

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400313

研究課題名(和文) 固体ディラック電子系における非線形電場応答の理論

研究課題名(英文) Theory of nonlinear response induced by electric field in condensed-matter Dirac systems

研究代表者

鈴浦 秀勝 (SUZUURA, Hidekatsu)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10282683

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：固体ディラック電子系の電磁応答は電子状態の特異性を色濃く反映する。その光学応答や輸送現象の特異的振る舞いの外部電場印加による先鋭化を理論的に試みた。カーボンナノチューブの巨大な振動子強度を持つ励起子吸収は外部電場により赤方遷移すること、グラフェンナノリボンに特徴的な端状態による静電遮蔽は電界効果電荷注入により大きく変調すること、2次元トポロジカル絶縁体の電流誘起スピン空間分布が電極配置に強く依存して変化すること、などを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Electromagnetic responses in condensed-matter Dirac systems deeply reflect its singular electronic states. We have theoretically studied the enhancement of singular behaviors in optical responses and transport properties due to external electric fields in the Dirac systems. We have shown that external electric fields induce the red shift of strong optical absorption peak due to excitons in carbon nanotubes and that static screening of external electric fields due to edge states in graphene nanoribbons is strongly modulated by electrostatic electron doping. Further, we have also shown that current-induced spatial distributions of spins in topological insulators are highly dependent on the configurations of electrical contacts with external leads.

研究分野：物性理論

キーワード：ディラック電子 グラフェン スピン・軌道相互作用 光学応答 輸送現象 トポロジカル絶縁体

1. 研究開始当初の背景

カーボンナノチューブやグラフェンの輸送現象や光学応答における特異な振る舞いの多くは、それらの電磁応答を担う電荷が、有効質量で特徴づけられるシュレディンガー方程式ではなく、静止質量ゼロのディラック方程式に従う相対論的な粒子である事による。

それら炭素物質系の研究とは別に、スピントロニクスの研究分野において、スピン・軌道相互作用効果に起因した現象である、スピンホール効果の研究が急速に進展する中、トポロジカル絶縁体と呼ばれる物質群が発見された。バルクでは絶縁体であるが、その表面状態に質量ゼロのディラック状態が出現し、量子スピンホール効果などの特異な電磁応答を示す。

これらの固体ディラック粒子が有する特異性とは、端的に言えば、有効質量がゼロの場合、一定速度で進み続けて静止することが出来ず、実空間において局在できないことで、必然的に、非局所的な振る舞いを示す所があり、エネルギーギャップが開いた場合でも、その性質を反映する可能性があることによると考えられる。基礎物性に留まらず、ナノデバイスにおける新規機能性を求めるならば、電磁場による非線形応答を解明する必要がある。

2. 研究の目的

固体中に実現するディラック電子系に対する非線形電磁応答を理論的に解明する。具体的な研究対象として、グラフェンを円筒状に丸めて繋げたカーボンナノチューブ、カーボンナノチューブを切り開き有限幅を持つ帯状物質のグラフェンナノリボン、スピン・軌道相互作用に起因したディラック電子系を有する2次元電子系、に着目し、以下の研究を実施する。

- (1) 電界効果電荷注入によるカーボンナノチューブの励起子光吸収変調
- (2) グラフェンナノリボンにおける静電遮蔽効果と電場変調光吸収スペクトル
- (3) スピン・軌道相互作用を有する2次元電子系におけるディラック電子による電流誘起スピン空間分布

3. 研究の方法

研究目的で挙げた3つのテーマについて、それぞれ、具体的な研究方法を述べる。

- (1) カーボンナノチューブの電子状態を有効質量方程式により記述する。電界効果による電荷注入はフェルミエネルギーの変化として取り入れ、電荷注入された系の基底状態における励起子光吸収スペクトルを線形応答理論に基づき計算

する。1電子状態に対する相互作用効果は自己エネルギーとして、光励起により生成された電子・正孔間引力に起因した励起子束縛状態は遮蔽効果を取り入れたペーテ・サルピータ方程式から計算する。

