

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26287071

研究課題名(和文) スピン分解光電子分光による運動量空間スピントクスチャーマッピング

研究課題名(英文) Spin-texture mapping in k-space by spin-resolved AREPS

研究代表者

相馬 清吾 (Souma, Seigo)

東北大学・スピントロニクス学術連携研究教育センター・准教授

研究者番号：20431489

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,900,000円

研究成果の概要(和文)：固体中で動く電子は、スピン軌道相互作用や結晶の対称性により様々な方向に向くスピンを持つ。本研究ではスピンと運動量の関係が重要な影響を持つ高機能物質の電子状態を解明するために、スピン分解ARPES装置の改造と、これを用いた電子構造研究を行った。その結果、ワイル半金属の表面フェルミアーク、希薄磁性半導体GaMnAsのAsホールバンド、重金属薄膜の1次元エッジ状態、線ノード半金属の表面状態などの電子状態の観測に成功した。これらの成果から、新規トポロジカル物質相の開拓、およびGaMnAsの強磁性機構の解明に成功したと結論した。

研究成果の概要(英文)：Spin-orbit coupling (SOC) in matter strongly affects an electron's spin which points to various directions depending on the type of SOC interaction and crystal symmetry. In this study, we have developed our spin-resolved photoemission spectrometer and, by using this, studied the electronic structure of high functional materials in which a relation between spin and momentum plays an important role in this functionality. Consequently, we have observed various intriguing electronic states; Surface Fermi arc in Weyl semimetals, As 4p hole-band in dilute magnetic semiconductor GaMnAs, one dimensional edge state in heavy metal film, unexpected surface state in line node semimetals, and so on. Based on the above results, we conclude that this project has succeeded in establishing of new topological materials and unraveling of mechanism of ferromagnetism in GaMnAs.

研究分野：光電子固体物性

キーワード：トポロジカル絶縁体 スピン分解光電子分光 スピントロニクス 表面・界面物性 光電子分光 スピン軌道相互作用 ラシュバ効果

1. 研究開始当初の背景

空間反転対称性の破れの中でスピン軌道相互作用により発現する物性が現代物理学の大きな潮流を作っている。そのような例として、ラシュバ効果、トポロジカル絶縁体(表面ディラックコーン)、スピンホール効果、マルチフェロイクス、空間反転対称性の破れた超伝導などが挙げられ、精力的な研究が行われている。GaAs等の半導体で知られているように、空間反転対称性が破れた物質では電子バンドのクラマース縮退がとけるが、近年になって、半導体界面やトポロジカル絶縁体の表面状態などの主に2次元電子系において、運動量に依存して異なるスピンの向きを持つ「スピントクスチャー」の存在が認識されるようになり、物性物理の新たな分野としてだけでなく、スピントロニクスへの応用展開も含めて、注目が集まるようになった。

このような状況の中で、代表者はスピン分解光電子分光装置の高分解能化に取り組んできた。角度分解光電子分光法(ARPES)は、物質のバンド構造やフェルミ面の決定手法として知られるが、その上位手段であるスピン分解 ARPES を用いれば、縮退の解けたバンドのスピントクスチャーを直接測定できる。ところが、従来の装置はスピン検出器の測定効率が低く、エネルギー分解能を 0.1 eV 程度に下げざるを得ないという事情があり、研究の障害となってきた。代表者は、高輝度キセノンプラズマ光源や低ノイズ小型モット検出器などの装置開発により、世界的にも最高水準のエネルギー分解能(8 meV)を持つ高分解能スピン分解光電子分光装置を建設に成功し、この手法の先端を拓いた。

