

令和元年6月25日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2017

課題番号：16H06114

研究課題名(和文) 固体中のディラック-ワイルフェルミオンによる量子輸送現象の顕在化と機能開発

研究課題名(英文) Experimental observation and development of the novel quantum phenomena originating from the Dirac/Weyl fermions in the bulk materials

研究代表者

村川 寛 (Murakawa, Hiroshi)

大阪大学・理学研究科・助教

研究者番号：40611744

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,800,000円

研究成果の概要(和文)：空間反転対称性の破れた結晶構造を持つワイル半金属NbAsとTaAsの大型単結晶を合成し、運動方向に対してスピンの方向が固定されたワイル粒子に由来する電気伝導現象について研究を行った。形状効果を排除した状態でワイル粒子由来の非散逸電気伝導に起因する負の磁気抵抗効果を観測して磁場方位依存性を明らかにするとともに、強磁場量子極限状態においてホール抵抗率にプラトーが出現することを観測した。また、ワイル点ペアを囲むサイクロトロン軌道のエネルギー準位が磁場方位によって不連続に変化することを発見した。さらに、半金属NbAs₂の結晶純度を向上させることにより200万倍に達する巨大な磁気抵抗効果を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、ワイル半金属の大型の良質単結晶を用いて低温強磁場中での物性測定を行い、結晶中の相対論的粒子の基本的な性質や、特殊なバンド構造に由来した新奇な量子現象について、これまでの理論的な提案を実証するのみならず、従来の常識では説明できない新たな発見をすることができた。シンプルな系を用いて電子系のトポロジを反映した本質的な現象を実験的に明らかにした本研究成果は、これからの物性物理学の進展に大きく貢献するものである。

研究成果の概要(英文)： We have investigated for the novel phenomena originating from the Weyl fermion in the crystals. We synthesized the large size of the single crystals of the Weyl semimetal TaAs and NbAs and measured their electrical conducting properties under the precise control of the magnetic-field directions. We observed the negative magnetoresistance stemming from the nondissipative conduction of the Weyl fermions and the unusual plateau in the Hall resistivity in the quantum limit. Furthermore, we found that the Landau levels in the system including a pair of the Weyl points changes discontinuously just by changing the magnetic-field direction as if the band topology changed. This result implies the new energy quantization rule in the Weyl fermion, which cannot be explained by the conventional theories.

We synthesized the extremely high quality single crystal of NbAs₂ and observed the magnetoresistance of 2 million, which is two orders higher than the other reported binary semimetals.

研究分野：物性物理学実験

キーワード：ワイル半金属 トポロジカル物性 ランダウ準位 磁気抵抗効果

1. 研究開始当初の背景

固体中にディラック・ワイルフェルミオンが存在する半金属が 2015 年に発見され、高移動度 (スピン分裂) キャリアに由来する非散逸電気伝導、非相反電気伝導や巨大反磁性などの新奇な量子物性の発見を目指した研究が盛んに行われ始めていた。しかしながら、当時はディラック・ワイル半金属の大型の良質単結晶の合成技術が確立していなかったために、相対論的キャリア由来の微弱な信号の観測ができておらず、試料の形状効果を排除してトポロジカルなバンド構造に本質的な効果を観測することが困難な状況であった。一方で、高移動度ディラック・ワイルフェルミオンの電場・磁場応答性に基づいた様々な現象が理論的に提案されており、実験的な検証は大幅に遅れている状況であった。

2. 研究の目的

ディラック・ワイル半金属の大型良質単結晶を合成し、試料サイズの問題でそれまで進展が阻まれていた様々な実験を行うことにより、固体中のディラック・ワイルフェルミオンに由来する新奇な電場・磁場応答現象を顕在化させて観測し、理論研究で期待された様々な現象について検証する。電場・磁場方位に敏感な相対論的キャリアの基本特性を解明するとともに、トポロジカルなバンド構造を起源とした性質を応用した物性機能の開発を目指す。

3. 研究の方法

ワイル半金属の大型良質単結晶を合成し、様々な電場・磁場方向に対する応答性能を検証するために、複数の結晶軸方向について電場印加が可能な形状加工を行った試料を用いて、磁場方位を精密に制御して電気伝導特性を測定することにより、外場方位に敏感なワイルフェルミオンを起源とした本質的な量子現象を観測する。また、大阪大学先端強磁場科学研究施設において 50 テスラまでのパルス強磁場測定を行い、量子振動の位相から相対論的キャリア固有のエネルギー量子化則について解明するとともに、ワイルフェルミオンの量子極限状態についても研究を進める。

