

令和 元年 6 月 11 日現在

機関番号：12612

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2016～2018

課題番号：15KK0155

研究課題名（和文）ディラック電子系物質における熱電効果の理論（国際共同研究強化）

研究課題名（英文）Theory of thermoelectricity in Dirac electron systems(Fostering Joint International Research)

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） 9,600,000円

渡航期間： 11ヶ月

研究成果の概要（和文）：研究代表者が担当する理論と、滞在先のフランスグループが担当する実験が、密接に協働することにより、以下の成果を上げた。（1）全ての物質で初めてとなる、磁場による100%バレー分極をBiで達成した。（2）磁気抵抗の新しい公式を導き、これを様々な物質（Bi, Sb, SrTiO<sub>3</sub>）に適用した。Sbにおいて、磁気抵抗の最高記録（10,000,000%）を達成した。BiやSrTiO<sub>3</sub>の磁気抵抗の長年の謎の一部を解明することができた。

パリで開催された科学と芸術に関する展覧会に成果を出展し、好評を得た。滞在中に国際ワークショップを主催し、国際ネットワークの構築を進めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子が持つ電荷やスピンに次ぐ、新しい自由度としてバレーの自由度を制御する研究（バレートロンクス）が最近注目を集めている。本研究で達成した100%バレー分極は、バレートロンクスにおいて新しい方向性を示した。強磁性薄膜を用いた磁気抵抗は、すでにハードディスクなどで実用化されている。（発見者はノーベル賞を受賞）これとは別に、最近、半金属を用いた非常に大きな磁気抵抗が関心を集めている。本研究で得た実用的な磁気抵抗の理論は、今後磁気抵抗の実験を解析する上で、重要な役割を担いうる。

純粹に科学的研究で得られた成果の芸術性が評価されたことは、アウトリーチ活動の新たな方向性を示している。

研究成果の概要（英文）：By collaborating between theory (JPN) and experiment (FRA), we obtained the following results. (1) 100% valley polarization by magnetic field was achieved in Bi for the first time. (2) A new formula of magnetoresistance was derived and applied to various materials (Bi, Sb, SrTiO<sub>3</sub>). The largest magnetoresistance (10,000,000%) was achieved in Sb. The longstanding problem on magnetoresistance of Bi and SrTiO<sub>3</sub> was solved partly.

The results were presented in the exhibition on science and art, held in Paris. During my stay, I organized an international workshop and promoted the construction of an international research network.

研究分野：物性理論

キーワード：磁気抵抗 バレー分極 Bi Sb SrTiO<sub>3</sub> 量子振動 量子極限

## 様式 F-19-2

### 1. 研究開始当初の背景

熱電効果は、熱を電気に直接変換できるため、二酸化炭素を排出しない安全かつクリーンでコンパクトな発電機構として期待されている。広範な実用化には、変換効率の上昇が求められており、そのためには個々の熱電材料の電子状態を十分に理解した上、それらを俯瞰して分析する必要がある。しかし代表的な熱電材料の電子状態は個々によって大きく異なり、それらを統一的に比較するのは困難とされてきた。

そのような状況において、本研究の前身研究（若手研究 (B) 「ディラック電子系物質における熱電効果の理論」）では、「多くの熱電材料はスピン軌道結合 (SOC) が強い」という共通点に着目し、SOC が強い系のミニマム模型である Wolff 模型（ディラック模型）を用いて異なる熱電材料を統一的に調べることができることを着想した。

一方、現代固体物理学において SOC は中心的課題となっており、SOC によって生まれる新たな物性が注目されている。この特性を利用したスピンオービトロニクスという新しい分野がトポロジカル絶縁体やスピントロニクスといった分野と強く関連して急速に進展している。

### 2. 研究の目的

本研究では、熱電材料としてよく知られている V 族半金属 (Bi, Sb) と IV-VI 族半導体 (PbTe, SnTe, PbSe) を「SOC が強い物質」という観点からそれらの電子状態を統一的に調べることで、熱電気現象からスピンオービトロニクスに至るまで、幅広い分野を支える基盤的理解を深めることを目的とする。

