

令和 3 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01875

研究課題名(和文) 表面光励起スピン流の生成・制御に関する分光学的研究

研究課題名(英文) Spectroscopic investigation for optical generation/control of surface spin current

研究代表者

荒船 竜一 (ARAFUNE, Ryuichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員

研究者番号：50360483

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー光電子分光により、固体表面における占有・非占有状態の電子状態を調べ、光励起スピン流の性質とスピン軌道相互作用の影響を調べた。グラフェン/Ir(111)を主な測定対象とし、表面非占有状態の代表例である鏡像電荷バンドを詳細に測定した。

理論面ではエムベディッド・グリーン関数法を発展させた。スピン軌道相互作用を考慮することを可能にし、さらにモアレ系を含む比較的大きなユニットセルでも半無限固体結晶表面の電子バンド構造を計算可能になった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

(光励起)スピン流研究の多くは、(正/逆)スピンホール効果に由来した伝導測定を用いた研究である。本研究はそれらの研究に対して分光学的側面から解明を目指したものであり、補完的な情報を提供できる。光励起状態はフェムト・ピコ秒オーダーの本質的に超高速現象であり、短パルスレーザーを用いる本手法は光励起スピン流の本質に直接アプローチ可能なものである。

研究成果の概要(英文)：The electronic structure of occupied and unoccupied states on solid surfaces were investigated by using laser photoelectron spectroscopy to study the nature of the photo-excited spin current and the effect of spin-orbit coupling. Graphene/Ir(111) was the main target of the measurements, and the image charge band, which is a typical example of the surface unoccupied state, was measured in detail.

On the theoretical side, we further developed the embedded Green function method. It is now possible to take into account spin-orbit interactions. Moreover we have been able to calculate the electronic band structure of semi-infinite solid crystal surfaces even for relatively large unit cells including moire systems.

研究分野：表面科学

キーワード：表面分光 レーザー スピン軌道相互作用 非占有状態

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

スピンの流れ-スピン流-はスピントロニクスが生み出した最も興味深い概念の一つである。アップスピン電子の集団が運動量 $+k$ を持ち、同数のダウンスピン電子の集団が $-k$ の運動量を持つとき電流は流れない。しかし $-k$ 方向に運動するダウンスピンの流れは $+k$ 方向に運動するアップスピンの流れに相当しスピンの流れが残る。この状態を純スピン流とよぶ。またスピン流も電流も流れるときスピン偏極電流と呼ぶ。非占有状態にスピン偏極バンドがある場合、そのバンドに光励起させることにより、スピン流を創り出すことができる。

スピン偏極電子バンドの構造がわかれば、それに基づいて励起光の波長、偏光状態を選択することで光励起スピン流を操作できる。光によるスピン流の生成・制御は非磁性物質のみでスピン流デバイスを構成できるという特徴や、高速応答性も魅力的である。そのため「オプト・スピントロニクス」はスピントロニクスの中でも重要なブランチの一つである。

スピン流は専ら逆スピンホール効果による電流・電圧測定により評価されてきた[5]。光励起スピン流においても試料の電子バンドに基づいた議論はあるが、その過程で光励起電子のスピンや運動量は測定されていない。結果として光励起スピン流に関する微視的な理解は進んでいない。理解を進めるためには、スピン偏極バンド構造、占有・非占有準位間の光吸収断面積、励起電子の緩和ダイナミクスを知る必要がある。

### 2. 研究の目的

上記 3 つの必須情報を調べる上で角度分解二光子光電子分光は、最も適した分光法である。二光子光電子分光は第一の光子で非占有バンドに励起した電子を第二の光子で真空中に放出させることで、非占有バンドのエネルギー分散関係を決定する。子分光および走査型トンネル顕微鏡を主たる分析手法とし、光励起スピン流の性質、スピン軌道相互作用に由来する非占有準位におけるスピン分裂バンドと表面ポテンシャル分布・原子配列との関係を明らかにすることである。

### 3. 研究の方法

Ir(111) 基板上的のエピタキシャル単層グラフェン(以下 Graphene/Ir(111) とする)に角度分解二光子光電子分光を適用し、非占有状態のスピン分裂バンドを観測した。理論面ではエムベディッド・グリーン関数法を発展させコーディングを進めた。主にはスピン軌道相互作用を考慮することを可能にし、さらにモアレ系を含む比較的大きなユニットセルでも半無限固体結晶表面の電子バンド構造を計算可能にすることを目標とした。

### 4. 研究成果

#### (1) 光励起純スピン流の分光学的測定

図1にグラフェン/Ir(111)表面の角度分解二光子光電子分光スペクトルの結果を示す。第一次鏡像電荷状態のバンド構造に由来した分散構造を示している。四箇所強度が高い領域が見られる ( $k_{\parallel} \sim \pm 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ 、および  $k_{\parallel} \sim \pm 0.15 \text{ \AA}^{-1}$ )。

