

■第18回日本放射光学会奨励賞受賞研究報告

スピン分解光電子分光を用いたディラック電子系の先駆的研究

宮本幸治 (広島大学放射光科学研究センター)

1. はじめに

近年、エレクトロニクスの微細化・集積化も理論限界に近づき、電子の電荷とスピンの両方を制御する次世代技術スピントロニクスが注目を集めている。特に、スピンを揃えて物質中を動くディラック電子を持つ物質が有力な材料候補となっている。その有力候補の一つであるトポロジカル絶縁体は、強いスピン軌道相互作用とエッジ（表面）の空間反転対称性の破れが起因となり、バルクバンドギャップ中に「スピン偏極ディラック電子」が生じる特殊な物質である¹⁻⁴。このスピン偏極ディラック電子のスピン方向は、理想的な場合、結晶面内でかつ運動量に対して垂直に固定される。また、時間反転対称性が守られる事から、それとは反平行に運動する電子は、反平行スピンをもって移動するという特殊な性質を持つ [Fig. 1(a) 参照]。これらの性質のおかげで、通常のラシュバ効果と比べ、格子欠陥や非磁性不純物による電子の後方散乱が抑制され、電子及びスピンの緩和調が飛躍的に増大する事が期待されている。そのため、超低消費電力が実現できるスピントロニクスデバイス材料として大きな期待が寄せられている。

しかし、実際の物質では、「表面結晶構造の対称性」が電子構造だけではなくスピン構造にも影響を与えることが分かってきた。また、これまで発見されたディラック電子

系の物質は、ほとんどが3回対称性 (C_{3v}) の表面結晶構造をもった sp 電子系の物質である。その特徴は、六角形の異方的な「ディラック・コーン」が発生し、面内スピンと同時に、面直スピン成分が出現するといった、いわゆる、ワーピング効果というものが生じる事である^{4,5}。この面直スピン成分の出現が、新たな散乱パスを生み、スピン緩和長を短くする要因とされ、デバイスの実用化の足枷の一つであった。そのため、これまでの研究では、出来るだけ理想的なディラック・コーンをもつ物質が求められてきた⁶⁻⁸。本稿では、固体中の電子のエネルギー、運動量、スピンといった自由度を直接観測できるスピン分解光電子分光法を用いて、「結晶表面構造の2回対称性」と「ディラック電子の電子スピン構造」との関連について深く研究を行ったタングステン(110)面の電子スピン構造の研究^{9,10} および、絶縁性の高いトポロジカル絶縁体 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ の詳細な電子スピン構造に関する研究¹¹ を紹介する。

2. スピン角度分解光電子分光

角度分解光電子分光 (ARPES) は、高分解能エネルギー分析器を用いて、光電子のエネルギーと放出角度を分析することで、固体中の電子の運動量、エネルギーを可視化できるという非常に有力な手法である。また、同時に光電子の脱出深度が非常に浅く、表面に敏感な実験手法であるため、表面電子状態を観測するにはうってつけである。スピン角度分解光電子分光は、通常角度分解光電子分光にスピン検出機能をもったスピン検出器をエネルギー分析器の後ろに取り付けた装置構成となり、表面状態のスピン電子構造を直接観測するのに非常に有力な実験手法である。

スピンを分離する原理や装置の詳細については、紙面の都合上、その他の解説書に譲りたいと思う¹²⁻¹⁴。ともあれ、広島大学放射光科学研究センターで筆者は学部時代からこのスピン角度分解光電子分光装置の開発を携わり、Mott 散乱を利用した Mott スピン検出器¹⁵ や強磁性体ターゲットを利用することで Mott スピン検出器の100倍の効率をもつ低速電子線回折型スピン検出器 (VLEED スピン検出器) を開発・改良してきた¹⁶。本研究では、スピン偏極ディラック電子のスピン構造を明らかにするため、我々が独自に開発したこれらのスピン分解光電子分光装置を用いて研究を行った。

