

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25600093

研究課題名(和文) 高感度な表面磁気光学カー効果測定装置の開発と表面ラシュバ系のスピン伝導の研究

研究課題名(英文) Development of a high-resolution surface magnetic optical Kerr effect measurements system and its application to spin transport measurements in surface Rashba systems

研究代表者

平原 徹(Hirahara, Toru)

東京工業大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：30451818

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)：本研究の目的は非磁性体表面で大きなスピン分裂を示すバンド構造(Rashba効果)を持つ系の運動量・スピンロッキング由来のスピン伝導現象を測定することである。そのためにまず左右円偏光のレーザーを試料に照射し、試料両端に生じる起電力を測定した。Bi(111)表面とAg(111) 3×3-Bi表面に対して円二色性が観測できたが、Rashba効果がないSi(111)7×7表面でも円二色性が見られた。第二の実験として、試料に電流を印加しながらスピン偏極ヘリウムイオンの散乱によって表面Rashba系の電流誘起のスピン偏極を検出することを試み、スピン軌道相互作用に由来するスピン依存の散乱を検出した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to measure the spin transport phenomenon at the surface of nonmagnetic materials which exhibit large Rashba splitting. Due to the spin-momentum locking in these systems, they are expected to show dichroism behavior when irradiated with left/right circularly-polarized light that originate from the peculiar band structure (spin galvanic effect). First, we have irradiated circularly-polarized visible laser on the Bi(111) films and Ag(111) 3×3-Bi which show large Rashba splitting. We succeeded in measuring the dichroism behavior by precisely measuring the electromotive force between the two edges of the samples. However, we also observed dichroism behavior for the Si(111)7×7 surface which we did not expect. Secondly, we tried to measure the current-induced spin-polarization of the Rashba systems with spin-polarized He ion scattering. We succeeded in observing the spin-dependent scattering phenomenon that originate from spin-orbit coupling.

研究分野：表面・界面物理

キーワード：物性実験 表面・界面物性 ラシュバ効果

1. 研究開始当初の背景

近年スピントロニクスが発展が目覚ましい。従来はスピン制御法として磁性体に外部磁場を印加したが、非磁性物質でもスピン軌道相互作用と反転対称性の破れによって起こる Rashba 効果を利用してスピン偏極したバンド構造が実現される。このような系では、電流を流すだけで試料に面内方向のスピン偏極が誘起される(電流誘起スピン偏極)。またこの逆現象として円偏光の光を照射すると特定の方向に電流(電場)が誘起される(スピングルバーニ効果)。これらのスピン依存伝導は半導体界面やバルクで主に研究されている。

一方結晶表面には表面 1,2 原子層に局在した究極に薄い低次元電子系である表面状態が存在する。この表面状態も反転対称性が破れており、Rashba 効果でスピン分裂したバンドを持つ。申請者は特にシリコン表面上のビスマス(Bi)超薄膜のスピン分裂した表面電子状態に関して詳細な研究を行ってきた。そして磁性プローブを開発し、スピン依存の電位測定で Bi 超薄膜の表面状態の電流誘起スピン偏極の観測をしたことを世界で初めて検出したことを示唆するデータが得られた。これは申請者の旧所属研究室が開発した独自のナノスケール伝導技術を用いたものだが多くの欠点があった。例えば測定室で磁場印加できず、検出プローブ磁性体の磁化反転が難しかった。それゆえ、満足の行く測定を行うことが難しく、表面状態のスピン依存伝導を検出したと確信できるデータは得られなかった。

2. 研究の目的

そこで本研究ではより簡便に表面 Rashba 系のスピン依存伝導測定を行い、定量的議論を行うため、

- (1)表面磁気光学効果を用いたスピン伝導の光学的測定手法の開拓を試みた。さらに、
- (2)スピン偏極したヘリウムイオンビームを用いたスピン伝導測定の検出にも挑戦した。

