

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05148

研究課題名(和文) トポロジカル絶縁体のスピロックを支配する非弾性散乱時間のNMRによる実験的決定

研究課題名(英文) NMR study on the inelastic scattering rate governing the spin-lock in the topological insulator

研究代表者

後藤 貴行 (Takayuki, GOTO)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：90215492

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：スピロック現象を、NMRでミクロスコピックに検証することが我々のグループの当初の目的であった。これを遂行するために、3次元トポロジカル絶縁体薄膜の合成並びに輸送現象の観測に関する研究を行った。研究では、物理気相成長を用いることで、理想的な3次元トポロジカル絶縁体として知られている $\text{Bi}_{2-x}\text{SbxTe}_3\text{-ySe}_y$ の薄膜合成法を確立し、これらを用いることで、スイッチング可能なPN接合の作製に成功した。

研究成果の概要(英文)：The original purpose of this study is to investigate microscopically the spinlock state within the surface conductive nano-layer of topological insulators. For this purpose, we have developed a method for epitaxial growth of bulk insulating three-dimensional topological insulator (3D-TI) $\text{Bi}_{2-x}\text{SbxTe}_3\text{-ySe}_y$ (BSTS) ultrathin films, ranging from a few quintuple to several hundreds of layers, on mica in a large-area (1 cm²) via catalyst-free physical vapor deposition.

研究分野：低温物性実験

キーワード：トポロジカル絶縁体 薄膜合成 NMR μSR

1. 研究開始当初の背景

三次元トポロジカル絶縁体では、強いスピン軌道相互作用による、*s*, *p* 軌道のバンド反転によって、試料表面にディラック電子が現れる。表面伝導層のディラック電子は、並進運動量と垂直方向に完全スピン偏極していると言われている(図1)。このスピンロック現象を、NMR でミクロスコピックに検証することが我々のグループの当初の目的であった。これを遂行するための第一段階として、3次元トポロジカル絶縁体薄膜の合成並びに輸送現象の観測に関する研究を行った。

2. 研究の目的

着目した材料は、3次元トポロジカル絶縁体研究において広く用いられているテトラジマイト型カルコゲナイド物質である[1]。この物質では、 Bi_2Se_3 などにおいて、1つのディラックコーンから成るシンプルな表面状態が角度分解光電子分光などから観測され、ディラック電子に特徴的な物性の観測と応用に適した材料として注目されている[2]。一方で、Se 欠陥や Se, Te の Bi へのアンチサイト欠陥などによってバルクバンドへのキャリアドープが起るために、バルク絶縁性が悪いという問題点があった。 $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ は、元素置換を組み合わせることによってバルクバンドへのキャリアドープを抑制し、バルク絶縁性の高い理想的な電子状態を実現した物質であり[3,4]、実際にトポロジカル表面に由来する量子ホール状態が観測されている[5]。従って、 $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ において薄膜試料の作製法を確立することは、本研究の主題であるトポロジカル表面状態の検出に加えて、低散逸なスピン偏極流やマヨラナ粒子などトポロジカル表面状態に期待される物性の観測と応用に向けて重要なステップとなる。

3. 研究の方法

今回考案した物理気相成長を用いた薄膜の合成装置と $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 薄膜の写真を図1(a)-(c)に示す。蒸着原料($\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 単結晶)を入れたガラス坩堝と蒸着用のマイカ基板をガラスフランジ内に設置し、 10^{-2}Pa 程度の低真空下において管状型電気炉の温度勾配を用いて蒸着する。ガラス坩堝の内径をパラメータとして基板への蒸着量を最適化することで、図1(b),(c)に示すような大面積で組成の制御が可能な薄膜が作製可能であることを明らかにした[6]。さらに、膜厚 15nm 以下の薄膜試料においては、薄膜を水に晒すことによって育成基板から剝離し、2酸化シリコン基板など、様々な機能性基板上に転写する手法を新たに開発した。図1(d)-(f)に2酸化シリコン基板上に転写した薄膜の光学顕微鏡像と、電界効果トランジスタの輸送特性を示す。膜厚 10nm と 18nm においては、ゲート電圧 *V_G* の掃引に対して、*V_G* = -100 V と -130V 付近で縦抵抗

