

博士論文 (要約)

**Quantized phenomena of transport  
and magneto-optics in magnetic  
topological insulator heterostructures**

(磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造における  
量子化された輸送・磁気光学現象)

茂木 将孝

結晶固体中における電子状態を電子の運動量に対するエネルギー分散（バンド構造）によって特徴づけるバンド理論は、金属・半導体・絶縁体の分類に成功し、基本的な電氣的、光学的特性を明らかにした。その一方で、電子状態、特に波動関数の性質を、数学的概念であるトポロジーによって捉える研究が近年非常に盛んであり、固体内部のバンド構造には顕れない特殊な端もしくは表面電子状態を有する物質の存在が明らかになった。こうした物質相をトポロジカル相と呼び、新規トポロジカル相、物質開拓の裾野を急速に広げている。このトポロジカル端/表面状態の最たる特徴は、物質中に必ず存在する乱れ（欠損、不純物など）に対して強固に存在し、量子ホール効果を始めとする、観測量の量子化現象として電気、光学特性に現れる点である。とりわけ、量子化現象を伴った端/表面状態は、エネルギー非散逸な伝導性や特殊な量子統計性などを有するため、その実現および制御は、新奇な物理現象の発見やエレクトロニクス等への応用に向けた重要研究課題の一つである。

本研究の対象である三次元トポロジカル絶縁体は、バルク（内部）は絶縁体である一方、表面に二次元ワイル分散で特徴づけられる電子状態を有するトポロジカル相の典型例である。表面ワイル電子状態はスピン偏極した性質を持ち、例えば磁性を介したスピン自由度の制御によって幾何学的（ベリー）位相の効果を受けることで多彩な電気、光学応答を引き出すことができる。この「磁性トポロジカル絶縁体」は、量子化現象の理想的な舞台である。強磁性状態では、試料端に非散逸な端電流が流れる量子異常ホール効果を発現する。この現象は、2013年に清華大 Xue グループにより磁気ドープトポロジカル絶縁体  $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$  薄膜において実験観測された。さらに、磁性トポロジカル絶縁体表面の空間的な自由度を制御することで、量子化された電気磁気効果の発現や、表面ワイル電子状態による半整数量子ホール効果の発現が期待されている。しかしながら、この表面の空間自由度に着目した実験研究はほぼ未開拓である。その大きな要因の一つとして、磁性不純物ドーピングによって試料の質が抑制されることがある。そのため、試料合成の再現性の低さや、量子化発現温度が非常に低いために幅広い実験系への適用が困難であるという問題があった。本研究では、分子線エピタキシー法を用いた  $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$

薄膜作製を中心に輸送、光学応答の量子化現象の開拓を行った。根幹となるアイデアは、磁性トポロジカル絶縁体のヘテロ構造化である。より具体的には、磁性元素の変調ドーピングや強磁性絶縁体との接合により、低欠陥なトポロジカル表面状態の生成を目指した。さらに、薄膜の上面、下面の表面自由度の磁気的な制御を可能にすることで、量子化電気磁気効果が期待されるアクシオン絶縁相、表面ワイル電子状態の特徴である半整数量子ホール効果の探索を行った。以下、具体的な研究項目の概要を示し、最後に結論を記す。

## 1. 磁気変調ドーピングによる量子異常ホール効果の高温化

$\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$  薄膜において従来行われてきたCrを膜中に一様にドーピングする手法に対して、表面近傍に高濃度にドーピングする「磁気変調ドーピング法」を開発した。表面ワイル電子と磁性元素がより強く交換相互作用を行うことで、観測温度を2Kまで上昇させることに成功した。従来の単層膜と比較して、(i) 電界効果素子によって量子異常ホール状態がより広いゲート電圧（キャリア密度）に対して保たれることを観測し、(ii) 温度依存性による磁気ギャップに対応した熱活性型エネルギーの上昇も得られた。このことから、高温化の起源が、磁気ギャップが増強されたことに由来すると解釈できる。本結果は、量子異常ホール効果の更なる高温化研究の礎となるとともに、量子異常ホール状態を利用した新規機能性を開拓するためのヘテロ構造設計の基礎となる。

## 2. 磁気近接効果による量子異常ホール効果の実現

強磁性絶縁体を接合することでトポロジカル絶縁体表面を強磁性化する磁気近接効果の研究を行った。本研究では、ファンデルワールス強磁性絶縁体  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ,  $\text{Cr}_2\text{Si}_2\text{Te}_6$  薄膜作製および、 $(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_2\text{Te}_3$  とのヘテロ構造化を行った。 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6/(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_2\text{Te}_3$  接合では、既報の磁気近接効果と比較してホール角で2桁以上大きい異常ホール効果を発見した。さらに、偏極中性率反射率法によって断面磁化分布を明らかにすることで、表面状態が高効率に強磁性絶縁体と交換相互作用を行う機構を提案した。 $\text{Cr}_2\text{Si}_2\text{Te}_6/(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$  接合では、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  と比較して電荷移動によるバンドベンディングの寄与が

