

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03751

研究課題名（和文）トポロジカル絶縁体/絶縁体人工超格子によるワイル半金属の実現

研究課題名（英文）Fabrication of Wyle semimetal by topological insulator/insulator artificial superlattice

研究代表者

穴戸 寛明 (Shishido, Hiroaki)

大阪府立大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授

研究者番号：80549585

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：トポロジカル近藤絶縁体であるSmB6超薄膜に対し、イオン液体を用いて5 Vまでの電場印可を行った。2 Kまでの電気抵抗率測定を行ったが、電場を印可していない場合との明瞭な差異は確認されなかった。

Si基板上にCaB6層、SmB6層、SrB6層を順に積層させ、この構造を複数回繰り返した人工超格子の作成に成功した。この人工超格子の電気抵抗率を2 Kまで測定した。電気抵抗率は降温と共に増大し、10 K以下で増大が抑制された。また、2 Kで弱い正の磁気抵抗を示した。これはSmB6膜が弱い負の磁気抵抗を示すのとは明確に異なる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トポロジカル絶縁体はバルクには絶縁体であるが表面にだけ伝導電子が存在する。SmB6はそのようなトポロジカル絶縁体の一種である。トポロジカル絶縁体のSmB6の薄膜を作製し、電場を印可する、同じ結晶構造を取るCaB6、SrB6とSmB6を順番に積層する、の2通りの方法でSmB6の空間反転対称性を破ることを試みた。ここで空間反転対称性を破るとは、電場方向あるいは積層方向に極性を付けることを意味する。これにより高い移動度で電荷を運べる準粒子を実現できる可能性がある。本研究ではその実現可能性について検証を行った。

研究成果の概要（英文）：We applied an electric field up to 5 V to the SmB6 ultrathin films, which is known as a topological Kondo insulator, by using an ionic liquid. And then we measured temperature dependence of the electrical resistivity down to 2 K under electric fields. Resulting no clear difference was observed from that without electrical field up to 5 V.

We succeeded in fabricating artificial superlattices with stacking layers of CaB6, SmB6, and SrB6 on a Si substrate. Temperature dependence of the electrical resistivity of the SrB6/SmB6/CaB6 artificial superlattices was measured down to 2 K. The electrical resistivity increased with decreasing temperatures, starts to saturate below 10 K. We also observed a weak positive magnetoresistance at 2 K, while the SmB6 thin films exhibits weak negative magnetoresistance.

研究分野：強相関電子系

キーワード：ワイル半金属 近藤トポロジカル絶縁体 人工超格子 SmB6

## 1. 研究開始当初の背景

近年、トポロジカル絶縁体を嚆矢とする、トポロジカルに非自明な固体の電子状態について理論的・実験的に精力的な研究が進められており、その理解が大きく進んできた。その一種であるワイル半金属では、スピンに対して縮退していない価電子バンドと伝導バンドが交差し、その一点でのみスピンが縮退しているワイルノードをフェルミエネルギー近傍に持つ。ワイルノードを持つためには、スピン軌道相互作用を持ち、空間反転対称性が時間反転対称性のどちらか、あるいは両方を破っている必要がある。

ワイル半金属としては TaAs などの、結晶構造に反転中心を持たず、空間反転対称性が破られることによってワイル点を持つ物質群がよく調べられている。時間反転対称性を破ったワイル半金属としてはディラック半金属である  $\text{Cd}_3\text{Al}_2$  に磁場を印可した例などが知られている。現在はワイル半金属について単結晶試料を用いた様々な実験的研究がなされているが、当初は、理論研究からワイル半金属が実現する可能性についての指摘がなされた。そこで議論されたのはトポロジカル絶縁体と通常のバンド絶縁体の超格子を作り、電場を印可するなどして反転対称性を破り、ワイル半金属を実現する、というアイデアだった。しかしながら人工超格子によるワイル半金属の実現は報告されていない。

## 2. 研究の目的

近藤トポロジカル絶縁体である  $\text{SmB}_6$  の空間反転対称性を破ることによりワイル半金属を実現する。また空間反転対称性の破れを制御変数とし、トポロジカル絶縁体からワイル半金属への変化を調べることを目的とした。 $\text{SmB}_6$  の空間反転対称性を破るために以下の2つの手法を用いた。

1)  $\text{SmB}_6$  薄膜にイオン液体を滴下し、電場を印加することにより空間反転対称性を破る。印加する電場の大きさを連続的に変化させ空間反転対称性の破れを制御する。

