

令和元年6月5日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14319

研究課題名(和文) レーザー光電子分光を用いたスピン軌道エンタングルメントと光励起ダイナミクスの研究

研究課題名(英文) Spin-orbital entanglement and photo-excited dynamics investigated by laser photoemission spectroscopy

研究代表者

黒田 健太 (Kuroda, Kenta)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：00774001

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクス研究の発展に伴いスピン偏極電子の創出と制御は重要な課題となっている。その中でスピン軌道相互作用は重要な要素であり、これによってスピン偏極した電子状態を有した様々なトポロジカル物質相が実現する。本研究では、ARPES法を主とした電子状態観測により、スピン相互作用が織りなす新しい物質相や物性制御法の開拓を行った。その結果、弱いトポロジカル絶縁体やワイル磁性体の実証などのトポロジカル物質相の実証やトポロジカル相図の決定法構築を行った。さらに、スピン分解 ARPES を偏光可変レーザーと組み合わせることで、光でスピンを自在に制御する光スピン制御の開拓を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は ARPES や スピン分解 ARPES 測定の光源をレーザーや放射光、そして励起光をうまく選択する事でトポロジカル相図の決定、さらには光スピン制御の実証まで行ったものであり、バンド分散の形状やスピン偏極度の大きさを語るだけに留まった従来の測定に比べて一線を画す。スピン分解 ARPES においては、光スピン制御の微視的機構としてスピン干渉の直接観測に成功した。この結果は、物性研究の実験ツールとして ARPES 法の新しい利用価値を示したものである。本研究で解明したスピン干渉効果を利用して、光でスピンを制御するスピントロニクス、「光スピントロニクス」の可能性を提案できたと考えている。

研究成果の概要(英文)：Spin-orbit coupling in matter is a key for recent development of spintronics to generate spin-polarized electrons related to band topology as well as control the electron's spin. In this work, we use ARPES-based techniques to search new material phases induced by strong spin-orbit coupling, and methodologies to control its spin properties. Consequently, we have newly discovered weak topological insulator phase and Weyl magnet, and established a sophisticated way to determine topological phase diagram experimentally. Moreover, by a combination of spin-resolved ARPES with polarization-variable laser, we have opened a pathway to optically control electron's spin through the spin-orbit entanglement in solid states.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン軌道相互作用 スピン分解光電子分光 レーザー スピントロニクス 表面・界面物性 超高速

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス研究の発展に伴い、スピン偏極電子の創出と制御は重要な課題となっている。ここで大きな役割を担うのが、空間反転対称性の破れとスピン軌道相互作用であり、この組み合わせはスピン縮退を解く。つまり、結晶表面など対称性が破れている系では、磁場がなくても強いスピン軌道相互作用によってスピン偏極した電子状態が自発的に発生するのである。この現象は、ラッシュバ表面状態やトポロジカル絶縁体の表面状態で、盛んに研究が行われてきている。強いスピン軌道相互作用の重要な帰結として、表面状態は、ヘリカルなスピン構造を波数空間で形成する。例えば、トポロジカル絶縁体のバルクバンドギャップ中に実現する表面状態は、質量のないディラック電子方程式で記述され、時間反転対称性によってスピンの方向が表面に平行な波数ベクトル  $k$  に対して垂直一方向かつ面内に固定されたヘリカルなスピン模様を波数空間で形成する。そのため、 $+k$  から  $-k$  への後方散乱にはスピン反転が必要となって後方散乱自体が抑制され、高移動度の伝導を示すスピントロニクス材料として期待される。これまで、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  や  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  などのカルコゲナイドが典型的な三次元トポロジカル絶縁体であることが知られている。また、トポロジカル絶縁体研究が発端となり、様々なトポロジカル物質相の開拓も行われてきている。特に、ワイル半金属は、時間反転対称性もしくは空間反転対称性の破れによってスピン縮退の解けた伝導帯と価電子帯が反転して交差点を形成した状態であり、バルクの電子構造は円錐状のフェルミオン分散の対で特徴づけられる。ワイル点と呼ばれる交差点の対は、波数空間における仮想的な磁極として見なすことができ、異常ホール効果などの大きな起電力効果が期待されている。そこで、こういったスピン軌道相互作用と対称性の破れがきっかけとなるトポロジカル物質の魅力的な物性を実際にデバイスの形として実現させるために、より高性能なトポロジカル物質やその制御方法が必要不可欠であった。

