

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 15 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25287079

研究課題名(和文) 高分解能角度分解光電子分光によるディラック電子系における微細電子構造の解明

研究課題名(英文) Fine electronic states of Dirac-electron systems studied by high-resolution ARPES

研究代表者

佐藤 宇史 (Sato, Takafumi)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10361065

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,600,000円

研究成果の概要(和文)：ディラック電子系における基盤電子構造と特異物性発現機構との関連を明らかにするために、スピン分解ARPES装置の建設・改良を行い、ディラック電子系、とりわけグラフェン関連物質、鉄系超伝導体、トポロジカル絶縁体・半金属の電子状態を、高分解能ARPESによって精密に決定した。その結果、グラフェンのバンドギャップ制御、鉄系超伝導体母物質ネマティック相におけるディラックコーンの観測、強磁性体-ラシュバ金属界面におけるディラック電子の質量制御、新奇トポロジカル半金属の同定などに成功した。これらの結果から、観測されたディラックコーン電子状態、結晶対称性、および特異物性発現機構との密接な関連を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have developed high-resolution spin-resolved photoemission spectrometer to clarify the relationship between basic electronic states and origin of anomalous physical properties in Dirac electron systems, and have performed high-resolution angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) studies on graphene-based materials, iron-based superconductors, and topological insulators/semimetals. We have succeeded in (i) controlling the band gap of graphene by surface adsorption, (ii) observing Dirac-cone band in the nematic phase of parent iron-based superconductors, (iii) controlling Dirac-fermion mass at the interface between ultrathin ferromagnet and Rashba metal, and (iv) discovering new types of topological semimetals. From these results, we have clarified close relationship among Dirac-cone electronic states, crystal symmetry, and origin of unconventional physical properties.

研究分野：光電子固体物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 鉄系超伝導体 ディラックコーン スピン偏極 フェルミ面

1. 研究開始当初の背景

グラフェンの単離と量子ホール効果の発見やトポロジカル絶縁体の発見などを契機として、近年「ディラック電子系」の研究が世界中で盛んに行われている。このディラック電子系では、物質内における電子の相対論的振る舞いが物性に密接に関連しているため、通常の電子系では発現しない新奇物性が理論的に予言されており、その特異な電子的性質を利用したデバイス応用という観点からも非常に注目されている。

これまで幾つか発見されているディラック電子系の中でも、とりわけ際立った性質を持つのが「トポロジカル絶縁体」である。この物質はバルクが絶縁体であるのに対して、その表面では、強いスピン軌道相互作用により、特殊なスピン状態(ヘリカルテクスチャ)を有するディラックコーン(図 1)と呼ばれる金属状態が現われ、物性を大きく特徴付けることが知られている。そのため、現在トポロジカル絶縁体の新物質探索とその電子状態の解明が現在急ピッチで進められている。

トポロジカル絶縁体と同様、グラフェンにおいもディラックコーンは電子物性の鍵を握っている。グラフェンは、層数の違いによって電子構造とそれに付随した物性が劇的に異なる事が指摘されている。例えば、単層グラフェンでは有効質量ゼロのディラック電子が出現しゼロギャップ半導体となる一方、2層グラフェンではディラック電子が消滅し、電場印加や元素吸着などによってディラックコーンにエネルギーギャップを開ける事ができ、半導体技術の基本となるバンドギャップ制御が可能となることが実証されつつある。

