

令和 4 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04984

研究課題名(和文)トポロジカル絶縁体中転位の規則配列およびその電子物性の探求

研究課題名(英文) Fabrication of periodic arrays of dislocations in topological insulators and investigation of their electronic properties

研究代表者

徳本 有紀 (Tokumoto, Yuki)

東京大学・生産技術研究所・講師

研究者番号：20546866

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：Bi-Sbトポロジカル絶縁体に金属状態発現条件を満たす転位を導入し、マイクロサンプルの電気伝導測定により顕著な伝導転位の効果を検出した。また、Pb-(Bi,Sb)-Teトポロジカル絶縁体について、バルク絶縁性の高い結晶を用い、表面伝導の観測に成功した。表面状態の散乱機構についても明らかにした。金属状態発現条件を満たす転位を導入することにも成功した。Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)トポロジカル絶縁体結晶については、Pb-(Bi,Sb)-Teを上回るバルク絶縁性は得られなかったが、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。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、トポロジカル絶縁体の転位に局在した金属状態について、実験により定量的に検証することに成功した。この成果はトポロジカル絶縁体の転位に関する基礎および応用研究の推進に寄与するものである。また、トポロジカル絶縁体の転位に局在した金属状態を、より高温で検出・観測可能な候補材料の開拓を行った。この成果は、トポロジカル絶縁体の転位だけでなく、表面伝導・表面状態の研究の推進にも寄与するものであり、さらに応用の可能性を広げることにつながる。

研究成果の概要(英文)：We plastically deformed Bi-Sb topological insulator and introduced dislocations which satisfy the condition for metallic gapless states. Then, we performed electrical conductivity measurements and succeeded in detecting remarkable effect of dislocation conduction. Furthermore, we investigated surface conduction and scattering mechanism of surface electrons by using Pb-(Bi,Sb)-Te topological insulator with high bulk resistivity. As for Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) topological insulator, we could not obtain higher bulk resistivity than Pb-(Bi,Sb)-Te topological insulator. However, we revealed that the semiconducting regions with higher resistivity are locally distributed.

研究分野：材料科学

キーワード：トポロジカル絶縁体 バルク絶縁体化 転位

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年トポロジカル絶縁体と呼ばれる新しい量子物性を示す物質が発見され、大きな注目を集めている。トポロジカル絶縁体は、バルクはバンド絶縁体でありながら表面に特殊な金属状態が生じている物質である。ディラック電子系である(直線的な分散関係を持つ)、スピン偏極している、という特徴があり、電子デバイス、スピントロニクスデバイスへの応用が期待されている。さらに、トポロジカル絶縁体表面の金属状態は「物質の端(表面)」ということだけで必然的に生じる。断熱的な摂動に対して頑強な金属状態であるという点で、従来の絶縁体表面の電荷蓄積層や反転層等の表面状態とは大きく異なる。この特殊な金属状態がトポロジカル絶縁体の表面のみならず、結晶中の転位においても生じ得ることが理論的に予想されている。トポロジカル絶縁体の表面ではディラック電子系であるために完全後方散乱(スピンが逆転する散乱)は禁止されるもののそれ以外の一般の後方散乱は禁止されない。これに対し、転位に沿っては電子の運動する方向が一次元に制限されているため、完全後方散乱以外の散乱も起き得ない。したがって、表面より高い電子移動度が期待できる。

これまでに我々の研究グループがトポロジカル絶縁体中転位の特殊な金属状態の実験的検証、評価に先鞭をつけるべく研究を進めてきたが、未だ転位伝導を明確に実証するには至っていない。トポロジカル絶縁体中の転位状態の基礎研究を推進し、応用展開するためにも、実験に基づくより定量評価が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究は、トポロジカル絶縁体中転位の特殊な金属状態の電子物性を定量的に評価すること、さらに、新奇な転位状態の応用の可能性を示すことを目的とした。

3. 研究の方法

【初年度】

まずは Bi-Sb トポロジカル絶縁体単結晶の作製に取り組んだ。ゾーンメルト法により仕込み組成、結晶育成速度についていくつかの条件で結晶育成を行い、バルクバンドギャップの大きい組成の単結晶を得るための条件を見出した。

また、Bi-Sb トポロジカル絶縁体単結晶の塑性変形により金属状態発現条件を満たす転位を導入し、集束イオン/電子ビーム加工装置(FIB-SEM)によりマイクロサンプルを切り出し、電気伝導測定を行った。TEM による局所的な転位密度の評価を併せて行うことにより、伝導転位の効果の検出を試みた。

