

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 21 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540328

研究課題名(和文)トポロジカル絶縁体の電子構造の理論計算

研究課題名(英文)Theoretical calculation of the electronic structure of topological insulators

研究代表者

石田 浩 (ISHIDA, Hiroshi)

日本大学・文理学部・教授

研究者番号：60184537

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：トポロジカル絶縁体の電子構造を理論計算により研究した。トポロジカル絶縁体を特徴づけるのは金属的な表面局在状態である。本研究では、通常の薄膜近似ではなく、エムベディッドGreen関数法を用いて半無限結晶表面を取り扱うことにより、Bi₂Se₃などトポロジカル絶縁体の表面エネルギーバンドを、密度汎関数法の範囲で第一原理から正確に計算した。またエムベディングポテンシャルのギャップ中の振舞いから、結晶がトポロジカルに自明か非自明かを区別できることを見出した。平行して、電子間の反発力を取り入れたモデルハミルトニアンを用いて、トポロジカル絶縁体とMott絶縁体界面の電子構造を動的平均場理論により調べた。

研究成果の概要(英文)：We have conducted a theoretical study of topological band insulators, whose electronic structure is characterized by their metallic surface states. In our study, instead of adopting the standard slab approximation, we treated truly semi-infinite crystal surfaces by using the embedded Green's function technique of Inglesfield. We performed first-principles calculations within density functional theory to reveal the energy dispersion relation of the surface bands of topological band insulators such as Bi₂Se₃. Also, we developed a method to judge if a band insulator is topologically trivial or nontrivial from the behavior of its embedding potential within a projected bulk energy band gap. Parallel to this, we studied the electronic structure at the interface between a topological band insulator and a strongly correlated Mott insulator by applying the layer dynamical mean-field theory to a model tight-binding Hamiltonian with a local Coulomb repulsion energy.

研究分野：固体物理理論

キーワード：トポロジカル絶縁体 表面エネルギーバンド 密度汎関数法 動的平均場理論 時間反転対称性 スピン軌道相互作用 Rashba効果 バンド反転

1. 研究開始当初の背景

本研究課題を申請した 2011 年は、3 次元トポロジカル絶縁体の研究が飛躍的に発展しつつある時期であった。時間反転対称性を持つバンド絶縁体は、価電子バンドのトポロジカルな特性を表す Z_2 指数により厳密に分類される。Fu と Kane [1] が、空間反転対称性を持つ絶縁体においては、価電子バンドの波動関数の偶奇性から、 Z_2 指数が簡単に計算できることを示して以来、第一原理計算によりトポロジカル絶縁体が多数予言され、スピン・角度分解光電子分光などの実験により検証された。こうして 2008 ~ 2010 年にかけて、 $\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$ 合金、 Bi_2Se_3 、 Bi_2Te_3 、 Sb_2Te_3 、 TlBiSe_2 などの 3 次元トポロジカル絶縁体が次々と発見された [2]。これら 3 次元トポロジカル絶縁体の結晶表面に出現する 2 次元 Dirac バンドの特性を、薄膜近似ではなく半無限結晶を用いてより正確に計算するというのが本研究を申請した動機である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、時間反転対称性を持ったトポロジカル絶縁体の電子構造を理論計算により明らかにすることである。トポロジカル絶縁体を特徴づけるのは、結晶表面に局在した表面状態である。この表面バンドは、面内の波数ベクトルを k とすると、価電子バンドと伝導バンド間のエネルギーギャップを縦断して、かつ時間反転不変運動量 (例えば $k=0$) の近傍で、

$$\varepsilon_+(k) = +A|k|, \quad \varepsilon_-(k) = -A|k| \dots (I)$$

で表されるエネルギー分散関係を持つため表面 Dirac バンドと呼ばれる。また、波動関数がヘリカルスピン偏極し、弱反局在効果を示すためスピントロニクスへの応用が期待されている。Vasp など 3 次元結晶用のプログラムを用いて、この表面バンドを計算するためには、結晶表面を薄膜で近似する必要がある。しかし、薄膜近似では表面垂直方向にエネルギー準位が離散化するため、表面状態とバルク Bloch 状態を明確に区別できない、バルク状態の連続エネルギースペクトルを正確に再現できない等の困難が生じる。価電子バンドと伝導バンドの間のエネルギーギャップが小さいトポロジカル絶縁体ではこの問題は深刻であり、表面 Dirac バンドのエネルギー分散関係は、薄膜の厚さを増やしても容易に収束しない。そこで本研究では、薄膜近似ではなく半無限結晶表面を扱うことにより、以下の研究を行う。