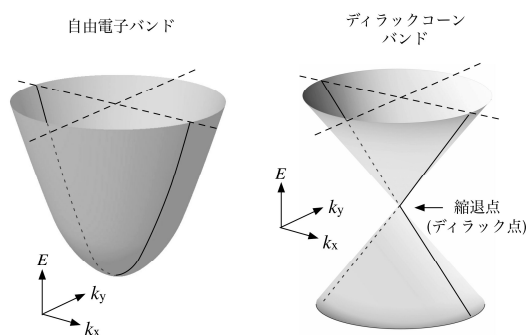


図 1: 自由電子バンドとディラックコーン

これらのディラック電子系の物性解明のためには、その鍵を握るディラックコーンの精密観測が必要不可欠である。この点で、波

数分解した電子状態を直接観測できる角度分解光電子分光(ARPES)の果たす役割は非常に大きく、ディラック電子系ではこれまで主に米国と日本のグループを中心とした ARPES 実験により電子状態が詳細に調べられ、新型トポロジカル絶縁体の同定やグラフェンにおけるバンド形状の精密決定などが報告されている。一方で、現在未解決の問題が数多く残されている。例えば、(1)半導体基板にエピタキシャル成長したグラフェンではエネルギーギャップが観測されるという報告があり、本当に有効質量ゼロのディラック電子系が実現しているかどうか不明である。(2)3次元のグラファイト層間化合物(GIC)では超伝導が発現するが、その2次元極限(2層グラフェン)においての超伝導の有無は未解明である。(3)過去に報告されたトポロジカル絶縁体のバンドギャップの大きさは室温で安定なデバイス動作や表面輸送現象を保證するには不十分である。さらに、(4)鉄系超伝導体におけるディラック電子と物性との対応や超伝導発現機構との関連は未解明である。これらの本質的な問題を解決する事が、今後ディラック電子系における新規物理現象の解明やそのデバイス応用にむけて極めて重要な役割を果たすと考えられる。

2. 研究の目的

上記の研究背景をベースに、本研究では以下に示す内容を目的とした。具体的には、(1)SiC 上に2次元 GIC を薄膜成長し、その電子状態と超伝導の有無を明らかにする。(2)トポロジカル絶縁体候補物質の高分解能 ARPES を行う事で、バンドギャップのより大きな新型のトポロジカル絶縁体を探索する。(3)多軸回転試料マニピュレータおよび多段型ミニモットスピン検出器を開発して光電子分光装置に組み込み、様々な元素を吸着/挿入したグラフェンやトポロジカル絶縁体の表面スピン構造を波数分解して決定する。(4)鉄系超伝導体などの新規ディラック電子系候補物質の ARPES を行い、ディラックコーン状態の有無を確定する。これらを中心に据えた研究を推進することにより、ディラック電子系における基盤電子構造、およびその物性発現機構との関連の解明を目指した。

3. 研究の方法

ディラック電子系における微細電子構造

を解明するために、高分解能スピ分解光電子分光装置の改良整備、とりわけ、多軸回転試料マニピュレータおよび多段型ミニモット検出器の開発と装置への接続調整を行った。改良した装置を用いて、ディラック電子系物質、具体的には、単層・多層グラフェンとその層間化合物、トポロジカル絶縁体、鉄系超伝導体、新規ディラック電子系のスピ分解 ARPES を行い、フェルミ面、バンド分散、スピ偏極率とスピベクトル、および準粒子のダイナミクスを、バルク・表面・界面に分離して高精度で決定することで、物性の起源となる電子構造を明らかにした。また、これらの物質の電子状態を相互比較することにより、ディラック電子系の電子構造と特異物性発現機構との関係について考察した。

4. 研究成果

(1) 高分解能スピ分解光電子分光装置の改良

高分解能スピ分解光電子分光装置の建設・改良、とりわけスピ検出系の改良を行った。スピ分析器の心臓部となるターゲット薄膜材料の作製を行い、清浄試料表面を得る事に成功した。また、スピ検出の際に電子を振り分ける電子偏向器と鉄薄膜ターゲットまでのレンズ電圧調整などを種々の電子パスエネルギーで行い、鉄薄膜ターゲットからの高い反射強度を得る事に成功した。さらに、ターゲット周辺の超高真空排気系の強化を行うことで、ターゲットの交換をせずとも一ヶ月以上も安定してスピ分解光電子分光測定を行うことができるようになった。また、スピ分解光電子分光装置と分子線エピタキシー(MBE)装置とのマッチング調整を行い、単結晶 MBE 薄膜の作製と、スピ分解 ARPES によるその電子状態評価を高効率で行うことができるシステムが確立した。

(2) ディラック電子系の電子状態の研究

装置の建設・改良とともに、種々のディラック電子系物質においてフェルミ準位近傍における電子状態の研究を行った。以下に、主要な研究成果を示す。

【グラフェンにおけるディラック電子の質量獲得】

SiC に単層グラフェンを成長し、その表面に酸素分子を吸着してその電子構造を高分解能 ARPES によって調べた。その結果、酸素

量の増加に伴ってディラック点のエネルギーが変化するとともに、バンドギャップが増大する様子を明確に観測した(図 2)。この実験事実から、単層グラフェンにおけるディラック電子の質量獲得には酸素吸着が有効であると結論した。