3. 研究の方法

(1)に関しては旧所属研究室である東大理学部物理学科の長谷川修司研究室に既存の表面磁気光学カー効果測定装置を改良して、光誘起起電力を測定できるようにした。そして左右円偏光のレーザー光を照射したときに試料両端に発生する光誘起起電力の差(円二色性)を測定することでスピングルバーニ効果のシグナル測定を試みた。試料としては大きな Rashba 効果が観測されている Ag(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Bi 表面(以後 Bi/Ag 表面)および Bi(111)表面を用いた。上記のシグナルが表面 Rashba 効果由来であることの確認として、

Rashba 効果が観測されていない Si(111)-7 \times 7 表面でも同様の測定を行った。

(2)に関しては物質材料研究機構の鈴木拓研究員の協力を得て、研究を遂行した。鈴木研究員が開発した既存のスピン偏極ヘリウムイオン散乱測定装置の試料ホルダーに電流を印加できる機構を付加した。そしてスピン偏極イオン散乱強度が試料に流す電流値でどのように変化するかを測定し、電流誘起スピン偏極のシグナル検出を試みた。試料としては Bi(111)薄膜を用いた。

4. 研究成果

- (1) 表面 Rashba 系のスピングルバーニ効果の光学的手法による観測

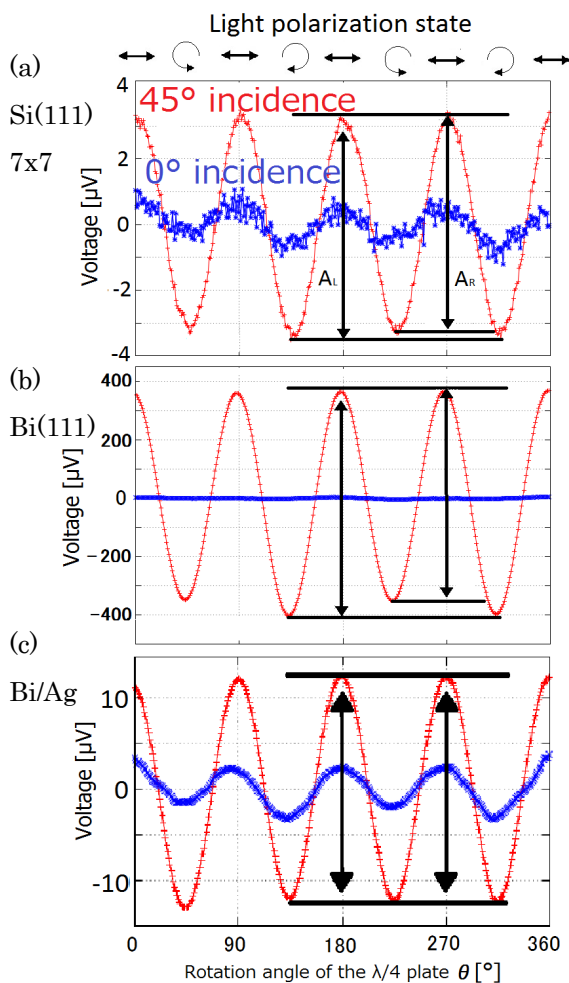


図1：波長 635nm のレーザー光で測定された光誘起起電力および円二色性。試料は (a)Si(111)-7 \times 7 表面、(b)Bi(111)表面、(c)Bi/Ag 表面である。紫の点は光の入射角が 0° のときの測定点であり、赤が 45° のときの測定点である。

図1は、波長が 635nm の赤色レーザーで測定された磁気円二色性のデータである。測定試料はそれぞれ (a)Si(111)-7 \times 7 表面、(b)Bi(111)表面、(c)Bi/Ag 表面である。光の入射角が 0° (紫)のときと 45° (赤)の2つの条件で測定を行った。それぞれの試料で入射

角が 45° のときの方が大きな光誘起起電力が観測された。その理由は不明で現在検討中である。全ての試料で左回り円偏光照射時と右回り円偏光照射時で光誘起起電力の大きさが異なり (A_L と A_R)、その差である円二色性を $\alpha = (A_L - A_R) / (A_L + A_R)$ で定義すると各試料に対して $\alpha = 1.0 \pm 1.0$ (a)、 3.1 ± 0.5 (b)、 0.0 ± 1.0 (c) であった。これは顕著な表面 Rashba 効果が観測されない Si(111)- 7×7 表面でも有意な円二色性が観測されているということであり、表面 Rashba 効果に由来するスピングルバーニ効果を観測したという確固たるデータは得られなかった。

