

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月31日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03999

研究課題名(和文) トポロジカル絶縁体の超薄膜化による次元交差効果とスピン依存伝導

研究課題名(英文) Dimensional Crossover and Spin-Dependent Transport by Ultra-Thinning of Topological Insulators

研究代表者

長田 俊人 (Osada, Toshihito)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：00192526

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：3次元トポロジカル結晶を2次元原子層まで超薄膜化した際の次元交差効果を磁気抵抗の膜厚依存性により調べた。層状ワイル半金属WTe₂においては、磁気抵抗のシュブニコフ・ドハース(SdH)振動をフーリエ解析したところ、薄膜化に伴い3次元フェルミ面に対応するSdH周波数が減少し始め、各ピークの低周波側に複数の2次元振舞を示す弱いサブピークが現れることを観測した。これは量子サイズ効果による3次元バンドの2次元サブバンド群への分裂という電子構造の次元交差効果として統一的に理解できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トポロジカル物質相は近年の物性物理学において急速に発展している分野の1つであり、エラー耐性の高い量子計算への応用可能性などから工学的にも注目されている。一方、トポロジカル相の発現は系の対称性と次元性に深く関係することが知られている。薄膜化により次元性を変えたときにトポロジカル相が示す次元交差現象の理解は、学術的に重要であるばかりでなく、薄膜化・微細化してデバイス応用する知見を得る上で応用上も重要である。本研究によりワイル半金属WTe₂の薄膜化に伴う電子構造の次元交差を押さえることができた。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the dimensional crossover effect when thinning a three-dimensional topological crystal into a two-dimensional atomic layer by observing the thickness dependence of magnetoresistance. In a layered Weyl semimetal, WTe₂, the Fourier analysis of the Shubnikov-de Haas (SdH) oscillations of the magnetoresistance revealed that the SdH frequencies corresponding to the three-dimensional Fermi surfaces begin to decrease with thinning. Moreover, it was found that several weak subpeaks with two-dimensional behaviors appear in the low frequency side of each peak. These features can be understood in a unified manner as the dimensional crossover effect of the electronic structure, namely, splitting of three-dimensional bands into two-dimensional subbands by the quantum size effect.

研究分野：物性物理学 (原子層・低次元物質のトポロジカル量子物性)

キーワード：物性実験 超薄膜 トポロジー 表面・界面物性 トポロジカル絶縁体 ワイル半金属 量子振動 次元交差

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

従来単に絶縁体や半金属として分類されていた物質群が、バンド構造のトポロジーによって、あるいは特異な表面状態の有無によって、自明な物質相と非自明なトポロジカル物質相(トポロジカル絶縁体やワイル半金属など)に区別されることが明らかになり、2005年以降、トポロジカル相の研究は急速に発展してきた。また、こうしたトポロジカル物質相は、系の対称性と次元性に深く関係して発現することが認識されるようになった。これは系の次元性を変えることによりトポロジカル相が大きな影響を受けることを意味する。

2015年に強いトポロジカル絶縁体(STI)の3次元層状結晶を超薄膜化していった際に、系が弱いトポロジカル絶縁体(WTI)、最終的には2次元量子スピンホール絶縁体(QSHI)や自明な2次元絶縁体(OI)に移行する次元交差効果を論じた理論が発表された。本研究はこれに触発されて計画したものである。当時、薄膜化に伴うSTIからWTIまたはOIへの移行などの次元交差効果を量子伝導の観点から明確に示した実験的研究はほとんど存在しなかった。

一方、ワイル半金属やディラック半金属などのトポロジカル半金属は2011年に理論的に提案され、TaAs系物質群が提案された2015年以降は、第一原理計算と角度依存光電子分光(ARPES)実験などにより研究が急速に進展した。本研究開始直後の2016年には超薄膜化に伴う3次元ワイル半金属(WSM)からOIへの次元交差の理論も発表された。またワイル半金属 WTe_2 を単層化すると2次元QSHIになることが2017年にARPES実験によって示された。しかし薄膜化に伴う次元交差の様子を伝導実験で調べた研究は皆無であった(単層系については最終年度の2018年に伝導実験が報告された)。

薄膜化に伴うトポロジカル物質の次元交差の研究を行うことにより、トポロジカル相に本質的な次元性に関する基礎的知見、また次世代エレクトロニクス物質の薄膜化・微細化の効果に関する応用的知見が得られると期待された。

