

平成 30 年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」

調査研究報告書(公開版)

【研究題目】 エネルギーデバイス応用に向けたトポロジカル絶縁体の各種基盤技術の検討

【整理番号】 TK18-008

【代表機関】 物質・材料研究機構

【調査研究代表者（氏名）】 今中 康貴

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】

産業総合技術研究所 柴田 肇

筑波大学 黒田 眞司

東京大学 秋山 了太

【TIA 外連携機関】 **(ある場合には記載)**

【報告書作成者】 今中 康貴 【報告書作成年月日】 H31.3.29

【連携推進（具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等）】

本調査研究は、近年注目を集めているトポロジカル絶縁体について、高品質試料の作製、新材料の探索、評価技術の開発を各機関が担当する形で連携を推進した。

筑波大学はトポロジカル結晶絶縁体 PbSnTe および SnTe の高品質化、東京大学は Bi やその関連物質の作製、産業総合技術研究所は IV-VI 族半導体の薄膜成長を中心に新材料の探索を行った。また物質・材料研究機構は各機関で作製した試料を評価するための強磁場輸送測定や強磁場テラヘルツ分光測定を担当し、測定結果のフィードバックを行った。

また機関連携の効果を高めるために、個別の打合せや機関間の見学なども行い、1月に学生を含めた研究会を行い、進捗状況の確認を行ったところである。

外部資金獲得に関しては、トポロジカル表面の輸送パラメーターを強磁場中での精密輸送測定データを使って解析するプログラムの開発など含めて科研費への申請を4件行った。

今回の調査研究により、極めて実効的な連携協力関係を構築することができた。

【調査研究内容（実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果）】

トポロジカル絶縁体は新しいクラスの絶縁体であり、トポロジーに保護された表面キャリアにより散乱の少ない電流やスピン流の生成が可能であるため、省エネ素子、熱電変換素子への応用など、基礎だけでなく応用的にも注目を集めている。トポロジカル絶縁体の研究ではバルクキャリアではなく表面キャリアの特性が重要で、その特性のみを切り出して評価するために、これまで試料品質の向上や計測技術の高度化の両面から努力が続けられている。

現在、光電子分光やSTMなどでエネルギーの線形分散の有無が様々な物質で調べられており、Biを含む物質やバンド反転を含むナローギャップ半導体（例えばIV-VI族半導体）で種々のトポロジカル絶縁体が見つかっており、精力的に試料創成、物性計測が行われている。

しかしながら、表面にのみキャリアが存在し、バルクキャリアが完全にゼロとなるような理想的な試料を作ることは難しいこと、また表面物性のみをピックアップする計測手法は限られてお

り、強磁場や極低温下での物性測定が難しいことなど、興味深い物性を十分に探索できる条件にないなど、研究を進めるにあたり未だ十分とは言えない状況にある。

そこで今回それらの問題に対して、

- 1 : トポロジカル結晶絶縁体 PbSnTe の高品質試料の作製 (筑波大)、
- 2 : トポロジカル絶縁体母物質 Bi および関連薄膜試料の成長 (東京大)、
- 3 : IV-VI 族半導体薄膜試料の成長とトポロジカル物質の探索 (産総研)、
- 4 : 強磁場輸送測定、強磁場テラヘルツ分光測定の開発と計測 (NIMS)、
について調査を行った。

1については、SnTe の実際の結晶において生じる Sn 欠損起源の高濃度の正孔の生成を抑制し、バルク絶縁性を有する結晶の実現を目指し、PbTe との混晶 $Pb_xSn_{1-x}Te$ の薄膜を作製し、さらにドナー性不純物となる Sb のドーピングにより正孔の補償を試みた。その結果、トポロジカル側となる Pb 組成 $x \leq 0.6$ の範囲で高抵抗の薄膜試料の作製に成功した。

2については、筑波大学と連携してトポロジカル結晶絶縁体 SnTe と強磁性体 EuS のヘテロ接合試料の作製と偏極中性子反射率測定などを行い、磁性とトポロジカルの関係について調査した。また Bi 薄膜を作製し、NIMS において遠赤外領域の透過測定を行った。その他、BiSbTe と MnTe のヘテロ接合系において、2次元強磁性が発現すること、Bi/Sb 比を調整した結果ディラック点付近にフェルミ準位を調整でき、量子異常ホール効果観測にむけた有望な試料を作製ができた。

