

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654096

研究課題名(和文)トポロジカルナノリボンの作成と電子状態解析

研究課題名(英文)Fabrication and electronic-structure analysis of topological nano-ribbon

研究代表者

相馬 清吾 (Souma, Seigo)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号：20431489

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円、(間接経費) 810,000円

研究成果の概要(和文)：トポロジカル絶縁体の表面/エッジ状態について精力的な研究が行われており、これまでに多くのトポロジカル絶縁体が発見されてきたが、そのほとんどは3次元物質に限られてきた。一方で幾つかの薄膜物質において2次元トポロジカル絶縁体の発現が提案されているが、1次元エッジ状態の観測が難しく、その存在は確認されていない。本研究では、トポロジカル絶縁体の薄膜ナノリボン試料の作成と1次元エッジ状態の観測を目指し、高分解能化を達成したスピン分解 ARPES を駆使することで、トポロジカル絶縁体や関連物質の電子/スピン構造の決定に成功した。

研究成果の概要(英文)：Despite of a huge effort for searching new topological materials carrying spin-helical Dirac fermions, mostly discovered are 3D materials by observing the surface state of topological insulator with angle-resolved photoemission spectroscopy. While the 2D topological system was theoretically proposed for several thin-film systems, a realization of such materials has been limited to very few systems mainly due to the difficulty in observing 1D edge state. In this research project, we have performed high-resolution spin-resolved ARPES on several topological insulators and thin film systems in order to elucidate the expected 1D-edge state which would emerge on nano-ribbon structure with a non-trivial topological nature. We have successfully determined bulk and surface/edge electronic structure in several topological insulators and related materials.

研究分野：物性II

科研費の分科・細目：磁性

キーワード：角度分解光電子分光 トポロジカル絶縁体 界面 スピントロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

金属、絶縁体、半導体に次ぐ、第4の新しい物質として「トポロジカル絶縁体」が提唱され、大きな注目を集めている。トポロジカル絶縁体は、バルクは絶縁体であるが、表面/エッジ領域にギャップレスの金属状態が形成される物質である。この表面/エッジ状態が、量子スピンホール効果や磁気モノポール、マヨラナ準粒子など、多様な特異物性の起源になると予測されており、精力的な研究が展開されている。

トポロジカル絶縁体は HgTe を CdTe で挟んだ量子井戸において最初に提案され、ゼロ磁場下での量子スピンホール効果が実際に観測され大きな注目を集めた。その量子化コンダクタンスはエッジ領域における1次元伝導チャンネルの存在を示唆する。しかしながら、エッジ領域の電子構造を決定する事が困難であるために、1次元エッジ状態の実在について明確な証拠はない。さらに、量子スピンホール効果の直接的な起源となる特異なスピン偏極構造についても、電子スピン検出の困難さのために研究が進んでいない。HgTe の発見以降、2次元トポロジカル絶縁体の理論的な提案は幾つかあるにも関わらず、トポロジカル絶縁体特有の物性測定結果が報告がされないのは、1次元エッジ状態が確立されていない事が根本的な原因ではないかと考えられる。

### 2. 研究の目的

幾つかの薄膜物質において2次元トポロジカル絶縁体物質の発現が理論的に提案されているが、1次元エッジ状態の観測が難しいために、その実証はない。トポロジカル絶縁体に特有の物性である量子スピンホール効果の標準モデルは1次元エッジ状態であり、これを観測する事は、この物質の物性発現機構を解明する上で大変重要である。本研究では、トポロジカル絶縁体の薄膜ナノリボン試料の作成を行い、高分解能スピン分解 ARPES により1次元エッジ状態の電子・スピン構造を決定し、トポロジカルな起源を持つ量子物性の研究を行う。

### 3. 研究の方法

トポロジカル絶縁体の薄膜試料を MBE 成長により作成を行う。試料の種類に応じて、半導体基板もしくは金属基板の試料作成が行えるように、通電加熱機構とスパッタアニール機構を製作する。分子線ビームの質の向上のために、各元素に応じた専用の蒸着源を製作し膜厚計の設置・調整を行う。また、試料の作成効率を高めるため、表面超格子の回折像をモニタしながら試料のアニール条件の調整を行えるように、電子線回折装置を組み込む。試料トランスファー機構を作成し、スピン分解高分解能 ARPES 装置へ接続する。試料の電子構造をブリルアンゾーン全体の