(1) 3 次元トポロジカル絶縁体の表面状態を正確に計算する: エムベディッド Green 関数法 (EGF 法) [3] を用いて、トポロジカル絶縁体の半無限結晶の電子構造を密度汎関数法の範囲で第一原理計算から計算する。これにより表面 Dirac バンドのエネルギー分散関係を面内の波数 k の関数として正確に計算する。特にバルクバンドを表面 Brillouin 域 (SBZ) に射影して得られる連続エネルギー領

域 (射影バルクバンド) に、表面バンドがどのように接近して吸収されるか、またそのとき、波動関数の表面垂直方向の広がり (減衰係数) がどう変化するかを調べる。

(2) 複素エネルギーバンドからトポロジカル絶縁体の特徴を捉える: 絶縁体のエネルギーギャップ中に、エネルギーギャップを縦断する表面 Dirac バンドが生じるかどうかは、バルク価電子バンドの波動関数に対する Z_2 指数で決まる。一方、表面状態は複素エネルギーバンド構造からも理解できるはずである。即ち、ギャップ内のエネルギー ε と面内の波数ベクトル k が与えられた時、表面垂直方向に複素波数 k_z を持ち、結晶内部へ減衰するエバネッセント波が、真空領域の波動関数に滑らかに接続するという条件から表面バンドのエネルギー分散関係が求まる。そこで Z_2 指数の違いが、絶縁体の複素エネルギーバンド構造にどのような影響を与えるかを明らかにする。

(3) 強電子相関効果が表面 Dirac バンドに与える影響を調べる: 本課題に対しては第一原理計算ではなく、電子間の相互作用項を取り入れた適当な強結合モデルハミルトニアンを用いてトポロジカル絶縁体を表す。強結合基底に対する EGF 法と、レイヤー動的平均場理論 (DMFT) を組み合わせて、電子相関がトポロジカル絶縁体の電子構造に与える影響を調べる。

3. 研究の方法

(1) EGF 法による半無限結晶表面の電子構造計算は 3 ステップから成る。バルク結晶の電子構造を第一原理から計算する。エネルギー ε と面内の波数ベクトル k が与えられたとき、一般化 Bloch 条件

$\psi(x+d, z+d_z, \sigma) = \exp(ik \cdot d + ik_z d_z) \psi(x, z, \sigma)$ を満たす、結晶内部に向かって伝播または減衰するすべての波動関数 ψ を、 ε で求めた結晶ポテンシャルを用いて計算する (k_z は面垂直方向の複素波数)。続いて結晶面 $z=z_0$ 上の点 $\xi = (x, z_0, \sigma)$ (x は 2 次元座標、 σ はスピン) で、 ψ の値と法線微分が

$$\partial_n \psi(\xi) = 2 \Sigma(\xi, \xi') \psi(\xi') \dots (II)$$

を満たすようにエムベディングポテンシャル $\Sigma(\xi, \xi')$ を構築する (Inglesfield の定義と一致させるため因子 2 を入れた)。このように $\Sigma(\xi, \xi')$ は、結晶内部へ減衰または伝播する任意の ψ の結晶面上での一般化対数微分であり、 (ε, k) の関数である。表面領域の薄膜ハミルトニアンに、Green 関数の境界条件を制御するエムベディングポテンシャル項を加えることにより、半無限表面の Green 関数を計算する。

我々は EGF 法と、フルポテンシャル線形化補強平面波 (FLAPW) 法を組み合わせた密度汎関数法の範囲の第一原理計算プログラムを 10 数年来、開発してきた [4]。しかし、本研究開始時、計算コードにはトポロジカル絶縁体の発現に本質的なスピン軌道 (SO) 相互

作用項が含まれていなかった。SO 項は、各原子のマフィンティン球内でのみ有限であり、

$$H_{so} = \hbar(4m^2c^2)^{-1}r^{-1}V'(r)[\mathbf{l} \cdot \boldsymbol{\sigma}]$$