図 2 は波長が 405nm の紫色のレーザーを用いて同様の実験をした結果である。この場合は $\alpha = 4.0 \pm 1.0$ (a)、 5.3 ± 0.5 (b)、 7.0 ± 1.0 (c) であり、各試料とも赤色レーザーのときよりも円二色性は大きくなった。このように左右円偏光を照射した際の円二色性は表面 Rashba 効果以外にも多くの要因に依存するのでこれらをきちんと考察した上で、スピングルバーニ効果を議論しなければならないことが明らかになった。

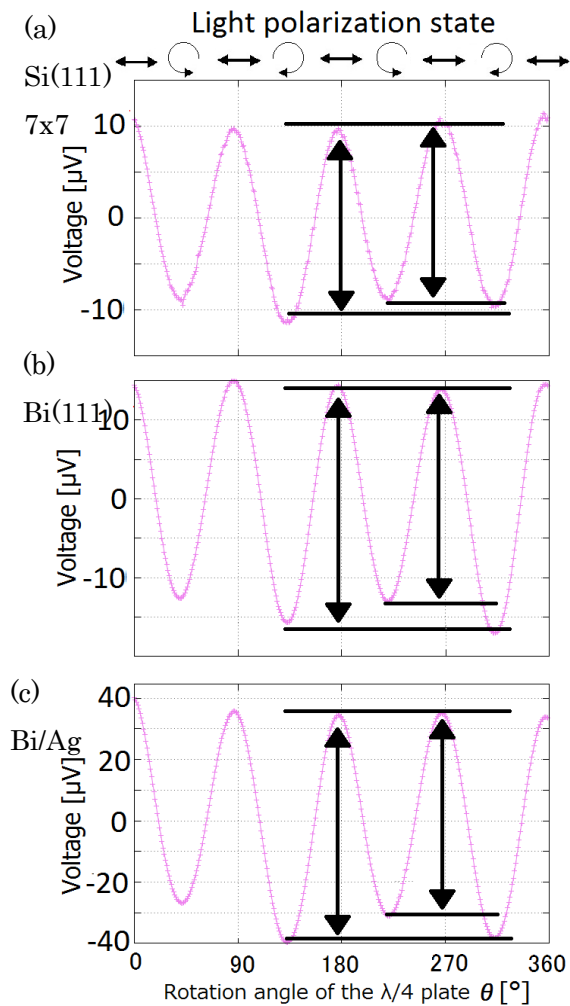


図 2 : 波長 405nm のレーザー光で測定された光誘起起電力および円二色性。試料は (a) Si(111)- 7×7 表面、(b) Bi(111) 表面、(c) Bi/Ag 表面である。光の入射角は 45° である。

