

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20353

研究課題名（和文）4f磁性トポロジカル半金属薄膜における量子輸送現象の開拓

研究課題名（英文）Quantum transport phenomena explored in 4f magnetic topological semimetal films

研究代表者

西早 辰一（Nishihaya, Shinichi）

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：80966078

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、磁性トポロジカル半金属として理想的なエネルギー構造を実現することが予想される物質群について、分子線エピタキシー法で高品質薄膜・ヘテロ構造を作製し、ワイル点の巨大なベリー位相とカイラリティに由来する伝導現象の解明を目指した。理想的な候補物質と当初予想されたEuCd2As2が実験的にはバンドギャップを有する電子状態を持つことを明らかにした一方、多数のワイル点ペアを持つEuCd2Sb2薄膜においては、印加磁場による磁化過程や磁場の印加方向に依存したベリー曲率の変化とそれを反映した非単調な磁気抵抗効果や面内異常ホール効果の観測・解明に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ワイル点ペアを一つのみ持つ理想的な物質と当初予想されていたEuCd2As2の低キャリア濃度試料を実現し、実際にはバンドギャップを持つ絶縁体であることを実験的に示したことは、ワイル半金属相を前提としたこれまでの当該物質の先行研究の解釈を覆す重要な発見であると言える。また、ワイル半金属相を実現するEuCd2Sb2薄膜において得られた磁気抵抗効果や異常ホール効果は、4f系ワイル半金属物質の利点でもある磁気秩序の独立操作によってベリー曲率分布やそれに付随した量子輸送現象の制御や新規開拓が可能となることを示しており、今後のワイル半金属物質における機能性開拓の指針になると考えられる。

研究成果の概要（英文）：This study aims to fabricate high-quality thin films and heterostructures of a group of materials that are expected to realize an ideal band structure as magnetic topological semimetals, and to elucidate quantum transport phenomena originating from the giant Berry phase and chirality of the Weyl point. We have experimentally clarified that EuCd2As2, initially predicted as an ideal Weyl semimetal candidate, has actually an energy gap. On the other hand, based on the films of Weyl semimetal EuCd2Sb2 hosting multiple Weyl point pairs, we have demonstrated that the Berry curvature distribution can be sensitively modulated such as by the magnetization process under field and by the direction of the applied magnetic field, leading to experimental observation of nonmonotonic magnetoresistance effect and in-plane anomalous Hall effect.

研究分野：トポロジカル半金属

キーワード：トポロジカル半金属 薄膜 磁性 ホール効果

1. 研究開始当初の背景

近年の物性研究では、固体結晶中の電子のバンド構造に内在する幾何学的な構造への理解が進展し、従来のバンド理論では説明不可能な新規量子相・物理現象が次々と発見され、トポロジカル物質・トポロジカル物性という大きな分野を開拓するに至っている。これらの物質群は、トポロジカルに守られた表面状態や線形なエネルギー分散による量子輸送現象、スピン運動量ロッキングによる電流・スピン流変換機能を示し、次世代省エネルギーデバイスの材料候補として期待されている。その中でも、磁性を持つトポロジカル半金属相(磁性ワイル半金属相)は、カイラリティと呼ばれる相対論的量子数(± 1)に特徴づけられた3次元的なバンド縮退点(ワイル点)のペアを持ち、ワイル点の巨大なベリー位相とカイラリティに由来する、特異な量子伝導や電荷・磁化の結合が予想されている。エネルギーギャップを持たないトポロジカル相であるため、これらトポロジカルに守られたエネルギー散逸の少ない輸送現象やスピントロニクス機能を、動作温度に縛られることなく応用可能とする画期的な材料として期待されており、その実験的な解明が急務とされている。

実験的には、磁性ワイル半金属物質として先行して発見された $3d$ 磁性金属を含む強磁性体 (Co_2MnGa , $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$) や反強磁性体 (Mn_3Sn) などが精力的に研究され、角度分解光電子分光や異常ホール効果などの電気伝導測定から、その特異な電子構造が明らかになっている。しかしながら、いずれの物質も、異なるエネルギー位置に多数のワイル点ペアを持つ上に、自明なフェルミポケットの占有が入り混じる複雑なバンド構造をとるため、純粋にワイル点に由来する輸送特性の切り分けや制御が難しかった。その結果、これまで磁性ワイル半金属相に関する実験的研究は、磁気抵抗やホール抵抗の大きさを比較し合い、ワイル点由来のベリー位相寄与の有無を議論するに留まっており、理論的に提案されている磁性ワイル半金属相の量子伝導現象や電磁気応答を解明する段階には至っていなかった。そこで、本研究では候補物質の中でもよりシンプルなバンド構造を実現する $4f$ 電子由来の磁性を持つトポロジカル半金属物質に着目した。