で与えられる ($V(r)$ は原子核付近の動径ポテンシャル)。本研究では上記の \sim のすべての過程で、SO 項を追加した。これにより、3次元トポロジカル絶縁体の半無限結晶の電子構造の計算が可能になった。

(2)強相関係の計算では、2次元トポロジカル絶縁体 HgTe/CdTe 量子井戸のモデルである Bernevig-Hughes-Zhang (BHZ)ハミルトニアン[5]に Hubbard 型のクーロン反発項を取り入れた強結合モデルを用いる。結晶表面または界面を構成する各原子層の相互作用自己エネルギーを、単一サイト DMFT の範囲で自己無撞着に決定して、界面局在 Dirac 状態に対する電子相関効果を調べる。第一原理計算の場合と同様に、薄膜近似を用いると界面垂直方向のエネルギー準位が離散化して、表面状態の同定が難しくなる。そこで、強結合ハミルトニアン (局在基底空間) に対して定式化された EGF 法を用いて、非周期系を正確に扱う。この際、バルク結晶内部のクーロン相互作用の効果、強結合エムベディングポテンシャル(コンタクト自己エネルギーとも呼ばれる)の中に適切に取り入れるのが、我々の計算の特徴である。

4. 研究成果

(1) 3次元トポロジカル絶縁体の表面バンド：開発した EGF 法の計算プログラムを用いて、トポロジカル絶縁体の半無限結晶表面の電子構造を計算した。図 1(a)は、Sb(111)表面の表面第1層原子球内での k -分解状態密

