

(様式第5号)

X線吸収微細構造実験による Sr をドーブした
 Bi_2Se_3 トポロジカル超伝導体の不純物位置の探索
Search of impurity sites in Sr doped Bi_2Se_3 topological superconductor by x-ray
absorption fine structure

細川伸也¹・黒木元海²・西井隆将²・瀬戸山寛之³

Shinya Hosokawa¹, Motomi Kuroki², Takamasa Nishii², Hiroyuki Setoyama³

¹熊本大学大学院先端科学研究部（理学系）・²熊本大学理学部・³九州シンクロトロン
光研究センター

¹Faculty of Advanced Science and Technology, Kumamoto University, ²Faculty of
Science, Kumamoto University, ³Kyushu Synchrotron Light Research Center

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

本研究では、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体を対象として、Sr 不純物の添加位置を明らかにするために、Bi L_{III} (13.418 keV) および Se K 吸収端 (12.398 keV) 付近での XAFS 測定を 7 K までの低温で行った。Se 吸収端のまわりの XAFS 信号をフーリエ変換して得られる実空間のスペクトルには、2.8、3.3、4.0 Å 付近にピークが見られ、位相シフトを考慮すれば、それらはそれぞれ、Bi-Se 原子間距離 (2.908 および 3.088 Å) および 2 種の Se-Se 原子間距離 (3.453 および 4.108 Å) に対応していると考えられる。しかしながら、2.3 Å 付近にもピークが見られ、これは Bi_2Se_3 には対応する原子相関が見られないことから、Sr 不純物の近接原子情報を与えていると考えられる。それに対して、Bi L_{III} 吸収端で得られた XAFS 信号の統計精度は悪く、Bi 原子のまわりの位置ゆらぎは非常に大きいと考えられる。

(English)

In this study, Bi L_{III} (13.418 keV) and Se K (12.398 keV) XAFS experiments were carried out on $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ topological superconducting material at temperature down to about 7 K to search for Sr impurity sites in this material. The Fourier transformed real space data obtained from Se K XAFS function show peaks at about 2.8, 3.3, and 4.0 Å, which mostly coincide with Bi-Se nearest neighboring distance (2.908 and 3.088 Å), two of Se-Se neighboring distances (3.453 and 4.108 Å) if the usual phase shift in XAFS function is taken into account. Besides, a peak is observed at about 2.3 Å, for which there is no corresponding interatomic correlation in the undoped Bi_2Se_3 crystal. Thus, this peak may originate from Sr impurities around the Se atoms. On the other hand, the Bi L_{III} XAFS function has very weak oscillations, indicating that large positional fluctuations are expected around the Bi atoms.

2. 背景と目的

Thouless、Holdene と Kosterlitz が「物質のトポロジカル相」で 2016 年にノーベル物理学賞を受賞したように、トポロジーを基本とした物性は近年たいへんな興味を持たれる対象となっている。特に最近 10 年間は、表面は金属的であるが内部は絶縁体であるトポロジカル絶縁体の研究は、理論的にも実験的にも精力的に行われ、それら、例えば異常量子ホール効果などは最近の物理学においてキーとなる話題となっている。トポロジカル物質群の中で、表面が金属、内部が超伝導性を示すトポロジカル超伝導体は存在する。それらはマヨラナ粒子の発現や量子コンピュータとしての応用など多くの期待がある。しかしながら、トポロジカル絶縁体と比較して、超伝導性が現れる可能性がある物質はかなり限られており、電子をドーピングしたトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 はその数少ない候補である。Cu [1]、Sr [2]あるいは Nb [3]を添加することにより、 Bi_2Se_3 は超低温で超伝導性を示す。

不純物を添加した機能性物質の原子構造の理解の大きな問題は、不純物位置の判定に決定的な実験的手法がこれまでなかったことである。不純物はその位置に周期性を持たないため、回折実験ではブラッグ・ピークが現れず、微小な散漫散乱スペクトルにしかその情報はない。最近われわれは、特定元素のまわりの原子位置を 3 次元的なイメージとして得られる蛍光 X 線ホログラフィー[4]によってその解明を目指しているが、その補助的な情報として X 線吸収微細構造 (XAFS) のデータが非常に役に立つ。

