

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287061

研究課題名(和文) スピン分解STMとARPESによる表面スピンナノ物性の研究

研究課題名(英文) Spin-resolved STM and ARPES studies of spin-nano-physics at surfaces

研究代表者

小森 文夫 (KOMORI, Fumio)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：60170388

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：波数空間のスピン偏極電子状態分布を測定するために、世界最高性能のエネルギー分解能1.7meVを有するレーザー光を使用した3次元方向スピン角度分解光電子分光装置を完成した。これと既存のスピン分解走査トンネル顕微鏡表面を用いた表面局所電子磁気構造の直接観察を併用して、(1)スピン偏極したトポロジカル物質の表面状態の分布の解明、(2)スピン偏極電子状態からの光電子のスピン制御法の確立、(3)窒化鉄原子層の波動関数の性質と磁性の解明、および(4)鉄超薄膜とその上のマンガン薄膜の成長と磁性の解明、を行った。

研究成果の概要(英文)：We have constructed a spin- and angle-resolved photoemission spectrometer using laser light with an energy resolution of 1.7 meV, which is the world best. The spin direction is three-dimensionally detected. By using the constructed spectrometer and the existing spin-resolved scanning tunneling microscopes for the atomic structure imaging and local electron tunneling spectroscopy, we have achieved the following results on the spin-related phenomena at surfaces. (1) spin-polarized surface electronic band structures of the spin-split bands due to strong spin-orbit interaction, of topological insulators and of Weill semimetals, (2) Control of photoelectron spin direction from spin-polarized surface states by linearly polarized laser light. (3) Local wave functions and magnetism of a few atomic layers of iron nitrides, and (4) Growth and magnetism of fcc iron films with a few atomic layer Mn films.

研究分野：表面ナノ構造科学・表面電子状態・表面磁性

キーワード：スピン分解 光電子分光 走査トンネル顕微鏡 トポロジカル表面 強磁性 原子層

1. 研究開始当初の背景

ナノスケールのスピン系の研究として、スピン偏極が実空間あるいは波数空間で変化する系が注目を集めてきた。従来から行われてきた研究は、強磁性体・反強磁性体やその薄膜の表面研究である。原子スケールのスピン構造の顕微鏡観察とマクロな磁性測定の組み合わせから、興味深い結果が得られてきた。しかし、これらの系では、マクロな測定結果と顕微鏡観察の結果は必ずしも精密に行われておらず、マクロに観察される磁性とミクロな構造との相関は明らかになっていない場合が多かった。さらに、近年、重元素を含む層状物質や空間反転対称性が破れているバルク結晶表面のスピン偏極表面状態の波数依存性に興味を持たれてきた。表面では空間反転対称性が破れた異なる対称性の界面であるために、強いスピン軌道相互作用のある場合に、通常バルク物質にはない新奇なスピン状態が期待できるからである。例えば、3次元トポロジカル絶縁体の表面では、強いスピン軌道相互作用が波数空間でヘリカルなスピン偏極表面電子状態を作り出している。また、実空間においても、スピン軌道相互作用やジャロシンスキー-守谷相互作用による磁気渦の存在が明らかになり、化合物や合金での表面スピン状態の局所構造が研究され始めていた。しかしながら、それらの系の局所的なスピン物性や波数空間におけるスピン分布に関する実験的研究はまだ始まったばかりであった。

2. 研究の目的

実空間のスピン偏極電子状態分布を測定する手法として、スピン分解走査トンネル顕微鏡(SR-STM)を用いた表面局所磁気構造の直接観察と波数空間のスピン偏極電子状態分布を測定する真空紫外光励起のスピン・時間/角度分解光電子分光手法を併用し、以下の項目の研究を行う。

(1)レーザー光を使用した高性能の3次元方向スピン角度分解光電子分光(SARPES)装置を建設し、さらに、それを用いた時間分解SARPESを開発する。目標とするエネルギー分解能は2meVである。

(2)高分解能のスピン分解走査トンネル測定ができるようにSR-STMの高度化を行う。

(3)強いスピン軌道相互作用が新規なスピン偏極表面電子状態を作り出している3次元トポロジカル物質の表面状態、重金属が吸着した半導体表面のスピン依存表面バンド構造を明らかにする。

