

平成 30 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K17675

研究課題名(和文) 時間分解及びスピン分解光電子分光による表面一次元金属電子のスピン物性研究

研究課題名(英文) Spin-polarized electronic states of one-dimensional metallic bands studied by time- and spin-resolved photoelectron spectroscopy

研究代表者

矢治 光一郎 (Yaji, Koichiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：50447447

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)：半導体基板上に重元素吸着することにより表面一次元原子鎖試料を作成し、時間・スピン・角度分解光電子分光(ARPES)を用いて、スピン軌道相互作用によりスピン分裂した表面一次元金属電子の特異な電子状態を解明することを目的として研究を行った。白金-ゲルマニウム、金-ゲルマニウムからなる表面一次元合金の研究では、そのフェルミ面とバンド構造を実験的に決定した。Bi(111)表面状態の研究では、レーザー光を用いた軌道選択スピン分解光電子分光を行い、表面電子のスピン軌道結合状態を明らかにした。さらに、レーザー光のパルス特性を利用した時間分解ARPESを行い、伝導帯へ励起された電子の緩和過程を解明した。

研究成果の概要(英文)：The electronic band structures of one-dimensional atomic chains grown on semiconductor substrates were investigated by time-, spin- and angle-resolved photoelectron spectroscopy (ARPES). In the studies of platinum- and gold-induced atomic nanowires formed on germanium (001) substrates, we have experimentally determined the electronic band structures and their Fermi surfaces. In the study of bismuth (111) surface, the spin-orbital entanglement of a surface state was observed by orbital-selective spin-resolved ARPES using a polarization-variable vacuum ultraviolet laser. In addition, a general description of the spin-orbital entanglement of the spin-polarized surface state was revealed. From the time-resolved ARPES using a pump-and-probe method, the large pump-and-probe response of the Bi(111) surface states was found and the decay process of the electrons excited into the conduction bands was clarified.

研究分野：固体電子物性

キーワード：表面金属電子 スピン軌道相互作用 スピン分解光電子分光 時間分解光電子分光

1. 研究開始当初の背景

空間反転対称性の破れによってスピン偏極した電子に関する研究が盛んに行われている。固体表面・界面における二次元電子系では、トポロジカル絶縁体表面やラシュバ型スピン分裂を示す表面などが知られており、強いスピン-軌道相互作用を示す重元素を含んだ表面を中心に研究が行われている。

一方、一次元電子系のスピン縮退が解けたときに、そのスピン構造がどうなっているかは重要な問題である。一次元電子系では、対称性の低下や異方的な電荷密度分布により、三次元・二次元系とは異なるスピン構造が現れることが予想される。このようなスピン偏極した一次元電子は、重元素吸着させた半導体基板上一次元原子鎖試料において形成可能であるが、その研究例は三次元・二次元系と比較すると極端に少ない。また、一次元金属電子のフェルミ面は、パイエルス不安定性や朝永-ラッティンジャー液体状態の出現により不安定化するが、スピン縮退が解けた系におけるフェルミ面の不安定性を解明することも重要である。このような一次元系の特異なスピン状態を解明するためには、通常の方法で角度分解光電子分光 (ARPES) だけではなく、三次元的にスピン分解と角度分解ができる光電子分光 (3D-SARPES) を用いて、電子バンドの三次元的なスピン構造を高精度で決定することが必須である。

さらに、スピン偏極した表面電子のダイナミクスも興味深い。伝導帯へ光励起された電子は、フェムト秒~ピコ秒の時間スケールでフォノンと相互作用して、その後、価電子帯中の正孔と再結合して緩和されるが、その緩和過程はバンドのスピン構造や価電子帯の正孔濃度に大きく依存するはずである。通常の方法で ARPES や SARPES は、系の時間平均された状態を観測しているが、時間分解 (Tr-)ARPES・SARPES によりスピン偏極電子のダイナミクスを解明できる。