2)  $\text{SmB}_6$  と通常の絶縁体である  $\text{SrB}_6$ 、金属である  $\text{CaB}_6$  が積層した人工超格子を製膜することにより空間反転対称性を破る、 $\text{SrB}_6/\text{SmB}_6/\text{CaB}_6$  人工超格子の  $\text{SmB}_6$  層の厚みを制御することにより空間反転対称性の破れを制御する。

## 3. 研究の方法

### 1) 成膜手法

$\text{SmB}_6$  薄膜および  $\text{SrB}_6/\text{SmB}_6/\text{CaB}_6$  人工超格子は分子線エピタキシー法を用いて製膜する。蒸着源にはクヌードセンサー(Kセル)を用いる。Kセルによる加熱蒸着は高い安定性でゆっくりとした元素供給が可能でありエピタキシャル成長に有利と考えられる。Bは高融点・低蒸気圧であり通常は電子ビーム蒸着が用いられる。しかしながら本研究では高温Kセルを用いてBを1500°C程度に昇温し、昇華を用いて蒸着を行った。この場合蒸着速度が極端に遅くなるが長時間にわたって安定したフラックスが得られる利点がある。

基板には  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  の Si (100)面基板を用いた。蒸着の前処理としてフッ酸によるエッチングを行うことで表面にわずかに残っている酸化物を除去した。基板を1000°Cまで昇温し、 $1 \times 10^{-6} \text{ Pa}$  以下の超高真空中で蒸着を行った。典型的な蒸着速度は  $0.2 \text{ \AA}/\text{min}$  程度であった。

### 2) 製膜した膜の評価

製膜した膜の表面平坦性とエピタキシャル性は反射高速電子線回折(RHEED)によるその場観察により行った。また、製膜終了後に大気中で原子間力顕微鏡(AFM)による平坦性の評価も併せて行った。膜の結晶性並びに超格子構造は基板垂直方向並びに水平方向のX線回折とX線反射率測定により行った。

### 3) イオン液体による電場の印加

一様に蒸着した厚み9nmの $\text{SmB}_6$ 薄膜を収束イオンビームで加工し、幅200 $\mu\text{m}$ 、電圧端子間距離50 $\mu\text{m}$ の4端子構造を作製した。細線構造の上にイオン液体 DEME TFSA( $\text{C}_{10}\text{H}_{20}\text{F}_6\text{N}_2\text{O}_5\text{S}_2$ )を滴下し、金電極をイオン液体の上部に接触させることによりゲート電極を作製した。

### 4) 物性測定

$\text{SrB}_6/\text{SmB}_6/\text{CaB}_6$  人工超格子にたいして2Kから300Kの範囲で電気抵抗率測定を行った。イオン液体滴下試料に対しては220Kもしくは300Kでゲート電圧の印加を行い、2Kまでの電気抵抗率測定を行った。ゲート電圧は $\pm 5 \text{ V}$ 範囲で印可し、電気抵抗率の測定中も電圧を印加し続けた。

#### 4. 研究成果

##### 1) SmB<sub>6</sub> 薄膜への電界効果

イオン液体により電場が印加されるのは表面付近のみであると考えられるため、厚さ 9 nm の SmB<sub>6</sub> 膜を製膜した。この膜の RHEED は等間隔なストリーク状であり、基板開店に伴ってパターンの変化が観測された。この結果は膜の平坦性が良好であり且つエピタキシャル成長していることを示している。基板垂直方向の X 線回折では膜の回折ピークは観測されなかったが、基板平行方向では Si 基板の 400 反射と同時に SmB<sub>6</sub> の 110 反射のみが観測された。また、2θ角を SmB<sub>6</sub> 110 反射に合わせた状態で基板を 360 度回転させると SmB<sub>6</sub> 膜の 4 回対称性を反映した 4 つのピークが観測された。これらの結果は SmB<sub>6</sub> 膜がエピタキシャル成長していることを示している。基板垂直方向の回折ピークが観測されなかったのは膜が薄いことによるものと考えられる。

図 1 に 2 K から 220 K までの SmB<sub>6</sub> 膜の電気抵抗率の温度依存性を示す。抵抗率は降温と共に増大し、20~30 K 以下で上昇が緩やかになるふるまいを示した。おおよそのふるまいはバルク試料を再現するが、5 K 以下の低温でも抵抗率の緩やかな上昇が続くなど、細部には違いが表れている。これは薄膜化による違いと考えられるがその詳細は明らかではない。

