

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 8 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400335

研究課題名(和文) サイクロトロン共鳴によるトポロジカル絶縁体のディラック錐の電子状態の解明

研究課題名(英文) Cyclotron resonance study of Dirac electron state in topological insulator

研究代表者

大久保 晋 (Okubo, Susumu)

神戸大学・分子フォトサイエンス研究センター・准教授

研究者番号：80283901

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：バルクではギャップが開いている絶縁体で、表面ではギャップが閉じて金属状態が現れるトポロジカル絶縁体のエネルギー分散を透過光法のサイクロトロン共鳴により調べることを目的とする。本研究では高感度化をはかった光路を短縮化したクライオスタットとS/N向上のための高分解能デジタルストレージオシロスコープを導入し、高感度サイクロトロン共鳴装置を新規に作製した。この結果、感度は従来の20倍に引き上げられた。第2世代トポロジカル絶縁体のテラヘルツ領域におけるサイクロトロン共鳴測定を試みた。試料由来と考えられるサイクロトロン共鳴の信号の検出に成功したが、高周波数で感度低下のため $v_F$ の決定には至らなかった。

研究成果の概要(英文)：Recently topological insulator as a peculiar surface state is proposed theoretically. Although bulk state is insulator due to existence of a energy gap between valence and conduction bands, metal state realized in surface due to close energy gap. Aim of this study is direct measurements of Dirac electron state in topological insulator, which was considered that surface electrons have linear dispersion of energy, by cyclotron resonance of transmission method. For this purpose, we developed a high sensitive measurement system using a short length cryostat and a high resolution acquisition digital storage oscilloscope. Developed system becomes 20 times higher sensitivity than precedent system. Cyclotron resonance measurements of bundled thin films of topological insulator  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  have been performed. Intrinsic signals of cyclotron resonance were observed in low frequency region. However, we cannot estimate the Fermi velocity due to lack of sensitivity in high frequency region.

研究分野：強磁場物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 サイクロトロン共鳴 高周波数 強磁場 フェルミ面 ディラック電子状態

1. 研究開始当初の背景

トポロジカル絶縁体は 2005 年に Kane と Mele によって理論的に提唱された、中身(バルク)はエネルギーギャップが開いていて絶縁体であるが、表面(エッジ)ではギャップが閉じて金属状態が現れるという新しい量子状態である。通常の絶縁体ではエッジ状態が伝導帯から出て伝導帯に戻るのに対して、トポロジカル絶縁体では価電子帯と伝導帯を繋ぐようにエッジ状態が存在するため価電子帯と真空中で電子の波動関数のパリティが反転し、ギャップが開いていた絶縁体(バルク)から表面(エッジ)ではギャップが閉じて金属状態になる。この奇妙な表面状態を持つため、特殊なスピン偏極を持ちエネルギー散逸の無いスピン流を生み出せることや、この特殊な表面での超伝導はマヨナラ粒子になるなど理論的に予測され、新概念の固体物質として世界的に研究が活発に行われている。近年急速に研究が進んでいるトポロジカル絶縁体は、当初示された 2 次元系のものから 3 次元系のものへと進んでおり、時間反転対称でスピン-軌道相互作用が強い系で実現するとされているため、Bi 化合物がトポロジカル絶縁体の候補物質としてあげられている。トポロジカル絶縁体の表面の電子状態は、ギャップレス点近傍のエネルギー分散が図 1 の様な線形なディラック状態を持つが、グラフェンとは異なりアップスピンとダウンスピンが縮退していないと理論的に予想されている。実験的にはフェルミ面の分散の形状ならびに、ラウンダウ準位の磁場依存性について、角度分解光電子分光 (ARPES) や走査型トンネル顕微鏡 (STM) で示唆されている。しかしながら、ギャップレス点がフェルミ面に無いことや、いずれも磁場ゼロあるいはごく低磁場の測定しか行われておらず、その磁場依存性の議論は十分とは言えない状態である。