抑えられることで、より精密なキャリア制御が可能になり、量子異常ホール効果の兆候を観測した。こうした接合界面では、表面状態のスピン偏極性を利用した電流誘起磁化反転制御が可能であることを明らかにした。これらの結果は、今後、量子異常ホール効果の電氣的なスイッチングが可能であることを示唆している。また、強磁性絶縁体側の選択性を利用した、多彩な新奇界面磁性現象の開拓にもつながると期待される。

### 3. 量子異常ホール状態におけるトポロジカル相転移とアクション絶縁体

量子異常ホール状態の外部磁場によるトポロジカル相転移の開拓を行った。まず、外部磁場印加角度の変化によって引き起こす量子異常ホール絶縁体/通常絶縁体転移について、薄膜試料の膜厚に対して系統的に調べた。試料厚さ 7, 8 nm では、磁場方向が面直のときは量子異常ホール状態であるが、磁場角度を面内に倒していくと通常絶縁体への転移が観測される。厚さ 10 nm 以上では、面内磁場状態では金属的振る舞いとなる。この絶縁体状態の起源は、磁化方向が傾くとともに減少した磁気ギャップよりも、トポロジカル絶縁体上下の表面状態が混成することによって生じる「混成ギャップ」が優勢となるためと解釈できる。次に、磁気変調ドーピングによって二層に分かれた表面磁性層の自由度を利用し、磁性/非磁性/磁性の三層にわたるヘテロ構造を作製することで、量子化された電気磁気効果の発現が期待される新規トポロジカル相、アクション絶縁体の探索を行った。二層の磁性層に非対称性を導入することで、保磁力差が生まれ、外部面直磁場によって互いの層の磁化方向を平行、反平行と制御できる。平行磁化状態では量子異常ホール状態に対応する一方で、反平行磁化状態では系全体が絶縁化することが分かり、期待されたアクション絶縁体状態であると矛盾なく説明される。また、この磁化の平行/反平行制御は、端状態生成/消滅のスイッチングを伴うトポロジカル相転移であり、二端子抵抗測定で 10 万倍以上の巨大磁気抵抗効果で特徴づけられる。上記二つの相転移現象の理解は、薄膜上下表面ワイル電子の磁氣的な制御法を確立する。

## 4. 半磁性トポロジカル絶縁体におけるパリティ異常と半整数量子ホール効果

トポロジカル絶縁体表面には単一のワイルコーンが存在するため、半整数のホール伝導度を有すると考えられている。しかしながら、通常の測定では上下表面を同時に測定するため、半整数量子ホール効果の報告例はない。特に、単一ワイル電子の半整数量子化は、二次元量子場理論におけるパリティ異常と密接に関わるため、凝縮系物理における実現は長らく興味を持たれていた問題である。本研究では、単一ワイルコーンの寄与を直接的に測定するために、上面のみに磁気変調ドーピングを行った「半磁性」トポロジカル絶縁体において、テラヘルツ磁気光学測定を行った。磁気光学効果による偏光回転はホール伝導度の光路積算となるが、磁性上面のみが偏光回転の寄与をもつことを観測することで、半整数量子化された偏光回転となることが予想される。実際、1-6 meV のテラヘルツ光のエネルギーに依存しない半整数量子化された偏光回転を観測した。さらに、この半整数量子化は電気輸送測定でも観測されることを示した。この二つの異なる手法の一致は、半整数量子化現象のバルク-表面对応を保証する結果といえる。この結果から、パリティ異常を凝縮系物理学において初めて実験観測したと結論づける。

以上のように、磁性トポロジカル絶縁体にヘテロ構造のエンジニアリングによって、表面状態の空間自由度を制御することが可能になった。強磁性絶縁体との界面では、表面状態が磁性を獲得する機構を明らかにした。磁性不純物ドーピングを用いた結果では、量子異常ホール効果の安定性/観測温度の向上、新規トポロジカル相：アクシオン絶縁体の実現、磁場印加によるトポロジカル相転移と巨大磁気抵抗効果、半整数量子ホール効果とパリティ異常の実現、など多彩な量子現象の観測に繋がった。このように本研究で得られた知見は、今後、強磁性絶縁体層の物質選択や、超伝導など他の秩序相との組み合わせを行う上でのヘテロ構造の基礎を確立し、トポロジカル端/表面状態を利用した電気/光学素子応用の基盤となることが期待される。