

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 26 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760547

研究課題名(和文) ホイスラー型結晶構造を持つ新規トポロジカル絶縁体薄膜の創製

研究課題名(英文) Fabrication and characterization of novel Heusler-type topological insulator thin films

研究代表者

宮脇 哲也 (Miyawaki, Tetsuya)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：10596844

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：トポロジカル絶縁体と予測されているホイスラー型結晶構造を持つLaPtBi薄膜のエピタキシャル成長方法の確立と、光電子分光法や電気伝導測定などによる物性解明を目的として研究を行った。高規則度LaPtBiエピタキシャル薄膜の成長方法を確立することが出来た。紫外光電子分光により第一原理計算結果とおおむね一致する価電子帯スペクトルが得られた。磁気抵抗効果などの電気伝導測定から、線形なバンド分散および高移動度キャリアの存在が示唆された。これらの成果は、ホイスラー合金LaPtBiがトポロジカル絶縁体の有力な候補であることをはじめて実験的に示したものである。

研究成果の概要(英文)：Some half-Heusler alloys were predicted to act as topological insulators (TIs). Thin films of half-Heusler TIs are desired as the surface states are expected to arise by introducing uniaxial lattice distortion which opens a gap at the Fermi energy. Great care should be taken to the order/disorder structures to obtain the expected properties in half-Heusler thin films, since the disorder structures lead significant changes of the valence band electronic structures. In this research, epitaxial half-Heusler LaPtBi thin films with high order parameter were successfully grown on single crystalline substrate. Valence band ultraviolet photoelectron spectra exhibited clear structures that are in good agreement with the calculated band structure of half-Heusler LaPtBi. The sample with high order parameter of 0.94 exhibits the low carrier density and the high mobility. The obtained LaPtBi thin films are potential candidates for applications for topological insulator devices.

研究分野：材料工学

科研費の分科・細目：無機材料・物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 ホイスラー合金

1. 研究開始当初の背景

近年、トポロジカル絶縁体が大きな注目を集めている。3次元トポロジカル絶縁体は、バルクはバンドギャップを持つ絶縁体であるが、金属的な表面(二次元伝導層)を持っており、通常の絶縁体や金属とはまったく異なった物理的特徴を持っている。この表面二次元伝導層の中では時間反転対称性が守られるため、運動量に依存したスピン偏極を持つ高移動度の電子が存在する。そのため、トポロジカル絶縁体は将来のスピン트로ニクスデバイスなどへの応用が期待されている。しかし、これまでにトポロジカル絶縁体であると実証されたのは、Bi₂Se₃など限られた物質にとどまっており、応用の観点からはデバイス設計の自由度がほとんどないという課題がある。一方、最近、BiやPtなどの比較的重い元素を含む数十種類のハーフホイスラー合金がトポロジカル絶縁体になる可能性が報告された。ホイスラー型トポロジカル絶縁体の特徴は、バンド構造や格子定数を元素の種類によって変化させることが可能なことであり、トポロジカル絶縁体を用いたデバイスにおいて、バンド構造を自在に設計できるなどの利点を持っている。すでにいくつかのハーフホイスラー合金では、バルク多結晶試料で光電子分光によりゼロギャップ半導体的なバンド構造が観測されているが、トポロジカル絶縁体であるとの実証までは到達していない。

2. 研究の目的

トポロジカル絶縁体と予測されているホイスラー合金はゼロギャップ半導体であり、歪の導入によってギャップが開くことで表面の二次元伝導層が実現すると予測されている。したがって、バルクではなく薄膜を、適切なミスマッチを持つ基板の上にエピタキシャル成長させることで格子歪を導入する方法が有効である。また、トポロジカル絶縁体と強磁性体の接合界面では、交換結合により電気磁気効果(ME効果)が発現すると予測されており、新たな電界による磁化状態の制御方法として期待される。これは、すでに実現されている電流誘起磁化反転やマルチフェロイック材料におけるME効果と比較して、(1)電圧駆動のため省電力、(2)歪の伝達を伴わないので基板からの拘束による効率の低下がない、などの点で有利である。以上のように、ホイスラー型トポロジカル絶縁体は、基礎物性探索と応用の両面から非常に興味深い物質であると言えるが、これまでに実現された例はない。そこで本研究では、ホイスラー型トポロジカル絶縁体を実現するために重要な要素を明らかにし、ホイスラー型トポロジカル絶縁体の表面状態の物性解明することを目的とする。

3. 研究の方法

ホイスラー型トポロジカル絶縁体のエピ

タキシャル成長方法の確立と、角度分解光電子分光法(ARPES)による電子構造の解明を行う。特に、格子歪と電子構造の相関に着目する。LaPtBiの各サイトを他の元素と置換することで、また様々な単結晶基板を用いることで、様々な格子歪の大きさを持つエピタキシャル薄膜を作製し、ARPESにより電子構造を明らかにする。

