

平成30年6月18日現在

機関番号：13901

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2016～2017

課題番号：16H06860

研究課題名(和文) 薄膜組成制御によるトポロジカル量子相転移の物理構築

研究課題名(英文) Physics of topological phase transition in thin films from view of composition dependence

研究代表者

浦田 隆広 (Urata, Takahiro)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：30780530

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：CaAg(As,P)はAsとPの比を調整することで、トポロジカル絶縁体からラインノード半金属への相転移が起こると考えられている。本研究はこの2つのトポロジカル相の間で生じる可能性のある量子相転移に着目し、その物性を明らかにすることを目指した。結果として、分子線エピタキシー法を用い、CaAgAs及びCaAgP単相薄膜の成長に初めて成功した。また、CaAgAsの輸送特性からは、弱反局在効果で理解できる振る舞いを観測した。CaAg(As,P)混晶系の成長には至らなかったものの、CaAgAsへの磁性ドーピングに成功し、時間反転対称性の破れを示唆する成果を得た。

研究成果の概要(英文)：In CaAg(As,P), it was proposed that there is a crossover between a topological insulator and a line node semimetal phase by controlling the strength of spin orbit coupling through changing ratio of As to P. In this project, we aimed to clarify physical properties of quantum phase transition between the two topological phases. As a result, thin films of single phase CaAgAs and CaAgP were firstly synthesized by molecular beam epitaxy method. CaAgAs thin films showed the weak antilocalization behavior in magnetoresistance. Although the synthesis of CaAg(As,P) mixed system is left as a future task, we successfully doped magnetic impurities in CaAgAs and obtained a result indicating a breaking of time reversal symmetry.

研究分野：物性物理

キーワード：トポロジカル絶縁体 ラインノード半金属 量子臨界点 分子線エピタキシー 不純物置換効果 薄膜

## 1. 研究開始当初の背景

現在、トポロジカル物質と呼ばれる物質群が注目を集めている。この量子状態は電子バンド構造のトポロジーを変えない様な擾乱に対して強固に存在するため、基礎物理的側面だけでなく、量子計算素子としての応用研究も盛んに行われている。

この代表例と言える物質群がトポロジカル絶縁体である。内部（バルク）は絶縁体であるが、表面状態にディラックコーンと呼ばれる線形な分散が一転で交差したバンド構造を有す点が特徴である。また、ディラックコーンをバルクの電子状態として持つトポロジカル物質も存在し、ディラック電子系と呼ばれている。さらに、この拡張ともいえる、ディラックコーンの交差点がライン上に連なったバンド構造を持つ、ラインノード半金属が近年発見された。

ラインノード半金属の物性は実験的には明らかになっていない点が多い。そんな中、近年、新たなトポロジカル絶縁体としてCaAgAsが理論的に提唱された。さらに、AsサイトをPで置換することで、ラインノード半金属に転移することが示唆されている[A. Yamakage *et al.*, JPSJ **85**, 013708 (2016)]。従って、CaAg(As,P)系は、同一構造中でラインノード半金属を含む2つの異なるトポロジカル相を比較できる、興味深い系と言える。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、CaAg(As,P)系のトポロジカル絶縁体-ラインノード半金属の境界に存在する可能性のある量子臨界点に着目し、その近傍での物性を明らかにすることである。特に、量子臨界点近傍に特徴的な低エネルギー励起が発現するかを、輸送特性から解明することを目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) 薄膜成長

本研究では、CaAgAs,及びCaAgPの成膜を行った。また、上記目的を達成するために、混晶系の成膜を試みた。製膜手法としては、分子線エピタキシー (MBE) 法を用いた。

### (2) 試料評価

成長させた試料はX線回折による結晶性の評価を行い、エネルギー分散型X線分光で組成分析を行った。また、原子間力顕微鏡による表面組織観察を行った。

### (3) 輸送特性

トポロジカル物質を特徴づける現象の一つが、特異な輸送特性である。例えば、トポロジカル絶縁体の磁気抵抗効果には、表面ディラックコーンに起因する弱反局在効果が、急峻な傾きを持つ正の磁気抵抗効果として観測される。また、ディラック電子が持つ $\pi$ のBerry位相が、Shubnikov-de Haas振動の位相成分に現れることが知られている。

本研究では、磁気抵抗効果、ホール抵抗及び、その磁場角度依存性の測定を行った。

## 4. 研究成果

### (1) CaAgAs の成膜

基準物質となるCaAgAsの成膜に初めて成功した。基板はサファイア(0001)を用いた。X線回折の結果、面直方向は[110]を向いていることが分かった。しかし、面内方向を向いている(0001)ピークの $\Phi$ スキューンを行ったところ、図1に示す様に、60度隔てて6本のピークが観測された。単一ドメインの結晶ならば、180度ごとに2本のピークが観測されるはずであり、この結果は3方向に向いた異なるドメインが存在することを示唆する。

