

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	強いスピン軌道相互作用を持つ層状ビスマス化合物の単結晶における超伝導および磁気輸送特性
Title(English)	Study on Superconducting and Magnetotransport Properties in Single Crystals of Layered Bismuth Compounds with Strong Spin-orbit Coupling
著者(和文)	大川顕次郎
Author(English)	Kenjiro Okawa
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10422号, 授与年月日:2017年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:笹川 崇男,東 正樹,中村 一隆,舟窪 浩,吉本 護
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10422号, Conferred date:2017/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文の要約

THESIS OUTLINE

Study on Superconducting and Magnetotransport Properties in Single Crystals of Layered Bismuth Compounds with Strong Spin-orbit Coupling

(強いスピン軌道相互作用を持つ層状ビスマス化合物の単結晶における
超伝導および磁気輸送特性)

大川 顕次郎

相対論効果が固体の電子状態に及ぼす影響は、物性物理分野において近年大きな注目を集めている。相対論効果由来の強いスピン軌道相互作用は、重元素を含む化合物では無視できない有効的な大きさとなる。バルクバンドではギャップが開きながらも、表面ではスピン偏極したギャップレス状態が現れるトポロジカル絶縁体に代表される相対論電子系は、非放射性元素中で最大のスピン軌道相互作用を持つビスマス元素を含む化合物を中心に報告されてきた。金属相においても相対論電子系が提唱され、ゼロギャップ系では Dirac/Weyl 分散に起因する巨大磁気抵抗効果やカイラル異常などの特異な磁気輸送特性、さらに超伝導体では、バルク超伝導ギャップとは異なり、表面や渦糸中などの境界にギャップレス励起状態が現れるトポロジカル超伝導の実現が理論予測されている。トポロジカル超伝導の物質探索においては、従来の指針ではトポロジカル絶縁体ベースの超伝導が有力な候補とされてきたが、これらは構造的および化学的不安定性から実験実証に適さないことが大きな課題であった。

本研究では金属相におけるトポロジカル電子相の開拓を目的として、新たに半金属ベースの物質設計の指針を立て、実験実証に適した物質の選定を行った。強いスピン軌道相互作用により波数空間の全領域でバンドギャップが開く半金属相では、トポロジカル電子相の出現が可能となる。特にスピン軌道相互作用の強いビスマス化合物に着目し、 α -PdBi、 β -PdBi₂、InBi の 3 種類の層状化合物について、純良単結晶を用いた強い相対論効果が誘起する特異な超伝導および常伝導（磁気輸送）特性の観測を目標とした。

第 1 章「General Introduction」では、上記の様な本研究における背景を、これまでの現状と課題を踏まえてまとめ、研究全体の目的を述べた。

第 2 章「Theoretical Background」では、本研究で扱う現象として、強いスピン軌道相互作用が誘起する超伝導および磁気輸送特性について、理論的な背景を踏まえながら説明した。

第 3 章「Experimental Techniques」では、本研究で用いた実験手法（単結晶育成法および物性評価法）について述べた。

第 4 章「Noncentrosymmetric Superconductor with Large Rashba Split Bands, α -PdBi」では、空間反転対称性の破れた超伝導体である α -PdBi の結果についてまとめた。 α -PdBi は b 軸方向に空間反転対称性が破れたラシュバ型極性構造を持つ。極性超伝導体では、スピン対称性が混成したパ

リティ混成超伝導状態が期待される。結晶構造の再検討から、ラッシュバ型極性構造に加えて Pd ジグザグ鎖を持つ稀な層状構造であることを見出した。第一原理計算を行ったところ、実際にフェルミレベル近傍において強いスピン軌道相互作用による顕著なラッシュバ分裂を確認することができた。改良横型 Bridgman 法により組成を精密制御した単結晶の育成に成功し、極低温での磁場下抵抗率測定を行い、それぞれ超伝導パラメータを決定した。得られた超伝導磁気相図からは T_c 近傍にキングの振る舞いが見られ、この振る舞いが Bi 欠損により消失することから、試料に対する僅かな乱れが超伝導に大きな影響を与える物質であることを明らかにした。さらに、高磁場下では 1000 % を超える正の巨大磁気抵抗を観測し、その大きさは試料の残留抵抗比に強く依存することが分かった。これは電子とホールが共存する半金属的電子構造に由来すると考えられる。

