

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26870086

研究課題名(和文) 強磁性トポロジカル結晶絶縁体の開発とその空間反転対称性からみた特性の解明

研究課題名(英文) Development and investigation of a ferromagnetic topological crystalline insulator with focusing on space inversion symmetry

研究代表者

秋山 了太(Akiyama, Ryota)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・助教

研究者番号：40633962

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではトポロジカル結晶絶縁体(TCI)において、その鏡映対称性がもたらすトポロジカル表面状態(TSS)について、磁性元素の添加による影響を探ることを目指した。まずは高品質単結晶薄膜SnTeにおいて2次元弱反局在効果を観測し、それがTSS由来であることを明らかにした。また補償元素Sb添加を行った所、バルクキャリア低減と、さらにp型・n型両タイプの作製に成功した。その試料において角度分解光電子分光測定を行った結果、TSS由来のディラックコーンの観測に成功した。またSnTeへの磁性元素Mnのドーピングによって強磁性化することにも成功し、低Mn濃度試料では強磁性とTSSが両立していることを示した。

研究成果の概要(英文)：In this study, the aim is to investigate the relation between the crystal mirror symmetry and its topological surface state (TSS) in the topological crystalline insulators (TCIs) with doping the magnetic atoms. At first, we optimized the growth conditions of the high-quality single crystal thin films, and observed the weak antilocalization (WAL) effect, which was confirmed to be induced by the TSS. We successfully decrease the bulk carrier density by doping the compensation atom, Sb. The thin film becomes even n-type whereas the non-doped one shows p-type due to many Sn vacancies. Furthermore, the ARPES measurement revealed the Dirac cone derived from the TSS. Lastly with doping of Mn we made the ferromagnetic TCI. The WAL was also observed at the low-Mn-density sample. Thus, we demonstrated the coexistence of the ferromagnetism and the TSS. This means that the TSS can survive under the ferromagnetic interaction if such interaction is not so strong.

研究分野：表面物理学、スピントロニクス、磁性、薄膜

キーワード：トポロジカル絶縁体 トポロジカル結晶絶縁体 スピン軌道相互作用 2次元伝導 メゾスコピック 光電子分光 磁性

1. 研究開始当初の背景

物質に強いスピン軌道相互作用が存在すると、バンドの波動関数のパリティが伝導帯と価電子帯で入れ替わり、部分的にバンド反転を生じる。そのような物質系で、時間反転対称性が守られ、トポロジックな状態を決定するトポロジカル数 Z_2 が 0 でない物質については、物質表面が金属的であり、さらにスピン流が流れるが、バルク部は絶縁体であるような状態、トポロジカル絶縁体 (TI) となることが知られている。本研究ではトポロジカル結晶絶縁体 (TCI) を扱っている。TCI は TI の一種で、表面状態が時間反転対称性ではなく結晶の鏡映対称性によって担保されている。理論的には 2012 年に予測され、さらに実験的にも同年角度分解光電子分光法 (ARPES) によって TCI であることが実証された[1]。本研究開始当初は、SnTe が典型物質として発表されたばかりであり、まだ電気伝導的な性質や薄膜については知見が殆どなかった。特に薄膜については結晶成長上平坦性の確保が問題となっており、同時にバルクキャリアが多く表面状態が観測しにくいことが知られており、その改善が求められていた。また、TCI の鏡映対称性と表面状態の関係については理論があるのみで、実際にどうなっているのかは不明であった。磁性元素のドーピングによって強磁性になるかは当然ながら TCI としては調べられておらず、未解明であった。

2. 研究の目的

本研究テーマは TCI を用いて、その鏡映対称性と表面状態保護の関係について明らかにし、更に磁性元素のドーピングによって時間反転対称性を崩しても表面状態が保護されると期待されることから、強磁性の TCI を作製することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では主に SnTe 薄膜試料を取り扱っているため、まずはその結晶成長の条件の最適化から始めた。電気伝導測定や ARPES 観測にも必須のため、様々な基板上へ様々な条件で成長を試み、平坦性の高い高品質単結晶成長ができる条件探索を行った。

そして電気伝導測定を低温～室温まで、ゼロ磁場から高磁場まで行って電氣的性質を詳細に調べた。また、SnTe は Sn 欠損が生じやすく p 型になりやすいためフェルミレベルが価電子帯にかかり、バルク伝導を生じやすい。そのためバンドギャップ中に生じるギャップレス表面状態観測のためにはバルクキャリアの補償が必須である。Pb を SnTe と混晶させた $Pb_{1-x}Sn_xTe$ については、 x が 0.25 以上程度までは TCI 的性質を持つ。これも as grown では p 型になりやすいが、補償元素をドーピングすることで SnTe よりも容易にキャリア補償ができると期待される。こうして試料平坦性の改善とバルクキャリア低減を達成

