

トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 の高磁場磁気抵抗と磁気トルクの測定

Magnetoresistance and magnetic torque measurements of topological insulator Bi_2Se_3

東北大・金研 本多由季, 佐々木孝彦, 小林典男

東工大・応セラ研 五十嵐九四郎, 笹川崇男

Y. Honda¹, T. Sasaki¹, N. Kobayashi¹, K. Igarashi² and T. Sasagawa²

¹Institute for Materials Research, Tohoku University

²Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology

研究背景

トポロジカル絶縁体はバルクとしてはバンドギャップ絶縁体であるが、表面に特異なギャップレス状態をもつ物質である。表面ではスピンの縮退が解けており、逆向きのスピンのそれぞれ逆方向に流れている。この状態はヘリカルと呼ばれる。表面状態の分散は近似的に線形とみなすことができるので、ディラック電子系が実現されると考えられている。2次元ディラック状態はグラフェンにおいて観測されているが、トポロジカル絶縁体の表面に現れるディラック状態は全く異なる原理により実現している。このような状態が存在することは2005年に理論的に予測された。その後、トポロジカル絶縁体の実験研究が開始され、いくつかの候補物質が見出されたが、現在までバルクの絶縁性を確保した物質系は見出されていない。例えば本研究で対象とする Bi_2Se_3 の場合、バンド計算ではフェルミ準位はバルクバンドのギャップ中にあるが、実際の単結晶試料では結晶作製時に生じるセレン欠損により電子ドーピング状態となる。このバルク状態は真のトポロジカル絶縁体とは言えないが、角度分解光電子分光実験、走査型トンネル分光実験などの測定から、表面にヘリカルスピンディラック状態が存在することが明らかにされている。この表面ディラック状態では、新奇な量子凝縮状態や量子輸送現象が期待されている。

研究目的

本研究の目的はトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 の表面ディラック状態に起因する新奇な輸送特性を見出すことである。この目的のために、セレン欠損量の制御によりバルクキャリア数を変化させた $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ 単結晶試料の高磁場磁気抵抗と磁気トルクの測定を行い、磁気輸送特性に対する表面状態の寄与を検証した。

実験方法

$\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ 単結晶試料は東京工業大学応用セラミック研究所笹川グループによりブリッジマン法を用いて作製された。作製条件によりセレン欠損量が制御された3種類のバルク体試料(欠損の多い順に試料A, 試料B, 試料C)を提供して頂き、測定手法に合わせた大きさに整形加工を行った。

電気抵抗、ホール効果測定では、単結晶をへき開し、そのへき開面上に4端子、6端子の金蒸着によって電極を作製し、銀ペースト、金線による端子付けを行った。測定は、交流ブリッジもしくは直流定電流印加による4端子または6端子法で測定した。磁気抵抗測定では、磁場方向を単結晶へき開面方向から変化させて測定するが、電流方向は磁場方向と常に直交する横磁気抵抗の配置で測定した。磁気トルク測定では、静電容量検知型カンチレバー、キャパシタンスブリッジにより測定した。磁場の印加には15T超伝導マグネットおよびハイブリッドマグネットを用いた。室温磁気抵抗では冷凍機冷却型15Tヘリウムフリー超伝導マグネットを用いた。磁気抵抗と磁気トルクにそれぞれシュブニコフ・ドハース(SdH)振動とドハース・ファンアルフェン(dHvA)振動が観測され、その振動をリフシツ-コセヴィッチ(LK)式を用いて解析することによりフェルミ面の極値断面積と形状、有効質量、ディングル温度を求めた。

実験結果と考察

図1にゼロ磁場中での電気抵抗率の温度依存性を示す。図中の試料名A, B, Cは3つの異なる単結晶育成条件で作製された単結晶から切り出された試料グループ(欠損の多い順にA, B, C)に対応している。試料Aは電気抵抗率が低く、温度の低下とともに単調に減少し、金属的な振る舞いをする。セレン欠損が少ない試料B, Cは、欠損量が少ないほど抵抗率は増加する。また、特に試料Cでは、温度依存性が金属的な振る舞いを示さず室温から抵抗率は増加し200-220K付近に極大があらわれる。BとCの試料にみられる30Kの極小はバルクのキャリア数が少なく半導体的であることを示していると考えられる。ホール抵抗測定から求めたキャリア(電子)数は試料B01とC02でそれぞれ、 $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ であり、金属的なA($\sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)に比べて2-3桁少ない。

