

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：32660

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13524

研究課題名(和文) 単体Teを用いた新奇電気磁気効果とそれを応用した核スピン制御

研究課題名(英文) New magnetoelectric effect and nuclear spin manipulation in elemental tellurium

研究代表者

伊藤 哲明 (Itou, Tetsuaki)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・准教授

研究者番号：50402748

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：バルク物質において、電気的入力により磁氣的応答を引き出すという電気磁気効果は、その応用性から、現代物性物理学の重要課題として精力的に研究が行われている。この分野の近年の研究は「マルチフェロイクス」の枠組みから議論されているが、本研究ではこれとは全く異なる原理からのバルク物質新奇電気磁気効果の提案・実証に成功した。

舞台は、反転対称性が破れた物質におけるスピン軌道相互作用に由来するスピン分裂バンド系である。特に本研究では反転対称構造を持たない単体Teに着目し、この物質に電流を印加すると、バルクの電流誘起磁性(バルクスピン偏極電流)が現れることを、NMR法により実験的に証明することに成功した。

研究成果の概要(英文)：The magnetoelectric effect (electric/magnetic stimulus generates magnetic/electric response) in bulk matter is of growing interest both fundamentally and technologically. This effect has been studied intensively in multiferroic materials. We have discovered a new class of bulk magnetoelectric phenomenon, which is fundamentally distinct from that in multiferroic materials. We have demonstrated experimentally that in elemental tellurium, bulk magnetization is induced parallel to an applied current, which is quite beyond classical electromagnetism and the current framework for magnetoelectricity in multiferroic materials.

研究分野：物性物理

キーワード：電気磁気効果 電流誘起磁性 スピン偏極電流

1. 研究開始当初の背景

電気的入力により磁氣的応答を引き出すという電気磁気効果は、産業上巨大な応用性を持っており、現代物性物理学の重要分野として盛んに研究されている。

このような電気磁気効果の近年の研究は、基本的に「マルチフェロイックス」という枠組みの中で行われてきている。この枠組みは要約すると、「電気分極と磁気分極が共存している系があり、その両者がカップルしていれば、電気分極を制御することで磁気分極を制御できる(あるいはその逆)」という原理に基づいている。

その一方で、スピン・軌道相互作用は、運動する電子に有効磁場を与える効果を持つため、これにより新たな電気磁気効果を発現できる可能性があるはずである。特に反転対称性が破れた系においては、このスピン・軌道相互作用はバンド構造に対し重要な役割を果たし、アップスピンとダウンスピンのバンドが分裂したスピン分裂バンドを生むことになる。このようなスピン分裂バンドによる、新奇電気磁気効果は、表面・界面系において議論されることはあったが、バルク物質に対して議論されることはほぼ皆無であった。

2. 研究の目的

本研究は、「マルチフェロイックス」の枠組みとは全く異なる原理からの、バルク物質電気磁気効果の提案・検出・応用を目指すものである。この新原理の舞台は、「反転対称性が破れた系におけるスピン分裂バンド」である。このようなスピン分裂バンド系では電子が感じる巨大な有効内部磁場が存在しており、この内部磁場を利用してやれば、非従来型電気磁気効果の発現が可能になるはずである、という展望を我々は持っている。

結晶の反転対称性が破れた系においてスピン・軌道相互作用が働くとバンドがスピン分裂することは半導体ヘテロ界面等のラシュバ系で特に議論されてきた。しかしながら、このようなスピン分裂バンドは、従来の研究では見過ごされてきたものの、バルク系においても比較的普遍的に存在しているはずである。例えば、数十年前に研究されたが現在はほぼ注目されていない単体 Te がその良い例である。Te は一般には非磁性半導体と認識されているが、Te 結晶は反転対称性が無く、また Te 原子の持つ大きなスピン・軌道相互作用のために、巨大なスピン分裂バンドが生じていると期待できる。本課題では、このように従来見過ごされていたスピン分裂バンドを持つバルク物質を研究の舞台とする。