の値が極大を示す。この振る舞いは、トポロジカル表面に存在するディラック電子による両極性伝導として理解することが出来る。さらに膜厚 3nm の試料においては、 10^{-4} を超える高い抵抗オンオフ比を観測した。3次元トポロジカル絶縁体においては、膜厚の減少により、上下トポロジカル表面状態が混生することによって、表面状態にエネルギーギャップが生じることが理論と実験から示唆されている[7,8]。従って、高い抵抗オンオフ比は、膜厚の減少によって、表面状態にギャップが生じた結果として理解することが出来る。

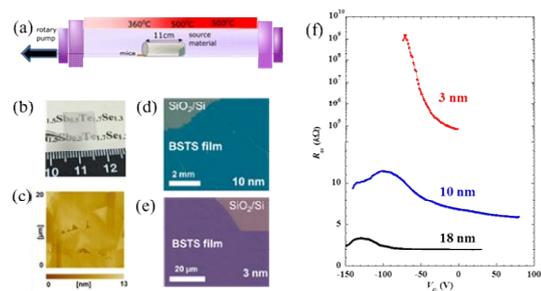


図1. (a)物理気相成長を用いた薄膜合成装置の概要。(b)マイカ基板上に育成した $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 薄膜の写真と(c)AFM像。(d),(e)2酸化シリコン基板上に転写した $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 薄膜の光学顕微鏡像。(f)2Kにおける薄膜トランジスタの輸送特性

4. 研究成果

3次元トポロジカル絶縁体表面のPN接合においては、スピン偏極したディラックコーン型の分散を反映したカイラルトンネル現象が起こることが期待される。特に理論計算からは、PN接合界面に電子が垂直に入射した場合には、カイラルトンネルによって100%電子が透過する一方で、斜めに入射した場合には、ほぼ全ての電子が界面で反射されることが示されている。この場合、PN接合の形成による抵抗オンオフ比の変化に加えてトポロジカル表面状態に特有なスピン流の増幅効果や100%スピン偏極流の生成が期待される。本研究では、図2(a)に示すような2酸化シリコン基板上に作製した膜厚 10nm の $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 薄膜トランジスタに、アクセプター性の有機分子 F4-TCNQ を部分的に蒸着することによって、PN接合の形成をゲート電圧によって制御することが出来るデバイスを作製し、その輸送現象について調べた[9]。

図2(b)に R_{xx} の *V_G* 依存性を示す。*V_G* の掃引に対して、特に -30V から -90V の範囲で R_{xx} の急激な増大を観測した。別途作製した F4-TCNQ を表面全体に蒸着した F4-TCNQ/ $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ 薄膜トランジスタとの比較からは、このゲート電圧領域において、上下表面にPN接合が形成されていることが示唆される。一方で、PN接合によ

る R_{xx} の増大は、フェルミレベルの変化に対して緩やかに起こることが期待されることから、トポロジカル PN 接合による高抵抗状態が、バンドベンディングなどによって出現するバルク由来の表面バンドの有無によって、スイッチングするシナリオが現在予想される。

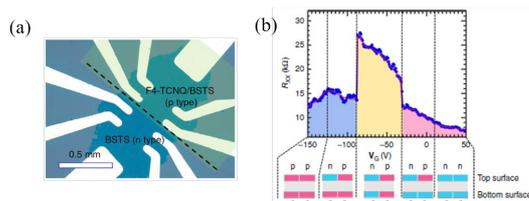


図 2. (a)PN 接合デバイスの光学顕微鏡像。(b)BSTS と F4-TCNQ/BSTS の境界を横切る領域で測定した縦抵抗 R_{xx} のゲート電圧依存性。

本研究の特筆すべき成果としては、スイッチング可能な PN 接合の作製に成功したことである。これは物理気相成長を用いることで、理想的な 3 次元トポロジカル絶縁体として知られている $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ の薄膜合成法を確立し、これらを用いることで実現した結果である。今後、本研究で開発した $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ 薄膜の合成手法を用いることによって、トポロジカル表面状態の研究並びに応用に関する研究が進むことが期待される。

