

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：13903

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13499

研究課題名(和文)人工超格子多層膜による磁性トポロジカル状態の制御とフェルミオロジー

研究課題名(英文) Fermiology and controlling magnetic topological state in artificial superlattice thin films

研究代表者

宮崎 秀俊 (Hidetoshi, Miyazaki)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10548960

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：近年、薄膜表面における空間対称性の破れに伴うディラックコーンと呼ばれる特殊な電子状態により出現する「量子異常ホール効果」がエネルギー損失を伴わない電力輸送を実現する可能性が報告された。EuO/SmO人工超格子多層膜において、薄磁性薄膜よりも高い温度で量子ホール効果が発現することが理論的に予言されたものの、EuOやSmOは熱力学的に不安定な物質であるために通常の結晶合成法では作製が困難であることが知られている。

そこで、本研究では、様々な成膜条件下において、Sm酸化物薄膜を成長させ、結晶構造および電子状態を詳細に評価することにより、熱力学に不安定なSmO薄膜が得られことを示した。

研究成果の概要(英文)： Topological insulators are materials which exhibit a fundamentally new physical phenomena that were first predicted by theorists. Recently, SmO is predicted to have a topological nontrivial ground state at ambient pressure.

In this study, we succeeded to fabricate SmO thin films by molecular beam epitaxy method controlled precisely adjusting the substrate temperature and oxygen partial pressure.

研究分野：物性物理

キーワード：トポロジカル絶縁体 サマリウム酸化物 薄膜 分子線エピタキシー法

1. 研究開始当初の背景

近年、薄膜表面における空間対称性の破れに伴うディラックコーンと呼ばれる特殊な電子状態により出現する「量子異常ホール効果」がエネルギー損失を伴わない電力輸送を実現する可能性が報告された。しかしながら、この物理現象は極低温下でのみ発現が確認されており、発現温度の高温度化が必要不可欠である。近年、EuO/SmO 人工超格子多層膜において、その強いスピン軌道相互作用および大きな磁気モーメントにより希薄磁性薄膜よりも高い温度で量子ホール効果が発現することが理論的に予言されたものの、EuO や SmO は熱力学的に不安定な物質であるために通常の結晶合成法では作製が困難であることが知られている。

2. 研究の目的

そこで、SmO 単結晶薄膜の作製の前段階として、アモルファスガラス基板上に様々な酸素分圧における Sm を蒸着することにより、サマリウム酸化物薄膜の基礎データを得ることを目的として研究を行った。また、その後、様々な成膜条件下において、Sm 酸化物薄膜を成長させ、結晶構造および電子状態を詳細に評価することにより、熱力学に不安定な SmO 薄膜が得られているかを詳細に評価し、SmO の実現を目的とする。

3. 研究の方法

Sm 酸化物薄膜は、分子線エピタキシー法を用いて蒸着を行った。純度 99.9 % の高純度 Sm 金属をルツポに入れ、K-cell を加熱し蒸着するとともに、高精度に流量を制御した高純度酸素ガスを様々な酸素分圧で製膜装置内に流入させることにより Sm 酸化物薄膜の成膜を行った。蒸着中の基板温度は 673 K に設定した。

4. 研究成果

**(1) ガラス基板上に酸素雰囲気下でサマリウムを蒸着したサマリウム酸化物薄膜**

ガラス基板上に様々な酸素分圧で製膜した Sm 酸化物の X 線回折測定の結果を図 1、図 2 に示す。ここで、X 線回折図形に見られる低角度側 (20° 付近) での大きなブロードピークは、SiO<sub>2</sub> 基板のアモルファス構造によるハローピークである。図 1 に Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の主要なピークを示した。この結果から、今回作製した試料では Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が形成していたことが明らかになった。

作製した Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の構造のより詳細な酸素分圧依存性を議論するために得られた X 線回折測定の結果から算出した格子定数の酸素分圧依存性を図 3 に示す。酸素分圧の増加に伴い格子定数は徐々に増加する傾向を示し、5.0 x 10<sup>-3</sup> Pa 以上で、バルク Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の格子定数と一致した。一般的に酸化物薄膜の作製時に酸素分圧が過小な条件では酸素欠損が多く導入され、その結果、酸素欠損によ

る格子定数が減少する傾向にある。今回の結果から酸素分圧量の変化に伴い、格子定数が変化していることが明らかとなったため、酸素分圧量の変化が試料の結晶性や酸素欠陥に影響を及ぼし、その結果、電子構造が変化することが示唆される。

