

学位論文要旨

Light- and spin- induced electronic structures of novel topological materials (光およびスピんに誘起された新奇トポロジカル物質の電子構造)

氏名 吉川 智己

物質の電氣的、磁氣的、熱的、光学的性質は、電子状態によって支配されている。そのため、物質の電子状態を観測することは物性の発現機構の解明に繋がるだけでなく、高い機能性を示す物質の設計にも重要な指針を与えることができる。本研究では、トポロジカル絶縁体やハーフメタルホイスラー合金といった新奇機能性かつトポロジカルな性質を持つ物質に着目し、光励起によって誘起される非平衡状態やスピんに誘起された電子状態の観測を行うことで物質のデバイス応用や高機能化への可能性を示した。

まずトポロジカル絶縁体における光励起によって誘起される非平衡状態に着目した。トポロジカル絶縁体は、結晶内部(バルク)は絶縁体的であるが、表面において金属的な状態を持っている。その表面状態は、バルクの価電子帯と伝導帯をつなぐような線形のエネルギー分散を伴うディラックコーンを形成する。これは質量ゼロのディラック電子が存在することに対応する。さらに、電子の運動方向に対してそのスピン方向が垂直に固定されたヘリカルスピントクスチャーを形成する。これは実空間において逆向きスピンの電子が互いに逆方向に進行する「純スピン流」がトポロジカル絶縁体表面で生じることを意味する。また、非磁性不純物による散乱も大幅に抑制され、エネルギー散逸の少ない伝導が実現できる可能性があり、基礎物理的な観点からだけでなく、スピントロニクスデバイスといった応用面でも大きな注目を集めている。

最近、トポロジカル絶縁体のスピン偏極電流を光照射により制御する手法がいくつか提案されている。その中の方法の一つとして挙げられるのが表面光起電力 (SPV) 効果を使った方法である。原理として、トポロジカル絶縁体に光を照射するとバルクの伝導帯と価電子帯にそれぞれ電子と正孔が励起されバンドベンディングが緩和する。その結果、表面の電位が変化し、スピン偏極電流が生じる。SPV が生じるにはトポロジカル絶縁体の表面が金属的で、バルクが絶縁体的という条件が必要であり、バンドベンディングは、金属的な表面と半導体的なバルクの界面で生じる。2015年に、SPV 効果がバルク絶縁性の高いトポロジカル絶縁体候補物質 SmB_6 で観測され、スピン偏極電流を光照射により制御できる可能性が初めて指摘された。しかしながら、観測された SPV は一方向に限定され、そのシフト量は 4 meV とかなり小さい。さらに、 SmB_6 はトポロジカル絶縁体として未だ確立されていないため、スピン偏極電流を伴う表面状態の存在は不明である。もし、両極性の SPV シフトを実現することができれば、スピン偏極電流の向きまで制御できるようになる。これはスピン流を使用したデバイスの三要素であるスピン偏極電流の生成・操作・検出のうち生成及び操作を実現することとなる。そこで本研究は Bi_2Te_3 に着目した。 Bi_2Te_3 はトポロジカル絶縁体として最も盛んに研究されてきた物質の一つである。最近、ノヴォシビルスク半導体物理研究所のグループが独自の試料作成法により Bi_2Te_3 の良質単結晶を育成し、

世界で初めて単結晶の p - n 接合が実現した。これに着目し、同グループとの共同研究として、 p 形と n 形の良質 Bi_2Te_3 単結晶試料について、SPV を観測するためポンプ・プローブ法による時間・角度分解光電子分光を行った。その結果、正負両極性の SPV シフトを実証し、トポロジカル表面状態は、 n 形試料ではプラスに、 p 形試料ではマイナスに光起電力を生成していることを初めて明らかにした。また、表面状態において光によって生成された蓄積キャリアの存在を観測し、それが少なくとも 4 マイクロ秒以上持続することを明らかにした。さらに、高強度光を照射することで SPV シフト量が増大することを発見した。本研究は、トポロジカル絶縁体の光機能化に大きな役割を果たすと期待される。

次にホイスラー合金のスピンの誘起された電子状態に着目した。フルホイスラー合金は、 X_2YZ の組成を持つ規則合金である。その中でも $\text{X}=\text{Co}$ としている Co 基ホイスラー合金の多くは、フェルミレベル近傍にて一方のスピンの状態密度にバンドギャップが存在し、スピン偏極度 100% のハーフメタルになることが予測されている。この特異な電子構造を利用し、高スピン偏極材料としてトンネル磁気抵抗(TMR)素子や巨大磁気抵抗(GMR)素子など、スピントロニクスデバイスへの応用が期待されている。特に Co_2MnGe は理想的なハーフメタルであることがすでに第一原理計算より示されており、実験的には光電子分光法により占有電子状態に関する研究が行われてきた。さらに X 線磁気円二色性(XMCD)実験により、非磁性元素でも磁気モーメントが誘起されることも明らかになっている。一方、そのスペクトル形状は複雑であり、長年、定性的な考察に留まっている。さらに最近 XMCD の遷移確率を利用し、スピンの依存した Co $3d$ の非占有状態を抽出するという試みが Co 基ホイスラー合金で行われた。しかしながら、Co $3d$ の多数スピン電子と少数スピン電子で、その遍歴度合いが異なっており、Co $2p$ 内殻吸収における励起先の違いによって励起電子と内殻のホールに働く静電引力がスピンの方向に依存して異なる。その結果、スピンの依存したエネルギーシフトが発生し、多数スピンと少数スピンの非占有状態のエネルギー位置関係を明らかにできなかった。

一方、非磁性元素サイトの電子は、比較的遍歴性が高く、磁性元素の $3d$ 軌道との混成を通じて、部分状態密度(PDOS)を写し取ると考えられる。また内殻正孔との相互作用は小さく、一電子的な電子状態密度をそのまま反映すると考えられる。そこで本研究では、 Co_2MnGe (Ga)フルホイスラー合金薄膜において Ga (Ge) $L_{2,3}$ 吸収端における XMCD を SPring-8 BL23SU にて観測した。さらに、Ga および Ge $L_{2,3}$ 吸収端と XMCD スペクトルと第一原理計算による非占有側の Ge (Ga)における d 軌道の PDOS を比較した。その結果、水素様原子モデルによる遷移ではほとんど寄与しないと考えられていた Ge (Ga)の $4s$ 軌道が、実際にはスペクトルに大きく寄与することが分かり、電気双極子に基づいて XAS/XMCD スペクトルの計算を行ったところ、実験結果を適切に再現した。これは、非磁性サイトの XAS/XMCD スペクトルが、非占有状態のスピン分極 PDOS を明らかにするだけでなく、機能性材料設計へのフィードバックを行うための実験ツールとしての可能性を示した。