この国際共同研究では、前身研究の理論的成果を発展させ、Behnia 教授 (ESPCI, フランス) 率いる実験グループと緊密な連携を取り、研究サイクルを加速する。Behnia 教授は、熱電気現象研究の第一人者として世界的に知られるだけでなく、最近では SOC の強い系の研究も強力に推進し、当該分野を牽引する一人に数えられている。熱電気現象からスピンオービトロニクスまでを見通せる実験家という点で、Behnia 教授が世界的にみても最適な共同研究者といえる。

このように分野横断型の新しい分野を開拓するためには、個々の分野に閉じこもっていても新しいイノベーションは起こしにくい。そこでヨーロッパの中心に滞在するという利点を生かし、国際的研究ネットワークを構築することも、本事業の目的である。

### 3. 研究の方法

【“実験を用いて”理論の精度を向上】量子振動や輸送係数計算の一部に k, p 理論を用いた解析的な工夫を施すことで、微視的には複雑な計算（それゆえ精度が落ちる）の部分を実験的に決定できる変数に置き換えられる。すなわち、実験値を現象論的入力変数とすることで、理論の計算精度を向上でき、結果として実験効率を大きく高めることができる。具体的には、（電気抵抗やゼーベック・ネルンスト係数による）角度分解量子振動解析に必要な、磁場中エネルギーの磁場の強度・方向依存性を計算する。より実験を定量的に解析するため、磁気抵抗の理論開発も行う。

【“理論を用いて”実験の効率を向上】本国際共同研究では実験グループと共同することで、理論の結果をその場で実験に反映させることができる。現実的には理論と実験の微調整を繰り返す泥臭い作業を要するが、理論抜きで実験を行うことに比べれば、格段に実験効率が上昇する。実験は、電気抵抗、ゼーベック・ネルンスト係数測定を中心に行う。強磁場の方位を制御することで、角度分解量子振動測定を行う。

### 4. 研究成果

#### (1) 初めての磁場誘起 100%バレー分極の達成

全ての電子が最低ランダウ準位に閉じ込められる状態を量子極限とよぶ。量子極限では、密度波転移やウィグナー転移など、様々な現象が理論的に予測されてきたが、実験的には現代においても多くは知られていない。というのも、通常金属の場合、量子極限を達成するには数百テスラもの磁場が必要で、実験が困難だからである。しかし Bi は、サイクロトロン質量が非常に小さい（電子の 1/1000）ため、わずか 1 テスラ程度（やや強力なネオジム磁石程度）で量子極限に到達する。この恵まれた特性を利用して、近年活発に Bi での量子極限探索が進められている。一つの実験的目標は、1980 年代に理論的に予測されていた半金属-半導体転移（電気伝導度の急激な降下が期待される）が現実にかかるかどうかを実験的に確かめることである。

この問題に対して Behnia 教授率いる実験グループは、50 テスラ付近で従来予測を裏切って、電気伝導度が急激に上昇することを見出した。この実験結果に対して、k, p 理論に基づいた詳しい理論解析を行ったところ（**図 1**）、上昇の起源は完全バレー分極にあることを突き止め、それにより磁場を用いて初めて 100%バレー分極状態に到達したことを証明した。さらに、3 つあるバレーのうち 1 つだけを完全に消滅させるか、2 つとも消滅させるかを磁場方向を変えるだけで制御することも新たに見出した。

今回、磁場によって 100%バレー分極状態に到達することを、全ての物質で初めて成功した。これは、理論と実験の密接な協働があったからこそその成果といえる。この成功を契機に、Si (バ