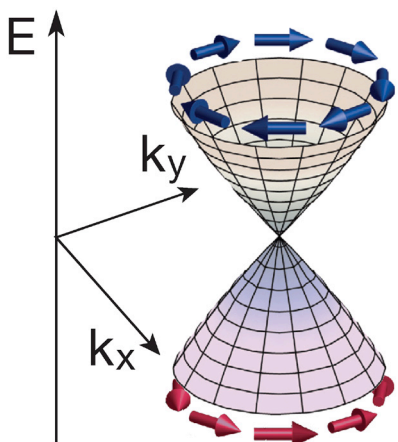


図 1 : 表面状態のエネルギー分散。矢印は 2 次元ディラック錐上のスピンの向きを表す。

2. 研究の目的

本研究では、フェルミ面の精密測定ができるサイクロトロン共鳴を用いて、トポロジカル絶縁体のフェルミ面近傍のエネルギー分散が線形であることを実験的に直接的に示すこと、ディラック電子状態のフェルミ速度を高精度に決定することを目的に、トポロジカル絶縁体のテラヘルツ領域におけるサイクロトロン共鳴を行った。サイクロトロン共鳴は、磁場中の電子のサイクロトロン運動と外部から与えられる電磁波との相互作用による共鳴である。サイクロトロン共鳴から得られる電子の有効質量は、ド・ハース-ファン・アルフェン振動による測定よりもより直接的に決定されるもので、この有効質量からフェルミ面のエネルギー分散を直接的に決定することができる。トポロジカル絶縁体の表面電子のエネルギー分散は線形と予想されることから周波数-共鳴磁場の依存性は、 $\nu \propto \sqrt{B}$  と予想される。これを直接観測するためには幅広い周波数-磁場領域での観測が必要不可欠となる。サイクロトロン共鳴を行うには共振器を用いた方法などがあるが、これまでにトポロジカル絶縁体の表面電子のサイクロトロン共鳴は観測された報告例がないので、テラヘルツ領域に至る幅広い周波数のサーベイ測定が可能な透過光法のサイクロトロン共鳴測定を行い、線形分散を直接的に観測することを目標とする。

3. 研究の方法

一般的な三次元の金属や半導体のエネルギー (E) - 運動量 (k) の分散関係は、

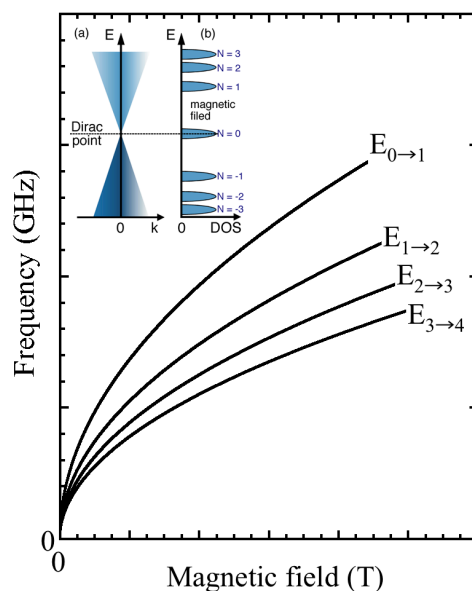


図 2 : (挿入図)エネルギー-運動量の分散関係、磁場中におけるランダウ準位。線形分散関係を持つディラック電子のサイクロトロン共鳴の周波数-磁場依存性 ( $\nu \propto B^{1/2}$ )

$E = \hbar^2 k^2 / 2m^*$  となるため磁場中のランダウ準位は磁場に比例して等間隔となり、サイクロトロン共鳴は入射電磁波の周波数 ( $\nu$ ) と磁場 ( $B$ ) が比例関係の  $\nu = eB / 2\pi m^*$  となる。しかし、ディラック電子系では、図2の挿入図(a)のような  $E = \pm \hbar v_F k$  の線形分散となるため、ランダウ準位は  $E_n = v_F \sqrt{2e\hbar n B}$  と分裂し (挿入図(b))、サイクロトロン共鳴は図2のような  $B^{1/2}$  依存性を持つことになる。これを直接的に観測し、ディラック電子系が実現していることを示すのが目標である。

これまでに透過光法の電子スピン共鳴をテラヘルツ領域で行っており、30GHz から3000GHzまでの周波数の光源としてGunn発振器、BWO、FIR レーザーを備えている。また55Tまでの磁場を発生させることができるパルス磁石と電源であるコンデンサーバンクを有している。研究の始めに、現有する透過光法の共鳴装置を用いて、サイクロトロン共鳴の観測を試みた。

対象とするトポロジカル絶縁体は、現在広く研究が進められている第2世代トポロジカル絶縁体である  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  をターゲットとし、研究協力者である笹川崇男氏によって作製された純良単結晶試料を用いる。これはゾーンメルト法を改良した方法で作製され、伝導測定によって最適な組成比の部分の部分を切り出したものを用いた (図3 (a))。

さらに、表面電子のサイクロトロン共鳴の観測のために、以下に述べる2つの方法により信号強度向上をはかった。

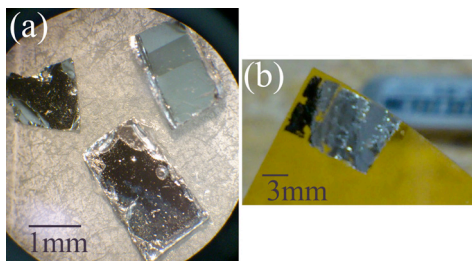


図3 : (a)  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  純良単結晶試料。 (b) 200  $\mu\text{m}$  厚の薄膜  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  純良単結晶