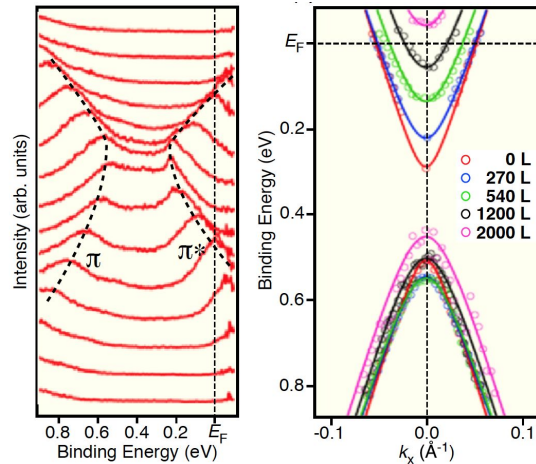


図 2: 酸素吸着グラフェンにおけるディラックコーンのエネルギーギャップ

【トポロジカル絶縁体におけるディラックコーンとスピ偏極】

様々なトポロジカル絶縁体について角度分解光電子分光(ARPES)実験を行った結果、表面バンドにおいて物質の種類に強く依存した六回対称のフェルミ面およびバンド構造の歪みを観測した(図 3)。スピ分解 ARPES 実験により、これらの表面ディラック電子状態は共通して面内ヘリカル方向のスピ偏極度を示す一方で、物質の種類に依存して面直方向にも有限のスピ偏極度を示すことを見出した。バンドの歪みを定量的に評価した結果、スピ面直成分とバンドの歪みには明確な相関がある事がわかった。この結果は、表面ディラック電子のスピ偏極度とバンド形状の相関関係を初めて示したものであり、基礎実験やデバイス応用などにおいて、

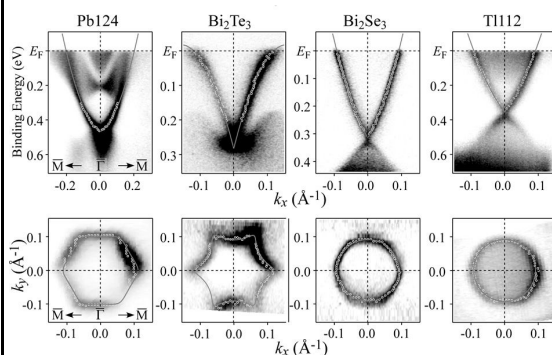


図 3: 様々なトポロジカル絶縁体のディラックコーン表面バンド

トポロジカル絶縁体のスピンを制御する上での実験的指針を与える。

【鉄系超伝導薄膜のディラック電子】

分子線エピタキシー法によって最も単純な結晶構造を持つ鉄系超伝導体である FeSe の超薄膜を SrTiO₃ の上に成長させる事に成功し、その電子状態を高分解能 ARPES によって決定した。その結果、ブリルアンゾーンの対称点から少しずれた波数において、低温でディラックコーン的なバンド分散を見出した(図 4)。さらに、ブリルアンゾーンの端付近において顕著なバンド分裂を観測し、高温常伝導相ではこの分裂が消失することを見出した。さらに、ブリルアンゾーンの中心においても、相転移に関連したバンドのエネルギーシフトを観測した。この事から、FeSe の低温秩序相は、電子ネマティック相に起源を持つと結論した。

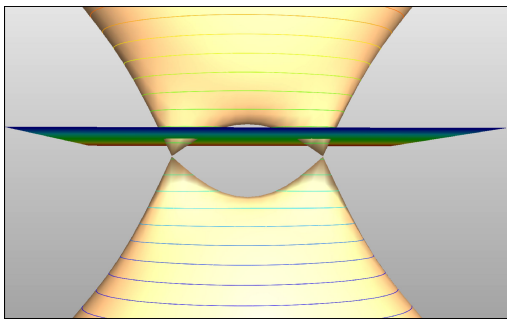


図 4: FeSe 原子層薄膜のネマティック相におけるディラックコーン

【ラシュバ金属-強磁性薄膜接合界面におけるディラック電子の質量制御】

強磁性金属である鉄とスピン軌道相互作用の強いタングステンの界面において、ディラック電子によるディラックコーン的なバンド分散を見出した(図 5)。また、鉄の磁気モーメントによってディラックコーンに非常に大きなエネルギーギャップを開けることに

