

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 29 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24684022

研究課題名(和文)空間反転対称性の破れたトポロジカル絶縁体の原子分解能分光イメージング

研究課題名(英文)Atomic-resolution spectroscopic imaging of non-centrosymmetric topological insulators

研究代表者

幸坂 祐生 (Kohsaka, Yuhki)

独立行政法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：80455344

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,800,000円

研究成果の概要(和文)：空間反転対称性の破れた結晶において強いスピン軌道相互作用がもたらす特徴的な電子状態を、走査トンネル顕微鏡を用いた分光イメージングにより探索した。重元素からなる層状極性半導体BiTeIをプロトタイプ物質として測定した結果、表面に誘起された電流担体が結晶内部の自発分極に由来することを明らかにした。この成果は、非揮発・スピン分極した両極性2次元系の新しい形成方法を実証するものであり、極性物質の表面が物性・機能の探索の場であることを示している。

研究成果の概要(英文)：To investigate electronic states where strong spin-orbit interaction plays an important role in non-centrosymmetric materials, we have performed spectroscopic-imaging scanning tunneling microscopy of a polar semiconductor BiTeI. We showed that ambipolar two-dimensional mobile carriers on the surface were induced by the spontaneous electric polarization in the bulk. Our study demonstrates a novel means to induce non-volatile and polarity-switchable two-dimensional carriers and indicates that the surfaces of polar materials are available to explore new phenomena and functionalities.

研究分野：物性物理

キーワード：走査トンネル顕微鏡 Rashba効果 トポロジカル絶縁体

1. 研究開始当初の背景

スピントランジスタや量子コンピューターなどの革新的なデバイス応用への期待を背景として、強いスピン軌道相互作用により生じる量子現象が注目を集めていた。バンド構造の非自明なトポロジーで規定されるトポロジカル絶縁体は、その代表例である。トポロジカル絶縁体の表面には、スピン偏極した有効質量0のDirac状態など、対称性によって守られた独特な表面状態が出現する。そうした特異な性質についての研究が進行中であった。

強いスピン軌道相互作用がもたらす物性への影響は、空間反転対称性が破れた環境下で一層顕著に現れる。一般的に、結晶の空間反転対称性が破れると、縮退が解けてバンド構造がスピン分裂を起こす。よく知られた例がRashba効果である。しかし、Rashba分裂バンドが非自明なトポロジーを有するときの電子状態は不明であった。実現すればDirac状態とRashba分裂の共存、結晶の裏と表で異なるDirac状態が出現することなどが理論的に予想された。したがって、強いスピン軌道相互作用が存在し、結晶の空間反転対称性が破れた物質は、新奇量子状態を探索する上で重要な対象であった(図1)。

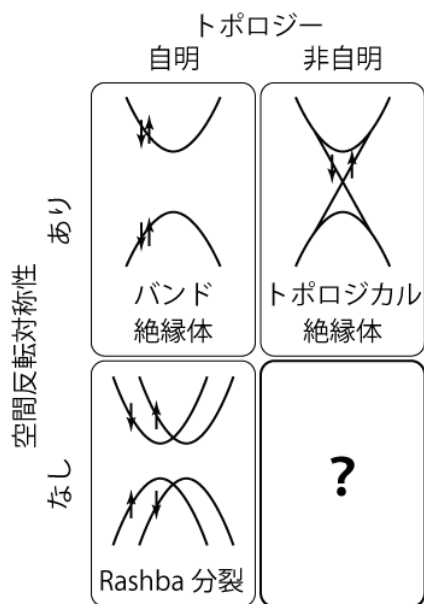


図1:空間反転対称性の有無、バンド構造のトポロジー、電子物性の関係。

2. 研究の目的

本研究においては、空間反転対称性の破れた結晶において強いスピン軌道相互作用がもたらす特徴的な電子状態を分光学的に探索することを目的とした。特に、トポロジカル絶縁体およびRashba効果に注目し、実空間・波数空間の両面から特異な電子状態を定量的に解明し、空間反転対称性の破れ、及び、強いスピン軌道相互作用がもたらす物理の深化に寄与することを目指した。