このように、従来の状況と比べて著しい発展をした高分解能スピン分解光電子分光装置は、とりわけトポロジカル絶縁体研究において、表面ディラックコーン電子状態におけるヘリカル型スピントクスチャーの観測など重要な役割を果たしてきた。ところが、それでも尚、スピン分解スペクトルの測定は数点の波数で行うのが精々であり、スピントクスチャーの観測は未だに定性的な段階に留まっている現実的状况があった。ヘリカル型のテクスチャーは時間反転対称点の極周辺のみで発現が期待される単純な構造であるが、本来のスピントクスチャーは物質の持つ様々な対称性や波動関数の性質により複雑化し、多くの物性と密接な関わりあいを持つ。例えば、昨年発見された鏡映対称性に基づく新しい物質相であるトポロジカル結晶絶縁体は、2重ディラック錐という特徴的な表面構造が発現する事が ARPES で明らかとなり、そのテクスチャーの観測が強く望まれていた。しかしながら、装置性能の不足により、十分な精度でスピントクスチャーを測定することが困難な状況にあった。

2. 研究の目的

トポロジカル絶縁体のディラックコーン

表面状態に代表されるように、スピン軌道相互作用がある中で空間反転対称性や時間反転対称性が破れると、物質内の電子状態はスピン縮退が解け、同時に、スピンベクトルの向きが運動量に依存して変わる「スピントクスチャー」が発現する。本研究は、ここ数年でエネルギー分解能の著しい向上を果たしたスピン分解光電子分光装置をさらに発展させ、物質のブリルアンゾーン内におけるスピンの3次元ベクトルの運動量依存性を精密に測定し、トポロジカル絶縁体や関連する新しいトポロジカル物質の特異な物性に関わるスピントクスチャーを決定し、新たな電子状態、とりわけスピン偏極した電子バンドを解明することを目的とした。さらに、物質の持つ対称性とスピントクスチャーの関連性について、強磁性薄膜を含む様々な系で実験的に見出し、新しい量子状態や物質相の開拓を目指した。

3. 研究の方法

通常の光電子分光装置において、スピントクスチャーマッピングの最大の障害となるのは、電子分析アナライザーの測定モードがエネルギースキャンの1種類しかないことに尽きる。従来の運動量空間のマップ実験では、波数(角度)点ごとにエネルギースキャンを繰り返すという手間がかかっていた。これを解決するために、試料から射出した電子のうち、任意の方角の電子をスピン検出器に入射させるために、電子レンズの内の偏向器電極により電子軌道を偏向させたときの電子検出イメージを正しく保つように電子レンジパラメーターを調整し、アナライザーに入射する電子像の中心を2次元の任意の方向にずらす機能を製作した。アナライザーの電子レンズと電子偏向器の調整を行い、試料位置を固定したまま任意の角度(θ, ϕ)のスピン分解測定を可能とするシステムを構築した。

さらに、高機能物質の電子状態を精密に観

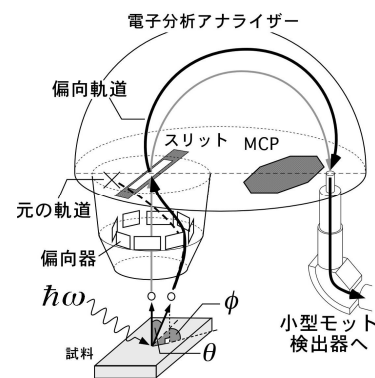


図1 アナライザーの改良

測するために、スピン検出器ターゲットの磁化システムの改良、ターゲットの超寿命化、試料クライオスタットの磁化の徹底除去、紫外高輝度光源の調整、レーザー光源の立ち上げ、低運動エネルギー用の電子レンズ調整な

