

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14660

研究課題名（和文）圧力下のPbTeにおけるトポロジカル電子相実現の実証とその物性解明

研究課題名（英文）Realization of topological electronic state in pressurized PbTe and investigation of the physical properties

研究代表者

秋葉 和人 (Akiba, Kazuto)

岡山大学・自然科学学域・助教

研究者番号：60824026

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、圧力によって電子構造を系統的に制御できる物質に着目し、Diracフェルミオンが示す物性解明に関する研究を行った。PbTeに関しては圧力下量子振動測定を行い、2 GPa付近でバンドギャップが零となりDirac電子系が実現していることを示唆する結果を得た。また圧力下における電子状態を決定するためのツールとして、最大圧力4 GPaを印加しながら磁場中磁気輸送特性を測定可能な圧力セル回転機構を開発した。これをLaAgSb₂に適用することで、圧力下でSb正方格子由来のDirac的な線形分散を持つFermi面がCDWの崩壊と同時に出現し、輸送特性に支配的寄与をもたらすことを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年Diracフェルミオンを有するトポロジカル物質の新奇物性が高い関心を集めているが、候補物質の多くは一般に複雑なバンド構造を持ち、Diracフェルミオン固有の振る舞いを見極めるのが困難であった。その中で本研究では、PbTeおよびLaAgSb₂が単純な電子構造を持ちながら、圧力によってこれを系統的に制御できる理想的な舞台となることを示した。また本研究で開発した圧力セルの回転機構は、常圧に比べ得られる情報量が格段に不足する圧力下において、電子状態を決定する強力なツールとなることをLaAgSb₂への適用例で示した。今後広くさまざまな物質に対して応用が期待できる技術と言える。

研究成果の概要（英文）：We aimed to clarify the physical properties of Dirac fermion by investigating several model materials, whose band structure is systematically controlled by external pressure. We measured the quantum oscillation of PbTe under pressure and obtained a suggestive result for realizing an ideal Dirac electron system at around 2 GPa. Besides, we developed a mechanical rotator for our pressure cell, which makes it possible to perform magneto-transport measurements up to 4 GPa under rotating magnetic field. We applied this technique to LaAgSb₂ and showed that the Dirac-like band originating from the Sb square net structure significantly contribute to the transport properties after the collapse of a CDW under pressure.

研究分野：極限環境物理学

キーワード：Diracフェルミオン トポロジカル電子相 高圧力 磁気抵抗 量子振動 磁場方向依存性

1. 研究開始当初の背景

近年、Dirac フェルミオンが物性を担うトポロジカル電子相が注目されている。相対論的運動方程式に従う Dirac フェルミオンは波数空間においてエネルギーギャップのない線形のエネルギー分散を持ち、質量を持たない高易動度のキャリアとして振る舞う。Dirac フェルミオンが固体中で示すマクロ物性は、光速に近い速度を持った素粒子の挙動と関連することからも関心が持たれている。

これまでトポロジカル電子相を特徴づける線形のエネルギー分散の存在が多くの物質において指摘されており、興味深いマクロ物性が数多く報告されている。その例として、線形分散の存在に由来する飽和しない横磁気抵抗、カイラル量子異常に由来する負の縦磁気抵抗、Berry 位相の存在に由来する量子振動の位相シフトなどが挙げられる。しかし飽和しない横磁気抵抗や負の縦磁気抵抗は、測定端子の配置や不純物などの外因的な要素によっても生じる可能性が指摘されており、トポロジカル電子相に固有であるかは検証を要する。また量子振動の位相シフトは複数のキャリアが混在する場合に解析が困難となり、同一物質でもグループによって異なる解析結果が報告されるなどの混乱が見られる。

トポロジカル電子相の物性を解明するためには、バンドトポロジーのみを外部パラメータで制御して同一物質内で複数の電子状態を実現し、その比較検討からトポロジカル電子相に固有の振る舞いのみを抽出できることが理想である。しかしそのような都合の良い性質を持ち合わせた系は極めて限定的であると言える。

