

新規電気磁気効果を目指した物質の探索と電子構造の解明

Investigation of Materials for New Magnetoelectric Functions

H26助自5

代表研究者 石 坂 香 子 東京大学 大学院工学系研究科 准教授
Kyoko Ishizaka Associate professor, School of Engineering, The University of Tokyo

Spin orbit coupling in solids is known to play an important role on new magnetoelectric functions and phenomena. In inversion symmetry broken systems, the spin orbit coupling breaks the spin degeneracy without the help of time reversal symmetry breaking. Eventually, the spin splitting of the electron bands with the spin-momentum locking occurs. In such a case, the coupling of electron's motion and its spin leads to a variety of spintronic functions and quantum states such as the emergence of a new topological phase. In this study, we investigated the electronic structures and spin polarization of inversion symmetry broken materials, by means of spin- and angle-resolved photoemission spectroscopy. The first case material is 3R-MoS₂, which is a semiconductor with valley degrees of freedom at the K and -K point in the reciprocal space. Its crystal structure is characterized by the 3 fold rotational symmetry, in contrast to another well-known centrosymmetric polytype 2H-MoS₂. In 3R-MoS₂, the almost full spin polarization of Zeeman-type was observed, which was absent in 2H-MoS₂. The spin polarization was opposite to each other at K and -K points, clearly indicating the coupling of spin and valley degrees of freedom. The second target material is MoTe₂, which shows a characteristic nonpolar-polar structural phase transition. In the low temperature polar phase, our spin- and angle-resolved measurements clarified the clear difference of the top (0 0 1) and bottom (0 0 -1) surfaces appearing as the polar domains. We successfully assigned the observed segment-like bands to the Fermi-arcs that are expected to emerge in the topological Weyl semimetal state.

研究目的

固体中の電子に働くスピン軌道相互作用は、電子の運動とスピンを結合させる役割を果たしており、新規電気磁気効果の見地から注目されている。そのひとつに、空間反転対称性の破れた系において自発的にスピン縮退が解ける現象が挙げられる。このような系は電流・電場によるスピンの制御を可能とするため、主に半導体ヘテロ構造の空間非対称性を用いたスピントロニクス要素技術として盛んに研究開発されている。

る。しかしそのエネルギースケールは小さく室温動作に十分とは言えず、より大きなスピン分裂を示す物質の探索が望まれている。近年我々はこのような目的のもと物質探索を行い、極性半導体BiTeIにおける巨大なラシュバ型スピン分裂を見出した。BiTeIのラシュバ効果(ラシュバパラメータ3.8)は、これまでの接合系や表面系での報告と比較しても最大級に大きい。また、この巨大スピン分裂を実現するためには、空間非対称(極性)な結晶構造に加え、狭バンドギャップや電子軌道対称性などの微視的な必

要条件が存在することを明らかにした。この後BiTeIに関する実験・理論による発展的研究が国内外で多数行われており、巨大磁気光学応答や室温での磁気光電流生成、グラフェン同様のベリー位相を反映した角度磁気抵抗などの新しい電気磁気現象が続々と報告されている

本研究では上記のような極性構造を持つ物質に加え、3回対称性や局所的空間反転対称性の破れを示す物質に対象を広げ、新しい電気磁気現象を実現する物質の探索と電子構造の解明を行うことを目的とした。具体的には、バルクで3回対称性や局所空間反転対称性の破れを有する半導体MoS₂、極性-非極性構造相転移(強誘電転移)を示す半金属MoTe₂などを対象とし、これらの物質が持つ電子構造や自発的スピン分極の直接観測を行い、新機能や物質の探索の一助とすべく研究を行った。

概 要

固体中の電子に働くスピン軌道相互作用は、電子の運動とスピンを結合させる役割を果たしており、新規電気磁気効果の見地から注目されている。そのひとつに、空間反転対称性の破れた系において自発的にスピン縮退が解ける現象が挙げられる。最も単純に空間非対称な系を記述するモデルとして、図1左に示すようなパイコフ・ラシュバモデルが1980年代に提唱されている。このモデルでは、電場 E により2次元自由電子系の垂直方向に関して空間反転対称性が破られている。ここで面内運動量 k およ