ど、スピン分解光電子分光装置の全体性能を向上させ、スピン分解時のエネルギー分解能 5 meV を達成した。

この装置を用いて、トポロジカル絶縁体、磁性薄膜表面、希薄磁性半導体、新規トポロジカル半金属、金属ラッシュバ薄膜などの高機能物質について電子構造研究を行った。

4. 研究成果

本研究において得られた主要な成果について述べる。

(1) トポロジカル半金属

トポロジカル絶縁体の存在が実証されて以降 10 年近くたつが、励起スペクトルにギャップのない半金属においてもトポロジカル物質相の存在が予測され、大きく注目された。本研究の期間中に、そのようなトポロジカル半金属として、価電子帯と伝導帯が一点で縮退する「ワイル半金属」が提唱され、具体的な物質として TaAs, TaP, NbAs, NbP が候補となり、いち早くその電子構造の解明に取り組んだ。物質がトポロジカルであることを反映して「表面フェルミアーク電子状態」が多くのグループにより観測されたが、その形状やワイル点の位置、チャーン数がグループにより異なるという問題があった。本研究は、この物質が積層方向に極性のある物質であることに着目し、アニオン(P)およびカチオン(Nb)終端面のそれぞれにおいて、全く異なる形状をもつ表面フェルミアーク電子状態を観測することに成功した(図 2)。2つの終端面のフェルミアークの交点から厳密なワイル点の位置を求め、この物質がワイル半金属であることを実験的に確立した。

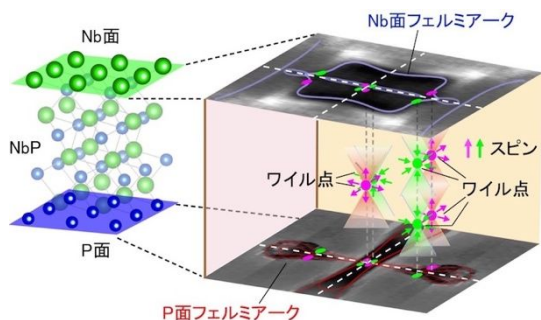


図 2 ワイル半金属 NbP の結晶構造(左)と電子構造(右)

また、別種のトポロジカル半金属である線ノード半金属の候補物質の研究も行った。層状化合物 HfSiS においては、線ノード電子状態を ARPES により確立し、さらに興味深いことに理論や計算では予測されていない新たな 1 次元ディラック線ノード電子状態を観測した。また、ミラー対称性により線ノードが保護される CaAgAs においては、フェルミ準位近傍に存在するバンドは線ノード構造であることを立証し、この物質が理想的な線ノード半金属であることを提唱した。

トポロジカル半金属/絶縁体候補物質である LaSb および CeSb について、軟 X 線

ARPES によるバルク電子バンド構造を曖昧さなく決定する事で、両物質にはバンド反転がなくトポロジカルには自明な物質であることを見出した。一方で、CeBi と LaBi においてはバンド反転が観測されており、特に、CeBi の表面電子状態は磁気秩序の形成により大きく変化することを見出した。この結果はトポロジカル電子状態が磁性により制御できる可能性を示唆する。

(2) 希薄磁性半導体 GaMnAs

希薄磁性半導体(Ga,Mn)As の強磁性機構については、全く異なる電子構造に基づく 2 つのモデルが提唱されており、20 年ものあいだ論争が続いていた。その主な原因として、薄膜試料の表面に大きな問題があったことから、MBE 法により作製した(Ga,Mn)As 薄膜を in-situ で光電子分光装置に搬送して高分解能 ARPES を行い、その結果、フェルミ準位が価電子帯の中に位置することを見出した。さらに興味深いことに、As ホールバンドの光電子強度の波数依存性が試料の磁化方向により反転すること、すなわち磁気線二色性があることを見出した。この結果から、GaMnAs の強磁性を説明するには As バンドの交換分裂により強磁性が安定化する p-d Zener モデルが適していると結論した。

(3) 磁性薄膜表面

W(110)基板上に成長させた Fe 超薄膜において、スピン偏極したディラック型電子状態が W/Fe の界面電子状態として存在していることを見出した。特に 2ML 周辺の膜厚においてディラック点に 0.34eV のギャップが形成されることを見出した。スピン分解 ARPES により Fe3d バンドのスピン偏極方向を調べたところ、この界面ディラック電子状態は、Fe 薄膜の結晶磁気異方性が垂直となったときにギャップを形成することが分かった。この結果から、W5d と Fe3d 軌道間に有効な交換相互作用が存在し、Fe 薄膜の強磁性近接効果によって界面ディラック錐の質量制御の可能性を示唆した。この結果は、表面ディラック物質に強磁性体を接合するという比較的簡便な方法で、強磁性トポロジカル絶縁体と比べて遥かに大きい質量をディラック電子に付与できることを実験的に示した。