(4)清浄で欠陥の少ない化合物・合金磁性体表面と原子層を作製する方法を開発し、実空間において原子スケールで変調する磁性の発現機構を明らかにする。

3. 研究の方法

(1)現有の半球型電子分光器、レーザーと超高真空装置および購入する超高真空部品・光

学部品を用いて、スピン向きを3次元で決定できる高性能のSARPES装置を建設する。高エネルギー分解能を達成し、使いやすい装置にするために設計を工夫する。

(2)現有のSTMおよび購入する超高真空部品を用いて、高精度のSR-STM測定ができるようにする。多様な試料に対応でき、使いやすい装置にするために、試料表面処理や磁性探針作製を工夫する。

(3)3次元トポロジカル絶縁体などスピン軌道相互作用によって表面にスピン偏極した金属バンドがある系を対象に、表面スピン偏極バンドのスピン向きを波数空間でマッピングし、電子状態を解明する。

(4)金属基板上に、数原子層までに至る強磁性金属・反強磁性金属の薄膜と化合物を作製し、その構造と局所電子スピン状態をSR-STM測定する。また、同じ試料に対して、軌道放射光を用いた軟X線磁気円二色性分光を行い、空間平均された磁性を調べる。

4. 研究成果

(1)レーザーSARPES装置の建設

初年度には装置の建設を行った。(雑誌論文7、図1)この装置では、スピン分解モードで、エネルギー分解能1.7 meVを達成し、世界一の高分解能を実現した。

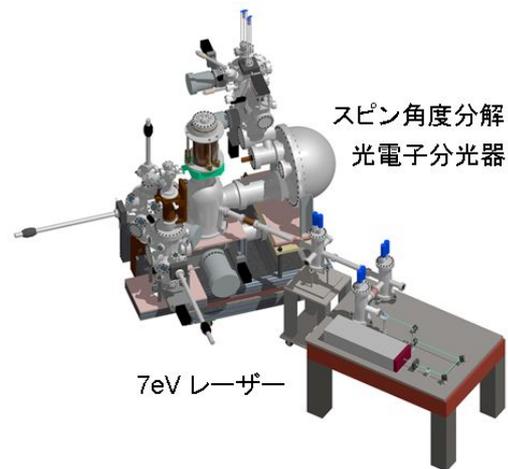


図1 完成した3次元方向スピン角度分解光電子分光装置の模式図。7eVのレーザー光で励起された光電子を、半球アナライザーを用いて角度とエネルギー分析し、更に2台の超低速電子回折スピン分析器により、光電子のスピン向きを3次元的に決定できる。試料準備室があり、各種清浄表面を超高真空中で作製し、そのままスピン角度分解光電子分光測定ができる。

(2)励起状態電子スピン制御原理の解明

完成したレーザーSARPES装置を用いて、直線偏光光によって励起された電子のスピンを、自在に制御する原理を解明した。(雑誌論文2、3、図2)スピン軌道相互作用の強い系の電子では、スピン方向と軌道波動関数の対称性とは一定の関係がある。特に、鏡

映対称面上の表面固有状態では、軌道波動関数の鏡映対称性とスピン向きは1対1に対応している。これを利用すると、直線偏光光による電子励起過程において、終状態電子のスピン向きを、偏光方向を回転させることによって制御できることを示した。

具体的には、スピンヘリカルなバンドが存在する3次元トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 の表面状態(雑誌論文5)、強いスピン軌道相互作用によってスピン偏極しているBiの表面(雑誌論文2)、Biが吸着したAgおよびCuの表面状態(雑誌論文4)で研究を行った。これらの鏡映対称面上の表面固有電子状態は、スピンが反対向きで軌道対称性が偶対称または奇対称の波動関数で構成されている。そこで、電場が鏡映対称面に平行または垂直な直線偏光で励起した時、各々偶および奇対称波動関数から選択的に電子が励起される。これに対応して、光電子のスピン向きが正反対となる。さらに、入射光の電場が鏡映対称面から角度傾いた場合には、の関数として、スピンの向きを決める式を導出した。上記の3つの系でこの結果を検証し、入射光の電場方向をパラメータとして、光電子のスピン向きを3次的に制御できることを実証した。