2. 研究の目的

本研究の目的は、3次元の層状トポロジカル絶縁体およびトポロジカル半金属を劈開によって原子層レベルまで超薄膜化したときに、2次元量子スピンホール絶縁体などの電子相にどのように移行していくかという次元交差問題を解明することである。本研究ではこれを薄膜化に伴う電気伝導特性の変化によって実験的に検出することを目指した。またトポロジカル物質を特徴づける表面状態(エッジ状態)に関連したスピン依存伝導現象の探索も目的とした。

なお、本研究の対象は当初トポロジカル絶縁体のみであったが、研究開始後の内外の研究情勢に鑑みトポロジカル半金属も加えることにした。

3. 研究の方法

本研究で対象とした物質は強いトポロジカル絶縁体である Bi_2Se_3 と第2種ワイル半金属である1T型 WTe_2 である。これらはファンデルワールス力で層間が結合した層状結晶で、グラフェンと同様に粘着テープを用いた機械的劈開法による原子層レベルの超薄膜化が可能である。しかしこれらの物質(特に超薄膜)は大気暴露すると劣化することが知られているので、劈開等のプロセスは不活性ガス雰囲気中で行うことが必須である。また超薄膜片の大気暴露を防ぐために原子層絶縁体のh-BN(六方晶窒化ホウ素)結晶片でキャップしておく必要がある。そこでグローブボックスと転写ステージ、デジタル顕微鏡を組み合わせた原子層転写装置を作製して試料作製に使用した(図1)。市販(2D Semiconductor社製)の Bi_2Se_3 または1T- WTe_2 結晶を劈開した数 μm 程度の試料薄膜片を酸化膜付シリコン基板上に固定し、その表面をh-BN薄膜で覆った積層構造を作製した。試料薄膜片は保護層のh-BN薄膜片で完全に覆うことはせず、露出部分について原子間力顕微鏡を用いて膜厚測定を行い、電子線リソグラフィ法を用いて電極形成して電界効果トランジスタ(FET)素子構造に加工した(図2)。

一般に Bi_2Se_3 のバルク結晶は、Se欠損のために自然状態で電子ドーピングされて金属化している。本研究ではトポロジカル表面状態由来の表面伝導を調べることを企図しているため、フェルミ準位をギャップ内に引き下げる必要がある。そのためイオン液体DEME-TFSIをゲート媒質とする電気2重層トランジスタ(EDLT)法により大量キャリアドーピングも試みた。

作製した試料素子については、10T超伝導磁石を用いて交流法で磁場中電気伝導を測定した。そして主に磁気抵抗のシュブニコフ・ドハース(SdH)振動をプローブ



図1 グローブボックス内
原子層転写積層装置

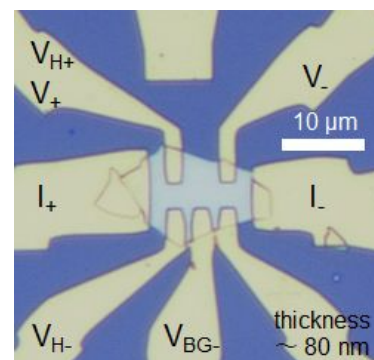


図2 WTe_2 薄膜 FET 素子

として、系の電子状態を調べた。

4. 研究成果

(1) トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3

トポロジカル表面状態の情報を輸送特性から調べるためには、フェルミ準位がギャップ内に位置することが望ましい。Se 欠損による電子ドーピングされた Bi_2Se_3 結晶を中性化するために、イオン液体（表面保護とゲート媒質を兼ねる）を滴下した EDLT 構造を用いて正孔注入を試みたところ、抵抗値のゲート電圧依存性に両極性の電界効果が観測された。しかしこのゲート特性はバンドベンディングによる表面効果で説明され、多量のバルク電子の遮蔽のために結晶内部には電界が及んでおらず意図したようにフェルミ準位をギャップ内に移動させるには至っていないと考えられた。

そこで強く電子ドーピングされた領域で磁気抵抗測定を行った。h-BN 保護層により大気暴露を防いだ 55 nm 程度の膜厚の高品質試料を用いることで、磁気抵抗の単一周期の SdH 振動を観測することに成功した。磁場方位依存性や位相解析から、観測された SdH 振動はヘリカル表面状態に由来するものではなく、ドーピングされたバルク電子の回転楕円体型フェルミ面に由来するものと考えられた。 Bi_2Se_3 の場合、機械的剥離法では膜厚 13 nm (13 層) 程度以下の超薄膜試料を作製するのは困難で、次元交差効果が起こりうる数層程度の少数原子層膜領域の伝導特性を調べるには至らなかった。

