

新奇伝導現象を示すディラック・ワイル電子系強相関物質の開発



研究ノート

酒井 英明*

Study of strongly correlated Dirac/Weyl materials

Key Words : Dirac/Weyl fermion, Topological, Magnetoresistance, Thermopower

はじめに

物質中の電子の運動は、結晶を構成する原子核や周囲の多数の電子からの影響により、実際の質量ではなく、見かけ上の有効質量で記述される。近年、系の特殊な対称性やトポロジーのため、この電子の有効質量がゼロとなり、電子状態が相対論的ディラック方程式により記述できる物質が大きな注目を集めている。このような物質中の電子はディラック電子と呼ばれ、光速近くまで加速された電子と同様に、エネルギーが運動量に比例する分散関係 [図1 (左) ディラックコーン] を持つため、一般の半導体では見られない電気伝導性を示す。黒鉛の単原子層グラフェン (2010年ノーベル賞) はこの好例であり、シリコンを凌ぐ高いキャリア移動度や、ディラック点での量子位相を反映した半整数量子ホール効果が観測されている。

このような優れた伝導特性のデバイス応用には大きな期待が寄せられている。しかし、有効質量が消失したディラック電子のバンド構造ではギャップが存在せず、電界効果トランジスタのようにフェルミエネルギー制御を利用した電気伝導のスイッチは困難とされてきた。そこで筆者らは、固体中のスピンや格子の自由度とディラック電子をカップルさせ、強相関状態を実現することで、そのバンド構造と伝導現象を制御できる物質の開拓を進めてきた (図1概

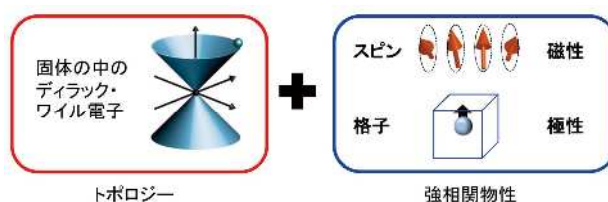


図1: トポロジカルなディラック・ワイル電子状態を、固体中の量子現象 (磁性、極性 (強誘電性)) とカップルできる物質の設計法の概念図。

念図を参照)。具体的には、トポロジカルな電子状態を有する原子層が多彩な形態で積層した物質を設計し、高真空、急冷、高圧などの極限環境を利用することで目的の結晶の合成を行った。この結果、バルク物性と強く結合したディラック電子やワイル電子 (スピン縮退が解けたディラック電子) による、従来にない伝導現象を発見した。本稿では、最近の研究例として、(A) 磁性と結合したディラック電子系 EuMnBi_2 における巨大な層間磁気抵抗効果やバルク量子ホール効果の観測 [1,2]、(B) 格子の極性構造と結合したワイル電子系 $1T' \text{-MoTe}_2$ における極性転移の制御と、その臨界点における熱電能の異常増大の観測 [3]、について紹介する。

(A) 磁気秩序とカップルしたディラック電子をもつ層状磁性体の開発

ハードディスクの磁気ヘッドに使われるスピバルブ素子は、磁性層と非磁性層が積層した構造を持つ。磁性層の磁化が互いに平行の場合には低抵抗、反平行の場合には高抵抗となることを利用し、スピンによる電気伝導のスイッチが可能となる。筆者らが高真空中フラックス法により合成に成功した層状磁性体 EuMnBi_2 は、まさに、このスピバルブの役割を担う磁性層 (Eu-Mn層) とディラック電子層 (Bi層) が、天然に積層した構造を有する [図2(a) 参照]。



* Hideaki SAKAI

1978年9月生まれ
東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程 (2008年)
現在、大阪大学 理学部 物理学科
准教授 博士 (工学)
物性物理学、固体化学
TEL : 06-6850-5754
E-mail : sakai@phys.sci.osaka-u.ac.jp

