

ZrTe₅における弱いトポロジカル絶縁体状態の観測と制御

極限コヒーレント光科学研究センター

Peng Zhang, 近藤 猛

概要：

3次元のトポロジカル絶縁体は「強い」と「弱い」で区別される。「強い」トポロジカル絶縁体は、過去十数年にわたり、理論と実験の両面から広く研究されてきた。「強い」トポロジカル絶縁体では、すべての表面にスピン偏極した2次元のディラックコーンが存在し、完全な後方散乱は禁止される。しかし、180°方向以外の散乱は可能である。一方、「弱い」トポロジカル絶縁体では、側面にのみトポロジカル表面状態が発現することが期待される。偶数層では、隣り合う2つの層が互いに結合する結果トポロジカル的に自明な相となるため、文字通り「弱い」（あるいは強固ではない）と見なされてきた。しかし、表面電子の非局在化により、実際には強固であることが今では分かっている。「弱い」トポロジカル絶縁体では層間の結合が弱いため、一般的にはトポロジカル表面状態が擬1次元的な分散となり、180°方向以外の散乱も禁止されるため、散逸のないスピン流が形成できるものと期待される。このような利点にもかかわらず、理論的に提案される「弱い」トポロジカル絶縁体の候補物質は少ない。また、試料側面の測定は容易ではなく、実験的な実証が困難である。例外として、Bi₄I₄では上面と側面の両方において自然劈開が可能である [1]。しかし、このような結晶構造では、トポロジカル表面状態を発見する側面のみを大面積で準備することが難しく、応用面で不利となる。数少ない候補物質の中で最もよく研究されてきたものが、ファンデルワールス層状構造からなる ZrTe₅ である [2]。この物質は非常に高い移動度を示すため、デバイス応用への期待も大きい。それにもかかわらず、ZrTe₅ はそもそもトポロジカル絶縁体なのか、そうであるとしても「強い」か「弱い」かの分類が未だ実験的に決着していない。その最大の理由は、側面におけるバンド構造の観測がこれまで成功していないことにある。この研究のもう一つの難点は、ZrTe₅ が複数のトポロジカル相に近接しているため、その内の一つを理論的に同定しづらいことである。一方、この特徴は、物理的パラメータを微調整することで、バルクのトポロジーを制御できる魅力的な機能性を齎し得る。

本研究で我々は、放射光を用いたナノ顕微 ARPEX (イタリア Elettra)、およびレーザーを用いたスピン分解 ARPES (物性研究所) を用いることで、「弱い」トポロジカル絶縁体由来の表面電子状態を ZrTe₅ において初めて見出した [3]。さらに、バルクのバンドギャップを外部歪によって制御し、より安定な「弱い」トポロジカル絶縁体状態や理想的なディラック半金属状態を実現した。ZrTe₅ は指向性の高いスピン流及び調整可能なバンドギャップを有することが分かり、デバイス応用上での優れた物質である。

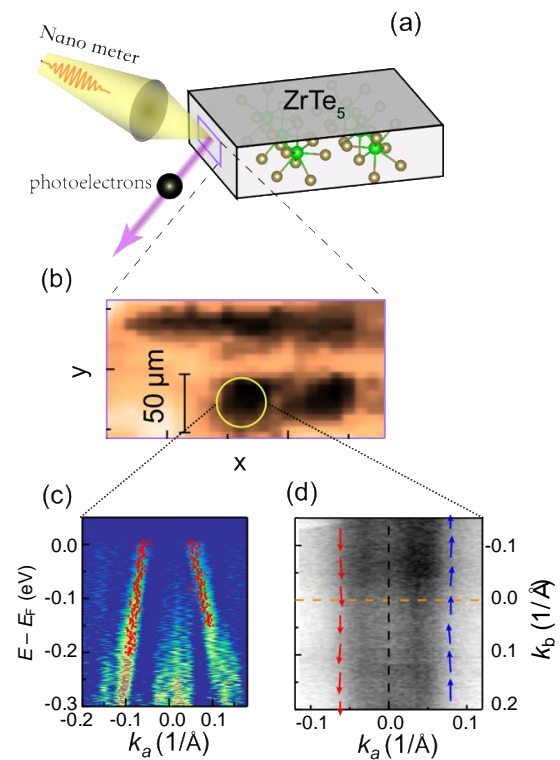


図1 側面のナノ ARPES 測定。(a) 実験セットアップの模式図。(b) ナノ ARPES による実空間での強度マップ。~50 μm の範囲でのみ光電子強度が強くなっている。(c) 結晶構造を構成する鎖の方向に沿って観測したバンド分散。決定されたホール型の分散は、トポロジカル表面電子構造の一部を成す。(d) (c) の表面電子構造が形成するフェルミ面。赤と青の矢印でスピン構造を示す。

