

令和3年7月28日

東北大学材料科学高等研究所(WPI-AIMR)

九州大学

京都産業大学

ケルン大学

産業技術総合研究所

科学技術振興機構(JST)

## ベイズ推定を用いた新たな電子構造の解析法を開発 トポロジカル絶縁体などを巡る数々の論争の決着へ

### 【発表のポイント】

- 新規開発の手法により、膨大な数のパラメータを持つ電子構造の全貌を明確化
- トポロジカル絶縁体における長年の問題を解決するための突破口に
- 原子層物質や超伝導体などより広範な機能性材料の解析にも適用可能

### 【概要】

電気が流れる、磁石につく、透明不透明、といった物質の性質は、物質中の電子の振る舞いによって決まります。しかし従来の方法では、膨大な数のパラメータを持つ電子構造の全貌を明らかにすることが困難でした。

東北大学材料科学高等研究所の佐藤宇史教授、九州大学情報基盤研究開発センターの徳田悟助教、京都産業大学理学部の瀬川耕司教授、ドイツ ケルン大学の安藤陽一教授、産業技術総合研究所 産総研・東北大 数理先端材料モデリングオープンイノベーションラボラトリ(MathAM-OIL)の中西毅ラボ長らの研究グループは、IT分野などで幅広く用いられている「ベイズ推定」<sup>\*1</sup>という統計学的手法を用いて電子構造の全貌を明らかにする新しい解析方法を開発しました。本手法により、近年提唱された「トポロジカル絶縁体」<sup>\*2</sup>と呼ばれる新奇物質における、相対論的ディラック電子<sup>\*3</sup>の質量を10年越しに正確に決定することに成功しました。本解析法は、トポロジカル絶縁体だけでなく様々な機能性材料に対しても広く適用可能で、次世代放射光などによって得られる電子構造データの解析にも役に立つと期待されます。

本研究成果は、ネイチャー系英国科学誌 *Communications Physics* の2021年7月27日号で公開されました。

## 【詳細な説明】

### ◆研究の背景

電気が流れる、磁石につく、透明不透明、といった物質の性質は、物質中の電子の振る舞いによって決まります。物質中の電子は相互作用しあいながら集団で運動し、その物質に固有のエネルギー状態である「バンド構造」<sup>\*4</sup>を持っています。実験によってこのバンド構造と電子間に働く相互作用を正確に決定することが、物質の持つ多様な物性を解明する鍵となります。バンド構造を実験的に直接決定できる唯一の方法として、光によって物質表面から電子を叩き出す「外部光電効果」を利用した「角度分解光電子分光 (ARPES)」<sup>\*5</sup>(図 1)があり、高温超伝導体の超伝導機構解明や新しいトポロジカル物質の同定などにおいて先導的な役割を果たしてきました。一方で、ARPESによって得られたデータから、いかにして本質的なバンド構造と相互作用を抜き出すかについては、電子構造を特徴づける膨大な数のパラメータの値を全て決定することが困難であるとともに、複数の候補モデルから妥当なものを選別できる手法が確立していなかったため、これまでたびたび物性発現メカニズムの論争が生じていました。

### ◆研究の内容

今回、東北大学、九州大学、京都産業大学、ケルン大学、産業技術総合研究所の共同研究グループは、上記の論争を決着するため、社会科学や天文学などの分野、機械翻訳や迷惑メール除去などの IT 分野にも幅広く用いられている「ベイズ推定」と呼ばれる統計学的手法に着目しました。ARPES によって得られたデータの解析にこの方法を初めて適用することで、膨大な数のパラメータ全ての値を決定し、バンド構造と相互作用を抜き出すことに成功しました。今回、研究グループは、ベイズ推定による解析を適用するターゲットとして、「トポロジカル絶縁体」を選択しました。トポロジカル絶縁体とは、内部(バルク)は絶縁体であるのに対して、その表面には相対論的ディラック電子(図 2 左)が存在して金属的に振る舞う奇妙な物質で、このディラック電子の持つ特殊な性質を利用した新奇量子現象の探索や次世代電子デバイスへの応用に向けた研究が、現在世界中で急速に進められています。今回研究グループは、量子現象発現やデバイス応用の鍵を握る「ディラック電子に有限の質量が有るか無いか？」という根本的な問題(図 3)が 10 年以上も未解決のままであることを注目しました。そこで、2010 年に同研究グループ自らが発見したトポロジカル絶縁体  $\text{TlBi}(\text{S,Se})_2$  (結晶構造: 図 2 右)に対して、ベイズ推定を用いた電子構造の解析を行い、モデルの持つ 559 個のパラメータの値を全て決定することで、ARPES データ(図 4a)を極めてよく再現する解析結果(図 4b)を得ました。さらに、2種類のバンド構造のモデルのどちらが妥当かを統計的に評価し、ディラック電子に質量が有ることを明確に示しました(図 4c)。電子に働く多体相互作用の完全決定にも成功し(図 4d)、ディラック電子と物質内部のバルク電子との間で強い散乱が生じていることを突き止めました。本研究で確立したベイズ推定による ARPES データ解析法を用いれば、これまでグラフェンや磁