(2) ワイル半金属 WTe_2

ワイル半金属は、開いたフェルミアークを有する表面金属状態を持ち、平行な電場・磁場中では対をなすワイル点間での電子ポンピングによる負磁気抵抗（カイラル磁気効果）フェルミアークとカイラルランダウ準位を介したワイル軌道に由来する磁気抵抗の量子振動など、特異な伝導特性を示す。これらのワイル半金属特有の伝導特性が薄膜化に伴う次元交差によってどのように変化するかを調べることを目的として、層状の第 2 種ワイル半金属 WTe_2 の磁気抵抗測定を広い膜厚領域で行った。 WTe_2 も Bi_2Se_3 と同様に大気中で劣化するので、劈開等はグローブボックス中で行い、試料表面をレジストで保護して大気に暴露しないようにした。

磁気抵抗測定の結果、膜厚 7.5 nm (10 層) 以上の試料では明瞭な SdH 振動が観測されたが、少数原子層の試料では移動度の低下のため SdH 振動は観測されなかった。振動をフーリエ解析したところ (図 3) 十分厚い試料では 3 次元結晶試料についての先行研究で報告された 3 次元フェルミ面由来の 4 種の周波数ピークが観測された。薄膜化に伴い、50nm (70 層) 程度の膜厚以下で SdH 周波数は一様に減少し始め、30nm (40 層) 程度以下では各ピークの低周波側に弱いサブピークが複数現れることを観測した。また 30nm 以下の膜厚では、SdH 振動の各周波数ピークは磁場方位に対して $\cos\theta$ 型依存性を示す、すなわち SdH 振動が磁場の面垂直成分でスケールされるようになることを見出した。これは SdH 振動が、3 次元フェルミ面の極値軌道に由来したものから、2 次元フェルミ曲線に由来するものへと変化したことを示唆する (図 4)。

以上の実験結果は、膜厚がド・ブロイ波長に近づき積層方向の電子波数が量子化された結果、4 つのフェルミ面に対応する 3 次元バンドが 2 次元サブバンド群に分裂し (量子サイズ効果) 各サブバンドの 2 次元フェルミ曲線が副次的 SdH 振動を起こしていたとするモデルで定性的によく説明できる (図 5)。このモデルは超薄膜領域の SdH 振動を扱った複数の先行研究の結果も統一的に説明する。特に先行研究でワイル軌道由来の量子振動とされていた低周波側のピークは、2 次元サブピークの 1 つであると解釈すべきことも明らかになった (図 4)。

本研究では、 WTe_2 において量子サイズ効果による 3 次元バンドの 2 次元サブバンド群への分裂という電子構造の次元交差効果の観測に成功した。しかしこれはトポロジカル相の次元交差ではない。単原子層の WTe_2 が 2 次元 QSHI であることは実験により確かめられているので、

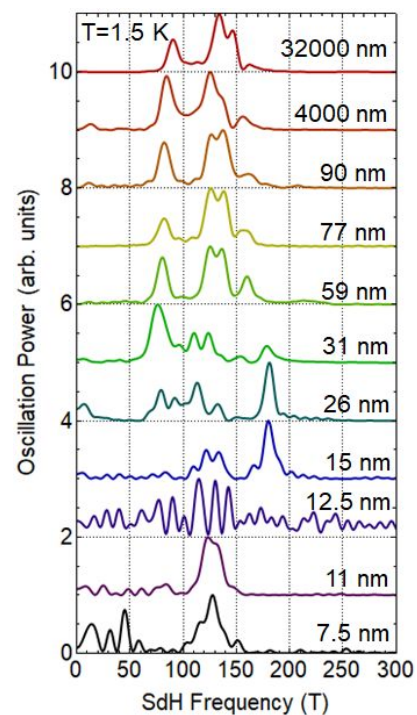


図 3 WTe_2 超薄膜の SdH 振動スペクトルの膜厚依存性

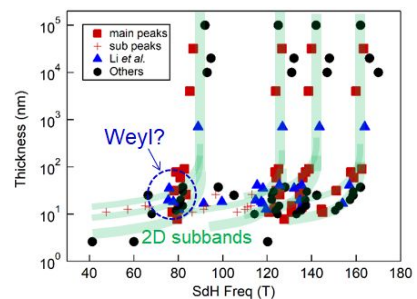


図 4 WTe_2 超薄膜の SdH 周波数ピークの膜厚依存性。緑の曲線は量子サイズ効果による SdH 周波数の膜厚依存性の模式図。先行研究で Weyl 軌道による量子振動と同定されたものは、量子サイズ効果による 2 次元サブバンドの SdH 振動として説明される。