びスピン S を持つ電子はスピン軌道相互作用により、 E_z および k の外積ベクトル方向の有効磁場を感じることになる。実空間描像(図1左)で考えると、例えば $+x$ 方向に運動する電子が $+y$ 方向の磁場を感じる場合、 $-x$ 方向に運動する電子は $-y$ 方向の磁場を感じる。これにより、もともとスピン縮退していた質量 m の自由電子系のバンドは互いにスピンが反平行に分極した2状態に分裂し、そのエネルギー固有値は $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \pm \alpha_R k$ で表わされるようになる(図1右)。ここで、 α_R はラシュバパラメータであり、ラシュバ効果の強さを示す量である。このような系は電流・電場によるスピンの制御を可能とするため、主に半導体ヘテロ構造の空間非対称性を用いたスピントロニクス要素技術として盛んに研究開発されている。しかしそのエネルギースケールは小さく室温動作に十分とは言えず、より大きなスピン分裂を示す物質の探索が望まれている。

近年我々はこのような目的のもと物質探索を行い、極性半導体BiTeIにおける巨大なラシュバ型スピン分裂を見出した。BiTeIのラシュバ効果(ラシュバパラメータ3.8)は、これまでの接合系や表面系での報告と比較しても最大級に大きい。また、この巨大スピン分裂を実現するためには、空間非対称(極性)な結晶構造に加え、狭バンドギャップや電子軌道対称性などの微視的な必要条件が存在することを明らかにした。この後BiTeIに関する実験・理論による発展的研究が国内外で多数行われており、巨大磁気光学応答や室温での磁気光電流生成、グラフェン同様のベリー位相を反映した角度磁気抵抗などの新しい電気磁気現象が続々と報告されている。

本研究では上記のような極性構造を持つ物質に加え、3回対称性や局所的空間反転対称性の破れを示す物質に対象を広げ、新しい電

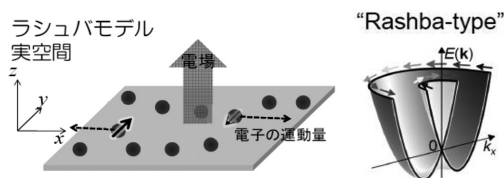


図1 パイコフ-ラシュバモデル。左は実空間、右は運動量空間の模式図。

ー 以下割愛 ー

気磁気現象や量子相を実現する物質の探索と電子構造の解明を行うことを目的とした実験を行った。ここで主に用いた実験手法が、スピン分解角度分解光電子分光である。スピン分解角度分解光電子分光は、物質中の電子構造をエネルギー・運動量で分解して測定できるほぼ唯一の手法である。我々は、レーザーの高次高調波を用いた紫外光源を立ち上げることにより、実験室において定常的な高精度測定を行うことを可能としている。また、表面・バルクの分離やスピン成分の分析が必要な際には高エネルギー加速器研究機構やSPring-8などの共同利用放射光施設や広島大学放射光科学研究センターのスピン分解装置を駆使し、速やかに網羅的な実験を行った。これにより、3回対称性の破れを有する遷移金属ダイカルコゲナイド半導体 $3R\text{-MoS}_2$ において、価電子帯の頂点(運動量空間のK点)での 0.14 eV に及ぶ巨大なスピン分裂を観測した。またスピン分解実験より、その配向から「ゼーマン型」とも呼ばれるz軸方向のスピン分極を観測するとともに、運動量空間のK、-K点(価電子帯のバレー)でスピン成分が運動量と結合し反転することを確認した。これにより、実際にバルクの電子状態としてほぼ100%のスピン分極をともなうスピン・バレー分極状態の評価に成功した。また、特徴的な極性-非極性構造相転移(強誘電転移)を示す半金属 $1T'\text{-MoTe}_2$ を対象とし、この物質が持つ電子構造や自発的スピン分極の直接観測を行った。その結果、低温極性相において極性ドメイン形成にともなう表(001)と裏(00-1)の表面状態の分離観測に成功するとともに、それぞれの表面におけるバンド構造とスピン分極を明らかにした。これにより、この物質においてトポロジカルワイル半金属状態とそれに伴う特異な表面状態(フェルミアーク)の実現を示唆する結果を得た。