2. 研究の目的

本研究では、半導体基板に重元素を吸着することにより表面一次元原子鎖試料を作成し、SARPES を用いて一次元金属電子のスピンに依存したバンド構造を明らかにする。さらに、基底状態としてスピン縮退が解けている一次元金属電子のフェルミ面の不安定性についても解明する。また、Tr-(S)ARPES 装置を新たに開発して、伝導帯へ光励起されたスピン偏極した表面金属電子が価電子帯に緩和するダイナミクスも明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では、ARPES, 3D-SARPES, Tr-ARPES を用いて固体表面の電子状態について調べた。

(1) ARPES

固体に紫外光~X線を照射すると光電効果により固体中から電子が放出され、この電子

を光電子と呼ぶ。ARPES では光電子のエネルギーと放出角度を分析し、そこから固体中においてその電子がどのように振る舞っていたかを知ることができる。

(2) 3D-SARPES

SARPES では電子のエネルギーと運動量に加えてスピン構造も知ることができる。実験装置は ARPES+スピン検出器という形になっており、まず通常の ARPES により光電子のエネルギーと放出角度を分析し、その後スピン検出器を用いてスピンの向きを識別する。我々の実験装置では三次元的にスピン構造を調べることができるスピン検出器を採用している。

(3) Tr-(S)ARPES

Tr-(S)ARPES では光電子分析器は (S)ARPES と同じであるが、励起光に短パルスのレーザーを用いる。最初のパルスで固体中の電子を伝導帯へ励起し、励起電子が価電子帯へ緩和する前に次のパルスで真空中へ励起することで伝導帯のバンド構造や電子緩和のダイナミクスを観測できる。

4. 研究成果

(1) PtGe 表面一次元合金の電子状態[1]

白金 (Pt) 原子を Ge (001) 表面上に蒸着すると、Pt 原子に誘起された一次元原子鎖 (Pt/Ge (001) NWs) が自己組織的に形成される。このような表面一次元構造は、ラッティンジャー液体やパイエルス転移など、一次元電子特有の物性を研究するための舞台となる。また、重元素である Pt を含んでいるので、その Pt 由来の電子状態はラシュバ効果によりスピン偏極することも予想される。本研究では、ARPES を用いて、Pt/Ge (001) NWs の電子構造を詳細に調べた。

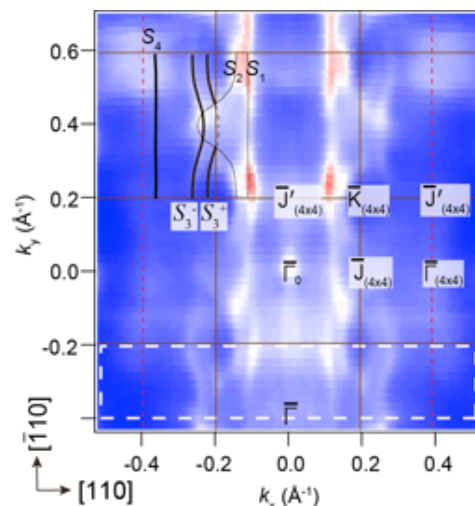


図1. Pt/Ge(001) NWs のフェルミ面[1].

図1にARPESで観測されたPt/Ge(001)NWsのフェルミ面を示す。\$S_1\$-\$S_4\$で示す4つの金属的表面状態が観測された。\$S_1\$は直線的なフェルミ面を持つ理想的な一次元金属バンドである。\$S_2\$は基板との相互作用により二次元波

数空間内で波打った形状のフェルミ面を持っている。 S_3 は二つに分裂しており、SARPESからPtの強いスピン軌道相互作用によりスピン偏極した状態であることがわかった。

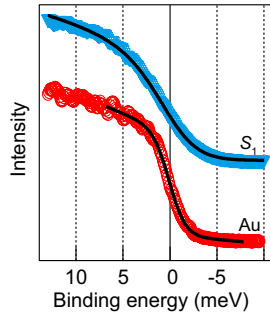


図2. S_1 バンドのフェルミ準位近傍の光電子スペクトル[1].

