

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01752

研究課題名(和文) 表面終端により異なるトポロジカル表面状態とスピン流ダイナミクス

研究課題名(英文) topological surface state and spin current dynamics depend on surface terminations

研究代表者

福本 恵紀 (Fukamoto, Keiki)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・特任准教授

研究者番号：20443559

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：ディラック表面状態(Dirac surface state:DSS)を持つトポロジカル絶縁体(TI)は、スピントロニクスや熱電デバイスへの応用が期待されている。その性能は、DSSを利用する電子ダイナミクスにより決定される。本研究では、フェムト秒レーザーと光電子顕微鏡を組み合わせた手法を利用して、DSSがマイクロメートルスケールで不均一に現れ、電子ダイナミクスが異なることを発見した。また、スピン流観測のための装置立ち上げも進んでおり、今後は、スピン分解能を追加した研究を推進する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トポロジカル絶縁体は、ディラック表面状態をもつ量子物質として、スピントロニクスや熱電材料への応用が期待されている。本研究では、フェムト秒レーザーを光源とする光電子顕微鏡を利用して、3次元トポロジカル絶縁体の表面は、表面終端する元素の種類によってマイクロメートルスケールのドメインを形成していることを明らかにした。また、これにより、ディラック表面状態に依存する電子ダイナミクスが異なる。一般的に、ディラック表面状態の特性解明に利用される角度分解光電子法が利用される。しかし、空間分解能を持たないためこれらの成果は観測されない。学術的にも社会的にも意義のある成果と言える。

研究成果の概要(英文)：Topological insulator (TI) with Dirac surface states (DSS) are expected to be applied to spintronics and thermoelectric devices. Their performance is determined by the electron dynamics that utilize the DSS. In this study, we found that the DSS appears non-uniformly on the micrometer scale, resulting in different electron dynamics, by using femtosecond photoemission electron microscopy (fs-PEEM). The results are supported by atomic force microscopy experiments and also the first principle calculations. Our goal is to observe spin current, for that the fs-PEEM equipment is updated.

研究分野：光電子分光

キーワード：トポロジカル絶縁体 ディラック表面状態 光電子分光 超高速現象

1. 研究開始当初の背景

3次元トポロジカル絶縁体(Three dimensional topological insulator: 3D-TI)は、バルクがバンドギャップをもつ絶縁体であり、表面はスピン-軌道相互作用によりギャップレスな状態密度をもつ金属となる。これは線形分散であり、その交点(ディラック点)では電子有効質量がゼロになるため電子易動度は非常に大きい。さらに、この表面状態はスピン偏極しており、電流が流れるとスピン流(スピン偏極電流)が生成され、電流の向きと垂直方向に流れる。これらがトポロジカル表面状態(Topological surface state: TSS)の特徴である。電子の電荷でなくスピンを利用するスピントロニクスデバイスは、従来の半導体デバイスと比較して高速化・小型化・省エネ化が期待される。そこで、スピン流の注入(生成)、検出、さらには、制御することがデバイス開発へ向けた重要なテーマとなっている。スピン流の寿命、拡散長、拡散係数、易動度などの基礎物性が評価できるスピン流ダイナミクスのイメージング手法はデバイス開発に重要な知見を与える。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピントロニクス素子の情報媒体となるスピン流の空間的ダイナミクスを可視化し、スピン流の基礎物性、寿命、拡散長、拡散係数、移動度を計測することである。スピン流のダイナミクス観測において、以下4点の課題が挙げられる。

1. 3D-TIにおけるTSSの存在は、2008年に、Hsiehらにより角度分解光電子分光計測(Angle Resolved PhotoEmission Spectroscopy: ARPES)により実験的に確認され、2009年には、スピン分解能を加えたSpin-ARPESによりTSSのヘリカルスピン偏極が観測された。その後、超短パルスレーザーを利用するポンプ-プローブ法(Time-Spin-ARPES)によって、TSSの時間変化の観測が報告されている。しかし、これらのARPES法は空間的な情報を持たない。

