



超伝導体 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の高圧合成に成功 ～トポロジカル結晶絶縁体の超伝導化に新ドーピング手法～

首都大学東京 理工学研究科 電気電子工学専攻 水口佳一助教らの研究グループは、トポロジカル結晶絶縁体であるSnTeにAgを部分置換することで、新しい超伝導体 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ を合成することに成功しました。

トポロジカル結晶絶縁体として注目されているSnTeは、SnをInで部分置換することで超伝導化することが知られており、トポロジカル超伝導体である可能性が示されています。一方、SnTeを超伝導化するドーピング手法はIn置換に限られており、超伝導機構解明を目指すためには新たなドーピング手法によるSnTe系新超伝導体の開発が求められていました。

本研究グループは、高圧合成法を駆使し、常圧環境下では得られない $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ ($x = 0-0.5$ の広いドーピング領域)の合成に成功し、 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ が超伝導体であることを発見した。今回得られた $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ 超伝導体の物性を詳細に研究することで、新たなトポロジカル超伝導体の発見が期待され、また、高圧合成法を駆使したSnTe系新物質のさらなる開拓が期待されます。

当該研究のポイント

○研究者について

- ・首都大学東京 電気電子工学専攻
水口佳一助教、三浦大介准教授

○研究成果のポイント

- ・トポロジカル結晶絶縁体 SnTe を超伝導化する新たなドーピング手法を発見した。
- ・高圧合成法を駆使した新規超伝導体 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の合成に成功。
- ・SnTe 系の新物質開発に高圧合成法が有効であることを示した。

※詳細は、別紙参考資料参照

《研究に関するお問い合わせ先》

首都大学東京 理工学研究科 電気電子工学専攻 助教 水口 佳一

電話：042-677-2748 / FAX：042-677-2756

E-mail：mizugu@tmu.ac.jp

研究の背景と経緯

物質はその電氣的性質から絶縁体（半導体）、金属、超伝導体に分類されるとされてきたが、単純にこれらに分類できない性質を示すトポロジカル絶縁体⁽¹⁾が近年注目を集めている。トポロジカル絶縁体の内部は絶縁体の性質を示すが、その表面では特殊な金属の性質が現れる。表面に現れる特殊な電子状態を利用した新たな電子デバイス応用が期待されており、研究開発が進められている。また、最近では新たなトポロジカル絶縁体としてトポロジカル結晶絶縁体⁽²⁾の存在が理論的・実験的に示され、世界中で研究開発が進められている。

SnTe（スズテルル）はトポロジカル結晶絶縁体⁽²⁾の一種であり、Snの一部をIn（インジウム）で元素置換⁽³⁾することで超伝導⁽⁴⁾を示すことが知られている。Inを40%置換した $\text{Sn}_{0.6}\text{In}_{0.4}\text{Te}$ において最も高い超伝導転移温度（ $T_c = 4.8 \text{ K}$ ）を示すが、その超伝導機構およびドーパントとしてのInの役割は完全に理解されていない。一方、 $\text{Sn}_{1-x}\text{In}_x\text{Te}$ 超伝導体はトポロジカル超伝導体⁽⁵⁾の候補物質であることが示されており、注目されている。これらの研究背景から、SnTeに発現する超伝導をより深く理解し新規な研究分野として確立するために、Inドーピング以外の手法でSnTeを超伝導化することが重要な課題である。

なお、この研究開発は、日本学術振興会の科学研究費補助金（新学術領域研究（J-Physics）、若手研究（A）、挑戦的萌芽研究）の助成を受けて行われた。

研究の内容

今回、我々はAgドーピングによるSnTeの超伝導化を目指し、高圧合成法⁽⁶⁾を駆使することで、常圧環境下では得られない $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の合成に成功した。常圧合成による先行研究では、 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の元素置換限界値は $x = 0.1$ 程度とされており、図1(a)のような相分離⁽⁷⁾が生じる（異なる格子定数を持つ相1と相2に分離する）。本研究では、高圧合成法を用いることで $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ （ $x = 0-0.5$ の広いドーピング領域）の合成に成功した（図1(b)）。

