

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)	氏名	吉川 智己
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 ①・② 項該当		
論文題目			
Light- and spin- induced electronic structures of novel topological materials (光およびスピンに誘起された新奇トポロジカル物質の電子構造)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	木村 昭夫	
審査委員	教 授	生天目 博文 (放射光科学研究センター)	
審査委員	教 授	森吉 千佳子	
審査委員	准教授	樋口 克彦 (先進理工系科学研究科量子物質科学プログラム)	
〔論文審査の要旨〕			
<p>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．その観点から，物質の電子状態を実験的に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設計にも重要な指針を与えることができる．申請者は，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電子スピンの役割を担う物質に着目し研究を行なった．</p> <p>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，表面において質量ゼロのディラック分散を伴う金属的な状態を持つ．さらに，その表面状態は，電子の運動方向に対して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．そのため，表面スピン流は，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，基礎物理的な観点だけではなく，スピントロニクスデバイスへの応用でも注目を集めている．</p> <p>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た．その中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．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湾曲が緩和する．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が生じるにはバルクが絶縁体的である必要があり，バンド湾曲は，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 とかなり小さいという問題があった．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．</p> <p>そこで申請者は，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</p>			

る Bi_2Te_3 に着目し、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 型試料ではプラスに、 p 型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。

次に申請者は、ホイスラー合金のスピんに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素子や巨大磁気抵抗素子など、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)分光実験により、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。さらに最近電気双極子遷移における遷移確率をもとに、スピんに依存した 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、その遍歴性の度合いが異なっており、Co 2p 内殻吸収(XAS)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、スピんに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)をうつ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。そこで申請者は、 $\text{Co}_2\text{MnGe}(\text{Ga})$ 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 にて観測を試みた。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基づいた考察からはほとんど寄与しないと考えられていた Ge(Ga)の 4s 終状態が、実際にはスペクトルに大きく寄与することが分かり、電気双極子近似の範囲で 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した電子状態密度を実験的に明らかにした。

本学位申請論文の研究成果は、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点で高く評価される。また、本研究は指導教員を含む複数の研究者との共同研究によるものであるが、研究の全過程において申請者の主体的・中心的な寄与が認められる。

以上のことより、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) Unveiling spin-dependent unoccupied electronic states of Co₂MnGe (Ga) film via Ge (Ga) L_{2,3} absorption spectroscopy:
T. Yoshikawa, V. N. Antonov, T. Kono, M. Kakoki, K. Sumida, K. Miyamoto, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Goto, Y. Sakuraba, K. Hono, A. Ernst, and A. Kimura
Physical Review B **102**, 064428 (2020)
- (2) Bidirectional surface photovoltage on a topological insulator:
T. Yoshikawa, K. Sumida, Y. Ishida, J. Chen, M. Nurmat, K. Akiba, A. Miyake, M. Tokunaga, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Shin, and A. Kimura
Physical Review B **100**, 165311 (2019)
- (3) Enhanced photovoltage on the surface of topological insulator via optical aging:
T. Yoshikawa, Y. Ishida, K. Sumida, J. Chen, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Shin, and A. Kimura
Applied Physics Letters **112**, 192104 (2018)