2. 2014年以降、3D-TI表面末端の原子配列により、TSSが異なることを示す第一原理計算による結果が多数報告されており、表面の不純物、または、吸着分子により大きく異なることも分かってきた。ARPES測定のおくは、剥離した3D-TI単結晶表面を観測しているが、観測表面全てが同じ原子配列であるとは考えにくい。

3. 電子移動度は、ホール効果測定により導出された電荷密度から推測されるが、バルクが完全な絶縁体でないため、厚さに依存する易動度からTSSの寄与を抽出したり、ドーピングによりバルク伝導度を低下させるなどの工夫が必要であり、明確にバルクとTSSを分離して易動度を観測するのは困難である。

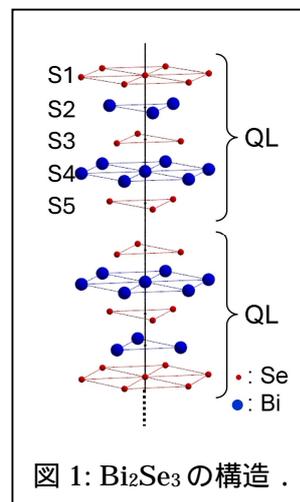
4. 最後に、スピン流は、逆スピンホール効果により電気的に検出される例が多い。TSSが空間的に不均一であれば、移動度、および、スピン流特性も不均一であると考えられる。

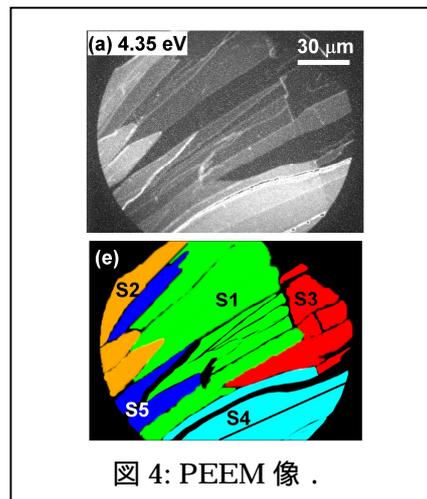
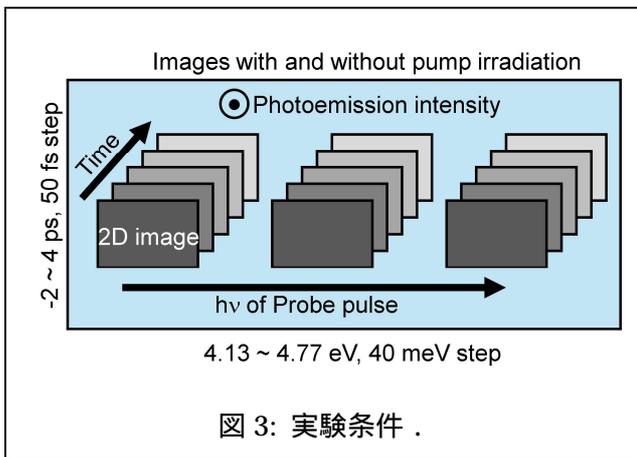
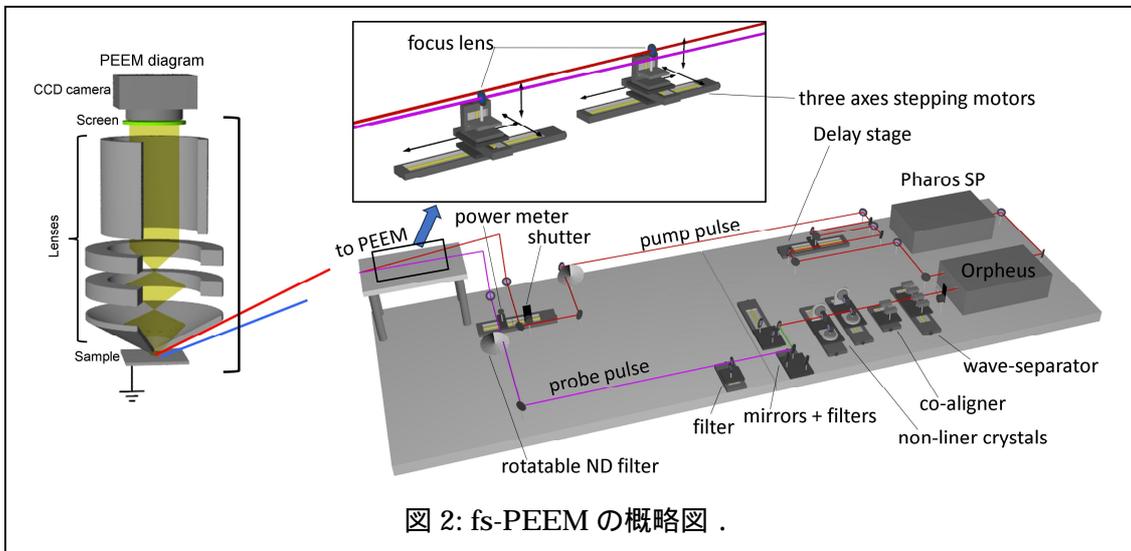
これら課題を解決するため、これまでに研究代表者の開発してきた、フェムト秒パルスレーザーを光源とする光電子顕微鏡装置(fs-PEEM)をさらに発展させる。