図2には一次元金属バンドである S_1 のフェルミ準位近傍の高分解能光電子スペクトルを示す。ここで光電子強度は状態密度に比例していることを見出すことができる。 S_1 バンドの E_F 上での状態密度は理想的なフェルミ液体であるAuと比較すると減少している。これは S_1 電子がラッティンジャー液体状態ある可能性を示唆している。

(2) Au/Ge 表面一次元合金の電子状態 [2]

Au原子をGe(001)表面上に蒸着すると、自己組織的に表面一次元原子鎖(Au/Ge(001)NWs)が形成される。ドイツのグループの先行研究によりこの表面の電子状態は一次元的であり、ラッティンジャー液体であると報告された。一方、日本のグループの先行研究では、この系の表面電子バンドは二次元的な性質を有しているとの指摘もあり議論が交わされていた。また、この表面は重元素であるAuを含んでいることから、その表面状態はAuの強いスピン軌道相互作用によりスピン偏極している可能性がある。このような背景に基づいて、本研究では、高分解能ARPESを用いてAu/Ge(001)NWsの詳細な電子状態の研究を行った。

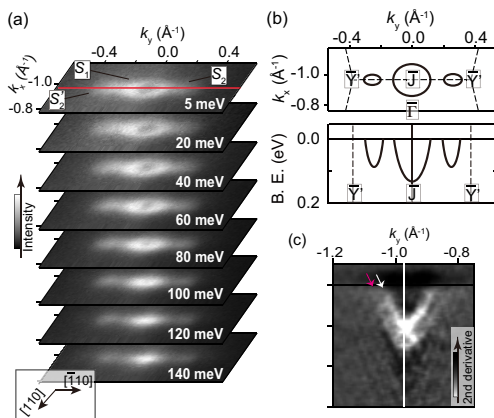


図3. (a) Au/Ge(001)NWsのJ点周りでのバンドマッピング。(b) Au/Ge(001)NWs表面バンドの概略図 (c) S_1 のARPES強度の二階微分図[2].

図3(a)にJ点近傍でのバンドマッピングの結果、図3(b)には実験結果をもとに描いたバンド構造の概略図を示す。 S_1 , S_2 , S_2' という3つの電子ポケットが観測されている。結合エネルギー5 meVで得られた等エネルギー面はフェルミ面と見なすことができ、 S_1 , S_2 , S_2' のフェルミ面は二次元波数空間 k_x - k_y 内で閉じている。これは、Au/Ge(001)表面の電子状態が明確に二次元的であることを示しており、ドイツのグループによる先行研究におけるこの表面が雨樋型の一次元電子バンドを有するという主張を完全に否定する。また、これらの二次元バンドの状態密度はフェルミ準位近傍で大きく減少していることがわかった。ドイツのグループの先行研究ではこれをラッティンジャー液体の証拠としていた。しかしながら、この表面状態は二次元的であるのでラッティンジャー液体という主張はできない。我々は表面構造のディスオーダーによってバンド電子が局在化しているため、フェルミ準位近傍で状態密度が減少したと結論付けた。

図3(c)は Γ J方向で測定されたARPES図である。図中に二つの矢印で示すように表面バンドが二つに分裂していることを見出した。この分裂はAuのスピン軌道相互作用によるものと考えられる。今後SARPESを行うことにより解明できる。

(3) 強くスピン軌道結合した表面状態と励起電子の光スピン制御 [3, 4]

近年、トポロジカル物質に代表されるように強いスピン軌道相互作用によりスピン偏極した表面状態の研究が盛んに行われている。このような物質系においてスピン偏極表面状態のスピンベクトルの方向は電子の運動量にロックされているというのがスタンダードなモデルである。一方最近、トポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 において、表面電子状態のスピンは軌道成分と結合していることが指摘された、スピン軌道エンタングルメントと呼ばれている。この概念は、トポロジカル表面状態に限らず、強いスピン軌道相互作用を示す表面電子系に対して、一般的な概念になるはずである。本研究では、Bi単結晶表面のスピン偏極表面電子状態について、偏光依存SARPESを行った。

図4(a, b)にp偏光励起及びs偏光励起のSARPESで得られたBi(111)表面の Γ M鏡映面内でのスピン分解バンド図を示す。p偏光とs偏光では観測されるスピンの向きが反転していることがわかる。光学遷移のパリティ選択則を考慮すると、鏡映面に対して対称(非対称)な軌道は上向き(下向き)スピンと結合しているといえる。量子力学の計算から、この結果は強いスピン軌道相互作用によりスピン偏極した表面電子状態全般に適用できることも示した。