(2)磁気抵抗測定などを用いた表面状態の電気伝導特性の解明を行う。トポロジカル絶縁体で理論的に予測されている電気磁気効果などの興味深い現象の実現には、二次元表面状態の伝導特性を明らかにすることが不可欠である。磁気抵抗効果の観測により得られた知見と(1)で述べたARPESによる観測を総合して、ホイスラー型トポロジカル絶縁体における表面状態の特徴を明らかにする。

4. 研究成果

Fig. 1(a)に成長温度 $T_s = 275 \sim 450$ の範囲で変化させて YAlO₃(001) 基板上に作製した LaPtBi 薄膜の XRD パターンを示す。 $T_s = 275$ という低温でも(001)配向が確認され、全てにおいて(001)単一成長していた。 LaPtBi と YAlO₃ 基板のエピタキシャル関係を調べるために、4軸 XRD により面内方向に測定を行った。 Fig. 3-15(a)に $T_s = 300$ で作製した LaPtBi 薄膜の(220)ピークにおける面内 ϕ スキャンを測定した結果を示す。 YAlO₃(001)[100]//LaPtBi(001)[100] という方位関係を持ってエピタキシャルに成長していることが分かった。 また、 Fig.2 に示すように、C面サファイア基板には面直歩行に(111)配向した LaPtBi 薄膜が成長することが分かった。 本研究により、初めて LaPtBi

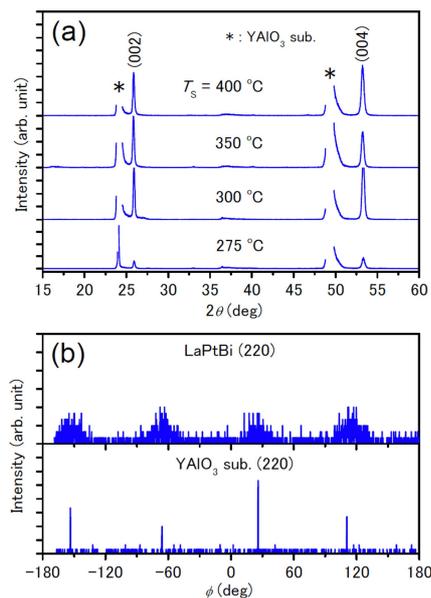


Fig. 1(a) YAlO₃(001) 基板上に作製した LaPtBi 薄膜の基板温度依存性。(b) LaPtBi(220)ピークの面内 ϕ スキャンの XRD パターン。

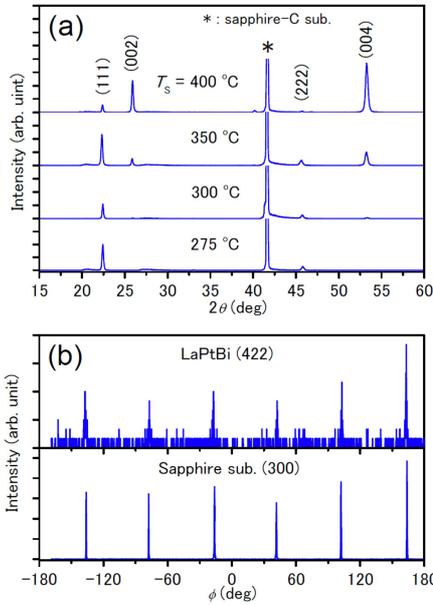


Fig. 2 (a) C面サファイア 基板に作製したLaPtBi 薄膜の基板温度依存性。(b) LaPtBi(422)ピークの面内φ スキャンのXRD パターン。

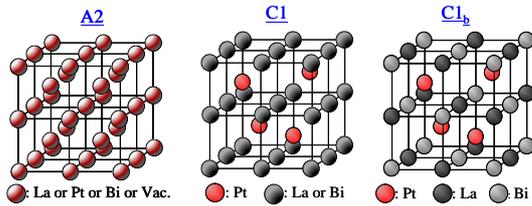


Fig. 3 ハーフヘイスラー型LaPtBiの規則/不規則構造。

薄膜のエピタキシャル薄膜の作製に成功するとともに、適切な基板を選択することで成長方位を制御できることが分かった。

ハーフヘイスラー合金である LaPtBi はいくつかの不規則構造をとる可能性があり (Fig.3)、電子構造は規則度に大きく影響されると予想される。Fig. 4 は(002)、(111)単一配向膜における C1 規則度とキャリア濃度の関係である。LaPtBi のバルクはキャリア濃度が $6.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と報告がされており、本研究で作製した C1 規則度~ 0.7 の(002)配向膜ではそれよりも約 2 桁高い値を示している。しかし、(111)と(002)でキャリア濃度の違いはあるものの、どちらの成長方位においても C1 規則度の向上に対してキャリア濃度が減少傾向を示す事が分かった。

Fig. 5 に C1 規則度の異なる LaPtBi エピタキシャル薄膜の紫外光電子スペクトルを示す。C1 規則度によって Pt に由来する価電子帯スペクトルが変化し、C1 規則度が高い方がシャープ形状を示した。また、C1 規則度 0.72 程度の(001)LaPtBi では価電子帯バ

