

機関番号：15401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740204

研究課題名(和文)トポロジカル絶縁体表面電子状態：ディラックコーンの異方性と準粒子散乱の研究

研究課題名(英文)Surface electronic state of topological insulator : Dirac corn

研究代表者

有田 将司 (Arita, Masashi)

広島大学・技術センター・技術主任

研究者番号：20379910

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,700,000円、(間接経費) 510,000円

研究成果の概要(和文)：トポロジカル絶縁体の表面電子状態においてWarping効果の違うBi₂Se₃にGeBi₂Te₄について、主にGeBi₂Te₄について、その電子状態について新しい知見を得るために、高分解能角度分解光電子分光実験を行った。

得られた成果は、両者は、同様な分散形状をしたディラックコーンを持ち、フェルミ準位近傍に結合エネルギー -15~-17meVにフォノンによる折れ曲がり構造を観測した。Bi₂Se₃においては、ディラック点付近での準粒子散乱(フォノン電子散乱、電子-電子散乱)の抑制を見出したが、GeBi₂Te₄ではディラック点近傍での顕著な散乱の抑制効果は見られなかった。

研究成果の概要(英文)：We have studied the electronic structure of the septuple-layer material GeBi₂Te₄ and quintuple-layer material Bi₂Se₃ which are the topological insulators by means of angle-resolved photoemission spectroscopy. We have observed a Dirac-fermion-like topological surface states around the gamma point. While the dispersion of the topological surface state in GeBi₂Te₄ is similar to that in Bi₂Se₃, the hexagonal warping effect is much stronger in GeBi₂Te₄. The estimated bulk band gap of GeBi₂Te₄ is about 120 meV and the valence-band maximum is found to overlap the Dirac point. In the spectra near the Fermi level, kink structures derived from the electron-phonon interaction exists at 15-20 meV. In Bi₂Se₃, the electron-electron interaction decreases around Dirac point and the minimum is at Dirac point. In GeBi₂Te₄, that is not suppressed. That increases between bulk and surface state, because the bulk state exists around Dirac point.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：トポロジカル絶縁体 角度分解光電子分光

1. 研究開始当初の背景

多体フェルミ粒子系の新しい量子相として注目を集めているトポロジカル絶縁体は、バンド絶縁体であるが、エネルギーギャップ内にギャップの無い金属電子状態が表面や界面に現れる物質である。時間反転対称性のあるスピン軌道相互作用の強い系では、スピン分極し、散逸の無いスピン流を生成する。この表面状態は、低エネルギーでディラック方程式に従い、バンド形状はディラックコーンを成すことが知られている[C. L. Kane and E. J. Mele, Phys Rev. Lett. 95, 146802(2005), Phys Rev. Lett. 95, 226801(2005)]。このようなトポロジカル絶縁体では、基礎物性的な観点のみならず、スピントロニクスデバイス開発など応用上でも大きな注目を浴びている。Bi₂Te₃、Bi₂Se₃は、トポロジカル絶縁体のスター的物質であり、比較的バルクのバンドギャップが大きく、ギャップ内に単一の理想的なディラックコーンを持ち、角度分解光電子分光測定によるスピン分裂したディラックコーンの観測など多くの研究がなされている。[たとえば H. Zhang et al., Nature phys. 1270 (2009), Y. L. Chen et al., Science 325, 178 (2009), D. Hsieh et al., Nature 460, 1101 (2009), Y. Xia et al., Nature phys. 1274 (2009)]。また、新規のトポロジカル絶縁体の探索も精力的に行われており、TlBiSe₂などが新たに見つかっている[K. Kuroda et al., Phys. Rev. Lett. 105, 146801 (2010). など]。

これまで Bi₂Te₃ について角度分解光電子分光測定が行われ、六角形星状変形した異方的等エネルギー面(フェルミ面)が観測され[Y. L. Chen et al., Science 325, 178 (2009).]。また、応募者を含む研究グループでは、Bi₂Se₃ に対し、高分解能角度分解光電子分光実験を行い、スピン分極した表面状態が六角形の異方的なフェルミ面を成していることを観測した[K. Kuroda et al., Phys Rev. Lett. 105, 076802 (2010).]。フェルミ面の異方性は、菱面体構造をとる結晶内でのドレッセルハウス項から面直スピン成分を持つことからきており、このような効果は、ワーピング効果[L. Fu, Phys Rev. Lett. 103, 266801 (2009).]とよばれ、完全なトポロジカル絶縁体表面では禁止される準粒子の完全後方散乱も許容され、散乱確率が増加することが予想されている。

