

キラル結晶の右手系・左手系で反転する放射状スピ ン構造を発見

極限コヒーレント光科学研究センター

坂野 昌人、近藤 猛

概要：

自然界には、右手と左手、あるいは右ネジと左ネジのように、鏡に映した姿がもとの姿と重ならないものがあり、これらの性質をキラルであるという(図1)。2つの非等価なキラルな結晶、いわゆる右手系と左手系の結晶は、自然界において、生物学的、化学的、物理的にそれぞれ異なる反応を示す。また、キラルな結晶構造の内部では、電気と磁気がお互いに関係しあうことが知られている[1-3]。一方、固体内電子の電氣的・磁氣的関係を結びつけるためには、スピン軌道相互作用が必要であり、原子番号の大きな重い元素を持つ化合物で特にその作用が強くなる[4-6]。キラルな結晶構造を持ち、かつ強いスピン軌道相互作用を合わせ持つ物質は、非磁性であっても、スピン流などの磁氣的性質を引き出し得ることから、スピントロニクス分野で特に注目されている。しかしながら、その特異な電気磁気特性の起源となるスピン偏極した電子構造を直接的に観測した例がこれまでになく、キラル結晶内の電子とスピンの結合状態は未解明であった。

本研究では、キラルな結晶構造を有するテルル単体を研究対象とし、スピン分解・角度分解光電子分光を用いて、スピン構造の直接観測を行った。重元素であるテルル原子は強いスピン軌道相互作用を有しているため、電子とスピンが強く結合した状態が期待される。我々は、熱濃硫酸で表面処理した際にできる腐食孔の形によって右手系結晶と左手系結晶を判別し、それぞれの試料に対して、詳細な電子構造およびそれに付随するスピン偏極構造を観察した。まず、左手系結晶に対してスピン分解・角度分解光電子分光実験を行い、スピン構造を調べた。その結果、電子の z 方向の運動量が、 z 方向のスピンのみと結合していることが分かった。通常、スピン軌道相互作用は、電子の運動量と垂直な向きにスピンを結合させたがる性質がある。しかし、今回の結果は、それに反して、運動量と平行方向にスピスが結合していることを示している。つまり、スピスが運動量空間において放射状に広がる特異な振る舞いを同定したことになる。さらに、右手系結晶の測定を行うことで、左手系結晶とはスピン構造が反対向きになることを見出し、キラル結晶に起因するスピンの性質を明らかにした[7,8]。

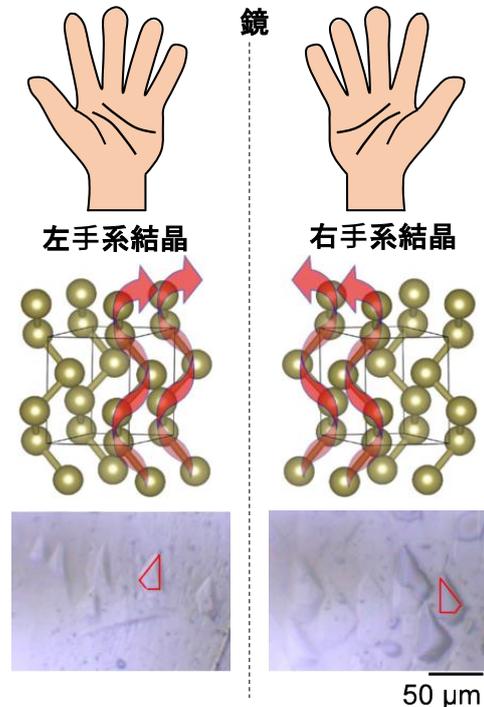


図 1. テルル単体の結晶構造。鏡写しの関係にある左手系結晶(左上)と右手系結晶(右上)が存在する。それらは、熱濃硫酸による腐食孔の形(下段の赤枠)で判別することができる。