3. 研究の方法

電子状態の探索には、電子状態を直接観測することができる分光学的測定手法が有効である。本研究では、走査トンネル顕微鏡を用いた分光イメージング法(Spectroscopic Imaging Scanning Tunneling Microscopy, SI-STM)を用いた。SI-STM測定は、走査トンネル顕微鏡が持つ高い空間分解能と、トンネル分光法が持つ高いエネルギー分解能で物質表面の状態密度分布を明らかにすることができる分光法である。SI-STM測定自体は実空間プローブであるが、得られた状態密度分布をFourier変換することで波数空間情報を得ることもできる。特に、電子定在波パターンをFourier解析することでバンド構造や散乱機構に関する情報が得ることができる。

実際の測定は、理化学研究所に設置された超高安定超高真空低温走査型トンネル顕微鏡を用いて行った。この装置は機械的振動が0.5 pm以下、ドリフトが約0.1nm/日と極めて安定しており、約4Kで約3日程度連続測定が可能であった(研究開始時)。このような安定した装置からは歪の少ないデータが得られるため、Fourier解析を行う上で非常に重要である。

測定試料の表面は、原子レベルで平坦であり、かつ、清浄であることが求められる。そのため、優れたへき開性を示す物質が適している。そこで、本研究では層状極性半導体BiTeIをプロトタイプ物質として用いた。BiTeIは重元素からなり、中心対称性のない構造を持つ(図2)。さらに、研究開始時には、大きなRashba分裂を示すことが実験的に知られており、理論的には圧力下でトポロジカル絶縁体になることが予測されていた物質である。

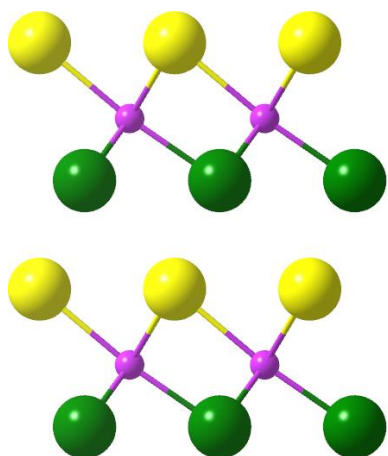


図 2: BiTeI の結晶構造。I-Bi-Te の積層順になっており、反転対称性のない構造となっている。

4. 研究成果

(1) 測定環境整備

SI-STM 測定データの質は探針先端と試料表面の状態に強く依存する。そのため、データの信頼性を確保するためには、異なる探針と試料を用いて同条件の測定を複数回繰り返す必要がある。そこで、系統的な測定を効率よく行うための測定環境整備を行った。主要な項目は、デジタル STM コントローラーと大型液体ヘリウムデュワーの導入である。

デジタル STM コントローラーの導入により、測定パラメータの選択肢が大幅に広がり、また、多チャンネル同時測定が可能となった。これにより、これまで複数回に分けていた測定をまとめることができるようになり、大幅な効率向上がもたらされた。

大型液体ヘリウムデュワーの導入による最大の利点は 1 回の測定時間が最長で約 8 日間と長くなったことである。これにより、原子位置が特定された 1 つの大きなデータセットを得られるようになっただけでなく、測定時間をより柔軟に配分することが可能となった。

(2) SI-STM 測定

上記の装置を用い、層状極性半導体 BiTeI について SI-STM 測定を行った。測定試料の表面は、超高真空チャンバー内、約 77K で単結晶をへき開して用意した。へき開後は、

STM ヘッド(4.6K に冷却されている)に直ちに搬送した。探針はタングステンワイヤーを電気化学研磨したものを用い、超高真空チャンバー内で電界イオン顕微鏡によって調整した後を使用した。測定は全て 4.6K で行った。

優れたへき開性を反映し、原子分解能は比較的容易に得られた。そこで、キャリア濃度・不純物などが異なる試料について系統的な測定を繰り返し行った。それらの測定から明らかにした事柄は以下の通りである。

① BiTeI には、2 種類のドメイン構造が 1 つの結晶内に存在する。ドメインは大きさが数百 nm 程度であり、結晶の積層方向が反転することで生じている。

2 種類のドメインは、不純物パターンとスペクトル形状から区別された(図 3)。また、2 種類のドメインが 1 つの表面に共存して現れること、及び、3 種類以上の構造が見出されることはないことから、ドメイン構造は結晶の積層方向の反転に対応することが判明した。

