

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03859

研究課題名(和文) 強相関トポロジカル物質の表面三角格子におけるバレー偏極が誘起する新奇電子構造

研究課題名(英文) Novel electronic structure stimulated in surface triangular lattice of strongly correlated topological materials

研究代表者

大坪 嘉之(Ohtsubo, Yoshiyuki)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・次世代放射光施設整備開発センター・主任研究員

研究者番号：70735589

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：結晶内部の電子状態の対称性により保護された結晶端低次元電子状態を持つトポロジカル絶縁体のなかでも、電子相関の影響が強いトポロジカル近藤絶縁体においては、三角格子系のエネルギー固有値の複素数化などの非自明な現象の発現が予測されていた。本研究ではトポロジカル近藤絶縁体であるサマリウム六硼化物の表面清浄化技術を様々な単結晶低指数面に適用し、これまで得られていなかった清浄表面試料を得た。表面三角格子においては表面ブリルアンゾーンの三重縮退点におけるトポロジカル電子状態の温度変化を追跡した。また、微傾斜研磨結晶に同手法を適用し、結晶内部とは異なる対称性を有するトポロジカル表面電子状態を発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、これまで作製が困難であったトポロジカル近藤絶縁体単結晶の清浄表面試料を得る方法がサマリウム六硼化物については確立できた。これまで理論的な予測が先行して十分に実験的面からの調査が行えていなかったトポロジカル電子状態と電子相関の協奏効果について、試料準備という実験研究の最初のハードルを大きく引き下げた意義は大きい。得られた複数の清浄表面試料において観測したトポロジカル表面電子状態においては、三角格子系の温度変化や微傾斜表面の異方的トポロジカル電子状態など、これまでは試料の制限により得られなかった興味深い電子状態の存在が明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Topological insulators hosting low-dimensional electronic states at the edge of the crystals are gathering broad attention in this decade. Among them, topological Kondo insulators derived from strong electron correlation are expected to exhibit various unconventional electronic phenomena, such as complex energy eigenvalues in a triangular lattice. In this study, some new clean surfaces of samarium hexaboride (SmB₆), one of a known topological Kondo insulator, are obtained by a new cleaning technique developed by us. On the surface triangular lattice of SmB₆, temperature-driven evolution of the topological electronic states at the triple degenerate points in the surface Brillouin zone is traced. Moreover, we also discovered a new topological surface states exhibiting different symmetry from the 3D states in the crystal on the vicinal surface of SmB₆.

研究分野：表面物理

キーワード：トポロジカル近藤絶縁体

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

過去 10 年の物性物理学において達成された重要な成果の 1 つとして、対称性により保護された逆格子空間内で縮退点を保持する電子状態に関する理解が飛躍的に進んだことが挙げられる。グラフェンやトポロジカル絶縁体に現れるディラックコーンはその典型例といえる。これらの物質のディラックコーンが保持する特異なスピン軌道偏極構造は、対称性と電子構造に関する基礎科学的な研究対象であるのみならず、これを利用したスピントロニクス・バレートロニクス技術への応用の側面からも大きな注目を集めていた。

