

## 審査の結果の要旨

氏名 服部 裕也

トポロジカル絶縁体は、バルクはバンドギャップを持ちながら、表面に特殊な金属状態を形成する物質である。この特殊な表面状態は、スピン偏極したディラック電子からなり、不純物散乱が抑制されるなどの特徴をもつため、スピントロニクスや高速電子デバイスなどへの応用が期待されている。しかしながら、この特殊な表面状態の実験的観測は、これまでトポロジカル絶縁体であることが実証された 30 種類以上の物質の中でもごく一部に限られている。これは、一般にトポロジカル絶縁体がバンドギャップの小さい半導体であることに加え、内因性欠陥による高密度なキャリアの存在によりバルクの絶縁性が低下しているためである。トポロジカル絶縁体の特殊な表面状態の観測およびその基礎的研究、さらにそのような状態を利用したデバイス開発に向けて、バルクの絶縁性を向上させることが重要な課題となっている。

本研究では、表面のみならず転位においても特殊な金属状態が発現し得る  $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2(\text{Te},\text{Se})_4$  トポロジカル絶縁体を対象とし、バルク絶縁体化および表面状態・伝導特性を明らかにすることを目的とした。本論文は全六章で構成されている。

第一章は序論であり、研究背景として、トポロジカル絶縁体発見の歴史的経緯、トポロジエーおよび物質のトポロジカルな分類、トポロジカル絶縁体の応用研究、他のトポロジカル絶縁体のバルク絶縁体化の例および **Pb** 系トポロジカル絶縁体について解説したのち、本研究の目的および本論文の構成を述べている。

第二章では、 $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2\text{Te}_4$  トポロジカル絶縁体の単結晶作製および組成制御によるバルク絶縁体化について述べている。単結晶作製はブリッジマン法により行った。平衡状態図を参照して原料組成を適切に選ぶことにより、電気伝導測定に十分な数 mm サイズの単結晶試料を作製することに成功した。また、作製試料中の **Bi/Sb** 濃度比が成長方向に単調に変化していることがわかった。原料の組成比の調整に加え、成長方向の濃度勾配を利用することで、**Bi/Sb** 濃度比が僅かに異なる試料を多数用意し、電気伝導測定およびホール測定を行った。これにより主要キャリアの **np** 転移点の同定、およびバルク絶縁体化に成功した。

第三章では、表面伝導特性の評価について述べている。ここでは第二章でバルク絶縁体化した組成をもつ、厚さ  $1\ \mu\text{m}$  以下の試料を作製して電気伝導測定を行い、表面伝導特性を評価した。厚さ約  $100\ \text{nm}$  の試料に対し低温 ( $5\ \text{K}$  以下) で磁気抵抗測定を行った結果、2次元電子系に起因する量子振動が観測された。量子振動の解析結果を、角度分解光電子分光により観測されているバンド構造と照らし合わせることで、フェルミ準位の位置、フェルミ速度および緩和時間を見積もった。これらの値から求めた表面電子の平均自由行程と移動度が、従来のトポロジカル絶縁体と同程度であることがわかった。

第四章では、極低温走査型トンネル顕微鏡を用いた表面状態の評価について述べている。第三章と同様にバルク絶縁体化した組成をもつ試料に対し、走査トンネル分光法により表面電子の散乱過程の解析を行った。微分トンネルコンダクタンス ( $dI/dV$ ) を測定し、局所状態密度像を得た。さらにそのフーリエ変換により得られる準粒子干渉パターンから、表面電子の散乱過程の解析を行った。散乱確率の数値シミュレーションを行い、実験像と比較することにより、完全後方散乱が禁止されていることを示唆する結果を得た。この結果は、表面電子がヘリカルスピン偏極していることを反映していると解釈できる。

第五章では、さらなるバルク絶縁性向上のための元素置換について述べている。バンドギャップの増大と内因性欠陥の抑制を期待し、 $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2\text{Te}_4$  の Te サイトの一部を電気陰性度の大きい Se で置換することを試みた。走査型透過電子顕微鏡を用いた電子線エネルギー損失分光マッピング、および粉末 X 線回折パターンのリートベルト解析を行った結果、従来のトポロジカル絶縁体でバルク絶縁性向上の鍵となることが知られている Te/Se の秩序構造が  $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2(\text{Te},\text{Se})_4$  でも形成されていることを明らかにした。

第六章は総括であり、本論文全体の内容をまとめている。

以上のように、本研究は  $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2(\text{Te},\text{Se})_4$  トポロジカル絶縁体の組成を精密に制御することによりバルク絶縁性の高い単結晶を得ることに成功し、その表面電子状態および伝導特性を明らかにした。また、元素置換により、さらにバルク絶縁性を向上させるための指針を示した。これらの成果は、従来のトポロジカル絶縁体の表面状態の研究の進展に寄与するのみならず、未開拓の転位状態の研究に発展し、その工学的応用に新たな道筋をつけるものとして高く評価できる。

よって本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。