

令和 3 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01692

研究課題名（和文）トポロジカル絶縁体中転位の1次元金属状態

研究課題名（英文）One-dimensional metallic state of dislocations in topological insulators

研究代表者

枝川 圭一（Edagawa, Keiichi）

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号：20223654

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：Bi-Sbトポロジカル絶縁体単結晶について、金属状態発現の条件を満たすバーガース・ベクトルを持つ転位を塑性変形により高密度に導入した。マイクロサンプルの電気抵抗測定の結果、転位伝導に起因する顕著な電気伝導率の低下が観測された。

また、Bi-Sbよりもバンドギャップが一桁大きく高いバルク絶縁性が期待できるPb-(Bi,Sb)-(Te,Se)系トポロジカル絶縁体について、バルク絶縁性を向上させることに成功し、ナノフレイクの伝導測定により表面輸送特性を明らかにした。さらに、走査トンネル分光法により表面の電子状態や散乱機構を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、これまで理論的には予測されるにとどまっていたトポロジカル絶縁体中転位の金属状態について、初めて実験により実証した。この成果は、これまでトポロジカル絶縁体の表面/エッジに限られていた特殊な金属状態の研究対象をバルク内の転位に広げるものであり、そのような金属状態の基礎的物性研究の進展に寄与するものである。

また、Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)系トポロジカル絶縁体のバルク絶縁性向上の成果は、転位伝導だけでなく、従来のトポロジカル絶縁体の表面伝導の研究の進展にも寄与するものである。

研究成果の概要（英文）：We experimentally investigated the theoretically predicted dislocation conduction in Bi-Sb topological insulator (TI). We plastically deformed the crystals to introduce high-density dislocations with the Burgers vector satisfying the conductivity condition. Then, we cut out microsamples for electrical conductivity measurements. As a result, excess conductivity due to dislocation conduction were observed, which can be attributed to the formation of 1D propagating states along dislocations in the 3D TI.

We also fabricated bulk-insulating Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) TI crystals. By using low temperature scanning tunneling microscopy and spectroscopy, we clarified the electronic structure of the surface states and the scattering mechanism of surface electrons.

研究分野：材料強度物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 Bi-Sb 転位 電気伝導

1. 研究開始当初の背景

トポロジカル絶縁体(TI)は、バルク内部は絶縁体であるが、表面にギャップレスな金属状態を形成する。その金属状態は、ディラック型分散関係や、スピン偏極電流などの特異性をもち、基礎物性物理の観点のみならずスピントロニクス素子への応用の観点からも大きな注目を集めている。2009年に、特異な金属状態が表面だけではなくTI内部の転位に沿っても生じることが理論的に指摘された。これは1次元のスピン偏極ディラック電子系としてふるまうはずで、TI表面の2次元電子系とも異なる新たな重要な研究対象となる。この1次元電子系は、HgTe量子井戸構造を用いて実現された2次元TIの1次元端状態と同様なものだが、量子井戸構造と比べて、3次元TI中転位の方がはるかに作製が容易である。また、従来、半導体やセラミックス中の転位を金属化して1次元ナノ細線を作製し、これを応用しようとする研究がなされているが、長距離に亘って金属伝導が途切れないように作製することは困難で、応用の障害の一つとなっていた。これに対しTI中転位の1次元金属状態は電子状態のトポロジーに由来するため、転位上のキックや局所的な湾曲、不純物の析出等に影響されることなく金属状態が端から端まで維持される。さらに2010年にTIに高密度の伝導転位を導入することにより高性能の熱電変換素子が実現できる可能性が理論的に示された。

以上のような基礎物性物理上、また応用上重要な研究対象と考えられるTI中転位の金属状態形成であるが、その実験的な検証はなされていなかった。

2. 研究の目的

本研究では、TI中転位が特異な1次元金属状態を形成するとの理論予測に対する明確な実験的な証拠を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