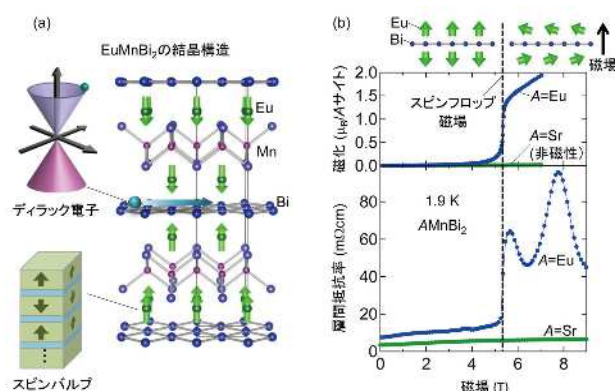


図2：(a) EuMnBi_2 の結晶構造。各層の機能を概念的に説明している。(b) EuMnBi_2 の層間方向の磁化（上）と抵抗率（下）の磁場依存性（1.9K）。約5.3 T以上の磁場で、層間方向を向いていたEu磁気モーメントが面内方向にフロップする（グラフ上部の概念図を参照）。比較のため、 SrMnBi_2 のデータも掲載。

このため、外部磁場を用いて磁気秩序を変化させることにより、ディラック電子伝導の大幅な制御に初めて成功した系である。実際、5.3 T以上の磁場を層間方向に印加すると、磁化が大きくジャンプし[図2(b) 上パネル]、Euの磁気モーメントが面間方向から面内方向にフロップする（図2(b) 最上部の模式図を参照）。これに伴い、層間抵抗率が最大10倍程度上昇しており[図2(b)]、スピンバルブによる二次元的閉じ込め効果がさらに増強されていることがわかる。尚、Euを非磁性のSrで置換した SrMnBi_2 では、全磁場領域で層間抵抗率がほぼ一定であるため、 EuMnBi_2 の巨大磁気抵抗効果では、Eu層の磁気秩序の変化が重要な役割を果たしている。さらに興味深いことに、このように面内に強く閉じ込めた状態では、各Bi層において、ホール抵抗が量子化抵抗値（約 $25.8 \text{ k}\Omega = h/e^2$ ）を半整数で割った一定値となる量子ホール効果が実現していることが示唆された[1]。バルク磁性体でこのような量子ホール効果が観測されることは珍しく、ディラック電子を担う二次元伝導層（Bi正方形格子）と絶縁体的なブロック層（EuやMn層）が空間的に分離しているため、二次元面内における高移動度（低温で約 $15,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ）を保持したまま、磁気秩序とのカップリングを実現できたためであると考えている。この結果、ディラック電子の量子伝導と次元性の磁気的な制御を実証することに成功した。

さらに最近では、このような輸送特性だけでなく微視的電子状態の側面からも、ディラック電子と局在

スピンの交換相互作用を通じて強く結合していることを、反強磁性秩序に依存したランダウ準位分裂の観測と第一原理計算から明らかにした[2]。この結果、磁気秩序が具体的にトポロジカルなバンド構造をどのように変調するかという点も明らかになりつつあり、高性能化に向けた今後の設計指針に資すると期待している。

(B) 極性（強誘電）構造が誘起するワイル電子をもつ層状半金属の開発

近年、原子層材料として注目を集めている遷移金属ダイカルコゲナイドの一種である $1\text{T}'\text{-MoTe}_2$ は室温では通常の半金属的振る舞いを示すが、温度を約40度冷却すると結晶構造が変化する。この低温での構造の詳細は不明であったが、筆者らは化学気相輸送法と急冷を組み合わせた手法により $1\text{T}'\text{-MoTe}_2$ の単結晶を合成し、エックス線回折による構造解析や光学的な第二次高調波発生測定により、低温相での結晶構造を精密に決定した。この結果、低温相は空間反転対称性が破れた極性構造であり、金属における“強誘電”転移が生じていることを明らかにした[3]。すなわち、低温において積層構造が変化することにより、パリティが破れた極性金属状態となる。また角度分解光電子分光法により、この“強誘電”転移に伴い、金属的バンド構造において、ディラック点での縮退が解けたワイル電子状態が生成されることも実証されている[4]。さらに筆者らは、Moの一部をNbで置換することにより、極性構造転移を抑制できることを見出し、ワイル電子状態の生成・消滅を、温度だけでなく化学的に制御できることを見出した（図3）。特に興味深い点は、元素置換により極性構造転移が消失した臨界組成を持つ物質では、熱電効果が低温に向け異常な増大を示し、熱電性能が大幅に向上することである（図3カラープロットの赤い領域）。この振る舞いは、第一原理に基づく理論計算でも再現できておらず、極性構造や、それに付随する電子・格子状態の揺らぎが引き起こす新奇な熱電現象である可能性を示唆している。また最近では、極性転移が $1\text{T}'\text{-MoTe}_2$ の超伝導転移にも大きな影響を与えることも見出されている。このように、金属における“強誘電”転移、およびそれに伴うワイル電子の生成が様々な物性に著しい影響を与えることを実験的に解明することに成功し

