

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 29 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600076

研究課題名(和文) 逆スピンホール効果を利用したトポロジカル絶縁体中の純スピン流の計測

研究課題名(英文) Detection of pure spin current in topological insulators by using the inverse spin Hall effect

研究代表者

白石 誠司 (Shiraishi, Masashi)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30397682

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：3次元トポロジカル絶縁体の中でもバルク絶縁性を有するBiSeTeSeを対象材料に、このトポロジカル絶縁体表面のスピン運動量ロッキングに起因するスピン偏極状態を観測することを目的として研究を遂行した。当初想定していた手法ではないものの、この材料系において150Kまでのスピン偏極状態の観測に世界で初めて観測することに成功し、米国化学会の権威ある学術誌であるNano Letters誌(インパクトファクター：12.9)に論文は掲載され、多くの招待講演依頼を受けるなど、研究成果は大きな関心を集めることができた。

研究成果の概要(英文)：We have selected BiSeTeSe, the bulk-insulative 3-dimensional topological insulator, as a model material of my experiment. The purpose of my study is to detect a surface spin-polarized state ascribed to the spin-momentum locking. Although the experimental procedure was changed from the planned procedure, I have successfully detected the surface spin polarization up to 150 K. This is the first experimental demonstration of the detection using BiSbTeSe, and the detail of the results was described in a paper, which was published in Nano Letters (an ACS journal, the impact factor is 12.9). My result has been attracting much interest.

研究分野：固体物理

キーワード：トポロジカル絶縁体 スピン偏極状態 スピン運動量ロッキング

1. 研究開始当初の背景

トポロジカル絶縁体は金属とも半導体とも異なる固体の新しい相として近年世界的に大きな関心を集める材料である。そのバンド構造は材料のバルク由来の半導体的なパラボリックバンドと、表面(ないしエッジ)に由来するディラック的な線形バンドからなり、特にディラック的な線形バンドはグラフェンと同じくゼロギャップであるだけでなく、2本のバンドがそれぞれ100%スピンの偏極していることから、例えば3次元トポロジカル絶縁体ではその表面にアップスピンとダウンスピンが互いに逆方向に流れる純スピン流が存在することが知られている。この特徴的なバンド構造は、電流を流す方向を決定すれば一意的にスピンの方向は決定されることを意味しており、これをスピン運動量ロッキング(spin momentum locking)と呼ぶ。トポロジカル絶縁体の有するこの魅力的な特性は特にスピントロニクスにおいて重要な特性となる。即ち、純スピン流を介したエネルギー散逸を極限まで抑制した情報伝播は、次世代のスピントロニクス素子の狙うところであるからである。本提案の面白みはこの表面スピン偏極状態(=純スピン流)の観測と情報伝播への応用可能性にあり、このようなスピントロニクスの観点から従来大きな期待を集めながら未達成であったスピンの表面スピン偏極状態の実験的な観測を目指すこととした。

尚、2次元トポロジカル絶縁体においてはHgTe系で既にエッジスピン流の観測に成功したとの報告があるが、2次元トポロジカル絶縁体はエッジチャンネルの数は極めて少なく、そのため応用展開には不適なため、本研究では最初から対象とせず、3次元トポロジカル絶縁体を用いた実験のフォーカスを絞った。

2. 研究の目的

本研究の目的はトポロジカル絶縁体のスピントロニクス応用の観点から、上記の表面スピン偏極状態を実験的に観測することにある。そのためにはフェルミ準位がバルク絶縁状態にある好適な材料が必要であるが、BiSbTeSeはこの条件を満たす(さらにバルクバンドギャップがトポロジカル絶縁体の中でも最大級)理想的な3次元トポロジカル絶縁体であるために、この材料を対象として研究を遂行することとした。

また、BiSbTeSeだけでなく、その他の公的なトポロジカル絶縁体を探索し、さらに安定な表面スピン偏極状態を生成・観測することも極めて重要である、という観点から、特に近年広島大学木村昭夫教授グループにおけるスピン分解光電子分光法を用いた研究でバルク絶縁3次元トポロジカル絶縁体である期待の大きいTlBiSeにおいて、その表面に確かにトポロジカルエッジ状態が存在することを電気伝導の観点から示し、その材料

