

令和元年6月18日現在

機関番号：32660

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14345

研究課題名(和文) 単体カルコゲンにおけるスピン分裂バンドとカイラル結晶構造が生む新奇電気磁気効果

研究課題名(英文) Magnetoelectric effect in elemental chalcogens with a spin-split energy band and a chiral crystal structure

研究代表者

古川 哲也 (Furukawa, Tetsuya)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・助教

研究者番号：10756373

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、空間反転対称性の破れたカイラル結晶構造を持つ単体カルコゲンにおけるバルク電流誘起磁性を実現し、その詳細を明らかにすることを目的として研究を行った。この目的のためp型三方晶Teにおいて、パルス電流を印加磁場と結晶c軸方向に平行に印加し、 $^{125}\text{Te}$ -NMR測定を行った。その結果、印加電流の強さと極性に依存するスペクトルシフトを観測し、バルク電流誘起磁性を実験的に検出することに初めて成功した。また電流誘起磁性の加圧効果を調べ、Teの電流誘起磁性には結晶のカイラル構造に起因する軌道自由度が重要な役割を果たしていることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、反転対称性を持たない非磁性半導体に電流を流すことで磁化を生じさせるという新しい電気磁気効果を実験的に実現することに成功し、その機構にカイラルな結晶構造が重要な役割を果たしていることを見出した。この成果は非磁性体におけるバルク電気磁気効果という新しい学術分野の発展へと繋がるものであり、将来的にスピントロニクスなどの次世代情報処理技術、省エネルギー技術の発展へ寄与することが期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study I investigated the current-induced magnetization in elemental chalcogens with a chiral crystal structure, which does not have inversion symmetry. I measured the  $^{125}\text{Te}$  NMR spectra of a single crystal of p-type trigonal tellurium under an applied pulsed electric current parallel to both the c axis and an external magnetic field. I observed the current-induced shift of a  $^{125}\text{Te}$ -NMR spectrum depending on the strength and the polarity of an applied electric current. This is the first experimental result that captured the current-induced magnetization in bulk material. I also studied the pressure effect of the current-induced magnetization and revealed that orbital degrees of freedom due to the chiral crystal structure plays an important role in the current-induced magnetization of tellurium.

研究分野：物性物理

キーワード：電流誘起磁性 電気磁気効果 スピン軌道相互作用 空間反転対称性の破れ ジャイロトロピック 核磁気共鳴

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電気的な入力により磁氣的応答を得る「電気磁気効果」は、物質内の創発現象としての学術的価値のみならず、新たな機能性材料・デバイスの原理として応用の観点からも世界的に注目が集まっている。近年電気磁気効果の主な舞台は、マルチフェロイクス系と呼ばれる電気・磁気分極の両方を有する物質系であり、マルチフェロイクス電気磁気効果は電気・磁気分極間の結合を利用して、電場により磁化を動かすというシンプルな原理に立脚したものであり、電気磁気効果に強磁性・強誘電性が必要とされる点が特徴である。一方で、従来の電気磁気効果とは根本的に異なるものとして、非磁性体物質において電流印加によって、磁化を生じさせる電流誘起磁性が考えられる。電流誘起磁性はスピン軌道相互作用と反転対称性の破れに起因して起こることが表面・界面系の一部では知られているものの、バルク系での発現はない状況であった。

### 2. 研究の目的

本研究では、反転対称性の破れた構造を有する単体カルコゲンにおけるスピン分裂バンドとカイラル結晶構造に注目することで、近年注目を集めるマルチフェロイクス物質におけるバルク電気磁気効果とは根本的に異なる原理を持つ新奇バルク電気磁気効果である「バルク電流誘起磁性」を発現させ、その機構解明と巨大化の試みを通じて、バルク電流誘起磁性の学理基盤を構築することを目的とした。

