

令和元年6月11日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05437

研究課題名(和文) マルチバンドk.p理論に基づく結晶スピン軌道結合効果の研究

研究課題名(英文) Theory of effect on the crystalline spin-orbit coupling based on the multiband k.p theory

研究代表者

伏屋 雄紀 (Fuseya, Yuki)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・准教授

研究者番号：00377954

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：(1) 相対論的マルチバンドk.p理論に基づき、g因子およびスピン分裂因子Mの一般公式を導いた。得られた公式をPbTeおよびSnTeに適用し、PbTe側では $M < 1$ 、SnTe側では $M > 1$ となることを示した。このことから、スピン分裂変数を測定すれば、バンド反転(トポロジカル転移)がバルク測定で検証できることを提案した。また、Mを測定すれば、系のトポロジーが決定できることも示した。

(2) スピン軌道結合が強い系に共通するハミルトニアンにおいて、その表面状態の厳密解を得た。これを元に、表面状態におけるトポロジーの違いが、薄膜では判別できないことを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、物質が持つトポロジカルな性質の研究が急速に進められ、物質中の相対論効果(スピン軌道結合)が再注目されています。物質のトポロジカルな性質は表面状態にあると期待されることから、これまでは表面研究が主に進められてきました。本研究では、トポロジカルな性質が物質内部(バルク)の性質にも現れ得ることを初めて示しました。この研究により、トポロジカルな性質の研究がバルクにも広がることが期待されます。

研究成果の概要(英文)：(1) General formulae for the g-factor and the spin-splitting factor M were obtained based on the relativistic multiband k.p theory. It was shown that  $M < 1$  for PbTe and  $M > 1$  for SnTe by applying the obtained formulae to PbTe and SnTe. Based on these findings, it was proposed that the band inversion (topological transition) can be detected by the bulk measurement of the spin-splitting factor. Furthermore, it was shown that the topology of the system can be determined by the measurement of M.

(2) Exact solutions of the general Hamiltonian that is common to the system with strong spin-orbit coupling were obtained. Based on these exact solutions, it was shown that the difference of the topology in the surface states cannot be distinguished for thin films.

研究分野：物性理論

キーワード：スピン軌道結合 スピン分解量子振動 g因子 表面状態 トポロジカル絶縁体 Bi PbTe

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

**固体中電子のスピン軌道結合** 現代固体物理学の中心的テーマの一つは、固体中のスピン軌道結合 (SOC) をいかに理解するかということである。関連する分野は磁性、量子輸送現象からトポロジカル絶縁体、スピントロニクス、マルチフェロイクスなど多岐に渡る。SOC 自体は相対論的量子力学の自然な帰結であり、孤立原子の場合はよく理解されている。しかし固体中電子の場合は容易でない。SOC の効果は結晶構造および電子の持つ波数に大きく依存するため、様々な物質間で統一的に理解することは極めて困難である。同時に、多岐に渡る分野の根幹を成すだけに是非解き明かさなくてはならない問題でもある。

**バルクにおける問題点** SOC がもたらす顕著な効果の一つとして、ゼーマン分裂の大幅な変調が挙げられる。このこと自体は古くから知られていたが、ごく一般的で基本的な理解にとどまっており、具体的な物質における定量的な理解についてはほとんど進展がなかった。特に従来理論では SOC が強い物質のゼーマン分裂の実験を定性的にすら説明することが出来ず、半世紀以上にわたり未解決であった。

**表面における問題点** SOC がもたらすもう一つの顕著な効果として、特殊な表面状態の出現が挙げられる。これはトポロジカル不変量で特徴付けられ、それが“非自明”な場合に、表面金属状態が出現するとされる。トポロジカル絶縁体の提唱以降、この分野の研究は爆発的に進んでいる。Bi はその典型物質で、Sb 置換によりトポロジカル不変量が自明から非自明に転移すると予測された。直後に実際に非自明な領域で特徴的な表面金属状態が観測されたことから、一時は最初の3次元トポロジカル絶縁体の証拠とされた。

しかしその後、この実験が見ていた表面状態は表面の不完全性によるものである可能性が指摘され、事態は振り出しに戻った。さらに最近になって (研究開始当初)、自明であるはずの (Sb 置換しない) Bi でも非自明な表面状態を示唆する実験結果が報告された。トポロジカル不変量と表面状態の出現が一見対応しないか見え、この矛盾をどう理解するかが大きな問題となった。

## 2. 研究の目的

本研究では、相対論的マルチバンド  $k, p$  理論を用いて様々な物質における SOC の効果をバルク状態と表面状態の双方を具体的に調べ、それらを俯瞰し統一的に解析することで、様々な物質の根底に潜む SOC 効果の普遍的理解を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