性トポロジカル物質などにおいて論争が繰り広げられているディラック電子質量の問題に加えて、高温超伝導体における多体相互作用と超伝導メカニズムの関連など、物性発現機構に直結する幾つかの本質的な問題を解決できると期待されます。

#### ◆今後の展望

今回、研究グループは、ベイズ推定と ARPES 実験を組み合わせた電子構造の新たな解析法がトポロジカル絶縁体に対して有用であることを示しました。この手法は、トポロジカル絶縁体のみならずグラフェンなどの原子層物質や高温超伝導体など、より広範な機能性物質にも適用することができます。今後は、この解析法をさらに改良することで、次世代放射光施設などによって得られる大量で複雑な電子構造データを効率よく解析するための基幹手法にもなり得ると期待されます。また、本解析法に基づいた正確な電子構造の理解を足掛かりにして、様々な機能性物質を用いた次世代電子デバイス材料の開発にも大きな弾みがつくものと期待されます。

本成果は、科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究推進事業 CREST「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能を有する材料・デバイスの創出」研究領域(研究総括:上田正仁)における研究課題「ナノスピン ARPES によるハイブリッドトポロジカル材料創製」(研究代表者:佐藤宇史)、日本学術振興会新学術領域研究「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」(領域代表者:川上則雄)、同科学研究費補助金若手研究「条件付き独立な観測に基づく統計的推測の理論と実践」(研究代表者:徳田悟)などの助成により得られました。

#### 【論文情報】

雑誌名: Communications Physics

論文タイトル: Unveiling quasiparticle dynamics of topological insulators through Bayesian modelling

著者: Satoru Tokuda, Seigo Souma, Kouji Segawa, Takashi Takahashi, Yoichi Ando, Takeshi Nakanishi, and Takafumi Sato

DOI 番号: 10.1038/s42005-021-00673-6

URL: <https://www.nature.com/articles/s42005-021-00673-6>

#### 【用語解説】

##### ※1 ベイズ推定

データ分析では、観測データを記述するモデルを立て、モデルのパラメータの値をデータに合うように求める、パラメータ推定が行われます。観測データとパラメータを共にランダムに得られるもの(確率変数)とみなし、パラメータが従う確率分布を求める手続きをベイズ推定と呼びます。パラメータの値だけではなく、それが従う確率分布を求めるため、パラメータの値が持つ不確かさを定量化できることが1つの特徴です。今回の

研究では、モンテカルロ法と呼ばれる乱拓アルゴリズムに基づいて確率分布を計算し、電子構造を特徴付ける全てのパラメータを求めました。ベイズ推定は条件付き確率の連鎖律(ベイズの定理)をその基礎としており、モデルのパラメータだけでなく、モデル自体の不確かさも定量化できます。今回の研究ではこの性質を基に、ディラック電子の質量が有る(モデル I)か、無い(モデル II)か、を統計的に評価しました。

## ※2 トポロジカル絶縁体

固体は物質内の電子構造によって、金属、絶縁体(半導体)、超伝導体と分けることができますが、トポロジカル絶縁体は、位相幾何(トポロジー)の概念を物質の電子構造の解析に取り入れることで、これまでの絶縁体とは一線を画す新しい絶縁体物質として2005年に提唱されました。3次元物質では表面に、2次元物質ではエッジ(端)に、電子の金属的な伝導路が形成されます。この伝導路は電子のスピンの向きが上向きか下向きかで分かれており、その性質のために、不純物の散乱に対して非常に強いことが知られています。この特殊な伝導路を利用してこれまでの物質にはないスピンの応答や制御を実現することで、新しい量子現象やスピントロニクス素子開発のアプローチができると期待されて、国内外で精力的な研究が行われています。

## ※3 ディラック電子

固体中の電気伝導を担う電子は、通常、有限の有効質量を持って運動していますが、特殊な状況下では、今から約90年前に英国の物理学者ディラック(1933年ノーベル物理学賞)が提唱した質量ゼロの相対論的フェルミ粒子の運動を記述する「ディラック方程式」に従って固体中を運動すると理論的に予言されていました。このような状態にある電子は非常に動きやすい上に、量子効果を示しやすいという特徴があります。

