

2次元ディラックノーダルライン物質の

構造と電子状態および輸送特性の解明

研究代表者 高山 あかり
(先進理工学部 物理学科 准教授)

1. 研究課題

ディラック型電子のバンドが線（ループ状）で交わる「ノーダルライン型バンド分散もつ物質」は、ディラック電子系の利点はそのままに高いキャリア密度をもつことができる物質系とされ、近年注目が集まっている。2次元ディラックノーダルライン物質の候補として有力視されているのが Cu_2Si 単原子層であり、 $\text{Cu}(111)$ 基板上に作製された単層 Cu_2Si において2次元物質におけるノーダルループの存在が角度分解光電子分光（ARPES）により報告されている[1]。ノーダルライン型の電子状態および輸送特性を明らかにするため、初年度は、Si基板上の Cu_2Si の作製、高分解能 ARPES 測定による電子状態の決定、極低温強磁場下電気伝導測定における輸送特性の解明、全反射高速陽電子回折（TRHEPD）による構造解析を行なった。本年度はこれらの物性についてより詳細な議論を行うため、発展的な実験を行った。

2. 主な研究成果

Si 基板上の Cu_2Si （以下 $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Si}$ ）では、Si と Cu_2Si の格子定数の違いにより $\pm 3^\circ$ 回転した非整合ドメインで覆われ、この格子非整合により 5.55×5.55 相が形成されることが知られており、本実験で作成した試料も低エネルギー電子回折（LEED）において 5.55×5.55 周期のパターンが確認されている。この試料の電子状態を ARPES 実験により測定した結果、 $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Si}$ における ARPES の先行研究[2, 3]で観測されたバンド分散に加え、 Γ 点で電子ポケットを形成するバンド分散を観測した。この電子バンドは単層 Cu_2Si で存在が予測され、 $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Cu}$ で報告されている γ バンド[1]と定性的に一致しており、 $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Si}(111)$ も非占有状態でノーダルライン型の電子状態をもつ可能性が示唆された。

この結果を受け、縮退点のエネルギー位置の測定とキャリアダイナミクスを調べるため、ポンプ-プローブ法を用いた時間分解角度分解光電子分光（TrARPES）測定を行なった。本実験における TrARPES 測定は、東京大学物性研究所極限コヒーレント光科学研究センターで行なった。ポンプ-プローブ法を用い、ポンプ光に 1.55 eV、プローブ光に 21.7 eV の p 偏光のレーザー光を用いた。時間分解測定時のエネルギー分解能は 200 meV、角度分解能は 0.15° 、時間分解能は 70 fs である。TrARPES 装置は試料準備槽と真空下で連結されており、先の ARPES 測定同様、作製した試料を大気暴露なしに分析槽まで輸送、in-situ 測定を行っている。試料準

備槽には、蒸着源や水晶発振式膜厚計が設置されており、先の ARPES 測定でノーダルライン型バンド分散が観測された試料と同様の条件で作製し、LEED で品質を評価した。

時間分解測定に先駆けて、プローブ光(21.7 eV)と近いエネルギーの He 放電管(21.2 eV)を用いた ARPES 測定を行った。放射光を用いた実験結果と同様に、 $\overline{\Gamma M}$ 方向のバンド分散において、 α バンドと γ バンドが観測され、また $\overline{\Gamma}$ 点付近では γ バンドの強度が弱いことがわかった。He 放電管を用いた先行研究では γ バンドが観測されていなかったが、これは先行研究での試料作製時の基板温度が高いことが原因であると結論づけた。先行研究では Cu 原子が基板中へ拡散したことで別構造となり、ノーダルラインが観測できなかったと考えられる[4,8]。

図 1 に、測定した TrARPES 測定の結果を示す。それぞれ測定に用いた試料の LEED 像、 $\overline{\Gamma}$ 点付近における励起前/励起後のバンド分散、および励起前後の差分である。LEED 像は ARPES 測定で γ バンドが測定された試料と同様のスポットが観測されたものの、レーザー光では(通常の ARPES 測定データとみなせる)励起前のバンド分散において、 γ バンドは観測されなかった。これは、この励起光エネルギー帯での γ バンドのマトリックスエレメントの影響によるものと考えられる。これは He 放電管との実験結果とも矛盾しない。励起前後のバンド分散を比較するために、図 1(d, h)に示すように励起前後の差分をとって表示した。占有状態ではポンプ光によって励起され電子が減少し(青色部分)、一方で非占有状態側では励起された電子により強度が増えている(赤色部分)ことがわかる。 $\Delta t = 26$ fs で得られた非占有状態の電子状態は、 α バンドの勾配とよく一致しており(黒色波線)、 α バンドが観測されていることがわかる。 $\Delta t = 26$ fs の測定結果では、フェルミ準位から結合エネルギーが -0.5 eV の範囲における非占有状態に強度が得られているが、 $\Delta t = 53$ fs では非占有状態の強度が弱くなっている様子が観測された。このことから、このバンド分散の緩和時間は ~ 50 fs 程度であることが推測される。なお、この試料においてはフェルミ準位が基板の Si のバルクバンドギャップ内に存在するため、Si のバルクバンドへの遷移については無視することができる。

