

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 ( 理 学 )	氏名	黒田 健太
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当		
論文題目			
Investigation and manipulation of spin polarized Dirac surface state in the chalcogenide topological insulators (カルコゲナイドトポ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制御)			
論文審査担当者			
主 査	准教授	木 村	昭 夫
審査委員	教授	佐々木	茂 美(放射光科学研究センター)
審査委員	教授	圓 山	裕
審査委員	教授	谷 口	雅 樹
<p>物質の電氣的, 磁氣的, 熱的性質においてその電子状態が重要な役割を果たす。電子構造の観点から, 電子が占有された価電子帯と非占有の伝導帯の間にエネルギーギャップ(禁制帯)が存在するのが絶縁体(半導体), 存在しないのが金属というように明確に区別される。一方, 物質の分類においてトポロジー(位相幾何学)を用いた概念が, 半導体二次元電子系において低温・強磁場下で現れる量子ホール効果において導入された。最近では量子ホール効果とは異なる種類のトポロジーを用いて物質を分類する概念が新たに見いだされ, それに対応するいくつかの物質も発見された。これらは「トポジカル絶縁体」と呼ばれ, 量子スピンホール効果や新奇量子現象を示すことが期待されるとして注目を集めている。トポジカル絶縁体には2次元, 3次元版が存在するが, 申請者は3次元トポジカル絶縁体に注目した。3次元トポジカル絶縁体の表面電子は, ディラック円錐と呼ばれる線形のエネルギー分散関係を示す。よく知られるように, グラフェンもディラック円錐型のバンド構造を持つが, 3次元トポジカル絶縁体の表面ディラック円錐はグラフェンのものとは以下の点で一線を画すと言えよう。グラフェンの場合は, ブリルアンゾーンのK点およびK'点にそれぞれスピン縮退した合計4つのディラック円錐が存在するが, 3次元トポジカル絶縁体では, 最小で単一となり, 電子スピンの方向が波数ベクトルに対し垂直に固定された, いわばヘリカルスピンテクスチャーを形成する。このため, トポジカル絶縁体の表面電子は非磁性不純物に対して完全後方散乱が禁止され, エネルギー損失の少ない表面スピン流が得られるという魅力的な性質を持つ。さらには, 磁気単極子の発生, マヨラナフェルミオンの実現など, 様々な新奇量子現象が期待され, スピントロニクス研究分野で大きな注目を集めている。</p> <p>最初に発見されたトポジカル絶縁体は <math>\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x</math> 合金であるが, その次に発見された <math>\text{Bi}_2\text{Se}_3</math> はこれまで最も研究者の注目を集めた物質である。<math>\text{Bi}_2\text{Se}_3</math> はバンドギャップの大きさが <math>0.3\text{eV}</math> と他のトポジカル絶縁体物質に比べ大きなギャップを持っており, 角度分解光電子分光を用いてトポジカル絶縁体であることが示された。一方, 第一原理計算や走査型トンネル顕微鏡を用いた実験研究等により, ディラック点のエネルギー近傍にバルク価電子帯が位置しており, 実用上決定的な問題が存在することが明らかになってきた。そのため, バルクのエネルギーギャップが大きく, バンドギャップの中央にディラック点が位</p>			

置しているような、より理想的なトポロジカル絶縁体を探索するべきだという気運が高まってきた。

このような中、第一原理計算を用いてタリウムビスマスセレンナイド ( $\text{TlBiSe}_2$ ) という物質がより理想的なトポロジカル絶縁体であることが理論的に示されたことを契機として、申請者は同物質の単結晶作製にとりかかった。試料作成後、申請者は広島大学放射光科学研究センターの放射光ビームラインにて角度分解光電子分光を行ない、同物質がトポロジカル絶縁体であること、さらには従来型の  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  に比べて、より理想的な物質であることを世界に先がけて明らかにした。さらに、高効率スピン角度分解光電子分光を用いて、ディラック円錐型の表面状態のスピン偏極度の直接決定を試みた。その結果、表面状態には顕著なスピン偏極が観測され、トポロジカル絶縁体特有のスピンテクスチャーの存在を明確に示した。さらには、 $\text{TlBiSe}_2$  は  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  と異なり層状でないことから、試料へきかい後の最表面構造が自明では無かったが、申請者は、放射光を用いた内殻光電子分光と走査型トンネル顕微鏡の2つの手法を用いて、最表面にはセレンの2次元表面に島状のタリウムが分布していることを初めて明らかにした。

一方、作製した  $\text{TlBiSe}_2$  結晶はなんらかの理由で電子ドーピングされ金属的になっているという最大の問題が残されていた。そこで作製した試料について厳密な組成分析を行ったところ、実際には Se の欠損や Tl サイトに Bi が置換しており、これが原因となって電子ドーピングが起っていることをつきとめた。そこで、申請者の発案に基づき、Tl と Bi の比が 1:1 に極めて近くなるように新たに結晶育成を行なった。新たに作製した試料について放射光を用いた角度分解光電子分光を行なった結果、Tl/Bi 比が 1 に近づくにつれ、ディラック表面状態のディラック点がフェルミレベルに近づいて行く様子が直接的に捉えられた。すなわち申請者が新たに考案した結晶育成によって、 $\text{TlBiSe}_2$  のバルクキャリアを制御し、最終的には絶縁性の高い試料作製に世界に先駆けて成功した。本研究成果は、今後トポロジカル絶縁体を用いた新奇量子現象を実現するためにより適切な舞台を作ったことを示すもので、申請者の研究は大きな価値を持つものである。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。

## 公表論文

- [1] Hexagonally Deformed Fermi Surface of the 3D Topological Insulator  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$   
**K. Kuroda**, M. Arita, K. Miyamoto, M. Ye, J. Jiang, A. Kimura, E. E. Krasovskii, E. V. Chulkov, H. Iwasawa, T. Okuda, K. Shimada, Y. Ueda, H. Namatame, and M. Taniguchi  
Physical Review Letters **105**, 076802 (2010).
- [2] Experimental Realization of a Three-Dimensional Topological Insulator Phase in Ternary Chalcogenide  $\text{TlBiSe}_2$   
**K. Kuroda**, M. Ye, A. Kimura, S. V. Eremeev, E. E. Krasovskii, E. V. Chulkov, Y. Ueda, K. Miyamoto, T. Okuda, K. Shimada, H. Namatame, and M. Taniguchi  
Physical Review Letters **105**, 146801 (2010).
- [3] Experimental Verification of  $\text{PbBi}_2\text{Te}_4$  as a 3D Topological Insulator  
**K. Kuroda**, H. Miyahara, M. Ye, S. V. Eremeev, Yu. M. Koroteev, E. E. Krasovskii, E. V. Chulkov, S. Hiramoto, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, K. Miyamoto, T. Okuda, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, Y. Ueda, and A. Kimura  
Physical Review Letters **108**, 206803 (2012).
- [4] Experimental verification of the surface termination in the topological insulator  $\text{TlBiSe}_2$  using core-level photoelectron spectroscopy and scanning tunneling microscopy.  
**Kenta Kuroda**, Mao Ye, Eike F. Schwier, Munisa Nurmamat, Kaito Shirai, Masashi Nakatake, Shigenori Ueda, Koji Miyamoto, Taichi Okuda, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, Yoshifumi Ueda, Akio Kimura  
Phys. Rev. B. **88**, 245308 (2013).

## 参考論文

- [1] Unoccupied topological surface state in  $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$   
Munisa Nurmamat, E. E. Krasovskii, **K. Kuroda**, M. Ye, K. Miyamoto, M. Nakatake, T. Okuda, H. Namatame, M. Taniguchi, E. V. Chulkov, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, and A. Kimura  
Phys. Rev. B **88**, 081301(R) (2013).
- [2] Perpendicular magnetic anisotropy with enhanced orbital moments of Fe adatoms on a topological surface of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$   
Mao Ye, **Kenta Kuroda**, Yukiharu Takeda, Yuji Saitoh, Kazuaki Okamoto, Si-Yuan Zhu, Kaito Shirai, Koji Miyamoto, Masashi Arita, Masashi Nakatake, Taichi Okuda, Yoshihumi Ueda, Kenya Shimada, Hirohumi Namatame, Masaki Taniguchi and Akio Kimura  
Journal of Physics: Condensed Matter **25**, 232201 (2013).
- [3] Experimental Evidence of Hidden Topological Surface States in  $\text{PbBi}_4\text{Te}_7$   
Taichi Okuda, Takamasa Maegawa, Mao Ye, Kaito Shirai, Takuya Warashina, Koji Miyamoto, **Kenta Kuroda**, Masashi Arita, Ziya S. Aliev, Imamaddin R. Amiraslanov, Mahammad B. Babanly, Evgueni V. Chulkov, Sergey V. Eremeev, Akio Kimura, Hirofumi Namatame, and Masaki Taniguchi  
Phys. Rev. Lett. **111**, 206803 (2013).

- [4] Observation of a highly spin-polarized topological surface state in  $\text{GeBi}_2\text{Te}_4$   
K. Okamoto, **K. Kuroda**, H. Miyahara, K. Miyamoto, T. Okuda, Z. S. Aliev, M. B. Babanly, I. R. Amiraslanov, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, D. A. Samorokov, T. V. Menshchikova, E. V. Chulkov, and A. Kimura  
*Phys. Rev. B* **86**, 195304 (2012).
- [5] Quasiparticle interference on the surface of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  induced by cobalt adatom in the absence of ferromagnetic ordering  
M. Ye, S. V. Eremeev, **K. Kuroda**, E. E. Krasovskii, E. V. Chulkov, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Okamoto, S. Y. Zhu, K. Miyamoto, M. Arita, M. Nakatake, T. Okuda, Y. Ueda, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, and A. Kimura  
*Phys. Rev. B* **85**, 205317 (2012).
- [6] Spin-Polarized Dirac-Cone-Like Surface State with d Character at  $\text{W}(110)$   
K. Miyamoto, A. Kimura, **K. Kuroda**, T. Okuda, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, and M. Donath  
*Phys. Rev. Lett.* **108**, 066808 (2012).
- [7] Observation of Peculiar Rashba-Type Spin-Split Band on  $\text{Bi}(111)$  Surface by High-Resolution Spin- and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy  
Hirokazu Miyahara, Takamasa Maegawa, **Kenta Kuroda**, Akio Kimura, Koji Miyamoto, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, and Taichi Okuda  
*e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* **10**, 152 (2012).
- [8] Topological Surface States with Persistent High Spin Polarization across the Dirac Point in  $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$  and  $\text{Bi}_2\text{Se}_2\text{Te}$   
K. Miyamoto, A. Kimura, T. Okuda, H. Miyahara, **K. Kuroda**, H. Namatame, M. Taniguchi, S. V. Eremeev, T. V. Menshchikova, E. V. Chulkov, K. A. Kokh, and O. E. Tereshchenko  
*Phys. Rev. Lett.* **109**, 166802 (2012).
- [9] Surface Scattering via Bulk Continuum States in the 3D Topological Insulator  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$   
Sunghun Kim, M. Ye, **K. Kuroda**, Y. Yamada, E. E. Krasovskii, E. V. Chulkov, K. Miyamoto, M. Nakatake, T. Okuda, Y. Ueda, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, and A. Kimura  
*Phys. Rev. Lett.* **107**, 056803 (2011).
- [10] Efficient spin resolved spectroscopy observation machine at Hiroshima Synchrotron Radiation Center  
T. Okuda, K. Miyamoto, H. Miyahara, **K. Kuroda**, A. Kimura, H. Namatame, and M. Taniguchi  
*Review of Scientific Instruments* **82**, 103302 (2011).