

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「二次元機能性原子・分子薄膜の
創製と利用に資する基盤技術の創出」
研究課題「トポロジカル量子計算の基盤技術構築」

研究終了報告書

研究期間 2016年10月～2022年3月

研究代表者：笹川 崇男
(東京工業大学科学技術創成研究院
准教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

粒子と反粒子とが同一で特殊な非可換量子統計性をもつマヨラナ準粒子を使うことにより、準粒子同士の交換順序を決めるだけで論理計算の行える「トポロジカル量子コンピュータ」が作れると予言されている。その実現に向けてマイクロソフトなどの企業も精力的に研究を進めており、半導体ナノワイヤーと超伝導体の組合せによる1次元トポロジカル超伝導状態で、マヨラナ準粒子生成の成功例が報告されている。一方で、報告されている1次元のデバイス構造では、量子ビット数を増やしネットワーク化することや量子ビット操作(準粒子交換)には技術的に巨大な壁があると言われている。そこで本研究課題では、2次元のトポロジカル超伝導状態を対象とし、特にデバイス用の素材に工夫を重ねるといふ物質科学的アプローチによるブレークスルーを狙った。

研究代表の笹川 G は、マヨラナ準粒子を生成するための「革新的デバイス素材の創製」の中核を担った。ヘテロ構造の接合界面に2次元トポロジカル超伝導状態を実現するために、その構成要素として十分な特性をもった高絶縁性トポロジカル絶縁体、高絶縁性強磁性体、高絶縁性強磁性トポロジカル絶縁体、新種トポロジカル絶縁体などを、高品質大型単結晶試料として開発することに成功した。また、デバイス構造を単純にできる単独素材として、表面に2次元トポロジカル超伝導状態をもつことが期待されるトポロジカル超伝導体についても、多数の候補物質を提案・選定し、高精度かつ詳細な実験検証に資する単結晶試料としての開発を継続して行った。これらの物質開拓を通じて、理論提案されたばかりの新しい概念のトポロジカル電子状態をもつ物質を世界初としていくつも発見したり、これまで不明瞭であった超伝導体をいくつも確立したり、報告例のあった超伝導体の転移温度をいくつも向上させたりと、派生する成果も多数産出した。

花栗 G および石坂 G は、実空間および運動量空間においてマヨラナ準粒子を直接観察し実験実証できる能力をもつ世界トップレベルの極限性能量子分光装置の開発に取り組み、笹川 G で準備の進んだ単結晶試料を対象として、電子構造の解明やトポロジカル性の検証、マヨラナ準粒子の検出などの実験を遂行した。花栗 G は、走査トンネル顕微鏡・分光法について、100 mK を下回る極低温、17 T を上回る超高磁場、4.5 日を上回る安定測定ができる究極性能を備えた装置として開発を完成した。この装置の活用によって Fe(Te,Se)超伝導体において磁場中超伝導状態の量子化磁束芯の中に、マヨラナ準粒子を検出することに成功した。そして未踏のマヨラナ準粒子の多体効果の実験検証を進めた。石坂 G は、角度分解光電子分光 (ARPES) 法について、2次元運動量空間を高分解能に自動測定できるシステムへと改造を進め、レーザー光源のスポットサイズも $\sim 17 \mu\text{m}$ 程度まで微小化することに成功した。完成した顕微測定系は、微小な単結晶しか得られない物質系へと実験の適用範囲を拡げただけではなく、ヘテロ接合のデバイス構造などにおいて、特定位置における電子状態計測法としての活用も始まっている。これにより、継続開発中の ARPES 測定の極低温化も完成させることにより、デバイス構造中においてマヨラナ準粒子を検出できる道が拓けた。

計画していたトポロジカル量子ビット作製用の素材開発が全て完了したことから、デバイス構造を作製して行う検証実験も笹川 G と柏谷 G とで連携しながら推進した。この際に、トポロジカル量子デバイス構造の提案や結果の解釈などの理論的な検証や支援は、川口 G が中核を担った。トポロジカル絶縁体の表面伝導だけが本当に使えるのか？ 強磁性トポロジカル絶縁体ではギャップの開いたディラック点が本当にフェルミ準位近傍に位置しているのか？ など、素朴ではあるがトポロジカル量子デバイスの実現可否を左右しかねない問題についても実験検証が完了した。デバイス要素技術の開発の中では、トポロジカルジョセフソン接合の作製と評価の部分で大きな進展があり、マヨラナ準粒子応答を生じさせるための条件の確立がほぼ完了して、異常ジョセフソン効果を再現性良く観測できるようになった。当初計画になかった新種のトポロジカル絶縁体の発見や、開発された素材の多くがファンデルワールス積層構造をもっていることなどに着想を得て、複数のトポロジカル量子ビットを連結できる新しいデバイス構造と、これを用いたマヨラナ準粒子の交換による量子ビット操作を考案し、実

験検証の一手手前までデバイス構造作製の技術開発も進んだ。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1.