参考論文

- (1) Emergence of low-energy electronic states in oxygen-controlled Mott insulator Ca₂RuO_{4+δ}:
Takeo Miyashita, Hideaki Iwasawa, Tomoki Yoshikawa, Shusuke Ozawa, Hironoshin Oda, Takayuki Muro, Hiroki Ogura, Tatsuhiro Sakami, Fumihiko Nakamura, and Akihiro Ino
Solid State Communications **326**, 114180 (2021)
- (2) Visualizing Half-Metallic Bulk Band Structure with Multiple Weyl Cones of the Heusler Ferromagnet:
T. Kono, M. Kakoki, T. Yoshikawa, X. Wang, K. Sumida, K. Miyamoto, T. Muro, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Goto, Y. Sakuraba, K. Hono, and A. Kimura
Physical Review Letters **125**, 216403 (2020)
- (3) Radial Spin Texture in Elemental Tellurium with Chiral Crystal Structure:
M. Sakano, M. Hirayama, T. Takahashi, S. Akebi, M. Nakayama, K. Kuroda, K. Taguchi, T. Yoshikawa, K. Miyamoto, T. Okuda, K. Ono, H. Kumigashira, T. Ideue, Y. Iwasa, N. Mitsuishi, K. Ishizaka, S. Shin, T. Miyake, S. Murakami, T. Sasagawa, and Takeshi Kondo
Physical Review Letters **124**, 136404 (2020)
- (4) Disentangling orbital and spin textures of surface-derived states in non-symmorphic semimetal HfSiS:
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 Nurmat, Taichi Okuda, Kenya Shimada, Mario Novak, Evgueni V. Chulkov, and Akio Kimura
Physical Review B **100**, 205140 (2019)
- (5) Element-specific density of states of Co₂MnGe revealed by resonant photoelectron spectroscopy:
Takashi Kono, Masaaki Kakoki, Tomoki Yoshikawa, Xiaoxiao Wang, Kazuki Sumida, Koji Miyamoto, Takayuki Muro, Yukiharu Takeda, Yuji Saitoh, Kazuki Goto, Yuya Sakuraba, Kazuhiro Hono, and Akio Kimura
Physical Review B **100**, 165120 (2019)
- (6) Dirac gap opening and Dirac-fermion-mediated magnetic coupling in antiferromagnetic Gd-doped topological insulators and their manipulation by synchrotron radiation:
A. M. Shikin, D. A. Estyunin, Yu. I. Surnin, A. V. Koroleva, E.V. Shevchenko, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Kumar, E. F. Schwier, K. Shimada, T. Yoshikawa, Y. Saitoh, Y. Takeda, and A. Kimura
Scientific Reports **9**, 4813 (2019)
- (7) Inverted Dirac-electron population in a thermally activated topological insulator:
K. Sumida, Y. Ishida, T. Yoshikawa, J. Chen, M. Nurmat, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Shin, and A. Kimura
Physical Review B **99**, 085302 (2019)
- (8) Ultrafast dynamics of an unoccupied surface resonances state of Bi₂Te₂Se:
M. Nurmat, K. Sumida, Y. Ishida, J. Chen, T. Yoshikawa, E. E. Krasovskii, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Shin and A. Kimura
Physical Review B **97**, 115303 (2018)
- (9) Direct evidence of hidden local spin polarization in a centrosymmetric superconductor LaO_{0.55}F_{0.45}BiS₂:
Shi-Long Wu, Kazuki Sumida, Koji Miyamoto, Kazuaki Taguchi, Tomoki Yoshikawa, Akio Kimura, Yoshifumi Ueda, Masashi Arita, Masanori Nagao, Satoshi Watauchi, Isao Tanaka and Taichi Okuda
Nature Communications **8**, 1919 (2017)
- (10) High quality atomically thin PtSe₂ films grown by molecular beam epitaxy:
Mingzhe Yan, Eryin Wang, Xue Zhou, Guangqi Zhang, Hongyun Zhang, Kenan Zhang, Wei Yao, Nianpeng Lu, Shuzhen Yang, Shilong Wu, Tomoki Yoshikawa, Koji Miyamoto, Taichi Okuda, Yang Wu, Pu Yu, Wenhui Duan, and Shuyun Zhou
2D Materials **4**, 045015 (2017)
- (11) Experimental realization of type-II Weyl state in non-centrosymmetric TaIrTe₄:
E. Haubold, K. Koepf, D. Efremov, S. Khim, A. Fedorov, Y. Kushnirenko, J. van den Brink, S. Wurmehl, B. Büchner, T. K. Kim, M. Hoesch, K. Sumida, K. Taguchi, T. Yoshikawa, A. Kimura, T. Okuda, and S. V. Borisenko
Physical Review B **95**, 241108(R) (2017)