研究方法の基盤は相対論的マルチバンド  $k, p$  理論である。固体物理学の一般的教科書では、 $k, p$  理論はせいぜい有効質量を求めめるための方法のように記述されることが多い。しかし  $k, p$  理論はもっと奥深く、多様な用途がある。ここで用いる相対論的マルチバンド  $k, p$  理論は、本研究の目的に合うよう改良を重ねた結果、以下の特徴を持つに至っている。

- (i) SOC を相対論的に (非摂動的に) 取り扱える
- (ii) 磁場の効果を厳密かつ容易に取り扱える (ブロッホバンドに基づく場合、極めて困難)
- (iii) バルクと表面を同じハミルトニアンから出発して並行に計算できる
- (iv) 群論や対称性の考察から一般的概念の抽出が可能
- (v) バンド計算と組み合わせれば定量的な物性予測が可能

## 4. 研究成果

研究は (1) バルク状態の計算、(2) 表面状態の計算、(3) バルクと表面の関係性、の3段階で行った。

### (1) バルク状態の計算

①  $Pb_{1-x}Sn_xTe$  におけるスピン軌道結合とスピン分裂因子 IV-VI 族半導体 (PbTe, SnTe 等) は熱電材料として、またディラック電子の典型物質として知られる。最近の研究により、PbTe はトポロジカルに自明であるが、SnTe はトポロジカルに非自明であり、Pb を Sn に置換する ( $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ) ことでトポロジカル転移が起きると指摘され、新たに注目を集めている。

我々は独自の相対論的マルチバンド  $k, p$  理論およびバンド計算 (相対論的強束縛近似) に基づき、 $Pb_{1-x}Sn_xTe$  の  $g$  因子およびスピン分裂変数を計算し、次の結果を得た。

(i) これまで、スピン分裂変数  $M$  (ゼーマンエネルギーとサイクロトロンエネルギーの比) が、どのような値を取るかについては、非常に

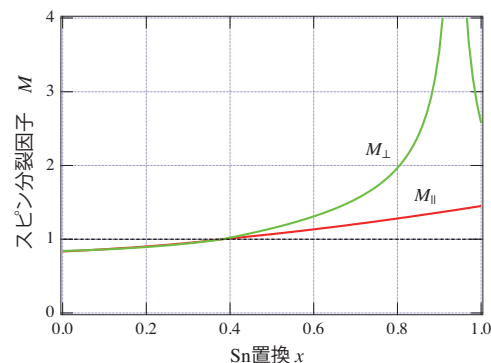


図1. スピン分裂因子の Sn 置換依存性.  $x=0.4$  付近でバンドが反転し、トポロジーが転移する

特殊な場合を除いて全く予想がつかなかった。この問題に対して、独自に導いた g 因子の一般公式を用いることで、詳細な計算なしにスピン分裂変数の値を判別できる、一般的理解を得た。

(ii) 上で得た知識を  $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$  に適用した場合、 $\text{PbTe}$  では  $M < 1$ 、 $\text{SnTe}$  では  $M > 1$  になる。つまり、トポロジカル転移をスピン分裂変数で検出出来ることとなる。これまで系のトポロジーは表面測定でしか判別できないとされていたが、今回の研究により、バルク測定でトポロジーを判別できることが分かった。このことはトポロジカル物質科学に新しい研究の道筋をもたらすことになる。

(iii) スピン分裂変数は、ベリ一位相  $\phi$  と  $M = \phi / \pi$  の関係にある。過去にディラック電子では厳密に  $\phi = \pi$  となる指摘があったため、あたかもベリ一位相は 0 か  $\pi$  かの 2 値しか取らないかのような主張が多く見られた。これに対し、本研究によって、 $M(\phi)$  は連続的な値を取り、バルクバンドギャップが厳密にゼロになる（つまりバンドが反転する）ときのみ  $M = 1$  ( $\phi = \pi$ ) になることが明らかとなった。

**②g 因子の厳密計算** 我々が導いた g 因子の一般公式(①で用いたもの)は、Löwdin partitioning と呼ばれる一種の摂動論を用いていた。摂動計算は (サイクロトロンエネルギー) / (バンドギャップ) に対して展開されており、バンドギャップに対して弱磁場極限でのみ厳密な公式であった。一方、実験的に g 因子は、量子振動測定から決定され、強磁場で測定される。したがって、理論と実験で磁場領域が大きく異なっているという問題があった。