さらに、Fe/MgO/Fe のトンネル接合素子における Fe と MgO の界面電子状態の参照系として、酸素吸着 Fe(110)表面のスピン分解 ARPES を行い、minority にスピン偏極した表面バンドが、酸素吸着によりバルクバンドギャップ内に形成されることを見出した。第一原理計算との比較から、Fe3d と O 2p の混成電子状態であること、またこの酸素吸着による表面において垂直磁気異方性が現れると結論した。

(4) 1 次元エッジ状態の ARPES 観測

ARPESによりBi薄膜のエッジ構造に由来する1次元電子バンドの観測に成功した。薄膜のエッジ領域に局在した電子状態は、一次元のナノスケール領域に量子的に閉じ込められ、その空間反転対称性の破れの帰結としてスピン軌道相互作用による有効磁場は、運動方向(y)に直交する2方向(x,z)の成分を持つ事が期待される。エッジ状態のような存在比の圧倒的に小さい電子状態を他と分離して観測することは大変困難な問題であったが、本研究で改造したスピン分解光電子分光装置の高い測定効率と高分解能を活かすことでこの困難を克服し、Bi薄膜のエッジ状態のスピン偏極度の観測に成功した。このBiエッジ状態は大きなスピン偏極を持つ量子細線として、トポロジカルに非自明な超伝導状態やマヨラナ準粒子などのエキゾチック量子相の発現やスピントロニクス素子などへの応用が期待される。

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20件)