2. 研究の目的

トポロジカル絶縁体の表面電子状態:ディラックコーンにおいて、ワーピングと呼ばれる効果により六角形星状変形を起こすが、その強度や変形を受けたディラックコーンを形成する準粒子散乱については、ほとんど議論はされてきていなかった。本研究の目的は、ワーピングの強度が違う Bi₂Te₃、Bi₂Se₃ と新規に発見された PbBi₂Te₄、GeBi₂Te₄ について、偏光依存性と励起エネルギー

依存性を利用した高分解能角度分解光電子分光(ARPES)実験を行い、ディラックコーンを構成する電子状態の実験の新しい知見(構成軌道成分、表面電子状態の3次元的広がりなど)を得、トポロジカル絶縁体表面でのワーピングの強度の差の原因を明らかにし、理想的な等方的ディラックコーン構成のために必要な条件を見出ことを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、Bi₂Se₃、GeBi₂Te₄ に絞り、研究を進めた。ブリッジマン法で育成した試料に対し、ラウエ像を撮り、純良な単結晶性が得られていることを確かめた。測定は、広島大学放射光科学研究センターHiSOR BL-9A にて、高分解能 ARPES を実施した。試料の方位を確認したのち、極高真空下へ導入後、[111]面を劈開し、清浄表面を得た。

ブリルアンゾーン全体の ARPES 測定(マッピング)を行った後、 Γ 点で観測されたディラックコーンについて、詳細な測定を行った。ARPES スペクトルの形状解析により自己エネルギーを見積もり、ディラック電子状態の準粒子(不純物)散乱の定量的解析を行った。

ディラックコーンに対して直線偏光依存性の測定も行ったが、軌道に対する明確な情報は、得られなかった。

2つの物質について、特に準粒子散乱の解析結果を比較し、ワーピング効果の差と散乱抑制効果について考察した。また、GeBi₂Te₄ については、キャリア制御をした試料についても育成に成功し、ディラックコーンの ARPES 測定と内殻スペクトル測定も行えたので、合わせて考察を行った。

4. 研究成果

研究開始当時 ARPES 測定が行われていなかった GeBi₂Te₄ について、トポロジカル絶縁体であることを確認するために、表面ブリルアンゾーン全体について、フェルミ準位(E_F)からエネルギー: E = -400meV まで入射光エネルギー hv=21eV を使い ARPES 測定を行った。その結

