

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)	氏名	ZHENG MINGTIAN
学位授与の要件	学位規則第 4 条第①・2 項該当		
論文題目			
High-resolution angle-resolved photoemission study of oxygen adsorbed Fe/MgO(001) (高分解能角度分解光電子分光による酸素吸着した Fe/MgO(001) の研究)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	島田 賢也 (放射光科学研究センター)	
審査委員	教 授	奥田 太一 (放射光科学研究センター)	
審査委員	教 授	森吉 千佳子	
〔論文審査の要旨〕			
<p>金属表面に酸素が吸着し、金属原子軌道と酸素原子軌道が強く結合すると、表面構造や表面の電気的、磁気的特性が大きく変化する。これまでに最もよく調べられてきた系の一つが、鉄(001)面に酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した表面である。この表面は化学的に安定で、磁気長距離秩序があることが知られている。表面磁化の向きに平行か反平行かに依存して入射スピン偏極電子の反射率あるいは吸収率が大きく異なるため、この表面はスピンフィルターとして働き、高効率スピン分析器のターゲット材料として実用化されている。これまでに酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した鉄(001)表面についてスピン角度分解光電子分光が行われ、価電子帯全体にわたる大きなエネルギースケールで酸素 2p 軌道のスピン分裂やバンド分散が報告された。また走査トンネル顕微鏡・分光により、酸素吸着によって表面の平坦性が増すことやフェルミ準位近傍の局所状態密度が明らかになった。しかし物性に直接関わるフェルミ準位近傍の波数、エネルギーに依存した電子バンド構造の詳細については全く明らかになっていなかった。そこで申請者は、放射光の直線偏光特性を活用した角度分解光電子分光実験 (ARPES) および局所密度汎関数理論を用いたスラブモデル計算 (バンド計算) を用いて、酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した鉄(001)表面の表面・バルク電子状態を解明し、物性の理解につなげることを研究の目的とした。</p> <p>申請者は MgO(001) 基板を超高真空中で清浄化し、真空蒸着法を用いて、その表面上に鉄(001) 薄膜単結晶をエピタキシャル成長させた。次に酸素を導入し、超高真空中で 900 K で加熱することによって酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した鉄(001)表面を作製した。試料の清浄性や結晶性はオージェ電子分光、低速電子線回折像で確認している。清浄な鉄(001)表面および酸素吸着表面について広島大学放射光科学研究センターのアンジュレータビームライン (BL-1) において直線偏光依存 ARPES 実験を行なった。励起光エネルギー依存性から表面電子状態を特定し、それが最もよく観測できる励起光エネルギーに設定した。</p> <p>実験の結果、鉄(001)の清浄表面に比較し、酸素吸着表面では ARPES スペクトルの線幅が顕著に狭まることがわかった。これは酸素吸着によって結晶表面の平坦性が高くなり、格子欠陥による散乱が抑えられるためと考えられた。また直線偏光特性を利用することにより、結晶の鏡映面に対して偶あるいは奇対称な電子バンドを実験的に明瞭に分離観測する</p>			

ことができた。

ARPES スペクトルの帰属により詳細に電子バンド構造を解明するため、バンド計算との比較を行った。この計算では、ブロッホ電子軌道を表面から測った原子層毎、電子軌道の対称性毎、スピン毎に射影しているため、直線偏光依存 ARPES スペクトルの結果と直接比較することが可能である。その結果、表面第 1 層では二次元波数空間の $\bar{\Gamma}$ 点 (0, 0) を中心に酸素 2p 軌道と混成した鉄 $3d_{xy}$, $3d_{yz}$, $3d_{zx}$, $3d_{x^2-y^2}$ 軌道に由来する表面準位が生じていることが分かった。実験と理論とを定量的に比較するとフェルミ波数および表面準位の最低エネルギーはいずれもバンド計算と比較して小さいことがわかった。またバンド計算では縮退しているエネルギー準位が、実験的には軌道の対称性に依存して分裂しており、その分裂の大きさは波数方向 ($\bar{\Gamma}-\bar{X}$ 方向と $\bar{\Gamma}-\bar{M}$ 方向) に依存して異なっていた。これらの結果は、表面の鉄原子に由来する電子数密度が理論が与えるよりも小さくなっており、フェルミ面の形状が異方的に歪んでいることを示している。一方、2 層目の鉄原子に由来する少数スピン $3d_{3z^2-r^2}$ バンドは、吸着した酸素 $2p_z$ と強く混成し、エネルギー準位がバンド計算よりも低くなっている。このようなエネルギーシフトは、清浄鉄表面に対する先行研究をもとに、バンド計算では反映されていない電子相関に由来するものと考えられた。

本研究により、実験で観測されたバンド分散が、1 層目、2 層目の鉄のどの軌道 ($3d_{xy}$, $3d_{yz}$, $3d_{zx}$, $3d_{3z^2-r^2}$, $3d_{x^2-y^2}$) に由来するのか、また酸素の軌道 ($2p_x$, $2p_y$, $2p_z$) とどのように p-d 混成しているのか、その全容が初めて明らかとなった。またバンド分散やフェルミ波数について実験とバンド計算とを定量的に比較することにより、電子相関により有効質量やキャリア密度が異方的に変調を受けることが明らかになった。すなわち、この系は強相関低次元マルチバンド系の一つの典型的な実例となっている。

申請者は試料作製・評価、角度分解光電子分光実験、データ解析まで一貫して取り組んでいる。酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した鉄 (001) 表面は比較的単純な構造であるにも関わらず、スピン偏極した多数の表面・バルク電子状態が重なり合うためにフェルミ面やバンド分散は極めて複雑である。実験データと比較するためには、最新の計算コードを用いた大規模なバンド計算が必要であった。本研究は酸素が $p(1 \times 1)$ 構造で吸着した鉄 (001) 表面のフェルミ準位近傍の電子構造を初めて詳細に解明したものであり、表面磁性や界面輸送特性を理解するための重要な基礎を与えたことは高く評価できる。

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. [Mingtian Zheng](#), Eike F. Schwier, Hideaki Iwasawa, and Kenya Shimada: High-resolution angle-resolved photoemission study of oxygen adsorbed Fe/MgO(001), *Chinese Physics B* **29**(6), 067901(9p) (2020).