4. 研究成果

気相法の合成条件を改良することにより、ワイル半金属 TaAs と NbAs の 1 cm³ 程度の大型単結晶を合成し、カレントジェット (不均一な電流密度の分布) 等の形状効果を排除可能な試料を得た。電場と磁場が平行な配置で、運動方向に対するスピンの方向が反対の (カイラリティが異なる) 粒子数のバランスが崩れること (カイラルアノマリー) に起因する負の磁気抵抗効果が c 軸方向で顕著になることを発見した。また、磁場方位が電場と平行からわずかにずれた状態でもより大きな負の磁気抵抗効果が観測されたことから、3 次元系では電場と磁場の射影成分でカイラリティバランスが決まるとともに、チャージポンピングは外場と垂直方向にも起こり得る可能性を示した。対象とするワイル半金属では、三日月型の異方的なフェルミ面が存在しており、キャリアの移動度は大きな異方性を示す。このため、磁気抵抗比が電場や磁場の方向に対して非常に大きな異方性を示すことを観測した。

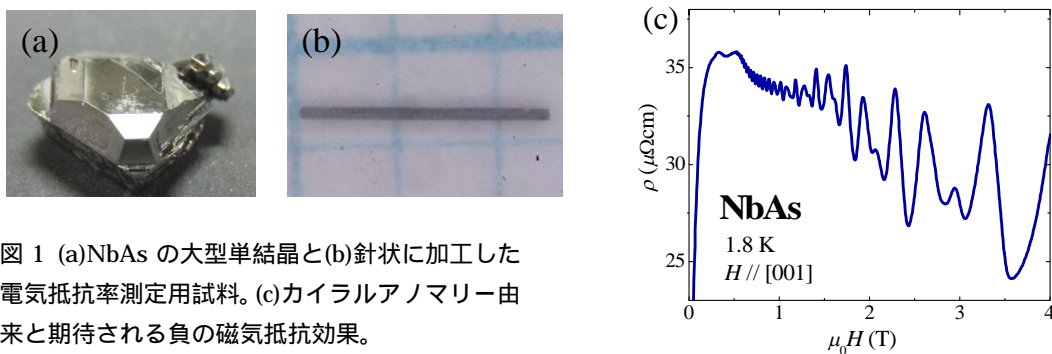


図 1 (a)NbAs の大型単結晶と(b)針状に加工した電気抵抗率測定用試料。(c)カイラルアノマリー由来と期待される負の磁気抵抗効果。

波数空間におけるスピンの湧き出しと吸い込みに対応するワイル点ペアを含むフェルミ面を持つ試料において、キャリアのエネルギー量子化則の解明に向けて精密な磁場方位制御下で電気抵抗率を測定して量子振動の位相を解析した。電気抵抗率の振動成分を磁場の逆数に対してプロットしたときのピーク位置に整数の指数をあてた関係 (ファンプロット) の切片の値から、バンド縮退点に固定されたゼロモードの存在、またはそれを基準としたランダウ準位についての情報を得られる。様々な磁場方位下で測定と解析を行った結果、磁場方位の変化で系のトポロジーは変化しないにも関わらずランダウ準位は不連続に変化することを発見した。これは従来の理論では説明できないものであり、磁場中での新たなエネルギー量子化則の存在を示唆するものである。この結果は現在学術論文に投稿中である。また、磁化 (ドハースファンアルフェン振動) を精密測定した結果との比較により、NbAs ではホール角の大きさに関わらず「電気抵抗率」がベリー位相解析の基準となる (フェルミ準位とランダウ準位が一致したときに極大値を取る) ことが示され、「電気伝導率」が位相解析の基準となるという従来の考えが 3 次元