そこで本研究では、摂動論を用いずに、厳密に g 因子を計算できる新しい計算手法を開発した。g 因子は磁場中のエネルギー準位 (ランダウ準位) を計算することで決定できる。磁場中エネルギー準位の計算を最も困難にしているのは、運動量演算子  $\pi$  が交換しないことである。この量子力学的性質により、単純な対角化では磁場中エネルギーを求められない。この困難を回避するために、①では摂動論を用いた。

今回我々は、運動量演算子の交換関係が調和振動子のものと等価であることに着目し、ハイゼンベルグ・ボルン・ヨルダンによる行列力学を用いれば、磁場中エネルギーを厳密に計算できることを発見した。(  $\pi$ -matrix 法とよぶ) この手法を  $\text{PbTe}$  に適用したところ、これまでスピン分裂変数について理論と実験で大きな隔たりがあったが、その隔たりは磁場領域の違いによるもので、強磁場においてスピン分裂変数を計算すれば、実験とも一致する値を得た。

## (2) 表面状態の計算

Fu-Kane は 3 次元トポロジカル絶縁体の例として、 $\text{BiSb}$  合金を取り上げた。それまでのバンド計算に基づけば、 $\text{Bi}$  はトポロジカルに自明であるが、 $\text{Sb}$  は非自明である。両者は半金属であるが、 $\text{BiSb}$  合金 (ただし 9% $\text{Sb}$  置換以上) にすると半導体となり、トポロジカル絶縁体となることが期待される。このトポロジーの転移により、表面状態は  $\text{Bi}$  と  $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$  で大きく異なることが予想された。しかし角度分解光電子分光による表面状態の観測では、両者の表面状態に大きく変化がないことが報告された。つまり、バルクのトポロジーが転移しているにもかかわらず、表面状態に質的な変化がないことになり、これまで信じられてきたバルク-エッジ対応も含め、従来トポロジカル物性の理解に大きな疑問が投げかけられ、様々な議論を呼んでいる。

$\text{Bi}$  の表面状態に関する理論はこれまで第一原理計算や強束縛近似計算など、数値シミュレーションの結果があったが、前者は膜厚に限界があり、後者は現象論的パラメータの根拠が乏しいため、いずれも不確実性を残していた。そこで本研究では、これら数値シミュレーション研究とは相補的に、相対論的マルチバンド k.p ハミルトニアン (拡張 Wolff 模型) を出発点にとり、 $\text{Bi}$  表面状態の厳密な解析解に基づいて研究を行った。

表面解として、a, b 二種類の解があり (図 2)、それぞれに対する存在条件は、面直方向の有効質量で定義される変数  $\beta$  の符号によって定められることが分かった。両者の違いはバルク表面であれば明確である (図 2 (a), (b))。しかし膜厚を薄くすると、表と裏の表面状態が干渉し、表面解 a にギャップが開く (図 2 (c))。膜厚がある程度薄くなると、表面ギャップの大きさがバルクギャップを上回り、結果として解 a と b が区別できなくなることが分かった (図 2 (e), (f))。驚くべきことに、 $\text{Bi}$  の場合、従来はバルクと見なしてよい 200 層 (80 nm) でも表面状態の干渉が強く、図 2 (e) の状況になることが分かった。これはビスマスが非常に小さな有効質量 (自由電子の 1/1000 程度) を持つため、フェルミ波長が通常の 1000 倍にもおよぶことが原因である。

以上の解析解から、 $\text{Bi}$  の場合、200 層程度の薄膜測定であれば、バルクのトポロジーが転移しても、表面状態に質的な変化が現れないことが分かった。このことはこれまでの実験結果をよく説明する

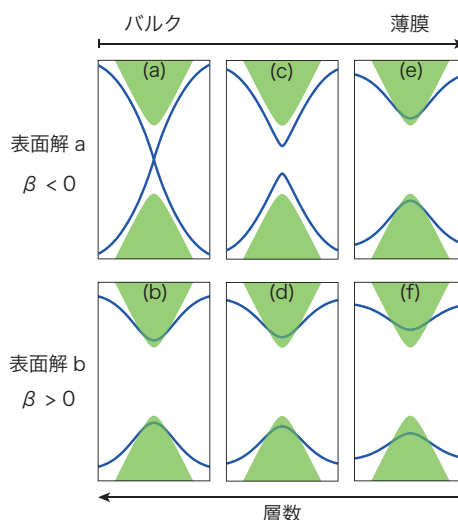


図 2. 2 種類の表面解。バルクでは両者の違いは明確だが、薄膜では区別がつかない。

ことが出来る。

### (3) バルクと表面の関係性

(2) で見たように、バルクギャップが小さい場合、表面状態の観測ではトポロジを明確に決定することがなかなか難しいことが分かった。そもそも物質のトポロジは、バルクの電子構造によって定義される。そこで本研究では、(1)(2) で得た知見を元に、バルク測定によってトポロジを決定する、新しいアプローチを提案した。