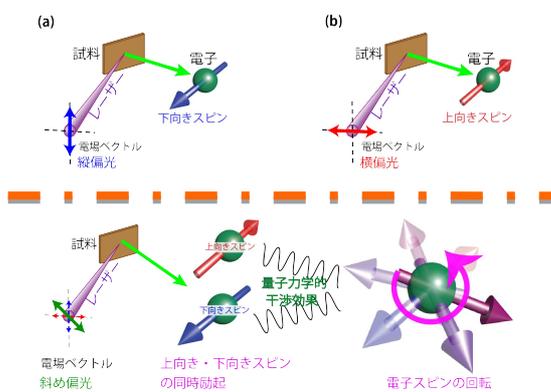


図2 表面固有電子状態の軌道成分が偶奇両方の対称性をもつ波動関数で構成され、偶奇性とスピンの向きが固定している鏡映対称面内を考える。

上段：基板の鏡映対称面内での光電子放出過程において、直線偏光励起光の電場ベクトルが鏡映対称面に垂直な(a)場合と、平行な(b)場合で、放出される光電子のスピン向きは正反対になる。

下段：上段とは異なり、直線偏光励起光の電場ベクトルの向きが鏡映対称面とは任意の角度をもつ場合、上下向きスピンをもつ電子が可干渉的に励起され、光電子のスピン向きは角度に依存して変化する。

(3)表面スピン偏極バンドの研究

スピン偏極表面バンドをもつBi(雑誌論文3, 7)とワイル半金属TaAs表面(雑誌論文8)において、SARPES測定を行い、スピン偏極方向と偏極度の波数依存性を明らかにし

た。後者の系は、計画を申請した後でスピン偏極表面バンドに関する予測がなされ、海外の研究者が持ち込んだ試料を世界に先駆けて共同で測定したものである。

(4)窒化鉄数原子層膜の成長、構造、電子状態および磁性

単原子層

強磁性を示す単原子層化合物磁性体として、 Fe_2N に着目した研究を行った。この薄膜がCu(001)基板上に成長できることが知られていたが、原子構造は確定していなかった。本研究では、極低温STMを用いた探針-表面距離に依存した原子像の変化を観測した。(図3)この像の変化が、トンネル過程における鉄原子の軌道選択性の違いに起因していることを明らかにした。(雑誌論文9)

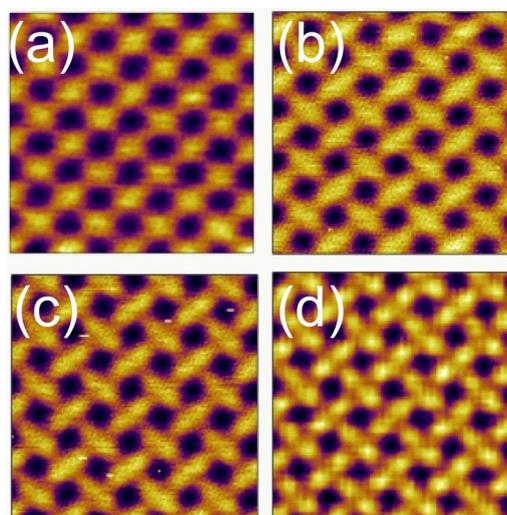


図3 原子分解能STM像の探針表面間距離依存性。(a)から(d)の順番で距離が短くなる。距離が長い場合には、波動関数が広がっている試料表面の4s軌道と探針との間の電子トンネルの確率が高い。そして、距離が短くなるにつれて、3d軌道からの寄与が大きくなる。その結果、(d)では3d電子が局在している鉄原子の位置が高く見え、(a)では鉄原子が存在しない場所が高くみえる。(b)と(c)はその移り変わりの途中の状況であり、楕円形の領域が高くみえる。

3原子層膜までの成長と磁性

単原子層は Fe_2N 組成の膜ができ、2層以上の膜では、 Fe_2N 組成の膜が成長することが知られていた。しかしながら、実験で報告された磁気モーメントは、理論的に予想されるものよりも小さかった。本研究では、STM観察を用いて、ほとんど欠陥のない単原子層と結晶性の良い3原子層を作製する方法を確立した。この方法で作製した薄膜では、期待された磁気モーメントが軟X線吸収円二色性分光(XMCD)測定により確認された。(雑誌論文1)さらに、点欠陥周囲の局所電子状態測定から、欠陥の影響で磁気モーメントが小さく