+5 V のゲート電圧印加下での 2 K までの電気抵抗率の温度依存性を図 1 に示す。図から明らかなように +5 V の範囲内では有意な電気抵抗率の変化が観測されなかった。

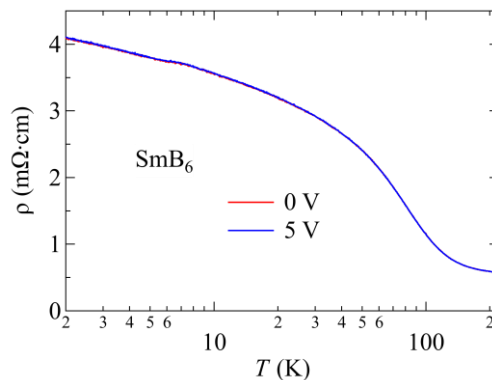


図 1 電場印可下での SmB<sub>6</sub> 膜の電気抵抗率

##### 2) SrB<sub>6</sub>/SmB<sub>6</sub>/CaB<sub>6</sub> 人工超格子の作製と構造評価

Si 基板の上に CaB<sub>6</sub> 層、SmB<sub>6</sub> 層、SrB<sub>6</sub> 層の順に積層させた構造を何回か繰り返した人工超格子を MBE 法により製膜した。RHEED はリング状であり多結晶膜になっていることを示している。X 線回折において、MB<sub>6</sub> (M:Ca, Sm, Sr) に対応した回折ピークが観測された。これらの回折ピークに対するロックンクープ測定からも多結晶膜になっていることが示された。図 2 に CaB<sub>6</sub>30 層、SmB<sub>6</sub>30 層、SrB<sub>6</sub>30 層の積層構造を 4 回繰り返かえした SrB<sub>6</sub>(30)/SmB<sub>6</sub>(30)/CaB<sub>6</sub>(30)x4 人工超格子の X 線反射率族帝の結果を示す。X 線反射強度の不規則な変化がみられる。これは超格子構造を反映したものと考えられる。以上より本研究において多結晶膜ではあるが rB<sub>6</sub>/SmB<sub>6</sub>/CaB<sub>6</sub> 人工超格子の作製に成功したと結論される。

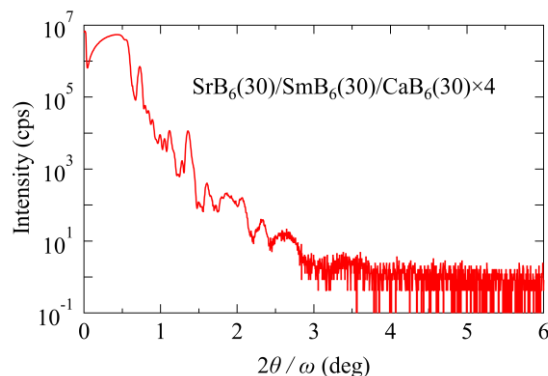


図 2 SrB<sub>6</sub>(30)/SmB<sub>6</sub>(30)/CaB<sub>6</sub>(30)×4 人工超格子の X 線反射率測定

##### 3) SrB<sub>6</sub>/SmB<sub>6</sub>/CaB<sub>6</sub> 人工超格子の電気抵抗率測定

図 3 に SrB<sub>6</sub>(30)/SmB<sub>6</sub>(30)/CaB<sub>6</sub>(30)x4 人工超格子の電気抵抗率の温度依存性を示す。電気抵抗率は降温と共に絶縁体的に上昇するが、10 K 以下の極低温では上昇が緩やかになり一定値に近づく振る舞いを示した。これは定性的には SmB<sub>6</sub> 膜とよく似た振る舞いであるが、抵抗率の絶対値は SmB<sub>6</sub> 単相膜に比べて上昇している。ゼロ磁場下ではワイル半金属の実現を示唆するような顕著な抵抗率の温度依存性の変化は観測されなかった。2 K において、変化は小さいものの明瞭な正の磁気抵抗が観測された。これは SmB<sub>6</sub> 単相膜が弱い負の磁気抵抗を示すこととは著しく異なっている。正の磁気抵抗の起源については更なる研究が必要である。

