

角度分解光電子分光による逆ペロブスカイト Ca_3PbO の
3次元ディラック電子状態の観測
ARPES studies of the inverse perovskite Ca_3PbO : Experimental confirmation
of a candidate 3D Dirac fermion system

小畑由紀子^{1,*}, 湯川龍², 堀場弘司², 組頭広志²,
戸田喜丈³, 松石聡³, 細野秀雄^{1,3},

¹東京工業大学 フロンティア材料研究所, 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259

²高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設,
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

³東京工業大学 元素戦略研究センター, 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259

Yukiko OBATA^{1,*}, Ryu YUKAWA², Koji HORIBA², Hiroshi KUMIGASHIRA²,
Yoshitake TODA³, Satoru MATSUIISHI³, and Hideo HOSONO^{1,3}

¹Laboratory for Materials and Structures, Institute of Innovative Research,
Tokyo Institute of Technology,

4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama, 226-8503, Japan

²Photon Factory, Institute of Materials Structure Science,
High Energy Accelerator Research Organization,
1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

³Materials Research Center for Element Strategy, Tokyo Institute of Technology,
4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama, 226-8503, Japan

1 はじめに

逆ペロブスカイト型化合物において3次元的なディラック電子の存在が理論的に予測され [1]、かつ新たなトポロジカル結晶絶縁体の候補物質群[2]として着目され、近年実験的な検証が進められている。例えば、 Sr_3PbO ではディラック電子系特有の高移動度キャリアの存在が確認され[3]、さらに Sr_3SnO においてはディラック電子状態と超伝導の共存の可能性が報告されている[4]。今回我々は同物質群の代表的な物質である Ca_3PbO について、理論で予測されている3次元ディラック電子状態の存在を検証することを目的として、軟X線角度分解光電子分光 (SX-ARPES) 測定を行った[5]。

2 実験

実験は KEK-PF BL-2A MUSASHI ビームラインにて行った。エネルギー可変の放射光を用いることで、 Ca_3PbO の3次元的なバンド構造を決定した。測定に際して、 Ca_3PbO が非常に大気不安定な物質のため、Ar ガスで充填されたグローブボックス内で試料準備を行った。ARPES 測定に必要な清浄試料表面は、 Ca_3PbO 単結晶試料を 1×10^{-10} Torr 以下の超高真空中で測定温度約 20 K にて劈開することによって得た。また、ホール測定の結果、ARPES 測定した Ca_3PbO 単結晶試料は、Ca 欠損によるホールドープされている状態であった。そのため、フェルミ準位をディラ

ック点へ近づけるべく (ディラック点を ARPES で観測すべく)、Pb を一部 Bi で化学置換し電子ドープを行った $\text{Ca}_3\text{Pb}_{0.92}\text{Bi}_{0.08}\text{O}$ についても同様の ARPES 実験を行った。

3 結果および考察

図1に $\text{Ca}_3\text{Pb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}$ ($x = 0, 0.08$)の ARPES 測定結果を示す。価電子帯が3つのバンド B1, B2, B3 で構成されていることが分かる。このバンド分散をより詳しくみるために、ARPES データの運動量分布カーブおよびエネルギー分布カーブから見積もったピーク位置をそれぞれ赤丸と青丸で示してある。得られたバンド構造は、バンド計算で求めた Pb 6p のバンド分散 [図1中の黒い点線]と良く一致していることが

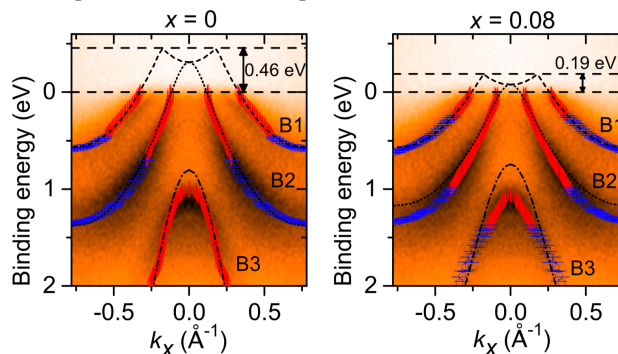


図1 : $\text{Ca}_3\text{Pb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}$ ($x = 0, 0.08$)の ARPES イメージ。

明らかになった。また、Bi ドープした試料ではフェルミ準位が上方へ移動していることが確認された。

ARPES で観測した 3 次元的なバンド構造がバンド計算によりよく記述されることから、この結果は Ca_3PbO の価電子帯における 3 次元的なディラックコーン状のバンドの存在を支持していると考えられる。

4 まとめ

本研究では、SX-ARPES を用いて Ca_3PbO の 3 次元的なバンド構造を決定した。その結果、実験で得られたバンド構造は、バンド計算によりよく記述されることが明らかとなった。さらに、実験と計算を比較することで、フェルミ準位近傍にディラックコーン状のバンド構造が存在することを示唆する結果を得た。また、Pb を一部 Bi で化学置換することで電子ドープ可能であり、フェルミ準位がディラック点に近づくことを実証した。これらの結果から、 Ca_3PbO に代表される逆ペロブスカイト酸化物群が 3 次元ディラック電子系の有力な候補であることを示した。

謝辞

本研究は文部科学省「元素戦略プロジェクト」電子材料研究拠点(TIES)の支援を受けて実施された。

参考文献

- [1] T. Kariyado and M. Ogata, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 064701 (2012).
- [2] T. H. Hsieh *et al.*, Phys. Rev. B. **90**, 081112(R) (2014).
- [3] 葉山慶平他、日本物理学会2014年秋季大会 8pBD-6
- [4] M. Oudah *et al.*, Nat. Commun. **7**, 13617 (2016).
- [5] Y. Obata *et al.*, Phys. Rev. B. **96**, 155109 (2017).

*yukikoo@post.kek.jp