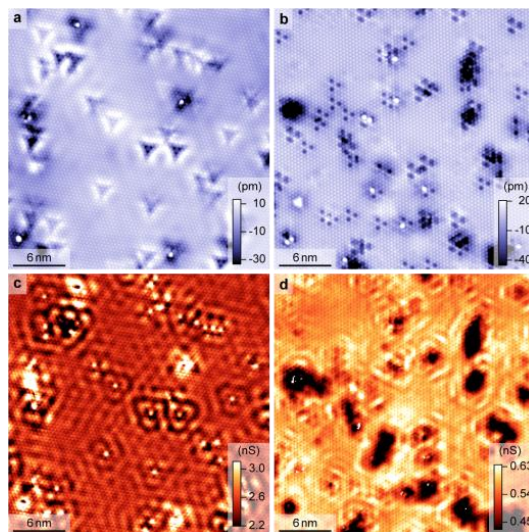


図 3: (a, b) BiTeI の走査トンネル顕微鏡像。1 辺は約 30nm。それぞれの像は積層方向が逆転したドメインに対応し、(a)は Te 面、(b)は I 面が最表面である。原子に加えて、欠陥が三角形の模様として観測される。(c, d) (a)及び(b)と同じ領域で測定された微分コンダクタンス像。欠陥周囲の波状の模様は、電子波が欠陥によって散乱されることで生じる干渉縞(電子定在波)である。

② ドメイン表面には正または負の電流担体が存在し、その符号はドメインの極性方

向と対応する。

各ドメイン表面では電子定在波が観測された(図3)。電子定在波は、不純物やステップなどに入射する電子波とそれらによって散乱された電子波が干渉することで生じる。したがって、電子定在波の波長のエネルギー依存性を調べることによって、表面に存在する電流担体の符号を決定することができる。表面から内部に向かう積層順が Te-Bi-I であるドメインでは電流担体の符号は負、逆の積層順(I-Bi-Te)のドメインでは正であった。

- ③ 電子定在波パターンから Rashba 分裂の大きさを見積もることができることを示した。

電子定在波は Te-Bi-I ドメインで特に明瞭であり、2本の分散が観測された。この分散の波数の差は Rashba 分裂の波数に対応する。見積もられた分裂の大きさは、角度分解光電子分光の結果と一致した。Rashba 分裂バンドに起因する電子定在波のみから分裂の大きさを得ることができることを示した初めての結果である。

- ④ ドメイン表面での電子密度は、物質内部の電子密度とは無関係に常に一定である。

バイアス電圧が 0 mV のときの電子定在波の波長は、表面状態のフェルミ波数、すなわち表面電子密度を反映している。バルクの電子密度が異なる試料($\sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $\sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)について測定を行ったところ、全ての試料において電子定在波の波長は同じ、すなわち、表面電子密度は一定であった。

- ⑤ ドメイン境界には 2次元電子ガスと 2次元ホールガスからなる p-n 接合が形成される。

ドメイン境界を横切る方向に沿ってスペクトルを精密に測定すると、電子状態の変化はドメイン境界付近の 3nm 程度の生じることが判明した。これは表面電子密度から期待される p-n 接合の空乏層の幅と一致する。

以上の測定結果を総合すると、

- ⑥ 極性半導体 BiTeI の表面に誘起された電流担体は、結晶内部の自発分極に由来する

ことが示される。これは、非揮発・スピン分極した両極性 2次元系の新しい形成方法を実証し、極性物質の表面が物性・機能の探索の場であることを示している。

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 0 件)

[学会発表] (計 6 件)

(1) 幸坂祐生, 極性半導体 BiTeI における両極性 2次元キャリアの自発形成, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学 (愛知県・春日井市).

(2) 幸坂祐生, Visualizing a p-n junction of two-dimensional electronic gases on a polar semiconductor BiTeI, March Meeting 2014, American Physical Society, 2014 年 3 月 4 日, Denver (USA).

(3) 幸坂祐生, Visualizing a p-n junction of two-dimensional electronic gases on a polar semiconductor BiTeI, FIRST-QS2C Workshop on "Emergent Phenomena of Correlated Materials", 2013 年 11 月 14 日, 品川インターシティーホール (東京都・品川区).

(4) 幸坂祐生, 層状極性半導体 BiTeI の走査トンネル分光, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 25 日, 徳島大学 (徳島県・徳島市).

(5) 幸坂祐生, BiTeI における両極性スピン分裂 2次元電子ガスの分光イメージング測定, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 29 日, 広島大学 (広島県・東広島市).

(6) 幸坂祐生, 層状 Rashba 物質 BiTeI の分光イメージング測定 (III), 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 20 日, 横浜国立大学 (神奈川県・横浜市).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]
特になし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

幸坂 祐生 (KOHSAKA, Yuhki), 理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員,
研究者番号：80455344

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし