

令和 6 年 5 月 16 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18967

研究課題名（和文）巨大な異常ホール応答を実現するトポロジカル磁性半導体の開発

研究課題名（英文）Topological magnetic semiconductors for giant anomalous Hall responses

研究代表者

打田 正輝（Uchida, Masaki）

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：50721726

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、トポロジカルな磁気秩序構造と結びつく半導体中のキャリア輸送に着目し、巨大な異常ホール応答を実現するトポロジカル磁性半導体の開拓を目指した。特に、三角格子磁性半導体EuAsについてEuをGdで置換したEu_{1-x}Gd_xAsの薄膜作製と輸送評価をx=0.03まで系統的に行った。その結果、わずかな元素置換によって、磁気輸送特性が劇的に変化する振る舞いが明らかになった。また、Eu-Asの二元系化合物において磁性半導体的な振る舞いを示す新物質を発見することに成功し、X線構造解析や電子顕微鏡観察によって、この新物質の組成と格子構造を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果は、多様な相の存在や必要な蒸気圧・基板温度の問題によって選択的な成長が困難であったEu-As二元系について、II-V族分子線エピタキシー装置による薄膜成長が極めて有用であることを示している。Eu-As二元系化合物の中には、三角格子磁性半導体EuAs以外にも、磁性半導体的な性質を持ちつつフラストレートしたスピン配置をとる物質が多く存在し、今後の研究展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we focus on carrier transport in semiconductors coupled to topological magnetic orderings, and aim to develop topological magnetic semiconductors that realize giant anomalous Hall responses. In particular, we have systematically fabricated thin films of Eu_{1-x}Gd_xAs, in which Eu is substituted for Gd in the triangular lattice magnetic semiconductor EuAs, and have evaluated transport up to x = 0.03. The results revealed a dramatic change in magnetotransport behavior with slight elemental substitutions. We have also succeeded in discovering a new compound that exhibits magnetic semiconducting behavior as the Eu-As binary compound, and have clarified the composition and lattice structure of this new compound by x-ray structure analysis and scanning transmission electron microscopy observation.

研究分野：物性物理学

キーワード：磁性半導体 薄膜

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スキルミオンに代表される実空間におけるトポロジカルな磁気秩序構造と、その非共面スピン構造のスピンカイラリティが寄与する異常ホール効果の研究は、ますます盛んになっている。一方、これまでの研究は大量の伝導キャリアを持つ金属に限られており、半導体におけるトポロジカルな磁気秩序構造と、それと強く結合する少数のキャリアの伝導に着目した研究はなかった。例えば、スピンカイラリティによる創発磁場を生み出す非共面スピン構造体に対し一つの高移動度電子が対応すると、外部磁場中における量子ホール効果と同様に量子化状態が現れることが理論的に提案されている。このような新しい量子化状態の探索には、これまでの中心的対象であった金属よりも、少数の制御可能なキャリアを持つトポロジカル磁性半導体が適していると考えられる。

2. 研究の目的

研究代表者は、希土類化合物 EuAs の単結晶薄膜の作製に成功し、本物質が面直磁場下において非共面的な磁気秩序を持つ三角格子磁性半導体に位置付けられることを見出した (M. Uchida *et al.*, *Science Advances* **7**, eabl5381 (2021))。EuAs は As が面直方向に $[\text{As-As}]_4$ -の二量体を形成するため Eu は二価となり巨大な磁気モーメントを持つ。さらに、この二量体形成のため Eu^{2+} の三角格子が三量体を形成するように歪み、面直磁場下においてスピンカイラリティがキャンセルせずに残る。そのため、EuAs 薄膜では、面直磁場によるスピンのキャントとともに 0.1 を超える巨大な異常ホール角を示す。一方で、EuAs は飽和磁場下でも半導体的な温度依存性を示すため、現状では低温で巨大な異常ホール抵抗率の裾部分しかまだ観測できていない。また、Eu-As 二元系化合物にはその基本的な物性が明らかになっていないものが多く、その中には、磁性半導体的な性質を持ち、かつ Eu^{2+} がフラストレートしたスピン配置をとることが期待されるも物質も存在する。そこで、本研究では、トポロジカル磁性半導体の分野開拓を目指して、EuAs を含む Eu-As 磁性半導体薄膜の作製とそのキャリア制御の研究を進めた。

3. 研究の方法

Eu-As 二元系化合物は他の希土類元素と比べて多様な相が存在し、また As の高い蒸気圧や成長に必要な温度の高さから、EuAs やその他の Eu-As 二元系化合物を選択的に成長させることが困難であった。そこで、本研究では、Eu を導入した II-V 族分子線エピタキシー装置を用いて、非常に広い基板温度・フラックス比において Eu-As 二元系化合物の成膜条件の探索を行った。さらに、作製したエピタキシャル薄膜について Gd 置換によるドーピングを試み、系統的な磁気輸送特性の測定を行った。具体的には、(1)元素置換・電界効果によるキャリアドーピング、(2)トポロジカル磁性半導体の新物質系探索、(3)キャリア制御による量子化状態の実証、の三項目の研究を進めた。

4. 研究成果

三角格子磁性半導体 EuAs について Eu を Gd で置換した $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{As}$ の分子線エピタキシー成長を行った。その結果、 $x=0.03$ までの単結晶薄膜の作製と系統的な輸送特性の変化の観測に成功した。Eu をわずかに Gd で置換するだけで、半導体的な磁気輸送特性が劇的に変化する振る舞いが明らかになった。

また、これまで伝導特性・磁気特性が明らかになっていなかった複数の Eu-As 二元系化合物についてその振る舞いを明らかにした。特に、Eu₃As₄ 薄膜は半導体的な抵抗率の温度依存性を示すことがわかった。また、磁化測定から、Eu₃As₄ 薄膜は 7.2 K において反強磁性転移を示し、Eu²⁺ による磁気モーメントが面直磁場 2.3 T で飽和することが明らかになった。

さらに、Eu-As の二元系化合物において磁性半導体的な振る舞いを示す新物質を発見することに成功した。X 線構造解析及び 2 通りの方向から走査型電子顕微鏡観察を行うことで、その格子定数や原子配列が、EuAs を含むこれまでに報告されている Eu-As 二元系化合物のいずれのものとも一致しないことを確認した。特に、走査型電子顕微鏡観察では明瞭な原子配列が確認され、面直方向及び面内方向の格子定数を決定することに成功した。また、エネルギー分散型 X 線分光による評価から、この新物質は EuAs に近い Eu:As~1:1 の組成比をもつことがわかった。さらに、その抵抗率の温度依存性も半導体的であり、磁場印加によって大きく減少する振る舞いが確認された。これらの結果は、Eu-As 二元系化合物において、三角格子磁性半導体 EuAs 以外にも様々な磁性半導体物質が存在することを意味している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Nishihaya, A. Nakamura, M. Ohno, M. Kriener, Y. Watanabe, M. Kawasaki, and M. Uchida	4. 巻 124
2. 論文標題 Intrinsic insulating transport characteristics in low-carrier density EuCd ₂ As ₂ films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 023103 1-5
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 Y. Nakazawa, R. Kurihara, M. Miyazawa, S. Nishihaya, M. Kriener, M. Tokunaga, M. Kawasaki, and M. Uchida	4. 巻 93
2. 論文標題 Edge and Bulk States in Weyl-Orbit Quantum Hall Effect as Studied by Corbino Measurements	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 023706 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.93.023706	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 A. Nakamura, S. Nishihaya, H. Ishizuka, M. Kriener, M. Ohno, Y. Watanabe, M. Kawasaki, and M. Uchida	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 1-6
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 -
1. 著者名 R. Oshima, T. Hatanaka, S. Nishihaya, T. Nomoto, M. Kriener, T. C. Fujita, M. Kawasaki, R. Arita, and M. Uchida	4. 巻 109
2. 論文標題 Ferromagnetic state with large magnetic moments realized in epitaxially strained Sr ₃ Ru ₂ O ₇ films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L121113 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.109.L121113	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 J. P. Clancy, H. Gretarsson, A. Lupascu, J. A. Sears, Z. Nie, M. H. Upton, J. Kim, Z. Islam, M. Uchida, D. G. Schlom, K. M. Shen, and Y.-J. Kim	4. 巻 107
2. 論文標題 Magnetic excitations in the square-lattice iridate Ba ₂ IrO ₄	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 054423-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.054423	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 該当する

1. 著者名 C. A. Occhialini, L. G. P. Martins, S. Fan, V. Bisogni, T. Yasunami, M. Musashi, M. Kawasaki, M. Uchida, R. Comin, and J. Pellicciari	4. 巻 6
2. 論文標題 Strain-modulated anisotropic electronic structure in superconducting RuO ₂ films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 084802-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.6.084802	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 該当する