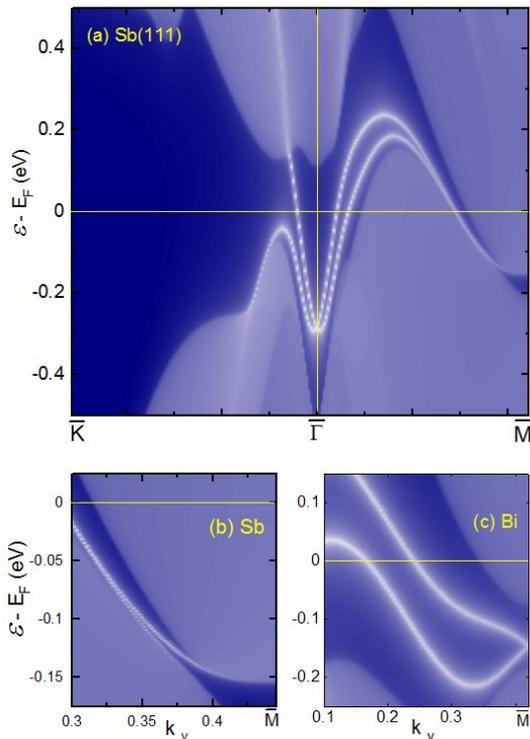


図1: Sb(111)の表面バンド

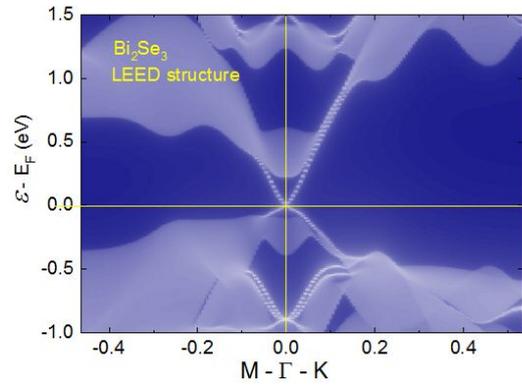


図2: $\text{Bi}_2\text{Se}_3(111)$ の表面バンド

度を SBZ 内の K - Γ - M 線に沿って描いた図である。Sb は半導体ではあるが、全 Brillouin 域で正の直接エネルギーギャップを持つため Z_2 指数が定義され、トポロジカル絶縁体に分類される[1]。図の明るい領域は射影バルクバンド、暗い領域は射影バルクバンドギャップであり、射影バンドギャップ中にヘリカルスピン偏極した2本の表面エネルギーバンドが現れる。両表面バンドは Γ 点では2重縮退して Rashba 分裂を示す。一方、図 1(b)から分かるように、両表面バンドは、もう一つの時間反転不変運動量である M 点に近づくにつれて、エネルギーギャップの上下の射影バルクバンドに吸収されて、 M 点に到達する前に消失する。この性質は、Sb がトポロジカル絶縁体であることを示す。同様の計算をトポロジカルに自明な Bi の(111)表面に対して行くと、図 1(c)にあるように、2本の表面バンドは、 M 点に到達して再び縮退する。Sb の場合、 Γ - M 方向の射影バルクエネルギーギャップの大きさは小さく、これは表面バンドの波動関数の結晶内部への減衰係数が非常に小さいことを意味する。従って通常の薄膜近似の表面電子構造の計算では、図 1(b)にあるような表面バンドのエネルギー分散関係を再現するのは困難である。図 1の結果は、EGF 法による半無限表面の計算が、トポロジカル絶縁体の電子構造の解析に有用であることを示している。

同様の計算を 3次元トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 表面に対して行った。エムベディッド領域に2単位胞(10原子層)を取り入れて、それより深い領域をエムベディングポテンシャルで置き換えた。図 2は表面第1層の Se 原子球内での k -分解状態密度を SBZ 域内の M - Γ - K 線に沿って描いた図である。射影バルクバンドギャップ中に現れる2本の表面バンドは、 Γ 点の周りで Eq. (I) で表される Dirac バンド的なエネルギー分散関係を持つことが分る。EGF 法では、複素エネルギーバンド構造から、表面バンドの波動関数の表面垂直方向の振舞いを正確に調べることができる。図 3は、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3(111)$ 面の Γ 点($k=0$)での複素バンド構造を示す。ここで $\text{Im}k_z=0$ の赤線は面垂直方向に伝播する Bloch 波、 $\text{Im}k_z>0$ の緑線は面垂直方向に減衰するエバネッセン

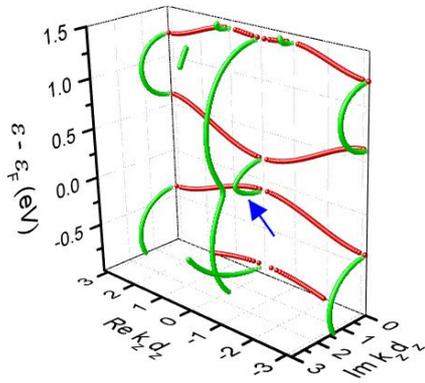


図3: Bi₂Se₃のΓ点での複素エネルギーバンド

ト波である。Γ点における表面 Dirac 状態の波動関数の振舞いは、射影バンドギャップを横断して、最小の Imk_z 持つ図 3 の矢印をつけた複素バンドによって決まる。この複素バンドは、Rek_z=0 なので波動関数は単調に減衰し、ε = E_F において Imk_z d_z = 1.06 なので、1 単位胞 (5 原子層) 当り exp(-1.06) だけ減衰する。

(2) 貴金属(111)表面の Rashba スピン分裂の起源：開発した EGF 法の計算プログラムを用いて、貴金属(111)表面の表面バンドの Rashba 分裂を調べた。Rashba 分裂は、SO 相互作用に起因するという点でトポロジカル絶縁体の電子構造にも関連深い。図 4 は Au(111)の L-gap Shockley 状態に関して、Γ-K 方向 (Γ-M 方向もほとんど同一) の(a) スピン分裂した 2 バンドのエネルギー分散関係、および(b)両バンドのスピンの大きさを示す。2 バンドが、射影バルクバンドギャップを挟んだ上下のバルクバンドに吸収されて消失すること、波数の増加とともに波動関数の結晶内部への減衰係数が減少するためスピン分裂が非線形を示す事等、従来の薄膜計算では得られない知見が得られた。また、Cu、Ag、Au(111)の L-gap 状態の波動関数の主要成分は p_z 軌道であるが、Rashba 分裂は、この p_z と混成した d₂₂ と d_{xz(yz)} 軌道間の SO 相