を本研究に展開する、という観点から実験も遂行した。

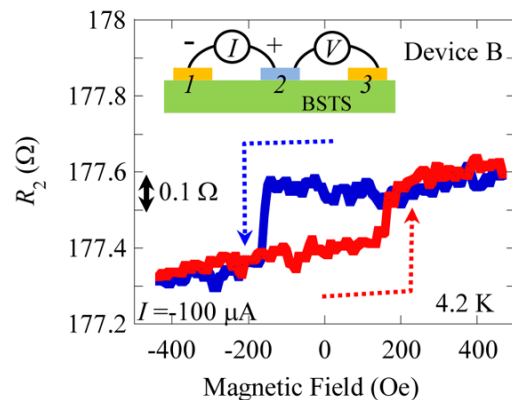
3. 研究の方法

固体中の純スピン流の観測にはいくつかの方法があるが、本研究では当初スピンホール効果(ホール効果のスピン版とも言える効果)の逆効果である逆スピンホール効果(ISHE)によってトポロジカル絶縁体表面の純スピン流を電流に変換して起電力として観測することを目指した。試料構造の最適化などを進めていく中で、観測の効率を考えるとISHEを用いるよりも、spin momentum lockingによって生じたスピン蓄積に起因する電気化学ポテンシャルを電氣的に計測するほうが有利である、という結論を得た。そこで素子構造を変更して、いわゆる局所3端子法という電氣的手法によって、表面スピン偏極状態の観測を目指した。この手法は研究代表者が従来からシリコンやグラフェンにおけるスピン注入・スピン計測で実績のある手法であり、既に実験系も十分に整備されていたことから、このような研究アプローチの変更にも迅速に対応することが可能であった。

TlBiSeを用いた研究に関しては、その表面の電気伝導や磁気抵抗効果を観測することがトポロジカルエッジ状態の証明には有効であることから、試料表面に電極端子を作成したものをQuantum Design社製PPMS(Physical Property Measurement System)装置に入れ、低温強磁場下での磁気抵抗効果の観測とSchubnikov-de Haas振動(量子振動)を観測することを目指した。

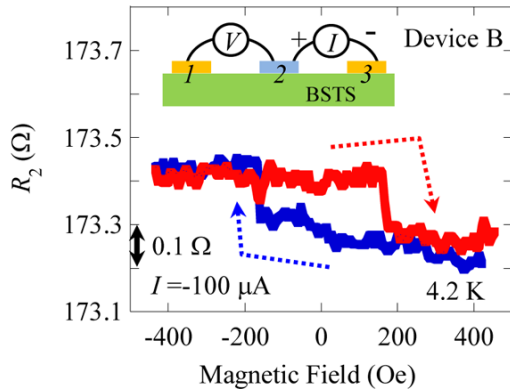
4. 研究成果

電氣的な表面スピン偏極状態の計測については、spin momentum lockingに起因する磁気抵抗のヒステリシスの観測が重要な実験的証拠となるが、150Kまでの磁気抵抗ヒステリシスを成功裏に観測することができた。ここで測定温度は4.2Kであり、磁場は±1000 Oeの範囲で正負にスイープしている。図に示されているように、明瞭な磁気抵抗効果が観測されているが、これは電流の流れる向きによって固定されたスピンの向きによって(図中の2の電極)のスピンの向きによ



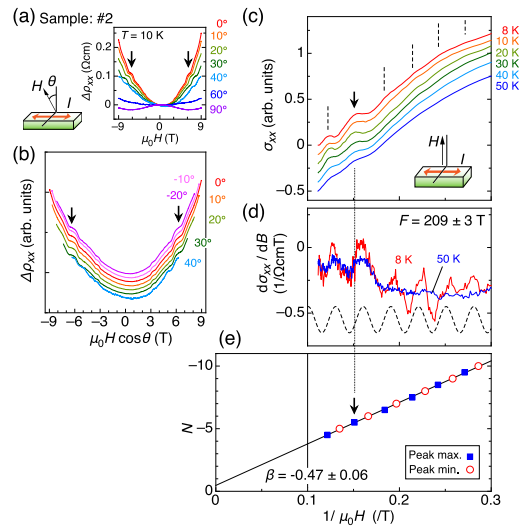
て現れる磁気抵抗効果である。2 の強磁性電極の磁化の向きは外部磁場で制御するが、強磁性体には保磁力が存在するため、保磁力の大きさに対応する外部磁場でスピンの向きが反転するため、このような磁気抵抗効果が現れると理解できる。

更に重要な対照実験として、電流の流れる向きを反転させ、磁気抵抗効果の極性が反転するかどうかを確認したところ、それに対応しての極性も反転することがわかった（下図）。



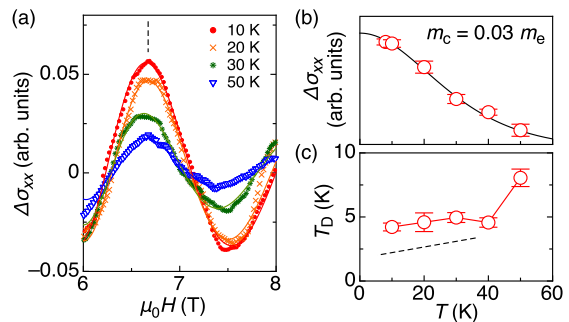
さらに観測のための強磁性電極の磁化配置とスピンの向きに対応もれたために、観測した信号は間違いなく BiSbTeSe における spin momentum locking による表面スピン偏極状態に起因するものと結論できる。本研究成果を Nano Letter 誌に掲載する直前に、米国海軍研究所のグループから BiSe を用いた類似の実験結果が報告されたが、磁化とスピンの方向の対応がおかしいなどの指摘もあること、また BiSe は意図しないドーピングの影響からバルク絶縁性を有さないトポロジカル絶縁体であり、デバイス応用には適さないことから、本研究成果は十分な信頼性を有する初めての報告として大きな関心を集めるに至った。