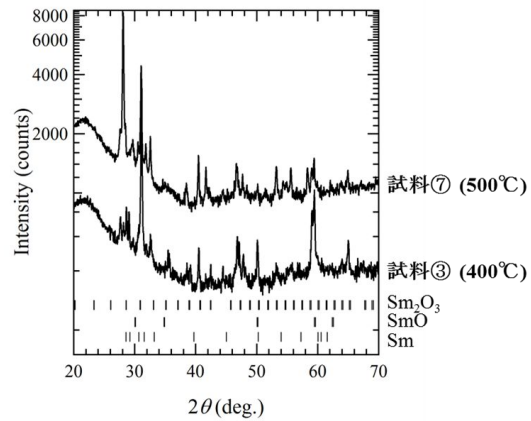


図 1 酸素分圧量 5.0 x 10<sup>-3</sup> Pa で成膜したガラス基板上におけるサマリウム酸化物薄膜の X 線回折測定の基板温度依存性。

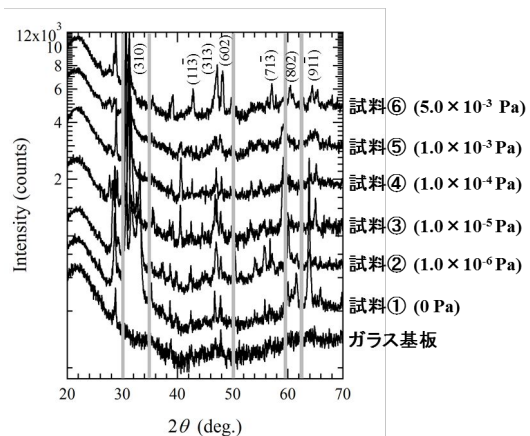


図 2 基板温度 400 で成膜したガラス基板上におけるサマリウム酸化物薄膜の X 線回折測定の酸素分圧依存性。

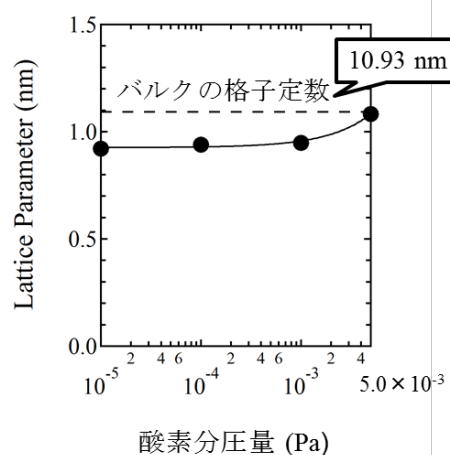


図 3 基板温度 400 で成膜したガラス基板上におけるサマリウム酸化物薄膜の格子定数の酸素分圧依存性

そこで、酸素欠陥量の変化が電子構造に及ぼす影響を評価するために、可視紫外分光光度計を用いたバンドギャップ評価を行った。様々な酸素分圧下で製膜した  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  薄膜の可視紫外分光光度計による透過スペクトルを図 4 に示す。酸素分圧が  $1.0 \times 10^{-6}$  Pa よりも十分に小さい試料では、Sm は金属として存在するため、透過率はほぼ 0%であったため、省略する。酸素分圧の増大に伴い、透過スペクトルが徐々に低波長側にシフトしており、バンドギャップの増大が示唆される。

吸収端の波長はバンドギャップに相当するので、吸収が立ち上がる部分に直線をフィッティングし、それがベースラインと交わる点の波長を求め、その波長を光エネルギーに変換することで、バンドギャップを算出することが可能である。そこで、図 5 に透過スペクトルから見積もったバンドギャップ値の酸素分圧依存性を示す。酸素分圧が増加するにつれ、バンドギャップは大きくなりバルク値である 4.33 eV に近づく傾向を示した。XRD 回折測定において、酸素分圧量の増加に伴い格子定数が増大していくことと併せて考察することにより、酸素分圧の増加に伴い酸素欠陥が減少し、結果としてバンドギャップの増大につながったと考えられる。以上の結果、酸素分圧のコントロールによりバンドギャップサイズのコントロールが可能なることを見出した。