3については、(Ge, Sn)Te 混晶系の探索を目指して SnTe の分子線エピタキシー法 (Sn, Te ソース) による結晶成長の最適化を進めた。具体的には Sn 供給 (BEP) を固定し、Te/Sn 供給比を大きく (1, 3, 10, 30) 変化させた。その結果供給比が 10 において高い結晶性が得られることが分かった。

4については、PbSeTe の系統的な強磁場磁石を使った磁気輸送測定とフーリエ分光器をベースとした強磁場テラヘルツ分光計測を行い、特に後者では、バルク残留キャリアによるサイクロトロン共鳴と共に、バルク由来ではないと思われる光学応答を観測した。また Bi 薄膜試料についても遠赤外領域の透過測定を行い、テラヘルツ分光測定のための膜厚の最適化に関して進捗があった。今後さらに強磁場極低温下でのテラヘルツ分光によるトポロジカル物質の評価を進める予定である。

以下対外発表の成果についてまとめる。

論文発表

1. D. Kindole, Y. Imanaka, K. Takehana, L. Sang and M. Sumiya, "Terahertz Cyclotron Resonance in AlGaIn/GaN Heterostructures", J. Korean Phy. Soc. 74, 159 (2019).
2. L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, and S. Kuroda, "Charge fluctuations of a Cr atom probed in the optical spectra of a quantum dot", Physical Review B 99, 035309 (2019).
3. Indrajit Saha, Takuma Nakamura, Ken Kanazawa, Hiroaki Nitani, Masanori Mitome, Shinji Kuroda, "Effect of nitrogen acceptor co-doping on the structural and magnetic properties of (Zn,Fe)Te", Journal of Crystal Growth 511, 42-47 (2019).
4. Yuma Okuyama, Ryo Ishikawa, Shinji Kuroda, Toru Hirahara, "Role of hybridization and magnetic effects in massive Dirac cones: Magnetic topological heterostructures with controlled film thickness", Applied Physics Letters 114, 051602 (2019).
5. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Dynamics of a Cr spin in a semiconductor quantum dot: Hole-Cr flip-flops and spin-phonon coupling", Phys. Rev. B 97, 155301 (2018).
6. Di Fan*, Rei Hobaru, Ryota Akiyama*, Shuji Hasegawa, "Light induced inverse spin Hall effect by polarized circular light", arXiv 1809.08063 (2018).
7. Yuki Shiomi*, Keita Yamamoto, Ryosuke Nakanishi, Tomonori Nakamura, Satoru Ichinokura, Ryota Akiyama, Shuji Hasegawa, and Eiji Saitoh, "Efficient Edelstein effects in one-atom-layer TI-Pb compound", Applied Physics Letters 113, 052401 (2018).

8. Y. Endo*, S. Ichinokura, R. Akiyama, A. Takayama, K. Sugawara, K. Nomura, T. Takahashi, and S. Hasegawa, "Weak localization in bilayer graphene with Li-intercalation/desorption", *Journal of Physics: Condensed Matter* 30, 305701 (2018).
9. Ryota Akiyama*, Kazuki Sumida, Satoru Ichinokura, Akio Kimura, Konstantin A. Kokh, Oleg E. Tereshchenko, Shuji Hasegawa, "Shubnikov-de Haas oscillations in p and n-type topological insulator $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ ", *Journal of Physics: Condensed Matter* 30, 265001 (2018).
10. 秋山了太、石川諒、阿久津和宏、飯田一樹、黒田眞司、長谷川修司、「トポロジカル結晶絶縁体 SnTe と Fe ヘテロ界面における強磁性 proximity 効果の検証」、*CROSS 季刊誌「四季」* (依頼)

学会発表

(国内)