3次元TIの中でも転位に沿って特殊な金属状態が発現し得る物質であるBi-SbとPb-(Bi,Sb)-(Te,Se)を対象とした。

Bi-Sbについては、(1)単結晶の塑性変形による転位の導入、(2)電子顕微鏡(TEM)を用いた転位の評価、(3)電気伝導測定、を行った。我々のこれまでの研究で転位伝導の検出に成功していたが、転位伝導の明確な証拠を得るには至っていなかった。そこで本研究では、集束イオンビーム(FIB)を用いて転位長さより十分小さいサイズの試料を作製することにより転位が貫通した状態で電気伝導測定を行った。

Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)については、(4)バルク試料の電気伝導測定によるバルク絶縁性の評価、(5)薄片試料の電気伝導測定による表面輸送特性の評価、(6)走査トンネル分光(STS)実験による表面状態の評価、を行った。

4. 研究成果

(1)Bi-Sb 単結晶の塑性変形による転位の導入[1]

次の2通りの圧縮軸を選択し、室温で単結晶の塑性変形を行った。

主すべり系(111)[$\bar{1}10$]が抑制され、すべり系(011)[$\bar{1}00$]が活性化される方位A

主すべり系(111)[$\bar{1}10$]が活性化される方位B

図1にAの方位で圧縮した変形量の異なる試料の光学顕微鏡像を示す。変形量が増加するにつれて、[100]方向に沿ってすべり線が観察され、狙い通りすべり系(011)[$\bar{1}00$]が活性化されたことが示唆された。

(2)TEMを用いた転位の評価[1]

圧縮軸方位AおよびBでひずみ量20%まで塑性変形した試料からFIBでTEM試料を切り出し観察した。比較のために未変形試料Uについても同様にTEM試料を切り出し観察した。圧縮軸方位Aの試料では[0 $\bar{1}1$]方向に沿った刃状転位が観察された。圧縮軸方位Aの試料に導入された転位のパーガス・ベクトルは金属状態の発現条件を満たす[100]であることがわかった。圧縮軸方位Bの試料では(111)すべり面上に高密度な転位が観察され、転位線の向きはランダムであった。未変形試料Uでは転位は観察されず、転位密度は 10^7 cm^{-2} より小さいことが確認された。

(3)電気伝導測定[1]

塑性変形により転位を導入した試料からFIBでマイクロサンプルを切り出し、直流四端子法で2-300 Kの温度範囲で電

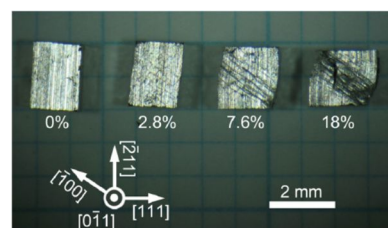


図1. Aの方位で圧縮した変形量の異なる試料の光学顕微鏡像。

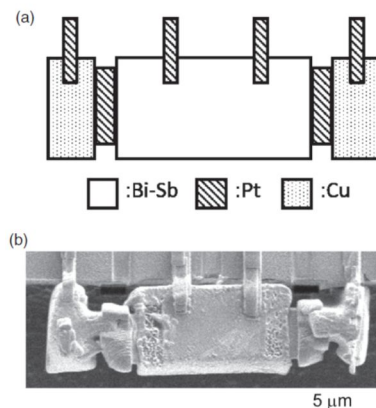


図2. マイクロサンプルの(a)模式図と(b)SEM像。

電気抵抗を測定した。比較のために未変形試料についてもマイクロサンプルを切り出し、電気抵抗を測定した。図2にマイクロサンプルの模式図とSEM像を示す。図3に電気抵抗率の温度依存性を示す。マイクロサンプルA、A'はそれぞれ圧縮軸方位Aの試料の転位密度が $10^{10-11} \text{ cm}^{-2}$ 、 $10^{9-10} \text{ cm}^{-2}$ の領域から切り出したものである。また、マイクロサンプルBは圧縮軸方位Bの試料の転位密度が $10^{10-11} \text{ cm}^{-2}$ の領域から切り出したものである。マイクロサンプルBの電気抵抗率の温度依存性は未変形試料とほとんど変わらなかった。このことから、金属状態の発現条件を満たさないバーガス・ベクトルを持つ転位は高密度に導入しても電気伝導に寄与しないことがわかった。これに対し、マイクロサンプルA、A'は未変形試料と比較して50 K以下の低温で電気抵抗率が減少しており、金属状態の発現条件を満たすバーガス・ベクトルを持つ転位はその密度に応じて電気伝導に寄与することが明らかになった。転位伝導の効果は我々が以前に行ったミリメートルスケールのサンプルの電気伝導測定の結果と比較しても顕著であった。これは、マイクロサンプルを用いることにより電気伝導測定に用いるサンプルの長さや転位の長さが同等程度となったこと、さらに、局所的な転位密度を反映した電気伝導測定が可能になったこと、によるものと考えられる。