なることを明らかにした。このことは、原子層磁性体においては、マクロな試料評価法では定量的に同定できない欠陥の存在が、磁性に大きく影響することを意味する。

(5) fcc 鉄薄膜の安定化

銅基板上の fcc Fe 超薄膜はノンコリニア磁気構造をとると考えられ、その磁性に関する研究が長年行われてきた。しかし、膜厚が厚くなるとバルク bcc 構造へと構造相転移することに関連し、fcc 結晶格子には局所的な乱れが多く、fcc Fe 超薄膜本来の電子・磁気状態の評価が難しかった。そこで薄膜のステップ端からの格子緩和を利用して fcc 構造を安定化させる目的で、微傾斜 Cu(001) 基板上に Fe 超薄膜を成長させた。STM による原子分解能構造観察の結果から、ステップ密度の高い領域では Fe 超薄膜は格子緩和によって格子乱れのない fcc 構造を維持していることがわかった。一方、ステップ密度の低い領域では表面再配列構造や bcc 構造が現れ、一酸化炭素分子の選択的な吸着も観測された。(雑誌論文 6、図 4) この結果から、ステップ端からの fcc 鉄の格子緩和によって、エピタキシャル鉄超薄膜が安定することを実証した。

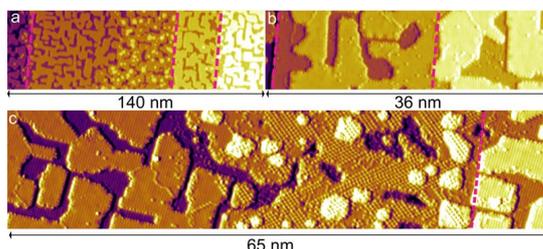


図 4 微傾斜 Cu(001) 面上に成長した鉄薄膜の STM 像。波線はステップの位置を表す。(a) は、3 つのステップを含む場所の STM 像。(b) は、狭いテラスにおける fcc 鉄の成長を表す像で、正方格子の原子像がみえている。(c) は、広いテラスにおいて、fcc 鉄とそれ以外の鉄薄膜の成長を示す像。図の左側は正方格子がみえるが、右側は歪んだ格子である。また、右側の表面の約 80% に一酸化炭素分子が吸着している。

(6) fcc 鉄薄膜上の Mn 薄膜成長と磁性

面直容易磁化を示す Cu(001) 基板上の強磁性 fcc Fe 薄膜上に反強磁性 Mn を蒸着し、その成長と磁性を調べた。Mn 蒸着後の STM 観察より、界面の Fe 原子と Mn 原子が混じり合って表面合金化し、さらに、その組成や構造は Mn 膜厚の増大に伴い変化していくことがわかった。また、Mn 膜が 3 原子層以上になると純粋な Mn 層が表面に現れる。対応する Fe の XMCD 測定により、電子・磁気状態を調べ、Mn 超薄膜の成長に伴い Fe 膜の面直磁気異方性は低下し、面内磁気異方性をもつ状態へとスピ再配列転移を起こすことがわかった。純粋な Mn 層が表面に現れる 3 原子層以上では、Fe 超薄膜の磁気特性の変化は無くなった

XMCD 測定および STM 観察の結果より、反強磁性/強磁性超薄膜ヘテロ構造の磁気特性は数原子層から構成される界面合金層によって決定づけられることが明らかになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 24 件)

T. Miyamachi(2 番目), F. Komori(10 番目) 他 8 名: Thickness-dependent electronic and magnetic properties of γ -Fe₄N atomic layers on Cu(001), Phys. Rev. B **95**, (2017) 印刷中, 査読有. <https://journals.aps.org/prb/accepted/c507d0e20f81c02ee9116ca4c208cec8af3a8c87d>.

K. Yaji(2 番目), F. Komori(4 番目) 他 2 名: Calculation of spin states of photoelectrons emitted from spin-polarized surface states of Bi(111) surfaces with a mirror symmetry, Phys. Rev. B **95** (2017) 205436, 1-9, 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.205436.

K. Yaji(1 番目), F. Komori(9 番目), S. Shin(10 番目) 他 7 名: Spin-dependent quantum interference in photoemission process from spin-orbit coupled states, Nat. Commun. **8** (2017) 14588, 1-6, 査読有. DOI: 10.1038/ncomms14588.

K. Yaji(3 番目), F. Komori(8 番目), S. Shin(9 番目) 他 6 名: Direct mapping of spin and orbital entangled wave functions under interband spin-orbit coupling of giant Rashba spin-split surface states, Phys. Rev. B **95**, (2017) 041111(R), 1-5, 査読有. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.041111.

K. Yaji(2 番目), F. Komori(9 番目), S. Shin(10 番目) 他 7 名: Coherent control over three-dimensional spin polarization for the spin-orbit coupled surface state of Bi₂Se₃, Phys. Rev. B **94** (2016) 165162, 1-5, 査読有. DOI: 10.1103/PhysRevB.94.165162.

