

令和 2 年 6 月 19 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02908

研究課題名(和文)トポロジカル絶縁体におけるコヒーレント表面フォノン誘起量子相転移の研究

研究課題名(英文) Quantum phase transition in topological insulators induced by coherent surface phonons

研究代表者

長谷 宗明 (Hase, Muneaki)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：40354211

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、トポロジカル絶縁体(Topological Insulator: TI)におけるコヒーレント表面フォノンを観測し、表面における電子-フォノン相互作用に関する知見を得ることを目的とした。フェムト秒レーザーを用いたポンプ-プローブ実験の結果、TIの表面状態において動的なファノ干渉が観測されること、及び励起光強度依存性があることを明らかにした。また、ワイル半金属になる可能性があるBi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>合金の薄膜試料作製をスパッタリングにて行い、コヒーレントフォノン測定を行った結果、x=0.5付近において単純な合金散乱では説明出来ないような特異的な電子-フォノン散乱が存在することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トポロジカル絶縁体(Topological Insulator: TI)は、直線的エネルギー分散であるディラック・コーンで特徴付けられる金属的表面状態をもち、一方ではバンドギャップが開いた絶縁体のバルク構造をもつ興味深い物質である。本研究では、TI表面におけるコヒーレントフォノンを高感度に観測し、表面における電子-フォノン相互作用に関する知見を得ることに成功した。これにより、例えば表面の高移動度電子を活用した低消費電力の新規デバイスの開発に繋がる可能性があると考えている。

研究成果の概要(英文)：This project aims to study coherent surface phonons in topological insulator (TI), and discuss about electron-phonon interaction at the surface. As the results of time-resolved pump-probe experiments on the surface of Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>, we uncovered the observation of dynamical Fano resonance with significant pump fluence dependence. Furthermore, we produced the alloyed film sample of Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> by sputtering, and measured the coherent phonons. As the results, we observed a peculiar electron-phonon scattering at x=0.5, which cannot be explained by a simple alloy scattering model.

研究分野：光物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 フォノン フェムト秒レーザー ワイル半金属 スパッタリング

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

これまで (Topological Insulator: TI) におけるラマン分光、あるいはコヒーレントフォノン (CP) 分光により、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  や  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  単結晶試料のフォノン物性に関する知見は得られつつある。それらの研究では、偏光依存性などを議論することにより、2次元層状構造に基づいたラマンテンソルによる対称性の議論がなされている。しかし一方で、TI 表面に局在するコヒーレント表面フォノンについては、まだ研究例は少ない。TI 表面を流れるディラック電子による電流に対しては、電子-フォノン相互作用による非弾性散乱が重要であると考えられる。つまり、表面フォノンの研究は表面のディラック電子の緩和時間などを議論する際には重要な要素になる。実際に、角度分解光電子分光法 (ARPES) を用いた表面フォノンの研究が行われており、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  の表面電子バンド分散の時間変化に  $A_1$  モードが表面フォノンとして観測され、層間 Van der Waals (vdW) 力の低下による  $A_1$  モードのソフトニングが観測されている。しかし、ARPES を用いた表面フォノンの研究は、超高真空と清浄表面を必要とし、測定へのハードルは未だ高い。我々は、「トポロジカル絶縁体の金属的表面状態は、時間反転対称性を失わない限り表面に絶縁体を接合しても保存される」という事実に基づき、CP 分光において測定配置や試料膜厚などに工夫を凝らせば、大気中で TI における表面フォノンの観測が可能になるのではないかという着想に至った。

また興味深いことに、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 、 $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  などの TI では、試料の膜厚 (5 原子からなる 1 層を Quintuple Layer: QL と定義する) を薄くしていくことで、3次元 TI から 2次元 TI へと量子相転移することが、ARPES、STM 分光、第一原理計算によるバンド構造計算などにより明らかになっている。つまり、ある特定の膜厚 (例えば  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  では 5 QL) 以下になると、表面と裏面の電子波動関数が相互作用し、バンドミキシングが起こり、その結果バンドギャップ (BG) が開く (表面のディラック・コーンが消滅し、エッジのみ純スピン流が流れる) ことを意味している。さらに  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  の光学的表面フォノンは、波数が  $q \leq 2k_F$  ( $k_F$  は Fermi 波数) の領域でコーン異常を示すことが実験的・理論的に報告されている。コーン異常は、金属だけでなくグラフェンでも観測される遮蔽効果によるフォノンソフトニング現象であることから、表面での電子-フォノン相互作用を調べる指標になりうるものである。一方、TI における音響あるいは光学フォノンを大振幅に励起することで、変形ポテンシャルを通じて BG を変調し、その結果 BG 交差が起こり、トポロジカル絶縁体—ノーマル絶縁体 (NI) 間の量子相転移が起こることが理論的に予測されている。この時の原子振動振幅は、格子定数の数%程度と大きく、物質の融解が起こるリンデマンの判定基準に近い値となる。