2. 研究の目的

本研究では、磁性ワイル半金属候補物質のうち、近年新たに発見された $4f$ 電子による磁性を持つ一連の物質群を研究対象とする。その中でも特に、 EuCd_2As_2 および EuCd_2Sb_2 では、 Γ 点周りでの Cd の s 軌道と As , Sb の p 軌道由来のバンド間での非自明なバンド反転に加えて、 Eu^{2+} が持つ巨大な局在磁気モーメントが合わさることで、強磁性化した際にワイル半金属相を実現すると予想されている。重要な点として、前述の $3d$ 金属を含む候補物質とは異なり、伝導現象に関わるフェルミ準位の周囲はワイル点を形成するバンドのみが占めており、ワイル点半金属相として理想的なバンド構造を持つ。また磁性を担う Eu はエネルギー的に離れている結果、伝導に寄与するトポロジカルなバンド構造を損なうことなく、独立に磁気秩序由来の対称性を制御できる利点もある。これら $4f$ 磁性トポロジカル半金属物質について、分子線エピタキシー法による高品質薄膜・ヘテロ構造の作製を利用して、磁性ワイル半金属相特有の量子伝導現象や電磁気応答を解明・開拓することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、磁性ワイル半金属のバルク試料を対象とするこれまでの先行研究とは異なり、分子線エピタキシー法によって高品質な薄膜試料を実現し、量子輸送現象の開拓を行った。薄膜試料では、適切なパターン加工によりホール測定や磁気抵抗測定の正確性が増すだけでなく、次元性の制御・デバイス構造でのフェルミレベル制御・他系との接合などが可能となり、実験的な自由度が飛躍的に高まる。特に、 EuCd_2As_2 や EuCd_2Sb_2 は高蒸気圧な元素を含む化合物であり、組成比ずれによって容易にキャリアドーピングが起きるため、低キャリア濃度・高移動度な試料の作製には、緻密な組成比制御が可能な分子線エピタキシー法による試料作製には大きなアドバンテージがあると言える。高品質薄膜の実現後にはホールバーデバイスや電界効果デバイスを作製し、温度・磁場・キャリア濃度に依存したワイル点由来の量子輸送現象の評価を行った。

4. 研究成果

本研究の主な成果を以下の3つである。

- (1) ワイル半金属候補物質 EuCd_2As_2 の高品質薄膜化と絶縁体的挙動の解明
- (2) ワイル半金属 EuCd_2Sb_2 薄膜における非単調な磁気抵抗効果の解明
- (3) ワイル半金属 EuCd_2Sb_2 薄膜における面内異常ホール効果の発見

以下ではこれらの成果の詳細について述べる。

(1) ワイル半金属候補物質 EuCd_2As_2 の高品質薄膜化と絶縁体的挙動の解明

EuCd_2As_2 は理論提案されているワイル半金属候補物質の中でも、低エネルギー領域に単一のワイル点対のみを形成する最も理想的な物質として予想され、これまでバルク研究においてもその輸送特性が報告され、予想されているワイル半金属のバンド構造と関連付けた議論がなされてきた。一方、それらバルク試料のすべては、組成比ずれによって 10^{18} cm^{-3} 以上の高いキャリア濃度を持ち、金属的な伝導状態を持つものであり、 EuCd_2As_2 の低エネルギー領域の伝導特性を真に反映しているとは言えない問題点があった。本研究では比較的格子整合の良い $\text{CdTe}(111)$ 基板上に分子線エピタキシー法によって低キャリア濃度の $\text{EuCd}_2\text{As}_2(001)$ 薄膜の作製に成功した。またそのような試料においては、これまで金属的な伝導を示す高キャリア濃度のバルク試料とは異なり、低温に向けて絶縁化する挙動が観測された(図 1(a))。さらに、図 1(b)に示すように、200 meV 程度の熱活性型のキャリア濃度の温度依存性が観測されたこと、また電界効果によるキャリアドーピングでは金属化に至らないことから、 EuCd_2As_2 が内因的に少なくとも 200 meV 以上のギャップを持つ絶縁体であることが分かった。本研究での結果は、これまで EuCd_2As_2 がワイル半金属相を実現する前提で進められていた先行研究の解釈を覆す重要な結果と言える。