広範囲で且つ精密に決定するため、真空中において試料基板の角度を回転することができる多軸回転マニピュレーターを製作する。また、スピン分解光電子分光の効率を向上させるため、低速電子回折を用いた新しいスピン検出器の立ち上げを行う。そのために磁性薄膜ターゲットの製作も行う。

薄膜ナノリボン構造の作成方法を確立するために、Si(111)の清浄微傾斜面の作成を行い、MBE 成長する金属元素を蒸着して、単体金属のナノリボン構造を作成する。作成したナノリボンについて、ARPES 測定によりバンド構造とフェルミ面を決定し、これらの電子構造の次元性から、薄膜リボン内部の量子井戸状態と、エッジ由来の1次元電子状態の分離を行う。単体元素物質においてトポロジカル相転移近傍にあるとされている Bi と Sb について、それぞれナノリボン試料を作成し、その1次元エッジ状態についてスピン分解 ARPES を行いトポロジカル相であるかどうかを検討する。電子構造の膜厚依存性を精密に決定し、トポロジカル相転移に関わる電子/スピン構造を実験的に見出す。また、単原子薄膜においてトポロジカル相の可能性かが理論的に提唱されれば、いち早くこれに取り組んで、電子/スピン構造の解明を行う。

### 4. 研究成果

(1) トポロジカル絶縁体の1次元エッジ状態の電子構造を解明する目的で、試料作成装置と測定装置について、通電加熱機構とスパッタアニール機構の製作を行った。さらに、試料の作成効率を高めるため、表面超格子の回折像をモニタしながら試料のアニール条件の調整を行えるように、電子線回折装置を組み込んだ。試料作製層において各元素専用の蒸着源を製作し膜厚計の設置・調整を行った。またカルコゲン蒸着用の真空槽の立ち上げも行った。MBE 装置からの試料を超高真空下で移送する機構を作成し、スピン分解高分解能 ARPES 装置へ接続した。また、スピン分解光電子分光の効率を向上させるため、低速電子回折を用いた新しいスピン検出器の設計と製作を行い、磁性薄膜ターゲットの製作用の W 基板の作成も行った。

(2) ナノリボンの製作と並行して、その母材料であるトポロジカル絶縁体の電子構造研究を行った。TIMX<sub>2</sub> トポロジカル絶縁体について、X=(S<sub>1-x</sub>Se<sub>x</sub>)の成分比 x を系統的に変化させて、バルクおよび表面電子構造を詳細に決定した結果、トポロジカル量子相転移によりディラック表面状態にギャップが形成される事を見出した。この表面状態のギャップについては、試料の壁かいによる表面欠陥や、スペクトルのブロードニングなどが原因であるとの指摘が米国の研究者から持ち上がったが、ギャップの観測

の再現性とその組成依存性、運動量分解能を変えた実験などにより、表面のギャップは本質的なものであると結論した。スピン分解 ARPES 装置による実験でギャップが空いた表面状態においても、ヘリカル型のスピン偏極を明確に観測した。トポロジカル相においてスピン偏極度は  $x=1$  から 0.5 にかけて明確な減少を示すことから、表面ディラックギャップの起源は、量子相転移特有の現象であることが示唆された（業績論文 6）。

(3) 1次元エッジ状態の観測を目的として、典型的なラシュバ系として知られる Bi 超薄膜を Si 半導体基板上に製作した。AFM 実験により Layer-by-layer 成長した Bi 薄膜の最表面には、GK 方向を辺とする三角形上のアイランドが単層膜として成長している事を見出した。高分解能 ARPES 実験により、K 点近傍のバルクギャップ内において、薄膜のバンド計算では予測されない電子バンド分散を観測した。このバンドは GK 方向には分散するが、それと直行する GM 方向には全く分散を示さない 1次元バンド分散構造を持っており、ナノリボン構造の仮定したバンド計算と良く一致することから、観測したバンドがアイランド上の 1次元エッジ状態であると結論した。さらにスピン分解 ARPES により、面内だけでなく面直方向に明確なスピン偏極度を観測することにも成功した。これは、電子状態がエッジ領域に局在している事と良く一致する。Bi 薄膜は通常のラシュバ効果とは異なる面直方向のスピン偏極を観測した。さらに Bi 薄膜の厚さを系統的に変えた実験から、Bi 薄膜と Si 基板と界面においても、Bi 表面と同様のラシュバ状態が発現する事を見出した。Bi 薄膜の成長基板としてトポロジカル絶縁体を用いた結果、Si 基板では困難であった超薄膜 (1-3BL)の Bi が成長している可能性が示唆された。以上の結果は、Si やトポロジカル絶縁体上に成長させた Bi 薄膜が、1次元エッジ状態の持つ特異な量子物性を発現する可能性を持った物質であることを示唆するものである。（業績論文 4、5）