### 2. 研究の目的

本研究では、スピン軌道相互作用が直接関わる電子構造の観測が可能となる角度分解光電子分光 (ARPES) やスピンまで分解できるスピン分解 ARPES (SARPES) を主に利用して、新しいトポロジカル物質やその物性開拓を目指した。

また、SARPES 法と最先端の光源と融合させることで、光でスピンを制御する「光スピン制御」の微視的な機構を解明することで、新しいトポロジカル物質の制御法として提案して実現させる。従来の ARPES や SARPES 測定では電子状態の直接観測するツールとして利用されてきたが、「光スピン制御」をレーザー SARPES で展開することで、この手法の新しい価値を提案したい。

### 3. 研究の方法

スピン軌道相互作用の物理が展開する新しいトポロジカル物質開拓のために、高強度レーザーとスピン角度分解光電子分光 (Spin-ARPES) を組み合わせたレーザー SARPES 装置や放射光 ARPES を利用する。特に、トポロジカル物質を実験的に同定するために、二次元的な表面状態と三次元的に分散するバルクの電子状態を実験的に決定する必要がある。そのため、真空紫外から軟 X 線までの幅広い波長領域で実験を行った。連続偏光可変性というレーザーの利点を活用して、レーザー SARPES によって偏光に依存した光電子スピン偏極を観測する。

### 4. 研究成果

偏光可変レーザー SARPES を用いて  $\text{Bi}(111)$  のラッシュバ分裂表面状態から放出される光電子のスピンの向きを三次元的に決定した。その結果、観測されるスピンの励起光の直線偏光に強く依存することがわかった。まず、試料鏡映面に対して面内の横偏光 ( $p$  偏光) や垂直の縦偏光 ( $s$  偏光) で放出される光電子は同面に対して垂直軸のアップとダウン方向になっていることがわかった。これらの結果は、スピン軌道結合によるスピン軌道エンタングルメント状態によって説明することができる。この状態では、鏡映面に対して偶パリティと奇パリティの軌道成分がそれぞれ異なるスピンと結合している。そのため、双極子遷移の軌道選択則を利用すれば、このスピン軌道エンタングルメントを通してスピンを選択的に取り出すことが可能となる。さらに、我々は、レーザーの波長板により任意の直線偏光で励起した場合、スピンの干渉効果によって、放出される光電子のスピンの回転することを明らかにした。そして、観測された光電子スピンの直線偏光依存性が光学遷移の位相を反映していることがわかり、実験的にこの位相を抽出した (主な発表論文 ⑤, ⑧, ⑩)。この研究結果から、光学遷移の位相自由度を利用した光スピン制御の新しい概念として発展が期待される。

ポンプ・プローブスピン角度分解光電子分光を行うために、10.7-eV の高次高調波 (HHG レーザー) システムの導入を行った。この波長帯に対して、 $\text{LiF}$  や  $\text{MgF}_2$  は透明であるためこれら結晶を窓材として利用することを試みた。カラーセンターに起因する真空窓の透過率の減少が問題化されていたが、この問題点を完全に解決して、これら光学結晶の大幅な安定化に成功した (主な発表論文 ②)。これにより、ポンプ・プローブスピン角度分解光電子分光が可能となった。

トポロジカル物質相を実験的に同定する上で、固体の電子構造を波数空間でマッピングすることができる角度分解光電子分光 (ARPES) が強力な実験手法となる。特に、表面敏感な ARPES を利用した表面状態の直接観測によって「見かけで中身を知る」測定が行われており、

これまでに多数のトポロジカル物質が発見されてきた。そこで我々は、励起光として数百 eV 程度の軟 X 線高輝度放射光を用いたバルク敏感な軟 X 線 ARPES (SX-ARPES) を利用することで、物質のバンドトポロジーに対する直接的な実験を実現させた。この実験は、Ce モノプニクタイト物質群 (CeX: X=P, As, Sb, or Bi) の電子構造の系統的な観察に基づく。そして、プニクタイトのスピ軌道結合 (SOC) が与えるバンド反転効果を直接見ることで、トポロジカル相図を実験的に決定した。これにより、見かけの測定に頼らずにトポロジーを決定できる、これまでにない方法を確立した (主な発表論文 ③, ⑥)。また、SX-ARPES で物質内部のトポロジーを直接的に決定する方法を確立させたことで、多彩なトポロジカル物質相を切り拓く実験ツールとして軟 X 線の新たな利用価値を示した。