この種の対称性と密接に関連した電子状態のなかでも、強い電子相関の効果がトポロジカル電子状態と共存するトポロジカル近藤絶縁体 (TKI) においては様々な非自明な現象が理論的に予測されていた。例えば TKI 表面に三角格子を組むことができれば、これまで全ての固体電子系ハミルトニアン的前提であったエルミート性質が崩れて複素エネルギー固有値をもつ Exceptional Point (EP) が現れることが期待されていた。しかしながら、この種の予測を検証するための TKI あるいはその候補物質の清浄表面試料作製は困難であり、本研究を開始した当時では申請者を含む少数の研究グループによる報告があるのみであった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、様々な対称性をもつ TKI 清浄表面を作り出し、そこに現れるトポロジカル電子状態における対称操作および電子相関の効果を明らかにすることである。特に、TKI であるサマリウム六硼化物 (SmB_6) 表面原子が三角格子を組む (111) 表面において、 C_3 対称性で保護された EP が現れるという理論予測に注目し、これらを検証できる実験系の実現とそこに現れる低次元電子状態の解明を本研究の目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、申請者が近年開発した SmB_6 の清浄表面作製手法をさらに発展させ、 SmB_6 単結晶の様々な低指数面に適用した。 SmB_6 単結晶は大気中で指定の面指数に沿って研磨し、その後超高真空槽に導入して表面原子構造の清浄化と秩序化を試みた。具体的には、最高で 1400 程度までの加熱により研磨過程および大気中への暴露によって表面に付着・反応した酸化物や炭化水素等の汚染を除去するとともに、熱によって表面原子配列を振動させた後に徐冷することで最安定な表面原子構造への誘導を試みた。一方、上記の表面加熱手法は温度を高くし過ぎると表面近傍の Sm が脱離してしまい化学量論比が崩れることが知られている。Sm の脱離温度や表面清浄化に必要な加熱温度は面指数や最終的に到達する表面原子構造の違いに対応して異なるため、面指数によっては単純な加熱では清浄化が完了するより先に表面からの Sm 脱離が支配的になってしまう場合が考えられた。そのような表面に対しては、予め希ガススパッタリングや原子状水素雰囲気下での加熱等を施すことで汚染や酸化物を除去し、低い加熱温度で清浄化を完了できるように手法の改良を行った。

4．研究成果

SmB₆(111)表面においては、超高真空中で 1400 程度まで加熱することで鋭い電子回折パターンの得られる清浄面が得られた。本研究開始時点で既に成功例のある表面構造であったが、加熱中の周辺部品の冷却による脱ガス抑制などの改善を行うことでより安定して良質な表面試料を準備できるようになった。

得られた表面の電子構造については角度分解光電子分光(ARPES)を用いて観測を行った。特に EP が現れると期待される表面ブリルアンゾーン上の 3 重縮退点に着目し、フェルミ準位近傍の光電子ピークの形状、ピーク位置、ギャップ形成の有無等の特徴が試料温度に伴って変化する様子を追跡した。しかしながら、20K より高温では通常のエルミート固有値で説明できる範囲の振る舞いしか観測されなかった。EP の出現をはじめとする電子相関の関わる電子物性の発現を期待する際には 20K はやや高い温度であるため、今回の測定にはかからなかった可能性がある。試料作製手法自体は十分な再現性と信頼性が得られたと考えられるため、今後はより低温での測定を進めていく予定である。