(2) 電流誘起スピン偏極のスピン偏極ヘリウムイオン散乱による観測の試み

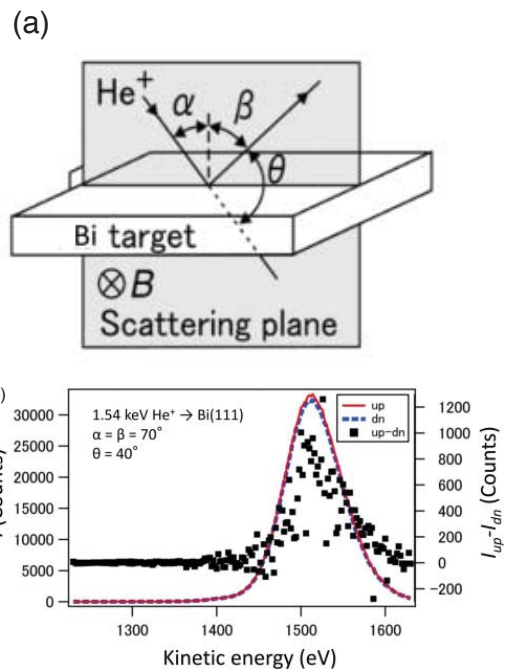


図 3 : (a) 実験の配置図。スピン偏極した He イオンを試料に照射するが、その入射角 (α) および散乱角 (β) を制御して測定を行った。磁場は試料面内に印加されている。(b) Bi(111) 薄膜に対して得られたスペクトル。He⁺-Bi の弾性散乱ピークに相当する 1520eV にピークがあり、入射ヘリウムのスピン偏極を反転することで優位な差が生じており、スピン依存の散乱が起きていることが分かる。

図 3(a) に実験の配置図を示す。スピン偏極イオンは、スピン偏極準安定 He 原子 ($2^3S_1(\text{He}^*)$) がペニングイオン化 ($\text{He}^* + \text{He}^* \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^0 + e^-$) することによって得られる。He^{*} は He ガスを RF 放電によって励起することで得られ、円偏光を用いた光ポンピングによってスピン偏極される。ペニングイオン化においてはスピンの保存されるため、最終的にスピン偏極した He⁺ を得る。ポンプ光の右回り/左回り円偏光を切り替えることにより、イオンビームのスピン偏極を up/down に切り替える。このスピン偏極 He⁺ イオンを約 1.5 kV の電圧で加速し試料に照射する。そして入射角 (α) および散乱角 (β)、さらに試料の面内角度 (azimuth angle) を制御して散乱した He⁺ イオンを検出した。図 3(b) が Bi(111) 薄膜に対して実際に得られたスペクトルである。He⁺-Bi の弾性散乱ピークに相当する 1520eV にピークがあり、入射ヘリウムのスピン偏極を反転することで優位な差が生じており (実線と点線)、スピン依存の散乱が起きていることが分かる。これは電流を流していないときは電流誘起のスピン偏極が起きないので検出されるべきではないと思われるかもしれない。しかし最近非磁性体試料でも有限のスピン非対称性が観測されることが報告

された。その起源は He⁺ と試料原子の衝突におけるスピン軌道相互作用(SOC)の効果であると言われている。得られた散乱の非対称度 A は $A = (n_{up} - n_{down}) / (n_{up} + n_{down}) P_{He}$ で定義され、図 3(b) の場合は 0.07 であった (P_{He} は入射ヘリウムビームのスピン偏極度である)。

ここで電流を印加して、測定される A に変化が生じ、電流誘起スピン偏極のシグナルが検出されることを期待した。しかし実際には電流を印加しても A の測定値は変化しなかった。また、測定後の試料表面を電子回折で評価してみると、測定前はシャープな回折パターンが見えていたにも関わらず測定後は Bi (111) の特徴的なパターンではなくなっていたことが分かった(図 4)。これは He イオンによって Bi がスパッタされたためと考えられる。図 3(b) のデータを得るには 3 時間程度かかり、その間に Bi がスパッタされ表面がボコボコになってしまったのである。

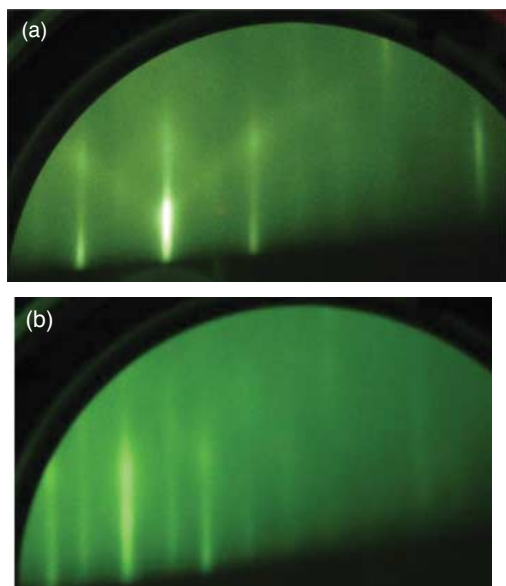


図 4 : ヘリウムイオン散乱実験前(a)と後(b)の Bi (111) 薄膜の電子回折パターン。

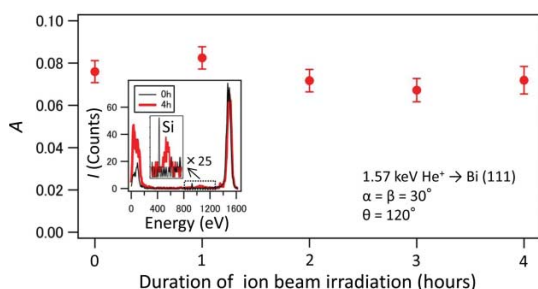


図 5 : Bi (111) 薄膜でのゼロ電流での SOC 由来のスピン依存散乱の非対称度 A の時間依存性。挿入図は基板の Si 由来のシグナルが 4 時間経つと検出されたことを示している。

そこでまず SOC 由来のゼロ電流でのスピン依存散乱がスパッタでどう影響を受けているかを評価した。図 5 に示すように散乱非対称度 A は時間とともに変化している様子は見ら

れなかった。一方エネルギーを変えてみると Bi (111) 薄膜を成長させた基板の Si の He 弾性散乱ピークが 4 時間ほどで検出され始める(図 5 挿入図)。つまり SOC 由来のスピン依存散乱は表面がボコボコになっても影響を受けない。これはスピン軌道相互作用は表面原子核周りのイオンの過渡的な運動に由来し、スピン非対称性は結晶性が多少悪くても影響しないためである。このことによってゼロ電流でのスピン依存散乱が SOC 由来であることが逆に確認できた。しかし電流誘起スピン偏極はバンド構造が重要なので結晶性が悪くなるとドメインがバラバラになり、結果的に生じるスピン偏極も打ち消されて測定が難しくなる。このため電流を印加しても A の測定値が変化しなかったものと考えられる。今後測定時間を短縮して電流誘起スピン偏極の寄与を測定したいと考えているが、そのためには入射 He ビームのスピン偏極度 (P_{He}) の向上など難しい課題がある。

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 11 件)

(1) T. Hirahara, T. Shirai, T. Hajiri, M. Matsunami, K. Tanaka, S. Kimura, S. Hasegawa, and K. Kobayashi, “Role of Quantum and Surface-State Effects in the Bulk Fermi-Level Position of Ultrathin Bi Films” *Physical Review Letters* **115**, 106803 (2015), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.106803

(2) A. V. Matetskiy, I. A. Kibirev, T. Hirahara, S. Hasegawa, A. V. Zotov, and A. A. Saranin, “Direct observation of a gap opening in topological interface states of MnSe/Bi₂Se₃ heterostructure” *Applied Physics Letters* **107**, 091604 (2015), 査読有, <http://dx.doi.org/10.1063/1.4930151>

(3) T. T. Suzuki, O. Sakai, S. Ichinokura, T. Hirahara, and S. Hasegawa, “Target element dependent spin-orbit coupling in polarized 4He⁺ ion scattering” *Nuc. Inst. Meth. B* **354**, 163 (2015), 査読有, doi:10.1016/j.nimb.2014.11.055

(4) T. Hirahara, “The Rashba and quantum size effects in ultrathin Bi films” *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **201**, 98 (2015), 査読有, doi:10.1016/j.elspec.2014.08.004

(5) M. Aitani, T. Hirahara, S. Ichinokura, M. Hanaduka, D. Y. Shin, S. Hasegawa,

“In situ transport measurements in ultrathin Bi films: Evidence for surface-bulk coherent transport” *Physical Review Letters* **113**, 206802 (2014), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.206802

(6) T. Shirai, T. Shirasawa, T. Hirahara, N. Fukui, T. Takahashi, S. Hasegawa, “Structure determination of multilayer silicene grown on Ag(111) films by electron diffraction: Evidence for Ag segregation at the surface” *Physical Review B (Rapid Communication)* **89**, 241403(2014), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.89.241403