- (2) グラフェンの静的電場による遮蔽効果の研究を想定し、有限幅を持つナノリボンの幅方向に電場を印加した際の電子状態の変調を計算する。印加電場により電荷分布に空間的偏りが生じて反電場が生じ、印加電場は遮蔽される。電荷の空間分布により発生する静電ポテンシャルをポアソン方程式で求め、静電ポテンシャルを考慮した強束縛電子モデルを解き電荷の空間分布を決定するという作業を繰り返し、自己無撞着な結果を得る。印加電場による非線形な電荷移動を考慮した電子状態を用いて、光吸収スペクトルを計算することにより、光学応答の電場変調効果を調べる。
- (3) スピン・軌道相互作用のパラメータをトポロジカル絶縁体を実現するように選んだ2次元強束縛モデルにより電子状態を記述する。ランダウアー公式により記述可能な範囲の電極間に電位差を与えることによる定常電流を印加した状態を考える。局所的なスピン電位を計算することによりスピンの空間分布を決定し、面直電場による電荷注入効果によるスピン空間分布変調を計算する。

4. 研究成果

研究の目的と方法に列挙した3つのテーマに関する成果を、それぞれ、列挙する。

- (1) 電界効果電荷注入により状態占有が生じるとパウリの排他律による吸収スペクトルのシフトが生じる。ここでは、その効果を除去するため、電荷密度の変化しない高次のサブバンド間で生じる光学遷移の場合を述べる。  
電界効果により出現する金属状態は電荷間に作用するクーロン力を遮蔽し相互作用を強く抑制する。ところが、自己エネルギーが弱まることでバンドギャップエネルギーが減少するとともに、電子・正孔間相互作用も遮蔽され束縛エネルギーも弱められる。励起子共鳴エネルギーのシフトはその差で決まることから、両者の競合効果が重要となる。  
計算結果によると、どちらの量も電荷注入しない場合の束縛エネルギーの数割程度の大きなシフトを与えるが、両者の寄与はかなりの部分が相殺し、励起子エネルギーに僅かな赤方遷移を与えることを明らかにした。この解析結果は、架橋された単一カーボンナノチューブ

に対するレイリー散乱の実験結果から得られた電界効果による励起子エネルギーシフトを定量的に説明した。

- (2) グラフェンナノリボンは端の構造により分類され、アームチェアと呼ばれる端構造を持つ場合には、さらに、幅に依存して、半導体と金属に分類される。これに対し、ジグザグ端と呼ばれる構造の場合には、端に局在しリボンの軸方向には広がった金属状態が常に存在することから、端構造に依存して遮蔽効果が大きく異なると予想した。しかし、実際には、アームチェア端の場合は、金属と半導体で結果は殆ど変わらず、ジグザグ端の場合は端状態を反映した異なる結果を与えた。

図1は様々な構造のグラフェンナノリボンに対する注入電荷量を表す化学ポテンシャルと誘電率の逆数を空間平均した値の関係を示している。横軸を化学ポテンシャルとリボンの幅の積で与えることにより、アームチェア端とジグザグ端で、それぞれ、ほぼ一つの曲線に乗ることがわかる。

アームチェア端の場合、低濃度ドーパ領域では一定の弱い遮蔽を生じ、電荷量が増すと急速に遮蔽が強まる。これは、占有されるサブバンド数が増えることにより、幅方向の電荷の空間変動が可能になることによる。電荷注入がない状態で金属であったとしても、軸方向に広がった状態だけでは、幅方向の電場は遮蔽できない。

ジグザグ端の場合は、電場印加によりそれぞれの端に局在した状態の占有率に不均衡が生じ、微弱な電場で大きな遮蔽効果を生じると解釈できる。電荷注入により端状態が全て占有されるとその効果は消失し、アームチェア端の場合と同様な振る舞いを示す。

