され注目が集まっていた。研究対象物質の $Cu_xBi_2Se_3$ は 2010 年にトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 に Cu をドーピングすることにより発見された。図 1(1,2)のような結晶構造を持ち、Se と Bi が形成する五重相の間に Cu が挿入されると考えられている。

トポロジカル絶縁体がドーピングによって超伝導になるとトポロジカル超伝導になり得ると理論的に提案され、研究が行われてきた。2016 年に超伝導状態での自発的な対称性の破れが観測され、トポロジカル超伝導であることが確認された。しかし、超伝導発現機構や詳しい物性などは不明であった。

関連物質として、Sr や Nb などを Bi_2Se_3 にドーピングした $(Sr,Nb)_xBi_2Se_3$ があり、Cu 系と同様の自発的な対称性の破れが報告されている。これらの系は Cu 系よりも作製や管理が容易であるという利点があるが、キャリア数が Cu 系に比べて小さいという欠点があり、超伝導を議論するには向いていない。本研究では作製が難しいが超伝導研究に向いている $Cu_xBi_2Se_3$ を対象とした。

超伝導状態での自発的な対称性の破れはスピン三重項超伝導である証拠であるが、その起源や特性は分かっていなかった。スピン三重項超伝導は興味深い物理の宝庫であり、応用上も量子コンピュータや強磁場発生装置などへの適用が期待されているが、実例の少なさから研究は進んでいなかった。

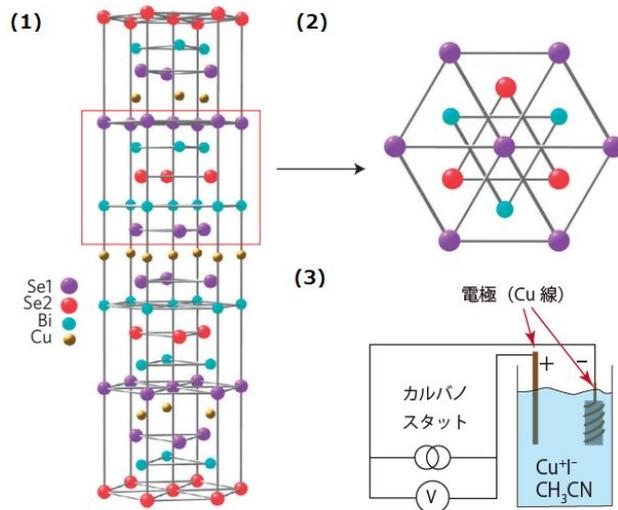


図 1 $Cu_xBi_2Se_3$ の結晶構造(1,2)と電気化学合成手法(3)

2. 研究の目的

トポロジカル超伝導体 $Cu_xBi_2Se_3$ スピン三重項超伝導状態の特性を明らかにする。特に、 $Cu_xBi_2Se_3$ の特徴的な性質であるスピン三重項超伝導状態のピン止めについて詳しく議論する。 $Cu_xBi_2Se_3$ 六方晶の結晶構造を持つが、超伝導状態になると 2 回対称の超伝導状態が現れる。これはスピン三重項超伝導状態でかつピン止めされた状態であると説明できるが、なぜピン止めが起こるかなどは不明のままであった。本研究ではピン止めの発生する条件などを複数の条件下で測定し解明することを目指した。

3. 研究の方法

$Cu_xBi_2Se_3$ の作成方法はいくつかあるが、一般的な固相反応法では超伝導体積分率が 30% 程度のものしか作製できない。本研究ではより高品質な試料が作製できる電気化学合成手法を用いる。これは図 1(3)のように母物質となる Bi_2Se_3 を電極として Cu が溶けている溶液中で電気を流すことで Cu を挿入する方法である。

電気化学法で作成した試料を用い NMR 法や帯磁率測定などを行う。NMR 測定ではドーピング量の決定を行い、帯磁率測定では面内の角度を変えながら測定を行う。帯磁率測定では 1 度ごとに測定を行う高分解能な角度分解帯磁率測定装置が必要でありため新しく作成する。