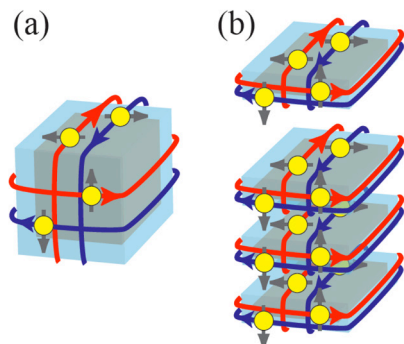


図4 : (a) バルク結晶では表面よりバルクの体積が大きく、バルクキャリアによる寄与が大きい。(b) 薄膜を積層することで表面の寄与が増大する。

1) バルクより表面を増やすために、試料を薄膜化し表面による寄与を増大させる。これは、図4に示すようにバルク結晶ではバルク体積が大きいためバルクの寄与が大きく (図4 (a))、表面電子によるサイクロトロン共鳴の吸収は弱いので、試料を薄膜にすることにより実効的に表面を増やす (図4 (b)) ことでディラック電子状態のサイクロトロン共鳴を検出するものである。

2) 新型の透過光法の共鳴装置の作製。現有する透過光法の磁気共鳴装置では光源から試料を透過し検出器までの光路が長いこと、透過光強度が失われている。表面電子のサイクロトロン共鳴は共鳴に寄与する電子数が少ないため高感度測定が必要とされている。そのため、光路を短縮化したサイクロトロン共鳴専用の装置の開発を行う。また、ダイナミックレンジとS/N比の改善のために低ノイズ広帯域のデジタルストレージオシロスコープを導入し測定を行う。

#### 4. 研究成果

現存する単結晶  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  試料では、わずかながらバルクキャリアの存在が知られている。このバルクキャリア起源のサイクロトロン共鳴を始めに調べておくために、図3 (a)に示したバルク試料を用いて、現有する透過光法の共鳴装置でサイクロトロン共鳴の観測を行った。測定温度は4.2K、測定周波数範囲は80GHz から530GHzの範囲でおこなった。その結果、周波数と共鳴磁場が線形関係な有効質量  $m^* = 1.05m_0$  のサイクロトロン共鳴を観測した。これは残存するバルクキャリアによるサイクロトロン共鳴か、電磁波を伝達する

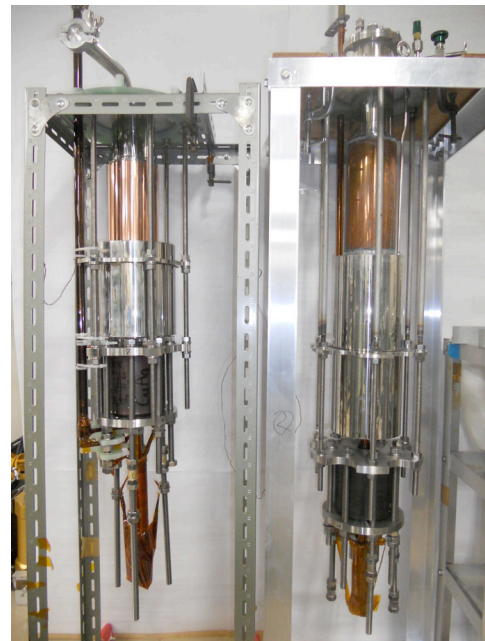


図5 : 高感度化のために作製したクライオスタット。右側が従来のクライオスタット。左側が短縮したクライオスタット。下部にはパルス磁石を設置している。

金属製ライトパイプの自由電子によるサイクロトロン共鳴のいずれかである。

表面電子からの寄与を増大させるために、実験方法に記載した(1)の方法を試すために試料をカプトンテープにて劈開し、200 $\mu\text{m}$ 厚の試料を10層に積層させて測定を行った(図3(b))。その結果、サイクロトロン共鳴は検出されなくなった。このことから、観測されていた共鳴は装置のライトパイプ由来では無く、バルクキャリアによるものであると考えられ、バルクキャリアによるサイクロトロン共鳴は有効質量  $m^*=1.05m_0$  を持つことが明らかになった。一方で、200 $\mu\text{m}$ 厚10層の試料では表面電子によるサイクロトロン共鳴の観測はできなかった。