スピン偏極している表面状態をもつトポロジカル絶縁体では、ギャップを持つバルク状態やスピン偏極による後方散乱の抑制などによって緩和時間がピコ秒スケールと長い傾向にある。また、グラフェンはスピン偏極した電子状態は持たないものの、ディラック点でのみバ

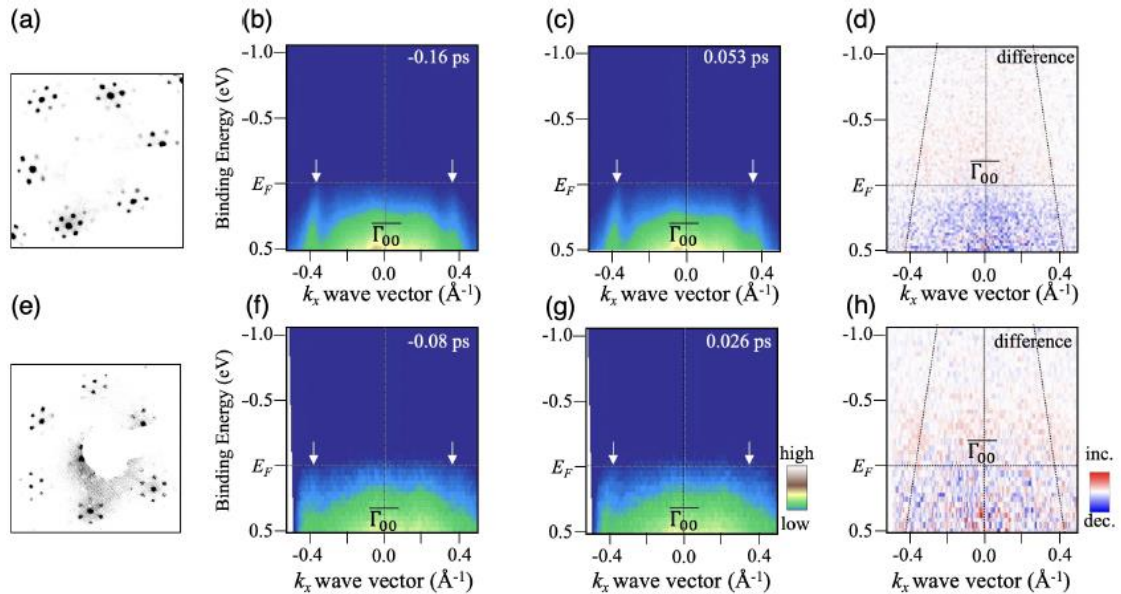


図 1 (a, e) 測定した試料の LEED 像. $\bar{\Gamma}$ 点付近におけるバンド分散. (b, f) 励起前 ($t = -0.16$ ps), 励起後 [(c) $t = 0.053$ ps, (g) $t = 0.026$ ps], および (d, h) 励起前後の差分スペクトル.

ンドが縮退する（状態密度が非常に小さい）ギャップレスな電子状態を持つため、400 fs の緩和時間が報告されている[10-13]. $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Si}$ によるノーダルラインによるスピン偏極しておらず、またグラフェンのディラック点と比べて縮退点による状態密度が大きいことから、本測定の結果のような短い緩和時間となったことが考えられる。また、 $\text{Cu}_2\text{Si}/\text{Si}$ では、 $\bar{\Gamma}$ 点付近でウムクラップバンドが多数存在することも知られており、散乱体が多く、それらが緩和過程に影響している可能性も高いと考えられる。今後、ディラックノーダルラインの緩和過程の詳細を明らかにするためには、より短いスケールでの測定が必要である。

3. 共同研究者

坂本美可子（早稲田大学）

鈴木 剛（東京大学・助教）

松田 巖（東京大学・教授）

岡崎 浩三（東京大学・准教授）

4. 研究業績

4.1 受賞・表彰

2024 年度女性研究者賞（若手女性研究者優秀賞） 日本表面真空学会

4.2 学会および社会的活動

日本物理学会 第 79～80 期代議員
日本表面真空学会 関東支部幹事
放射光学会 行事委員 (2023.9～)

5. 研究活動の課題と展望研究

本研究により、ノードルラインにおける電子緩和時間がグラフェンやトポロジカル絶縁体に比べて非常に早いことがわかった。一方で、実際のノードルラインの観測やその正確な緩和時間の解明には課題が残った。今後、より実験条件を再検討して測定を行いたい。また、電子状態のさらなる理解のため、構造解析で決定した回転ドメインをもつ構造モデルでの電子状態の計算を行いたいと考えている。