光吸収スペクトルの変調は、光学禁制遷移の選択則変化による吸収増加・振動子強度抑制による吸収減少・状態密度の

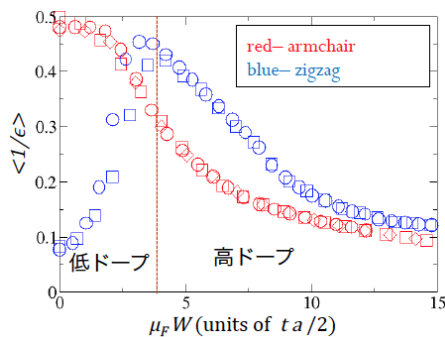


図1: グラフェンナノリボンにおける静電遮蔽効果の注入電荷量に対する依存性。横軸は化学ポテンシャルとリボン幅の積、縦軸は局所誘電率の逆数の空間平均を表す。

変化によるシフト、の3つの原因により、ほとんどの変化を理解できる。変調の強度は、弱電場領域では試料幅の4乗と遮蔽された電場の2乗に比例することが明らかになり、この結果は、有効質量方程式によるスケール変換から説明できる。1次元系なので、実験結果と比較するには、励起子効果を考慮する必要がある。それは今後の課題だが、遮蔽効果の構造依存性は励起子吸収に対しても適用可能であり、この結果を援用して吸収変調強度の端構造に対する依存性を定性的に理解できると期待される。

- (3) 図2が電界効果電荷注入によるフェルミエネルギーに対する、スピンホールコンダクタンスと状態密度の依存性である。ただし、非磁性不純物による散乱を取り入れ、 $W$  は不純物散乱強度、 $t$  は強束縛模型の飛び移り積分を表す。不純物散乱に起因した状態混成によりバルクの状態がエネルギーギャップ内に染み出しているが、スピンホールコンダクタンスの量子化値が安定に維持されていることがわかる。つまり、トポロジカル絶縁体の表面状態におけるディラック電子によるスピンホールコンダクタンスの量子化が不純物散乱に対して頑強であることを実証したことになる。

電極間電位差を課し量子スピンホール効果により生じるスピンの実空間分布が、測定配置により大きく異なることを明らかにした。図3左は、正方形試料の4辺に電極と理想リード線を接続し、向かい合う2辺間に電位差を与え、直交する方向に電流が生じないようにした場合のスピンの空間分布を表す。この場合、バルクに状態は存在しないため、スピン偏極した端状態に分離し、電極の端を繋ぐように電子は移動するが、端状態により生じた電流を補償するための反対方向のスピンの成分を持つ電子の流れ

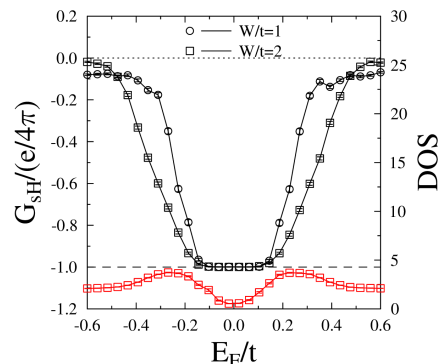


図2: トポロジカル絶縁体のスピンホールコンダクタンスと状態密度のフェルミエネルギー依存性。下部にある赤い線が表す状態密度は  $W/t=2$  の結果のみ。

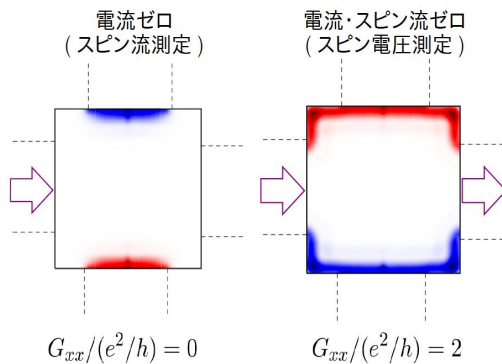


図3:量子スピンホール効果状態の測定配置に対する電流誘起スピン空間分布(青がアップ,赤がダウンを表す).左はスピンを測定する配置で,対角コンダクタンスはゼロになる.右はスピン電圧を測定する配置で直交する方向に流れが生じないために端状態が対角伝導率に寄与する.