参考論文

1. Takashi Komesu, Duy Le, Quan Ma, Eike F. Schwier, Yohei Kojima, [Mingtian Zheng](#), Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Masaki Taniguchi, Ludwig Bartels, Talat Rahman and P. A. Dowben: Symmetry Resolved Surface-Derived Electronic Structure of MoS₂(0001), *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**(45), 455501(8p) (2014).
2. Takashi Komesu, Duy Le, Xin Zhang, Quan Ma, Eike F. Schwier, Yohei Kojima, [Mingtian Zheng](#), Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Masaki Taniguchi, Ludwig Bartels, Talat Rahman and P. A. Dowben: Occupied and Unoccupied Electronic Structure of Na doped MoS₂(0001), *Applied Physics Letters* **105**(24), 241602 (4p) (2014).
3. T. Sugimoto, D. Ootsuki, C. Morice, E. Artacho, S.S. Saxena, E.F. Schwier, [M. Zheng](#), Y. Kojima, H. Iwasawa, K. Shimada, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, M. Takahashi, N.L. Saini, T. Asano, R. Higashinaka, T.D. Matsuda, Y. Aoki, and T. Mizokawa: Fermi surfaces and orbital polarization in superconducting CeO_{0.5}F_{0.5}BiS₂ revealed by angle-resolved photoemission spectroscopy, *Physical Review B* **92**(4), 041113(R)(5p) (2015).
4. Wei Yao, Eryin Wang, Ke Deng, Shuzhen Yang, Wenyun Wu, Alexei V. Fedorov, Sung-Kwan Mo, Eike F. Schwier, [Mingtian Zheng](#), Yohei Kojima, Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Kaili Jiang, Pu Yu, Jia Li, and Shuyun Zhou: Monolayer charge-neutral graphene on platinum with extremely weak electron-phonon coupling, *Physical Review B* **92**(11), 115421(5p) (2015).
5. Iori Tanabe, Takashi Komesu, Duy Le, Takat B. Rawal, Eike F. Schwier, [Mingtian Zheng](#), Yohei Kojima, Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Talat S. Rahman, and Peter A. Dowben: The symmetry-resolved electronic structure of 2H-WSe₂(0001), *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**(34), 345503(10p) (2016).
6. Takashi Komesu, Xin Huang, Tula R. Paudel, Yaroslav B. Losovyj, Xin Zhang, Eike F. Schwier, Yohei Kojima, [Mingtian Zheng](#), Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Makhsud I. Saidaminov, Dong Shi, Ahmed Abdelhady, Osman M. Bakr, Shuai Dong, Evgeny Y. Tsymbal, and Peter A. Dowben: Surface Electronic Structure of Hybrid Organo Lead Bromide Perovskite Single Crystals, *Journal of Physical Chemistry C* **120**(38), 21710-21715 (2016).
7. Takashi Komesu, Iori Tanabe, Duy Le, Eike F. Schwier, Yohei Kojima, [Mingtian Zheng](#), Kazuaki Taguchi, Koji Miyamoto, Taichi Okuda, Hideaki Iwasawa, Kenya Shimada, Talat S. Rahman, and Peter A. Dowben: Adsorbate doping of MoS₂ and WSe₂: the Influence of Na and Co, *Journal of Physics: Condensed Matter* **29**(28), 285501(7p) (2017).
8. H. Iwasawa, K. Shimada, E. F. Schwier, [M. Zheng](#), Y. Kojima, H. Hayashi, J. Jiang, M. Higashiguchi, Y. Aiura, H. Namatame and M. Taniguchi: Rotatable high-resolution ARPES system for tunable linear polarization geometry, *Journal of Synchrotron Radiation* **24**(4), 836-841 (2017).
9. Kenan Zhang, Xiaoyu Liu, Haoxiong Zhang, Ke Deng, Mingzhe Yan, Wei Yao, [Mingtian Zheng](#), Eike F. Schwier, Kenya Shimada, Jonathan D. Denlinger, Yang Wu, Wenhui Duan, and Shuyun Zhou: Evidence for quasi-one-dimensional charge density wave in CuTe by angle-resolved photoemission spectroscopy, *Physical Review Letters* **121**(20), 206402(5p) (2018).
10. Xiaoxiao Wang, Jiahua Chen, [Mingtian Zheng](#), Tatiana V. Menshchikova, Igor P. Rusinov, Eike F. Schwier, Filip Orbanić, Shilong Wu, Kazuki Sumida, Tomoki Yoshikawa, Koji Miyamoto, Munisa Nurmatat, Taichi Okuda, Kenya Shimada, Mario Novak, Evgueni V. Chulkov, and Akio Kimura: Disentangling orbital and spin textures of surface-derived states in non-symmorphic semimetal HfSiS, *Physical Review B* **100**(20), 205140(7p) (2019).