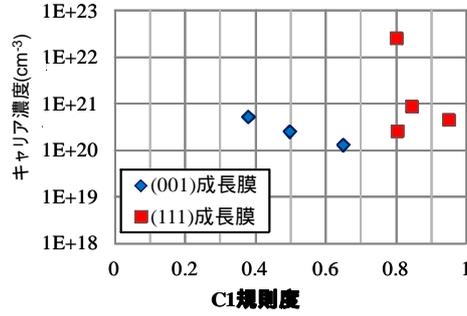


Fig. 4 C1規則度とキャリア濃度の関係。

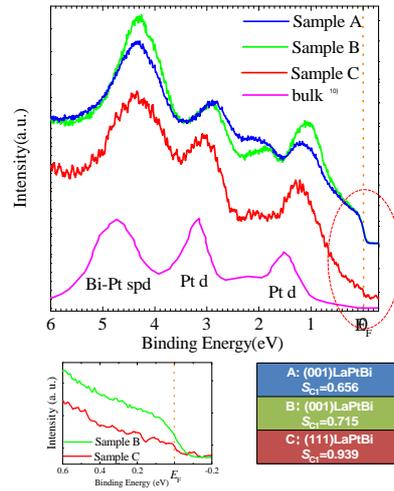


Fig. 5 C1規則度の異なるLaPtBiエピタキシャル薄膜の紫外光電子スペクトル。

ンドがフェルミエネルギー(E_F)を越えて交差するので E_F において価電子帯スペクトルの立ち上がりが存在しており、C1 規則度 0.94 程度の(111)LaPtBi では E_F での立ち上がりは小さくなった。このようなスペクトルの変化は、Fig. 4 で示したキャリア濃度の規則度依存性とよく対応しており、C1 規則度、つまり Pt サイトの規則化がフェルミエネルギー付近の電子構造に重要な役割を果たしていることが明らかになった。

一般に磁気抵抗は、ローレンツ力により 2 次曲線の挙動を示すが、全ての電子が最低ランダウ準位を占有している場合には線形なバンド分散に由来する線形磁気抵抗になると考えられている。Fig. 5 で示した試料 A, B, C について磁気抵抗曲線を測定した結果、 $MR = a|B| + bB^2$ という曲線でフィッティングできることが分かった。しかも、C1 規則度と線形成分 a の割合には比例関係があり、C1 規則度が向上すると、a が増加することが分かった。これは、C1 規則度が 0.94 の薄膜では光電子スペクトルにおいて E_F 付近での立ち上がりが小さく、 E_F 付近で準線形的な挙動を示していることと対応している

と考えられる。

以上のことから、本研究では LaPtBi 薄膜がトポロジカル絶縁体であるとの実証には至らなかったが、初めて LaPtBi 薄膜のエピタキシャル成長に成功し、光電子分光および磁気抵抗測定よりフェルミエネルギー付近において線形なバンド分散が存在することを示唆する結果が得られたことから、LaPtBi 薄膜がトポロジカル絶縁体の有力な候補であることを示した。

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7件)

- [1] T. Miyawaki, M. Foerster, S. Finizio *et al.*, “The effect of magnetocrystalline anisotropy on the domain structure of patterned Fe₂CrSi Heusler alloy thin films”, *J. Appl. Phys.* **114**, 073905 (2013).
DOI:10.1063/1.4818800
- [2] N. Fukatani, K. Inagaki, T. Miyawaki, K. Ueda, H. Asano, “Structural and magnetic properties in Heusler-type ferromagnet/antiferromagnet bilayers”, *J. Appl. Phys.* **113**, 17C103 (2013).
DOI: 10.1063/1.4794133
- [3] S. Finizio, M. Foerster, C. A. F. Vaz, C. Mix, M. Mawass, A. Tkach, M. Kläui, M. Buzzi, F. Nolting, T. Miyawaki, *et al.*, “Electrical-field control of magnetism mediated by strain in Ni nanostructures fabricated on pre-poled PMN-PT(011)”, *SPIN* **3**, 1340008 (2013).
DOI: 10.1142/S2010324713400080

[学会発表](計10件)

- [1] N. Fukatani, K. Inagaki, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Structural and magnetic properties in Heusler-type ferromagnet/antiferromagnet bilayers”, 12th Joint MMM/Intermag Conference, Chicago, Jan.14-18, (2013).
- [2] N. Sugimoto, Y. Niimi, T. Miyawaki, T. Yoshihara, N. Fukatani, K. Ueda, N. Tanaka, and H. Asano, “Structural and electrical properties of (111) oriented half-Heusler LaPtBi thin films”, The 19th International Conference on Magnetism with SCES (ICM). Busan, Jul.8-13, (2012).

6 . 研究組織

(1)研究代表者

宮脇哲也 (MIYAWAKI, Tetsuya)

名古屋大学大学院工学研究科・助教

研究者番号：10596844