2. 研究の目的

そこで本研究では、「Dirac フェルミオンに固有のマクロ物性とは何か？」という学術的問いを解決すべく、特に圧力によって電子構造を系統的に制御できる可能性のある物質に着目して研究を行った。対象物質としては研究開始当初から想定していた PbTe のほか、研究過程において層状金属間化合物 LaAgSb₂ も加えた。

PbTe は常圧で Brillouin ゾーンの L 点に直接型ギャップを持ち、低温で 10¹⁷⁻¹⁸cm⁻³ 程度のキャリア数を持つ縮退半導体である。先行研究において圧力印加によりバンドギャップは小さくなり、ちょうどゼロになるところで Dirac フェルミオンがバルク物性を担う 3 次元 Dirac 電子系、それ以上の圧力で表面にのみ Dirac フェルミオンが存在するトポロジカル結晶絶縁体と呼ばれる 2 つのトポロジカル電子相実現の可能性が提案されている。そのため圧力によって電子状態を変化させ、各相の物性測定とそれらの比較から、Dirac フェルミオン固有の振る舞いを明らかにしようと考えた。

また LaAgSb₂ は常圧において 210K および 190K で逐次的な CDW 転移を示すことが知られる。理論計算および光電子分光の先行研究によって、Sb 正方格子の p 軌道に由来するバンドが広いエネルギー範囲にわたって Dirac 的な線形分散を有することが示唆されている。ただしこのバンドは転移温度 210 K を持つ CDW1 のネスティングに関与していると考えられており、したがって常圧ではこの Dirac 的バンドの一部が CDW のネスティングにより消失していると考えられる。そのため仮に圧力などの外部パラメータによって CDW が存在しない状態を実現できれば、Dirac フェルミオンの特性を顕在化できるのではないかと期待した。

3. 研究の方法

PbTe 単結晶に関しては大阪大学の花咲グループおよび鷹岡准教授より提供を受けたものを用いた。また LaAgSb₂ は申請者自身が Sb セルフフラックス法により合成したものを使用した。

圧力環境としては約 4 GPa までの範囲をインデンター型圧力セル、それ以上の範囲を対向アンビル型圧力セルを用いて実現した。磁場環境は所属研究室が所有する複数の超伝導マグネットを用いて最大 12 T を実現した。低温環境については 1.5 K までの範囲を He フロー式温度可変クライオスタット、50 mK までの範囲を希釈冷凍機によって実現した。

測定した物理量は主に電気抵抗、Hall 抵抗、およびそれに現れる Shubnikov-de Haas (SdH) 振動である。また圧力下でこれらの磁場方向依存性を明らかにするために、以下に述べるように温度可変クライオスタット内で圧力セルを一軸回転可能な機構を自作し、それを応用した測定も行った。