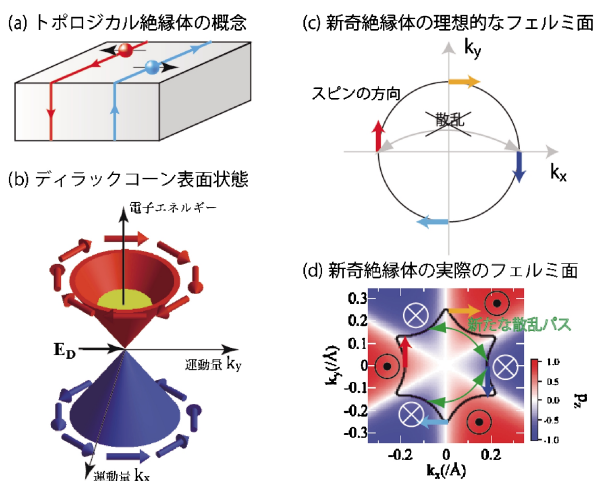


Fig. 1 (Color online) (a) Spin current flow at surface state of 3 dimensional topological insulator (3D-TI) (b) Ideal Dirac cone with helical spin texture on surface of 3D-TI. (c) Elastic scattering on ideal 3D-TI surface is shown. Here, spin directions are denoted with arrows. (d) Elastic scattering on Dirac cones with warping effect of C_{3v} symmetry.

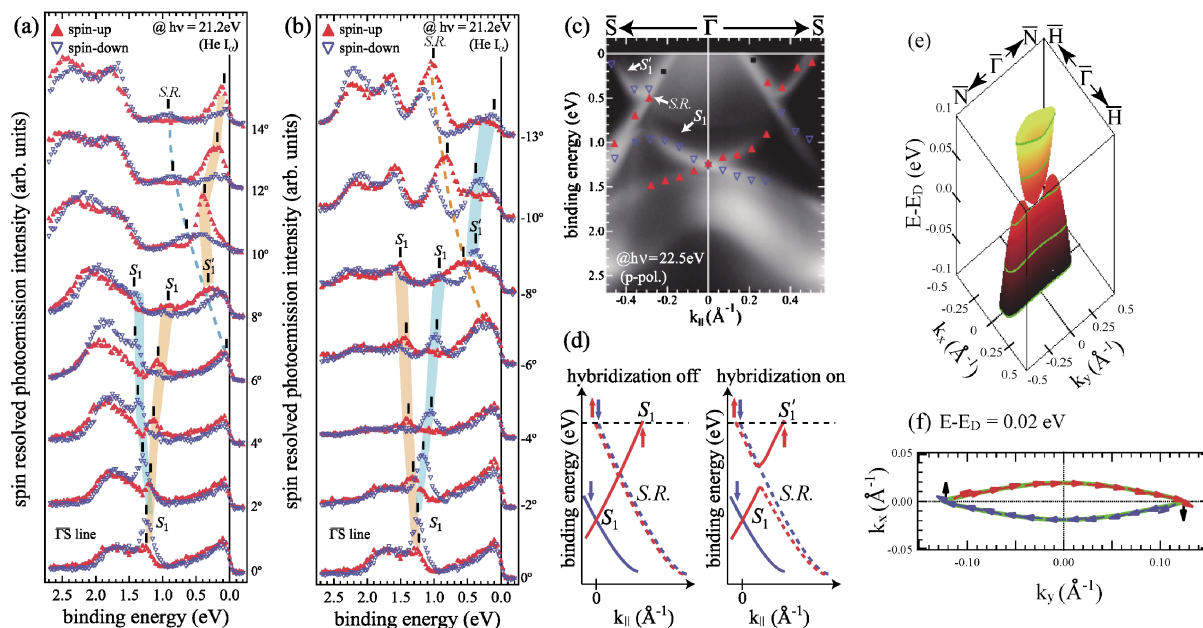


Fig. 2 (Color online) (a), (b) Spin-resolved energy distribution curves for positive and negative emission angles along the $\Gamma\bar{S}$ line excited with unpolarized He I α light ($h\nu=21.2\text{ eV}$). Spin-up and spin-down intensities are marked with triangles pointing-up (red) and -down (blue). (c) ARPES results obtained by p -polarized synchrotron radiation light ($h\nu=22.5\text{ eV}$). The contour plot is superimposed by triangles pointing-up and -down indicating the spin character of the corresponding spectral features, as derived from spin-resolved spectra in Figs. 4(a) and 2 (b). Here, the non spin-polarized peaks are denoted by squares (black). (d) Schematic E vs k_{\parallel} dispersion of S_1 and S.R. states without and with spin-selective hybridization. (e) Energy contours of the surface state S_1 as function of k_x , k_y for energies around the crossing point (E_D) based on the model calculation. (f) spin texture for the constant energy surface (solid line) at 20 meV above E_D obtained from the model.