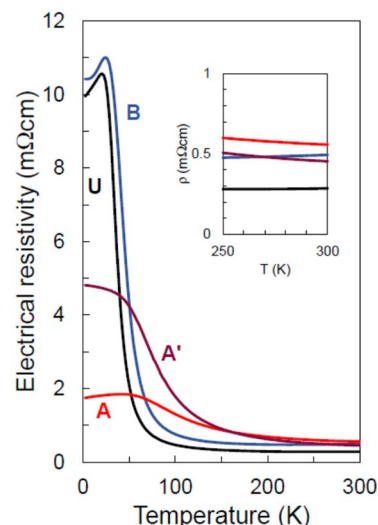


図3. マイクロサンプルの電気抵抗率の温度依存性.

(4)Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)バルク試料の電気伝導度測定によるバルク絶縁性の評価

Pb-(Bi,Sb)-Te系について、これまでにBi,Sb組成比の調整によりバルク絶縁性を向上させることに成功していた。さらにバルク絶縁性を上げる目的でPb-(Bi,Sb)-(Te,Se)系TI結晶を作製した。高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡(HAADF-STEM)像観察および電子エネルギー損失分光法(EELS)による元素マッピングにより、バルク絶縁性向上の鍵となる秩序構造が形成されていることを明らかにした(図4)[2]。

また、Te,Se組成比の異なる試料の電気伝導測定を行った結果、幾つかの試料で電気伝導率の温度依存性が絶縁体的振舞いを示した。バルク電気伝導率が絶縁体的振舞いを示した結晶のマイクロサンプルの電気伝導測定を行った結果、局所的にバルク絶縁性の高い領域と低い領域が混在していることが明らかとなった。

(5)薄片試料の電気伝導測定による表面輸送特性の評価

これまでに得られたバルク絶縁性の高いPb-(Bi,Sb)-Te結晶から剥離した薄片試料を用い、表面伝導率の温度依存性と電気抵抗を測定した。その結果、表面2次元電子の弱反局在、およびShubnikov-de Haas振動が観測された。この解析から表面電子の移動度が見積もられ、他のTIと同程度であることがわかった。

(6)STS実験による表面状態の評価

温度4.5 K、定電流モードのSTMにより微分コンダクタンス(dI/dV)像を取得し、表面の電子状態や散乱機構を明らかにした。表面電子の分散関係はARPESにより調べられた結果[3]とほぼ一致した。ディラック点から離れたエネルギーでは、ディラックコーンの変形に起因する散乱過程の異方性が見られた。

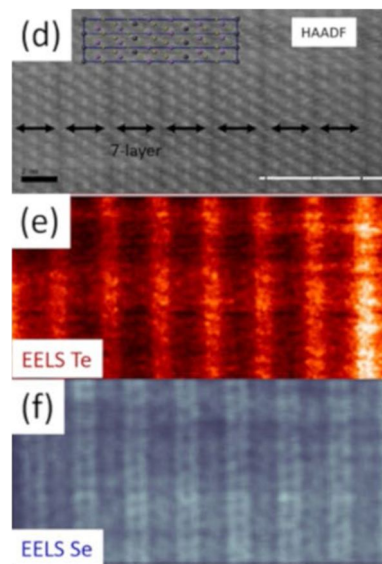


図4. Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)の(d)HAADF-STEM像.(e)EELS Teマッピング.(f)EELS Seマッピング.