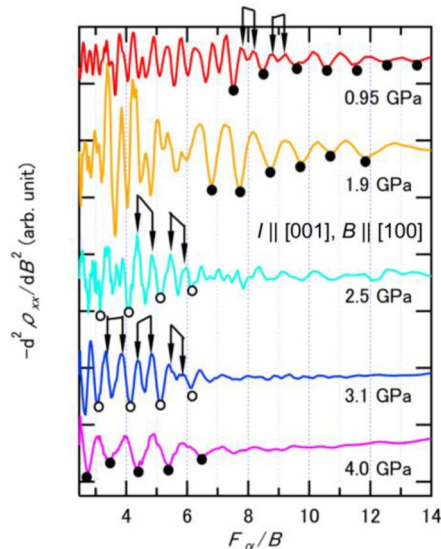


図 1: PbTe の圧力下量子振動。黒丸および白丸はそれぞれ横軸の半整数値および整数値に位置する深い谷を表す。F は量子振動の基本振動数を表す。

4. 研究成果

PbTe の圧力下物性と圧力セル回転機構の開発

PbTe に関して、申請者らがバンドトポロジの定量的指標として着目している Zeeman エネルギーとサイクロトロンエネルギーの比 (ZC 比) の圧力依存性を解明するために、圧力下の量子振動測定を進めた。まず対向アンビル型圧力セルを用いた磁気抵抗測定を行った。その結果、加圧に従って SdH 振動の構造が変化し、2 GPa 付近で位相が反転する振る舞いが見られた (図 1)。これは ZC 比が 1 となる際に予想される振る舞いであり、2 GPa 付近でバンドギャップが零となっていることを示唆する結果と言える。その後、より細かく圧力を制御して ZC 比の圧力依存性の詳細を明らかにするために、インデンター型圧力セルによる同様の実験を行った。しかしその際、量子振動が常圧から 4 GPa 付近まで変化せず、ZC 比が変化しないケースがあることが確認された。これらの実験では圧力セルが異なるものの共通の圧力媒体を用いており、Hall 抵抗から求められたキャリア数にもほとんど違いがないことが分かっている。この振る舞いに関して本事業の期間内で原因を同定することができなかったが、今後検討を継続したいと考えている。

このために当初予定していた圧力セルの回転機構を用いた ZC 比の磁場方向依存性の解明までは至らなかったが、圧力セルの回転機構自体はこれまで実現例があまり知られていない上、本系以外への応用可能性も広く期待できるため開発を続行した (図 2)。主要部品は真鍮製であり、マグネット上部から磁場中心付近まで通したドライブシャフトの回転をギアによって伝達し、インデンターセルが装着されたホルダーを一軸回転する機構である。完成した回転機構はセルを搭載した状態かつ液体ヘリウム減圧下の 1.5 K で滑らかに動作し、ホルダーに設置した Hall 素子の抵抗測定によって 360 度近く連続回転できることを確認した。本事業期間内で、最大圧力 4 GPa、最大磁場 16 T、最低温度 1.5 K の一軸回転機構とそれを用いた抵抗測定技術をほぼ確立させることができたため、今後はより低温での測定や自動測定に対応するような改良を進めたいと考えている。また申請者はこれを以下に述べる LaAgSb₂ に適用し、輸送現象の磁場方向依存性が圧力下の電子状態を決定する上で強力なツールになり得ることを示した。

LaAgSb₂ の圧力下物性

LaAgSb₂ に関しては、まず Sb セルフフラックス法による合成を試みた。得られた結晶は明瞭な Laue パターンを示し、構造解析の結果は先行研究とよく整合するものであった。また常圧の電気抵抗の温度依存性では転移温度 210 K を持つ CDW1、および転移温度 190 K を持つ CDW2 への転移に対応する明確な異常が見られ、残留抵抗比 RRR は最大 100 を達成した。このことから十分に良質な単結晶が得られているものと判断できる。次にこの物質の温度圧力相図と電子状態を解明するため、圧力下電気抵抗測定を行った。その結果 2 つの CDW 転移温度は圧力にほぼ比例して低下し、それぞれの臨界圧力が $P_{CDW1}=3.2$ GPa、 $P_{CDW2}=1.7$ GPa 付近にあることを明らかにした (図 3a)。これらの臨界圧力を境に SdH 振動のパターンは明確に変化し、CDW の崩壊に伴う Fermi 面の劇的な変化を捉えることに成功した。また 3.2 GPa の通常金属相への転移を境に、9 T における Hall 抵抗が常圧の 1/8 にまで急激に減少すると同時に、磁気抵抗の顕著な磁場方向依存性 (図 3b) が現れることが分かった。この磁気抵抗の角度依存性は極表示で表すと蝶々型の特徴的な紋様を呈し、他の正方格子構造を有する系で "butterfly magnetoresistance" と呼ばれて Dirac フェルミオンとの関連が議論されている現象と類似している。これらの起源を明確にするために、申請者は圧力下のバンド計算で得られた Fermi 面を基に磁場中電気伝導の数値計算を行った。その結果、通常金属相における Hall 抵抗の急減はネスティングに寄与していた Dirac 的なバンドの出現として理解できることを定量的に示した。また数値計算により得られた磁気抵抗の磁場方向依存性は実験で見られた特徴を大まかに再現することを示した (図 3c)。このことは butterfly magnetoresistance がバンドトポロジや Berry 位相に由来する非自明な効果というよりは、Boltzmann 方程式の範囲で理解できる Fermi 面の形状に由来する効果であることを支持している。この他にも圧力下