なお、本申請の第一義的であった、スピンロック状態のミクロスコピックな検証については、薄膜試料・デバイスの創製と平行し、NMR 及び μSR の両手法を用いて取り組んできたが、測定プローブの検出領域を試料表面に絞ると、さまざまなアーチファクトの発生があり、依然として検証を進めている段階である [10,11]。

参考文献

- [1] H. Zhang et al., Nat. Phys. 5, 438 (2009).
- [2] Y. Xia et al., Nat. Phys. 5, 398 (2009).
- [3] Z. Ren et al., Phys. Rev. B 84, 165311 (2011).
- [4] T. Arakane et al., Nat. Commun. 3, 1639 (2011).
- [5] Y. Xu et al., Nat. Phys. 10, 956 (2014).
- [6] N. H. Tu et al., Nano Lett., 17, 2354-2360 (2017).
- [7] H. - Z. Lou, PRB 81, 115407 (2010)
- [8] Y. Zhang et al., Nat. Phys. 6, 584 (2010).
- [9] N. H. Tu et al., Nat. Commun. 7, 13765 (2016).
- [10] T. Goto, T. Yanabe et al. Physics Procedia 75(2015)100-105.
- [11] 日本中間子科学会めそん 44 号(2016 秋

号) p27(2016).

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)

1)Stephane Yu Matsushita, Khuong Kim Huynh, Harukazu Yoshino, Ngoc Han Tu, Yoichi Tanabe, and Katsumi Tanigaki
Thermoelectric properties of 3D topological insulator:Direct observation of topological surface and its gap opened states
Physical Review Materials 1, 054202 (2017).
査読有り

3)Large-Area and Transferred High-Quality Three-Dimensional Topological Insulator $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ Ultrathin Film by Catalyst-Free Physical Vapor Deposition
Tu Ngoc Han, Tanabe Yoichi, Satake Yosuke, Huynh Khuong Kim, Le Phuoc Huu, Matsushita Stephane Yu, Tanigaki Katsumi
Nano Letters 17 (2017) 2354 ~ 2360

2)Low-energy μSR Study on the Tetradymite Topological Insulator $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{TeSe}_2$,
Takayuki Goto, Kazuki Matsui, Tadashi Adachi, Tomi Ohtsuki, Ngoc Han Tu, Yoichi Tanabe, Katsumi Tanigaki, Isao Watanabe, Zaher Salman, Andreas Suter and Thomas
Physics Procedia 75(2015)100-105.

〔学会発表〕(計 3 件)

1) 田邊洋一, Tu Ngoc Han, 佐竹遥介, Huynh Kim Khuong, 松下ステファン悠, 谷垣勝巳
磁場中輸送特性から見た 3 次元トポロジカル絶縁体 $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ 薄膜の電子状態
日本物理学会 2016 年秋季大会 (口頭発表)
2017 年 9 月 23 日 (岩手大学)

2)有機/無機界面の形成による 3 次元トポロジカル絶縁体薄膜のキャリア制御と PN 接合の輸送特性、田邊洋一
上智大学重点領域研究会「トポロジカル関連物質における新奇的な物理」
2017 年 11 月 13 日 (上智大学) 招待講演

3) Low-energy μSR Study on the Tetradymite Topological Insulator $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{TeSe}_2$,
Takayuki Goto, Kazuki Matsui, Tadashi Adachi, Tomi Ohtsuki, Ngoc Han Tu, Yoichi Tanabe, Katsumi Tanigaki, Isao Watanabe, Zaher Salman, Andreas Suter and Thomas Prokscha, 20th International on Magnetism (ICM2015), パルセロナ 2015 年 7 月 6 日

〔その他〕

1)日本中間子科学会めそん44号(2016秋号)
特集: μ SR 物性研究における物性研究の最
前線 p27-31「低速ミュオンでトポロジカル絶
縁体の表面を見る」後藤貴行

6. 研究組織

(1)研究代表者

後藤 貴行 (GOTO, Takayuki)
上智大学・理工学部・教授
研究者番号: 90215492

(2)研究分担者

田邊 洋一 (TANABE, Yoichi)
東北大学・理学系研究科・助教
研究者番号: 80574649