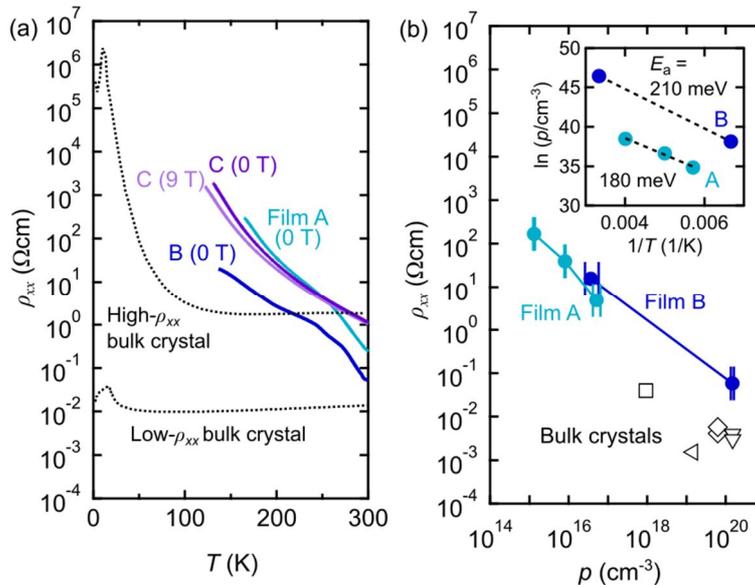


図 1: EuCd_2As_2 薄膜の(a)抵抗率と(b)キャリア濃度の温度依存性。比較として先行研究のバルク試料の結果も示している。

(2) ワイル半金属 EuCd_2Sb_2 薄膜における非単調な磁気抵抗効果の解明

EuCd_2As_2 が有限のエネルギーギャップを持つ絶縁体であることが明らかとなり、ワイル半金属相の研究対象を EuCd_2Sb_2 へと移した。 EuCd_2Sb_2 は、 EuCd_2As_2 と比較し、よりスピン軌道相互作用が大きく、強磁性化した場合には複数のワイル点対を形成することが予想され、実験としても理論的に計算されるワイル点の位置にフェルミエネルギーを調整した場合に巨大な異常ホール効果が現れることが報告されている。一方、これまで磁場によって強磁性に至る前の磁化過程における輸送特性には注目されてこなかった。本研究では、 $\text{EuCd}_2\text{Sb}_2(001)$ 薄膜において、基底状態の A 型反強磁性状態から面直

磁場によって徐々に c 軸方向に強磁性化する単純な過程において、磁気抵抗およびホール抵抗に非単調なピーク構造が共通して現れることを見出した (図 2(a))。ホール抵抗の非単調な変化はこれまでも EuTiO_3 などの $4f$ 磁性半導体・半金属において磁化過程におけるバンド分裂が非単調なベリー曲率の変化を生むことで説明されているが、本研究ではそれに加えて、そのベリー曲率の変化が磁気抵抗にも現れることを実験的に示した。また、既存のワイル半金属研究においては、平行な電磁場下で現れるカイラル異常による、主に磁場の 2 乗に比例した磁気抵抗効果が多く議論されてきたが、本研究において観測した磁気抵抗効果の起源は、時間反転対称性が破れワイル分散に有限の傾きを持つ磁性ワイル半金属の場合に現れる磁場とベリー曲率の積の一乗に比例した項によるものであることを理論計算とともに解明した。