スピン分裂バンド系では、ゼロ電流下では

波数 k と $-k$ の電子の感じる内部磁場は同じ大きさで逆符号となっているため磁化は当然 0 であるが、電流印加によりフェルミ面をずらしてやれば、磁化キャンセルのバランスが崩れ、磁化が復活するようになるはずである。本研究ではこのような原理のバルクスピン分裂バンド系における電流誘起磁化(スピン偏極電流)の検出に挑戦する。このようなバルク電流誘起磁性を検出するには、マイクロ高感度磁性検出法である NMR がもっとも有利である。これによりスピン分裂バンド系における電流誘起バルク磁性発現という新奇電気磁気効果を示すことが目的である。

3. 研究の方法

一般に非磁性半導体と認識されている Te の結晶構造は、反転対称を持たず、 $P3_121$ または $P3_221$ の空間群を持つ。(それぞれ右手系 Te、左手系 Te と略称する。両者は反転操作で結ばれる。)

ゼロ電流下では Te はもちろん非磁性であるが、この構造に期待されるスピン分裂バンド構造を考察すると、電流を印加すると図 1 のようなスピン偏極電流、すなわち電流誘起磁性(右手系 Te は電流に平行、左手系 Te は反平行)が発生するはずである。

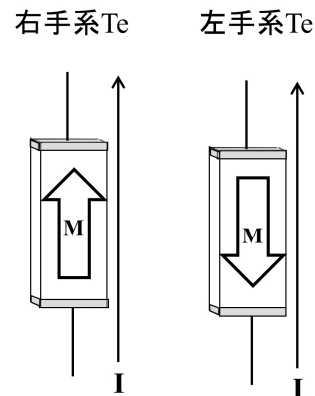


図 1 電流誘起磁性

この電流誘起磁化の検出には、高感度な磁化測定手法が必要となるため、磁化を高精度で測定できる NMR による磁化検出を目指す。この目的のために図 2 のような測定システムを構築し、パルス dc 電流を NMR 測定と同期させ、パルス dc 電流下の ^{125}Te -NMR スペクトルを観測することを行う。

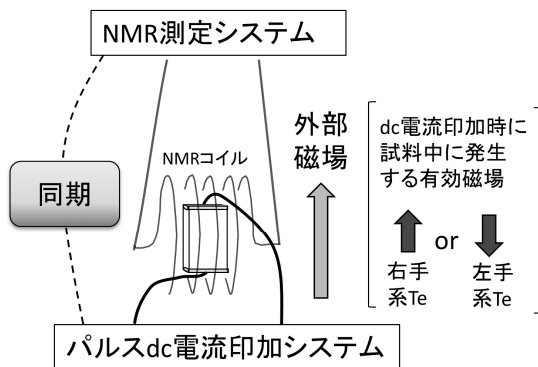


図2 電流誘起磁性検出測定系

具体的に行う手順は以下のとおりである。

(1) まず、電流印加していない状態で、通常のスピンエコー法により、 ^{125}Te -NMR スペクトルを観測する。試料に磁化はほぼなく、ほぼ外部磁場に対応する位置にシャープな共鳴スペクトルが観測されるはずである。

(2) 次に、NMR スピンエコー測定と同期した 1ms 程度の dc パルス電流 (最大 500mA 程度) を外部磁場と同じ向きに試料にかける。これにより、外部磁場と同じ向き (右手系 Te) or 反対向き (左手系 Te) 磁化が発生し、この磁化が作る内部磁場により、スペクトルシフトが起こると期待される。これを検出することで電流誘起磁性を実証することが目標である。

4. 研究成果

本研究では、空間反転対称性を持たない三方晶単体 Te に対し、パルス dc 電流印加によって電流誘起磁性 (スピン偏極電流) が発現することの実験的検出を目標とした。