3. 実験内容 (試料、実験方法、解析方法の説明)

$\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体試料は、既に東工大の共同研究者に提供いただいた良質なバルク単結晶を用いた。試料の結晶性はラウエ写真によって、化学組成は蛍光 X 線分析によって確認した。XAFS 測定は、7 K までの低温で Bi L_{III} (13.418 keV) および Se K 吸収端 (12.398 keV) 付近で行った。BL11 ビームラインにおいて、純粋 Ge 固体検出器を用いて蛍光法で測定を行った。

4. 実験結果と考察

図 1 に、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体の Se K 吸収端付近で測定し k^2 を掛けた XAFS スペクトルを示す。XAFS 信号の振幅は比較的小さいが、解析には十分な統計精度がある。図に示した $k=1-10 \text{ \AA}^{-1}$ の範囲の窓関数を設定し、その範囲でフーリエ変換を行った。

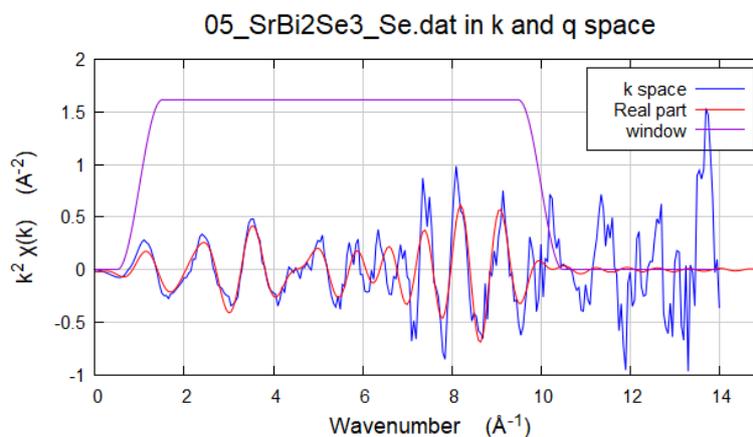


図 1 : $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体の Se K 吸収端付近で測定した XAFS スペクトル。

図 2 に、XAFS 信号のフーリエ変換によって求めた $|F(R)|$ スペクトルを示す。図から明らかなように、 $|F(R)|$ は 2.8、3.3、4.0 Å 付近にピークが見られる。Sr 不純物を含まない Bi_2Se_3 の Se のまわりには、Bi-Se (2.908 および 3.088 Å) および 2 種の Se-Se 原子間相関 (3.453 および 4.108 Å) がある。XAFS 信号の一般的な位相シフトを考慮すると、ピーク位置はそれらに対応していると考えられる。しかしながら、2.3 Å 付近にもピークが見られ、これは Bi_2Se_3 には対応する原子相関が見られない。したがってこのピークは、Sr 不純物の近接原子情報を与えていると考えられる。

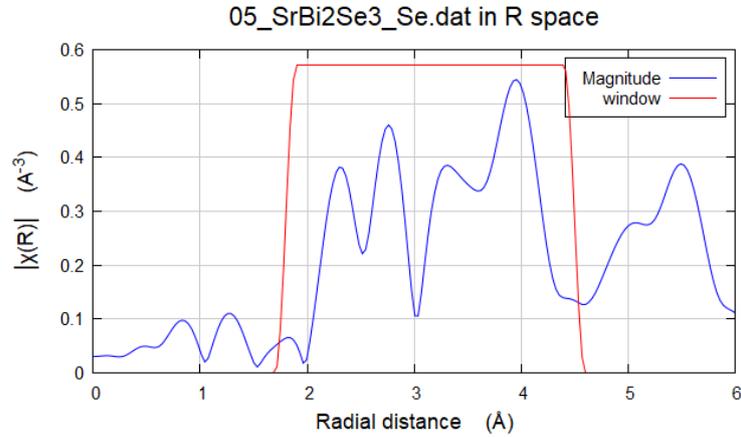


図 2 : $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体の Se K 吸収端付近で測定した XAFS 信号のフーリエ変換によって求めた $|F(R)|$ スペクトル