図2に試料A, B, Cの低温での磁気抵抗の磁場依存性を示す。キャリア数が少なく移動度が大きい順に磁気抵抗が大きいことがわかる。また、すべての試料において、低磁場域($\sim 1 \text{ T}$)においては磁場の二乗に比例する磁気抵抗、高磁場域($> 2 \text{ T}$)においては磁場

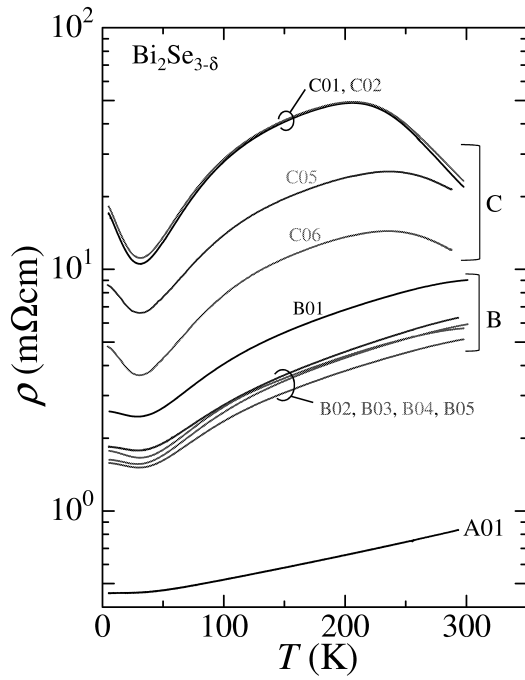


図 1: Temperature dependence of the resistivity of $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$. Samples A, B and C denote the sample batches corresponding to the amount of Se defects. See the details in the text.

に線形な磁気抵抗が観測された。低磁場域において観測された磁場の二乗に比例する磁気抵抗はローレンツ力による磁気抵抗である。一般にローレンツ力による磁気抵抗は高磁場で飽和するが、本研究で観測された $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ 単結晶の磁気抵抗は 15 T の磁場印加では飽和せず、高磁場域において磁場に対して線形に増加している。試料 C02 においては磁場を 26 T まで印加したが、磁気抵抗が飽和また発散する振る舞いはみられず、ほぼ線形に変化した。このときの磁気抵抗の大きさは 26 T で 1300 % (1.4 K) にもなる。このような巨大な磁気抵抗は高温まで観測され、30 K, 15 T で 1500 %, 200 K, 15 T においても 270 % になる。ここで観測された磁場に対して線形で飽和しない磁気抵抗は、ディラック電子系のようなギャップレスで線形なエネルギー分散を有する他の系でも観測されている。

図 3 は試料 A, B, C の磁気抵抗の磁場微分カーブである。磁気抵抗には明瞭な振動構造があらわれ、その振動が磁場の逆数に対して線形であることからシュブニコフドハース振動であることがわかる。このシュブニコフドハース振動の振動周波数の磁場方向依存性から、観測されたフェルミ面形状がわかる。試料 A, B, C いずれの試料もフェルミ面形状は 3 次元回転楕円体状であることがわかった。振動周波数の大きさからフェルミ面の大きさがわかるが、その大きさは各々の試料のホール効果から得られたキャリア数に良く対応している。フェルミ面を回転楕円体として近似すると、バルクのキャリア数 (状態数) は試料 A01 と B04 でそれ

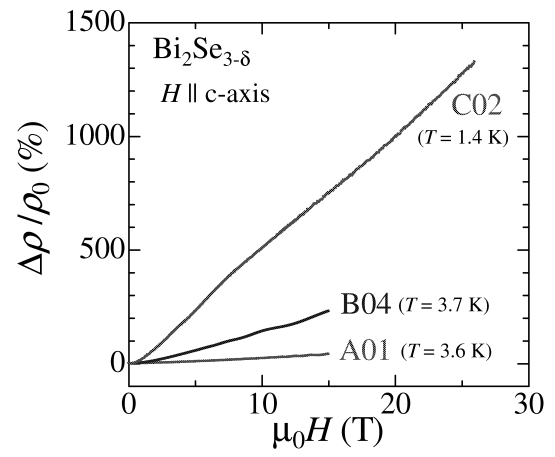


図 2: Magnetoresistance of $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ single crystals.