結果：

「弱い」トポロジカル絶縁体を実証するためには、結晶の上面と側面の電子状態を共に調べる必要がある。ところ

が、結晶の一般的な性質として、綺麗な結晶平坦面は特定の方位に限られ、その他の方位では凹凸の多い荒い結晶面しか得られない。「弱い」トポロジカル絶縁体が理論的に考案されて以降、その有力候補として $ZrTe_5$ が提案され、それを実証する様々な実験が試みられてきた。 $ZrTe_5$ の上面では綺麗な結晶平坦面が得られ易いため、その表面における電子状態は観察されていた。一方、スピン流が期待される肝心の側面に対しては、荒い結晶表面しか得られず観察が困難であることから、その本質的な電子状態が研究できずにいた。そこで本研究では、ナノサイズまで極限集光した放射光を用いた光電子分光(ナノ ARPES)により研究を進めた。その結果、巨視的には凹凸の多い乱れた表面も、局所的には平らで綺麗な面が微小ながらも点在することを見出した(図1)。我々は、その微小な結晶平坦面にピンポイントで光を照射し、外に飛び出す光電子のエネルギー、運動量、およびスピンの情報を得ることで、 $ZrTe_5$ が「弱い」トポロジカル絶縁体である証拠を掴んだ。

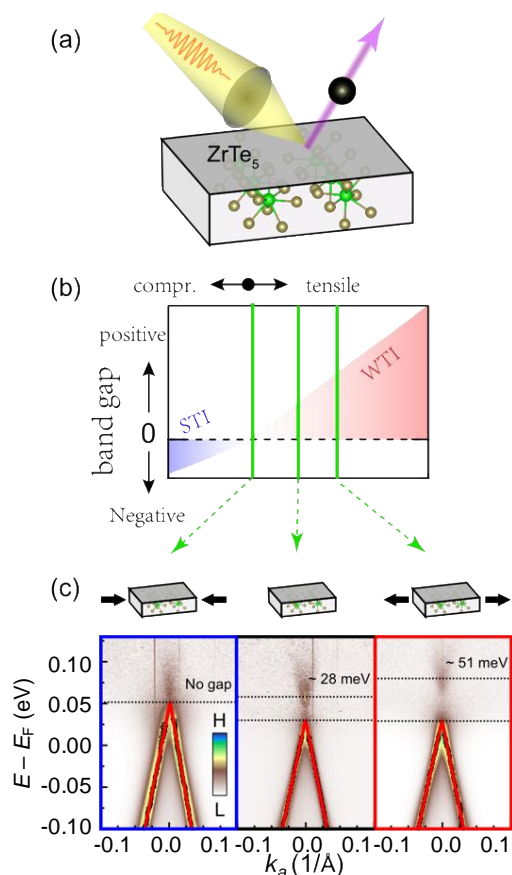


図 2 結晶に歪みを加えつつ上面をレーザーARPES で測定した結果。(a) 実験セットアップの模式図。(b) $ZrTe_5$ 結晶に引っ張り歪み及び圧縮歪みを印加した際に予想されるトポロジカル相図。(c) $ZrTe_5$ 結晶に引っ張り歪み及び圧縮歪みを印加しつつ、上面から観察したバンド構造。

側面の金属性が示された一方で、「弱い」トポロジカル絶縁体状態が安定であるためには、上面における絶縁性が高いことが要求される。上面からも同じく電子状態を詳細に観測した結果、絶縁性の直接的な評価値となるバンドギャップが 30meV 程度と比較的小さいことが分かった。 $ZrTe_5$ の絶縁性を高め、「弱い」トポロジカル絶縁体状態をより安定させるために我々が考案した手法は、結晶に圧力歪みを加えることである。実際に、ネジで締め付ける程度の圧力印加で、バンドギャップを2倍以上も増大させられることを明らかとした(図2)。我々の x 線散乱実験から、加えた歪みは結晶の大きさに対して 0.4% 引き伸ばした状態にあることを確認した。一方、圧力印加で結晶を縮ませることで逆にギャップを閉じ、ディラック半金属状態となることも実証することができた(図2)。理論計算からは、 $ZrTe_5$ 結晶を 0.3% まで縮めることでバンド反転が生じ、「強い」トポロジカル絶縁体に変化させられることも推定できる。これらの歪み値は十分に小さいため、 piezoelectric 素子に $ZrTe_5$ 結晶を貼り付けて伸張または圧縮により調整することで、「弱い」トポロジカル絶縁体、ディラック半金属状態、さらには「強い」トポロジカル絶縁体までものトポロジカル相転移を生じさせ、スピン流の制御が可能になるものと期待できる。

今後の展望：

「強い」トポロジカル絶縁体はこれまで多くの物質で発見されているのに対し、「弱い」トポロジカル絶縁体を実現した例はまだほんの数例しかない。特に $ZrTe_5$ は「弱い」トポロジカル絶縁体の概念が提唱されたのち最初期に提案された候補物質として最も有名な物質である。その性質を本研究で初めて解明し、 $ZrTe_5$ を巡る論争に終止符が打たれたことで、この物質を中心として、指向性に優れたスピン流が実現される「弱い」トポロジカル絶縁体を活用する応用研究が活発化されることが期待される。特に、 piezoelectric 素子で実現可能なほどに僅かな歪みでトポロジカル状態を制御して見せた本研究の結果は、理想的なスピン流を生成する新しい物質設計指針を示すと共に、その技術を用いたスピントロニクスデバイスの開発につながることを期待される。

参考文献:

[1] R. Noguchi *et al.*, Nature, **566**, 518 (2019).
[2] H. Weng, X. Dai & Z. Fang, Phys. Rev. X, **4**, 011002 (2014).
[3] P. Zhang *et al.*, Nature Commun. **12**, 406 (2021).