審査の結果の要旨

論文提出者氏名:中澤 佑介

近年の固体物理学においては、電子波動関数のトポロジカル(位相幾何学的)な性質に基づいた電子相の分類が精力的に研究されており、従来のバンド理論では記述することのできない非自明な電子状態の存在が確認されている。そのような非自明な電子状態の一つであるトポロジカル半金属相は、三次元バルク状態のギャップレスなエネルギー分散や、バルク状態の非自明性の帰結として現れる表面状態によって特徴づけられる。トポロジカル半金属については、その非自明な電子状態に由来した特異な量子輸送特性が理論的に予測されていることに加え、非散逸の伝導状態を有することから応用的な観点からも重要な物質群であり、その量子輸送特性の解明や電子状態の制御手法の確立が期待されている。本論文では、トポロジカル半金属の中でもより単純な電子構造をもつ、トポロジカルディラック半金属物質 Cd3As2 について、高品質薄膜試料の作製手法を確立し、従来のバルク試料では困難であった、量子輸送特性の詳細な評価を行うとともに、薄膜技術の利点を活かした化学置換による電子構造の制御に成功している。本論文は 6 章で構成されており、以下にその概要を述べる。

第 1 章では、固体中のトポロジカル量子相の一般論の観点からトポロジカルディラック 半金属相について述べた後に、本研究が対象とする Cd₃As₂ について、結晶構造やバンド構造といった基本的な物性および、量子輸送特性に関する先行研究を概観している。

第2章では、本研究で用いた実験手法として、薄膜合成、構造解析、化学組成評価、磁気 輸送測定の原理について述べている。

第3章では、高結晶性 Cd_3As_2 薄膜の作製と観測された量子ホール状態について調べている。パルスレーザー堆積法と固相エピタキシー法を組み合わせることにより、バルク単結晶を超える結晶性を有する Cd_3As_2 薄膜の作製手法を開発した。このようにして得られた高結晶性 Cd_3As_2 薄膜の磁気輸送測定においては、膜厚領域に応じて起源の異なる量子ホール状態が観測された。 膜厚 30 nm 以下では、量子閉じ込め効果により生じるバルク状態由来の二次元サブバンドによる量子ホール状態が観測され、量子ホール状態の縮退度や占有数が膜厚に応じて変化する振る舞いを明らかにした。一方で、膜厚 100 nm 程度の三次元的なフェルミ面が実現している試料においても量子ホール状態が観測され、有効質量や Zn による化学置換に対する依存性を評価することにより、これがトポロジカルディラック半金属の非自明な表面状態に由来するものであることを強く示唆する結果を得た。

第 4 章では、分子線エピタキシー法によるキャリア密度の低減と低キャリア密度領域における量子輸送現象を調べている。Cd₃As₂のバンド反転領域近傍における量子輸送現象を解明するべく、分子線エピタキシーによる低キャリア密度試料の作製に取り組んだ。成長温度や成膜時の各元素分圧、また基板の表面処理条件を最適化することにより、従来の試料か

らキャリア密度を大幅に低減した Cd₃As₂ 薄膜の作製条件を確立した。希薄キャリア密度試料に対する磁気輸送測定においては、二次元的な電子状態の存在を示唆する量子ホールプラトー様の構造と、三次元的なフェルミ面の角度依存性が共存する、非自明な伝導状態が観測された。

第5章では、化学置換による Cd_3As_2 の電子構造の制御に取り組んでいる。バンド反転エネルギーの増大を企図し、スピン軌道相互作用の大きい Sb による化学置換を施した Cd_3As_2 薄膜の磁気輸送特性の評価を行った。前章で確立された分子線エピタキシーによる成膜手法を応用し、これまでに作製報告のない $Cd_3(As_1.ySb_y)_2$ 単結晶薄膜の作製に成功している。観測された磁気抵抗を三次元の弱反局在モデルにより解析することにより、Sb ドーピングに伴うスピン軌道散乱確率の大幅な増大を観測した。

第 6 章では、本研究で得られた成果について総括するとともに、今後の展望について述べている。

以上をまとめると本論文では、トポロジカルディラック半金属 Cd₃As₂の高品質薄膜の作製手法を世界に先駆けて確立したことにより、従来のバルク試料では困難であった、膜厚領域に応じた量子ホール状態の詳細な評価や低キャリア密度領域における量子輸送現象の観測を行うとともに、化学置換によるトポロジカルディラック半金属の電子構造の制御が可能であることを実証している。今回得られた成果は、今後のさらなる微細加工技術の応用やヘテロ接合界面の作製による、新奇量子輸送現象の解明と機能性の開拓に資するものであり、物性科学・物理工学の発展に大きく寄与すると期待される。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。