し、広島大学の HiSOR において ARPES 実験を行った。

磁性元素をドーピングすると、条件次第で SnTe は強磁性となることが期待されるため、系統的な調査を行った。測定としては、X 線回折による構造解析、SQUID による磁化評価、さらには XAS による局所構造解析も行った。また ARPES 測定も行い、ドーピング 5% 程度ではバルクバンドに大きな変化を及ぼさないことを確認した。

最後に、TCI をスピントロニクスに応用する試みとして SnTe/Fe 構造を超高真空中で作製し、それを微細加工してスピンポンピング実験を行うことで SnTe 中でのスピン流の観測を行う。方法はマイクロ波照射によって強磁性 Fe 膜の磁化を歳差運動させることで生じるスピン流を、隣接する SnTe 層に注入、逆スピンホール効果によって検出するというものである。

4. 研究成果

I. 電気伝導測定による表面状態観測

TCI 典型物質である SnTe においては、それまで ARPES や理論によってはトポロジカル表面状態 (TSS) が示唆されていたものの、電気伝導による確認は殆どなかった。そこで我々は SnTe 薄膜において低温・磁場下で測定を行い、TSS による 2 次元弱反局在効果の観測に成功した[2]。図 1 のように磁場方向を薄膜法線に対して変化させたとき、磁気抵抗が等方的な依存性を示さず、2 次元成分を持つことが分かる。これは TSS 由来と考えられ、本研究が初めて示した。

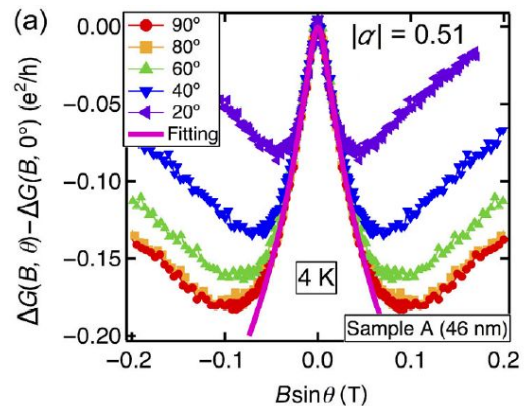


図 1：弱反局在効果の磁場方向依存性。

II. 薄膜成長条件最適化

従来の多くの薄膜上 SnTe の研究では、絶縁基板として BaF₂ 基板が多く用いられてきた。しかし、この基板上では成長した SnTe 表面に大きなラフネスが生じることが知られている。本研究ではそのため、下地層の改善を行った。まず格子定数の近い CdTe 層を下地として SnTe を成長した場合にラフネス改善が見られ、TSS 由来と考えられる 2 次元弱反局在効果を確認した[3]。

III. Sb 添加によるバルクキャリア補償

SnTe に Pb を同時照射して作製した $Pb_{1-x}Sn_xTe$ は、 x に応じてバルクキャリア密度が変化する。我々はさらなるバルクキャリア密度低下のために補償元素として Sb をドーピングした。その結果、Sn/Pb 組成に加えて Sb ドーピング濃度を調整することで n 型を含め非常に系統的にバルクキャリアタイプ・密度を制御し、金属的な試料から半導体的な試料まで作製することに成功した (図 2)。これによって、ARPES 測定に向けて TSS 観察に適した低バルクキャリア密度の試料を作製できた。

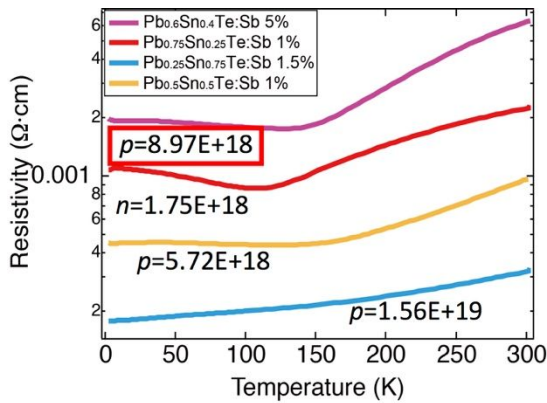


図 2 : 様々な試料における抵抗率の温度依存性。赤枠の試料は p 型では最も低いバルクキャリア密度を示した。

IV. ARPES による表面バンド観測

前項の電気特性最適化した試料において、ARPES 測定を行った。それまで、薄膜 $Pb_{1-x}Sn_xTe(111)$ については、TSS の観測が十分になされておらず、またフェルミ面形状も不明であった。我々は入射光子エネルギーを変化させながらバンド分散を観察した。結果としては図 3 のように、TSS とと思われるバンド