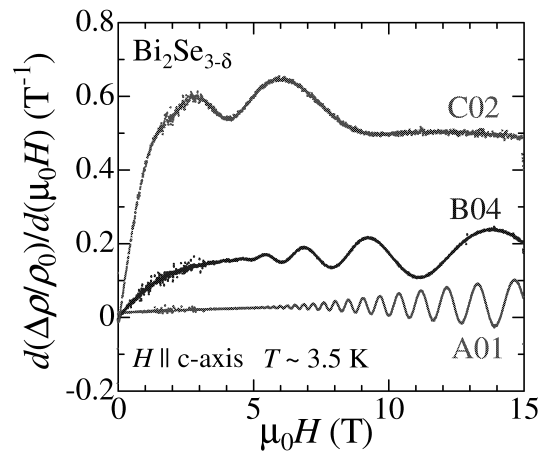


図 3: Magnetic field derivative of the magnetoresistance of $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ single crystals. Shubnikov-de Haas oscillations are clearly observed. The oscillation frequencies become smaller with decreasing the selenium defects.

ぞれ $1.8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と見積もられた。この大きさは、前述のホール効果から求めた値と一致する。また、熱力学量である磁気トルク測定においても、同じフェルミ面に由来するドハース-ファンアルフェン振動が観測されることから、観測されたシュブニコフドハース振動はバルクの 3 次元的フェルミ面に由来することが確認された。[1]

最も欠損が少ない試料 C02 では、低磁場域での振動周波数から予測される量子極限に近い高磁場域においてゼーマン効果によりスピン分裂した振動が観測された。スピン分裂を考慮した解析から、振動周波数は 2.4 T と見積もられた。最も高磁場で観測された最後の振動ピークの磁場値から、8 T 以上ではバルクの強磁場量子極限を超えていると考えられる。

図 4 は、試料 C02 の一定磁場中における磁場方向依存性である。高磁場域 ($\gtrsim 8 \text{ T}$) においては、 $\cos \theta$ 的

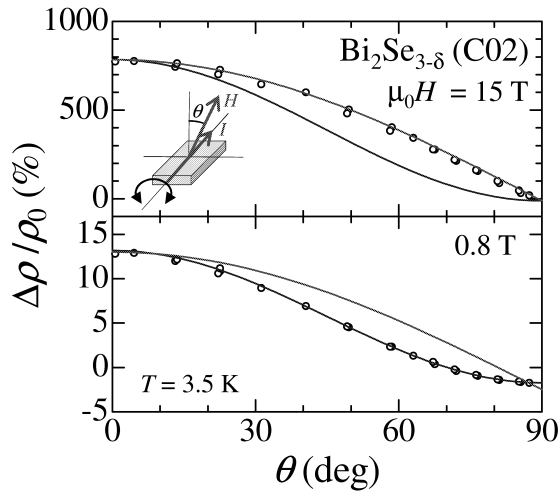


図 4: Magnetic field direction dependence of the magnetoresistance of $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ single crystal (C02) in 15 T (upper panel) and 0.8 T (lower panel). Solid curves indicate the $\cos^2\theta$ and $\cos\theta$ dependences.