3. W(110)のスピンの偏極した異方的ディラック表面電子の観測

W(110)は、40年以上前から研究が行われてきた表面であり、高い表面エネルギーをもつため、ナノ構造体を作成する上での基板として使用されてきた。また、スピン軌道相互作用が強く作用する典型的な表面系として古くからよく知られてきた。つまり、W(110)の表面ではRashba効果などにより、非磁性体でもスピン偏極した電子構造を持つことが期待される。しかし、不思議な事に電子スピン構造の研究は行われていない。また、W(110)は、これまで観測されてきたRashba効果およびトポロジカル絶縁体の3回対称性をもつsp電子系とは異なり、2回対称性の表面結晶構造を持った5d電子系である。実は、対称性によりスピン構造が変化することがここ最近の研究で明らかになってきたが、2回対称性については不明であった。

本研究では、3つの特徴的な表面電子構造(S_1 , S'_1 , S.R.)を観測した。このうち、 S_1 バンドは直線的なディラック・コーン型のバンド分散を示している。この S_1 バンドについてスピン構造を明らかにするため、Mott-spin検出器型のスピン分解光電子分光装置で実験を行った結果をFig. 2(a), (b)に示す。ここで、スピンアップとスピンドアウンスペクトルをそれぞれ上向き三角形(\blacktriangle)、下向き三角形(\blacktriangledown)で表している。垂直光電子放出角(θ)のはスピンア

ップ・ダウンの両スペクトルにおいて、フェルミ準位(E_F)近傍と $E_B=1.25\text{ eV}$, 1.8 eV にピークが観測された。このうち 1.25 eV の構造は、 S_1 バンドに対応し、 θ を大きくしていくと、スピンアップピークは E_F に近づき、スピンドアウンピークは高束縛エネルギー側にシフトしていることが分かる。それと同時に、それらの強度も減少している。 $\theta=8^\circ$ になると、スピンアップスペクトルの約 0.4 eV 付近に S'_1 のピークが出現する。 $\theta>8^\circ$ になると S_1 の構造が完全に消失し、それまで、スピンアップとスピンドアウンの両スペクトルで観測されたS.R.バンドがスピンドアウンスペクトルのみに観測されている。この特徴を明確にするために、高分解能ARPESで測定したARPESイメージの図にスピンアップとスピンドアウンの S_1 , S'_1 , S.R.の構造に対応したピーク位置をプロットしたものを示す[Fig. 2(c)]。この一見複雑な電子スピン構造は、スピン依存混成が生じていると考えれば理解できる。その概略図をFig. 2(d)に示す。理解しやすくするために、混成がない場合の概略図も示している。まずは、混成がない場合を見てみよう。スピン偏極したディラック・コーン型の S_1 バンドと非常に小さなスピン分裂した、もしくは、スピン偏極していないS.R.バンドが単純に交差する。一方、混成を考えると、一般的にスピン平行同士のバンドは混成するが、スピン軌道相互作用による混成でない限りスピンの異なるバンドは

混成しない。従って、 S_1 バンドと平行なスピンをもち S.R. バンドが混成をし、バンドギャップが生じ、 S'_1 が生じる。それとは半平行なスピンをもち S.R. バンドは混成をする事なく混成前と変化しない。このような解釈であれば実験結果をうまく説明できる。この解釈から、もし、S.R. バンドのみが消失したならば S_1 バンドは混成する事なく、 S'_1 も生じないはずである。このような状況は、H/W(110)で生じており、確かに、 S_1 バンドは E_F まで連続的につながっていることが、参考文献¹⁷⁾から明らかである。つまり、W(110)のスピンの偏極ディラック電子は、混成によりバンドが途切れているように見えるが、実は、フェルミ準位を横切るバンドであり、表面物性に影響を与える電子状態であるという事である。