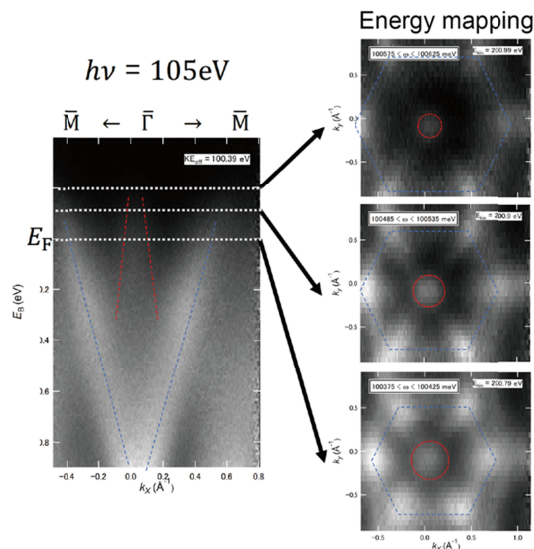


図 3 : (左) ARPES による $E-k$ 分散。(右) 等エネルギーマッピング。赤点線は表面バンド、青点線はバルクバンドを示す。

の等エネルギー断面を観測することができた。そしてこのバンドは入射光子エネルギーに依存せず常に存在し、またバルクバンド計算では再現されないものであることから TSS 由来のディラックコーンであると考えられる。

V. 磁性元素ドーピングによる TCI における磁性制御

SnTe への磁性元素ドーピングの試みは過去に行われているが[4]、磁性とキャリアの関係など詳細は十分に明らかでなかった。我々は、Te 同時照射を行った $Sn_{1-y}Mn_yTe$ の $y = 0.048$ において、強磁性—常磁性スイッチングに成功した。つまりホールキャリア密度を増やすと磁性が増強されて保磁力が増加することが分かった (図 4)。また XAFS 測定から、 y が小さいときは Mn が一様に格子位置に入るが、 y が 0.2 程度と大きいときには Mn が格子間に入り、磁性を抑制することが分かった。

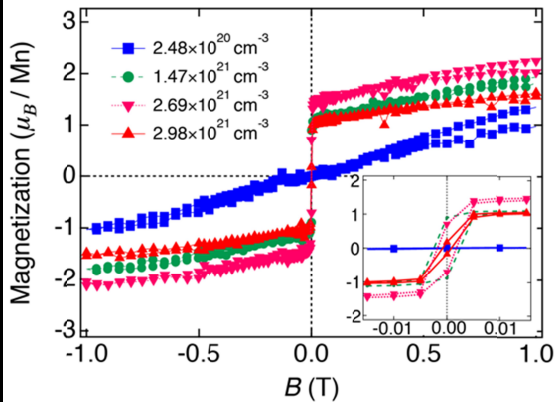


図 4 : $Sn_{0.952}Mn_{0.048}Te$ の 2K における $M-H$ 曲線。

VI. スピンポンピングを用いた SnTe へのスピン注入・検出

TI および TCI ではスピンの向きと運動量が固定されており (スピン-モーメントムロック) その性質を上手く用いればスピン偏極率の高いスピントロニクス材料を作製できると期待される。本テーマでは SnTe/Fe というヘテロ構造を作製し、Fe 層に対してマイクロ波を照射することで、磁化の歳差運動を誘起した。それによって SnTe/Fe 界面にスピン蓄積が起こり、スピン流が SnTe 内へと拡散していく。そうすれば逆スピンホール効果で電圧としてスピン流が観測できるはずである。しかし、この方法では温度の効果や AMR などのアーティファクトを含む可能性があり、本研究では注意深くそれらを除外した。その結果、スピン注入を確認でき、スピンホール角は 0.013 という比較的大きな値が得られた。これは GaAs や Si から一桁大きな

値である[5]。

このように、各項目についてそれぞれ結果が得られたが、まだ鏡映対称性の秩序度とTSSの具体的な保護性の関係など未解明な点は多く、さらにTCIの特長を活かした応用面も視野に入れた、今後のさらなる研究が期待される。

<引用文献>

- [1] Y. Tanaka *et al.*, Nat. Phys. **8**, 800 (2012).
- [2] R. Akiyama *et al.*, Nano Research **9**, 490 (2016).
- [3] R. Ishikawa *et al.*, J. Crys. Growth **453**, 124 (2016).
- [4] P. J. T. Eggenkamp *et al.*, J. Appl. Phys. **75**, 5728 (1994).
- [5] S. Ohya *et al.*, submitted

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 7 件)