二光子励起過程を考慮することで、 $k_{\parallel}$ の絶対値が同じ領域はその符号でスピンの向きが反転していること、 $k_{\parallel} \sim 0.1, 0.15 \text{ \AA}^{-1}$ とでスピンの向きが反転している事が分かった。この結果は光励起電子をスピン流分光的に観測できたということを示している。具体的には、

$$j_s = s \int (n_{\uparrow} + n_{\downarrow}) \frac{\hbar k_{\parallel}}{m} dk_{\parallel}$$

と現すことができる。

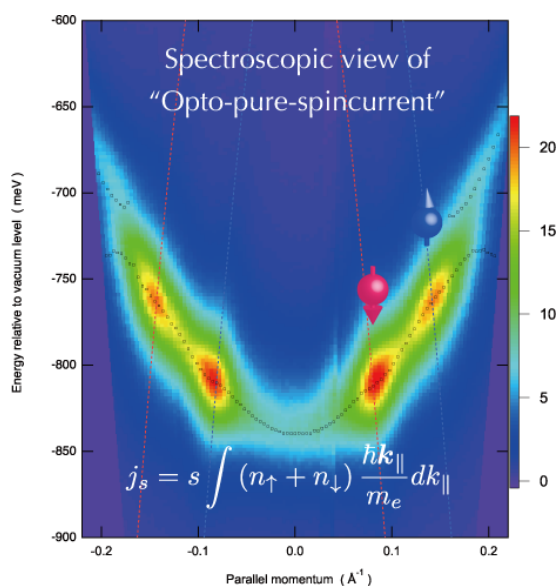


図1: Graphene/Ir(111)表面における第一次鏡像電荷状態バンド

## (2) 光励起スピン偏極電流の分光学的測定と制御

図2に鏡像電荷バンドの励起偏光依存性を示す。上図が右円偏光、中央が直線偏光、下図が左円偏光励起の結果である。直線偏光の場合、運動量の正負で強度に違いは見られない。一方円偏光の場合そのヘリシティに応じ強度が運動量の正負で逆転することが分かる。図2右に示すようにその強度は、円偏子の偏極度に応じて変化することが分かる。