ここで、トポロジカル絶縁体のディラック電子でよく用いられる $k \cdot p$ 摂動論をもとに、 C_{2v} 対称性の有効ハミルトニアンを導き、これを用いて実験で得られたバンドを再現した。Fig. 2(e)と(f)は、この計算によって得られた電子構造並びにスピンの構造を示している。この電子構造は、ディラック・コーンを一方向に潰した扁平なディラック・コーンを形成し、電子スピン構造は、ほぼ $\bar{\Gamma}\bar{N}$ 方向に平行か反平行のスピンの成分をもつ。この場合、スピンの平行成分が非常に少ないため後方散乱が強く抑制され、理想的なディラック電子系よりもさらにスピンの緩和長が増大すると期待される。これまでのトポロジカル絶縁体の研究では、 C_{3v} 対称性の表面結晶構造の物質が多く研究され、理想的なディラック電子系を探索する事が基本方針であった。本研究では、理想的なディラック電子系よりも C_{2v} で異方的なディラック電子系の方が応用においては非常に有益であるという重要な結果が得られ、今後の試料作成の指針を与えるものと考えられる。

4. トポロジカル絶縁体 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ のトポロジカル表面電子のスピンの偏極度

これまで、多くのトポロジカル絶縁体が ARPES や Spin-ARPES などで研究されてきたが、その多くは絶縁性が悪くマクロな電気伝導測定では、トポロジカル表面状態のシグナルを観測できていなかった。トポロジカル絶縁体 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ はバルク絶縁性を向上させる事に成功し、輸送特性から表面由来の電気伝導特性が初めて観測された物質である¹⁸⁾。すでに、ARPES 測定は行われ¹⁹⁾、単一のディラック・コーンを持つ事はわかっていたが、スピントロニクス材料の観点から重要なスピン構造及びスピンの偏極度の大きさについては不明であった。一般に、トポロジカル表面状態のバンド分散は非常に急峻なことが多く、検出効率の悪い従来の Mott 型スピン検出器を利用したスピン角度分解光電子分光装置では、正確にスピン構造を観測することはできない。そこで、本研究では、近年、我々が立ち上げに成功した VLEED 型 spin-ARPES 装置 (ESPRESSO) を用いて、 $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ のトポロジカル表面状態のスピン構

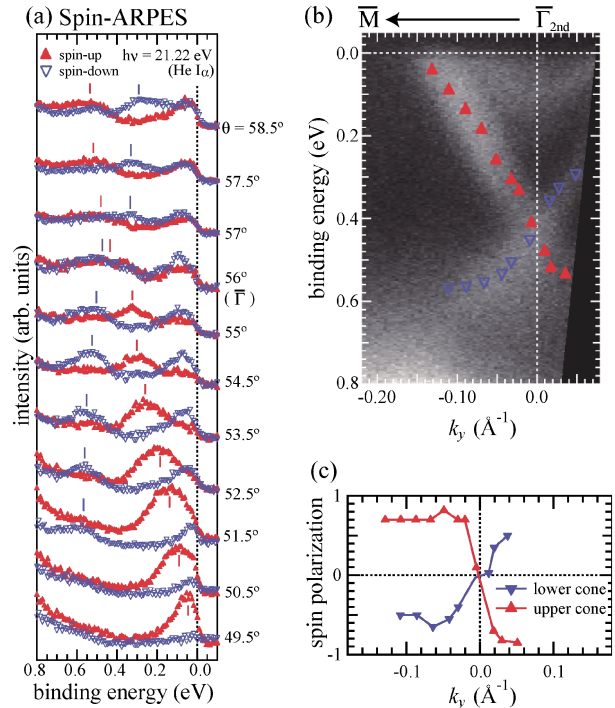


Fig. 3 (Color online) (a) spin-resolved energy distribution curves (EDCs) of $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ along $\bar{\Gamma}\bar{M}$ line taken with unpolarized He I α radiation. (b) E-k mapping by ARPES measurement. The spin characters obtained from spin resolved spectra in Fig. 3(a). (c) Triangles pointing up (red) and down (blue) show experimental spin polarization for the upper and lower parts of the TSS. Here, k_y is measured from the $\bar{\Gamma}_{2nd}$ point.