(4)本研究に資する研究展開として、新しいトポロジカル絶縁体の探索を行う目的で、Pb 系三元カルコゲナイド  $\text{Pb}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$  単結晶 ( $x=0.0, 0.4, 1.0$ )について、高分解能 ARPES を用いて、バルクおよび表面バンド構造の決定を行った。その結果、Bi 過剰の組成 ( $x=0.0, 0.4$ )において、BZ 中心である G 点に明確なディラックコーンバンドを観測した。表面バンドは G 点のみにおいて観測された事から、この物質は 3次元の強いトポロジカル絶縁体に分類できる。さらに、バンド構造の組成 ( $x$ ) 依存性から  $\text{Pb}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$  の Sb の量を増やしていくと、

表面バンドのエネルギー位置は上へシフトし、 $x=1.0$  ではディラック点がフェルミ準位より上に位置する。以上の結果から  $\text{Pb}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$  がディラックキャリアの pn 制御に適したトポロジカル絶縁体であると結論した。（業績論文 2）

(5)エッジ状態や表面状態におけるスピン偏極度と電子構造の相関関係について理解する目的で、菱面体晶構造を持つ 3次元トポロジカル絶縁体の (111)表面において系統的な高分解能 ARPES 実験を行った。その結果、表面バンドにおいて物質の種類に強く依存した六回対称の歪みを観測した。スピン分解 ARPES 実験により、これらの表面ディラック電子状態は共通して面内ヘリカル方向のスピン偏極度を示すが、その一方で物質の種類に依存して、面直方向にも有限のスピン偏極度を示すことを見出した。数値的フィッティングにより、バンドの歪みを定量的に評価した結果、スピン面直成分とバンドの歪みには明確な相関関係がある事が分かった。また、スピン面直成分の実験値は、k-p 摂動論や第一原理計算における予測の半分程度であった。スピン面直成分の存在は、これまで面内ヘリカル構造を仮定してきた表面ディラック電子状態について、磁場との結合や準粒子の散乱過程に大きな変化を与える。以上の結果は、表面ディラック電子のスピン偏極度とバンド形状の相関関係を初めて示したものであり、基礎実験やデバイス応用などにおいて、トポロジカル絶縁体のスピンを制御する上での実験的指針を与える。（業績論文 1 2）

## 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕(計 12 件)

M. Nomura, S. Souma, A. Takayama, T. Sato, T. Takahashi, K. Eto, K. Segawa, and Y. Ando, “Relationship between Fermi-surface warping and out-of-plane spin polarization in topological insulators: A view from spin-resolved ARPES”, Phys. Rev. B, 査読有、vol. 89, 2014, 0451341-5. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.045134

T. Sato, Y. Tanaka, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, S. Sasaki, Z. Ren, A. A. Taskin, K. Segawa, and Y. Ando, “Fermiology of the Strongly Spin-Orbit Coupled Superconductor  $\text{Sn}_{1-x}\text{In}_x\text{Te}$ : Implications for Topological Superconductivity”, Phys. Rev. Lett., 査読有、vol. 110, 2013, 206804-1-5. DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.206804

Y. Tanaka, T. Shoman, K. Nakayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, M. Novak, K.

Segawa, and Y. Ando, “Two types of Dirac-cone surface states on the (111) surface of topological crystalline insulator SnTe”, Phys. Rev. B, 査読有, vol. 88, 2013, 235126-1-5.

DOI:10.1103/PhysRevB.88.235125

Y. Tanaka, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, Zhi Ren, M. Novak, K. Segawa, and Y. Ando, “Tunability of the k-space location of the Dirac cones in the topological crystalline insulator  $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ”, Phys. Rev. B, 査読有, vol. 87, 2013, 155105-1-5.

