

称号及び氏名 博士(理学) 竹野 広晃

学位授与の日付 平成 31 年 3 月 31 日

論文名 Optical Study on Spin-Polarized Dirac Electrons in Topological Insulator Films  
(トポロジカル絶縁体薄膜におけるスピン偏極したディラック電子の光学特性)

論文審査委員 主査 溝口 幸司  
副査 田中 智  
副査 久保田 佳基  
副査 大島 悟郎

## 論文要旨

# Optical Study on Spin-Polarized Dirac Electrons in Topological Insulator Films

(トポロジカル絶縁体薄膜におけるスピン偏極したディラック電子の光学特性)

理学系研究科 物理科学専攻 博士後期課程 3年

竹野 広晃

トポロジカル絶縁体(TI)は、内部のバルク部分が半導体(絶縁体)状態を示す一方で、表面層にのみ2次元伝導の金属状態が発現する物質である。このような性質は、TI中の電子のエネルギー構造に由来する。TIのバルク部分の電子のエネルギーは、運動量が小さい領域では、運動量に対してパラボリックな分散関係を示すのに対して、一方でTIの表面層に存在する電子(ディラック電子)のエネルギーは運動量に対して線形な分散関係を示す。また、そのスピンは面内方向かつ運動量に対して常に垂直な方向を向いていることが理論的に予想されている。このような性質をスピン-運動量ロッキングという。TIに円偏光の光を照射した場合、スピン選択に従ってディラック電子は光励起される。このとき、運動量空間における非対称な励起によって、外部電場を印加せずにディラック電子による光電流が流れることが期待される。そこで、本研究では、真空蒸着法を用いて作製したTI薄膜を用いて、光励起されたディラック電子のスピン-運動量ロッキングを光学的に明らかにすることを主目的に研究を行った。

一般的に、固体試料に生じる光電流は、電極を付けた固体試料に電場などの外場を印加し、電極間に光を照射した際の電流量を測定することで得られる。しかし、電極をつけたTI単結晶に光を照射した場合、TI単結晶中にゼーベック効果による熱電流や、試料の結晶軸に依存した電流が生成される。前者の電流の流れの方向は電極間の熱分布に依存し、後者のそれは試料を面内で回転させることにより変化する。これらの電流の影響により、励起光偏光のみに依存する光電流の流れの方向を調べるのが困難になる。そこで本研究では、電極を付加しないTIの多結晶薄膜に光を照射し、生成された光電流から放射されるテラヘルツ波を測定した。ここで、テラヘルツ波放射測定は、光電流の流れの方向や大きさ、ダイナミクスを非接触に得ることができる手法である。

TI単結晶中の励起光偏光に依存する光電流は、スピン-運動量ロッキングによってスピン偏極していることが期待される。しかしながら、テラヘルツ波放射(すなわち光電流)の測定だけでは、光電流のスピン偏極を確かめることができない。スピン-運動量ロッキングについて議論するためには、光電流とスピン偏極の両方を測定する必要がある。TIに関するこれまでの研究においては、光電流もしくはスピン偏極のどちらか一方に関する研究は少

なからず報告されているが、これら2つの間の関係について議論されている研究はない。そこで、本研究では、テラヘルツ波放射測定に加えて、時間分解磁気光学カー回転信号を測定することにより、光電流のスピンの偏極を調べた。

テラヘルツ波放射測定から、TI表面における光電流の流れの方向が、励起光偏光に依存することを実証した。さらに、カー回転信号測定から、スピン偏極度が光電流の流れの方向に依存することがわかった。これは、TI表面に生成された光電流がスピン-運動量ロッキングの特性を持つディラック電子によって構成されていることを意味する。

本論文は、全4章で構成されている。Chapter 1では、序章として、本研究における背景、および本研究の目的を述べ、TIの表面層に存在するディラック電子の特徴および理論的背景を紹介する。また、本研究で用いたTIの一種である $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の結晶構造とバンド構造について紹介する。Chapter 2では、本研究で用いた $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜の作製方法、および、その結晶性の評価について報告する。特に本研究で作製した $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜の結晶性の評価については、X線回折、原子間力顕微鏡、偏光ラマン分光による測定を行うことで、その表面構造について議論する。Chapter 3では、本研究で用いた $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜において、光励起されたディラック電子のスピン-運動量ロッキングを光学的に明らかにすることを主目的に、様々な偏光の光励起を用いて、テラヘルツ波放射測定および時間分解磁気光学カー回転測定を行った結果について報告する。その結果、光電流の流れの方向は励起光偏光によって変化し、また、スピン偏極度が光電流の流れの方向に依存することが明らかになった。さらに、テラヘルツ波信号から見積もられた光電流の緩和時間から、スピン偏極光電流のダイナミクスについても議論する。Chapter 4では、本研究を総括する。

## Chapter 1 Introduction

トポロジカル絶縁体表面に存在するディラック電子のスピン-運動量ロッキングを議論する上で、スピンの向きと光電流の流れの方向との関係を調べることは非常に重要である。しかしながら、スピンと光電流の両方を測定し、それらの関係について議論している研究はこれまでにない。そこで本章では、テラヘルツ波とカー回転信号を測定することにより、スピン偏極と光電流の関係を調べるという本研究の目的を述べる。また、TIの一種である $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の結晶構造とバンド構造について紹介する。

## Chapter 2 Fabrication and Characterization of $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ Thin Film

本研究では、ゼーベック効果による熱電流や、試料の結晶軸に依存した電流を抑制するために、電極を付加しない $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の多結晶薄膜を作製した。本章では、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜の作製方法を紹介した後、X線回折、原子間力顕微鏡、偏光ラマン分光の測定によって $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜の表面構造を調べた。その結果、作製した $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 薄膜の表面は、直径 $0.2\text{-}0.3\ \mu\text{m}$ のグレインが積層方向に配向し、かつ面内にランダム配向していることがわかった。さらに、赤外領域とテラヘルツ領域における光学特性についても報告する。