一方、入射直線偏光の電場ベクトルを鏡映面に対して回転させる(p偏光やs偏光から

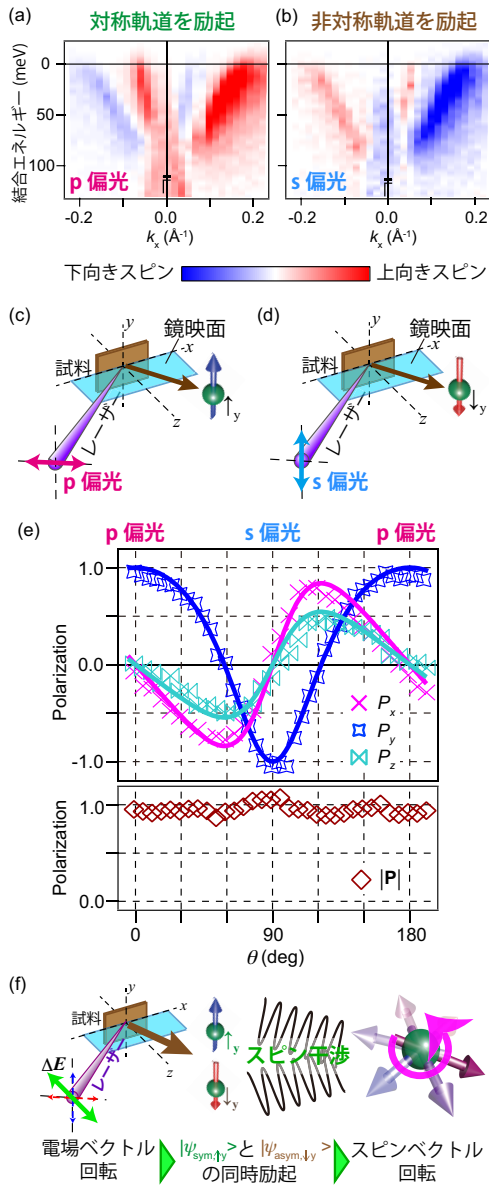


図 4. (a,b) p 偏光・s 偏光励起 SARPES によるスピン分解バンド図。青・白・赤でスピン偏極度の大きさをあらわす。白がスピン偏極度ゼロで、青と赤が±1 である。(c,d) p 偏光・s 偏光を用いた光励起の概略図。p 偏光では対称軌道、s 偏光では非対称軌道を選択的に励起する。(e) 直線偏光の電場ベクトルを回転させた時の光電子のスピン偏極度とその絶対値[3]。(f) 直線偏光の電場ベクトルを回転させた時の光励起の概略図。スピン干渉による励起電子のスピンが回転する。[3,4]

ずらす) と、鏡映面上の電子状態から放出された光電子であっても、スピンは鏡映面垂直方向以外にも偏極成分を持つことを見出した。また、偏光電場ベクトルの向きに依存して光電子スピンの向きが変化することも発見した。これらは、同時励起された $|\psi_{\text{even}, \uparrow}\rangle$ と $|\psi_{\text{odd}, \downarrow}\rangle$ が量子力学的に干渉し、スピンの向きが回転したことによると説明される [3, 4]。直線偏光電場ベクトルの回転角度に