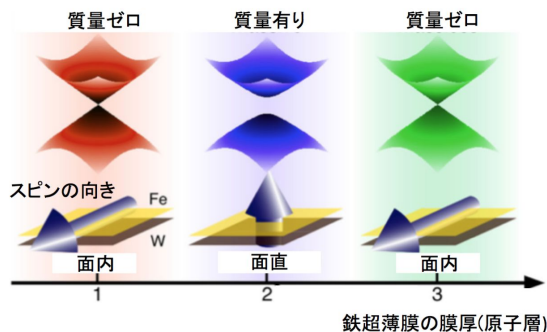


図 5: Fe/W ヘテロ構造におけるディラック電子の磁気近接効果

成功し、さらに、磁化の変化によってディラック電子の質量が切り替わることを明らかにした。これらのことから、ディラック電子系の質量制御には強磁性近接効果が有効であると結論した。

【新奇ディラック電子系】

二次元のシリコン正方格子を有する層状物質 HfSiS では、放射光を用いた精密な ARPES 測定によって、バルクバンドに起因したディラックコーン的なバンド分散(図 6)とダイヤモンド形状の線ノード構造を見出すとともに、理論的にこれまで予想されていなかった「一次元ディラックノードアーク構造」を観測することに初めて成功した。

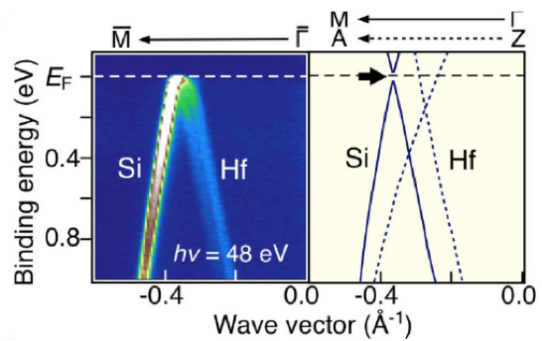


図 6: HfSiS における直線的バンド分散

カイラル構造を持つテルル単結晶においては、ディラック電子と同様に質量ゼロの電子(ワイル電子)が作るワイルノードを観測し、価電子帯とフェルミ面を形成するバンドがスピン分裂をしていることを明らかにした。これらの結果から、観測された特異なディラック電子構造の発現には、グライド鏡映対称性やらせん対称性といった結晶対称性が関連していると結論した。

5 . 主な発表論文等 (全て査読有)

(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 20 件)

- (1) D. Takane, Z. Wang, S. Souma, K. Nakayama, C. X. Trang, T. Sato, T. Takahashi, and Y. Ando, *Dirac-node arc in the topological line-node semimetal HfSiS*, Phys. Rev. B **94** (2016) 121108(R)-1-5.
- (2) C. X. Trang, Z. Wang, D. Takane, K. Nakayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, A. A. Taskin, and Y. Ando, *Fermiology of possible topological superconductor Tl_{0.5}Bi₂Te₃ derived from hole-doped topological insulator*, Phys. Rev. B **93** (2016) 241103R-1-5.