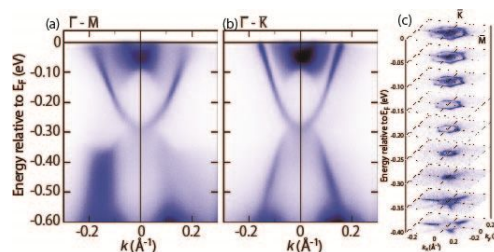


図1

果、そのエネルギー範囲では、 Γ 点付近にのみ状態が存在することが分かった。

次に、 Γ 点を中心としたフェルミ準位近傍の分散の詳細を hv=21eV で測定した結果を図1に示す。

(a)は、M 方向、(b)は K 方向。(c)は、E_F から E=-400meV までの 50meV 毎の各等エネルギー

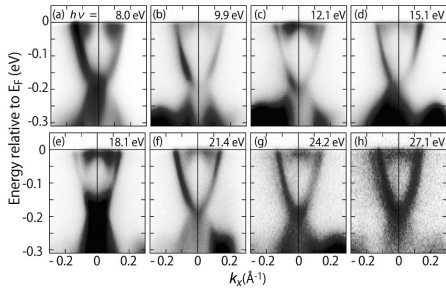


図 2

一面である。E=-300meV に分散が収斂、交差を持つディラックコーン状のエネルギー分散が得られた。また、このバンド構造について 3 次元的分散形状を見るために、入射光エネルギー依存性の測定を行った。図 2 に、 $h\nu=8\text{eV}$ から 27.1eV まで M 方向で測定した結果を示す。(この試料は、キャリア量の違いから交点が -0.2eV となっている。)この結果は、分散の k_z 依存性を示しており、 8eV から 27.1eV では、 k_z 方向のブリルアンゾーン 2 周期分が測定でき、ブリルアンゾーンの Z 方向の全体を網羅している。分散形状の変化は、 $E=-0.15\text{eV}$ 以下と、 E_F 近傍に見られており、これらは、バルクバンドであることがわかる。また、バルクのエネルギーギャップは、系全体で、開いており、キャリア量の調整により E_F をギャップ内に置くことが可能であり、絶縁体に出来得る。一方、交差するバンドは、スペクトル強度の変化は観測されるが、エネルギーや運動量位置など分散形状の変化は観測されなかった。よって、これらの交差するバンド構造は、表面状態であり、表面ブリルアンゾーン全体で単一に存在する場合外であることがわかった。よって GeBi_2Te_4 はトポロジカル絶縁体であり、観測された電子状態は、トポロジカル絶縁体のギャップ内に存在するディラックコーンであることが確かめられた。

次に、このディラックコーンの詳細を見る。図 2 の $h\nu=24.2\text{eV}$ の測定から、ディラック点付近は、直線の分散形状をしていることがわかる。その他の励起エネルギーでの測定では、ディラック点近傍の分散は明瞭に観測されず、これは、バルク伝導帯内にディラック点が含まれていると考えられる。またバルクバンドギャップは、約 120meV であることが分かった。

分散形状は、 Bi_2Se_3 と類似しているが、K 方向の分散の傾きから得られる群速度は、ディラック点近傍において、 Bi_2Se_3 に比べ 40% 程度と小さいことが分かった。図 3(a) にディラック点から

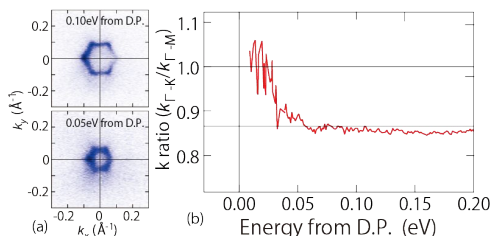


図 3

50meV と 100meV の等エネルギー面の測定結果を示す。 Bi_2Se_3 とは異なり等方的な円形な形状は観測されず、強い Warping 効果があることが

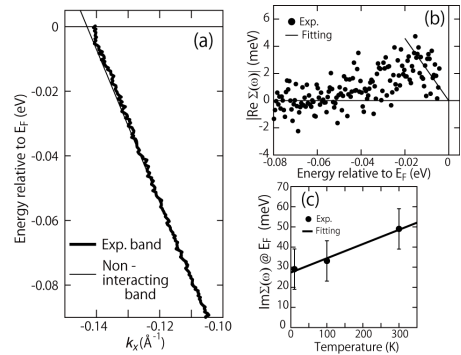


図 4

わかる。Warping 効果の強度を見るために (b) に、M 方向と K 方向のバンドの運動量比を示す。比が 1 であれば円形で等方的であるが、ディラック点近傍の 35meV の幅でのみ等方的であった。また、 35meV から E_F 近傍まで、比は約 0.86 ($3/2$) となり、ほぼ正六角形状に固定されている。

これは、理論予測される C_{3v} 対称性を反映した摂動による Warping 効果[L. Fu: Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 266801]とは、異なる変形を起こしていることから、バルク電子状態、格子からのポテンシャルの影響をより強く反映していると考えられる。これはバルクバンドギャップが小さいことと、矛盾しない。

ディラック表面状態は、散乱が抑制されることが予測されている。Warping の強度の違いにより準粒子散乱の違いを観測するために、 Bi_2Se_3 と GeBi_2Te_4 との高分解能 ARPES スペクトルの自己エネルギー解析の比較を行った。図 4(a) に、 GeBi_2Te_4 の $h\nu=7.1\text{eV}$ 、K 方向、 E_F 近傍で得られた ARPES スペクトルのピーク位置(バンドの位置)を太実線で示す。相互作用の無いバンドを直線で仮定すると、約 17meV に“ずれ”(折れ曲がり)を観測した。この相互作用のないバンドと観測したバンドのエネルギー差は、自己エネルギーの実部 ($\text{Re}(\Sigma(k, E))$) に相当し、散乱因子との相互作用の大きさを示している。測定結果から得られた $\text{Re}(\Sigma(k, E))$ を (b) に示す。 $E=-17\text{meV}$ 付近にピーク構造を持つことがわかり、準粒子散乱が存在することがわかる。 E_F 上での $\text{Re}(\Sigma(k, E))$ の傾き: $-\text{Re}(\Sigma(k, E)) / E$ は、散乱因子と電子との結合定数: λ を表すが、 GeBi_2Te_4 の場合、 $\lambda \sim 0.23$ と見積もられた。次に、フォノン散乱の大きさを見積もるために、 E_F 上のスペクトル幅の温度変化の測定を行った。結果を (c) に示す。スペクトル幅は、自己エネルギーの虚部 ($\text{Im}(\Sigma(k, E))$)