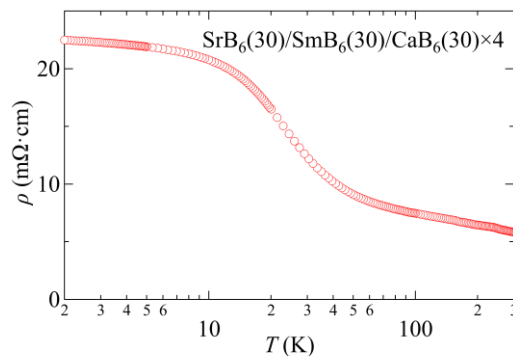


図 3 SrB<sub>6</sub>(30)/SmB<sub>6</sub>(30)/CaB<sub>6</sub>(30)×4 人工超格子の電気抵抗率

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Shishido Hiroaki, Okumura Akira, Saimyoji Tatsuya, Nakamura Shota, Ohara Shigeo, Togawa Yoshihiko	4. 巻 118
2. 論文標題 Thin film growth of heavy fermion chiral magnet YbNi3Al9	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 102402 ~ 102402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0035385	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Shishido Hiroaki, Nishimura Kazuma, Dang Vu The, Kojima Kenji M., Koyama Tomio, Oikawa Kenichi, Harada Masahide, Miyajima Shigeyuki, Hidaka Mutsuo, Oku Takayuki, Soyama Kazuhiko, Aizawa Kazuya, Suzuki Soh Y., Ishida Takekazu	4. 巻 1590
2. 論文標題 Energy-Resolved Neutron Imaging using a Delay Line Current-Biased Kinetic-Inductance Detector	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012033 ~ 012033
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1590/1/012033	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 Inui Akito, Aoki Ryuya, Nishiue Yuki, Shiota Kohei, Kousaka Yusuke, Shishido Hiroaki, Hirobe Daichi, Suda Masayuki, Ohe Jun-ichiro, Kishine Jun-ichiro, Yamamoto Hiroshi M., Togawa Yoshihiko	4. 巻 124
2. 論文標題 Chirality-Induced Spin-Polarized State of a Chiral Crystal CrNb3S6	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 166602-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.166602	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Y. Iizawa, H. Shishido, K. Nishimura, T. D. Vu, K. M. Kojima, T. Koyama, K. Oikawa, M. Harada, S. Miyajima, M. Hidaka, T. Oku, K. Soyama, K. Aizawa, S. Y. Suzuki, T. Ishida	4. 巻 32
2. 論文標題 Energy-resolved neutron imaging with high spatial resolution using a superconducting delay-line kinetic inductance detector	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 125009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6668/ab4e5c	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 該当する

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 H. Shishido, A. Okumura, T. Saimyoji, S. Ohara, Y. Togawa
2. 発表標題 Epitaxial thin film growth of the rare earth chiral magnet YbNi <sub>3</sub> Al <sub>9</sub>
3. 学会等名 The 80th Okazaki Conference “Chirality-induced spin selectivity and its related phenomena”（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Shishido, Y. Kozuka, T. Tahara, Y. Narumi, T. Kida, M. Hagiwara, Y. Togawa
2. 発表標題 Fabrication and Evaluation of SmB <sub>6</sub> /SrB <sub>6</sub> Artificial Superlattices
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Okumura, T. Saimyoji, H. Shishido, S. Ohara, Y. Togawa
2. 発表標題 Fabrication and evaluation of chiral helimagnet YbNi <sub>3</sub> Al <sub>9</sub> thin films
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西明寺達哉, 奥村慧, 宍戸寛明, 中村翔太, 大原繁男, 戸川欣彦
2. 発表標題 キラル磁性体YbNi <sub>3</sub> Al <sub>9</sub> 薄膜の作製と評価II
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 宍戸寛明, 幸塚祐哉, 田原大夢, 鳴海康雄, 木田孝則, 萩原政幸, 戸川欣彦
2. 発表標題 SmB6/SrB6人工超格子の強磁場下磁気抵抗測定
3. 学会等名 物性研短期研究会 / 強磁場科学研究会 強磁場コラボラトリーによる強磁場科学の新展開 ~ 光科学との融合も視野にいて ~
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西明寺達哉, 宍戸寛明, 奥村慧, 中村翔太, 大原繁男, 戸川欣彦
2. 発表標題 カイラル磁性体YbNi3Al9薄膜の作製とスピнкаイラル秩序相での磁気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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