には電極に接続されたリードの幅方向に広がった状態も関与するため,端状態とは逆向きのスピンの試料内に染み出すことにより,電極付近のスピンの空間分布が生じる.

これに対し,図3右は,垂直方向にリードを接続せず,電流だけでなくスピンの流も遮断した,スピン偏極電圧を測定する配置の結果を表す.この場合,端状態が端にそって進み,そのまま,もう一方の電極に流れ込むため,端状態によるスピンアップとダウンの2チャンネル分の対角伝導が生じ,そのスピン偏極に対応したスピンの空間分布が実現される.つまり,スピンを測定する配置と,スピン電圧を測定する配置では,反対に分極したスピン空間分布が得られることになる.

以上のように,トポロジカル絶縁体では,不純物散乱に影響されない,様々な変調効果が得られるが,同じ様にスピン・軌道相互作用によるディラック電子系を有するラシュバ模型に対する,ホール効果に着目して,不純物散乱の影響を調べた.長距離ガウス型ポテンシャルによる散乱の場合,グラフェンと同様に,質量ゼロのディラック電子のバンド交叉点近傍において不連続的な符号変化を示すのに対し,短距離不純物による散乱を考慮した場合,そのような特異性は消失した.さらに,クーロン散乱を生じる荷電不純物を導入した場合,長距離散乱の場合でも,特異な振る舞いは失われ,不純物散乱によるバンド混成に強く影響されることを明らかにした.

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計3件)

Y. Miyauchi, Z. Zhang, M. Takekoshi, Y. Tomio, H. Suzuura, V. Perebeinos, V. V.

Deshpande, C. Lu, S. Berciaud, P. Kim, J. Hone, T. F. Heinz, “Tunable electronic correlation effects in nanotube-light interactions”, *Physical Review B* 92, 205407 (2015), 査読有り.

DOI: 10.1103/PhysRevB.92.205407

Y. Tomio and H. Suzuura, “Effects of Dynamic Screening on Excitons in Metallic Carbon Nanotubes”, *JPS Conference Proceedings* 4, 012006 (2015), 査読有り.

DOI: 10.7566/JSPSC4.012006

H. Akera, H. Suzuura, and Y. Egami, “Spin relaxation in a zinc-blende (110) symmetric quantum well with  $\delta$  doping”, *Physical Review B* 89, 075314 (2014), 査読有り.

DOI: 10.1103/PhysRevB.89.075314

[学会発表](計10件)

安藤恒也, 鈴浦秀勝, “グラフェンと巨大 Rashba 系における弱磁場ホール効果の理論”, 日本物理学会第71回年次大会, 2016年3月21日, 東北学院大学泉キャンパス(宮城県仙台市), 21pAG-7.

K. Nishida, H. Suzuura, and H. Akera, “Electric-field-induced modulation of absorption spectra in graphene nanoribbons”, 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-21), Sendai International Center (Japan, Sendai), July 28 (2016) Poster Number 1341.

H. Suzuura and T. Ando, “Singular Hall effect in two-dimensional Rashba systems with long-range impurities”, 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-21), Sendai International Center (Japan, Sendai), July 27 (2016) Poster Number 1110.

西田寛太郎, 鈴浦秀勝, 明楽浩史, “グラフェンナノリボンの電場変調光吸収スペクトル”, 日本物理学会第70回年次大会, 2015年3月24日, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都新宿区), 24aAL-8.

河合遼太, 鈴浦秀勝, “2次元トポロジカル絶縁体における電流誘起型スピンの空間構造”, 日本物理学会第69回年次大会, 2014年3月27日, 東海大学湘南キャンパス(神奈川県平塚市), 27pBF-9.

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

鈴浦 秀勝 (SUZUURA Hidekatsu)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号: 10282683