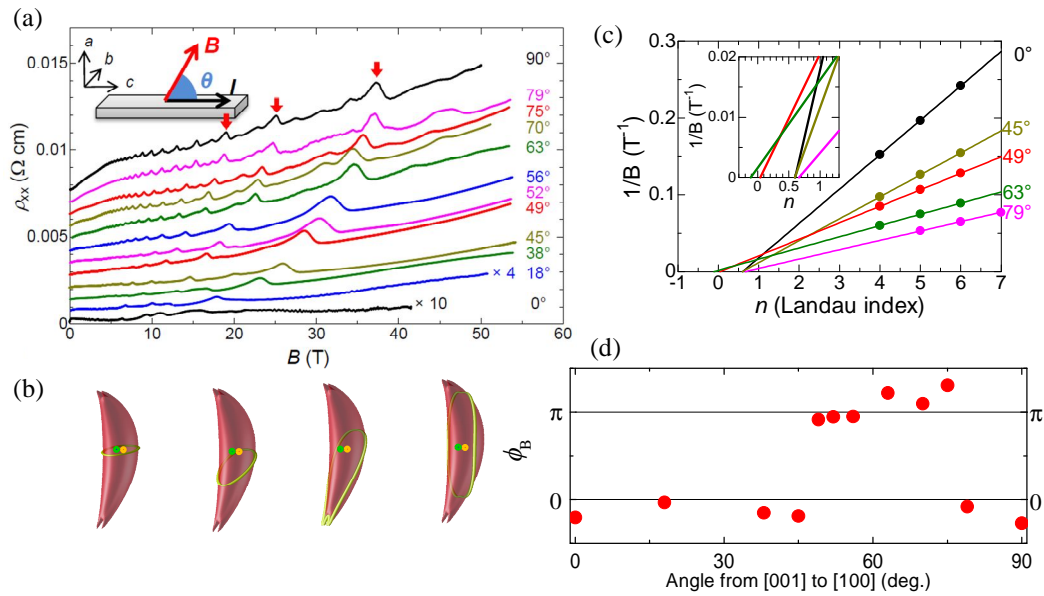


図 2 (a)パルス強磁場で測定した NbAs の電気抵抗率。(b)ワイル点ペアを含む三日月型フェルミ面と、様々な磁場方位下でのサイクロトロン極値断面積。(c)様々な磁場方位下でのランダウファンダイアグラム。(d)ファンダイアグラムから得られた切片の値を位相に換算したものの磁場方位依存性。

物質においては必ずしも成り立たないことが明確に示された。

大阪大学先端強磁場科学研究施設において 50 テスラまでのパルス強磁場測定を行い、TaAs の強磁場量子極限状態においてホール抵抗率に非自明なプラトーを観測した。一方で電気抵抗率には異常が観測されず、この起源解明に向けた研究を継続中である。

半金属 NbAs₂ 単結晶の純度を大幅に向上させて、40 テスラにおいて 200 万倍に達する巨大な磁気抵抗効果を実現した。この値は当時次々と報告されていた 2 元系半金属の磁気抵抗効果の大きさよりも 2 桁程度大きいものであり、超高移動度単元素半金属ビスマスの値に迫るものである。半金属の磁気抵抗比はキャリアの補償性と移動度次第でいくらかでも大きくなるという基本的な結論を実証したものであり、数万倍程度の値ではバンドのトポロジーや相対論的キャリアの存在と関連づける根拠とはならないことを明確に示したものである。今回合成した NbAs₂ では 100 Oe 程度の磁場でも敏感に電気抵抗率が変化しており、低温において高性能な磁場センサーとなりうる。(Physical Review Materials 2 024203 (2018).)