- . Ryota Akiyama, Yuma Takano, Yukihiro Endo, Satoru Ichinokura, Ryosuke Nakanishi, Kentaro Nomura, and Shuji Hasegawa, “Berry phase shift from 2π to π in Bilayer graphene by Li-intercalation and sequential desorption”, Applied Physics Letters, Accepted 査読有り (2017).
- . Ryota Akiyama, Kazuki Sumida, Satoru Ichinokura, Akio Kimura, Konstantin A. Kokh, Oleg E. Tereshchenko, Shuji Hasegawa, “Shubnikov-de Haas oscillations in p and n-type topological insulator $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ ”, arXiv 1701.00137 査読なし(2017).
- . Y. K. Wakabayashi, R. Akiyama, Y. Takeda, M. Horio, G. Shibata, S. Sakamoto, Y. Ban, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, M. Tanaka, and S. Ohya, “Origin of the large positive magnetoresistance of $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x$ granular thin films”, Physical Review B **95**, 014417 DOI:10.1103/PhysRevB.95.014417 査読有り (2017).
- . Ryo Ishikawa, Tomonari Yamaguchi, Yusuke Ohtaki, Ryota Akiyama, Shinji Kuroda, “Thin film growth of a topological crystal insulator

SnTe on the CdTe (111) surface by molecular beam epitaxy”, Journal of Crystal Growth **453**, 124-129

DOI:10.1016/j.jcrysgro.2016.08.027 査読有り(2016).

. Ryota Akiyama, Kazuki Fujisawa, Tomonari Yamaguchi, Ryo Ishikawa and Shinji Kuroda, Two-dimensional quantum transport of multivalley (111) surface state in topological crystalline insulator SnTe thin films, Nano Research **9**, 490 DOI:10.1007/s12274-015-0930-8 査読有り (2016).

. Yoshisuke Ban, Yuki Wakabayashi, Ryota Akiyama, Ryosho Nakane, and Masaaki Tanaka, Carrier transport properties of the Group-IV ferromagnetic semiconductor $\text{Ge}_{1-x}\text{Fex}$ with and without boron doping, AIP advances **4**, 097108 DOI: 10.1063/1.4895109 査読有り (2014).

. R. Akiyama, K. Fujisawa, R. Sakurai, and S. Kuroda, Weak antilocalization in (111) thin films of a topological crystalline insulator SnTe, Journal of Physics: Conference series **568**, 052001 DOI:10.1088/1742-6596/568/5/052001 査読有り(2014).

[学会発表](計 6 件)

- . Ryota Akiyama, Kazuki Sumida, Satoru Ichinokura, Akio Kimura, Konstantin Kokh, Oleg Tereshchenko, and Shuji Hasegawa, Shubnikov-de Haas oscillations in n and p-type topological insulator $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ flakes, 1.06, NTTI2016 and NGS 17, ヴュルツブルク(ドイツ) (2016年7月24-29日)
- . 秋山了太, “ Properties of topological insulators probed by a magnetic field ”, 東京大学物性研究所短期研究会「強磁場コラボラトリー、国際協力と強磁場科学」, 2016

年 6 月 23 日、東京大学物性研究所 (千葉県・柏市) (招待講演)

. R. Akiyama, K. Fujisawa, T. Yamaguchi, R. Sakurai, and S. Kuroda, Two-dimensional weak antilocalization in topological crystalline insulator SnTe thin films, New Trends in Topological Insulators 2015, サンセバスチャン (スペイン) (2015 年 8 月 6-10 日)

. 秋山了太、藤澤和輝、山口智也、桜井隆太郎、黒田眞司、「トポロジカル結晶絶縁体 SnTe および SnTe:I 薄膜の電気伝導特性」第 2 回「相互作用が生み出す新奇現象に関する研究会」広島大学東京キャンパス(東京都・港区)(2015 年 3 月 25 日) (招待講演)

. R. Akiyama, K. Fujisawa, T. Yamaguchi, S. Kuroda, Two-dimensional weak antilocalization in topological crystalline insulator SnTe thin films, The Fudan-Todai-Yonsei Joint Workshop 2015, ソウル(韓国) (2015 年 1 月 31 日) (招待講演)

. R. Akiyama, K. Fujisawa, S. Kuroda, Electrical transport measurements in topological crystalline insulator SnTe thin films, International Conference on the Physics of Semiconductors 2014, オースティン (アメリカ) (2014 年 8 月 14 日).

[その他]

ホームページ等

http://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/people/akiyama_ryota/

http://www-surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp/top_j.html

<http://researchmap.jp/rakiyama>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

秋山 了太 (AKIYAMA, Ryota)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：40633962

(4) 研究協力者

黒田 眞司 (KURODA, Shinji)

藤澤 和輝 (FUJISAWA, Kazuki)
山口 智也 (YAMAGUCHI, Tomonari)
桜井 隆太郎 (SAKURAI, Ryutarō)
石川 諒 (ISHIKAWA, Ryo)
伊藤 寛史 (ITO, Hiroshi)
中西 亮介 (NAKANISHI, Ryosuke)
Fan Di (Fan, Di)
長谷川 修司 (HASEGAWA, Shuji)
木村 昭夫 (KIMURA, Akio)
佐藤 仁 (SATO, Hitoshi)