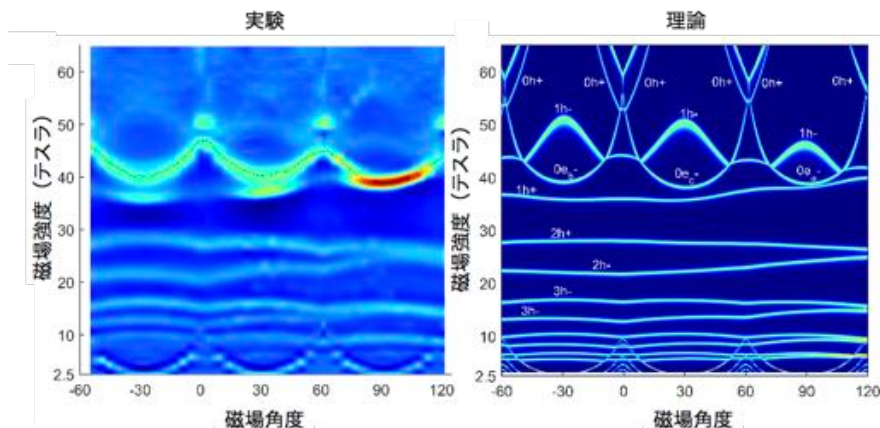


図1. ビスマスにおける磁気抵抗の磁場角度依存性. 左の実験結果を解析することによって得られたのが右の理論結果. 実験で明るい色の部分が理論で非常によく再現できている. この結果から, 強磁場中ビスマスの電子状態が明らかとなり, 100%バレー分極が達成されていることが証明された.

レー数6)やGe(バレー数8)など,よく知られる半導体においても同様の制御が可能か,あるいは,より低磁場で実現可能かなど,バレー制御(バレートロンクス)の研究に対しても新たな方向性をもたらすことが期待される.

## (2) 磁気抵抗研究の新しい方向性

### ①Biの磁気抵抗

1928年にカピッツァが飽和しない線形磁気抵抗を観測して以来,Biの磁気抵抗は様々な研究されてきている.線形磁気抵抗についていくつかの理論が提出されているが,未だ万人が納得する理解は得られていない.この問題に対して,我々はBiの特殊な電子状態——ディラック電子——を考慮した上で,従来のボルツマン理論に基づく磁気抵抗の理論を改めて見直した.半金属に特有な,キャリア数の磁場依存性を適切に考慮した結果,実験と定量的に一致する結果を得た.線形磁気抵抗については,複雑な散乱機構を考える必要はなく,単にキャリア密度が磁場に比例するという事実を考慮するだけで,再現できるという結論を導いた.

さらに,これまで弱磁場領域しか適用できないと考えられてきた,ボルツマン理論に基づく磁気抵抗計算が,強磁場領域(量子極限状態ですら)でも久保公式と一致する結果を与えることが分かった.久保公式は,強磁場領域で正確な結果を与えるが,計算が煩雑なため,実験との比較に用いるには不向きであった.しかし今回の結果は,計算が簡明で実験とも容易に比較できるボルツマン理論でも,強磁場まで正確に磁気抵抗が計算できることを示している.よって,本研究は,単にBiの磁気抵抗に対する理解を与えたのみならず,磁気抵抗に対する実験と理論の協働研究を大きく促進する契機を与えたといえる.

### ②Sbの磁気抵抗

近年様々な半金属で巨大かつ飽和しない磁気抵抗の報告が相次いでいる.特に大きな磁気抵抗とディラック電子,ワイル電子との関係が注目を集めている.事実,9テスラまでの範囲では最大の磁気抵抗を示すBiは,ディラック電子を有する.今回,我々国際共同研究チームは,Sb磁気抵抗を56テスラまで調べた結果,SbはBiを抜いて全ての半金属で最も大きくなる(100,000,000%以上)ことを見出した[図2(b)].この結果は,大きな磁気抵抗にディラック電子やワイル電子は必要なく(Sbは両者を有しない),むしろ低いキャリア密度と高い易動度が鍵になっていることを示している.

磁気抵抗の角度依存性を詳しく理論解析することで,易動度が磁場によって減少することも明らかにした.この結果は,強磁場中における散乱機構を同定する上で,非常に重要な意味を持っている.さらにSbの電子状態を理論的に詳しく調べることで,Sbのフェルミ面が非常に特殊な形状を持つことを初めて明らかにした(図3).(フェルミ面の特異な形状については(3)で述べる.)