〔学会発表〕 計30件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 M. Uchida
2. 発表標題 Triangular-Lattice Magnetic Semiconductor Producing Giant Anomalous Hall Signals
3. 学会等名 2023 MRS Spring Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 M. Uchida
2. 発表標題 Control of magnetic ground states in largely strained Sr ₃ Ru ₂ O ₇ films
3. 学会等名 International Conference on Quantum Liquid Crystals 2023 (QLC2023) (国際学会)
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EuCd ₂ Sb ₂ 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EuCd ₂ As ₂ 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 打田正輝
2. 発表標題 磁性ワイル半金属薄膜における磁気輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡辺悠斗, 西早辰一, Markus Kriener, 中村彩乃, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 EuCd ₂ 薄膜における多成分トポロジカルホール効果の特異な履歴特性
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 松木優太, 西早辰一, 大島 蓮, 三輪史哉, 打田正輝
2. 発表標題 分子線エビタキシー法により作製したSrRuO ₃ 薄膜の量子輸送状態の評価
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Oshima, Y. Matsuki, T. Hatanaka, S. Nishihaya, F. Miwa, T. Nomoto, M. Kriener, T. C. Fujita, M. Kawasaki, R. Arita, M. Uchida
2. 発表標題 Molecular beam epitaxy of Ruddlesden-Popper strontium ruthenates
3. 学会等名 29th International Workshop on Oxide Electronics (iWOE29) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 Controlling magnetic ground states of Sr ₃ Ru ₂ O ₇ by epitaxial strain
3. 学会等名 令和5年度 新学術領域「量子液晶の物性科学」領域研究会
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 EuCd ₂ Sb ₂ films
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Matsuki, S. Nishihaya, M. Kriener, R. Oshima, F. Miwa, M. Uchida
2. 発表標題 Examining multi-component quantum oscillations in SrRuO3 films
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Nishihaya, Y. Watanabe, M. Kriener, A. Nakamura, M. Uchida
2. 発表標題 Multi-component topological Hall effect observed in films of a frustrated magnet EuCd2
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Oshima, T. Hatanaka, S. Nishihaya, T. Nomoto, M. Kriener, T. C. Fujita, M. Kawasaki, R. Arita, M. Uchida
2. 発表標題 Changing magnetic ground states by epitaxial strain in Sr3Ru207 films
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 酸化物ヘテロ界面における異方的な歪み状態の解明と機能創出
3. 学会等名 新学術領域「機能コアの材料科学」2023年度公開シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松木優太, 西早辰一, Markus Kriener, 大島蓮, 三輪史哉, 打田正輝
2. 発表標題 SrRuO ₃ 薄膜における多成分量子振動の解析
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hsiang Lee, 西早辰一, 中村彩乃, Markus Kriener, 渡辺悠斗, 打田正輝
2. 発表標題 Magnetotransport of magnetic Weyl semimetal candidate EuZn ₂ Sb ₂ films
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村彩乃, 西早辰一, 石塚大晃, Markus Kriener, 渡辺悠斗, 打田正輝
2. 発表標題 磁性ワイル半金属薄膜における面内異常ホール効果の観測
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 M. Uchida, M. Ohno, S. Minami, Y. Nakazawa, S. Sato, M. Kriener, R. Arita, M. Kawasaki
2. 発表標題 Maximizing anomalous Hall effect by tuning the Fermi level in simple Weyl semimetal EuCd ₂ Sb ₂
3. 学会等名 2023 American Physical Society March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2023年

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EuCd ₂ Sb ₂ 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 渡辺悠斗, 西早辰一, M. Kriener, 中村彩乃, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 EuA ₂ (A = Cd, Zn)薄膜におけるトポロジカルホール効果の比較
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 西早辰一, 渡辺悠斗, M. Kriener, 中村彩乃, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 EuCd ₂ エピタキシャル薄膜における多成分トポロジカルホール効果の観測
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 大島蓮, 西早辰一, 藤田貴啓, M. Kriener, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 Sr ₃ Ru ₂ O ₇ 薄膜における巨大エピタキシャル歪みにより誘起された強磁性状態
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 M. Uchida
2. 発表標題 Quantum Hall conduction on topological semimetal Fermi arcs
3. 学会等名 15th Asia Pacific Physics Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 強磁場を利用した半金属・半導体薄膜の新奇量子輸送状態に関する研究
3. 学会等名 第4回強磁場フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 Fabrication and control of Sr ₃ Ru ₂ O ₇ films by molecular beam epitaxy
3. 学会等名 令和4年度 新学術領域「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 酸化物ヘテロ界面における異方的な歪み状態の解明と機能創出
3. 学会等名 新学術領域「機能コアの材料科学」領域全体会議
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打田正輝
2. 発表標題 分子線エビタキシー成長による人工ネマティック構造の創製
3. 学会等名 新学術領域「量子液晶の物性科学」公募班キックオフミーティング
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Ohno, S. Minami, Y. Nakazawa, S. Sato, M. Kriener, R. Arita, M. Kawasaki, M. Uchida
2. 発表標題 Maximizing anomalous Hall effect by tuning the Fermi level in simple Weyl semimetal films
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡辺悠斗, 西早辰一, 中村彩乃, 打田正輝
2. 発表標題 EuCd ₂ 薄膜における巨大なトポロジカルホール効果の観測
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大城蓮, 西早辰一, 藤田貴啓, 川崎雅司, 打田正輝
2. 発表標題 分子線エビタキシー法による高品質Sr ₃ Ru ₂ O ₇ 薄膜の作製と評価
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022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
---------	---------