- (3) C. X. Trang, Z. Wang, K. Yamada, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, K. Segawa, and Y. Ando, *Metal-insulator transition and tunable Dirac-cone surface state in topological insulator $TlBi_{1-x}Sb_xTe_2$ studied by ARPES*, Phys. Rev. B **93** (2016) 165123-1-5.
- (4) S. Souma, Z. Wang, H. Kotaka, T. Sato, K. Nakayama, Y. Tanaka, H. Kimizuka, T. Takahashi, K. Yamauchi, T. Oguchi, K. Segawa, and Y. Ando, *Direct observation of non-equivalent Fermi-arc states of opposite surfaces in noncentrosymmetric Weyl semimetal NbP* , Phys. Rev. B **93** (2016) 161112R-1-6.
- (5) K. Fukutani, Y. Miyata, I. Matsuzaki, P. V. Galii, P. A. Downen, T. Sato, and T. Takahashi, *High-resolution angle-resolved photoemission study of quasi-one-dimensional semiconductor In_4Se_3* , J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 074710-1-6.
- (6) K. Nakayama, H. Kimizuka, Y. Tanaka, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, S. Sasaki, K. Segawa, and Y. Ando, *Observation of two-dimensional bulk electronic states in superconducting topological insulator heterostructure $Cu_x(PbSe)_5(Bi_2Se_3)_6$: implications for unconventional superconductivity*, Phys. Rev. B **92** (2015) 100508(R)-1-5.
- (7) H. Honma, T. Sato, S. Souma, K. Sugawara, Y. Tanaka, and T. Takahashi, *Switching of Dirac-fermion mass at the interface of ultrathin ferromagnet and Rashba metal*, Phys. Rev. Lett. **115** (2015) 266401-1-5.
- (8) K. Nakayama, Y. Miyata, G. N. Phan, T. Sato, Y. Tanabe, T. Urata, K. Tanigaki, and T. Takahashi, *Reconstruction of band structure induced by electronic nematicity in $FeSe$ superconductor*, Phys. Rev. Lett. **113** (2014) 237001-1-5.
- (9) J. Kleeman, K. Sugawara, T. Sato, and T. Takahashi, *Anisotropic electron-phonon coupling in Rb -intercalated bilayer graphene*, J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 124715-1-5.
- (10) T. Takahashi, K. Sugawara, E. Noguchi, T. Sato, and T. Takahashi, *Band-gap tuning of monolayer graphene by oxygen adsorption*, Carbon **73** (2014) 141-145.
- (11) M. Nomura, S. Souma, A. Takayama, T. Sato, T. Takahashi, K. Eto, K. Segawa, and Y. Ando, *Relationship between Fermi-surface warping and out-of-plane spin polarization in topological insulators: a view from spin-resolved ARPES*, Phys. Rev. B **89** (2014) 045134-1-6.
- (12) T. Sato, Y. Tanaka, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, S. Sasaki, Z. Ren, A. A. Taskin, K. Segawa, and Y. Ando, *Fermiology of Strongly Spin-Orbit Coupled Superconductor $Sn_{1-x}In_xTe$ and its Implication to Topological Superconductivity*, Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 206804-1-5.
- (13) J. Kleeman, K. Sugawara, T. Sato, and T. Takahashi, *Direct evidence for a metallic interlayer band in Rb -intercalated bilayer graphene*, Phys. Rev. B **87** (2013) 195401-1-5.
- (14) Y. Tanaka, T. Shoman, K. Nakayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, M. Novak, K. Segawa, and Y. Ando, *Two types of Dirac-cone surface states on (111) surface of topological crystalline insulator $SnTe$* , Phys. Rev. B **88** (2013) 235126-1-5.
- (15) Y. Tanaka, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, Z. Ren, M. Novak, K. Segawa, and Y. Ando, *Tunability of the k -space Location of the Dirac Cones in the Topological Crystalline Insulator $Pb_{1-x}Sn_xTe$* , Phys. Rev. B **87** (2013) 155105-1-5.
- [学会発表] (計 61 件)
- (1) T. Sato, “Dirac Fermions observed with ARPES” (invited), International Workshop on Chiral Matter: from quarks to Dirac semimetals 2016, 2016 年 12 月 5 日, 理研 (埼玉県和光市).
- (2) T. Sato, “High-resolution ARPES study of atomic-layer transition-metal dichalcogenides” (invited), International Workshop on Revolutionary Atomic- Layered Materials, 2016 年 10 月 21 日, 東北大学 (宮城県仙台市).
- (3) 佐藤宇史「高分解能 ARPES による新機能物質の開拓」(招待), 第 3 回物構研サイエンスフェスタ, 2015 年 3 月 17 日, つくば (茨城県つくば市).
- (4) 佐藤宇史「高分解能光電子分光による新機能物質の探索」(招待), 日本真空学会研究例会, 2014 年 12 月 3 日, 東北大学 (宮城県仙台市).
- (5) 佐藤宇史「トポロジカル超伝導体候補物質 $Sn_{1-x}In_xTe$ の電子構造: 高分解能 ARPES」, 日本物理学会 2013 秋季大会, 2013 年 9 月 25 日, 徳島大学 (徳島県徳島市).
- [その他]
ホームページ等: <http://arpes.phys.tohoku.ac.jp>
- 6 . 研究組織
- (1) 研究代表者: 佐藤 宇史 (SATO, Takafumi)
東北大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号: 10361065