また、Bi サイトを Sb で置換することにより不純物効果の測定を行うことで超伝導ギャップ関数の特性を明らかにする。

4. 研究成果、

(1) 磁場によるピン止めの制御

Cu_xBi₂Se₃ においてはスピン三重項超伝導を定義する d ベクトルが特定の方向にピン止めされることが知られていた。本研究ではその特性を調べるために複数の試料を用いて帯磁率測定を行った。結果、x の小さな試料においてピン止めの状態が磁場によって変化することを世界で初めて発見した。

具体的には、磁場が小さな領域ではこれまでに知られていたように 2 回対称の結果を得た(図 2(b)H=0.5T)。しかし、磁場が大きな領域では 6 回対称を観測した(図 2(b)H=1.5T)。Cu_xBi₂Se₃ は 6 回対称の結晶を持つが、2 回対称はピン止めされたスピン三重項超伝導状態によって説明される。一方で、今回新たに発見された 6 回対称は磁場によってピン留めされた状態から変化がおこった。つまり、ピン止めエネルギーよりも磁場が優位になることによってピン止めが外れることを意味している。このような現象はこれまで報告されておらず、世界で初めて発見された。研究成果は米 Physical Review B 誌の Letter として出版された[1]。また、研究会[2]などで報告している。本成果はスピン三重項超伝導の現象解明に繋がる成果であり超伝導研究進歩の一端を担えたと言えインパクトは大きい。

(2) ピン止め方向の微小なずれの実証

Cu_xBi₂Se₃ においてはピン止めされたスピン三重項超伝導状態が結晶の対称性の良い角度から数度ずれる可能性が理論的に予測されていた。本研究では独自に開発した 1 度ごとに精度良く角度を変えて測定できる装置を用いて精密に角度回転帯磁率測定を行った。結果、(1)で報告したピン止めが外れた状態では対称性の良い方向に 6 回対称を示したのとは対照的に、ピン止めが外れる前の状態では数度ずれて 2 回対称になることを発見した。研究成果は米 Physical Review B 誌の Letter として出版された[1]。また、研究会[2]などで報告している。

この特異な現象はスピン三重項超伝導研究の進展に繋がる発見である。

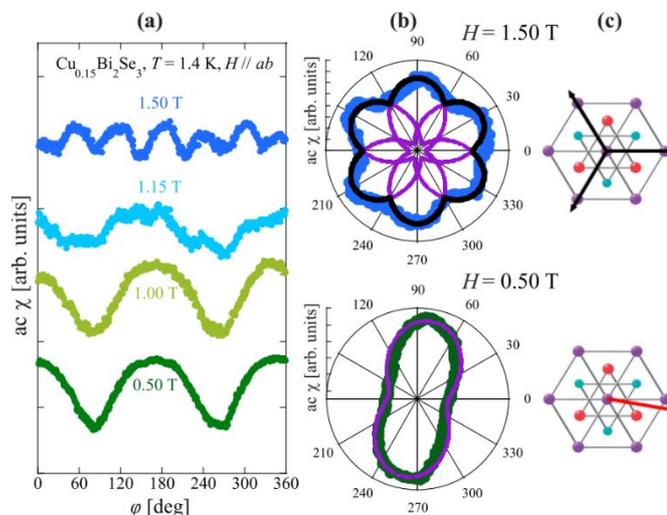


図 2 角度分解帯磁率測定結果(a):磁場依存性(b)ピン止めが外れた磁場とピン留めされている磁場(c)各磁場での d ベクトルの方向

(3)不純物効果による超伝導ギャップ関数の決定

Cu_xBi₂Se₃ の超伝導対称性についてはクーパー対スピン対称性は決定されさいたが、超伝導ギャップの対称性は不明のままであった。本研究では Cu_xBi₂Se₃ に不純物を添加することで超伝導ギャップの決定を試みた。不純物を添加した場合、異方的なギャップを持つ超伝導では超伝導転移温度が少量の不純物でも大きく減少する傾向がある。Cu_xBi₂Se₃ は x=0.4 を境にして異なる超伝導状態を持つことが分かっているので、複数の x(=0.3,0.45)に対して不純物を添加して超伝導転移温度の測定を行った。

