

ディラック半金属 Cd_3As_2 薄膜における量子ホール効果の観測

東京大学大学院工学系研究科 附属量子相エレクトロニクス研究センター 打田 正輝
物性研究所 国際超強磁場科学研究施設 徳永 将史

はじめに

トポロジーの概念は、物質における新たな量子相探索の指針として益々注目を集めている。その概念に立脚した観点は、トポジカル絶縁体やそれに続くトポジカル結晶絶縁体・トポジカル半金属・トポジカル超伝導体などの新たな量子相の提案・発見にもつながった。これらのトポジカル相については、トポジカルに保護された特有の量子現象の研究も精力的に展開されている。特に、トポジカル相に典型的に内在するディラック電子系は、高い移動度やスピン・運動量ロッキングによる長いスピン緩和長などの性質を持ち、次世代の省エネルギーデバイスの有力な材料候補として期待されている。

その中で、本稿では、トポジカルディラック半金属 Cd_3As_2 に焦点を当てて、高品質な薄膜の実現によって明らかになってきた強磁場中の量子輸送特性について報告する。トポジカルディラック半金属は、グラフェンの3次元版とも呼ぶべき特異な電子状態を持つ[1]。これらの電子構造は理論提案直後に角度分解光電子分光等により直接観測されたが[2,3]、その量子輸送現象の研究はまだまだ途上段階にある。特に、3次元のディラック点は波数空間中でモノポールが存在する状態に等しく、それに付随した新しい物理現象を発現する可能性を秘めており、カイラル異常やワイル軌道と呼ばれる新たな量子輸送現象はいずれもこの3次元ディラック点が起源となっている。また、トポジカルディラック半金属は、トポジカル絶縁体・ワイル半金属・量子スピンホール絶縁体をはじめとした他のトポジカル相へ相転移できる母物質に相当しており、トポジカル相転移現象の研究舞台としても期待されている。

Cd_3As_2 は古くから高移動度半導体としても知られてきた物質であるが、高品質な薄膜作製が非常に困難であった。これは、 Cd_3As_2 自体が非常に高い蒸気圧をもち、成膜がごく低温に限られてきたためである。また、As 欠損による電子ドーピングによってフェルミレベルがディラック点から大きく離れてしまうという問題点もあった。このような状況において、我々は、パルスレーザー堆積法と高温アニール法を組み合わせる手法によって高い移動度と結晶性をあ

わせもつ高品質な Cd_3As_2 薄膜の作製に成功し[4,5]、量子ホール効果をはじめとする強磁場輸送現象の研究の端緒を開いた[4,6]。

実験結果

キャップ層を最適化することによって、薄膜の蒸発を防ぎながら非常に高温での Cd_3As_2 薄膜のアニールが可能となった。図1の透過電子顕微鏡像に示すように、既報のバルク試料を超える非常に高い結晶性をもつ薄膜試料が作製できるようになった。得られた薄膜試料のキャリア濃度はバルクで報告されている最低キャリア濃度に匹敵するほど低く、その移動度は低温で $30,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ にも及び、同じキャリア濃度で比較してバルクと同程度に十分高いことも明らかになった。

輸送測定では、まず高移動度に由来する Shubnikov-de Haas 振動が低磁場から観測された。加えて、図2に示すように、55Tまでの高磁場下での輸送測定において、量子ホール状態が観測された。また、これらの数十 nm 程度以下の膜厚の試料では、振動の回転磁場中測定によって二次元的なフェルミ面が実現していることが確認された。これは、薄膜の膜厚を変えることによって、フェルミ面の次元性を制御し、量子閉じ込め効果が効いた2次元の電子構造が容易に実現できることを示している。

特に、12, 14nm という薄い試料と 16, 23nm という厚い試料では量子ホール状態の見え方及び縮退度が全く異なっていることが分かる。詳細な量子輸送解析により、この急激な量子ホール状態の変化は、非常に速いディラック分散に由来するスピン縮退度の変化に由来していることが明らかになった。また、その非常に速いディラック分散のために、かなり厚い膜厚まで量子ホール状態が残って現れ、特に 23nm ほどの膜厚ではディラック点の内側に閉じ込められたバンドが形成されることで量子スピンホール絶縁体状態が実現していることも分かってきた。これはまさに、 Cd_3As_2 薄膜の厚みの変化によって、トポジカルディラック半金属からのトポジカル相転移を引き起こし、トポジカルな性質と非散逸な量子伝導状態が制御できることを示している。

現在は、化学置換によりキャリア濃度を制御し、量子ホール状態をより低磁場で実現することにも成功している[6]。Cd₃As₂ に対して Zn₃As₂ を混合してアニールすることにより、結晶化と同時に (Cd_{1-x}Zn_x)₃As₂ の固溶体が作製できることを見出し、キャリア濃度依存性を系統的に調べることが可能となった。Zn のドーピング量に対して効果的にキャリア濃度が低減しており、トポロジカルに非自明な領域に留まりながら低キャリア濃度が達成されている。

今後の展開

今後、三次元的な電子状態が実現する厚い膜厚について、高い平坦性と結晶性をもった Cd₃As₂ 薄膜試料を作製し強磁場中の輸送特性を測定することで、表面状態に由来した量子輸送現象を解明することが出来るようになることを期待される。また、種々のドーピングの手法と組み合わせることにより、よりディラック点に近づいていく領域におけるカイラル異常・ワイル軌道などのトポロジカル半金属特有の量子輸送現象や、トポロジカル絶縁体・磁性トポロジカル絶縁体へのトポロジカル相転移における輸送特性の変化も明らかにできるようになると期待される。

謝辞

本研究は、東京大学の中澤佑介、西早辰一、小塚裕介、川崎雅司、東京大学物性研究所の秋葉和人、三宅厚志、理化学研究所創発物性科学研究センターの M. Kriener、田口康二郎、永長直人、十倉好紀、各氏をはじめとした多くの方々との共同研究によるものである。なお、本研究は、科学技術振興機構 CREST (No. JPMJCR16F1) 及び日本学術振興会科学研究費 (No. JP24226002、JP15K05140、JP15H05425、JP16H00980) の支援の下に行われた。

REFERENCES

[1] S. Murakami, *New Journal of Physics* **9**, 356 (2007).
[2] Z. Wang, H. Weng, Q. Wu, X. Dai, and Z. Fang, *Physical Review B* **88**, 125427 (2013).
[3] Z. K. Liu, J. Jiang, B. Zhou, Z. J. Wang, Y. Zhang, H. M. Weng, D. Prabhakaran, S-K. Mo, H. Peng, P. Dudin, T. Kim, M. Hoesch, Z. Fang, X. Dai, Z. X. Shen, D. L. Feng, Z. Hussain, and Y. L. Chen, *Nature Materials* **13**, 677-681 (2014).

[4] M. Uchida, Y. Nakazawa, S. Nishihaya, K. Akiba, M. Kriener, Y. Kozuka, A. Miyake, Y. Taguchi, M. Tokunaga, N. Nagaosa, Y. Tokura, and M. Kawasaki, *Nature Communications* **8**, 2274 (2017).
[5] Y. Nakazawa, M. Uchida, S. Nishihaya, M. Kriener, Y. Kozuka, Y. Taguchi, and M. Kawasaki, *Scientific Reports* **8**, 2244 (2018).
[6] S. Nishihaya, M. Uchida, Y. Nakazawa, M. Kriener, Y. Kozuka, Y. Taguchi, M. Kawasaki, *Science Advances* **4**, eaar5668 (2018).