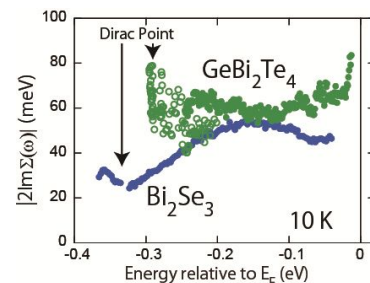


図 5

()に相当し、デバイ温度以上での $\text{Im}(\chi''(\mathbf{k}, T))$ の温度変化は、近似的に $\text{Im}(\chi''(\mathbf{k}, T)) = k_B T$ と合わせることができる (k_B はボルツマン定数)。ここから ~ 0.26 と見積もることができ、これは、 $\text{Re}(\chi''(\mathbf{k}))$ から求められた値 ~ 0.23 と良い一致を示した。よって、 E_F 近傍での準粒子散乱過程は、主としてフォノンとの結合によるものであることが分かった。この値は、Cu のショックレー表面状態での値 ~ 0.137 [F. Reinert *et al.*: Physica B 351 (2004) 229] より大きな値であり、準粒子散乱が抑制されることが期待されるトポロジカル絶縁体表面の電子状態においても、 E_F 近傍では比較的大きなフォノンによる散乱が存在することが分かった。Bi₂Se₃ について、これまで、温度変化測定において ~ 0.25 と報告があった。[R. C. Hatch *et al.*: Phys. Rev. B 83 (2011) 241303] また、同様に高分解能 ARPES スペクトル幅の自己エネルギー解析を行ったところ、同様に約 15meV に折れ曲がり構造を観測した。よって、これもフォノンとの結合による準粒子散乱と考えられ、比較的 Warping の小さい Bi₂Se₃ においても、 E_F 近傍で、同程度のフォノンとの結合があることが分かった。これは、フェルミ準位付近のディラックコーン周辺に、バルク伝導帯が存在しており、電子-フォノン散乱が抑制されにくいと考えられる。

次に、ディラックコーン全体での散乱確率の抑制について、スペクトル解析を行なった。図 5 に、GeBi₂Te₄ と Bi₂Se₃ の E_F からディラック点近傍までの $\text{Im}(\chi''(\mathbf{k}))$: スペクトル幅のエネルギー依存性を示す。フェルミ液体の場合、電子-電子散乱により、 $\text{Im}(\chi''(\mathbf{k})) \propto \omega^2$ となり、 E_F からディラック点に向けて、 $\text{Im}(\chi''(\mathbf{k}))$ が増加すると予測されるが、両者ともに顕著な増加は見られず、電子-電子散乱が抑制されていることが分かった。特に Bi₂Se₃ においては、ディラック点で最少をとることが分かった。Bi₂Se₃ のディラック点近傍では、ディラックコーンは等方的 (円形) であり、また、バルクギャップが約 300meV と大きい為、電子-電子散乱が抑制され、ディラック点で、散乱確率が最少となると考えられる。一方、GeBi₂Te₄ では、全体でほぼ一定値であるが、 E_F 近傍とディラック点近傍で増加傾向にある。これは、バルク価電子帯とバルク伝導帯にディラックコーンが侵入しており、表面状態とバルク状態間での散乱が増加する為と考えられる。

最後に、GeBi₂Te₄ のキャリア操作を試みた。応用面でトポロジカル絶縁体に期待されることは、バルクギャップ内に単離した表面ディラック電子状態があり、バルクギャップ中に、 E_F が存在することである。これは、散乱が抑制され、スピン偏極した電子による電気伝導や磁氣的性質が現れることが期待されるからである。