課題1,2,3を解決するため、代表的な3D-TIである Bi_2Se_3 単結晶を試料とし、剥離表面の電子ダイナミクス観測から開始した。 Bi_2Se_3 は、図1に示すように、3層のSeシートと2層のBiシートが共有結合して、ひとつのquintuple layer(QL)を形成する。QL同士は、van der Waals力で弱く結合している。機械的な剥離では、QL間が剥離され、図1のS1表面が最表面に現れると予想される。しかし、これまでの結果から5つの表面がランダムに発現することを示唆する結果が得られており、異なる表面末端で電子ダイナミクスが異なることの観測から開始した。

3. 研究の方法

fs-PEEMの概略図を図2に示す。フェムト秒パルスレーザーを利用するポンプ-プローブ法において、100 fsの時間分解能、フェムト秒レーザーの光子エネルギーを紫外光域で可変とすることで、そのエネルギー幅に相当する30 meVのエネルギー分解能、光電子顕微鏡を検出器とすることで、約100 nmの空間分解能を同時に達成できる。図2に示した条件で、PEEM画像を取得し



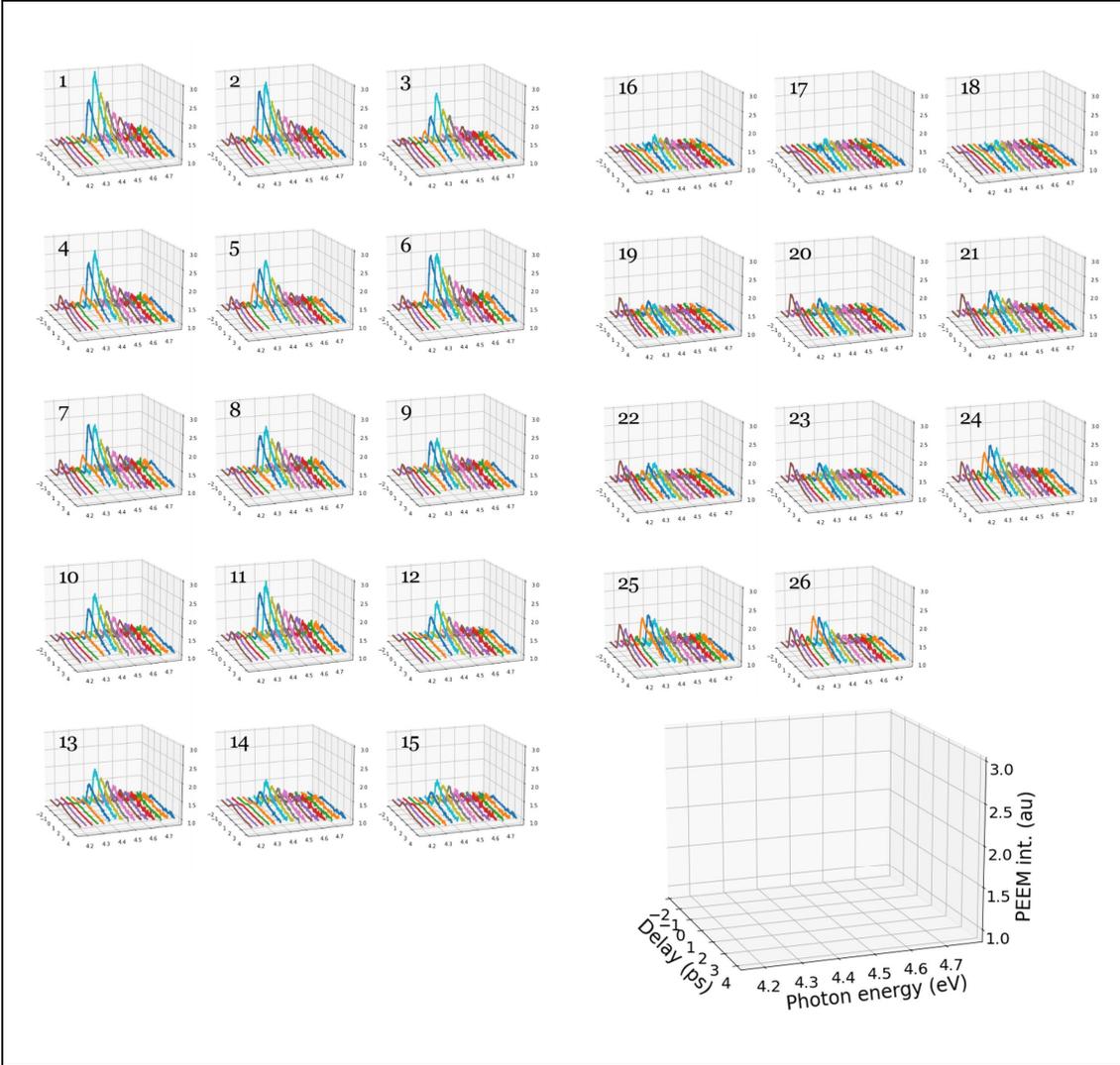


た .

4 . 研究成果