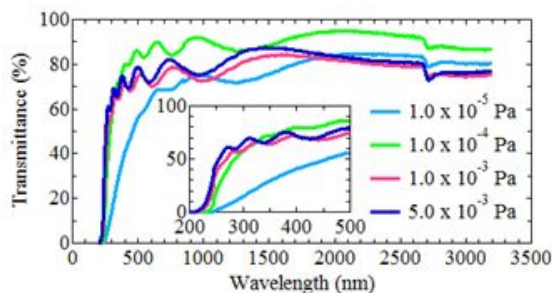


図 4. 様々な酸素分圧下で蒸着した  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  薄膜の透過スペクトルの酸素分圧依存性。

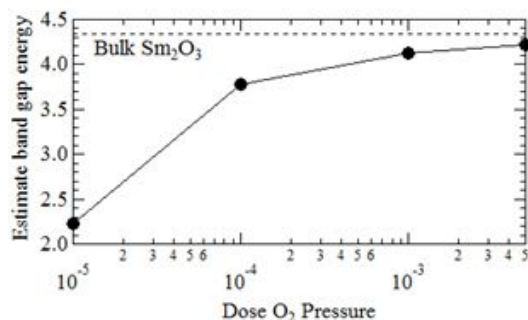


図 5. 透過スペクトルから見積もられたバンドギャップの酸素分圧依存性。

## (2) YSZ 基板上に酸素雰囲気下でサマリウムを蒸着したサマリウム酸化物薄膜

図 6(a) に特定の基板、酸素分圧、基板温度で製膜した  $\text{SmO}$  の X 線回折測定の結果を示す。

基板の(100)回折ピークの他には  $\text{SmO}(111)$ 、表面酸化膜に由来すると考えられる  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  の回折ピークが観測された。このことから  $\text{SmO}$  が YSZ(100)基板上に成長していることが示唆される。

しかしながら、ランタノイド系は 2 価および 3 価の酸化物を形成することが多く、今回の作製に成功した  $\text{SmO}$  酸化物の Sm の価数が 2 価であるか、もしくは 3 価であるか、本研究においては非常に重要である。そこで、図 6(b) に図 1(a) から得られた  $\text{SmO}(100)$  回折ピークから見積もられた格子定数を他の 2 価および 3 価のランタノイド系酸化物の格子定数と比較した結果を示す。本研究で作製に成功した  $\text{SmO}$  の格子定数は 2 価のランタノイド系酸化物が取る格子定数と一致している。以上の結果から、今回の  $\text{SmO}$  酸化物は(111)方向に成長した  $[\text{Sm}^{2+} 4f] [O^{2-} 2p]$  の化学状態を有する物質であると結論した。

今後は、電子状態の直接観測を行うことにより、2 価の Sm が形成するトポロジカル状態の直接観測を試み、その状態を制御する方法の探索を行って行く予定である。

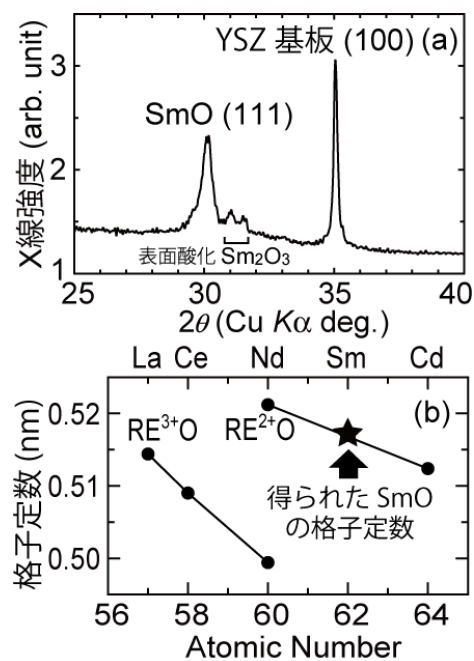


図 6 YSZ 基板上に製膜した  $\text{SmO}$  薄膜の X 線回折測定 (a) および回折ピーク位置から算出された  $\text{SmO}$  の格子定数と関連物質の格子定数との比較。

## 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 1 件)

H. Miyazaki, Y. Sakai, K. Yoshikawa and Y. Nishino, Photoemission study on Sm-oxide thin films prepared by molecular beam epitaxy, UVSOR Activity Report 2017, in

press. [査読無し]

〔その他〕

ホームページ等

<http://enemat.web.nitech.ac.jp/index.html>

<http://miyazaki-lab.science/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

宮崎 秀俊 (MIYAZAKI, Hidetoshi)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10548960