表面電子によるサイクロトロン共鳴の観測のための、装置の高感度化をはかるために実験方法に記載した(2)の方法を行った。具体的には、光源から検出器までの光路短縮化のために短縮させたクライオスタットを作製し(図5)、それに合わせた磁気光学測定用インサクションを開発した。これにより既存の装置と比べ透過光強度を20倍にすることができた。またダイナミックレンジとS/N改善のために導入した16bit A/D変換を持つデジタルストレージオシロスコープにより低ノイズ化に成功した。

これらと合わせて、(1)の方法をさらに進めて40 $\mu\text{m}$ 厚の試料を作製し、それを50層に積層させた。より薄い試料の作製も試みたが、これ以上薄くしようとすると均一に剥離せず破断するので、テープによる劈開剥離では40 $\mu\text{m}$ 厚が限界と思われる。

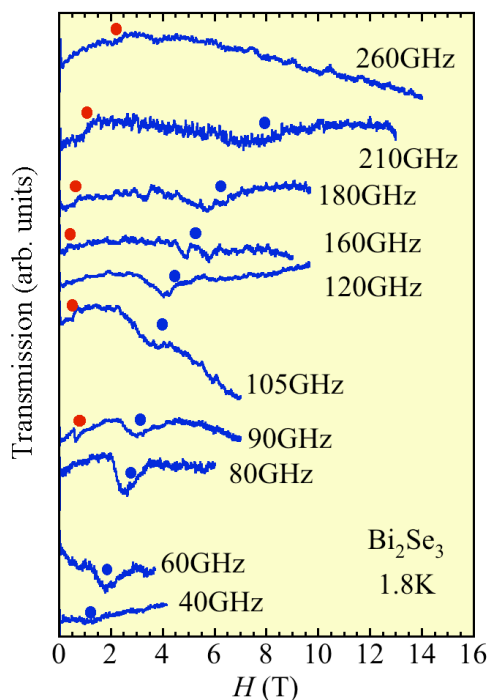


図6：40 $\mu\text{m}$ 厚50層の $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 薄膜積層試料の1.8Kにおけるサイクロトロン共鳴の周波数依存性。青丸、赤丸の吸収については本文を参照のこと。

図6に40 $\mu\text{m}$ 厚50層の試料を用いて、1.8Kにおけるサイクロトロン共鳴の測定結果を示す。測定周波数範囲は40GHzから360GHzの範囲であるが、260GHzより高周波数ではサイクロトロン共鳴の観測が出来なかったため260GHzまでのスペクトルを示している。青丸で示した吸収は、有効質量がほぼ $m_0$ に対応しバルクキャリアによるサイクロトロン共鳴であると考えられる。それは測定系を高感度化させたため薄膜でもバルクの寄与が現れているものと考えられる。一方で低磁場側に赤丸で示した磁場で明らかに不連続なスペクトルが観測された。高周波数になるに従い、吸収強度が弱くなり、260GHzより高周波数では観測出来なかった。スペクトルの形状を見ると、吸収がゼロ磁場から続いているように見られるが、これはフェルミ面に $n=0$ の電子状態があり、これが有限温度効果により幅を持つため、連続的な吸収になっているものと思われる。この吸収は線形の周波数-磁場依存性になっておらず、一般的な三次元の金属や半導体とは異なるエネルギー分散関係を持っていることが明らかになった。その周波数-磁場依存性は $\nu \propto \sqrt{B}$ 的な依存性を示しているが、観測されたサイクロトロン共鳴の周波数範囲が狭く、フェルミ速度を決定することが出来なかった。260GHzを越える周波数で観測できなかった理由としては、使用している光源の問題が挙げられる。260GHzまでは高出力のGunn発振器を基本光源とした通倍器による発振だが、それより高い周波数ではBWOを用いた測定であるため、検出のための感度が足りなかった可能性がある。また、周波数-磁場の範囲がより広範囲な測定を必要とする、異なる次数のランダウ準位間の吸収は観測できなかった。この吸収がトポロジカル絶縁体 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ の表面電子によるサイクロトロン共鳴であるかは、今後より高い周波数における観測が必要であり、それには現在より高感度な測定系の作製が必要である。

この得られた吸収がトポロジカル絶縁体のディラック錐の電子によるものあれば、この成果は、トポロジカル絶縁体の表面電子のサイクロトロン共鳴を観測した国内外で初の成果であり、インパクトは大きいものである。今後、装置の高感度化と試料の増量などを行い、トポロジカル絶縁体のディラック錐上の電子起源のサイクロトロン共鳴の検証を行っていく。

## 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)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大久保 晋 (Okubo Susumu)

神戸大学・分子フォトサイエンス研究センター・准教授

研究者番号 : 80283901

(4) 研究協力者

笹川 崇男 (Sasagawa Takao)

池田 将平 (Ikeda Shohei)

吉田 翔太 (Yoshida Shota)