トポロジカルな次元交差は 10 層以下の原子層領域で起こるはずである。この効果の実験的観測は今後の課題であるが、少数原子層領域の試料の高品質化が技術的な鍵となる。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 6 件)

Ayaka Mori, Mitsuyuki Sato, Takeshi Yajima, Takako Konoike, Kazuhito Uchida, and Toshihito Osada, "Anisotropy of Dirac cones and Van Hove singularity in an organic Dirac fermion system", *Phys. Rev. B* **99**, No.3, 035106/1-5 (2019). [査読有]

DOI:10.1103/PhysRevB.99.035106

Kohei Hirose, Toshihito Osada, Kazuhito Uchida, Toshihiro Taen, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, and Yuichi Akahama, "Double carrier transport in electron doped region in black phosphorus FET", *Appl. Phys. Lett.* **113**, No.19, 193101/1-4 (2018). [査読有]

DOI:10.1063/1.5048233

Toshihiro Taen, Kazuhito Uchida, Toshihito Osada, and Woun Kang, "Tunable magnetoresistance in thin-film graphite field-effect transistor by gate voltage", *Phys. Rev. B* **98**, 155136/1-7 (2018). [査読有] DOI:

10.1103/PhysRevB.98.155136

Toshihito Osada, "Topological Insulator State due to Finite Spin-Orbit Interaction in an Organic Dirac Fermion System", *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, No.7, 075002/1-2 (2018). [査読有]

DOI:10.7566/JPSJ.87.075002

Toshihiro Taen, Kazuhito Uchida, and Toshihito Osada, "Thickness-dependent phase transition in graphite under high magnetic field", *Phys. Rev. B* **97**, 115122/1-7 (2018). [査読有] DOI: 10.1103/PhysRevB.97.115122

Toshihito Osada, "Chern Insulator Phase in a Lattice of an Organic Dirac Semimetal with Intracellular Potential and Magnetic Modulations", *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, No.12, 123702/1-5 (2017). [査読有] DOI: 10.7566/JPSJ.86.123702

[学会発表](計 9 件)

足立洋駿, 佐藤光幸, 内田和人, 田縁俊光, 長田俊人, 「ワイル半金属 WTe_2 薄膜における量子振動の膜厚依存性」(16pD209-3), 日本物理学会第 74 回年次大会, 九州大学, 3/14-17, 2019.

Toshihito Osada, "Possible Topological States in an Organic Dirac Semimetal", 6th Department de Physique de l'Ecole Normale Supérieure - University of Tokyo (ENS-UT) Workshop on Physics, Paris (France), 9/27-28, 2018.

Toshihito Osada, "Possible Emergence of Topological Phases in an Organic Dirac Fermion System", International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2018), Busan (Korea), 7/1-6, 2018.

Toshihito Osada, "Chern Insulator Phase in α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ Lattice with Intracellular Magnetic Modulation", 12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2017), Zao (Japan), 9/24-29, 2017.

Toshihito Osada, "Edge Transport of Dirac Fermions in Solids, Graphene and Organic Conductor", 4th Department de Physique de l'Ecole Normale Supérieure - University of Tokyo (ENS-UT) Workshop on Physics, Paris (France), 11/16-18, 2016.

[その他]

ホームページ URL: <http://osada.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6 . 研究組織

(1)研究協力者

研究協力者氏名: 足立 洋駿

ローマ字氏名: (ADACHI hirotooshi)

研究協力者氏名: 内田 和人

ローマ字氏名: (UCHIDA kazuhito)

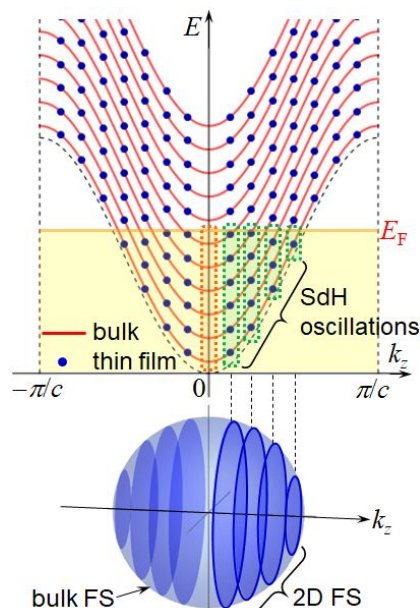


図 5 量子サイズ効果による k_z の離散化と 2 次元の SdH 振動の発現。バルクフェルミ面の極値軌道から離散化された 2 次元フェルミ円周由来の SdH 振動に変化する。