第 5 章「Centrosymmetric Superconductor with Topological Surface States, β -PdBi₂」では、層状超伝導体 β -PdBi₂ の結果について述べた。 α -PdBi と同じく半金属ベースの超伝導体であり、第一原理計算から強いスピン軌道相互作用によって波数空間全体にギャップが開いたバルク構造を持つことを確認した。さらに表面スラブ計算からトポロジカル表面状態の存在を確認できたことから、有力なトポロジカル超伝導体候補物質であることを提案した。また、育成条件の最適化から、 β 相単相の単結晶の育成に成功した。単相単結晶を用いた極低温までの超伝導特性評価を行い、バルク超伝導パラメータを決定した。さらに詳細なバルク超伝導メカニズムに迫るため、単結晶の試料依存性に加え、他元素置換効果を検証した。非磁性および磁性元素を Bi サイトに系統的置換した単結晶を育成して超伝導特性を評価した。それぞれの置換試料において、超伝導破壊の振る舞いが顕著に異なり、磁性不純物による超伝導対破壊効果が強く働くことから、バルク超伝導状態がフルギャップであることを示唆する知見を得た。 β -PdBi₂ は候補物質中で最高の T_c を持ち、劈開性を利用した表面敏感測定にも成功していることから、さらに詳細な表面-バルク超伝導特性の解明により、トポロジカル超伝導体の理解、マヨラナ励起状態の観測が期待できるモデル物質となり得ることを述べた。

第 6 章「Compensated Semimetal with Hidden 3D-Dirac Bands, InBi」では、層状半金属 InBi の結果について述べた。本研究では残留抵抗比の高い単結晶を育成し、極低温抵抗率測定を行うことで、0.2 K まで超伝導が発現しないことを明らかにした。一方で、低温において 10000 % を超える正の巨大磁気抵抗を観測することに成功した。さらにこの巨大磁気抵抗が残留抵抗比に強く依存することを確認した。一般的な two-carrier model を用いて輸送特性解析を行い、電子とホールのキャリアバランスが優れていることが一つの要因となることを明らかにした。同じく半金属的電子構造を持つ α -PdBi と β -PdBi₂ の磁気抵抗測定との比較から、InBi の巨大磁気抵抗の起源について考察した。第一原理計算から、InBi において強いスピン軌道相互作用により、特定の結晶対称点においてフェルミレベル近傍に 3D-Dirac 分散が現れることが分かり、この線形分散が高い移動度を持ち、巨大磁気抵抗に寄与していることが示唆された。従来の 3D-Dirac 半金属の設計指針ではトポロジカル絶縁体からのバンドチューニングが必要であったが、InBi では強いスピン軌道相互作用と結晶対称点の縮退要請を利用した新たな指針となる知見を得た。

第7章「General Conclusions」では、本研究で扱ったビスマス化合物 α -PdBi、 β -PdBi₂、InBiについての総括を行い、観測された超伝導と磁気輸送特性についてまとめた。本研究では、トポロジカル絶縁体を発展させた、金属相における新たなトポロジカル電子相の開拓を目指した。トポロジカル半金属ベースで選定した α -PdBi、 β -PdBi₂がともに新たなトポロジカル超伝導候補物質であることを明らかにし、この指針により今後さらなる物質群の発見が期待できる知見を得た。磁気輸送特性について、半金属構造を反映した巨大磁気抵抗がそれぞれ観測でき、InBiでは強いスピン軌道相互作用によって発現する3D-Dirac分散が巨大磁気抵抗に寄与することを明らかにした。本研究は、半金属ベースの指針による層状ビスマス化合物を用いてトポロジカル金属相物質の多様性の拡張に成功し、今後の研究発展に繋がる成果であると言える。

付録「Related Superconductor with Topologically Protected Surface States, PdTe₂」では、同様の半金属指針により選定した層状超伝導体PdTe₂の結果をまとめ、第一原理計算からトポロジカル表面状態の存在を確認し、極低温までの超伝導および磁気輸送特性を明らかにしたことを述べた。