(7) T. Kambe, R. Sakamoto, T. Kusamoto, T. Pal, N. Fukui, K. Hoshiko, T. Shimojima, Z. Wang, T. Hirahara, K. Ishizaka, S. Hasegawa, F. Liu, H. Nishihara, “Redox Control and High Conductivity of Nickel Bis(dithiolene) Complex π -Nanosheet: A Potential Organic Two-Dimensional Topological Insulator” *Journal of American Chemical Society* **136**, 14357 (2014) 査読有, DOI: 0.1021/ja507619d

(8) T. Shirasawa, M. Sugiki, T. Hirahara, M. Aitani, T. Shirai, S. Hasegawa, T. Takahashi, “Structure and transport properties of Cu-doped Bi_2Se_3 films” *Physical Review B* **89**, 195311 (2014) 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.89.195311

(9) S. Ichinokura, T. Hirahara, S. Hasegawa, O. Sakai, T. T. Suzuki, “Electron-spin dependent 4He^+ ion scattering on Bi surfaces” *Radiation Effects and Defects in Solids* **169**, 1003 (2014) 査読有, DOI: 10.1080/10420150.2014.977284

(10) N. Fukui, R. Hobara, T. Hirahara, S. Hasegawa, Y. Miyatake, H. Mizuno, T. Sasaki, T. Nagamura, “In Situ Microfabrication and Measurements of Bi_2Se_3 Ultrathin Films in a Multichamber System with a Focused Ion Beam, Molecular Beam Epitaxy, and Four-Tip Scanning Tunneling Microscope” *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* **12**, 423 (2014) 査読有, DOI:10.1380/ejssnt.2014.423

(11) 一ノ倉聖, 平原徹, 酒井治, 長谷川修司, 鈴木拓 “ビスマス表面におけるスピン依存イオン散乱” *表面科学* **36**, 408 (2015) 査読有, <http://doi.org/10.1380/jsssj.36.408>

[学会発表] (計 22 件)

(1) T. Hirahara, M. Aitani, T. Shirai, S. Ichinokura, M. Hanaduka, D. Y. Shin, T. Hajiri, M. Matsunami, K. Tanaka, S. Kimura, K. Kobayashi, and S. Hasegawa, “Surface and Bulk States of Ultrathin Bi films: Electronic Structure and Transport Properties”, 15th International Conference on the Formation of Semiconductor interfaces, 2015年11月15日~2015年11月20日, Hiroshima (Japan)

(2) Yuma Okuyama, Yuya Sugiyama, and Toru Hirahara, “Growth and Electronic Structure of a Tellurium Thin Film on Bi_2Te_3 ”, The 20th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, 2016年03月09日~2016年03月10日, Hiroshima (Japan)

(3) Toru Hirahara, “Electronic Structure of Ultrathin Materials: Films and Heterostructures of Bi-Related Compounds”, The 19th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, 2015年03月04日~2015年03月05日, Hiroshima (Japan) 招待講演

(4) Toru Hirahara, “Spin-split band structure and spin-polarized transport in surface states of ultrathin Bi films”, International Workshop of Computational Nano-Materials Design on Green Energy, 2014年06月01日~2014年06月03日, Osaka (Japan) 招待講演

(5) T. Shirai, T. Shirasawa, T. Hirahara, N. Fukui, T. Takahashi, S. Hasegawa, “Structure determination of multilayer silicene grown on Ag(111) films by electron diffraction: Evidence for Ag segregation at the surface”, The 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月03日~2014年11月06日, Matsue (Japan)

(6) S. Ichinokura, T. Hirahara, S. Hasegawa, O. Sakai, T. T. Suzuki, “Electron-spin dependent 4He^+ ion scattering on epitaxially-grown Bi surfaces”, The 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月03日~2014年11月06日, Matsue (Japan)

(7) N. Fukui, T. Hirahara, S. Hasegawa, “The electric conduction anisotropy of topological insulator thin films, Bi_2Te_3 and Bi_2Se_3 grown on a vicinal substrate”, The 7th International

Symposium on Surface Science, 2014年11月03日～2014年11月06日, Matsue (Japan)