さらに、Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)トポロジカル絶縁体についてもバルク絶縁性向上に取り組んだ。Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)トポロジカル絶縁体は、Bi-Sb と同様にトポロジカル絶縁体の中でも転位に沿って特殊な金属状態が発現し得る数少ない物質の一つである。バルクのバンドギャップが Bi-Sb よりも大きいこと、転位の特殊な電子物性を探索するための舞台として期待される。Te を Se で置換することにより、バルクのバンドギャップを増大させる効果があることが予測されている。さらに、Te/Se が秩序構造をとることによりバンドギャップが増大することが予測されている。これを、走査透過型電子顕微鏡/電子エネルギー損失分光法(STEM/EELS)を用いて明らかにした。

【第二年度】

Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)トポロジカル絶縁体についてバルク絶縁性向上に関する実験を進めた。

Pb-(Bi,Sb)-Te については、これまでに我々の研究グループで得られたバルク絶縁性の高い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磁気抵抗を測定した。また、極低温走査トンネル分光実験により表面状態の観測を行った。

さらにバルク絶縁性の高い Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)結晶を得るために、原料組成を変えた Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se)結晶育成を行い、得られた結晶の組成分析、電気伝導評価を行った。

【最終年度】

バルク絶縁性の高い Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体結晶を用い、FIB-SEM でマイクロピラーを加工し、フラット圧子を装着したナノインデントで塑性変形を施し転位を導入した。

4. 研究成果

(1)Bi-Sb トポロジカル絶縁体単結晶の作製

ゾーンメルト法で、仕込み組成 Sb10 at%、結晶育成速度 0.1 mm/h の条件で、バルクバンドギャップの大きい組成(Sb 濃度 ~ 13 at%)で均質性の高い単結晶を得た。

(2) Bi-Sb トポロジカル絶縁体マイクロサンプルの電気伝導測定

Bi-Sb トポロジカル絶縁体単結晶の塑性変形により金属状態発現条件を満たす転位を導入した試料について、FIB-SEM によりマイクロメートルサイズの試料を切り出し、電気伝導測定を行った[1]。図 1 に電気抵抗率の温度依存性の測定結果を示す。マイクロサンプル A、A'は金属状態発現条件を満たす転位の密度がそれぞれ $10^{10-11} \text{ cm}^{-2}$ 、 $10^{9-10} \text{ cm}^{-2}$ の領域から切り出したものである。比較のために、未変形の試料から切り出したマイクロサンプル U、および、金属状態発現条件を満たさない転位を導入した試料から切り出したマイクロサンプル B についても同様な測定を行った。その結果、金属状態発現条件を満たす転位を導入したマイクロサンプルについては、転位密度が高いほど 50 K 以下の低温における電気抵抗率が減少した。また、金属状態発現条件を満たさない転位については、高密度に導入しても電気抵抗率を減少させなかった。これらの結果に基づき、金属状態発現条件を満たす転位による電気伝導の効果をより定量的に評価することに成功した。

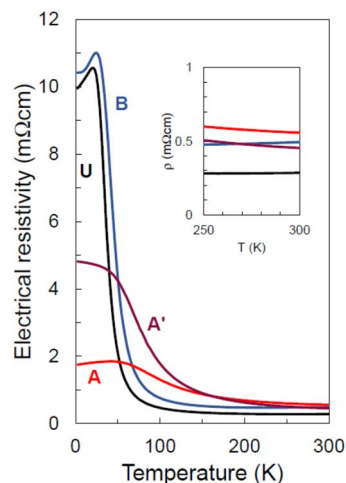


図 1. Bi-Sb トポロジカル絶縁体マイクロサンプルの電気抵抗率の温度依存性。

(3) Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) トポロジカル絶縁体のバルク絶縁性向上

Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) トポロジカル絶縁体を作製し、STEM-EELS を用いて Te と Se の分布を調べ、理論計算によりバンドギャップの増大が期待される秩序構造が実際に形成されていることを明らかにした[2]。