参考文献

- [1] H. Hamasaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 023703 (2020).
- [2] Y. Hattori *et al.*, Sci. Rep. **10**, 7957 (2020).
- [3] S. Souma *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 116801 (2012).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tokumoto Yuki, Fujiwara Riku, Edagawa Keiichi	4. 巻 9
2. 論文標題 High-Density Well-Aligned Dislocations Introduced by Plastic Deformation in Bi _{1-x} Sb _x Topological Insulator Single Crystals	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 317 ~ 317
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst9060317	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hamasaki Hiromu, Tokumoto Yuki, Edagawa Keiichi	4. 巻 89
2. 論文標題 Conductive and Non-conductive Dislocations in Bi ₂ Sb Topological Insulators	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 023703 ~ 023703
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.023703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hattori Yuya, Tokumoto Yuki, Kimoto Koji, Edagawa Keiichi	4. 巻 10
2. 論文標題 Evidences of inner Se ordering in topological insulator PbBi ₂ Te ₄ -PbBi ₂ Se ₄ -PbSb ₂ Se ₄ solid solutions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7957
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-64742-6	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 Y. Hattori, Y. Tokumoto, K. Sagisaka, K. Edagawa
2. 発表標題 Helical spin texture of Bi doped PbSb ₂ Te ₄ topological insulator
3. 学会等名 APS March Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 杉本恭一, 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb)2(Te,Se)4トポロジカル絶縁体の作製と電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 服部裕也, 徳本有紀, 鷺坂恵介, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb)2Te4トポロジカル絶縁体における準粒子干渉
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb)2Te4トポロジカル絶縁体における表面電子物性
3. 学会等名 Pb(Bi,Sb)2Te4トポロジカル絶縁体における表面電子物性
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Hattori, Y.Tokumoto, K. Edagawa
2. 発表標題 Bulk insulation and surface electrons' properties of Pb(Bi,Sb)2Te4 Topological Insulator
3. 学会等名 APS March Meeting 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 徳本有紀, 濱崎拓, 枝川圭一
2. 発表標題 Bi-Sbトポロジカル絶縁体中転位の電気伝導
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期(第165回)講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb)2Te4トポロジカル絶縁体における表面電子輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 BiSbワイル半金属の実験的検証
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 杉本恭一, 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb)2(Te,Se)4トポロジカル絶縁体の作製と評価
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 磁性トポロジカル絶縁体MnBi ₂ Te ₄ の結晶作製と電気伝導評価
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱崎拓, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 微細サンプルにおけるBi-Sbトポロジカル絶縁体中転位の電気抵抗測定2
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 服部裕也, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb) ₂ (Te,Se) ₄ トポロジカル絶縁体のバルク絶縁体化
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 濱崎拓, 徳本有紀, 枝川圭一
2. 発表標題 微細サンプルにおけるBi-Sbトポロジカル絶縁体中転位の電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Hiromu Hamasaki, Yuya Hattori, Yuki Tokumoto, and Keiichi Edagawa
2. 発表標題 Transport properties of topological insulators with Z2 indices of (1;111)
3. 学会等名 New Trends in Topological Insulators (NTTI 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Yuya Hattori, Yuki Tokumoto, and Keiichi Edagawa
2. 発表標題 Transport properties of Pb(Bi _{1-x} Sbx) ₂ Te ₄ Topological Insulators
3. 学会等名 New Trends in Topological Insulators (NTTI 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Hiromu Hamasaki, Yuki Tokumoto, and Keiichi Edagawa
2. 発表標題 Electrical Conductions along Dislocations in Bismuth-Antimony Topological Insulators
3. 学会等名 New Trends in Topological Insulators (NTTI 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Yuya Hattori, Yuki Tokumoto and Keiichi Edagawa
2. 発表標題 Heavy doping effects on PbBi ₂ Te ₄ topological insulator
3. 学会等名 2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Hiromu Hamasaki, Yuki Tokumoto and Keiichi Edagawa
2. 発表標題 Electrical Resistivity Measurements for Bismuth-Antimony Topological Insulators Containing Dislocations
3. 学会等名 2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京大学 枝川研究室 http://www.edalabo.iis.u-tokyo.ac.jp/

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
---------	---------