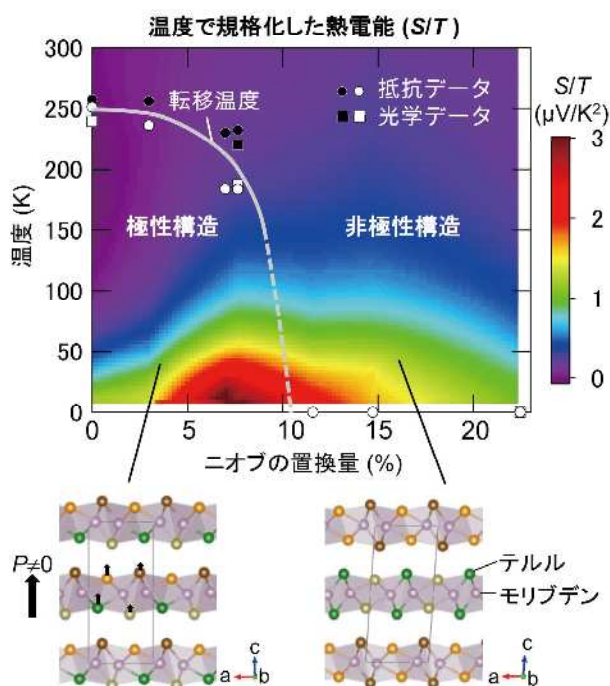


図3: 1T'-MoTe₂における極性構造相転移のNb置換量依存性。カラープロットは、温度Tで規格化したゼーベック係数Sの値 (S/T) を示す。図の下部には、1T'-MoTe₂の極性構造と非極性構造を示す。

た。

おわりに

以上のように筆者らは、これまでは接点が皆無であった強相関現象とディラック・ワイル電子状態を共存させ、互いに結合させるというアイデアのもと新奇物質開発を行ってきた。特に本稿で紹介した物質は、トポロジカルな電子状態（あるいはその源となり得る電子状態）をもつ二次元電子層を積層させた系を設計することで、ディラック・ワイル電子を固体中の磁性や極性（強誘電性）と結合させることに成功した例である。これらの層状物質中では、外部からの磁場やストレインに加え、ブロック層を利用した元素置換などにより、ディラック・ワイル電子の高移動度を保持したまま、電気・熱輸送の大幅制

御が可能となるため、スピントロニクスや熱電発電技術などの幅広い応用が期待できる。

参考文献

- [1] H. Masuda, H. Sakai*, M. Tokunaga, Y. Yamasaki, A. Miyake, J. Shiogai, S. Nakamura, S. Awaji, A. Tsukazaki, H. Nakao, Y. Murakami, T. Arima, Y. Tokura, and S. Ishiwata, "Quantum Hall effect in a bulk antiferromagnet EuMnBi₂ with magnetically confined 2D Dirac fermions", *Science Adv.* **2**, e1501117 (2016). (* Corresponding author)
- [2] H. Masuda, H. Sakai*, M. Tokunaga, M. Ochi, H. Takahashi, K. Akiba, A. Miyake, K. Kuroki, Y. Tokura, and S. Ishiwata, "Impact of antiferromagnetic order on Landau-level splitting of quasi-two-dimensional Dirac fermions in EuMnBi₂", *Phys. Rev. B* **98**, 161108(R) (2018). (* Corresponding author)
- [3] H. Sakai, K. Ikeura, M. S. Bahramy, N. Ogawa, D. Hashizume, J. Fujioka, Y. Tokura, and S. Ishiwata, "Critical enhancement of thermopower in a chemically tuned polar semimetal MoTe₂", *Science Adv.* **2**, e1601378 (2016).
- [4] M. Sakano, M. S. Bahramy, H. Tsuji, I. Araya, K. Ikeura, H. Sakai, S. Ishiwata, K. Yaji, K. Kuroda, A. Harasawa, S. Shin, and K. Ishizaka, "Observation of spin-polarized bands and domain-dependent Fermi arcs in polar Weyl semimetal MoTe₂", *Phys. Rev. B* **95**, 121101(R) [6] (2017).