### Chapter 3 Spin-Polarized Photocurrent

テラヘルツ波放射測定から、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜表面における光電流の流れの方向が、励起光偏光に依存することを明らかにした。励起光偏光に依存する光電流は、**photogalvanic** 効果によって生成されていることを明らかにした。さらに、カー回転信号測定から、スピン偏極度が光電流の流れの方向に依存することがわかった。この結果から、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜表面に生成された光電流がスピン-運動量ロッキングの特性を持つディラック電子によって構成されていることを明確にした。また、スピン偏極光電流の生成および、励起光偏光による方向制御を実証した。さらに、テラヘルツ波の時間領域信号から、光電流の緩和時間が $\tau_{\text{sc}} \sim 25$  fs であると見積もられた。この値は、フォノンやグレイン境界による散乱時間と比較して非常に短い。一方で、フェルミ速度と表面層厚さから見積もられるキャリアの移動時間が $\tau_{\text{sc}}$  と近いことから、見積もられた緩和時間 $\tau_{\text{sc}}$  は、光励起キャリアが表面層からバルクへ空間的に抜け出すことに起因していると考えられる。

### Chapter 4 Conclusion

本研究の総括をしている。

## Achievements of the Study

#### Peer Review Paper

- H. Takeno, S. Saito and K. Mizoguchi, "Optical control of spin-polarized photocurrent in topological insulator thin films", *Scientific Reports* **8**, 15392 (2018).

#### International Conference

- H. Takeno, S. Saito and K. Mizoguchi, "Study of  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  topological insulator thin film with angle-resolved THz-wave transmission spectroscopy", 6th International Conference on Photoinduced Phase Transitions (PIPT6), Sendai, Japan, 4-9 June 2017, PS-11.

#### Award

- Award for Encouragement of Research in Condensed Matter Photophysics, Japan (2017).

## 学位論文審査結果の要旨

学位論文提出者氏名： 竹野 広晃

学位論文題目： Optical Study on Spin-Polarized Dirac Electrons in Topological Insulator Films

(トポロジカル絶縁体薄膜におけるスピン偏極したディラック電子の光学特性)

トポロジカル絶縁体(TI)結晶は、その内部は絶縁体的性質を示す一方で、表面層は2次元伝導の金属的性質を示す物質である。この特異な性質は、試料表面における並進対称性の破れに起因し、TI結晶の内部および表面層における電子のエネルギー構造の違いから生じている。TI結晶の内部における電子のエネルギーは、運動量(または波数)が小さい領域では、運動量に対してパラボリックな分散を示すのに対し、表面層に存在する電子のエネルギーは、運動量に対して線形分散を示す。ここで、TI結晶の表面層に存在し、運動量に対して線形のエネルギー分散を有する電子をディラック電子という。このディラック電子のスピン偏極は面内方向かつ運動量に対して常に垂直な方向を向いていること(スピン-運動量ロッキング)が理論的に示されているが、実験的証拠が未だに見出されていなかった。そこで、本研究では、TI薄膜におけるディラック電子のスピン-運動量ロッキングを光学的に実証することを目的に研究を行なっている。特に、TI薄膜に様々な偏光を有するパルス光を照射することで、光励起されたディラック電子による光電流の方向とスピン偏極との関係を明らかにしている。

本論文ではTIの一種である $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ -TIの配向膜を作製・評価し、以下の内容について報告している。

- (1)  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ -TI薄膜の表面層におけるディラック電子の存在を、THz波放射測定から明らかにしている。様々な偏光を有するパルス光を用い、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ -TI薄膜中に光励起キャリアを生成し、そこからのTHz波放射を観測することで、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ -TI薄膜の表面層におけるディラック電子の存在を明らかにしている。特に、右回り円偏光と左回り円偏光の照射で、ディラック電子による光電流の流れの方向が逆転することを発見しており、励起パルスの偏光の楕円率を変えることで、光電流の方向を制御できることを見出している。
- (2) 時間分解磁気光学カー測定から、ディラック電子による光電流方向とスピン偏極方向の関係がスピン-運動量ロッキングに従っていることを明らかにしている。上記のTHz波放射測定と同様に、様々な偏光を有するパルス光を用い、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ -TI薄膜中にディラック電子を励起し、磁化率に依存した磁気光学カー測定をすることで、ディラック電子によるスピン偏極度を調べている。その結果、時間分解磁気光学カー測定から得られたスピン偏極の方向と光電流の方向が直交していることを見出しており、まさしく光励起されたディラック電子はスピン-運動量ロッキングに従っていることを明らかにしている。また、ディラック電子のスピン偏極度および光電流における励起光偏光の楕円率依存性から、スピン偏極光電流の方向制御が可能であることを見出している。

以上のように本研究において、TI薄膜におけるディラック電子による光電流とスピン偏極の関係を明確にしたこと、および、ディラック電子によるスピン偏極光電流の光制御は卓越した成果であり、高く評価できる。また、この成果は、物性物理分野のみならず、オプトロニクスデバイスやスピントロニクスデバイスなどの応用分野にも多大なる影響を与えるものと期待される。

本委員会は、本論文は学位論文として十分な内容を有しており、また、本学位論文提出者である竹野広晃は学位を授与するのに十分な学力および見識を有しているものと判断した。

主査 溝口 幸司

田中 智  
久保田 佳基  
大畠 悟郎