- (1) Y. Satake, J. Shiogai, D. Takane, K. Yamada, K. Fujiwara, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, and A. Tsukazaki, Fermi-level tuning of the Dirac surface state in $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Se}_3$ thin films, *J. Phys.: Condens. Matter.*, 査読有, 30, 2018, 085501/1-6, DOI: 10.1088/1361-648X/aaa724
- (2) D. Takane, K. Nakayama, S. Souma, T. Wada, Y. Okamoto, K. Takenaka, Y. Yamakawa, A. Yamakage, T. Mitsuhashi, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Takahashi, and T. Sato, Observation of Dirac-like energy band and ring-torus Fermi surface associated with the nodal line in topological insulator CaAgAs , *npj Quantum Materials*, 査読有, 3, 2018, 1-1-6, DOI: 10.1038/s41535-017-0074-z
- (3) S. Souma, K. Honma, T. Sato, M. Tsujikawa, M. Shirai, and T. Takahashi, Emergence of undulating surface band upon oxygen adsorption of Fe thin film on $\text{W}(110)$, *Appl. Phys. Lett.*, 査読有, 111, 2017, 241603/1-4, DOI: 10.1063/1.5017484
- (4) H. Oinuma, S. Souma, D. Takane, T. Nakamura, K. Nakayama, T. Mitsuhashi, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Yoshida, A. Ochiai, T. Takahashi, and T. Sato, Three-dimensional band structure of LaSb and CeSb : Absence of band inversion, *Phys. Rev. B*, 査読有, 96, 2017, 041120R/1-5, DOI: 10.1103/PhysRevB.96.041120
- (5) K. Nakayama, M. Kuno, K. Yamauchi, S. Souma, K. Sugawara, T. Oguchi, T. Sato, and T. Takahashi, Band splitting and Weyl nodes in trigonal tellurium studied by angle-resolved photoemission spectroscopy and density functional theory, *Physical Review B*, 査読有, 95, 2017, 125204, DOI: 10.1103/PhysRevB.95.125204.
- (6) 相馬清吾「物質の中のワイル粒子(特集物理科学, この一年)-物性物理」*パリティ*, 査読有, 32, 2017, 28-30
- (7) D. Takane, Z. Wang, S. Souma, K. Nakayama, C. X. Trang, T. Sato, T. Takahashi, and Y. Ando, Dirac-node arc in the topological line-node semimetal HfSiS , *Physical Review B*, 査読有, 94, 2016, 121108, DOI:10.1103/PhysRevB.94.121108
- (8) D. Takane, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, K. Segawa, and Y. Ando, Work function of bulk-insulating topological insulator $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$, *Appl. Phys. Lett.*, 査読有, 109, 2016, 091601, DOI:10.1063/1.4961987
- (9) C. X. Trang, Z. Wang, D. Takane, K. Nakayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, A. A. Taskin, and Yoichi Ando, Fermiology of possible topological superconductor $\text{Tl}_{0.5}\text{Bi}_2\text{Te}_3$ derived from hole-doped topological insulator, *Physical Review B*, 査読有, 93, 2016, 241103(R), DOI:10.1103/PhysRevB.93.241103
- (10) S. Souma, L. Chen, R. Oszwaldowski, T. Sato, F. Matsukura, T. Dietl, H. Ohno and T. Takahashi, Fermi level position, Coulomb gap, and Dresselhaus splitting in $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, *Scientific Reports*, 査読有, 6, 2016, 27266, DOI:10.1038/srep27266
- (11) S. Souma, Z. Wang, H. Kotaka, T. Sato, K. Nakayama, Y. Tanaka, H. Kimizuka, T. Takahashi, K. Yamauchi, T. Oguchi, K. Segawa, and Y. Ando, Direct Observation of Nonequivalent Fermi-Arc States of Opposite Surfaces in Noncentro-symmetric Weyl Semimetal NbP , *Physical Review B*, 査読有, 93, 2016, 161112(R), DOI:10.1103/PhysRevB.93.161112
- (12) C. X. Trang, Z. Wang, K. Yamada, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, K. Segawa, and Y. Ando, Metal-insulator transition and tunable Dirac-cone surface state in topological insulator $\text{TlBi}_{1-x}\text{Sb}_x\text{Te}_2$ studied by ARPES, *Physical Review B*, 査読有, 93, 2016, 165213, DOI:10.1103/PhysRevB.93.165213
- (13) Bulk superconducting gap of V_3Si studied by low-energy ultrahigh-resolution photoemission spectroscopy, T. Sato, S. Souma, K.