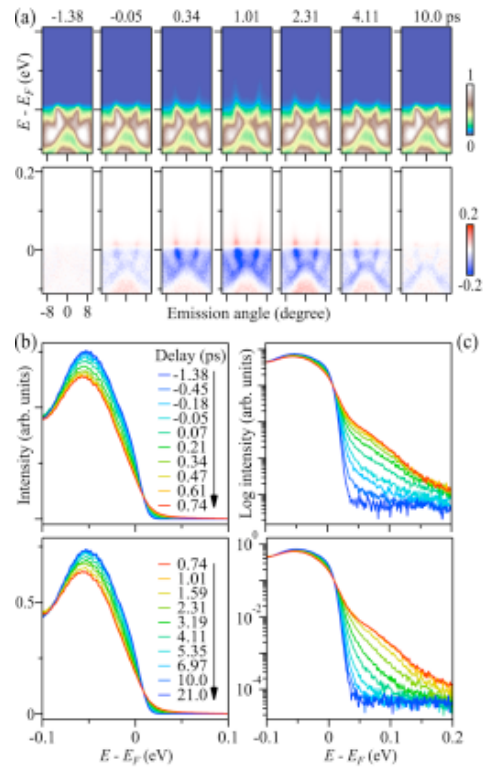


図 5. (a) HOPG 基板上に作成した Bi(111) 単結晶薄膜の Tr-ARPES 図。(b,c) フェルミ準位近傍の角度積分した光電子強度。各色で時間発展を表している。(b) では光電子強度を線形プロット、(c) では光電子強度を対数プロットで示している [5]。

対する光電子スピンの応答を定式化し、光スピン制御の基本概念を確立した。

(4) Bi 表面状態の Tr-ARPES

図 5 は、Tr-ARPES で観測した Bi(111)/HOPG のバンド構造である。光源は Yb ファイバーレーザーで、実験ではポンプ光として 1.2 eV、プローブ光として 5.9 eV の光を使用している。レーザーパルスの繰り返し周波数は 95 MHz である。この装置のエネルギー分解能は 11 meV、時間分解能は 310 fs と見積もられている。図 5 (a) より、ポンプ光を照射する前はフェルミ準位より上の伝導帯側には光電子強度は無いが、照射後にはフェルミ準位より上に電子が励起されるため、伝導帯のバンドが観測されている。図 5 (b, c) には角度積分した光電子強度の時間発展を示している。ポンプ光照射直後よりフェルミ準位直上の光電子強度が増大しはじめ、0.74 ps 後に最大になり、その後およそ 20 ps の時間で励起された電子が緩和していることがわかった。本研究より、伝導帯に光励起されたスピン偏極表面状態がどのような時間スケールで緩和していくかが解明された。

<引用文献>

- ① K. Yaji *et al.*, 他 8 名, 1 番目, J. of Phys.: Cond. Matter **28**, 284001, (2016).
- ② K. Yaji *et al.*, 他 9 名, 1 番目, J. of Phys.: Cond. Matter **30**, 075001, 2018.
- ③ K. Yaji *et al.*, Nat. Commun. **8**, 14588, (2017)
- ④ 矢治 他, 固体物理 **52**, 559 (2017).
- ⑤ Y. Ishida *et al.*, Rev. of Sci. Instrum. **87**, 123902, (2016).

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 13 件)

- ① Experimental Methods for Spin- and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy Combined with Polarization-Variable Laser, Kenta Kuroda, K. Yaji, 他 5 名, 2 番目, JoVE, 2018 (in press) 査読有,
<https://www.jove.com/video/57090/experimental-methods-for-spin-angle-resolved-photoemission>
- ② 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, 日本光学会 47, 142-147, 2018, 査読有,
<http://myosj.or.jp/publication/kogaku/latest/>
- ③ レーザ光で電子のスピン方向を自在に制御, 矢治光一郎, 黒田健太, 小森文夫, 辛埴, レーザ加工学会, 25, 39-42, 2018, 査読有,
<http://www.jlps.gr.jp/journal/25-1.pdf>
- ④ Surface electronic states of Au-induced nanowires on Ge(001), K. Yaji, R. Yukawa, 他 9 名, 1 番目, Journal of Physics: Condensed Matter, 30, 075001, 2018, 査読有,
doi.org/10.1088/1361-648X/aaa526
- ⑤ 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, 固体物理 52, 559-571, 2017, 査読有,
<http://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/index.htm>
- ⑥ Modulation of electron-phonon coupling in periodically-nanorippled graphene on a macrofacet of 6H-SiC, K. Ienaga, T. Iimori, K. Yaji, 他 11 名, 3 番目, Nano Letters **17**, 3527, 2017, 査読有
DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b00606.
- ⑦ Spin-dependent quantum interference in photoemission process from spin-orbit coupled states, K. Yaji, K. Kuroda,

