

博士論文（要約）

Quantum transport phenomena in topological
insulator thin films

（トポロジカル絶縁体薄膜における量子輸送現象）

吉見 龍太郎

現代の凝縮系物理学における大きなトピックとして、固体の電子状態・スピン状態の実空間及び運動量空間におけるトポロジーの概念を用いた物性現象の記述や理解が挙げられる。その中でもトポロジカル絶縁体は、理論予言にとどまらず実験的にも存在が確認され、大きな注目を集めている。トポロジカル絶縁体の大きな特徴はバンドギャップの開いたバルク状態の他に、系の端や他物質との境界にギャップの閉じた金属的状态を有する点にある。特に三次元トポロジカル絶縁体の端状態は二次元電子系となり、既存の半導体積層薄膜技術との整合性が高い。また多彩な物質相を有することから三次元トポロジカル絶縁体はトポロジカル絶縁体の中で最も精力的に研究されている量子相である。三次元トポロジカル絶縁体の表面状態は波数に線形なエネルギー分散を有しており、グラフェンにおける線形分散との類似から表面ディラック状態と呼ばれる。また、表面ディラック状態はスピンの向きが結晶運動量に対して垂直に固定されたスピン偏極状態を持つため、この状態を介したスピン-電荷変換などが近年報告され、スピントロニクス分野への展開も期待されている。一方で、外部磁場や強磁性秩序によって時間反転対称性が破れると表面ディラック状態の二次元的な電子系固有の量子状態である量子ホール状態が顕れる。特に磁性トポロジカル絶縁体で発現する量子異常ホール効果はゼロ磁場で系の端や磁壁に一次元的伝導チャンネルを有する新奇量子ホール効果であり、磁場を用いない低消費エレクトロニクスに向けて注目が集まっている。しかしながら、これまでの研究で主流であったバルク単結晶を用いた試料では、結晶欠陥に由来するバルクキャリアを容易に生じ、これが表面伝導の観測を阻害する。表面量子輸送の観測には高いバルク絶縁性を保持しフェルミ準位の制御された薄膜試料が求められる。

本研究では、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて低欠陥・高移動度なトポロジカル絶縁体 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜を作製し、その表面二次元状態における量子伝導現象の観測を試みた。トンネル分光法では固体界面におけるディラック状態の存在を初めて確認することに成功した。また非磁性トポロジカル絶縁体 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 、磁性トポロジカル絶縁体 $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$ を用いて電界効果デバイスを作製することで、それぞれ量子ホール効果と量子異常ホール効果という表面二次元状態固有の量子ホール状態を観測した。これらの詳細な解析によって薄膜上部・下部のディラック状態がそれぞれ存在し、両者の重ね合わせで量子ホール状態が実現しているということ、また磁場下での量子ホール効果と磁化による量子異常ホール効果は同じ基底状態を持つ量子ホール状態であるという描像を提案した。さらに $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ と $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$ の積層薄膜においても量子ホール効果を観測したことで、以上の描像を実験的に検証した。最後に量子ホール状態の抵抗の温度依存性から、系の局在を妨げる要因が主に結晶欠陥や不純物に由来する乱れであることを議論した。これら磁性・非磁性トポロジカル絶縁体を用いた積層薄膜における量子現象の観測は、今後量子異常ホール効果をより高温で発現する素子開発にむけた設計指針となりうる。

1. トポロジカル絶縁体固体界面ディラック状態におけるトンネルスペクトロスコピー

トポロジカル絶縁体のディラック状態は、これまで光電子分光やトンネル顕微鏡によって真

空と面する表面状態において観測されていたが、薄膜と基板との境界の様な固体界面においては観測例がなかった。トポロジカル絶縁体 $p\text{-(Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ と狭ギャップ半導体 $n\text{-InP}$ の $p\text{-}n$ 接合を作製し、界面に存在するディラック電子状態をトンネル分光法の原理で観測することを試みた。その結果、磁場中でのトンネル電流の微分コンダクタンスにディラック分散由来の磁場の平方根に比例する磁場依存性と二次元的な角度依存性を確認し、積層薄膜界面で初めてディラック電子状態の存在を確認した。また、 $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ の Sb 組成比(x)の依存性を詳細に調べることでフェルミ速度やディラック点のエネルギー等のバンドパラメータを明らかにし、これらが角度分解光電子分光法によって得られている表面分散のパラメータとよく一致することを示した。固体界面にも表面と同様のバンドが存在することが確認されることで、トポロジカル絶縁体を用いた積層薄膜・接合素子の設計の正当性が担保される。