この結果は、円偏光励起によって、スピン偏極電流が生じていることを意味しており、非接触無印加バイアスでスピン偏極電流を創りだすことができることを示している。

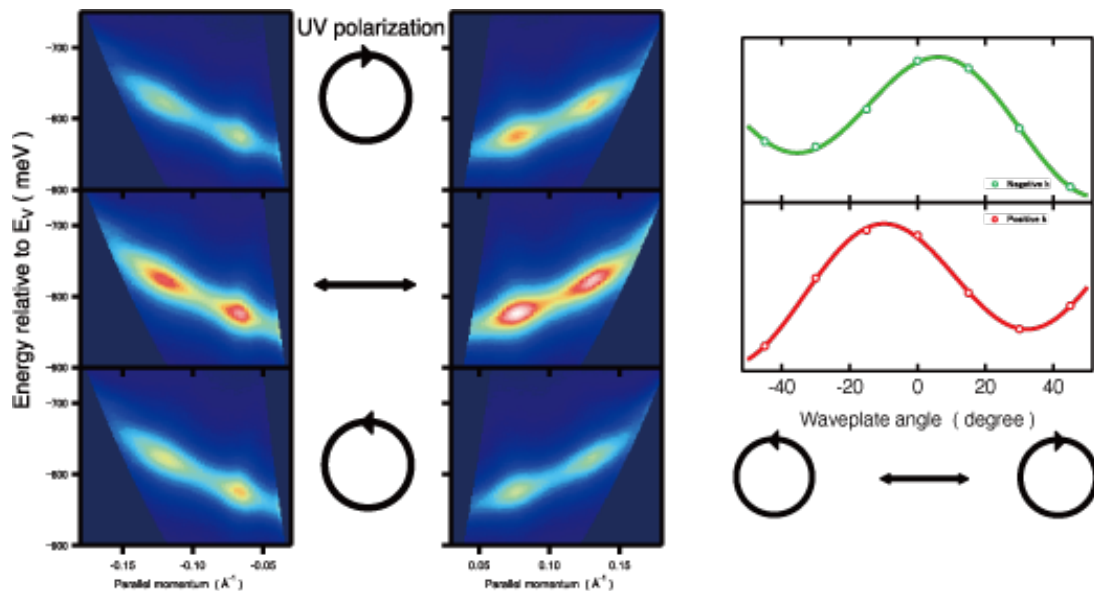


図2：(左)Graphene/Ir(111)表面における鏡像電荷バンドの励起偏光の違いによる強度変化。

(右)  $k_{\parallel} \sim \pm 0.1 \text{ \AA}^{-1}$  領域における二光子光電子強度の波長板角度依存性。

## (3) 高次鏡像電荷状態におけるスピン軌道相互作用の逆転現象の発見

図3にGraphene/Ir(111)の高次数鏡像電荷バンドを示す。少なくとも  $n=4$  の状態までスペクトル分解して観測されていることがわかる。

図中実線はピーク位置を意味している。鏡像電荷は表面並行方向には自由電子的に振る舞う事がよく知られており、結果として、その分散関係は二次関数で完全に表現できる。一方本結果から、これらの高次の鏡像電荷状態の分散関係を求めることができるが、その分散関係は鏡像電荷の特長として知られる二次関数からわずかにずれている。詳細な解析から、このずれ(理想的な2次関数からの)は、 $n=1$  と  $n \geq 2$  とで、異なっていることが分かった。つまり高次鏡像電荷は最低次の鏡像電荷状態とは一部異なる特徴を有していることを意味している。我々はこれを最低次とそれ以外とでスピン軌道相互作用が異なることに由来すると結論づけた。具体的にはラシュバ・ハミルトニアン

$$H_R = \alpha(\sigma \times p) \cdot \hat{z}$$

における、ラシュバパラメータ $\alpha$ の符号が $n=1$ とそれ以外で反転していることを意味している。この符号反転の期限はまだ明らかではないが、非常に興味深い現象であり、固体表面を利用した新たなスピン制御の展開につながる結果と考えている。

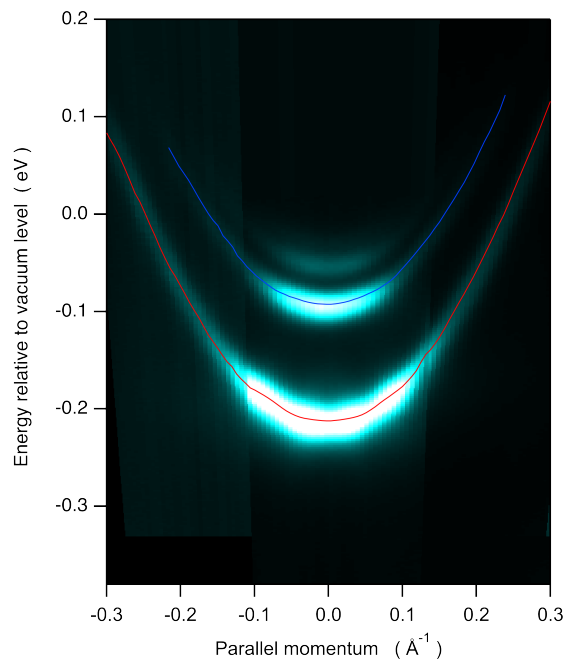


図3：Graphene/Ir(111)表面の高次 ( $n=2, 3, 4$ ) の鏡像電荷状態バンド

#### (4) モアレ、スピン軌道相互作用を考慮した半無限表面の第一原理計算

図4に Graphene/Ir(111)の $\pi$ および $\pi^*$ バンドのエネルギー分散関係を第一原理密度汎関数計算によって調べた。グラフェンの(10×10)個の単位胞とIr(111)の(9×9)個の単位胞が一致する現実的な表面構造を採用している点が大きな特長である。4つのIr層を含むスラブモデルを用いて表面形状を決定し、最適化された構造を後続の表面埋め込みグリーン関数計算の入力として使用した。半無限大の計算を利用して、 $\pi$ バンドとそのレプリカが交差する部分のミニエネルギーギャップ、 $\pi$ バンドと $\pi^*$ バンドのラッシュバ型スピン分裂、さらにはバルクのIrバンドのエネルギー連続体との相互作用によって生じる両バンドのエネルギー幅について議論した。

これまで第一原理計算を用いたバンド構造の議論はスラブ構造による結果に基づいたものが殆どであり、実際に測定たいしょうとしている半無限系を考慮した計算は世界的に見てもあまり例がなく、本研究のようにモアレ構造を取りうるような大きなユニットセルを持つ系での計算は初めてである。