図 2: 本研究で開発したインデンター型圧力セルの磁場中一軸回転機構。

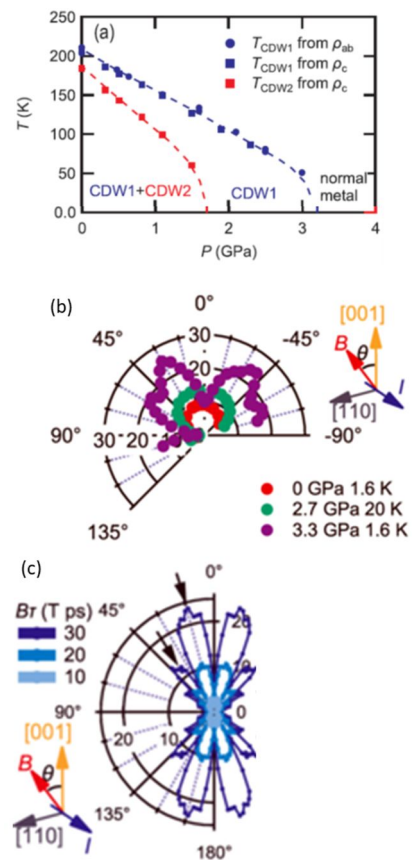


図 3: (a) LaAgSb₂ の温度圧力相図。青マーカーおよび赤マーカーがそれぞれ CDW1、CDW2 の転移温度を表す。(b) 8 T における磁気抵抗の磁場方向依存性。(c) 通常金属相の Fermi 面の形状から計算された磁気抵抗の磁場方向依存性。

