

令和 4 年 4 月 13 日現在

機関番号：14401
研究種目：挑戦的研究（萌芽）
研究期間：2020～2021
課題番号：20K21002
研究課題名（和文）強誘電体上へのホイスラー型ワイル半金属の薄膜実証とトポロジカル状態の電界制御

研究課題名（英文）Growth of Heusler-type Weyl semimetal thin films on ferroelectric substrates and electric-field control of topological states

研究代表者
山田 晋也（Yamada, Shinya）
大阪大学・基礎工学研究科・助教

研究者番号：30725049
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：ワイル半金属と理論予測されているホイスラー合金Ti₂MnAlの薄膜作製を試みた。薄膜作製時の元素の供給比を非化学量論組成に制御することで、膜中の組成比がほぼ化学量論組成比に制御されたTi₂MnAl薄膜の作製に成功した。しかし、ワイル半金属特有の磁気輸送特性の観測には至らず、結晶規則性の改善が鍵であることがわかった。ワイル半金属に類似したバンド構造を持つスピングャップレス系ホイスラー合金を強誘電体基板上に薄膜成長し、バンド構造に起因した磁気輸送特性の電界制御を試み、電界で磁気輸送特性を制御できる可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、これまで材料探索・物性探索が中心であった材料群に対して、それらの特徴的な電子構造に起因した物性をゲート電圧制御する新技術の開発を目指した。最終目標としていたトポロジカル物質に特徴的な磁気輸送特性の電界制御までには至らなかったが、類似したバンド構造（スピングャップレス半導体）を持つと予想されているホイスラー物質で検討を進め、電界で磁気輸送特性を制御できる可能性を見出すことができた。今後、薄膜の結晶規則性を向上し、電界でトポロジカル状態のON/OFF制御を実証できれば、新しいスピントロニクス素子への応用の芽を創出することにつながると期待される。

研究成果の概要（英文）：We attempted to fabricate thin films of a ferrimagnetic Heusler alloy, Ti₂MnAl, on ferroelectric substrates by molecular beam epitaxy, where Ti₂MnAl with an XA-ordered structure is theoretically predicted to be a Weyl semimetal. By using nonstoichiometric deposition conditions, epitaxial Ti₂MnAl films with nearly stoichiometric composition were obtained. Although we measured magnetotransport properties of the epitaxial Ti₂MnAl films, we could not observe magnetotransport properties peculiar to Weyl semimetal. From structural characterizations and magnetotransport properties, we considered that the improvement of structural ordering in the Ti₂MnAl films is necessary for observing magnetotransport properties peculiar to Weyl semimetal. For Heusler-type spin-gapless material/ferroelectric heterostructures, we presented the possibility of electric-field control of magnetotransport properties.

研究分野：電気電子材料

キーワード：ホイスラー合金 ワイル半金属 強誘電体

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピングャップレス半導体やワイル半金属などの特徴的な電子構造(ギャップレス電子構造)を有する新材料が理論提案され、高移動度に加えて、ギャップレス電子構造に起因する特異物性を電界などの外場で制御可能であることから、スピントロニクスデバイスなどの次世代デバイスの可能性を拓く材料として期待が高まっている。近年、これらの材料が、ホイスラー合金と呼ばれる規則合金材料の中でも理論的に多数予測され始めている。2018年にワイル半金属と理論予測された Ti_2MnAl [Phys. Rev. B **97**, 060406 (2018)]は、クラーク数上位の無毒元素のみで構成されており、元素戦略的に非常に有望な材料である。

研究代表者はこれまで、様々なホイスラー合金を独自の分子線エピタキシー技術で薄膜として低温合成することに成功している。最近では、フェルミ準位付近のキャリアが完全にスピン偏極しているハーフメタル特性とゼロギャップ半導体の特性を併せ持つスピングャップレス半導体と予測されているホイスラー合金の薄膜合成に挑戦し、薄膜合成の成功と特徴的な物性を示すことで世界をリードする成果を出している。さらに最近、強誘電体 BaTiO_3 上への強磁性ホイスラー合金薄膜の低温合成と磁性のゲート電圧制御に成功し始めている。もし、研究代表者の技術でワイル半金属のような新機能材料を強誘電体上へ薄膜として低温合成することができれば、単なる薄膜合成・薄膜物性の探索研究に留まらず、そのトポロジカル状態のゲート電圧制御技術を利用したデバイスレベルでの新機能発現・機能融合への道が拓かれると着想した。

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者のシーズ技術である「強誘電体 BaTiO_3 上への高スピン偏極率強磁性ホイスラー合金薄膜の低温・単結晶合成と磁性のゲート電圧制御」を基軸とし、従来のスピントロニクス技術と親和性の高いホイスラー型ワイル半金属を強誘電体上へ薄膜として作製することで、そのトポロジカル状態のゲート電圧制御を実証する。

3. 研究の方法

分子線エピタキシー(MBE)法を用いて Ti_2MnAl 薄膜を作製した。薄膜の構造評価には、反射高速電子線回折(RHEED)、X線回折(XRD)、高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡(HAADF-STEM)、エネルギー分散型X線分析(EDX)を用いた。作製した薄膜の磁気伝導特性を測定するために、フォトリソグラフィと Ar イオンミリングによりホールバー素子を作製し、4端子測定、ホール効果測定を行った。