この目的のために、まず、NMR 測定をパルス dc 電流印加と同期させる測定システムの構築を行った。これにより、1 ms 程度の時間のパルス電流印加下における NMR スペクトル測定を可能とする実験システムの構築に成功した。

次に、大電流印加のため、単体 Te に対する良質な電極作成法の探索を行った。様々な電極を試した結果、Ti + Au 蒸着膜の上に常温銀ペーストで電極を作成する方法が最も良質な電極となることを見出した。

以上の方法のもと、大電流を印加しながらジュール熱の影響なしに ^{125}Te -NMR スペクトルを測定することを可能とした。

これらの下準備のもと、単体 Te に対し、最大 500mA のパルス電流印加をしながら ^{125}Te -NMR 測定を行った。結果、図 3 に記すとおり、 ^{125}Te -NMR スペクトルが電流印加により明確にシフトすることを見出すことに成功した。さらにこのシフトは印加電流に比例しており、また電流を反転させるとシフトの向きも反転することを明らかとした。これらのことは、非磁性半導体と認識されていた単体 Te に電流を流すと、その電流に応じた磁化が現れることを明確に示している。

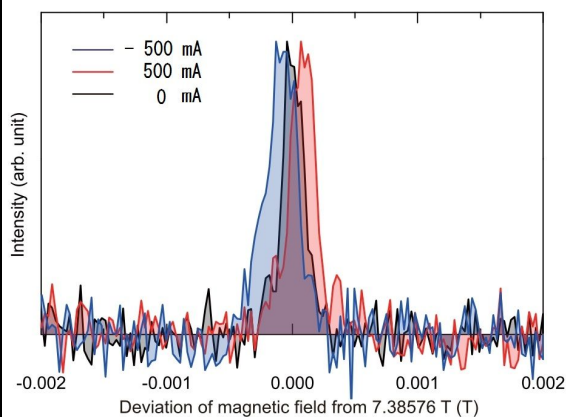


図3 電流印加による ^{125}Te -NMR スペクトルのシフト

さらに、この電流誘起磁性を定量的に見積もるために、 ^{125}Te -NMR スペクトルシフトの印加電流依存性の解明を試み、詳細な結果を得ることに成功した。得られた結果を図 4 に示す。この結果より、核スピンの感じる電流誘起磁場は電流に正確に比例していることを示すことに成功し、さらに、その比例係数が $8.4 \times 10^{-4} \text{ mT A}^{-1} \text{ cm}^2$ であることを実験的に明らかとした。

さらに、この実験結果を解析するべく、Te のスピン分裂バンド構造から期待される電流誘起磁化をボルツマン方程式を用いて定量的な見積もりを行い、この理論的な見積もりと実験値が近い値になることを確認することに成功した。