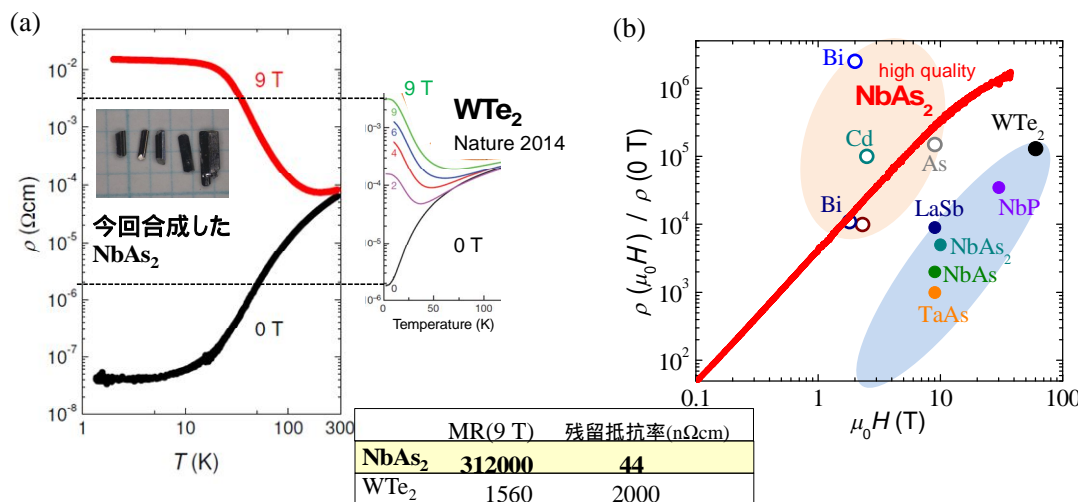


図 3 (a)本研究で合成した NbAs₂ の磁気抵抗効果と WTe₂(文献値)との比較。(b)近年報告された様々な 2 元系半金属との磁気抵抗比の比較。

さらに、空間反転対称性の破れた PbTaSe_2 を合成し、パリティ混成超伝導状態の検出に向けて、NQR 測定を行った。 ^{181}Ta 核の NQR 共鳴信号を観測し、超伝導転移温度 ($T_c = 3.8 \text{ K}$) 以下 1.4 K まで核スピン格子緩和時間の測定を行った結果、全方位で超伝導ギャップが開いている s 波状態が支配的であることが明らかとなった。パリティ混成超伝導状態の明確な証拠は得られなかった一方で、 s 波超伝導状態の証拠となるはずのコヒーレンスピークは大きく抑制されていた。この物質は価電子バンドと伝導バンドが円周状に交差するノーダルライン半金属としても注目されていることから、常伝導状態における電気伝導特性についても研究を進め、通常の磁場の 2 乗則とは異なる磁気抵抗の振る舞いを観測した。さらに熱起電力についても研究を進め、ゼーベック係数の測定からノーダルライン近傍に位置するキャリアポケットに由来すると思われる明瞭な量子振動を観測した。一方で、ノーダルライン半金属で理論的に期待された巨大な反磁性はフェルミ面が円筒状であるために観測されなかった。

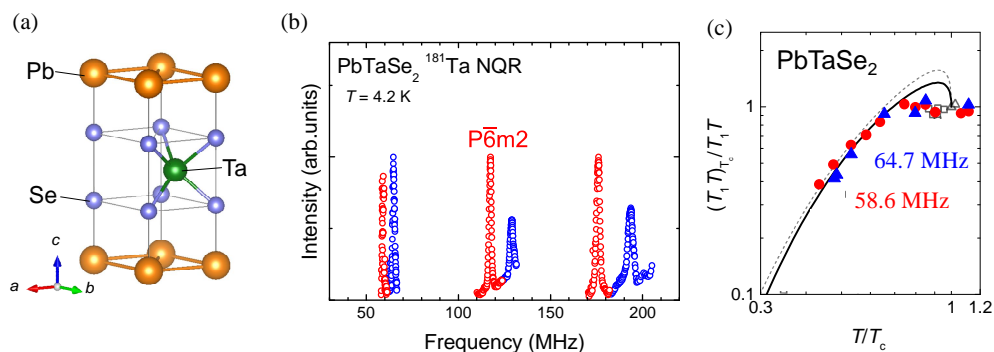


図 4 (a) PbTaSe_2 の空間反転対称性の破れた結晶構造。(b) ^{181}Ta 核の NQR スペクトル。(c) 核スピン・格子緩和率の温度依存性。

最近では希土類元素を含む第 2 種ワイル半金属候補物質である PrAlGe の単結晶を合成し、低温で強磁性転移を示すとともに、巨大な異常量子ホール効果を示すことを発見した。パルス強磁場測定から、強い磁気異方性ととも非自明な磁気構造の実現を示唆する特徴的な磁化の振る舞いを観測した。今後磁性と伝導特性の関係や異常ネルンスト効果等の熱特性について研究を進めていく。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 4 件)