な振る舞いがみられる。この振る舞いは 2 次元的フェルミ面の軌道効果に因っていると考えられる。一方で、低磁場域 (~ 1 T) では $\cos^2\theta$ の振る舞いを示している。また、キャリア数の大きい試料 B04 においてはこの $\cos^2\theta$ の磁場方向依存性が全磁場域 (≤ 15 T) で観測され、 $\cos\theta$ 的な振る舞いはみられなかった。試料 C02 の高磁場域で観測された $\cos\theta$ の磁場方向依存性は、3 次元的なバルク状態のフェルミ面が量子極限状態になることにより、表面における 2 次元的ディラック状態に起因する輸送特性が選択的に観測されている可能性がある。[2]

トポロジカル絶縁体の特徴としてディラック電子状態に起因する後方散乱の影響が少ないことが期待できる。これは、高温においても散乱が少なく、ローレンツ力による磁気抵抗が大きく現れる可能性を示唆している。図 5 は、試料 C の低温 (上図) 及び室温 (下図) における磁気抵抗である。試料 C はセレン欠損が少なく最も電気抵抗の大きい試料であり、低温では 26 T で 1000% を超える大きな磁気抵抗を示す試料である。この試料の室温における磁気抵抗は 13 T で 200% におよび、室温でのローレンツ力による磁気抵抗としては非常に大きいものである。この大きな室温磁気抵抗もトポロジカル絶縁体としての性質があらわれているものと考えられる。

まとめ

トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 の高磁場磁気抵抗と磁気トルクの測定を行い、表面ディラック状態に起因する輸送特性の探索を行った。バルク状態の寄与としてセレン欠損による 3 次元回転楕円体状フェルミ面に由来するシュブニコフドハース振動およびドハースファ

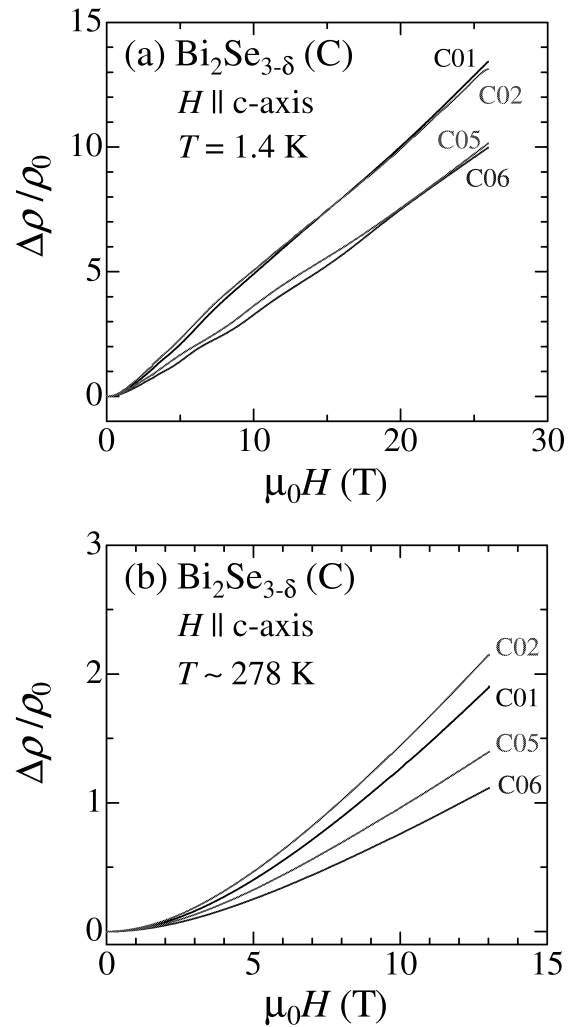


図 5: Magnetoresistance of $\text{Bi}_2\text{Se}_{3-\delta}$ single crystals (sample batch C) at 1.4 K (upper panel) and 278 K (lower panel). It is noted that the magnetoresistance becomes about 200 % even at room temperature.

ナルフェン振動を観測した。最も欠損の少ない試料においてバルク電子状態の量子極限を超えた高磁場域で、磁気抵抗の磁場方向に対する振る舞いが低磁場における $\cos^2\theta$ から高磁場では $\cos\theta$ に移り変わった。この結果は表面状態の 2 次元的性質が磁気輸送特性に現れたものと考えられる。

参考文献

- [1] 本多由季 他, 日本物理学会 2010 年秋季大会 24pXA-10 .
- [2] 本多由季 他, 日本物理学会 第 66 回年次大会 26aHG-12 (東日本大震災により中止).