実験結果：

角度分解光電子分光(ARPES)測定($h\nu = 63-93$ eV)は、KEKのPhoton FactoryにあるBL28で行ない、スピン分解 ARPES 測定は、広島シンクロトロン放射光センター(HiSOR)のBL-9Bで行なった。結晶のキラリティーは、高温の濃硫酸によって形成される非対称なエッチピットを観察することによって決定した(図1)。図2(a-f)に、光のエネルギーを変えることで図2(g)で色付けする運動量面を網羅するバンド分散を示す。価電子帯は、H点近傍でフェルミレベルと交差するが、その頂点位置はH点より僅かにずれる。一方、 $E-E_F = -0.15$ eVに達する2番目に高いエネルギーのバンド上部はちょうどH点上に位置する。 $E-E_F = -2.0$ eVまで観測し得られたホール型のバンド分散は、第一原理での計算結果と良く一致することを確認した。スピンの自由度を考慮すると、これらは6つの孤立ペア状態(H4, H5、および4つのH6バンド)に割り当てられる[7]。

験結果(H'点近傍の#5'とH点近傍の#5'で得られたスピ
ン分解ARPESスペクトル)から、確かにそれを確認できた。
キラリ結晶特有の機能をさらに示すために、反対のキラリ
ティーを持つ結晶(右手系結晶)も測定した。その結果、z
方向のスピンの分極が左手系結晶の分極とは逆転しているこ
とを観測した(図2(m))。つまり、右手系結晶のスピンの構
造は左手系結晶の場合とは反対向きとなり、内向きの放射
状となることが明らかとなった(図3)。

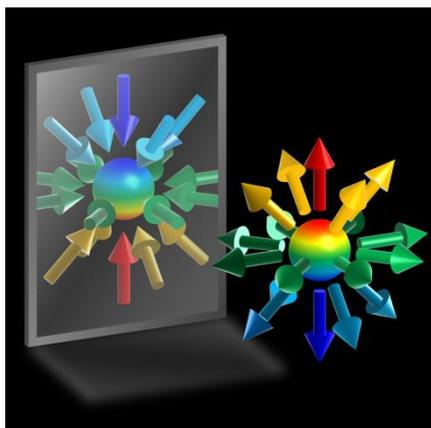


図 3 : テルル単体のスピンの構造の概略図。矢印は
スピンの向きを表している。左手系結晶(左)と右
手系結晶(右)は鏡写しの関係にあり、外向き・内
向きの放射状スピンの構造が反転する。

まとめと今後の展望 :

今回、最も単純なキラリ結晶であるテルル単体を用いて、
キラリな結晶構造特有のスピンの状態を実験的に解明した。
本結果を起点として、今後、様々なキラリ結晶におけるス
ピンの状態の解明が進むものと考えられる。また、スピンの
電子の運動量と平行に向き放射状となる特異なスピンの構
造からは、非従来型のスピントロニクス機能が創発できる可
能性があるため、キラリ構造を有する物質をデバイス応用
させる発展研究が今後期待される。

謝辞 :

本研究は理化学研究所の平山元昭研究員、東京工業大学
科学技術創成研究院の笹川崇男准教授、東京工業大学理学
院の村上修一教授、産業技術総合研究所の三宅隆研究チー
ム長、東京大学の岩佐義宏教授、石坂香子教授、幸埴特別
教授、広島大学放射光科学研究センターの奥田太一教授ら
の研究グループとの共同研究として行われました。この場
をお借りして御礼申し上げます。

[1] L. D. Barron, *Chirality* **24**, 879 (2012).
[2] N. B. Baranova, Yu. V. Boddanov, and B. Ya. Zel'Dovich,
Opt. Commun. **22**, 243 (1977).
[3] V. I. Belinicher and B. I. Sturman, *Sov. Phys. Usp.* **23**,
199 (1980).
[4] G. Dresselhaus, *Phys. Rev.* **100**, 580 (1955).
[5] E. I. Rashba, *Sov. Phys. Solid State* **1**, 368 (1959).
[6] R. C. Casella, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 371 (1960).
[7] M. Sakano et al., *Phys. Rev. Lett.* **124**, 136404 (2020).
[8] J. Hugo Dil, *Physics* **13**, 45 (2020).