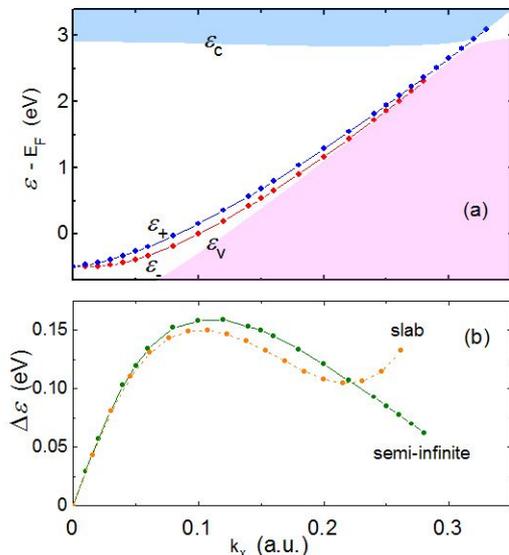


図4: Au(111)表面バンドの Rashba 分裂

相互作用の行列要素によって生じることを示した。Ag は Cu より大きな SO 行列要素を持つが、Ag(111)の L-gap 状態は、d₂₂ と d_{xz(yz)} 軌道成分の寄与が少ないため、Rashba 分裂が、原子番号の小さい Cu(111)の場合より小さくなることを示した。尚、p_z 軌道と混成し表面垂直方向の電荷密度分布の非対称性を生じる d₂₂ 軌道の重要性は早くから指摘されていたが、d_{xz(yz)} 軌道成分の重要性は、本研究で初めて指摘された。

(3) トポロジカル絶縁体の複素エネルギーバンド構造：図 3 は、Bi₂Se₃(111)面の複素バンド構造の一例であるが、複素バンドのエネルギー分散関係を見る限り、トポロジカル絶縁体と通常の絶縁体の間に違いはない。これはバルク結晶の価電子バンドのエネルギー分散関係を見ても、Z₂ 指数の違いが分らないと同様である。Z₂ 指数の違いは波動関数の振舞いに現れる。一方、Eq. (II) から分るようにエムベディングポテンシャル Σ(ξ, ξ') は波動関数の情報を含んでいる。Σ(ξ, ξ') は射影バルクバンドギャップ中ではエルミット行列であり、その固有値は実数である。i 番目の固有値を、(ε, k) の関数として、

$$\lambda = \lambda_i(\epsilon, k) \cdots \text{(III)}$$

と書くと、時間反転対称性がある系では、

$$\lambda_i(\epsilon, k) = \lambda_i(\epsilon, -k)$$

が成り立つ。ここから時間反転不変運動量においては、固有値は 2 重縮退することが分る。従って時間反転不変運動量において、エムベディングポテンシャルの行列式は

$$|\Sigma(\epsilon, k)| = (\lambda_1)^2 (\lambda_2)^2 (\lambda_3)^2 \cdots \geq 0$$

となり、決して負値をとらない。この式は、表面バンドのエネルギー分散関係を考える上で重要であることが分った。(ε, k, λ) の 3 次元空間の中で、Eq.(III) で表される曲面群を考えると、その振舞いが、Z₂ 指数によって明確に異なることが分った。これは、Z₂ 指数を直接計算しなくても、エムベディングポテンシャルの固有値の計算から、バンド絶縁体がトポロジカルに自明か非自明かを判断できることを意味する (本研究は実績報告書提出時において論文準備段階である)。

(4) 電子間クーロン反発力が表面 Dirac バンドに与える効果：研究方法で述べた Hubbard 型のクーロン反発項を加えた拡張 BHZ 模型を用いて、2 次元トポロジカル絶縁体表面および界面の電子構造をレイヤー DMFT 法により調べた。図 5(a) は、半無限結晶表面を考え、化学ポテンシャル近傍のエネルギーを持った電子の状態密度を、真空から結晶内部に向かって、原子層の関数として描いたものである。エネルギーギャップ中に現れる局在エッジ状態 (Dirac 状態) は、表面付近に局在した状態密度のピークを作る。また、クーロン反発エネルギー (U) の増加とともに、バンドギャップが減少して、これに伴い、Dirac 状態の状態密度が、より結晶内部に侵入することが分る。