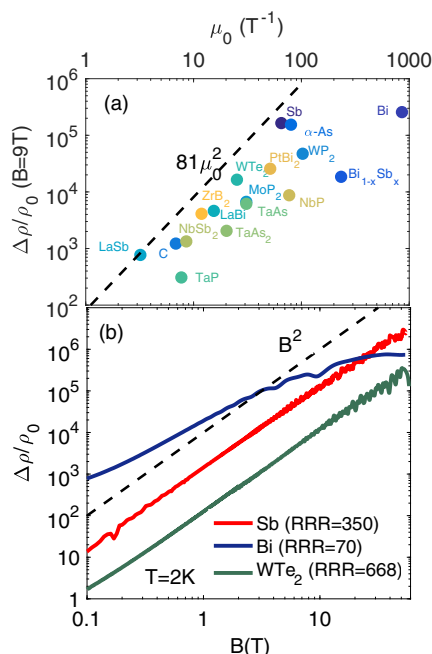


図2. (a) 様々な半金属の9T, 2Kにおける磁気抵抗. (b) 代表的な半金属(Sb, Bi, WTe<sub>2</sub>)の磁気抵抗. およそ30T以上ではSbがBiを抜いて最も大きな磁気抵抗を示す.

### ③SrTiO<sub>3</sub>の磁気抵抗

代表者の滞仏中、Behnia グループの実験で SrTiO<sub>3</sub> が大きな磁気抵抗を示すことが分かった。この磁気抵抗は、従来理論では一切説明がつかない。というのも、従来の教科書的理解では、磁気抵抗が生じるには、複数種のキャリアが必要であるが、SrTiO<sub>3</sub> は単一のキャリアしか持たず、磁気抵抗は期待できない。

この問題に対して我々は、Mackey-Sybert の磁気抵抗理論 (楕円体フェルミ面のみに適用可) を拡張し、任意のフェルミ面の形状に対しても磁気抵抗が計算できる公式を新たに導いた。この新しい公式を用いて計算した結果、従来の理解に反し、単一キャリアしか持たなくとも、フェルミ面が球形からわずかにずれただけで、顕著な磁気抵抗が現れることを明らかにした。

さらに SrTiO<sub>3</sub> の具体的なバンド構造を考慮して計算した結果、実験とも一致する磁気抵抗 (300%, 10T) を得た。現在、さらに詳しく実験を解析するための共同研究が進行中である。

#### (3) 「科学と芸術」への出展

上述の通り、バンド計算から Sb のフェルミ面が特別な形状をしていることが明らかになった。このフェルミ面をより深く理解するためには、立体模型が必要と考え、3Dプリンターを用いてフェルミ面を造形した (図3)。この形状が大変芸術的であるとの評価を得て、パリ市内で開催された展覧会「科学と芸術 (Sciences en Art)」に出展が決まった (図4)。参加者は科学とは無縁の一般の方々であった。フェルミ面が何かを説明するのにも苦労したが、中には驚くほど鋭い質問もあり、基礎研究の成果を社会に直接還元する、非常によい機会となった。Sb のフェルミ面は現在、パリの芸術家の目にとまり、新たな芸術的表現の模索中である。



図3. Sb のフェルミ面



図4. Sciences en Art 出展模様. 左下モニター前にあるのが Sb のフェルミ面.

#### (4) 国際ワークショップの開催

国際ネットワーク構築のため、2017年7月12-13日に国際ワークショップ”Spin-Orbit Interaction and G-factor (SOIG2017)”をパリで開催した。日本側発表者8名、フランス側12名で、熱電材料、重い電子系物質からスピントロニクスに至る、スピン軌道結合が関係する幅広いテーマについて意見交換した。さらに日本側参加者のネットワークをより強固なものにするため、帰国後の2018年6月9日にミニワークショップを電気通信大学で(参加者10名)、2018年11月12-13日に東京大学・物性研究所でISSPワークショップ(発表者21名)を開催した。これらの拡大したネットワークを元に、2019年5月9-10日、再びパリでSOIG2019を開催した(日本側発表者10名、フランス側10名)。このように、本事業による海外長期滞在を元に、日仏の国際研究ネットワーク構築を着実に進めている。なお、2020年度には、フランス以外からの海外研究者も招待し、より規模を拡大した国際シンポジウムの日本での開催を計画している。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者は下線)

[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  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  ( $0 \leq x \leq 0.1$ )”  
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  $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ ”  
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)

## 6. 研究組織

[主たる渡航先の主たる海外共同研究者]

研究協力者氏名: Kamran Behnia

ローマ字氏名: Kamran Behnia

所属研究機関名: パリ高等物理化学学校

部局名: Laboratoire de Physique et d'Etude des Matériaux

職名: CNRS ディレクター