図 3 は Bi L_{III} 吸収端で得られた XAFS 信号を示す。また図 4 には、図 3 に示した $k = 3\text{-}11 \text{ \AA}^{-1}$ の範囲の窓関数を設定し、その範囲でフーリエ変換を行った結果を示す。スペクトルの統計精度は悪く、 Bi_2Se_3 結晶の原子間距離に対応する信号は得られなかった。したがって Bi 原子のまわりの位置ゆらぎは非常に大きいと考えられる。

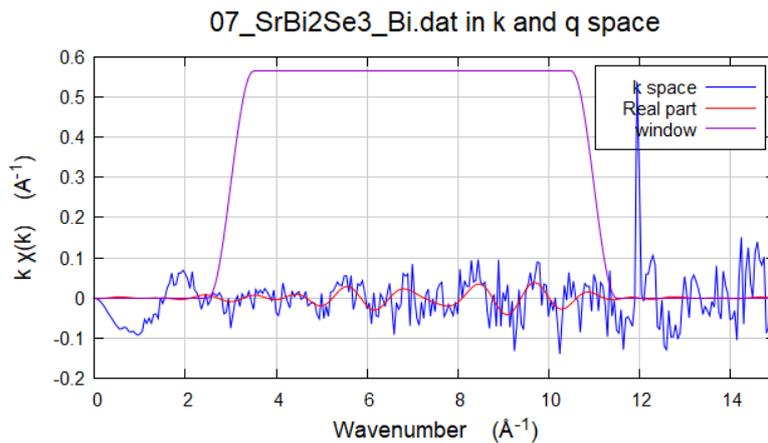


図 3 : $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体の Bi L_{III} 吸収端付近で測定した XAFS スペクトル。

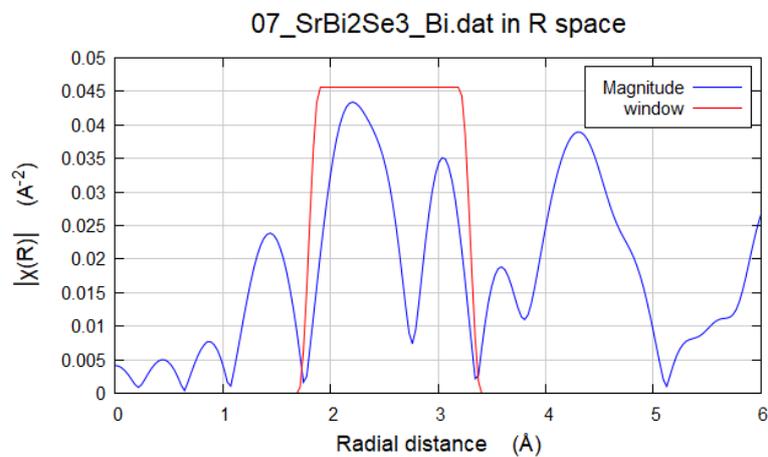


図4: $\text{Bi}_2\text{Se}_3\text{Sr}_{0.25}$ トポロジカル超伝導体の Bi L_{III} 吸収端付近で測定した XAFS 信号のフーリエ変換によって求めた $|F(R)|$ スペクトル

5. 今後の課題

まず、Sr、Bi および Se 吸収端付近での XAFS 信号を同じパラメータを用いて解析し、整合性のある解析結果を得る。続いて、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3\text{Mn}_{0.1}$ の実験[5]で見出されたように、複数の不純物サイトが存在しないかどうかを検討する。それと並行して Sr $K\alpha$ 蛍光 X 線ホログラフィー実験を試み、Sr 不純物の位置を詳細に求める。

6. 参考文献

- [1] Y. S. Hor et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 057001 (2010).
- [2] Z. Liu et al., *J. Am. Chem. Soc.* **137**, 33 (2015).
- [3] B. J. Lawson et al., *Phys. Rev. B* **94**, 041114 (2016).
- [4] K. Hayahshi et al., *J. Phys. : Condens. Matter* **24**, 093201 (2012).
- [5] S. Hosokawa et al., *Phys. Rev. B* **96**, 214207 (2017).

7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

特になし。

8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を2~3)

トポロジカル超伝導、不純物、XAFS

9. 研究成果公開について

- ① 論文 (査読付) 発表の報告 (報告時期: 2020年 12月)