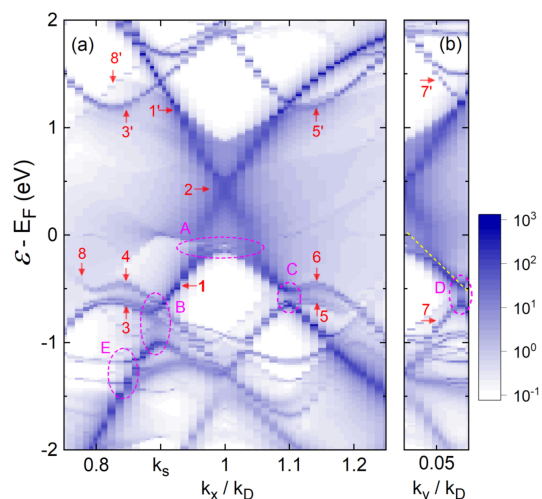


図4：モアレ構造を考慮した Graphene/Ir(111) の半無限固体表面のバンド計算。モアレ構造を考慮した表面原子層はスラブ構造を仮定し構造最適化をおこない、その結果を用いて半無限固体表面の計算を行っている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Lin Chun-Liang, Kawakami Naoya, Arafune Ryuichi, Minamitani Emi, Takagi Noriaki	4. 巻 32
2. 論文標題 Scanning tunneling spectroscopy studies of topological materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 243001 ~ 243001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab777d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sumi Naoya, Yamada Yoichi, Sasaki Masahiro, Arafune Ryuichi, Takagi Noriaki, Yoshizawa Shunsuke, Uchihashi Takashi	4. 巻 123
2. 論文標題 Unsubstituted and Fluorinated Copper Phthalocyanine Overlayers on Si(111)-(7 × 3)-In Surface: Adsorption Geometry, Charge Polarization, and Effects on Superconductivity	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 8951 ~ 8958
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b12424	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ni Zeyuan, Minamitani Emi, Kawahara Kazuaki, Arafune Ryuichi, Lin Chun-Liang, Takagi Noriaki, Watanabe Satoshi	4. 巻 124
2. 論文標題 Mechanically Tunable Spontaneous Vertical Charge Redistribution in Few-Layer WTe2	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 2008 ~ 2012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b10423	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Arafune Ryuichi, Takagi Noriaki, Ishida Hiroshi	4. 巻 93
2. 論文標題 Spin-orbit interaction in unoccupied surface states	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Progress in Surface Science	6. 最初と最後の頁 177 ~ 188
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.progsurf.2018.08.001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Lin Chun-Liang, Arafune Ryuichi, Minamitani Emi, Kawai Maki, Takagi Noriaki	4. 巻 30
2. 論文標題 Quasiparticle scattering in type-II Weyl semimetal MoTe2	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 105703 ~ 105703
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/aaab95	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Minamitani Emi, Takagi Noriaki, Arafune Ryuichi, Frederiksen Thomas, Komeda Tadahiro, Ueba Hiromu, Watanabe Satoshi	4. 巻 93
2. 論文標題 Inelastic electron tunneling spectroscopy by STM of phonons at solid surfaces and interfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Progress in Surface Science	6. 最初と最後の頁 131 ~ 145
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.progsurf.2018.09.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Trung Nguyen Tat, Hossain Mohammad Ikram, Alam Md Iftekharul, Ando Atsushi, Kitakami Osamu, Kikuchi Nobuaki, Takaoka Tsuyoshi, Sainoo Yasuyuki, Arafune Ryuichi, Komeda Tadahiro	4. 巻 5
2. 論文標題 In Situ Study of Molecular Doping of Chlorine on MoS2 Field Effect Transistor Device in Ultrahigh Vacuum Conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 28108 ~ 28115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.0c03741	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hou Jie, Wang Yu, Eguchi Keitaro, Nanjo Chihiro, Takaoka Tsuyoshi, Sainoo Yasuyuki, Arafune Ryuichi, Awaga Kunio, Komeda Tadahiro	4. 巻 3
2. 論文標題 Enhanced magnetic spin-spin interactions observed between porphyrazine derivatives on Au(111)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Chemistry	6. 最初と最後の頁 8951~8958
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42004-020-0282-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 荒船竜一
2. 発表標題 高分解能二光子光電子分光を用いた表面研究
3. 学会等名 第41回日本レーザー学会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 荒船竜一
2. 発表標題 Spectroscopic Investigation of Opto-spincurrent Control
3. 学会等名 Ultrafast surface dynamics（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Arafune
2. 発表標題 Spectroscopic Demonstration of Opto-spincurrent Control: High resolution two photon photoemission
3. 学会等名 The 3rd International Conference on Emerging Advanced Nanomaterials（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 R. Arafune
2. 発表標題 Band splitting due to spin orbit interaction in image potential states
3. 学会等名 International Symposium on Spectroscopy and Dynamics at Surface and Interface（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒船 竜一
2. 発表標題 鏡像準位のスピントクスチャと表面スピン流の光制御
3. 学会等名 極限コヒーレント光科学セミナー（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒船 竜一
2. 発表標題 非占有状態におけるラシュバ分裂
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	高木 紀明  (TAKAGI Noriaki)  (50252416)	京都大学・人間・環境学研究科・教授   (14301)	
研究分担者	石田 浩  (ISHIDA Hiroshi)  (60184537)	日本大学・文理学部・教授   (32665)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件



8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------