(2) -①の研究で、PbTe の場合はバンド反転だけでなく、スピン分裂因子が 1 より大きいかわ小さいかでトポロジも決定できることが分かった。この理解を応用すれば、Bi 等他の物質でもトポロジを決定できるのではないかと、というのが我々の新しいアイデアである。Bi の場合は対称性が PbTe より低い上、バンド順も単純でないことから、M の大小は磁場方向によって異なる。それでも、Liu-Allen 模型に基づいて解析すれば、Bi における既存の量子振動測定の結果は、Bi が自明であることを強く示唆していることが分かった。今後 Bi および BiSb のスピン分裂変数が実験的にも理論的にもより詳しく調べられれば、バルク測定によって Bi のトポロジが決定されるに違いない。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 9 件)

### ※以下全ての論文は【査読あり】

[1] “Longitudinal and transverse magnetoresistance of SrTiO<sub>3</sub> with a single closed Fermi surface”

Y. Awashima & Y. Fuseya, J. Phys.: Condens. Matter **31**, 29LT01 (2019)

<https://doi.org/10.1088/1361-648X/ab1b05>

[2] “Magnetoresistance of semimetals: The case of antimony”

B. Fauque, X. Yang, W. Tabis, M. Shen, Z. Zhu, C. Proust, Y. Fuseya & K. Behnia, Phys. Rev. Materials **2**, 114201 (2018) Editors' Suggestion

DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.114201

[3] “Corrections to the magnetoresistance formula for semimetals with Dirac electrons: the Boltzmann equation approach validated by the Kubo formula”

M. Owada & Y. Fuseya, J. Phys.: Condens. Matter **30** 445601 (2018)

<https://doi.org/10.1088/1361-648X/aae03c>

[4] “Magnetoresistance and valley degree of freedom in bulk bismuth”

Z. Zhu, B. Fauque, K. Behnia & Y. Fuseya, J. Phys.: Condens. Matter **30**, 313001 (2018)

<https://doi.org/10.1088/1361-648X/aaced7>

[5] “Analytical Solutions for the Surface States of Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0 ≤ x ≤ 0.1)”

Y. Fuseya & H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 044710 (2018)

<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.044710>

[6] “Emptying Dirac valleys in bismuth using high magnetic fields”

Z. Zhu, J. Wang, H. Zuo, B. Fauque, R. D. McDonald, Y. Fuseya & K. Behnia, Nat. Commun. **8**, 15297 (2017)

DOI: 10.1038/ncomms15297

[7] “Crystalline spin-orbit interaction and the Zeeman splitting in Pb<sub>1-x</sub>Sn<sub>x</sub>Te

H. Hayasaka & Y. Fuseya, J. Phys.: Condens. Matter, **28**, 31LT01 (2016)

doi:10.1088/0953-8984/28/31/31LT01

[学会発表] (計 3 2 件)

「半金属アンチモンの角度依存磁気抵抗」大和田光明, 栗島裕大, 伏屋雄紀, 日本物理学会, 2018 年

「強スピン軌道結合系における異常なゼーマン効果の理論」猪崎優喜, 伏屋雄紀, 日本物理学会, 2018 年

「強スピン軌道結合系における異常なゼーマン効果の理論」栗島裕大, 大和田光明, 伏屋雄紀, 日本物理学会, 2018 年

“Analytical solutions for the surface states of  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ ”  
Y. Fuseya, 34<sup>th</sup> European Conference on Surface Science, 2018

「 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  表面状態の解析解：半無限系と有限膜厚系」伏屋雄紀, 福山秀敏, 日本物理学会 2018 年

“Anomalous g-factor in strongly spin-orbit coupled systems”  
Y. Fuseya, Z. Zhu, B. Fauque, W. Kang, B. Lenoir & K. Behnia, International Workshop: Physics of Uranium based Unconventional Superconductors, 2017

“Valleys and their nematicity in bulk bismuth”  
A. Collaudin, Z. Zhu, B. Fauque, Y. Fuseya, W. Kang & K. Behnia, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES) 2017

[図書] (計 1 件)

「基礎物理学 電磁気学」秋光純, 村上修一, 前田はるか, 伏屋雄紀 共著 (培風館, 2016)