結果、どちらの x においても超伝導転移温度は大きく減少しなかった。これはどちらの x においても超伝導ギャップ関数にノードが存在しないことを意味している。本来スピン三重項超伝導は奇パリティ超伝導であるため超伝導ギャップにはノードが存在するはずである。なぜノードが存在しないのかは(2)と関係がある。理論によれば対称性の良い方向から数度ずれた状態ではノードのある超伝導は実現せずフルギャップの超伝導になる。この発見も(1),(2)の結果を補完する結果である。本結果は現在論文にまとめているところであり日本物理学会誌に投稿予定。

[1] Manipulating the nematic director by magnetic fields in the spin-triplet superconducting state of Cu_xBi₂Se₃

M. Yokoyama, H. Nishigaki, S. Ogawa, S. Nita, H. Shiokawa, K. Matano, Guo-qing Zheng
Physical Review B 107(10) 2023 年 3 月 27 日

[2]Nematic superconducting state and crystal structure seen by synchrotron light in $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$
S.Nita, A.Kobayashi, H.Nishigaki, M.Yokoyama, K.Matano, K.Ishii, H.Nakao, T. Kambe, G.-q. Zheng
FYR04 QLC meeting 2022 年 12 月 9 日

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|--------------------------|
| 1. 著者名 Matano Kazuaki, Ogura Ryo, Fountaine Mateo, Jeschke Harald O., Kawasaki Shinji, Zheng Guo-qing | 4. 巻 104 |
| 2. 論文標題 Antiferromagnetic spin fluctuations and superconductivity in NbRh ₂ B ₂ and TaRh ₂ B ₂ with a chiral crystal structure | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 224508-1-8 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.104.224508 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Yokoyama M., Nishigaki H., Ogawa S., Nita S., Shiokawa H., Matano K., Zheng Guo-qing | 4. 巻 107 |
| 2. 論文標題 Manipulating the nematic director by magnetic fields in the spin-triplet superconducting state of CuxBi ₂ Se ₃ | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 L100505-1-6 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.107.L100505 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 俣野 和明, 鄭 国慶, Rui Zhou | 4. 巻 58 |
| 2. 論文標題 ワイル半金属における軌道反磁性と低エネルギー励起 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 固体物理 / アグネ技術センター [編] | 6. 最初と最後の頁 31-39 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件/うち国際学会 0件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kazuaki Matano |
| 2. 発表標題 Spin fluctuations in TaRh ₂ B ₂ and diamagnetism in TaAs |
| 3. 学会等名 Progress in Magnetism Research -RIIS Mini-Workshop- (招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 小川晟吾, 三好智己, 俣野和明, 稲田佳彦, 鄭国慶 |
| 2. 発表標題 スピン三重項超伝導候補物質 $K_2Cr_3As_3$ の単結晶育成と磁化率測定 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 西垣颯, 峰明日香, 横山武蔵, 俣野和明, 神戸高志, 川崎慎司, 鄭国慶 |
| 2. 発表標題 トポロジカル超伝導体 $Cu_xBi_2Se_3$ の作製と物性測定 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 (2022年) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 俣野和明, 小椋亮, Mateo Fontaine, Harald O. Jeschke, 川崎慎司, 鄭国慶 |
| 2. 発表標題 空間反転対称性の破れた超伝導体 $(Nb, Ta)Rh_2B_2$ の超伝導とスピン揺らぎ |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 (2022年) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 横山武蔵, 西垣颯, 俣野和明, 神戸高志, 鄭国慶 |
| 2. 発表標題 トポロジカル超伝導体 $Cu_xBi_2Se_3$ の作製と物性測定II |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (2021年) |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|