光子エネルギーが 4.35 eV の時の PEEM 像を図 4(a)に表示する . 光電子の放出量が局所的に異なり , ドメインが確認できる . fs-PEEM で得られたドメインごとの光電子スペクトルと電子ダイナミクス , また , 第一原理計算の結果を参照することで , 図 4(b)のように 26 の領域に分別できた . 図 1 の S1 から S5 に対応する領域を色別けしている . それぞれのドメインにおいて , 時間とプローブ光の光子エネルギーに依存する光電子放出量を観測した結果を図 5 に示す . 第一原理計算で得られたバンド構造を参照すると , 1 の領域は , 光子エネルギーが 4.35 eV の時の電子ダイナミクス (水色プロット) が大きな強度を示す . これは , ディラック点における電子ダイナミクスを表す . また , 2 の領域では , 4 eV の時の茶色のプロットに電子ダイナミクスが観測されている . これは , バルク伝導帯の電子密度の時間変化を表す . このように , 時間・空間・エネルギー分解で電子ダイナミクスを観測することで , 表面を終端する元素を特定し , 電子ダイナミクスの差異が観測できる . この成果は , Scientific Reports(2024)に掲載された .

今後 , スピン流観測へ発展させるため , レーザーを円偏光にするシステムが完成している . これを利用して , 時間・空間・エネルギー分解能に , スピン分解能も加えた計測を進める .