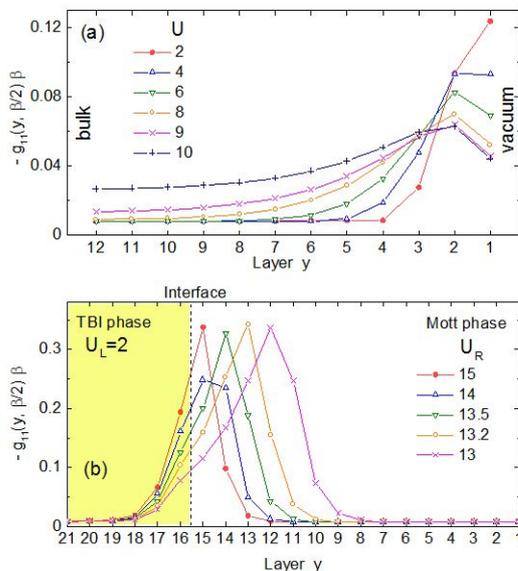


図5: 拡張BHZ模型のエッジ状態

拡張 BHZ 模型では、 U を増加させると、系はトポロジカル絶縁体から、トポロジカルに自明な Mott 絶縁体に相転移する[6]。この相転移は 1 次転移であり、 U のある範囲で両相は共存する。図 5(b)は、トポロジカル絶縁体（左側）と Mott 絶縁体（右側）の結晶界面を考え、化学ポテンシャル近傍のエネルギーを持った電子の状態密度を、原子層の関数として描いたものである。Mott 絶縁体のクーロン反発エネルギー U_R が 2 相共存領域にあると、近接効果のため、Mott 絶縁体の界面付近の原子層がトポロジカル絶縁体に相転移する。その結果、トポロジカル絶縁体を特徴づける局在エッジ状態が、Mott 絶縁体内部へ侵入する。ただし、図 5(b)の U_R の範囲では、バルク領域では Mott 絶縁相は、トポロジカル絶縁相よりも安定であり、図 5(b)のエッジ状態による状態密度のピークはこれ以上、Mott 絶縁体内部に侵入できない。

<引用文献>

- [1] L. Fu and C.L. Kane, Physical Review B, Vol.76, 045302 (2007).
- [2] Y. Ando, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.82, 102001 (2013).
- [3] J.E. Inglesfield, Journal of Physics C, Vol. 14, 3795 (1981).
- [4] H. Ishida, Physical Review B, Vol.63, 165409 (2001).
- [5] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S. C. Zhang, Science, Vol.314, 1757 (2006).
- [6] T. Yoshida, S. Fujimoto, and N. Kawakami, Physical Review B, Vol.85, 125113 (2012).

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 4 件)

H. Ishida, Y. Hamamoto, Y. Morikawa, E. Minamitani, R. Arafune, N. Takagi, "Electronic structure of the 4×4 silicene monolayer on semi-infinite Ag(111)", 査読有、New Journal of Physics、 Vol. 17, No. 1、 015013 [8 pages] (2015). DOI: 10.1088/1367-2630/17/1/015013

H. Ishida, "Rashba spin splitting of Shockley surface states on semi-infinite crystals", 査読有、Physical Review B、 Vol.90, No.23、 235422 [15 pages] (2014). DOI: 10.1103/PhysRevB.90.235422

H. Ishida, A. Liebsch, "Buried topological edge state associated with interface between topological band insulator and Mott insulator", 査読有、Physical Review B、 Vol. 90, No. 20、 205134 [11 pages] (2014). DOI: 10.1103/PhysRevB.90.205134

H. Ishida, A. Liebsch, "Coulomb blockade and Kondo effect in the electronic structure of Hubbard molecules connected to metallic leads: A finite-temperature exact-diagonalization study", 査読有、Physical Review B、 Vol. 86, No. 20、 205115 [13 pages] (2012). DOI:10.1103/PhysRevB.86.205115

〔学会発表〕(計 1 件)

H. Ishida, A. Liebsch, "Novel topological insulator phase induced by proximity effects at the interface between a topological band insulator and a Mott insulator: A layer DMFT approach", New Trends in Topological Insulators 2014、 2014 年 7 月 7-10 日 (ドイツ、ベルリン)。

〔図書〕(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

研究室ホームページ

<http://zwo.phys.chs.nihon-u.ac.jp>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

石田 浩 (ISHIDA, Hiroshi)

日本大学・文理学部・教授

研究者番号 : 6 0 1 8 4 5 3 7