## ※4 バンド構造

固体中の電子は、ある運動量(速度)とエネルギーを持つことが知られています。固体中における電子の運動量とエネルギーの関係のことを、電子エネルギーバンド構造、または単に「バンド構造」と呼びます。バンド構造は物質によって異なり、バンド構造がどのような形を持つかによって、電気伝導や磁性といった物質の基本的な性質が決まります。

## ※5 角度分解光電子分光(ARPES)

結晶の表面に紫外線を照射して、外部光電効果により結晶外に放出される電子のエネルギーと運動量を同時に測定することで、物質中での電子の状態を観測する実験手法です。最近その分解能が急速に向上し、超伝導状態の電子も観測できるようになりました。外部光電効果とは、物質に紫外線やX線を入射すると電子が物質の表面から放出される現象です。物質外に放出された電子は光電子とも呼ばれます。この現象は、1905年に、アインシュタインの光量子仮説によって理論的に説明されました。アインシュタインは、この業績でノーベル物理学賞を受賞しています。

【説明図】

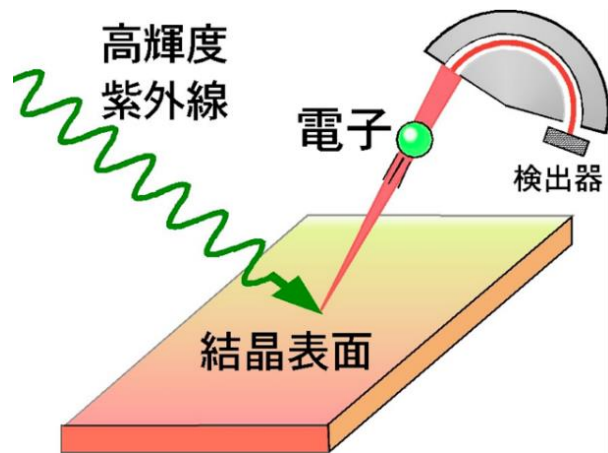


図 1: 角度分解光電子分光の概念図。物質に高輝度紫外線や軟 X 線を照射し、放出された光電子のエネルギーと運動量を精密に測定することで、物質の電子構造を決定できます。

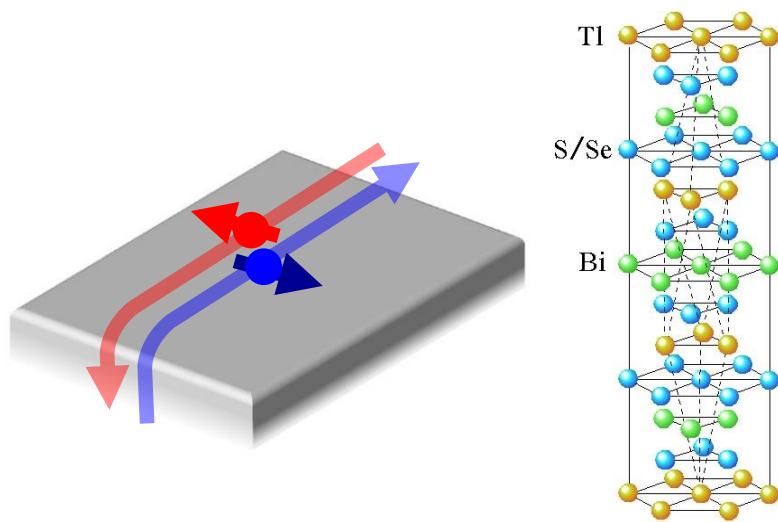


図 2: (左)トポロジカル絶縁体表面における電子の運動の模式図。反対方向のスピンの持つ電子が常にお互い反対方向に動き、電流を伴わない純粋なスピンの流れ(スピン流)が生じています。(右)  $\text{TlBi}(\text{S}, \text{Se})_2$  の結晶構造。

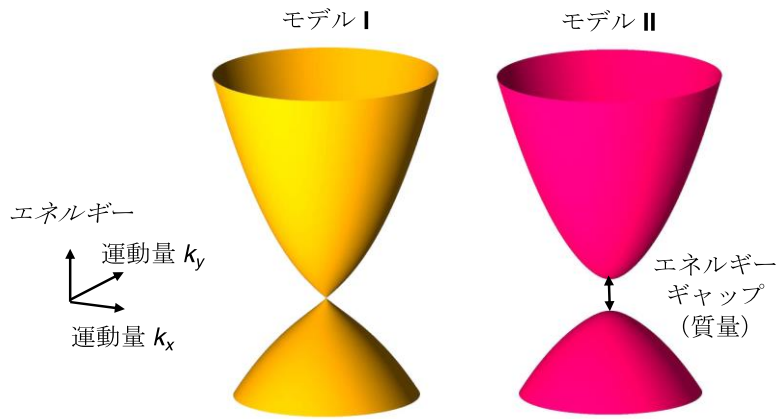


図 3: ディラック電子の質量の有無に関する論争。実験で得られた ARPES のデータからディラック電子に質量が有るかどうかは必ずしも自明ではありません。TlBi(S<sub>0.2</sub>Se<sub>0.8</sub>)<sub>2</sub> では、質量が無いバンド構造(モデル I)と質量が有るバンド構造(モデル II)のどちらであるかについて論争が起きていました。