放射光 ARPES を用いて反強磁性体  $Mn_3Sn$  のバルク電子構造に注目した。 $Mn_3Sn$  では、カゴメ格子状に配列した Mn イオンの磁気モーメントがノンコリアな 120 度構造を形成することにより、時間反転対称性が破れる。この対称性の破れを反映して、反強磁性体であるにも関わらず巨大な異常ホール効果や異常ネルンスト効果が室温で観測されている。我々は、放射光 ARPES で  $E_F$  近傍の微細な電子構造を調べることで、こういった起電力効果が、時間反転対称性の破れたワイル粒子に対応する準粒子構造により発現している事を明らかにした (主な発表論文 ③, ⑨)。これにより、ワイル磁性体という新しいトポロジカル物質相を世界で初めて見出した。

ナノ ARPES と高分解能レーザー SARPES を用いて、擬一次元結晶ビスマスハライドにおいて弱いトポロジカル絶縁体相を実証した (主な発表論文 ①)。弱いトポロジカル絶縁体相は  $Bi_2Se_3$  を代表とする強いトポロジカル絶縁体相と 2007 年に理論的に予言されていたにも関わらず、その実験的な証拠はまだ報告されていなかった。その 1 つの大きな理由は、弱いトポロジカル絶縁体相ではある特定の表面にしかトポロジカルな表面状態が現れないためである。我々は、ナノ集光された放射光 ARPES を利用して微小領域へキ開表面を選択的に測定することで、ビスマスハライドの結晶表面にのみ擬一次元的なディラック型のトポロジカル表面状態が現れていることを明らかにした。さらに、高分解能レーザー SARPES を利用して、波数空間におこけるそのスピン模様を決定した。この結果から、この物質相は、エッジに流れるスピン流の散乱が完全に抑制された 2 次元量子スピンホール絶縁体が積層した結晶であることを見出した。

これらの研究結果について、論文発表、学会発表により成果報告を行った。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① “Discovery of switchable weak topological insulator state in quasi-one-dimensional bismuth iodide”, R. Noguchi, T. Takahashi, **K. Kuroda**, M. Oschi, T. Shirasawasa, M. Sakano, C. Bareille, M. Nakayama, M. D. Watson, K. Yaji, A. Harasawa, H. Iwasawa, P. Dudin, T. K. Kim, M. Hoesch, S. Shin, R. Arita, T. Sasagawa, and Takeshi Kondo, 査読有, Nature, **566** 巻, 518, 2019 年, DOI: 10.1038/s41586-019-0927-7.
- ② “Monolithic LiF or MgF<sub>2</sub> lens-window-prism device for coherent 10.7 eV beam source with 1 MHz repetition rate”, Z. Zhao, **K. Kuroda**, A. Harasawa, T. Kondo, S. Shin, and Y. Kobayashi, 査読有, Chinese Optics Letter **17**, 051406, 2019 年, DOI: 10.3788/COL201917.051406.
- ③ “真空紫外及び軟 X 線領域の放射光角度分解光電子分光を用いた新しいトポロジカル物質相の研究”, **黒田健太**, 査読有, 放射光 **32**, p104, 2019 年, <http://www.jssrr.jp/journal/32-2.html>
- ④ “Coexistence of Two Types of Spin splitting Originating from Different Symmetries” Koichiro Yaji, Anton Visikovskiy, Takushi Iimori, **Kenta Kuroda**, Shingo Hayashi, Takashi Kajiwara, Satoru Tanaka, Fumio Komori, and Shik Shin, 査読有, Physical Review Letters, **122** 巻, 126403, 2019 年, DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.126403.
- ⑤ “Experimental Methods for spin- and angle-resolved photomission spectroscopy combined with polarization -variable laser” **K. Kuroda**, K. Yaji, A. Harasawa, R. Noguchi, T. Kondo, F. Komori, S. Shin, 査読有, Journal of Visualized Experiments, **136** 巻, e57090, 2018 年, DOI: 10.3791/57090.
- ⑥ “Experimental determination of the topological phase diagram in Cerium monopnictides ” **K. Kuroda**, M. Ochi, H. S. Suzuki, M. Hirayama, M. Nakayama, R. Noguchi, B. Cedric, S. Akebi, S. Kunisada, T. Muro, M. D. Watson, H. Kitazawa, Y. Haga, T. K. Kim, M. Hoesch, S. Shin, R. Arita and Takeshi Kondo, 査読有, Physical Review Letters, **120** 巻, 086402, 2018 年, DOI: 10.1103/PhysRevLett.120.086402.
- ⑦ “時間分解光電子分光を用いたトポロジカル絶縁体表面状態における光ガルバニック効果の観測”, **黒田健太**, 査読有, 表面と真空 **61**, p302, 2018 年, [https://www.jstage.jst.go.jp/article/vss/61/5/61\\_20180084/\\_article/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/article/vss/61/5/61_20180084/_article/-char/ja/)
- ⑧ “レーザー励起スピン分解光電子分光で解き明かす光スピン制御”, 矢治光一郎, **黒田健太**, 小森文夫, 辛埴, 査読有, 光学 **47**, 2018 年, <http://myosj.or.jp/kogaku/backnumber/47-4/>
- ⑨ “Evidence for magnetic Weyl fermions in a correlated metal” **K. Kuroda**\*, T. Tomita\*, M.-T.

