

## 学位論文要旨

Investigation and manipulation of spin polarized Dirac surface state  
in the chalcogenide topological insulators(カルコゲナイドトポロジカル絶縁体におけるスピン偏極した  
ディラック表面状態とその制御)

黒田健太

トポロジカル絶縁体 (TI) は近年発見された新奇物質である。この絶縁体は、結晶内部は絶縁体であるが表面では必ず無散逸のスピン流が生成されるという極めて特殊な状態で特徴付けられる。さらに、この表面電子がヘリカルスピン構造を持った特異な電子構造を波数空間で形成し、スピン偏極した質量ゼロのディラック電子として振る舞う (図1)。そのため、TI は次世代超高速デバイス応用への用途にとどまらず、新奇物理現象研究の恰好の舞台として期待される有望な物質である [1]。特に、二元カルコゲナイド  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  は 300 meV 程度の大きなバンドギャップを持つことから精力的に研究が行われてきた TI である [2]。しかし、世界中で特殊な表面輸送特性の検出の試みが行われてきたが、結果的にはバルク由来の不本意な電流に支配されており、表面だけに生じる輸送特性の検出は困難であった [3]。したがって、将来的な新奇物理現象の発現のためには、さらなる TI の探索及び絶縁化された結晶の作成が必要とされており、この点が TI 研究の最大の課題である。そこで、本研究では、理論的にトポロジカル絶縁体であることが示された  $\text{TlBiSe}_2$  に注目して、実際に良質な単結晶の作成を行い、放射光角度分解光電子分光 (ARPES) によるその電子構造の直接評価、さらに、バルクが絶縁化された結晶作成方法の構築を行った。

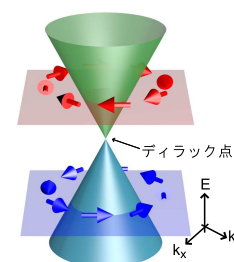
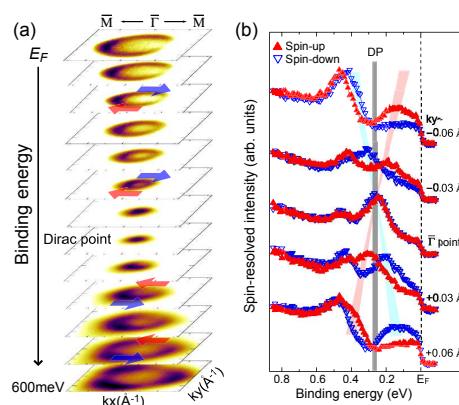


図 1: スピン偏極ディラック電子の電子構造

理想的なトポロジカル絶縁体  $\text{TlBiSe}_2$  の発見

図 2(a) に ARPES で測定されたフェルミ準位 ( $E_F$ ) 近傍の三次元バンドマッピング ( $E-k_x-k_y$ ) の結果を示す。この結果から図 1 に示したディラック電子に良く対応した電子状態が実現している事がわかる。次に、このスピン構造まで含めて詳細に決定するため、VLEED 型高効率スピン偏極器を用いたスピン分解 ARPES 測定を行った。異なる波数点で得られたスピン分解スペクトルを図 2(b) に示した。マイナスの波数では、結合エネルギー ( $E_B$ ) が 0.2 eV 周辺でスピニアップの強度がスピンドアウンに比べて大きくなっている。

図 2: (a) ARPES による三次元バンドマッピング ( $E-k_x-k_y$ ) の結果, (b) 異なる波数で得られたスピン分解スペクトル

のに対して、 $\bar{\Gamma}$  点を挟んだプラスの波数ではそれが反転している事がわかる。さらに、ディラック点 (DP) より高  $E_B$  側の強度の大小関係は低  $E_B$  側のそれに対して反転している様子がはっきりと見てとれる。決定されたスピンの方向を図 2(a) に矢印で示した。これらの結果から、 $\text{TlBiSe}_2$  が TI である事、さらに、図 1 に示したようなヘリカルスピン構造をもったディラック表面電子状態を有している事が明らかとなった。