2. $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜における量子ホール効果

$(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜試料において、組成制御と電界効果素子を通じてキャリア制御を行い、フェルミ準位をバンドギャップ内ディラック点近傍に制御した。希釈冷凍機を用いた輸送測定で、温度 $T = 40$ mK、磁場 $B = 14$ T において、ゲート依存性に $R_{xx} \sim 0$, $R_{yx} \sim \pm h/e^2$ におけるプラトーを確認し量子ホール効果を観測した。グラフェンと同様に p, n 両極性で観測される量子ホール状態はトポロジカル絶縁体の二次元ディラック状態の量子化を強く示唆する。また、ホール伝導度 σ_{xy} において、電荷中性点近傍で $\sigma_{xy} = 0$ のプラトーを確認した。この量子ホール状態について磁場・ゲート依存性を測定することで、薄膜上部及び下部のディラック状態のエネルギー差が $\sigma_{xy} = 0$ の量子ホール状態の原因である描像を提示した。更にキャリア濃度が異なるバッファー層を用いて上部・下部のエネルギー差をより大きくした試料では更に $\sigma_{xy} = 0$ の量子ホール状態が安定化したことから、量子ホール状態が薄膜上部・下部の2つのディラック状態における量子化であるという描像の妥当性を示した。

3. $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_2\text{-xTe}_3$ 薄膜における量子異常ホール効果

$(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜に磁性不純物 Cr を添加することで強磁性秩序を発現させ、ディラック状態に生じたギャップ内にフェルミ準位を制御することで実現する量子異常ホール効果の観測を試みた。ここで、 Cr 濃度 x は強磁性の発現を担い、 Bi/Sb 濃度 y はフェルミ準位制御を担うパラメータとなる。詳細な成膜条件制御の結果、ゼロ磁場で $R_{xx} \sim 0$, $R_{yx} \sim h/e^2$ となる量子異常ホール状態の観測に成功した。更に、試料内の電子濃度を変調しながら縦伝導度 σ_{xx} 、ホール伝導度 σ_{xy} の温度依存性を調べることで、系が量子ホール状態へと発展していく振る舞いを調べた。量子異常ホール効果の量子化則は量子ホール効果における量子化則と類似することから、両者は時間反転対称性が破れた基底状態としての等価な状態である可能性を示した。

4. $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3/\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_2\text{-xTe}_3$ 二層膜における量子ホール状態

$(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ における量子ホール状態 $\nu = 0$ の議論によって、上下のディラック状態はそれぞれ

れ独立に扱うことができることが分かった。また、量子化則による量子異常ホール効果と量子ホール効果の比較によって両者は統一的に議論可能であることが分かった。これらを利用して、両ホール効果の関係性の理解を更にすすめるため、非磁性トポロジカル絶縁体 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ と磁性トポロジカル絶縁体 $\text{Cr}_x(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_{2-x}\text{Te}_3$ の二層膜を作製し、その輸送特性を調べた。薄膜上部のディラック状態は磁性層であるため基底状態は量子異常ホール効果になり、薄膜下部は磁場によって量子化する異常ホール効果になると予想される。実際に、ゲート電圧を最適値に制御することでホール抵抗の量子化を観測することに成功し、前章まで議論してきた描像の妥当性が確認された。更に、量子化に必要な温度は $T=500\text{mK}$ であり、単層膜における量子ホール効果・量子異常ホール効果($\sim 50\text{mK}$)よりも10倍高温であることを見出した。これら二層膜における温度安定性の由来を調べるため、非磁性単層膜・磁性単層膜・二層膜における抵抗の温度依存性を解析・比較することで、量子化を妨げる要因がCrの添加によるバルク領域もしくは基板との界面近傍における、結晶欠陥や不純物などの乱れの効果である可能性を示した。

5. 結論

トポロジカル絶縁体における量子ホール状態について、トンネル分光による界面状態の探索や、磁性ドーピング・積層構造を用いた系統的研究を行うことで次の知見を得た。まず、トポロジカル絶縁体における表面伝導には2つの自由度が存在し、それは薄膜上部・下部にそれぞれ存在する2つのディラック状態によるものであるということ。また、磁性由来で生じる量子ホール状態と、外部磁場由来で生じる量子ホール状態は同じ量子化則に従うということ。これらの実験結果から、積層薄膜を用いた磁性不純物の局所的なドーピングが量子ホール状態の安定化に有効であるという結果を得た。以上の知見は、量子異常ホールを発現させるトポロジカル絶縁体の素子開発する上での設計指針となり、今後積層自由度・物質自由度を更に広げた研究が期待される。