概要:

絶縁体、磁性体、超伝導体など多様な物性を示し、トポロジカル量子デバイス用の素材への応用可能性も高い遷移金属ダイカルコゲン化合物について、トポロジカル表面電子状態や3次元ディラック電子状態が出現する一般原理を提唱し、実験実証にも成功した[Nature Materials **17**, 21 (2017)]。トポロジカルな電子状態を系統的に開拓する道筋を与えるものとして研究分野に普遍的な基礎学理を与えるとともに、トポロジカル超伝導体発見のチャンスも高める重要な成果となった。

2.

概要:

有力なトポロジカル超伝導体候補物質として提案した β -PdBi₂ [Nature Commun. **6**, 8595 (2015)] について、実験実証が完了した。高品質単結晶を作製し、走査型トンネル顕微鏡法/分光法を用いることで、表面におけるスピン偏極と超伝導の同時観測に世界で初めて成功した[Nature Commun. **8**, 976 (2017)]。全ての表面状態がスピン偏極しているにも関わらず、平凡な表面超伝導状態が実現しているという驚きの結果であった。これまで調べるのが難しかったスピン構造と超伝導の関係解明に向けて突破口を開くものであり、今後のトポロジカル超伝導の完全検証やマヨラナ準粒子の検出へつながる成果となった。

3.

概要:

電荷密度波(CDW)をもつ遷移金属ダイカルコゲン化合物 VS₂ を対象とし、角度分解光電子分光法による電子およびスピン構造の直接観察と第一原理計算による電子状態解析をもとに、トポロジカル電子相への CDW の影響を解明することに成功した[Nature Commun. **11**, 2466 (2020)]。外的刺激によって CDW に変化を与えることにより、連動してトポロジカル電子相も制御できる可能性を示す結果としても意義のある成果となった。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1.

概要:

革新的素材開発の最終ゴールの1つは、単一物質でマヨラナ準粒子を創発できるトポロジカル超伝導体の発見と確立である。開発を完了した極限性能走査型トンネル顕微鏡/分光装置を用いることで、Fe(Te,Se)超伝導体の磁場中の表面(量子化磁束芯)において、マヨラナ準粒子の検出に成功した[Nature Materials **18**, 811 (2019)]。特異な磁場依存性などの理論予測にない挙動も発見しており、未踏領域であるマヨラナ準粒子の挙動を解明し、デバイス応用へとつなげる大きな第一歩が踏み出せた。

2.

概要:

β -Bi₄I₄ が新種の「弱い」トポロジカル絶縁体(WTI)であることを発見し、温度履歴の制御によって相転移を利用した WTI-通常絶縁体の電子状態スイッチが可能なることの実証にも世界で初めて成功した[Nature **566**, 518 (2019)]。2次元 TI(量子スピンホール状態)の積層と見なせる WTI は、従来超伝導との組合せで、より単純なデバイス構造でトポロジカル量子ビットを実現できる可能性がある。加えて、発見した物質は、無散逸電気伝導やスピントロニクスなど

の広範なデバイス技術にも応用可能性のある革新的デバイス素材となり得る。

3.

概要:

前項目の続報として、 Bi_4Br_4 が新しく理論提唱された「高次」トポロジカル絶縁体 (HOTI) の初の物質例であることを確立した [Nature Materials **20**, 473 (2021)]. 2次元 TI の積層様式と種々のトポロジカル電子相の出現との関連も解明できたことにより、ファンデルワールス物質の自在積層により任意のトポロジカル電子相が設計・制御できる道筋を示せた重要な成果である。加えて、単純組成や良い絶縁性などのスジの良い素材として、トポロジカル量子デバイス作製への今後の利用が見込まれる。

<代表的な論文>

1. Nature Materials **18**, 811 (2019).

概要:

革新的素材開発の最終ゴールの1つは、単一物質でマヨラナ準粒子を創発できるトポロジカル超伝導体の発見と確立である。開発を完了した極限性能走査型トンネル顕微鏡/分光装置を用いることで、 $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ 超伝導体の磁場中の表面(量子化磁束芯)において、マヨラナ準粒子の検出に成功した。特異な磁場依存性などの理論予測にない挙動も発見しており、未踏領域であるマヨラナ準粒子の挙動を解明し、デバイス応用へとつなげる大きな第一歩が踏み出した。