次に、放射光の励起光エネルギー可変性を利用して、 $\text{TlBiSe}_2$  の電子構造の完全決定を試みた。その結果を図 3 に示す。 $\text{TlBiSe}_2$  のバンドギャップの大きさは 300 meV 程度でこれは  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  に匹敵する。さらに、DP 周辺で表面状態はバルク電子状態とエネルギー的に重なっていない事がわかった。この特徴から、将来的な表面輸送特性の実現に向けて、 $\text{TlBiSe}_2$  が非常に理想的な電子構造を持ったトポロジカル絶縁体である事が明らかとなった。

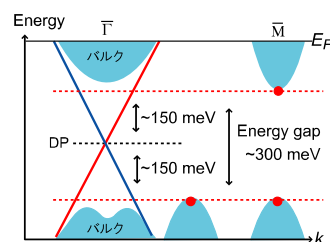


図 3: 決定された  $\text{TlBiSe}_2$  のバルク及び表面の電子構造

### 理想的なトポロジカル絶縁体 $\text{TlBiSe}_2$ のキャリア制御

しかしながら、図 3 の結果が示すように、通常の方法で作成した (as-grown) 試料ではバルクの伝導帯がフェルミ準位 ( $E_F$ ) に位置しており、本来絶縁体であるはずの  $\text{TlBiSe}_2$  が電子ドーピングされており金属になっている事がわかる。この有望なトポロジカル絶縁体を持つ可能性を最大限に引き出すには、キャリア制御を行い、バルクを十分に絶縁化させる必要がある。そこで、as-grown の試料で化学組成分析を行い電子ドーピングの起源を探索した。その結果、陰イオンサイト ( $\text{Se}^{2-}$ ) の欠陥と陽イオンサイト ( $\text{Tl}^{1+}$ ,  $\text{Bi}^{3+}$ ) の欠陥が電子ドーピングを引き起こしている事がわかった。次に、陽イオンサイトの欠陥を抑制するように新たな組成比で元素を仕込み、 $\text{TlBiSe}_2$  の単結晶育成に取り組んだ。陽イオンサイトの欠陥の量を  $x$  ( $\text{Tl}_{1-x}\text{Bi}_{1+x}\text{Se}_2$ ) として、育成した単結晶試料の  $x$  を化学組成分析により定量評価した。図 4(a)-(c) に異なる  $x$  を持つ試料の ARPES 測定の結果を示した。As-grown の試料 ( $x=0.064$ ) では DP は  $E_B=0.41$  eV 程度に位置しているが、 $x$  が減少するにつれて DP が  $E_F$  に近づいている様子がわかる。この結果は、

狙い通り陽イオンサイトの欠陥を少なくした結果、電子ドーピングが抑制されている事を示している。 $x=0.025$  ではさらに電子ドーピングが抑制され  $E_F$  がバンドギャップ中に位置している事から、バルクは絶縁体、表面は金属スピンのような理想的な状態が実現している事がわかる。今後、この開発された結晶作成方法を用いて、 $\text{TlBiSe}_2$  の表面輸送特性研究の発展が期待される。

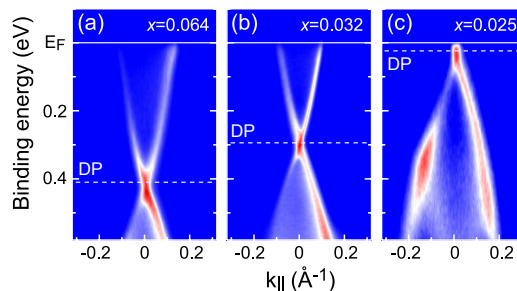


図 4: 異なる  $x$  を持つ試料の ARPES 測定の結果  
(a) As-grown 試料( $x=0.064$ ), (b)  $x=0.032$ , (c)  $x=0.025$

参考文献 : [1] M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010). [2] Y. Xia *et al.*, Nature Phys. **5**, 398 (2009). [3] 例えば, J. G. Analytis *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 205407 (2010).