図2(a)に磁化率の温度依存性を示す。 $x = 0.15, 0.2, 0.25$ の高圧合成試料において大きな超伝導シグナルを伴う超伝導転移（バルクな超伝導転移）を確認した。 T_c および超伝導シグナルの大きさ（超伝導状態の体積分率と相関）は $x = 0.2$ で最高となり、 T_c は約2.4 K（ケルビン）⁽⁸⁾である。また、電気抵抗率測定においても超伝導転移を確認した。これらの超伝導特性の測定結果を格子定数の関数としてプロットしたものが図2(b)である。バルクな超伝導が発現するのは格子定数が6.13-6.21 Åの領域であり、図1(a)に示した2つの相への相分離領域の間であることがわかった。つまり、高圧合成法を用いることで相分離を抑制し、バルクな超伝導を示す組成・結晶構造を安定化することができた。

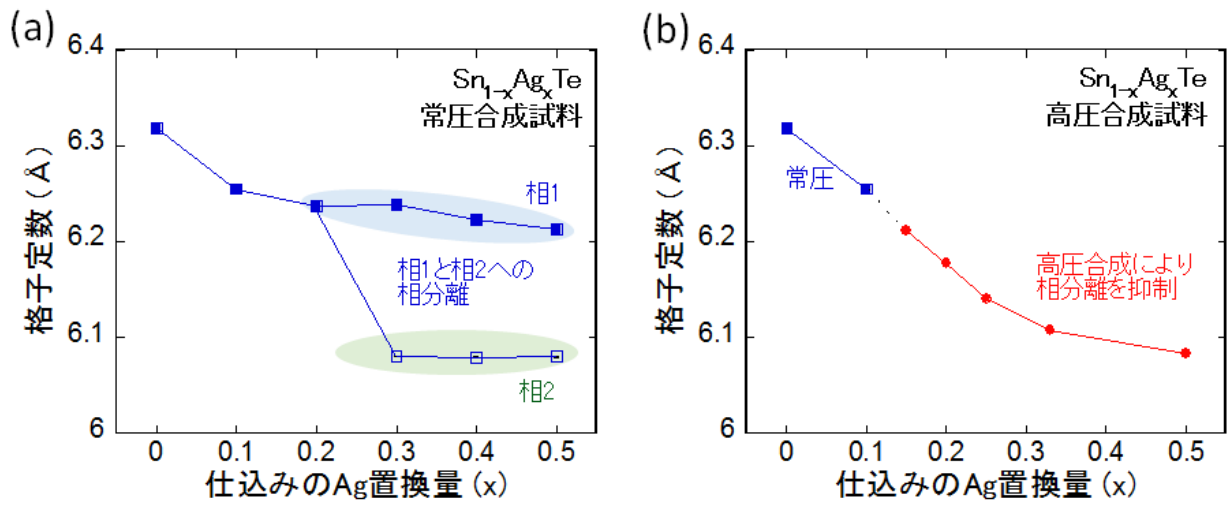


図 1. (a) 常圧合成試料 ($\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$) の格子定数の仕込みの Ag 置換量依存性。
 (b) 高圧下合成試料 ($\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$) の格子定数の仕込みの Ag 置換量依存性。