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.155105

K. Nakayama, K. Eto, Y. Tanaka, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, Kouji Segawa, and Yoichi Ando, “Manipulation of topological states and the bulk band gap using natural heterostructures of a topological insulator”, Phys. Rev. Lett., 査読有, vol. 109, 2012, 236804-1-5.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.236804

Y. Tanaka, Z. Ren, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, K. Segawa, and Y. Ando, “Experimental realization of a topological crystalline insulator in SnTe”, Nature Phys., 査読有, vol. 8, 2012, 800-803.

DOI: 10.1038/nphys2442

S. Souma, M. Komatsu, M. Nomura, T. Sato, A. Takayama, T. Takahashi, K. Eto, K. Segawa, and Y. Ando, “Spin Polarization of Gapped Dirac Surface States Near the Topological Phase Transition in  $TiBi(S_{1-x}Se_x)$ ”, Phys. Rev. Lett., 査読有, vol. 109, 2012, 186804-1-5.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.186804

A. Takayama, T. Sato, S. Souma, and T. Takahashi, “Anomalous Rashba effect of Bi(111) thin film studied by high-resolution spin-resolved ARPES”, J. Vac. Sci. Tech., 査読有, vol. 30, 2012, 04E107-1-5.

DOI: 10.1116/1.4731467

A. Takayama, T. Sato, S. Souma, T. Oguchi, and T. Takahashi, “Tunable spin polarization in bismuth ultrathin film on Si(111)”, Nano Lett., 査読有, vol. 12, 2012, 1776-1779.

DOI: 10.1021/nl2035018

Y. Tanaka, K. Nakayama, S. Souma, T. Sato, N. Xu, P. Zhang, P. Richard, H. Ding, Y. Suzuki, P. Das, K. Kadowaki, and T. Takahashi, “Evolution of electronic structure upon Cu doping in the topological insulator  $Bi_2Se_3$ ”, Phys. Rev. B, 査読有, vol. 85, 2012, 125111-1-5.

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.125111

S. Souma, M. Komatsu, M. Nomura, T. Sato, A. Takayama, T. Takahashi, K. Eto, K. Segawa, and Y. Ando, “Topological surface states in lead-based ternary telluride  $Pb(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_4$ ”, Phys. Rev. Lett., 査読有, vol. 108, 2012, 116801-1-4.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.116801

T. Arakane, T. Sato, S. Souma, K. Kosaka, K. Nakayama, M. Komatsu, T. Takahashi, Z. Ren, K. Segawa, and Y. Ando, “Tunable Dirac cone in the topological insulator  $Bi_{2-x}Sb_xTe_{3-y}Se_y$ ”, Nature Commun., 査読有, vol. 3, 2012, 636-1-5.

DOI: 10.1038/ncomms1639

#### [学会発表](計 8件)

「Spin-helical Dirac-cone surface states of 3D topological materials」, Seigo Souma, AIMR/UCL Materials Workshop, London, UK, 2013/11/21-22, 招待講演

「トポロジカル絶縁体新物質と吸着成長した金属薄膜の高分解能 ARPES」, 相馬清吾, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島, 2013/9/25-28, 招待講演

「トポロジカル絶縁体の高分解能 ARPES」, 相馬清吾, 平成 25 年度筑波大-KEK 連携推進事業研究会, つくば, 2013/3/2, 招待講演

「スピン分解 ARPES によるディラック電子系の研究」, 相馬清吾, 金研 CMRI シンポジウム, 仙台, 2013/1/21-22, 招待講演

「放射光を用いたトポロジカル絶縁体の高分解能 ARPES」, 相馬清吾, 高エネ研 CMRC 研究会, つくば, 2012/12/7, 招待講演

“Spin-resolved ARPES on topological insulators”, AIMR workshop “Topological Functional Materials and Devices”, Seigo Souma, AIMR, Sendai, 2012/12/1, 招待講演

「スピン分解 ARPES によるトポロジカル絶縁体の電子構造の研究」, 相馬清吾, 東大物性研短期研究会”極限コヒーレント光科学研究センター-(LASOR)発足記念ワークショップ”, 柏市, 2012/11/29, 招待講演

「スピン分解光電子分光によるスピントロニクス研究の新展開」, 相馬清吾, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜, 2012/9/24-27, 招待講演

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

相馬 清吾 (SOUMA, Seigo)  
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構  
研究者番号：20431489

### (2) 研究分担者

なし ( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

なし ( )

研究者番号：