電流誘起磁性を生じさせるメカニズムとして考えられるのは、反転対称性の破れた系におけるスピン分裂バンドに由来する電流誘起スピン磁化と、右手左手系の対称性の破れたカイラル結晶構造に由来する電流誘起軌道磁化の2つである(図1)。まずスピン分裂バンドは反転対称性の破れた系において強いスピン軌道相互作用が引き起こす現象であり、表面・界面系でのラッシュバ効果について特に研究されてきた。バルク系におけるスピン分裂バンドは長らく見過ごされてきたが、本研究で実際に対象とする単体カルコゲン Te のように、スピン軌道相互作用の大きい重元素から成り、反転対称性の破れた結晶構造を持つバルク物質は巨大スピン分裂バンドを持つことが期待される。このようなスピン分裂バンド系では、波数 $+k$ と $-k$ の電子は互いに逆向きにスピン分極しており、外場がなければスピン分極は打ち消され磁化はゼロとなる。一方で電流印加によってスピンの数に不均衡を作れば、電流誘起バルクスピン磁化を発現させることができ、非磁性半導体であっても電気磁気効果を生じさせることができると考えられる。さらに、Teのようにカイラルな結晶構造を持つ場合、系は右手系結晶もしくは左手系結晶のどちらかの構造をとるため天然の微視的なソレノイド構造を持つと考えられる。これまでこのような微視的なソレノイド構造が巨視的な物性に与える影響は注目されてこなかったが、結晶のらせん軸に平行な電流を印加すると電子の微視的ならせん運動が駆動され、結果として巨視的な磁化が発生することが期待される。本研究で対象とする単体カルコゲン Te は三回対称らせん軸を持つカイラル結晶構造(空間群  $P3_121$  もしくは  $P3_221$ )を持つため、このような「軌道運動を利用した電気磁気効果」という新奇現象の格好の舞台となる。本研究では上記の機構に基づいて発現が期待される電流誘起磁化の実験的検出を最大の目的とする。

電流誘起磁化が上記に述べたスピン磁化の不均衡による場合、その大きさはバンドのスピン分裂の大きさに比例することが期待される。よって、電流誘起磁化を巨大化させるには、スピン軌道相互作用によるバンド間混成を大きくし、スピン分裂を大きくすればよいと考えられる。単体 Te は加圧によりバンドギャップが顕著に減少することが知られているので、加圧下において電流誘起磁性を発現させることでその効果の巨大化を目指す。また同時に電流誘起磁化の圧力依存性から、Te における電流誘起磁性の発現機構についての知見を得ることを目指す。

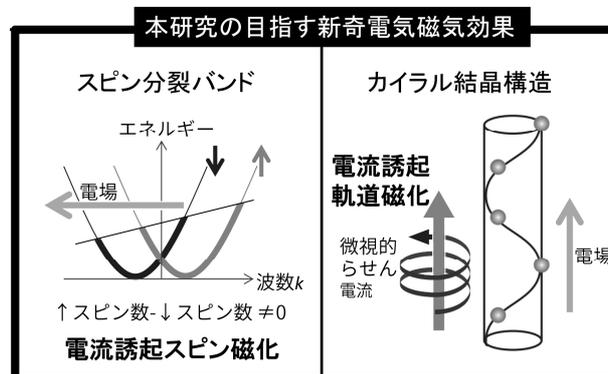


図1 本研究の目指す新奇電気磁気効果

### 3. 研究の方法

本研究ではバルク電流誘起磁性の実験的検出をどのように行うかが鍵であり、測定プローブに求められる条件としては、高感度な磁化測定が可能であること、バルク磁化が生じていることを示すためにバルク敏感なプローブであること、電流印加に伴う発熱の問題を最小限に抑えるために測定時間が短時間ですむプローブであること、が挙げられる。これらの条件を満たす電流誘起磁化の検出の測定プローブとして、本研究では電流パルス印加下の核磁気共鳴(NMR)を用いた。実際の測定系は図2のように電流と磁場を単体Teの結晶c軸方向に印加して行った。

静水圧力下の電流誘起磁性の測定は、クランプ式ピストンシリンダー型圧力セルとオイル圧力媒体(ダフニ 7373)を用いて 20kbar までの加圧下ができる環境を用意し、電気抵抗測定によって単体 Te のサンプル輸送特性を明らかにした後、電流印加下 NMR 測定系を立ち上げることで測定を行った。