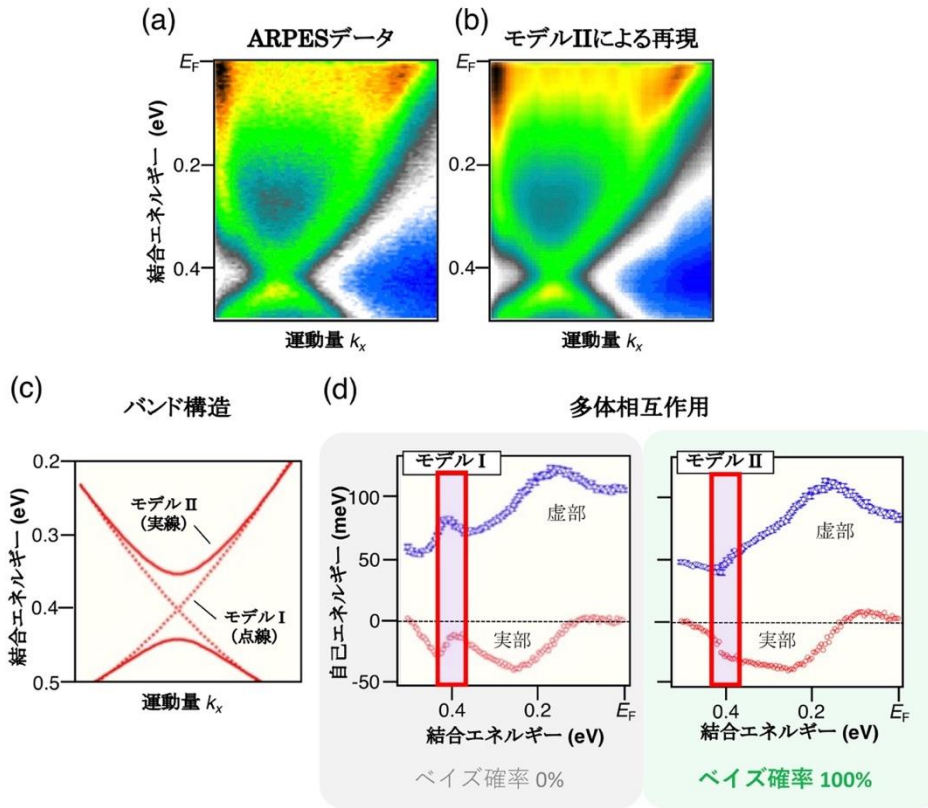


図 4: (a)TlBi(S<sub>0.2</sub>Se<sub>0.8</sub>)<sub>2</sub>における光電子強度の実験データと、(b)ベイズ推定による解析結果(モデル II の場合)の比較。モデル II を仮定した解析が ARPES データを非常によく再現しています。バンド構造について、(c)に示すモデル I(質量無し)とモデル II(質量有り)のどちらを仮定するか、が多体相互作用の推定にも影響することが明らかになりました。特に、(d)に示すように、モデル II を仮定した場合に、バンドの交点領域付近(赤枠)において違いが顕著に現れました。ベイズ推定による評価はほぼ 100%の確率でモデル II の方が統計的に妥当であることを示しました((d)右)。

**【問い合わせ先】**

<研究に関すること>

東北大学材料科学高等研究所

教授 佐藤 宇史 (さとう たかふみ)

電話:022-217-6169

E-mail:t-sato@arpes.phys.tohoku.ac.jp

<JST 事業に関すること>

科学技術振興機構 戦略研究推進部

グリーンイノベーショングループ

嶋林 ゆう子(しまばやし ゆうこ)

電話:03-3512-3531

E-mail:crest@jst.go.jp

<報道に関すること>

東北大学材料科学高等研究所

広報戦略室

電話:022-217-6146

E-mail:aimr-outreach@grp.tohoku.ac.jp

九州大学広報室

電話:092-802-2130

FAX:092-802-2139

E-mail:koho@jimu.kyushu-u.ac.jp

京都産業大学広報部

電話:075-705-1411

FAX:075-705-1987

E-mail:kouhou-bu@star.kyoto-su.ac.jp

産業技術総合研究所 広報部 報道室

電話:029-862-6216

FAX:029-862-6212

E-mail:press-ml@aist.go.jp

科学技術振興機構 広報課

電話:03-5214-8404

E-mail:jstkoho@jst.go.jp