の各相の SdH 振動の磁場方向依存性から、Fermi 面の形状を同定することに成功した。通常金属相における SdH 振動に対して一般的に行われているファンダイヤグラムによる位相解析を行うといゆる自明な位相を得たが、より詳細な評価は ZC 比によって行われるべきであると考えられる。本研究の磁場範囲ではスピン分裂が明確に見えないこともあり ZC 比を定量的に評価するには至らなかった。今後より強磁場における SdH 振動を明らかにすることで理解の進展が期待できる。また本系では明確な負の縦磁気抵抗効果および低温で振幅が増大する異常な SdH 振動成分が存在することも明らかにした。負の縦磁気抵抗に関して、伝導の異方性からくる外因的な current jetting の効果は本系においては小さいと予想されるため、電子構造に由来する本質的なものと考えられる。これらに関して現状起源は不明なものの Dirac フェルミオンとの関連が期待される現象と言え、今後も引き続き追及していきたいと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 秋葉 和人, 徳永 将史	4. 巻 30
2. 論文標題 高圧力・強磁場下のナローギャップ半導体における量子輸送現象	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 高圧力の科学と技術	6. 最初と最後の頁 260-273
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4131/jshpreview.30.260	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 Akiba Kazuto, Umeshita Nobuaki, Kobayashi Tatsuo C.	4. 巻 105
2. 論文標題 Magnetotransport studies of the Sb square-net compound LaAgSb ₂ under high pressure and rotating magnetic fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035108-1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.035108	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 K. Akiba, K. Kobayashi, T. C. Kobayashi, R. Koezuka, A. Miyake, J. Gouchi, Y. Uwatoko, M. Tokunaga	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnetotransport properties of tellurium under extreme conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 245111-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.245111	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 Akiba Kazuto, Nishimori Hiroaki, Umeshita Nobuaki, Kobayashi Tatsuo C.	4. 巻 103
2. 論文標題 Successive destruction of charge density wave states by pressure in LaAgSb ₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 085134-1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.085134	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 Nishimura T., Sakai H., Mori H., Akiba K., Usui H., Ochi M., Kuroki K., Miyake A., Tokunaga M., Uwatoko Y., Katayama K., Murakawa H., Hanasaki N.	4. 巻 122
2. 論文標題 Large Enhancement of Thermoelectric Efficiency Due to a Pressure-Induced Lifshitz Transition in SnSe	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 226601-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.122.226601	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 Nishihaya Shinichi, Uchida Masaki, Nakazawa Yusuke, Kurihara Ryosuke, Akiba Kazuto, Kriener Markus, Miyake Atsushi, Taguchi Yasujiro, Tokunaga Masashi, Kawasaki Masashi	4. 巻 10
2. 論文標題 Quantized surface transport in topological Dirac semimetal films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2564-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-10499-0	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 Yoshikawa T., Sumida K., Ishida Y., Chen J., Nurmatam M., Akiba K., Miyake A., Tokunaga M., Kokh K. A., Tereshchenko O. E., Shin S., Kimura A.	4. 巻 100
2. 論文標題 Bidirectional surface photovoltage on a topological insulator	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165311-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.165311	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 該当する

1. 著者名 Sato Takaaki, Akiba Kazuto, Araki Shingo, Kobayashi Tatsuo C.	4. 巻 30
2. 論文標題 Pressure-Temperature Phase Diagram of Mn	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011030-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.30.011030	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 秋葉和人・三宅厚志・徳永将史	4. 巻 54
2. 論文標題 PbTeにおける「ディラックネス」の評価	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 201-213
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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8件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 秋葉和人
2. 発表標題 磁場中・圧力下の電気伝導測定から見るトポロジカル物質の電子状態
3. 学会等名 ワークショップ (5) 「超伝導物質、トポロジカル物質」 (SCTM2021) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 秋葉和人, 梅下暢朗, 小林達生
2. 発表標題 電荷密度波物質LaAgSb2における圧力下量子輸送現象の磁場方位依存性
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会 2021年9月
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 秋葉和人, 梅下暢朗, 小林達生
2. 発表標題 圧力下のLaAgSb2における電荷密度波と超伝導の相関関係
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 (2022年)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kazuto Akiba
2. 発表標題 Magneto-transport properties of elemental semiconductor tellurium under high pressure and high magnetic field
3. 学会等名 Asian Regional High Magnetic Field Conference (ARHMF2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 秋葉和人, 西森弘顕, 梅下暢朗, 小林達生
2. 発表標題 LaAgSb2における電荷密度波の圧力温度相図と圧力下におけるFermi面の変化
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 秋葉和人, 浅田翔一郎, 小林夏野, 小林達生, 肥塚遼, 徳永将史
2. 発表標題 化学エッチングしたTeの(0001)表面における量子輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuto Akiba, Shoichiro Asada, Kaya Kobayashi, Tatsuo C. Kobayashi, Ryo Koezuka, Masashi Tokunaga
2. 発表標題 Quantum Transport Properties on Chemically Etched (0001) Surface of Tellurium
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron System 2019 (SCES2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 秋葉和人, 小林達生
2. 発表標題 電荷密度波物質LaAgSb2の压力下磁気輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Kazuto Akiba	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Springer, Singapore	5. 総ページ数 147
3. 書名 Electronic States of Narrow-Gap Semiconductors Under Multi-Extreme Conditions	

〔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
---------	---------