## 2. 研究の目的

背景でも述べたように、トポロジカル絶縁体 (TI) は、直線的エネルギー分散であるディラック・コーンで特徴付けられる金属的表面状態をもち、一方ではバンドギャップが開いた絶縁体のバルク構造をもつ興味深い物質である。しかし、その表面状態は、ほとんどの場合、超高真空中で分光研究されており、かつ磁場の存在で容易に表面状態が消滅することから、未だ光物性的アプローチによる研究手法が限定されている。本研究では、TI における低波数ベクトル領域のコヒーレント表面フォノンを高感度に観測し、表面における電子-フォノン相互作用に関する知見を得ることを目的とする。また、大振幅コヒーレントフォノン励起による TI のバンドギャップ変調の可能性を探り、フォノンによるトポロジカル絶縁体—ノーマル絶縁体間の量子相転移の観測を目指す。

### 3. 研究の方法

まず、コヒーレント表面フォノン（光学モード）の観測を大気中かつ室温で試みた。試料は典型的な TI である  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  や  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を 1 nm ( $\approx 1$  QL)  $\sim$  10 nm ( $\approx 10$  QL) の膜厚範囲でスパッタリングにより成長させた結晶薄膜を用いた（図 1）。これにより、3次元 TI から 2次元 TI へと量子相転移することに関して、表面フォノンのスペクトル変化からディラック・コーンの消滅に伴う電子-フォノン相互作用の効果を調べた。実際、Zhao らのラマン分光によると、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の膜厚が薄くなるとフォノンの周波数と線幅に変化が現れ、膜厚 5 QL 以下では、5 THz の光学モードに周波数のハードニングが観測されている。我々は、量子相転移点付近の膜厚試料に対して、フォノン周波数の励起キャリア密度および遅延時間依存性を測定することで、ラマン分光では観測が困難な動的な電子-フォノン相互作用の実時間ダイナミクスについて検証した。

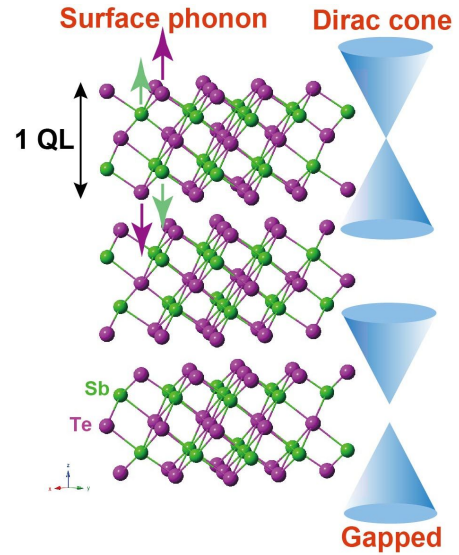


Fig. 1. Surface phonons in topological insulator,  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$ .

次に、確実に 3次元 TI である 10 QL 程度の膜厚の TI 薄膜に対して、表面第二高調波発生 (SHG) をプローブとした時間分解測定を行い、膜厚が 10 QL 程度の試料で表面フォノンの測定に挑戦した。さらに、フェムト秒再生増幅器による高密度光励起を行い、大振幅コヒーレント表面フォノンを誘起し、TI のバンドギャップを変調することで、フォノンによるトポロジカル絶縁体-ノーマル絶縁体間の量子相転移の可能性を探索した。この量子相転移の実験に関しては、 $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  などと同様のカルコゲン層状物質である遷移金属ダイカルコゲナイドの  $\text{MoTe}_2$  単結晶を試料とし、半金属-ワイル半金属間の量子相転移に関する実験も試みた。