1. D. Kindole, 今中康貴, 竹端寛治, L. Sang, 角谷正友「Carrier concentration dependence of cyclotron resonance in AlGaIn/GaN Heterostructures」日本物理学会第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス)
2. 牧田 憲治、有野 雅史、須永 雅弘、黒田 眞司、ラファンテ-サンピエトロ アルバン、ボウカリエルベ、ビソンプ ルシアン、「CdTe 自己形成ドットにおける Cr の電荷揺らぎによる発光スペクトルの分裂」第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2019 年 3 月 9~12 日、東京工業大学 大岡山キャンパス)
3. 伊藤寛史, 大滝祐輔, 友弘雄太, 石田行章, 秋山了太, 木村昭夫, 辛埴, 黒田眞司、「トポロジカル結晶絶縁体 $(\text{Pb, Sn})\text{Te}$ (111) 薄膜のレーザー励起 ARPES 測定による非占有状態の観測と超高速キャリアダイナミクス」日本物理学会 第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14~17 日、九州大学伊都キャンパス)
4. 高城拓也, 秋山了太, I. A. Kibirev, A. V. Matetskiy, 遠山晴子, A. V. Zotov, A. A. Saranin, 長谷川修司、磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造 $\text{MnTe}/(\text{Bi}_{1-x}\text{Sbx})_2\text{Te}_3$ の作製とその評価、17aE201-7、日本物理学会第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス)
5. 宮内恵太, 秋山了太, 保原麗, 長谷川修司、Au/CuSi/Si (111) テンプレート上における原子層青リンの結晶成長とその評価、14pN-PS-4、日本物理学会第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス)
6. 遠山晴子, 中村友謙, 田中宏明, L. V. Bondarenko, A. Y. Tupchaya, D. V. Gruznev, 保原麗, 秋山了太, A. V. Zotov, A. A. Saranin, 長谷川修司、Si (111) 上の (Pb, Au) 表面合金層の構造と伝導特性、14pN-PS-7、日本物理学会第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス)
7. 渡邊和己, 中西亮介, 秋山了太, 福居直哉, 豊田良順, 西原寛, 長谷川修司、In/SnTe/Bi (111) 構造における二次元超伝導の観測、14pN-PS-38、日本物理学会第 74 回年次大会 (2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス)
8. 今中康貴, D. Kindole, 竹端寛治, 大滝祐輔, 伊藤寛史, 秋山了太, 黒田眞司「IV-VI 族半導体 PbSnTe のテラヘルツサイクロトロン共鳴」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
9. D. Kindole, 今中康貴, 竹端寛治, L. Sang, 角谷正友「Cyclotron Resonance and Magnetotransport Studies in InGaIn/GaN Heterostructures」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
10. 竹端寛治, 今中康貴, 他「イオンゲルゲート制御された二層グラフェンにおける サイクロトロン共鳴測定」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
11. 伊藤寛史, 大滝祐輔, 石田行章, 秋山了太, 木村昭夫, 辛埴, 黒田眞司「トポロジカル結晶絶縁体 SnTe 薄膜の表面バンド分散と超高速キャリアダイナミクス」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
12. 渡邊和己, 石川諒, 秋山了太, 阿久津和宏, 飯田一樹, 黒田眞司, 長谷川修司「偏極中性子反射率法を用いた Fe/SnTe ヘテロ構造界面における強磁性近接効果の観測」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
13. 奥山裕磨, 石川諒, 黒田眞司, 平原徹「磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造における強磁性とサイズ効果の協奏・競合」日本物理学会 2018 年秋季大会 (2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス)
14. S.P. Liu, Y. Takeuchi, J.L. Wang, R. Akiyama, and S. Hasegawa, Bose-metal behavior in epitaxial FeSe thin films grown on SrTiO_3 , 9pPSA-8、2018 年秋季日本物理学会、同志社大学京田辺キャンパス (2018 年 9 月 9 日)

15. Ryo Ishikawa, Hiroshi Ito, Yuta Tomohiro, Ryota Akiyama, Shinji Kuroda, Hiroaki Nitani, Masanori Mitome, TEM observation of IV-VI diluted magnetic semiconductor (Sn,Mn)Te grown by MBE, 第79回応用物理学会秋季学術講演会 (2018年9月18日-21日, 名古屋国際会議場)
16. 加藤 象二郎、金澤 研、黒田 眞司「MBE法により成長したFeドーピング亜鉛鉱型MnTe薄膜の磁気特性・構造特性の成長温度依存性」第79回応用物理学会秋季学術講演会 (2018年9月18日-21日, 名古屋国際会議場)
17. 伊藤寛史、大滝祐輔、友弘雄太、石田行章、秋山了太、木村昭夫、辛埴、黒田眞司、「トポロジカル結晶絶縁体SnTe薄膜の表面バンド分散と超高速キャリアダイナミクス」第23回半導体スピン工学の基礎と応用 (2018年12月6~7日、東京工業大学すずかけ台キャンパス)