1. S. Torigoe, T. Hattori, K. Kodama, T. Honda, H. Sagayama, K. Ikeda, T. Otomo, H. Nitani, H. Abe, **H. Murakawa**, H. Sakai, and N. Hanasaki
“Nanoscale ice-type structural fluctuation in spinel titanates”
Physical Review B **98** 134443 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.134443
2. R. Ishii, **H. Murakawa**, M. Nishi, M. Matsuda, H. Sakai, and N. Hanasaki
“Electrochemical synthesis of phthalocyanine-molecular mixed crystals in dilute solution”
JOURNAL OF CRYSTAL GROWTH **487** 92 (2018).
DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2018.02.023
3. K. Yokoi, **H. Murakawa***, M. Komada, T. Kida, M. Hagiwara, N. Hanasaki
“Enhanced magnetoresistance in the binary semimetal NbAs_2 due to improved crystal quality”
Physical Review Materials **2** 024203 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.024203
4. **H. Murakawa***, M. Komada, N. Hanasaki
“Synthesis and Characterization of Iodide-coordinated Dinuclear Molecular Single Crystal $\text{Cr}_2(\mu\text{-I})_2\text{I}_4(\text{C}_8\text{N}_2\text{H}_4)_4$ ”
Chemistry Letters **46** 554 (2017).
DOI: 10.1246/cl.161205

[学会発表](計 26 件)

1. 藤村飛雄吾, 酒井英明, 近藤雅起, 栗原綾佑, 三宅厚志, 徳永将史, 木田孝則, 萩原政幸, 鶴田圭吾, **村川寛**, 花咲徳亮

- “キャント型反強磁性体 BaMnSb₂ におけるバルク半整数量子ホール効果の観測”
日本物理学会第 74 回年次大会 (2019.3 九州大学)
2. 近藤雅起, 酒井英明, 中川賢人, 駒田盛是, 木田孝則, 萩原政幸, **村川寛**, 花咲徳亮
“異方的擬 2 次元ディラック電子状態を持つ AmnBi₂ (A = Sr, Eu, Ba) における角度依存層間磁気抵抗”
日本物理学会第 74 回年次大会 (2019.3 九州大学)
3. 島岩泰暉, 密岡拓心, **村川寛**, 駒田盛是, 横井滉平, 酒井英明, 花咲徳亮, 有田将司, E.F. Schwier, 島田賢也, 生天目博文, 溝川貴司
“角度分解光電子分光による TaAs の電子構造”
日本物理学会第 74 回年次大会 (2019.3 九州大学)
4. 秋葉和人, 小林達生, 三宅厚志, 酒井英明, 片山敬介, **村川寛**, 花咲徳亮, 鷹岡貞夫, 上床美也, 徳永将史
“圧力下における PbTe の電気伝導測定”
日本物理学会第 74 回年次大会 (2019.3 九州大学)
5. 西村拓也, 酒井英明, 森仁志, 秋葉和人, 臼井秀知, 越智正之, 黒木和彦, 三宅厚志, 徳永将史, 上床美也, 片山敬介, 坂本拓也, **村川寛**, 花咲徳亮
“p 型/n 型 SnSe における外部圧力を利用したバレー構造と熱電特性の制御”
日本物理学会第 74 回年次大会 (2019.3 九州大学)
6. 駒田盛是, **村川寛**, M. S. Bahrany, 木田孝則, 横井滉平, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“ワイル半金属 NbAs における量子振動とベリー位相の磁場方位依存性”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
7. 清水智可, 杉本崇, 石井龍太, **村川寛**, 西美樹, 松田真生, 稲辺保, 酒井英明, 花咲徳亮
“ルテニウムフタロシアニン伝導体の合成と分子内 -d 相互作用の評価”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
8. 薦田匠, 服部崇幸, 中野岳仁, 野末泰夫, 山下智史, 中澤康浩, 佐賀山基, 酒井英明, **村川寛**, 花咲徳亮
“元素置換した MgTi₂O₄ の比熱におけるスピン液体的挙動”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
9. 中川賢人, 酒井英明, 鶴田圭吾, 越智正之, 黒木和彦, 増田英俊, 石渡晋太郎, **村川寛**, 花咲徳亮
“多層ディラック電子系 EuMnBi₂ のブロック層を利用した p/n 型キャリア制御”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
10. 島岩泰暉, 密岡拓心, **村川寛**, 駒田盛是, 横井滉平, 酒井英明, 花咲徳亮, 溝川貴司
“X 線光電子分光による TaAs の電子構造”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
11. 密岡拓心, 岡本陽平, 溝川貴司, **村川寛**, 駒田盛是, 横井滉平, 酒井英明, 花咲徳亮, E.F. Schwier, 島田賢也, 生天目博文
“角度分解光電子分光で観測された TaAs の Ta 終端における電子構造”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
12. 秋葉和人, 三宅厚志, 酒井英明, 片山敬介, **村川寛**, 花咲徳亮, 鷹岡貞夫, 中西良樹, 吉澤正人, 小林達生, 徳永将史
“PbTe における “Diracness” の評価とその圧力依存性”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
13. 栗原綾佑, 三宅厚志, 徳永将史, 秋葉和人, 酒井英明, **村川寛**, 花咲徳亮, 鷹岡貞夫
“超音波と磁気抵抗測定による Pb_{1-x}Sn_xTe/In の量子振動”
日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018.9 同志社大学)
14. 村川 寛
“バルク半導体におけるラシュバ分裂とベリー位相”
日本物理学会第 73 回年次大会 (シンポジウム講演 23pK603-5) (2018.3 東京理科大学)