さらに、 $0.07 < x < 0.22$  で TI になり、 $x = 0.5$  でワイル半金属になると理論的に予言されている  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  合金について、様々な混晶比  $x$  の配向性多結晶薄膜試料をマグネトロン・スパッタリングにより作製し、電子線プローブマイクロアナライザー (EPMA) を用いた混晶比  $x$  の評価、およびフェムト秒レーザーを用いたコヒーレントフォノン、およびキャリアダイナミクスの観測を行った。

### 4. 研究成果

まず大気中かつ室温において、典型的な TI である  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  や  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の様々な膜厚の試料においてコヒーレントフォノン測定を行い、信号の取得に成功した。さらに、3次元 TI から 2次元 TI へと量子相転移する膜厚において、3次元 TI 状態でのみ上述した動的なファノ干渉が観測されること、そして励起光強度依存性（電子密度依存性）が見られることから、その原因が表面の Dirac プラズモンに由来することを議論することができた（Physical Review B 誌で公表、図 2 参照）。観測したフォノンは、その周波数が大きくシフトしていないことから、表面フォノン

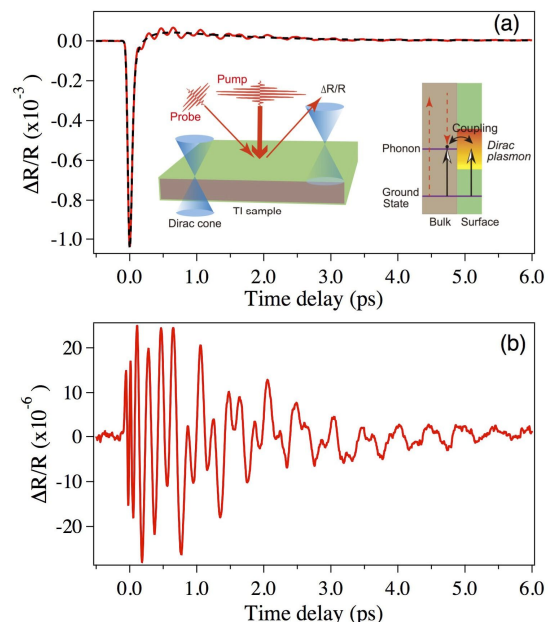


Fig. 2. Coherent phonons observed in topological insulator,  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$ .

よりもバルクフォノンの寄与が大きいと考えられる。

さらに、導入した光電子増倍管 (PMT) を、現有のレーザー光源であるフェムト秒レーザー発振器 (中心波長 830 nm, パルス幅 20 fs, 繰り返し 80 MHz, 3 nJ/pulse) を光源とした時間分解過渡反射測定装置に組み込み、主に  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  の 3 次元 TI 薄膜試料からの微弱な表面第二高調波 (SHG) 信号の検出からコヒーレント表面フォノン (光学モード) の観測を試みたところ、非常に小さいながらも SHG 信号が検出出来た。しかしながら、信号雑音比が悪く、マグネトロン・スパッタリングで成膜している  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  薄膜の結晶性改善を行った。その結果、スパッタリングターゲットの混晶比の依存性を調べることで、配向性が向上することが分かった。この結果は論文としてまとめて報告した (J. Phys. D: Appl. Phys. 誌)。さらに強い SHG 信号の観測には、さらなる結晶性改善が必須であると考えており、今後も継続していく予定である。

また、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  合金の薄膜試料作製を行い、混晶比  $x$  の値に依存してトポロジカル絶縁体あるいはワイル半金属になり得る可能性をコヒーレント光学フォノン観測から調べた。その結果、ワイル半金属になると予想される  $x = 0.5$  付近において、単純な合金散乱では説明出来ないような特異的な電子-フォノン散乱が存在することが分かった。この結果については応用物理学会で口頭発表するとともに、論文執筆をほぼ終えており、完成次第、国際学術雑誌に投稿する予定である。