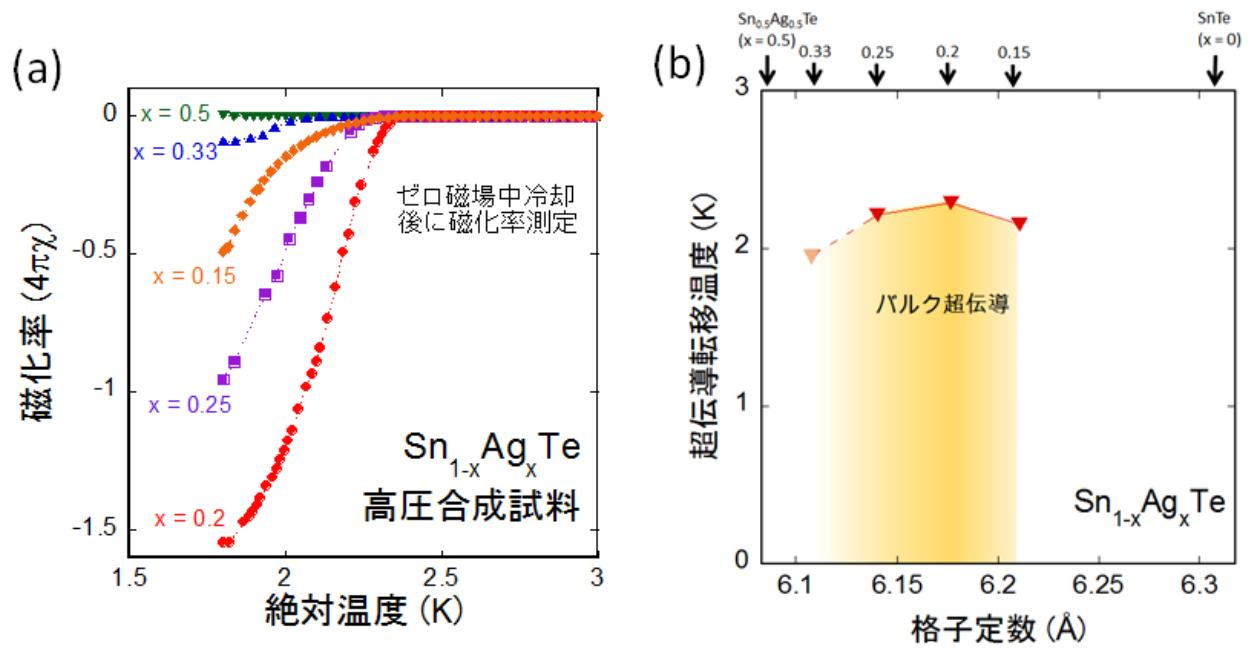


図 2. (a) 高圧合成試料 ($\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$) の磁化率の温度依存性。
 (b) $\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の超伝導相図。

(1) トポロジカル絶縁体

世の中に存在する物質はその電氣的性質から絶縁体（半導体）、金属、超伝導体に分類されると考えられてきたが、内部は絶縁体の状態をし、その表面や端では特殊な金属状態を示すトポロジカル絶縁体が近年発見された。表面に現れる電子状態はトポロジカル不変量によってその状態が保証されているため、不純物散乱に強い性質がある。

(2) トポロジカル結晶絶縁体

初期に発見されたトポロジカル絶縁体 (Bi_2Se_3 など) は、時間反転対称性に保護された Z_2 トポロジカル不変量によって特徴付けられる。これに対し、トポロジカル結晶絶縁体においては結晶の対称性によって定義されたトポロジカル不変量により特徴付けられる。岩塩型 (NaCl 型) 構造を持つ SnTe がトポロジカル結晶絶縁体であることが理論的に示され (2011 年)、2012 年には実験的にその存在が示された。

(3) 元素置換

イオン半径や価数の異なる元素を部分的に置換することで、物質の性質（結晶構造やキャリア濃度など）を系統的に変化させる手法である。ここではドーピングとも表記している。

(4) 超伝導

超伝導は物質を低温に冷却すると現れる状態であり、電気抵抗率の消失やマイスナー効果（磁束の排除）などの特有の性質が現れる。超伝導状態に転移する温度を超伝導転移温度 (T_c) とよび、物質の種類に依存する。

(5) トポロジカル超伝導体

超伝導状態においては超伝導ギャップが存在する。このギャップに対してもトポロジカル絶縁体におけるバンドギャップと同様に波動関数の性質が持つトポロジーを定義できる。トポロジカル超伝導体では表面の準粒子がマヨラナ粒子として振舞う可能性が示されており、注目されている。

(6) 高圧合成法

試薬を高圧環境下（数万気圧）において焼成することで、常圧環境下での合成では得られない結晶構造・組成の物質を合成する手法。

(7) 相分離

物質を合成する際に、目的の組成比（仕込み組成）の物質が不安定相である場合、2つ（または複数）の安定相に分離してしまう。例えば、図 1 (a) のように、粉末 X 線回折から見積もられる格子定数（結晶格子の体積を示すパラメータ）の分離が生じる。

(8) ケルビン(K)

熱力学温度の単位。273.15 K が 0 °C に対応する。

今後の展開

$\text{Sn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Te}$ の物性を詳細に解明することで、トポロジカル超伝導などの新奇な超伝導状態を見出せる可能性がある。また、本研究において示したとおり、高圧合成法は SnTe 系およびその周辺物質の新物質開発における有用な手法である。高圧合成法により新たなトポロジカル絶縁体、超伝導体、熱電変換材料等の機能性材料が開発されることが期待される。

※平成 28 年 4 月 日本物理学会刊行の英文誌「Journal of the Physical Society of Japan」
(オンライン版) に詳細掲載予定