(8) T. Shirasawa, M. Sugiki, T. Hirahara, M. Aitani, T. Shirai, S. Hasegawa, T. Takahashi, “Structure and Transport Properties of Cu-Doped Bi₂Se₃ Films”, The 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月03日～2014年11月06日, Matsue (Japan)

(9) 平原徹, “表面・界面でのスピン軌道相互作用:ビスマス系化合物を中心に”, 第七回 神楽坂 凝縮系理論勉強会, 2015年8月8日, 東京理科大学(東京) 招待講演

(10) 平原徹, 白井皓寅, 羽尻哲也, 松波雅治, 田中清尚, 木村真一, 長谷川修司, 小林功佳, “ビスマス超薄膜における半金属半導体転移の検証”, UVSOR シンポジウム, 2015年11月06日～2015年11月07日, 分子科学研究所(愛知)

(11) 平原徹, “ビスマス超薄膜における半金属半導体転移の検証”, 第一回 ディラック電子系マルチフェロイクス研究会, 2016年01月28日～2016年01月29日, 東京理科大学(東京)

(12) 平原徹, 白井皓寅, 羽尻哲也, 松波雅治, 田中清尚, 木村真一, 長谷川修司, 小林功佳, “ビスマス超薄膜における半金属半導体転移の検証 II”, 日本物理学会 第71回年次大会, 2016年03月19日～2016年03月22日, 東北学院大学(宮城)

(13) 平原徹, 久保高幸, Andrei Mateckij, 高山あかり, 松波雅治, 羽尻哲也, 田中清尚, 木村真一, 長谷川修司, “トポロジカル絶縁体/磁性絶縁体超薄膜ヘテロ構造の電子状態”, 日本物理学会 第70回年次大会, 2015年03月21日～2015年03月24日, 早稲田大学(東京)

(14) 中村友謙, 保原麗, 高山あかり, 長谷川修司, 平原徹, “低温強磁場下における Bi 超薄膜の走査トンネルポテンショメトリ測定”, 日本物理学会 第70回年次大会, 2015年03月21日～2015年03月24日, 早稲田大学(東京)

(15) 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司, “Si (110)2×5-Au における擬1次元伝導の測定”, 日本物理学会 第70回年次大会, 2015年03月21日～2015年03月24日, 早稲田大学(東京)

(16) 石原大嵩, 福居直哉, 花塚真大, 保原麗, 高山あかり, 平原徹, 長谷川修司, “Bi および Bi/Ag 薄膜のラッシュバ効果による光誘起電圧

の円二色性”, 日本物理学会 第70回年次大会, 2015年03月21日～2015年03月24日, 早稲田大学(東京)

(17) 中村友謙, 保原麗, 長谷川修司, 平原徹, “Bi 超薄膜の走査トンネルポテンショメトリ測定:エッジでのポテンシャル異常”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

(18) 鈴木拓, 酒井治, 一ノ倉聖, 平原徹, 長谷川修司, “ヘリウムイオン散乱におけるスピン軌道相互作用の標的要素依存性”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

(19) 伊藤俊, 平原徹, 申東潤, 一ノ倉聖, 松田巖, 長谷川修司, “Si (111)- $\sqrt{7}\times\sqrt{3}$ -In の2つの超構造 hex/rect の STM 観察”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

(20) 福居直哉, 平原徹, 長谷川修司, “微斜面 Bi₂Te₃, Bi₂Se₃ 薄膜の異方的電気伝導”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

(21) 一ノ倉聖, 酒井治, 長谷川修司, 平原徹, 鈴木拓, “Bi 表面におけるスピン偏極イオン散乱分光”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

(22) 白澤徹郎, 杉木祐人, 平原徹, 長谷川修司, 高橋敏男, “Cu ドープ Bi₂Se₃ 薄膜の構造と電子輸送特性”, 日本物理学会 2014年秋季大会, 2014年09月07日～2014年09月10日, 中部大学(愛知)

[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]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平原 徹 (Hirahara Toru)

東京工業大学・理工学研究科・准教授

研究者番号: 30451858