図 6 に、育成条件の異なる 3 種類の GeBi₂Te₄

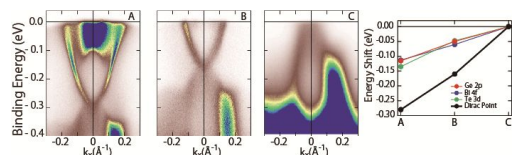


図 6

の ARPES 測定の結果を示す。電子ドープ型 (A) からホールドープが行われると、ディラック点を E_F 側にシフトさせることができ (B)、 E_F とディラック点を一致させることも (C) に成功した。詳細な育成条件は、今後の課題であるが、Te 濃度と育成温度の操作によってキャリア制御が可能であることが分かった。

また、図に測定した内殻スペクトルのエネルギーシフトとディラック点のエネルギーシフト量を示す。キャリアによる内殻スペクトルのシフト量は、ディラック点のシフト量の約半分にとどまった。これは、表面状態がキャリア注入に対して敏感であることを示している。この結果は、バルク価電子帯に含まれていたディラック点、ホールドープすることによりギャップ内に出てくる可能性があることを示唆している。今後、研究を進め、完全なキャリア制御を目指し、キャリア密度とバルク価電子帯とディラックコーンのエネルギー位置の関係を明らかにしたいと考えている。

以下に成果をまとめる。

Bi₂Se₃, GeBi₂Te₄ について、角度分解光電子分光測定を行い、両サンプルが同様な分散形状のディラックコーンを持つことを見出した。GeBi₂Te₄ は、等方的なディラックコーンがディラック点近傍のみ観測され、その外は、強いワーピング効果が見られた。通常のワーピング効果とは異なり、形状が正六角形に固定されることを初めて見出し、バルクの影響が大きいと考えられる。

また、両サンプル共にフェルミ準位近傍にフォノン散乱によるキック構造が見られ、散乱の大きさも同程度であることが分かった。

しかしながら、ディラックコーン全体では、Bi₂Se₃ では、ディラック点付近で電子-電子散乱が小さく、ディラック点で最少となる。一方、GeBi₂Te₄ では、Bi₂Se₃ で見られたような顕著な抑制は無いことを初めて見出した。これは、GeBi₂Te₄ でバルクギャップが小さく、且つ、ディラック点がバルク伝導帯に含まれてしまうため、散乱確率が上がるためと考えられる。ギャップの小さい、ワーピングの大きい物質は、ディラック点近傍においても、散乱は大きいことが分かった。

GeBi₂Te₄ では、キャリアの制御に初めて成功し、ディラック点を E_F と合わせることにも成功した。内殻スペクトルの測定から、この時バルク伝導帯からディラック点が単離している可能性があり、今後、ARPES 測定を行うことで明らかにしたい。

キャリア制御によりディラック点と E_F までのエネルギー差を変化させることや、バルクバンドとのエネルギー差を変化させることで、散乱確率の抑制が可能か、を検証することが今後の課題である。

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 1 件)

1. Masashi Arita, Hitoshi Sato, Kenya Shimada, Hirofumi Namatame, Masak Taniguchi, Minoru Sasaki, Mamoru Kitaura, Akimasa Ohnishi and Heon-Jung Kim, Angle resolved photoemission study of GeBi_2Te_4 , JPS Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1, 2014, pp012017-1 - 012017-4, 10.7566/JSPCP.1.012017

〔学会発表〕(計 3件)

1. 有田将司, トポロジカル絶縁体 GeBi_2Te_4 の角度分解光電子分光: 準粒子散乱について, 第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 11-13 Jan. 2014, 広島市

2. Masashi Arita, Angle resolved photoemission study of GeBi_2Te_4 , The 12th Asia Pacific Physics Conference, 14-19 July 2013, Chiba

3. Masashi Arita, Surface electronic structure of topological insulator GeBi_2Te_4 observed by angle-resolved photoemission spectroscopy, International Conference on Electron Spectroscopy and Structure, 16-21 Sep. 2012, Saint-MARO France

6. 研究組織

(1) 研究代表者

有田 将司 (Arita Masashi)
広島大学・技術センター・技術主任
研究者番号: 20379910