他 8 名, 1 番目, Nature Communications 8, 14588, 2017, 査読有

DOI: 10.1038/ncomms14588

- ⑧ Topologically entangled Rashba-split bands on the grey arsenic surface, P. Zhang, J.-Z. Ma, 他 14 名, 7 番目, Physical Review Letters, 118, 046802, 2017, 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.046802
- ⑨ Direct mapping of spin and orbital entangled wave functions under interband spin-orbit coupling of giant Rashba spin-split surface states, R. Noguchi, K. Kuroda, K. Yaji, 他 6 名, 3 番目, Physical Review B 95, 041111(R) 2017, 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.041111
- ⑩ High repetition pump-and-probe photoemission spectroscopy based on a compact fiber laser system, Y. Ishida, T. Otsu, 他 5 名, 4 番目, Review of Scientific Instruments 87, 123902, 2016, 査読有
DOI: 10.1063/1.4969053
- ⑪ Coherent control over three-dimensional spin polarization for the spin-orbit coupled surface state of Bi₂Se₃, K. Kuroda, K. Yaji, 他 8 名, 2 番目, Physical Review B 94, 165162, 2016, 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.165162
- ⑫ One-dimensional metallic surface states of Pt-induced atomic nanowires on Ge(001), K. Yaji, S. Kim, 他 8 名, 1 番目, Journal of Physics: Condensed Matter, 28, 284001, 2016, 査読有
DOI:10.1088/0953-8984/28/28/284001
- ⑬ High-resolution three-dimensional spin- and angle-resolved photoelectron spectrometer using vacuum ultraviolet laser light, K. Yaji, A. Harasawa, 他 9 名, 1 番目, Review of Scientific Instruments 87, 053111, 2016, 査読有
doi: 10.1063/1.4948738

[学会発表] (計 16 件)

- ① 矢治光一郎, Laser-SARPES による新たなスピン物性研究, SPRUC 顕微ナノ・表面放射光・SPM 合同シンポジウム, 2018
- ② 矢治光一郎, グラフェン/SiC 界面における Sn 単原子層のスピン分解光電子分光, 日本物理学会, 2018
- ③ 矢治光一郎, Laser-SARPES で解明するスピン軌道エンタングルメントと光スピン制御, フォトンファクトリー研究会, 2017
- ④ 矢治光一郎, 貴金属(111)表面電子状態のスピン軌道エンタングルメントと laser-SARPES, 日本物理学会, 2017
- ⑤ Koichiro Yaji, Development of high-resolution three-dimensional spin- and

angle-resolved photoelectron spectroscopy apparatus using vacuum ultraviolet laser, 33rd European conference on surface science, 2017

- ⑥ 矢治光一郎, レーザースピン分解光電子分光で解明するスピン偏極表面電子状態, 第 37 回表面科学学術講演会, 2017
- ⑦ Koichiro Yaji, Spin polarization of spin-orbit coupled states studied by laser-SARPES, 16th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces, 2017
- ⑧ 矢治光一郎, レーザースピン分解光電子分光による Pb/Ge(111) のスピン偏極表面電子状態と光電子スピンの研究, 日本物理学会, 2017
- ⑨ 矢治光一郎, レーザースピン分解光電子分光を用いた新たなスピン物性研究, 第 4 回 JASRI ワークショップ, 2017
- ⑩ 矢治光一郎, レーザースピン分解光電子分光で解明するスピン軌道分裂表面電子状態からの光電子スピン, 第 36 回表面科学学術講演大会, 2016
- ⑪ 矢治光一郎, 偏光可変レーザースピン分解光電子分光で解明する光電子スピン偏極度と波動関数の位相, 日本物理学会, 2016
- ⑫ 矢治光一郎, 偏光可変レーザースピン分解光電子分光による Bi(111) 表面電子状態の研究, 日本物理学会, 2016
- ⑬ 矢治光一郎, レーザー光励起による高効率・高分解能三次元スピン分解光電子分光装置の開発 II, 日本物理学会, 2015

[その他]

<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/organization/sor.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢治 光一郎 (YAJI, Koichiro)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号 : 50447447