Suzuki, C. Bareille, A. A. Nugroho, P. Goswami, M. Ochi, M. Ikhlas, M. Nakayama, S. Akebi, R. Noguchi, R. Ishii, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, A. Varykhalov, T. Muro, T. Koretsune, R. Arita, S. Shin, Takeshi Kondo and S. Nakatsuji, 査読有, Nature Materials, 16 巻, 1090, 2017 年, DOI: 10.1038/nmat4987.

⑩ “Spin-dependent quantum interference in photoemission process from spin-orbit coupled states” K. Yaji\*, **K. Kuroda**\*, [equal contributions], S. Toyohisa, A. Harasawa, Y. Ishida, S. Watanabe, C.-T. Chen, K. Kobayashi, F. Komori and S. Shin, 査読有, Nature Communications 8 巻, 14588, 2017 年, DOI: 10.1038/ncomms14588.

⑪ “Ultrafast energy- and momentum-resolved surface Dirac photocurrents in the topological insulator  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$ ” **K. Kuroda**, J. Reimann, K. A. Koch, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, J. Güdde, and U. Höfer, 査読有, Physiscal Review B, 95 巻, 081103, 2017 年, DOI: 10.1103/PhysRevB.95.081103

⑫ “中赤外パルスレーザーを用いた時間分解二光子光電子分光によるトポロジカル絶縁体  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  の光誘起表面電流測定”, **黒田健太**, 査読有, 表面科学 38、 p400、2017 年, <https://www.jvss.jp/jsssj/Vol38/38-08/index.htm>

⑬ “固体表面電子におけるスピン軌道エンタングルメントと光スピン制御”, 矢治光一郎,

**黒田健太**, 小森文夫, 辛埴, 査読有, 固体物理 (アグネ) 52、 2017 年,

<https://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/kota1052.htm>

[学会発表] (計 10 件)

① **黒田健太**, 高次高調波を用いた時間・スピン・角度分解光電子分光の装置開発、日本物理学会 2018 年秋季大会

② **Kenta Kuroda**, "Coherent control over spin-polarized surface state in topological insulators", AVS meeting, 2017 年

③ **Kenta Kuroda**, "Optical control over spin-polarized surface state in topological insulators", Ultrafast Surface Dynamics 10, 2017 年

④ **Kenta Kuroda**, "Visualizing ultrafast direct optical excitation of the topological surface state in  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  by mid-infrared laser pulses", CORPES 17, 2017 年

⑤ **黒田健太**, 光電子分光を用いたトポロジカル絶縁体におけるスピン偏極表面電子とその光制御の研究、日本物理学会 第 73 回年次大会、2017 年

⑥ **黒田健太**, 時間分解二光子光電子分光で捉えるコヒーレントなディラック表面電流の光制御、真空・表面科学合同講演会、2017 年

[その他]

① プレスリリース: 超高速・超指向性・完全無散逸の 3 拍子がそろった理想スピン流の創発と制御 ~ 『弱い』トポロジカル絶縁体の世界初の実証に成功~, 2019 年, <https://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=7464>

② プレスリリース: 物質の内部に隠れたトポロジーの直接観測に成功 ~ 「物質のトポロジー」は見かけより中身が大事~, 2018 年,

<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=4479>

③ プレスリリース: 「ワイル磁性体」を世界で初めて発見 ~ ワイル粒子で駆動する次世代量子デバイス実現へ道筋~, 2017 年,

<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=2515>

④ プレスリリース: 電子のスピンを自在に操作 ~ 先端レーザー技術が拓く光スピン制御~, 2017 年, [http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/issp\\_wms/DATA/OPTION/release20170224.pdf](http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/issp_wms/DATA/OPTION/release20170224.pdf)

## 6. 研究組織

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。