2. Nature **566**, 518 (2019).

概要:

$\beta\text{-Bi}_4\text{I}_4$ が新種の「弱い」トポロジカル絶縁体 (WTI) であることを発見し、温度履歴の制御によって相転移を利用した WTI—通常絶縁体の電子状態スイッチが可能なおことの実証にも世界で初めて成功した。2次元 TI (量子スピンホール状態) の積層と見なせる WTI は、従来超伝導との組合せで、より単純なデバイス構造でトポロジカル量子ビットを実現できる可能性がある。加えて、発見した物質は、無散逸電気伝導やスピントロニクスなどの広範なデバイス技術にも応用可能性のある革新的デバイス素材となり得る。

3. Nature Materials **20**, 473 (2021).

概要:

前項目の続報として、 Bi_4Br_4 が新しく理論提唱された「高次」トポロジカル絶縁体の初の物質例であることを確立した。2次元 TI の積層様式と種々のトポロジカル電子相の出現との関連も解明できたことにより、ファンデルワールス物質の自在積層により任意のトポロジカル電子相が設計・制御できる道筋を示せた重要な成果である。加えて、単純組成や良い絶縁性などのスジの良い素材として、トポロジカル量子デバイス作製への今後の利用が見込まれる。

§2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

①「東工大」グループ

研究代表者: 笹川 崇男 (東京工業大学科学技術創成研究院 准教授)

研究項目: トポロジカル量子計算に向けた電子材料とデバイスの開発

- ・革新的素材(トポロジカル量子デバイス用電子物質)の開発
- ・革新的量子状態(トポロジカル表面伝導・マヨラナ準粒子)の確立
- ・革新的量子デバイス機能(マヨラナ準粒子制御)の実証

②「理研」グループ

主たる共同研究者: 花栗 哲郎 (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)

研究項目: トポロジカル量子計算に向けた電子状態の実空間解像

- ・革新的計測(極限性能走査型トンネル顕微鏡分光)装置・データ解析法の開発
- ・革新的素材(トポロジカル電子物質)・デバイス構造の実空間電子状態の解明
- ・革新的量子状態(マヨラナ準粒子)の確立
- ・革新的量子デバイス機能(マヨラナ準粒子制御)の実証

③「東大」グループ

主たる共同研究者: 石坂 香子 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

研究項目: トポロジカル量子計算に向けた電子状態の運動空間解像

- ・革新的計測(極限性能角度分解光電子分光)装置の開発
- ・革新的素材(トポロジカル電子物質)・デバイス構造の運動量空間電子状態の解明
- ・革新的量子状態(マヨラナ準粒子)の確立

④「名大1」グループ

主たる共同研究者: 柏谷 聡 (名古屋大学大学院工学研究科 教授)

研究項目: トポロジカル量子計算に向けたデバイス技術の開発

- ・革新的量子状態(マヨラナ準粒子の発生法、検出法)の確立
- ・革新的量子デバイス機能(トポロジカルジョセフソン素子・トポロジカル量子ビット)の実証

⑤「名大2」グループ

主たる共同研究者: 川口 由紀 (名古屋大学大学院工学研究科 教授)

研究項目: トポロジカル量子計算に向けた電子材料とデバイスの理論解析

- ・革新的量子デバイス構造(トポロジカル量子ビット構造)の理論的検討
- ・革新的量子デバイス機能(トポロジカル量子ビット性能)の理論的検討
- ・革新的量子デバイス技術(トポロジカル量子ビット操作)の理論的検討

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

革新的素材として笹川グループが開発を続けているトポロジカル電子物質等の単結晶試料は、国内外の研究者からの注目度が高く、特に高度な測定技術の開発を行っているグループから数多くの共同研究の申し込みがある。発展著しい軌道放射光などの大型共用施設も活用しており、研究ネットワークは世界に張り巡らされている。CRESTプロジェクト開始以降の約5年間に於いて、笹川グループからの約60報の論文の半数程度(29報)が国際共著となっている点にその実績が見て取れる。当初計画になかった「二次元」CREST領域内での連携も生まれ、川崎 G の M. S. Bahramy 氏とはトポロジカル電子状態の理論での共同研究、町田 G とはスタンプ法によるマイクロフレック化した単結晶のハイブリッド量子デバイス構造作製での共同研究が進んだ。一方で、本課題の達成を目指して開発が進められた花栗 G の極限性能走査トンネル顕微鏡/分光装置、石坂 G の極限性能角度分解光電子分光装置、柏谷 G のダイヤモンドNVセンター利用局所磁場解像顕微鏡も、本課題の範疇を超えた様々な試料への適用が期待され、共同研究への技術提供が進んでいる。