また、原料組成を変えた Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) トポロジカル絶縁体結晶について、電気伝導評価を行った結果、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[3]。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(図 2)。しかし、低温(2K)での電気抵抗率が最も高い Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) マイクロサンプルでも、これまでに得られた Pb-(Bi,Sb)-Te の 2K での電気抵抗率にはおよばなかった。電気抵抗率およびホール測定の結果から、Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) においてはキャリアを放出する欠陥の分布が一樣でなく、かつ、その非一様性もマイクロスケールで領域によって異なることが示唆された。低温での磁気抵抗測定を行い、バルクの散乱機構の解析を行った結果、見積もられた位相コヒーレンス長も Pb-(Bi,Sb)-Te と比較して短く、不純物ポテンシャルの乱れの大きさがマイクロメートルスケールで不均一になっていることが示唆された。

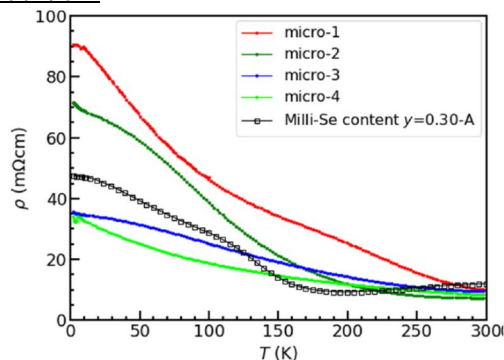


図 2. Pb-(Bi,Sb)-(Te,Se) トポロジカル絶縁体マイクロサンプルの電気抵抗率の温度依存性。

(4) Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体薄片試料の表面輸送特性の測定

我々の研究グループがこれまでに作製したバルク絶縁性の高い Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体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磁気抵抗を測定した。その結果、表面 2 次元電子の弱反局在、および量子振動が観測された。

(5) Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体の表面状態の評価

我々の研究グループがこれまでに作製したバルク絶縁性の高い Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体を用い、極低温走査トンネル分光実験を行った。その結果、表面状態の特殊な散乱機構について明らかにした。

(6) Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体マイクロピラーの塑性変形による転位導入

バルク絶縁性の高い Pb-(Bi,Sb)-Te トポロジカル絶縁体結晶のマイクロピラーに対し、フラット圧子を用いたナノインデンテーションにより塑性変形を施した。塑性変形後の SEM 観察から、マイクロピラーによって三重すべり系のうち一つから三つのすべり系が活性化していることがわかった。すべり帯が観察されたマイクロピラーから TEM 試料を加工し、TEM 観察を行った結果、金属状態の発現条件を満たす転位が導入されていることが確認された。今後、転位の直線性の向上、高密度化を図り、転位伝導、転位の電子状態に関する研究を推進する予定である。

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] Y. Tokumoto *et al.*, J. Appl. Phys. **131**, 185105 (2022).

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 0件/うちオープンアクセス 3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-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 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 Tokumoto Yuki, Sugimoto Kyoichi, Hattori Yuya, Edagawa Keiichi	4. 巻 131
2. 論文標題 Electronic transport properties of Pb(Bi _{1-x} Sb _x) ₂ (Te _{1-y} Se _y)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 185105 ~ 185105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0077002	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 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Y. Hattori, Y. Tokumoto, K. Sagisaka, and 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 (国際学会)
4. 発表年 2021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) ₂ Te ₄ 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 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, 枝川圭一
2. 発表標題 Pb(Bi,Sb) ₂ Te ₄ トポロジカル絶縁体における表面電子物性
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 H. Hamasaki, Y. Tokumoto, and K. Edagawa
2. 発表標題 Dislocation conductivity measurements in micrometer-sized Bi-Sb topological insulators
3. 学会等名 NTTI (New Trends in Topological Insulators) 2019 and BEC (Variety and Universality of Bulk-edge Correspondence in Topological Phases) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Hattori, Y. Tokumoto, and K. Edagawa
2. 発表標題 Direct observation of Se ordering in Pb-based topological insulators
3. 学会等名 NTTI (New Trends in Topological Insulators) 2019 and BEC (Variety and Universality of Bulk-edge Correspondence in Topological Phases) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Tokumoto, H. Hamasaki, and K. Edagawa
2. 発表標題 Electrical conduction along dislocations in topological insulators
3. 学会等名 30th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-30) (国際学会)
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, 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 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 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 Y. Tokumoto, K. Sugimoto, and K. Edagawa
2. 発表標題 Achieving bulk-insulating states in Pb(Bi,Sb) ₂ (Te,Se) ₄ topological insulator
3. 学会等名 31st International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-31) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 徳本有紀, 杉本恭一, 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伝導特性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京大学 生産技術研究所 物質・環境系部門 徳本研究室 http://www.tokumoto.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
---------	---------