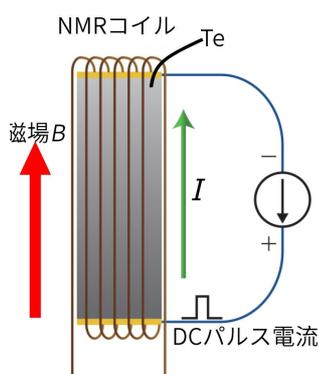


図2、電流印加 NMR の測定系

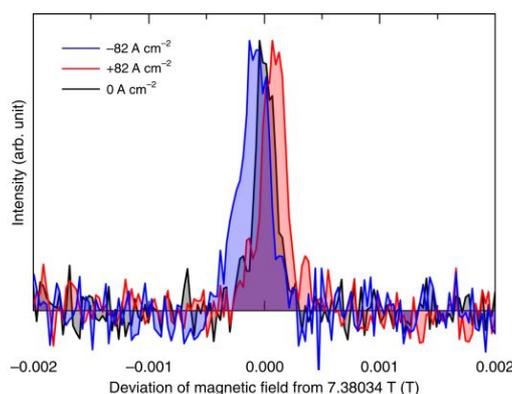


図3、電流誘起 NMR シフト

### 4. 研究成果

(1) 単体 Te にパルス電流を結晶 c 軸方向に印加し、電流が印加されている時間の  $^{125}\text{Te}$  の NMR スペクトルをスピンエコー法を用いて測定したところ、電流印加にともないスペクトルがシフトすることを観測した(図3)。スペクトルのシフトは Te 核まわりの局所磁場に变化が生じたことを意味するが、この局所磁場の原因が電流誘起磁化によるものであることを確かめるため、電流誘起磁化以外の原因として発熱による効果と、ピオ・サバルの法則によるエルステッド磁場の2つを検討した。まず、電流の極性に応じてシフトの方向が変化することから、電流の極性に依存しない発熱効果でないことが確かめられた。また、スペクトルが一樣なシフトを示すことから、スペクトル幅の増大を引き起こすエルステッド磁場による効果ではないことが確かめられた。以上の考察により、観測された電流誘起シフトはバルク電流誘起磁化によるものであることが強く示唆され、この結果をもってバルク電流誘起磁化を世界で初めて発現させることに成功した。さらに、電流の強さと電流誘起磁化の関係を調べるべく、電流誘起シフトの電流値依存性を計測したところ、電流誘起磁化が電流に対して線形に発現することがわかった。この結果を定量的に考察するべく、単体 Te のバンド分散から電流誘起磁化の値を半古典理論によって計算したところ、想定される Te の超微細構造定数のもとでは、電流誘起磁化の理論的な見積もりが、実験値を概ね再現することがわかり、電流誘起磁性の発現機構は、電流による逆符号の磁化を持つ電子の専有数の差によって引き起こされるという当初の予想が裏付けられた。

(2) 単体 Te において線形電流誘起バルク磁化の検出に成功した後、線形電流誘起磁性の対称性による考察を行った。一般に磁化  $M$  が電流  $I$  によって線形効果として生じるとき、その関係は電流磁化テンソルを用いて、 $M = \chi I$  と表すことができる。このとき、 $M$  が軸性ベクトル、 $I$  が極性ベクトルであることに起因して、テンソル  $\chi$  は軸性テンソルとなる。このことは応答テンソルの成分に制約を与える結晶対称性のうち、インプロパー回転が  $C_2$  の成分を大きく制限することを意味する。例えば系が反転中心を保つ場合、 $\chi$  は常に 0 となる。このことを踏まえ 21 の反転中心を持たない結晶点群について電流磁化テンソル  $\chi$  の表式を分類した。その結果、線形電流誘起磁性の発現には、反転対称性の破れよりも厳しい条件として、系が 18 のジャイロトロピックな点群のいずれかに属する必要性があることを明らかにした。また単体 Te のようなカイラルな物質は必然的にジャイロトロピックな物質になっていることも明らかにし、電流誘起磁性と対称性の関係について整理することで、現象の理解を深めることができた(図4)。

(3) 単体 Te を用いて電流誘起磁化の圧力効果を調べた。具体的には、クランプ式圧力セルを用いて、オイル圧力媒体のもとで 5kbar と 20kbar の静水圧加圧をした Te に対して電流印加下の NMR 測定により、電流誘起 NMR シフトの圧力依存性を調べた。Te は数 kbar 程度の加圧でバンドギャップが大きく減少することが知られており、当初の想定では、加圧によりバンド間混成が大きくなることでバンドのスピンスplitが大きくなり、電流誘起磁化はバンドギャップの減