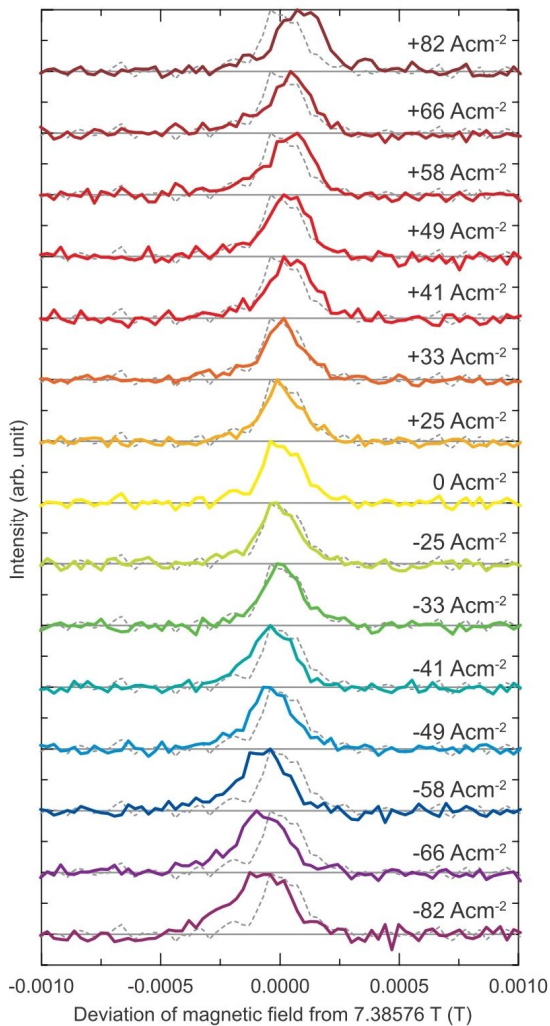


図4 ^{125}Te -NMR スペクトルシフトの印加電流依存性

これらの結果より、従来非磁性半導体と認識されていた単体 Te に電流を流すと、その電流に比例したバルク磁化がスピン分裂バンド効果により現れることを明確に示すことに成功したといえる。

この成果は、従来議論されてきたマルチフェロイクスの枠組み等とは本質的に異なる新奇電気磁気効果の提案・検証に成功したものであり、電気磁気物性論の大きなブレークスルーとなるものである。
(現在論文投稿中)

<さらなる発展>

このように、バルクバンドのスピン分裂に由来する電流誘起磁化現象の検証に成功し、当初掲げていた目標は達成された。

この成果をさらに展開するべく、このスピン分裂はバンドギャップに大きく影響を受けるはずであろうことに着目し、さらなる発展に向けて研究の舵を進めた。

Te のバンドギャップは、加圧により抑制されることが過去から知られている。従って、加圧によりバンドギャップをつぶすことで、バンドスピン分裂は増強し、電流誘起磁性の発散的増大が生じうるといった発展的着眼点をおいた。この効果を検証するため、圧力下において電流印加下の ^{125}Te -NMR スペクトルを測定し、確かに電流誘起磁化が圧力により増大していく傾向を観測することに現在成功しつつある。

以上のように、2年間という研究期間の中で、バルクスピン分裂バンドによる新たな電気磁気効果の検証に成功し、さらにその効果の次なる発展の方向を指し示すことに成功したことをここに報告する。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

K. Kobayashi, T. Ueno, H. Fujiwara, T. Yokoya, and J. Akimitsu
Unusual upper critical field behavior in Nb-doped bismuth selenides
Phys. Rev. B **95**, 180503(R), p1-5 (2017).
査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.180503

〔学会発表〕(計 4 件)

古川哲也
反転対称性の破れた単体 Te における電流誘起磁性の圧力効果
日本物理学会 第 72 回年次大会
2017 年 03 月 17 日 ~ 2017 年 03 月 20 日
大阪大学(大阪府豊中市)

伊藤哲明(招待講演)
ランダムネス下特異 Mott 転移、三角格子特異超伝導、反転対称の破れた系における電流誘起磁性
平成 28 年度物性研究所短期研究会「パイ電子系物性科学の最前線」
2016 年 8 月 8 日 ~ 2016 年 8 月 10 日
東京大学物性研究所(千葉県柏市)

下川裕理
単結晶 Te におけるパルス電流下 NMR 測定に

よる電流誘起磁性の検出
日本物理学会 第71回年次大会
2016年03月19日～2016年03月22日
東北学院大(宮城県仙台市)

下川裕理
単体Teのパルス電流下NMR測定
日本物理学会, 2015年秋季大会
2015年09月16日～2015年09月19日
関西大学(大阪府吹田市)

〔その他〕
ホームページ等
http://www.rs.tus.ac.jp/itou_lab/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伊藤 哲明 (Itou Tetsuaki)
東京理科大学・理学部第一部応用物理学
科・准教授
研究者番号：50402748

(2) 研究分担者

小林 夏野 (Kobayashi Kaya)
岡山大学・異分野基礎科学研究所・准教授
研究者番号：60424090