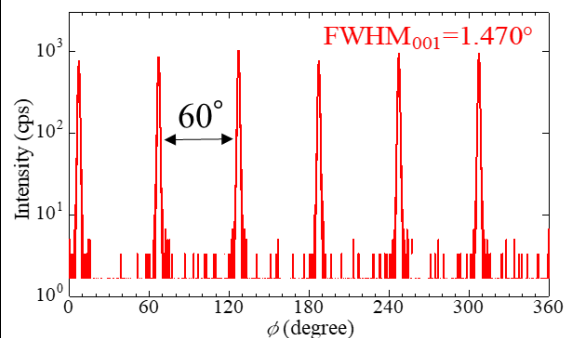


図1. CaAgAs 薄膜における(001)ピークの $\Phi$ スキューン。

薄膜の面内方位をそろえるために、様々な異なる基板を用いて成膜を行った。その結果、MgO(100)基板を用いることで、面内配向ドメイン数を2種類に減らすことに成功したものの、膜質の低下が見られた。従って、詳細な物性測定は、サファイア基板の薄膜を用いた。

### (2) CaAgAs の輸送特性

CaAgAs 薄膜の電気抵抗は、温度の減少に伴い上昇する半導体的な振る舞いを見せた。また、図2に示す様に、低温での磁気抵抗効果からは、低磁場で急峻に立ち上がる磁場依存性が観測された。この振る舞いは、膜厚を小さくするに従ってより顕著に見られ、表面状態における弱反局在効果に起因していると考えられる。従って、この結果はCaAgAsがトポロジカル絶縁体であることを示唆するものであると言える。しかし、量子振動は9 Tまでの磁場領域では観測されなかった。これは易動度が低いことが原因であると考えられ、今後更なる膜質の向上が課題である。

高温での振る舞いに着目すると、低磁場で負の磁気抵抗効果が観測された。これは、格子欠陥などの散乱体が引き起こす弱局在効果であると解釈でき、成長した薄膜で易動度が低いことも整合している。つまり、得られたCaAgAs 薄膜においては、弱反局在効果と弱局在効果が共存していると考えられる。以上の結果をまとめ、現在論文を執筆中であ

る。

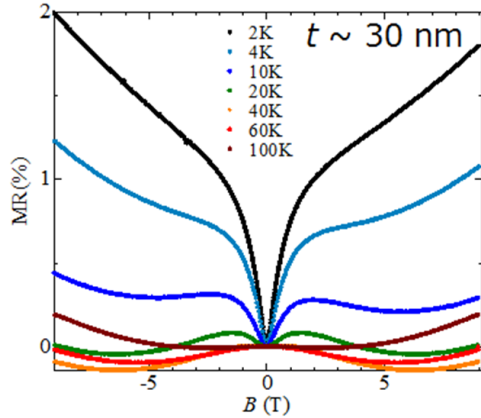


図 2. CaAgAs における、磁気抵抗効果の磁場依存性。

### (3)CaAgP 及び混晶系 CaAg(As,P)の成膜

CaAgP は CaAgAs と同じ結晶構造を有するため、まずはサファイア(0001)基板を用いて成膜を行ったが、CaAgP は成長しなかった。これはサファイア基板との格子定数のマッチングが悪いことが原因として考えられる。そこで基板を MgO(100)に変えた結果、単相の CaAgP 薄膜が得られた。面直 X 線回折の結果を図 3 に示す。低温成長では(111)配向、高温成長では(110)配向になることが分かった。但し、成膜中の基板温度が 800 度を超えると、結晶は殆ど成長しなくなった。(110)配向の薄膜の面内配向を調べて見ると、CaAgAs と同様に、2 種類の配向ドメインが生じていることが分かった。