4. 研究成果

(1) 非化学量論組成蒸着法による Ti_2MnAl 薄膜の作製

研究代表者のこれまでのホイスラー合金の薄膜作製の研究[S. Yamada *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 071601 (2014), Appl. Phys. Express **10**, 115802 (2017)]を参考に、 Ti_2MnAl 薄膜作製時の元素の供給比を非化学量論組成比(Ti : Mn : Al = 2 : 1 : 2)に設定して薄膜作製を行った。しかし、X線回折の結果から、ホイスラー型の結晶構造の形成は確認されず、薄膜の組成も化学量論組成から大きくずれていることがわかった[図 1(左)]。そこで、この結果を基に、元素の供給比を Ti : Mn : Al = 5 : 1.4 : 2 に変更して薄膜作製を行った。その結果、組成のずれの大幅な改善に成功し[図 1(右)]、結

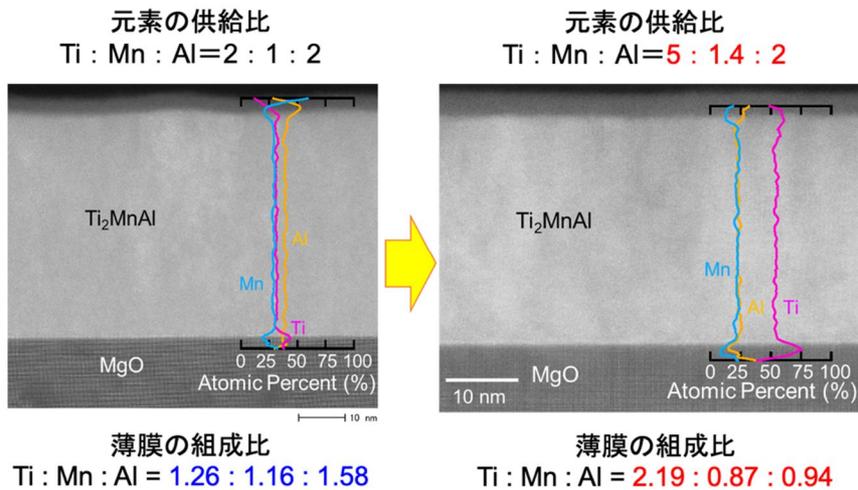


図 1. 作製した Ti_2MnAl 薄膜の高角散乱環状暗視野走査透過顕微鏡(HAADF-STEM)像とエネルギー分散型 X 線分光(EDX)測定結果．従来よりも元素の供給比を大きく変更しないと組成の制御された Ti_2MnAl 薄膜が合成できないことが判明．

晶構造もホイスラー型の結晶構造を有する Ti_2MnAl となった．しかし、磁気測定の結果、完全な磁気モーメントの消失は観測できず、低温下において常磁性体由来と思われる磁性の発現が観測された．ワイル半金属特有の現象を観測するため、電気伝導特性としてホール測定及び磁気抵抗効果の測定を行ったが、本来期待されるような大きな異常ホール伝導度、巨大な磁気抵抗比、カイラル異常由来の負の磁気抵抗比などの観測には至らなかった．これらの測定結果から、ワイル半金属特有の磁気伝導特性を観測するためには、結晶規則性の改善が重要であることがわかった．

(2) 強誘電体とのヘテロ構造を利用した磁気輸送特性の電界制御

Ti_2MnAl の薄膜作製が難しいと予想されたため、研究代表者が既に作製実績のあるスピングャッププレース半導体のホイスラー合金を強誘電体基板上に作製し、ギャップレス電子構造に起因した磁気輸送特性の電界変調を試みた．電圧で分極スイッチングが可能で且つ圧電効果も大きいことが知られている強誘電体 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ を成長基板として用いて、 $\text{CoFe}(\text{V},\text{Mn})\text{Si}$ 薄膜を成長した．フォトリソグラフィと Ar イオンミリングによりホールパー素子を作製し、4 端子測定、ホール効果測定を行った．電界印加前後で磁気伝導特性を比較したところ、磁気抵抗曲線およびホール効果曲線に僅かに変化が見られた．しかし、その変化量は小さいものであったため、今後再現性を確認する予定である．

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Usami Takamasa, Fujii Shumpei, Yamada Shinya, Shiratsuchi Yu, Kanashima Takeshi, Nakatani Ryoichi, Hamaya Kohei	4. 巻 -
2. 論文標題 Converse magnetoelectric effect in epitaxial Co ₂ MnSi/Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ multiferroic heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TMAG.2022.3145521	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 Shumpei Fujii, Takamasa Usami, Yu Shiratsuchi, Irene Azaceta, Adam Krrigan, Amran Mahfudh Yatmeidhy, Shinya Yamada, Takeshi Kanashima, Ryoichi Nakatani, Vlado K. Lazarov, Tamio Oguchi, Yoshihiro Gohda, and Kohei Hamaya	4. 巻 -
2. 論文標題 Giant converse magnetoelectric effect in a multiferroic heterostructure with polycrystalline Co ₂ FeSi	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 -
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 該当する

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Electric-field modulation of magnetotransport properties in an epitaxial Co ₂ FeSi/BaTiO ₃ interfacial multiferroic heterostructure
2. 発表標題 Shinya Yamada, Yuki Teramoto, Tomoyasu Taniyama, Kohei Hamaya
3. 学会等名 Materials Research Meeting (MRM) 2021（国際学会）
4. 発表年 2021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
---------	---------