(海外)

1. Y. Imanaka G. Karczewski, T. Wojtowicz, “Charged exciton in CdTe wide quantum well at high magnetic field”, 34th Int. Conference on the Physics of Semiconductors (July 29–August 3, Montpellier, France)
2. K. Takehana, Y. Imanaka, T. Kaneko, Y. Sekine, M. Takamura, H. Hibino, “Cyclotron resonance on higher-energy band of bilayer graphene”, 34th Int. Conference on the Physics of Semiconductors (July 29–August 3, Montpellier, France)
3. D. Kindole, Y. Imanaka, K. Takehana, L. Sang, M. Sumiya, “Polaron Cyclotron Resonance in AlGaIn/GaN Heterostructures”, 34th Int. Conference on the Physics of Semiconductors (July 29–August 3 Montpellier, France)
4. D. Kindole, Y. Imanaka, K. Takehana, L. Sang, M. Sumiya, “Terahertz Cyclotron Resonance in AlGaIn/GaN Heterostructures”, 19th Int. Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications (July 1–5, Jeju, Korea)
5. H. Ito, Y. Otaki, Y. Tomohiro, Y. Ishida, R. Akiyama, A. Kimura, S. Shin, S. Kuroda, “Observation of the unoccupied state of SnTe by laser-excited angle resolved photoemission spectroscopy”, New Trends in Topological Insulators 2018 (July 16–19, 2018, Luxembourg)
6. Ryota Akiyama, Ryosuke Nakanishi, Kazumi Watanabe, and Shuji Hasegawa, “2-dimensional superconductivity in SnTe on Bi/Si(111)”, New Trend of Topological Insulator 2018, Luxembourg, (16–19 Jul. 2018)
7. A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, L. Besombes, S. Kuroda, “Optical control of the single Cr spin in a semiconductor quantum dot” 10th International School and Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solid (PASPS10) (August 5–9, 2018, Linz, Austria)
8. R. Ishikawa, H. Itoh, Y. Tomohiro, R. Akiyama, H. Nitani, and S. Kuroda “Structural and magnetic properties of IV-VI diluted magnetic semiconductor (Sn,Mn)Te grown by MBE” 10th International School and Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solid (PASPS10) (August 5–9, 2018, Linz, Austria)
9. M. Sunaga, K. Makita, A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, and S. Kuroda “Fabrication of CdTe dots containing single Cr atom and optical control of single spin ” 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2018) (September 2–7, 2018, Shanghai, China)
10. I. Saha, T. Nakamura, K. Kanazawa, H. Nitani, and S. Kuroda “Effect of nitrogen co-doping on the magnetic and structural properties of (Zn,Fe)Te” ” 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2018) (September 2–7, 2018, Shanghai, China)
11. Shinobu Ohya, Akiyori Yamamoto, Tomonari Yamaguchi, Ryo Ishikawa, Ryota Akiyama, Le Duc Anh, Shobhit Goel, Yuki K. Wakabayashi, Shinji Kuroda, Masaaki Tanaka, Observation of the inverse spin Hall effect in the topological crystalline insulator SnTe using spin pumping (invited), 10732–117, SPIE Optics+Photonics 2018, San Diego, USA (19–23 Aug. 2018)
12. T. Takashiro, R. Akiyama, I. A. Kibirev, A. V. Matetskiy, H. Toyama, A. V. Zotov, A. A. Saranin, and S. Hasegawa, Fabrication and Evaluation of Magnetic Topological Insulator Heterostructure MnTe/(Bi_{1-x}Sb_x)₂Te₃, P59, Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2019, (19 Feb. 2019, Kashiwa, Japan)

【今後の活動予定】

今年度の連携により、PbSnTe や Bi に関する試料作製、新材料探索、強磁場輸送測定やテラヘルツ分光の基礎的な調査が終わり、試料側と計測側の問題点に関して明らかにすることができた。

本連携をきっかけに今後更に連携を深めて引き続き共同研究を行い、外部予算の獲得を目指す予定である。

以上