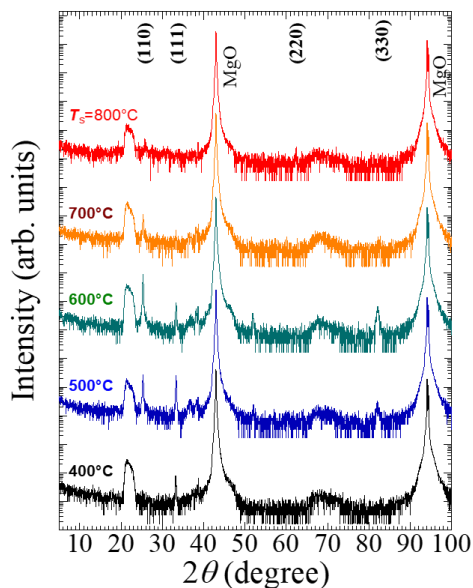


図 3. CaAgP 薄膜における、面直 X 線回折

上記の様に、単相 CaAgP を得ることに成功したもの、MBE チャンバーに不具合が生じ、P を使った成膜が出来なくなってしま

った。これにより、当初の目的であった混晶系の成長を行うことは出来なかった。

### (4)Ca(Ag,Fe)As の成膜及び輸送特性

上記の通り、CaAgP 成膜が行えない状況となったため、方針を変え、CaAgAs への磁性元素ドーピングの影響を調べることにした。

CaAgAs は最近のバルク単結晶における光電子分光などの研究結果から、フェルミエネルギーはディラック点からかなり下に位置していると報告されている。つまり、この場合、CaAgAs はギャップが開いたラインノード半金属と見なせる。一方で、我々は表面状態の存在を示唆する磁気抵抗効果を観測している。これらの物性を統合的に理解するために、時間反転対称性の破れを引き起こし、これに伴う変化を調べることは重要である。

図 4 に、Fe を Ag サイトに置換した薄膜における磁気抵抗効果の磁場依存性を示す。Ag に対する Fe のフラックス比を増やしていくに従って、段階的に磁気抵抗効果が負に変化する様子が見て取れる。これは代表的なトポロジカル絶縁体 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> などで見られている現象に類似しており、時間反転対称性が破れたことにより、表面状態が消失した結果であると考えられている[M. Liu *et al.*, PRL 108, 036805 (2012)]。

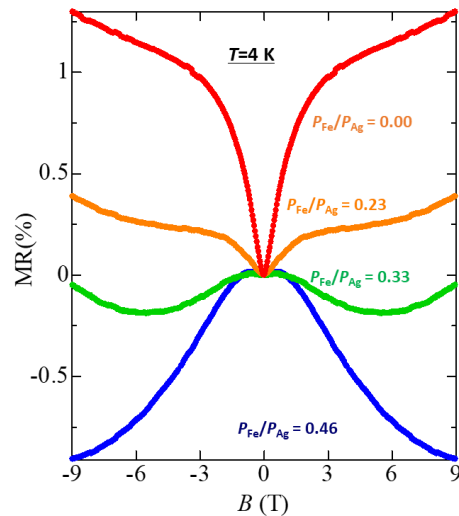


図 4. 様々なフラックス比で製膜した Ca(Ag,Fe)As 薄膜における、磁気抵抗効果の磁場依存性。

この結果は、CaAgAs の表面状態はトポロジカル絶縁体同様に時間反転対称性対称性によって保護されていることを示唆している。今後、非磁性不純物置換効果と比較することで、この変化の詳細を明らかにする必要がある。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

①N. Kawaguchi, T. Urata, T. Hatano, K. Iida, and H. Ikuta, “Nonmonotonic and anisotropic magnetoresistance effect in antiferromagnet  $\text{CaMn}_2\text{Bi}_2$ ” Phys. Rev. B, vol.97, pp. 140403(R)-1-5 (2018). 査読有り  
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.140403

②T. Matsumoto, T. Hatano, T. Urata, K. Iida, K. Takenaka, and H. Ikuta “Hall effect measurements of high-quality  $\text{Mn}_3\text{CuN}$  thin films and the electronic structure” Phys. Rev. B vol. 96, pp. 205153-1-6 (2017). 査読有り  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.205153

〔学会発表〕(計 4 件)

①畑野敬史、太田隼輔、中村伊吹、富澤雄太、浦田隆広、飯田和昌、生田博志、“トポロジカル物質候補  $\text{CaAgX}$  ( $X = \text{As}, \text{P}$ ) の薄膜作製と伝導特性の評価”、第 78 回日本応用物理学会春季学術講演会、福岡市 (福岡県)、2017 年 9 月 5 日

②太田隼輔、中村伊吹、浦田隆広、畑野敬史、飯田和昌、生田博志、“トポロジカル絶縁体候補物質  $\text{CaAgAs}$  薄膜の分子線エピタキシー成長”、日本物理学会第 72 回年次大会、豊中市 (大阪府)、2017 年 03 月 17 日

③中村伊吹、太田隼輔、浦田隆広、畑野敬史、飯田和昌、生田博志、“トポロジカル絶縁体  $\text{CaAgAs}$  薄膜の分子線エピタキシー成長”、電子デバイス界面テクノロジー研究会 一材料・プロセス・デバイス特性の物理 (第 22 回研究会)、三島市 (静岡県)、2017 年 1 月 21 日

④ T. Urata, I. Nakamura, S. Ohta, T. Hatano, K. Iida, and H. Ikuta, “Magnetotransport properties of  $\text{CaAgAs}$  thin films: a candidate topological insulator”, 第 2 回「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」領域研究会、仙台市 (宮城県)、2016 年 12 月 16 日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

浦田隆広 (URATA, Takahiro)

名古屋大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：30780530