TlBiSe の研究では、まずこの試料の抵抗の温度依存性から 50 K 以下の低温でトポロジカル絶縁体の特徴である金属的伝導状態が観測された。その試料を用いて磁気抵抗を観測したところ、低温強磁場下で Schbnikov-de Haas 振動が観測された。その振動周期から TlBiSe の有する表面伝導状態の Berry 位相が 0 ではなく  $-0.5$  であることが明らかとなり、0 ではないことからこの状態が確かにトポロジカルエッジ状態であることが電気伝導測定観点から示すことができた（右上図）。また、Schbnikov-de Haas 振動の温度依存性から Onsager の関係式を用いて、この状態のフェルミ波数とキャリア密度を定量的に求めることにも成功したほか、cyclotron 質量が  $0.03$  という、他の既知の 3 次元トポロジカル絶縁体と比較しても非常に小さい cyclotron 室論を有しており、それがこの試料の高い移動度の起源であることも明らかとなった。この結果は Dingle 温度の評価から見積もられる運動量緩和時間から考えて



図(a)TlBiSe の磁気抵抗効果。磁場試料垂直方向に印加している。(b)磁場角度依存性。(c)磁気抵抗効果に現れる Schbnikov-de Haas 振動の温度依存性。(d)Schbnikov-de Haas 振動周期の外部磁場依存性。(e)Landau Fan Diagram。Berry 位相がゼロではないことが切片から理解できる。

も妥当であると考えられる（下図）。この実験結果は Physical Review B 誌に Rapid Communications として掲載されている。この一連の研究で TlBiSe は BiSbTeSe につぐ、第二のバルク絶縁トポロジカル絶縁体であることが示された。この結果をもとに TlBiSe を用いて BiSbTeSe と同様のスピントロニクス素子の作製も試みたが、現時点では TlBiSe の結晶構造が BiSbTeSe のそれと異なるという理由から、素子作製に必要な大面積かつ薄膜の試料は作製できておらず、これは今後の解決すべき課題である。



図(a) $N=-5.5$  の量子振動の温度依存性。(b) Lifshitz-Kosevich 理論によるサイクロトロン質量の見積もり。(c) Dingle 温度の温度依存性。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- 1) Yu. Ando, T. Hamasaki, T. Kurokawa, F. Yang, M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa, Yo. Ando and M. Shiraishi, "Electrical Detection of the Spin Polarization Due to Charge Flow in the Surface State of the Topological Insulator  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ ", Nano Lett. 14, 6226 (2014).
- 2) G. Eguchi, K. Kuroda, K. Shirai, A. Kimura and M. Shiraishi, Phys. Rev. B90, 201307(R) (2014).

[学会発表] (計 4 件)

- 1) Y. Ando, T. Hamasaki, T. Kurokawa, F. Yang, M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando and M. Shiraishi, "Electrical detection of the Spin Polarized current due to spin-momentum locking in the surface state of the topological insulator  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$ ", 59<sup>th</sup> Annual conference on MMM(3-7 November 2014, Honolulu, Hawaii)
- 2) T. Hamasaki, Y. Ando, T. Kurokawa, F. Yang, M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando and M. Shiraishi "Comparison of the spin injection/extraction efficiencies between bulk-insulating and -metallic topological insulators", 59<sup>th</sup> Annual conference on MMM (3-7 November 2014, Honolulu, Hawaii)
- 3) Y. Ando, "Electrical injection and extraction of spin polarized current through a ferromagnetic metal / topological insulator interface", TQP2014(2014.12.16-20) 京都大学
- 4) M. Shiraishi, Yu. Ando, T. Hamasaki, K. Segawa, S. Sasaki, F. Yang, M. Novak, Yo. Ando, "Detection of Surface Spin Current in 3-D Topological Insulator,  $\text{BiSbSeTe}$ ", DPG Spring

Meeting 2015 (2015.03.17, ドイツ・ベルリン)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称 :  
発明者 :  
権利者 :  
種類 :  
番号 :  
出願年月日 :  
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :  
発明者 :  
権利者 :  
種類 :  
番号 :  
出願年月日 :  
取得年月日 :  
国内外の別 :

[その他]

受賞 1 件  
安藤裕一郎・白石誠司他 TQP2014, Poster Award

江口学・白石誠司他、TQP2014, Best Poster Presentation Award

6. 研究組織

(1) 研究代表者

白石誠司 (SHIRAISHI MASASHI)  
京都大学・工学研究科・教授  
研究者番号 : 30397682