(3)ワイル半金属 EuCd_2Sb_2 薄膜における面内異常ホール効果の発見

前述の成果から得た磁気秩序を通したベリー曲率分布および異常ホール効果の制御の観点を足掛かりにして、 EuCd_2Sb_2 薄膜の Eu 格子面内に磁場を印加した場合の輸送特性も評価した。これまで磁場を面内に印加した場合に現れるホール効果としては、プレーナーホール効果が知られているが、これは磁場に対して偶関数であり、異方向性磁気抵抗効果の横成分を相当する。一方、本研究では EuCd_2Sb_2 薄膜の(001)面内に印加した磁場に対して奇関数となる異常ホール成分の観測に成功した。また、磁場を面内で回転させた場合には、 EuCd_2Sb_2 の結晶対称性を反映した三重回転対称性を観測した (図 2(b))。ある特定の面内磁場方位において、時間反転対称性の破れたホール効果を観測したということは、その面内磁場によって面直方向に有限なベリー曲率成分が生じたということを示している。 EuCd_2Sb_2 (001)の場合、磁場を Eu - Eu の結合方向に対して垂直に印加した場合、磁場方向の対する C_2 回転対称性とそれに垂直なミラー対称性が破れるために、磁場によるワイル点の分裂方向が面直方向に現れ、それによって生じた面直方向のベリー曲率成分で異常ホール効果が現れていることを明らかにした。面内異常ホール効果はその量子化の可能性を含めて、理論研究において先行して報告されていたが、ワイル点由来の巨大なベリー曲率、低キャリア濃度かつ適切な結晶対称性をもつ EuCd_2Sb_2 において実験的に明確に観測されたものであると考えられる。

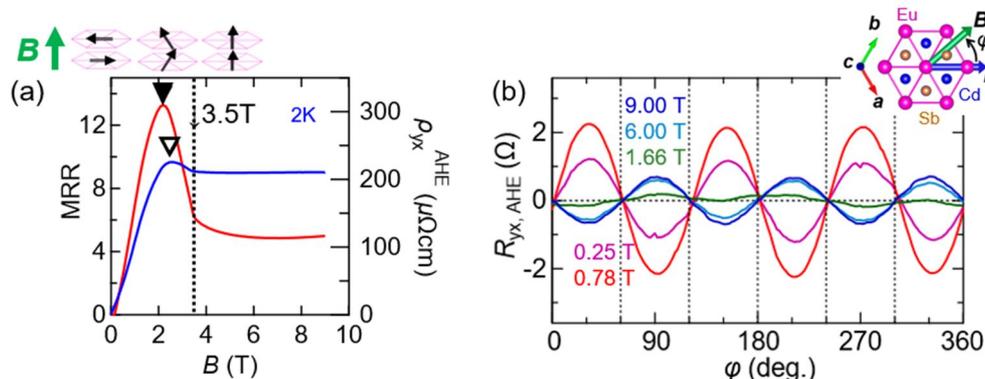


図 2: (a) EuCd_2Sb_2 薄膜における面直磁場下での磁化抵抗(左軸)とホール抵抗 (右軸) の非単調な変化。(b)面内異常ホール効果の磁場方位依存性。

以上のように、 $4f$ 電子による磁性を持つ磁性ワイル半金属候補物質の薄膜作製し、特異な磁気輸送特性の観測や解明に成功した。特に、磁気秩序の独立操作によってベリー曲率分布やそれに付随した量子輸送現象の制御や新規開拓が可能となることを示す結果が得られ、今後のワイル半金属物質における機能性開拓の重要な指針になることが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nishihaya Shinichi, Nakamura Ayano, Ohno Mizuki, Kriener Markus, Watanabe Yuto, Kawasaki Masashi, Uchida Masaki	4. 巻 124
2. 論文標題 Intrinsic insulating transport characteristics in low-carrier density EuCd2As2 films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 23103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0183907	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakamura Ayano, Nishihaya Shinichi, Ishizuka Hiroaki, Kriener Markus, Ohno Mizuki, Watanabe Yuto, Kawasaki Masashi, Uchida Masaki	4. 巻 109
2. 論文標題 Berry curvature derived negative magnetoconductivity observed in type-II magnetic Weyl semimetal films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L121108
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.109.L121108	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中村彩乃, 西早辰一, 大野瑞貴, 渡辺悠斗, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 磁性ワイル半金属EuCd2Sb2 薄膜における 磁気抵抗の特徴変化
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村彩乃, 西早辰一, Markus Kriener, 渡辺悠斗, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 磁性ワイル半金属EuCd2Sb2薄膜における磁気輸送特性の磁場方位依存性
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 西早辰一, 中村彩乃, 大野瑞貴, Markus Kriener, 渡辺悠斗, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 ワイル半金属候補物質EuCd2As2の薄膜作製による低キャリア濃度化
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 A. Nakamura, S. Nishihaya, H. Ishizuka, M. Kriener, M. Ohno, Y. Watanabe, M. Kawasaki, M. Uchida
2. 発表標題 Berry curvature derived negative magnetoconductivity in type-II magnetic Weyl semimetal EuCd2Sb2 films
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------