少から見積もると2倍程度のオーダーで増大すると考えられた。しかし、実際の電流印加下 NMR の測定結果からは電流誘起磁化は圧力に対して顕著な増大を示さないことがわかった。この理由を解明するため Te のバンド構造を考察したところ、Te の価電子帯のバンド構造は、スピン軌道相互作用が存在しなくとも、カイラルな結晶構造に起因した inter atomic な軌道角運動量の存在によって、全角運動量分裂バンドが実現していることがわかった。これによりスピン軌道相互作用の影響は、全角運動量の z 成分  $\pm 3/2$  のバンドと  $\pm 1/2$  のバンドの間の分裂を増大させる効果が主であり、化学ポテンシャル付近にあり電流誘起磁性に寄与する  $+3/2$  と  $-3/2$  のバンド間の分裂には顕著に効かないことがわかった。このことは、Te における電流誘起磁性は本質的にスピン軌道相互作用が存在しなくとも発現するものであり、結晶のカイラル構造に起因する電流誘起軌道磁化に、スピン軌道相互作用によってスピン磁化が貼り付けられているものとして発現しているという特異な描像をもたらすものである（投稿論文準備中）。

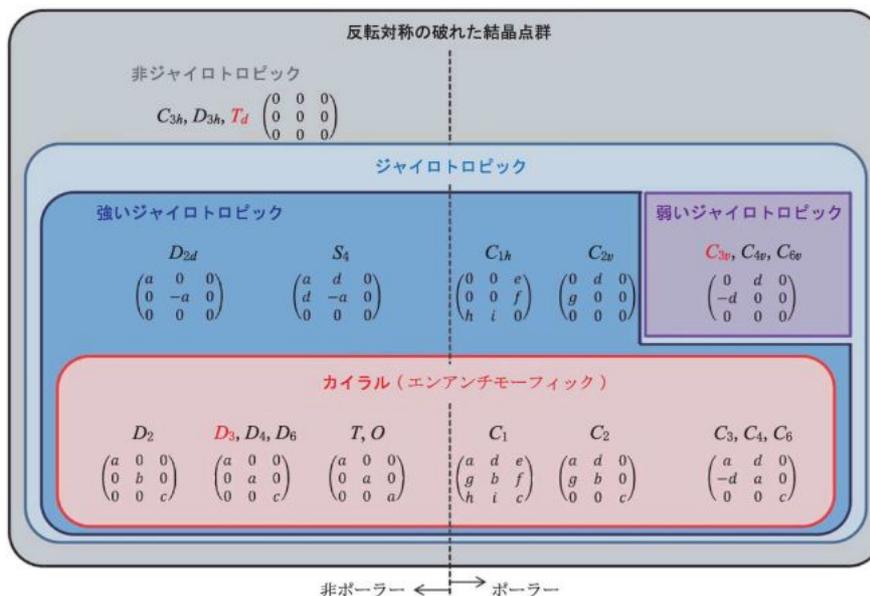


図4 反転対称性の破れた結晶点群と電流磁化テンソルの関係

以上、本研究では反転対称性をもたないカイラル結晶構造をもつ単体 Te において電流誘起磁化を実験的に検出することに成功し、対称性による考察から電流誘起磁性の理解を深め、圧力実験から Te の電流誘起磁性における軌道自由度の果たす役割を明らかにすることができたことをここに報告する。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

(1)

古川哲也、伊藤哲明

単体半導体テルルにおけるバルク電流誘起磁性

固体物理 (株 アグネ技術センター)

53,265-275 (2018)

(査読あり)

(2)

T. Furukawa

Observation of current-induced bulk magnetization in elemental tellurium

Nature Communications

8,1-5 (2017)

DOI: 10.1038/s41467-017-01093-3

(査読あり)

〔学会発表〕(計 3 件)

(1)

T. Furukawa

Observation of current-induced bulk magnetization in non-magnetic trigonal tellurium

International Symposium on Chiral Magnetism ( -mag 2018) (招待講演)(国際学会)

2018 年

( 2 )

渡邊悠太

三方晶 Te における電流誘起磁性の圧力依存性とスピン - 軌道相互作用の役割  
日本物理学会 2018 年秋季大会

2018 年

( 3 )

古川哲也

空間反転対称性が破れた単結晶 Te における圧力下電気磁気物性  
日本物理学会 2017 年秋季大会

2017 年

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.tus.ac.jp/ura/pressrelease/pdf/171016.pdf>

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。