一方、遷移金属ダイカルコゲナイドの  $\text{MoTe}_2$  の  $1\text{T}'\text{-MoTe}_2$  単結晶における室温でのコヒーレントフォノンを測定したところ、低温相である  $\text{T}_d\text{-MoTe}_2$  にしか存在しない低周波数の光学フォノン (0.39 THz) を光励起により観測した。この結果は、論文として報告した (Appl. Phys. Lett. 誌) が、半金属-ワイル半金属間の量子相転移の可能性を示唆しており、今後さらに研究を進展させていく予定である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Y. Saito, P. Fons, A. V Kolobov, K. Mitrofanov, K. Makino, J. Tominaga, S. Hatayama, Y. Sutou, M. Hase, J. D. Robertson	4. 巻 53
2. 論文標題 High-quality sputter-grown layered chalcogenide films for phase change memory applications and beyond	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 284002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6463/ab850b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 T. Fukuda, K. Makino, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, K. Ueno, and M. Hase	4. 巻 116
2. 論文標題 Ultrafast dynamics of the low frequency shear phonon in 1T -MoTe2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 93103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5143485	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 R. Mondal, Y. Saito, Y. Aihara, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, and M. Hase	4. 巻 10
2. 論文標題 A topological phase buried in a chalcogenide superlattice monitored by a helicity dependent Kerr measurement	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 26781-26786
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） <a href="https://doi.org/10.1021/acsami.8b07974">https://doi.org/10.1021/acsami.8b07974</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 R. Mondal, A. Arai, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, and M. Hase	4. 巻 205
2. 論文標題 Transient Fano Resonance in Topological Insulators Observed by Coherent Phonon Spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 EPJ Web of Conferences	6. 最初と最後の頁 4021
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） <a href="https://doi.org/10.1051/epjconf/201920504021">https://doi.org/10.1051/epjconf/201920504021</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Mondal Richarj、Arai Akira、Saito Yuta、Fons Paul、Kolobov Alexander V.、Tominaga Junji、Hase Muneaki	4. 巻 97
2. 論文標題 Coherent Dirac plasmons in topological insulators	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.97.144306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 小森 雄太, 齊藤 雄太, 長谷 宗明
2. 発表標題 Bi1-xSbxのワイル半金属領域における超高速フォノンダイナミクス
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Saito, P. Fons, A. V Kolobov, K. Mitrofanov, K. Makino, J. Tominaga, S. Hatayama, Y. Sutou, M. Hase, J. D. Robertson
2. 発表標題 Recent update on the growth of crystalline phase change materials by sputtering
3. 学会等名 相変化研究会シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Saito, A. V Kolobov, P. Fons, K. Mitrofanov, K. Makino, J. Tominaga, M. Hase, J. D. Robertson
2. 発表標題 Revisiting the growth mechanism of layered crystalline phase change materials by sputtering
3. 学会等名 European Phase Change and Ovonic Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 R. Mondal, A. Arai, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, and M. Hase
2 . 発表標題 Transient Fano Resonance in Topological Insulators Observed by Coherent Phonon Spectroscopy
3 . 学会等名 XXI International Conference on Ultrafast Phenomena ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 R. Mondal, T. Suzuki, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, and M. Hase
2 . 発表標題 Femtosecond magneto-optical response in chalcogenide superlattices
3 . 学会等名 European symposium on Phase-Change and Ovonic Sciences 2018 ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 R. Mondal, Y. Aihara, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, and M. Hase
2 . 発表標題 Investigation of the topological phase in a chalcogenide superlattice using magneto-optical Kerr effect
3 . 学会等名 The 30th Symposium on Phase Change Oriented Science ( 招待講演 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Richarj Mondal, Akira Arai, Yuta Saito Paul Fons, Alexander V. Kolobov, Junji Tominaga, Muneaki Hase
2 . 発表標題 Fano resonance in topological insulators revealed by coherent phonon spectroscopy
3 . 学会等名 第29回 相変化研究会シンポジウム(PCOS2017)
4 . 発表年 2017年

1. 発表者名 Muneaki Hase
2. 発表標題 Femtosecond spectroscopic studies on chalcogenide superlattices: structure and topological properties
3. 学会等名 European Phase Change and Ovonic Symposium 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

長谷研究室 <a href="http://bukko.bk.tsukuba.ac.jp/~mhase/indexJ.html">http://bukko.bk.tsukuba.ac.jp/~mhase/indexJ.html</a>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	齊藤 雄太  (Saito Yuta)  (50738052)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・主任研究員    (82626)	