並行して、SmB₆(001)清浄表面の作製も試みた。同表面では互いに 90°回転した等価なドメイン構造が共存することや、単に結晶を破断した表面には多数の異なる表面原子構造が共存することなどが知られており、SmB₆(001)表面において単一の表面原子構造と 1 対 1 対応した表面電子状態の観測は行えていなかった。申請者は単結晶試料の研磨方向を(001)面からわずかに傾け、その研磨試料を超高真空槽内で希ガススパッタリングと 1100 程度の加熱により清浄化することで、これまで得られていなかった単一ドメインの SmB₆(001)表面原子構造の作製に成功した。さらに、同表面の電子状態について ARPES を用いて観測したところ、表面原子構造の異方性に対応して 1 方向に長く伸びた 2 次元フェルミ面を発見した。これは SmB₆ 単結晶内部で保たれていた 90°回転(C₄)対称性が表面のトポロジカル電子状態において崩れたことを意味する。このように結晶内部の対称性からある程度独立した性質をもつトポロジカル表面状態が観測されたのは本件が初めてである。この発見は表面原子構造によってトポロジカル表面状態の性質を制御できる可能性を示すものであり、特に応用に際して望みの特徴を持つトポロジカル電子状態を作り出す際の新たな指針となり得る有意義なものであった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kimura Shin-ichi, Kawabata Taishi, Matsumoto Hiroki, Ohta Yu, Yoshizumi Ayuki, Yoshida Yuto, Yamashita Takumi, Watanabe Hiroshi, Ohtsubo Yoshiyuki, Yamamoto Naoto, Jin Xiuguang	4. 巻 92
2. 論文標題 Bulk-sensitive spin-resolved resonant electron energy-loss spectroscopy (SR-rEELS): Observation of element- and spin-selective bulk plasmons	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 093103 ~ 093103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0055435	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ohtsubo Yoshiyuki, Tokumasu Naoki, Watanabe Hiroshi, Nakamura Takuto, Le Fevre Patrick, Bertran Francois, Imamura Masaki, Yamamoto Isamu, Azuma Junpei, Takahashi Kazutoshi, Kimura Shin-ichi	4. 巻 101
2. 論文標題 One-dimensionality of the spin-polarized surface conduction and valence bands of quasi-one-dimensional Bi chains on GaSb(110)-(2×1)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235306-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.235306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nakamura Takuto, Nakaya Toru, Ohtsubo Yoshiyuki, Sugihara Hiroki, Tanaka Kiyohisa, Yukawa Ryu, Kitamura Miho, Kumigashira Hiroshi, Imura Keiichiro, Suzuki Hiroyuki S., Sato Noriaki K., Kimura Shin-ichi	4. 巻 107
2. 論文標題 Surface valence transition in SmS by alkali metal adsorption	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 .L041102-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.L041102	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ohtsubo Yoshiyuki, Nakaya Toru, Nakamura Takuto, Le Fevre Patrick, Bertran Francois, Iga Fumitoshi, Kimura Shin-Ichi	4. 巻 13
2. 論文標題 Breakdown of bulk-projected isotropy in surface electronic states of topological Kondo insulator SmB6(001)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5600-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-022-33347-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Ohtsubo Yoshiyuki, Kimura Shin-ichi, Iga Fumitoshi	4. 巻 4
2. 論文標題 Recent progress in clean-surface formation of topological Kondo insulators and topological surface states observed there	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Electronic Structure	6. 最初と最後の頁 033003-1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2516-1075/ac8631	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakamura Takuto, Ohtsubo Yoshiyuki, Harasawa Ayumi, Yaji Koichiro, Shin Shik, Komori Fumio, Kimura Shin-ichi	4. 巻 105
2. 論文標題 Fluctuating spin-orbital texture of Rashba-split surface states in real and reciprocal space	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235141-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.235141	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohtsubo Yoshiyuki, Ueno Tetsuro, Iwasawa Hideaki, Miyawaki Jun, Horiba Koji, Inaba Kento, Agui Akane, Inami Nobuhito, Nakatani Takeshi, Imazono Takashi, Fujii Kentaro, Kimura Hiroaki, Takahashi Masamitsu	4. 巻 2380
2. 論文標題 Design of nano-spintronics beamline at 3-GeV next-generation synchrotron radiation facility, NanoTerasu	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012037 ~ 012037
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/2380/1/012037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 大坪 嘉之, 上野 哲郎, 岩澤 英明, 宮脇 淳, 堀場 弘司, 安居院 あかね, 稲葉 健斗, 井波 暢人, 中谷 健, 今園 孝志, 藤井 健太郎, 木村 洋昭, 高橋 正光
2. 発表標題 Design for nano-spintronics beamline at 3-GeV next-generation synchrotron radiation facility
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大坪 嘉之, 上野 哲郎, 岩澤 英明, 宮脇 淳, 堀場 弘司, 安居院 あかね, 稲葉 健斗, 中谷 健, 今園 孝志, 藤井 健太郎, 木村 洋昭, 高橋 正光
2. 発表標題 次世代放射光施設 共用ビームライン検討状況II - 顕微スピントロニクスビームライン-
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大坪嘉之
2. 発表標題 近藤絶縁体SmB6の単結晶表面清浄化技術の開発とトポロジカル表面電子状態の観測
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------