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ryoma Hayakawa/Soichiro Takeiri/Yoichi Yamada/Yutaka Wakayama/Keiki Fukumoto	4. 巻 34
2. 論文標題 Carrier Transport Mechanism in Organic Antiambipolar Transistors Unveiled by Operando Photoemission Electron Microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2201277-2201285
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adma.202201277	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 Keiki Fukumoto/Shin-ya Koshihara	4. 巻 2022
2. 論文標題 Observation of photo-excited carrier dynamics in semiconductors with time, space, and energy resolutions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 JSAP Review	6. 最初と最後の頁 220406-220410
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11470/jsaprev.220406	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yusuke Fukami/Masato Iwasawa/Masahiro Sasaki/Takuya Hosokai/Hajime Nakanotani/Chi-haya Adachi/Keiki Fukumoto/Yoichi Yamada	4. 巻 9
2. 論文標題 Direct Observation of Photoexcited Electron Dynamics in Organic Solids Exhibiting Thermally Activated Delayed Fluorescence via Time-resolved Photoelectron mission Microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2100619-2100624
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adom.202100619	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 Fukumoto Keiki, Lee Seunghee, Adachi Shin-ichi, Suzuki Yuta, Kusakabe Koichi, Yamamoto Rikuto, Kitatani Motoharu, Ishida Kunio, Nakagawa Yoshinori, Merkel Michael, Shiga Daisuke, Kumigashira Hiroshi	4. 巻 14
2. 論文標題 Surface terminations control charge transfer from bulk to surface states in topological insulators	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 10537:10545
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-024-61172-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Keiki Fukumoto
2. 発表標題 Imaging Electron Motion in Organic Semiconductors using Femtosecond Photoemission Electron Microscopy
3. 学会等名 2022 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Keiki Fukumoto
2. 発表標題 Electron Transport at Organic Hetero-Interfaces using Femtosecond Photoemission Electron Microscopy
3. 学会等名 14th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福本恵紀
2. 発表標題 時間・空間・エネルギー分解による有機トランジスタのオペランド観測
3. 学会等名 TIA 光・量子計測マネージメントグループ研究会「先端半導体デバイスと計測技術」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大島一真, 久保敦, 福本恵紀
2. 発表標題 フェムト秒レーザー励起PEEMによるAuプラズモニック結晶の観察
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 草部浩一, 山本陸人, 福本恵紀, 石田邦夫
2. 発表標題 光電子放出量定量評価のためのBi ₂ Se ₃ 表面計算
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大内涼雅, 草部浩一, 北谷基治, 福本恵紀, 石田邦夫
2. 発表標題 n-GaAs表面における光励起キャリアの第一原理計算理論
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 清水好葉, 竹入聡一郎, 早川竜馬, 山田洋一, 若山裕, 福本恵紀
2. 発表標題 オペランド光電子顕微鏡観測による有機アンチ・アンバイポーラトランジスタのキャリア伝導機構評価
3. 学会等名 2022年第70回応用物理学会春季学術講演会, 上智大学
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 有富 洸人, 久保 敦, 福本 恵紀
2. 発表標題 単一指向性・波長依存性を有する伝搬型表面プラズモンビームの生成
3. 学会等名 2022年第70回応用物理学会春季学術講演会, 上智大学
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福本 恵紀
2. 発表標題 時間分解光電子顕微鏡による有機半導体中のキャリアダイナミクス観測
3. 学会等名 M&BE新分野開拓研究会2021「有機材料・デバイス中のダイナミクス を探る計測技術の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 竹入 聡一郎, 早川 竜馬, 山田 洋一, 若山 裕, 福本 恵紀
2. 発表標題 オペランド光電子顕微鏡観測による有機アンチ・アンバイポーラトランジスタのキャリア伝導機構評価
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学 相模原キャンパス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Keiki Fukumoto
2. 発表標題 Operando observation of organic transistors using femtosecond photoemission electron microscopy
3. 学会等名 Photoemission Workshop at Institute for Molecular Science (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Keiki Fukumoto
2. 発表標題 Imaging Carrier Dynamics using Femtosecond Photoemission Electron Microscopy
3. 学会等名 36th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 フォトカソード及びその評価方法	発明者 福本恵紀 久保敦 足立 伸一	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-086333	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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	草部 浩一 (Kusakabe Kouicih) (10262164)	兵庫県立大学・理学研究科・教授 (24506)	
研究分担者	石田 邦夫 (Ishida Kunio) (40417100)	宇都宮大学・工学部・教授 (12201)	
研究分担者	奥田 太一 (Okuda Taichi) (80313120)	広島大学・放射光科学研究センター・教授 (15401)	

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
---------	---------