T. Miyamachi(1 番目), F. Komori(8 番目) 他 6 名: Epitaxially stabilized iron thin films via effective strain relief from steps, Phys. Rev. B **94** (2016) 045439, 1-5, 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.045439.

K. Yaji(1 番目), F. Komori(10 番目), S. Shin(11 番目) 他 8 名: High-resolution three-dimensional spin- and angle-resolved photoelectron spectrometer using vacuum ultraviolet laser light, Rev. Sci. Instr. **87** (2016) 053111, 1-6, 査読有.

DOI: 10.1063/1.4948738.
S.-Y. Xu, K. Yaji(6 番目), F. Komori(22 番目), S. Shin(24 番目), 他 23 名: Spin Polarization and Texture of the Fermi Arcs in the Weyl Fermion Semimetal TaAs, Phys. Rev. Lett. **116** (2016) 096801, 1-7, 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.096801.
Y. Takahashi, T. Miyamachi(2 番目), F. Komori(6 番目): Orbital Selectivity in Scanning Tunneling Microscopy: Distance-Dependent Tunneling Process Observed in Iron Nitride, Phys. Rev. Lett. **116** (2016) 056802, 1-5, 査読有.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.056802.

[学会発表](計 9 9 件)

宮町俊生: Impact of atomic defects on the macro magnetic properties of monatomic-layer iron nitride, Symposium on Surface and Nano Science 2017, 14 Jan., 2017, Furano Prince Hotel (Furano, Hokkaido)

小森 文夫: Atomic-Layer Magnetic Nitrides: Structure, Electronic States and Magnetism, Int. Symp. on Dynamic Process of Chemical Reaction and Catalysis on Surfaces, 23 Dec., 2016, Xiamen (China)

小森 文夫: Spin-dependent quantum interference in photoemission process from spin-orbit coupled states, Int. Workshop on Advanced Materials and Nanotechnology 2016, 5 Nov., 2016, Hanoi (Vietnam)

宮町俊生: Influence of atomic-scale disorder on ferromagnetism of monatomic-layer iron nitride, ECOS32, 30 Aug. 2016, Grounoble (France)

矢治 光一郎: Development of high-resolution three-dimensional spin- and angle-resolved photoelectron spectroscopy apparatus using vacuum ultraviolet laser, VUVX2016, 5 July, 2016, Zurich (Switzerland)

小森 文夫: Surface electron scatterings of an intrinsic topological insulator, Int. Workshop on Quantum Engineering Design, 24 March, 2016, Osaka University (Suita, Osaka-fu)

小森 文夫: STM and STS study of the Mn layers on Fe/Cu(001), 23rd Int. Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 11 Dec., 2015, Hilton Niseko Village, (Niseko, Hokkaido)

宮町俊生: Inherent orbital-selective tunneling in a STM measurement, ICM20, 10 July, 2015, Barcelona (Spain)

小森 文夫: Surface electron scattering and dynamics in an intrinsic topological insulator, Low dimensional order mediated by interfaces, International Symposium on Condensed Matter Physics, 10 April, 2015, Hanover (Germany)

宮町俊生: Structural, electronic and magnetic properties of Fe thin film on Cu(001) revisited by atomically resolved observation, ISSS-7, Nov. 4, 2014, Kunibiki-Messe, (Matsue, Simane-ken)

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

ホームページ

<http://komori.issp.u-tokyo.ac.jp/>

プレスリリース

http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/issp_wms/DATA/OPTION/release20170224.pdf

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小森 文夫 (KOMORI, Fumio)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 60170388

(2) 研究分担者

宮町 俊生 (MIYAMACHI, Toshio)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 10437361

矢治 光一郎 (YAJI, Koichiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 50447447

(3) 連携研究者

辛 埴 (SHIN, Shik)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 00162785

(4) 研究協力者

小林 功佳 (KOBAYASHI, Katsuyoshi)

お茶の水女子大学・理学部・教授

エルンスト アーサー (ERNST, Arthur)

マックスプランク微細構造研究所・教授

黒田 健太 (KURODA, Kenta)

東京大学・物性研究所・助教

飯盛 拓嗣 (IIMORI, Takushi)

東京大学・物性研究所・技術職員

原沢 あゆみ (HARASAWA, Ayumi)

東京大学・物性研究所・技術職員