- Nakayama, K. Sugawara, N. Toyota, and T. Takahashi, J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 査読有, 208, 2016, 40-42, DOI:10.1016/j.elspec.2015.04.009
- (14) H. Honma, T. Sato, S. Souma, K. Sugawara, Y. Tanaka, and T. Takahashi, Switching of Dirac-fermion mass at the interface of ultrathin ferromagnet and Rashba metal, Physical Review Letters, 査読有, 115, 2015, 266401, DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.266401
- (15) K. Nakayama, H. Kimizuka, Y. Tanaka, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, S. Sasaki, K. Segawa, and Y. Ando, Observation of two-dimensional bulk electronic states in superconducting topological insulator heterostructure $\text{Cu}_x(\text{PbSe})_5(\text{Bi}_2\text{Se}_3)_6$: implications for unconventional superconductivity, Physical Review B, 査読有, 92, 2015, 100508(R), DOI:10.1103/PhysRevB.92.100508
- (16) Spin- and valley-coupled electronic states in monolayer WSe_2 on bilayer graphene, K. Sugawara, T. Sato, Y. Tanaka, S. Souma, and T. Takahashi, Appl. Phys. Lett., 査読有, 107, 2015, 071601. DOI: 10.1063/1.4928658
- (17) Rashba effect of bismuth thin film on silicon studied by spin-resolved ARPES, A. Takayama, T. Sato, S. Souma, and T. Takahashi, J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 査読有, 201, 2015, 105-109, DOI: 10.1016/j.elspec.2014.11.002
- (18) Topological proximity effect in a topological insulator hybrid, T. Shoman, A. Takayama, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, T. Oguchi, Kouji Segawa, Yoichi Ando, Nature Commun., 査読有, 6, 2015, 6547-1-6, DOI: 10.1038/ncomms7547
- (19) A. Takayama, T. Sato, S. Souma, T. Oguchi, and T. Takahashi, One-dimensional edge states with giant spin splitting in Bismuth thin film, Phys. Rev. Lett., 査読有, 114, 2015, 066402-1-5, DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.066402
- (20) A. Takayama, T. Sato, S. Souma, and T. Takahashi, Rashba effect in antimony and bismuth studied by spin-resolved ARPES, New J. Phys., 査読有, 16, 2014, 055004-1-10, DOI:10.1088/1367-2630/16/5/055004
- 〔学会発表〕(計 65 件) 以下は主なりスト)
- (1) 相馬清吾, 高分解能 ARPES でみる高機能磁性材料の微細電子構造(招待講演), 東北大学電気通信研究所 共同プロジェクト研究会, 仙台市, 2018 年 1 月 26 日
- (2) 相馬清吾, 放射光を用いたトポロジカル半金属の電子構造(招待講演), PF 研究会「次世代光源で拓かれる光電子分光研究の将来展望」, つくば市, 2017 年 10 月 6 日
- (3) Seigo Souma, Electronic structure of topological semimetal (invited), MaHoJeRO-Symposium, Mainz (Germany), Sep. 8th, 2017
- (4) Seigo Souma, Electronic structure of topological point- and line-node semimetals”(invited), Frontier Materials Science (FMS2017), Greifswald (Germany), Sep. 5th, 2017
- (5) 相馬清吾, 新型トポロジカル物質ワイル半金属の ARPES (招待講演), 第 61 回スピニエレクトロニクス専門研究会, 仙台, 2017 年 1 月 10 日
- (6) 相馬清吾, 高分解能 ARPES で見たワイル半金属の電子構造(招待講演), 新学術領域「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」第 2 回領域研究会, 仙台, 2016 年 12 月 16 日
- (7) Seigo Souma, Electronic band structure near the Fermi level of (Ga,Mn)As: High-resolution ARPES (invited), 14th RIEC International Workshop on Spintronics, Tohoku Univ., Sendai, Nov. 17th, 2016
- (8) 相馬清吾, ワイル半金属候補物質の高分解能 ARPES(招待講演), 新学術領域「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」第 5 回トポロジー連携集中研究会「ワイル半金属・超伝導体」, 仙台, 2015 年 11 月 6 日
- (9) Seigo Souma, Direct observation of spin in materials by photoemission spectroscopy (invited), 12th JGFoS symposium, Kyoto Brighton Hotel (Kyoto), Oct. 1, 2015
- (10) Seigo Souma, Spin-resolved ARPES of three-dimensional topological insulators, Condensed Matter Seminar, Ames Laboratory, USA, Oct. 30th, 2014
- (11) 相馬清吾, スピン分解 ARPES で見たトポロジカル絶縁体の表面ディラック電子状態(招待講演), 第 59 回物性若手夏の学校, 浜松, 2014 年 7 月 31 日
- (12) 相馬清吾, 三次元トポロジカル絶縁体のスピン分解 ARPES(招待講演), 新学術領域「対称性の破れた凝縮系におけるトポロジカル量子現象」第 17 回連携集中研究会, 大阪大学, 2014 年 7 月 23 日
- (13) 相馬清吾, 高分解能 ARPES で探るトポロジカル絶縁体の表面ディラック電子状態(招待講演), 第 33 回電子材料シンポジウム, 修繕寺, 2014 年 7 月 9 日
- 〔その他〕
ホームページ等
<https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/research/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

相馬 清吾 (SOUMA, Seigo)
東北大学・スピントロニクス学術連携研究
教育センター・准教授
研究者番号：20431489

(2)連携研究者

高山 あかり (TAKAYAMA, Akari)
東京大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号：70722338