15. 駒田盛是, **村川寛**, 横井滉平, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“ワイル半金属 NbAs における磁場方位に依存したペリ一位相の観測”
日本物理学会第 73 回年次大会 (2018.3 東京理科大学)
16. 横井滉平, 八島光晴, **村川寛**, 椋田秀和, 酒井英明, 花咲徳亮
“空間反転対称性の破れた超伝導体 PbTaSe₂ の合成と NMR/NQR 測定”
日本物理学会第 73 回年次大会 (2018.3 東京理科大学)
17. 鶴田圭吾, 酒井英明, 増田英俊, 石渡晋太郎, 越智正之, 黒木和彦, **村川寛**, 花咲徳亮
“多層ディラック電子系 EuMnBi₂ における元素置換を利用したゼーベック・ネルンスト効果の制御”
日本物理学会第 73 回年次大会 (2018.3 東京理科大学)
18. 藤村飛雄吾, 酒井英明, 鶴田圭吾, 木田孝則, 萩原政幸, **村川寛**, 花咲徳亮
“自発磁化を有するディラック電子系物質 BaMnSb₂ における磁気輸送現象のキャリア濃度依存性”
日本物理学会第 73 回年次大会 (2018.3 東京理科大学)
19. 密岡拓心, 岡本陽平, 溝川貴司, **村川寛**, 駒田盛是, 横井滉平, 酒井英明, 花咲徳亮, E.F.Schwier, 島田賢也, 生天目博文
“TaAs の Ta 終端表面の電子構造”
日本物理学会第 73 回年次大会 (2018.3 東京理科大学)
20. 村川 寛
“Variation of Berry 's phase depending on a magnetic-field direction in the Weyl semimetal NbAs”
22th Conference on the Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors (2017.12 大阪大学)
21. 駒田盛是, **村川寛**, 横井滉平, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“パルス強磁場を用いたワイル半金属 TaAs, NbAs の電気伝導特性の研究”
強磁場フォーラム (2017.11 物質・材料研究機構)
22. 横井滉平, **村川寛**, 駒田盛是, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“半金属 NbAs₂ の純良単結晶の合成と強磁場下での 100 万倍を超える巨大な磁気抵抗効果の観測”
強磁場フォーラム (2017.11 物質・材料研究機構)
23. 密岡拓心, 岡本陽平, **村川寛**, 駒田盛是, 横井滉平, 酒井英明, 花咲徳亮, E.F.Schwier, 島田賢也, 生天目博文
“TaAs の角度分解光電子分光”
日本物理学会 2017 年秋季大会 (2017.9 岩手大学)
24. 西村拓也, 酒井英明, 片山敬介, 秋葉和人, 三宅厚志, 徳永将史, 上床美也, **村川寛**, 花咲徳亮
“熱電材料 SnSe における外部圧力を利用した電力因子の向上”
日本物理学会 2017 年秋季大会 (2017.9 岩手大学)
25. 駒田盛是, **村川寛**, 横井滉平, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“ワイル半金属 TaAs における強磁場下電気抵抗率測定”
日本物理学会第 72 回年次大会 (2017.3 大阪大学)
26. 横井滉平, **村川寛**, 駒田盛是, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮
“超高移動度補償半金属の単結晶合成と 100 万倍を超える磁気抵抗効果の観測”
日本物理学会第 72 回年次大会 (2017.3 大阪大学)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村川 寛 (Hiroshi Murakawa)

大阪大学大学院理学研究科物理学専攻 助教

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。