造の観測を試みた。

Fig. 3を見てほしい。Fig. 3(a)は、 $h\nu = 21.22$ eV の He 励起光源を用いて得られた $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ のスピン分解 EDC スペクトルを示している。ここで、スピンアップとスピンドアウンスペクトルはそれぞれ上向き三角 (\blacktriangle) と下向き三角 (\blacktriangledown) で表示した。 $\theta = 49.5^\circ$ のスペクトルでは、 E_F 近くに単独のアップスピンピークが存在し、高角度になるに従って、高結合側へピークがシフトしている。一方、 $\theta = 51.5^\circ$ でダウンスピンピークが現れ、そのピークが、高角度になるに従って、低結合側へシフトしている。 $\bar{\Gamma}_{2nd}$ 点に対応する $\theta = 56^\circ$ で、これらのアップスピンとダウンピークは、ほぼ同じエネルギー位置に存在している。本研究で観測した表面状態は、 $\bar{\Gamma}$ 点に対して、スピン方向が反対称になっていることは TSS の特徴を反映している。さらに、 $\theta = 53.5^\circ - 58.5^\circ$ の EDC スペクトルで、 E_F 近傍に現れたバルクバンドの構造が、アップスピンスペクトルの強度よりダウンスピンスペクトルの強度の方が大きく偏極しているように見える。ここで注意してもらいたいのは、このピーク構造は $\bar{\Gamma}$ 点を中心にスピンが反転していない点である。従って、このスピン偏極度は、スピン軌道相互作用が働いている系でよく見られる終状態効果から生じた事を意味する^{20,21)}。

ここで、Fig. 3(a)のスペクトルから二次電子のバックグラウンドの強度を引いて求めたスピン偏極度の波数依存性をまとめたものをFig. 3(c)に示す。ここで、 E_D 上部と下部のスピン偏極度をそれぞれ、上向き三角(▲)と下向き三角(▼)で表している。Bi₂Te₂Seの結果を見ると、フェルミ準位近傍のスピン偏極度は75%であり、これは、異なる励起エネルギーでも同様の結果を得ている。この結果から、Bi₂Te₂Seは E_D 上部だけでなく下部においても非常に高いスピン偏極度(P>50%)を示し、 E_D 近傍まで高スピン偏極度を維持しているという事である。この理想的な特徴を持つトポロジカル表面状態は、例えば、トポロジカルpn接合やデュアルゲートトポロジカルデバイスの応用に多様性を与えてくれるものと期待される^{22,23)}。

5. まとめと今後の展開

本稿では、独自に開発したスピン分解光電子分光装置を用いてディラック電子をもつW(110)やトポロジカル絶縁体Bi₂Te₂Seの電子構造に関する研究を報告した。近年、トポロジカル絶縁体などの新奇物質が現れ、スピン分光電子分光測定の欲求が高まってきている。特に、今後は強相関物質などのスピン分解測定の研究が展開される事が予想され、より高効率で測定できるスピン検出器が必要になってくると思われる。現状では、スピン検出器はシングルチャンネルでの測定がほとんどであり、今後、汎用性が高くかつマルチチャンネル型の高効率スピン検出器の開発が必要不可欠である。より深くスピン依存した物性を理解するため、マルチチャンネル型高効率スピン検出器の開発を行いつつ、空間反転対称性の破れた物質をはじめ、さらに、時間反転対称性を破った物質系や、4f電子に代表される強相関物質について研究を行っていきたいと考えている。

謝辞

本研究では多くの方々にご指導・ご支援をして頂きました。スピン分解光電子分光装置の立ち上げには、奥田准教授(広大放射光セ)、喬教授(現:中国科学院)に大変お世話になりました。また、木村准教授(広大院理)、谷口教授(広大院理・広大放射光セ)には、学生時代から現在に至るまで、研究全般にわたってお世話になりました。高品質の単結晶は、Oleg E. Tereshchenko准教授(ノボシビルスク大)より提供して頂きました。議論に関しては、Markus Donath教授(ミュンスター大)、Eugene Chulkov(ドノスティヤ国際物理研)、島田教授(広大放

射光セ)、岩澤助教(広大放射光セ)にご協力を頂きました。最後に、スピン分解光電子分光装置の開発には、多くの学生の支援によることも大きく、この場を借りて、深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) L. Fu and C. L. Kane: Phys. Rev. B **76**, 045302 (2007).
- 2) L. Fu, C. L. Kane and E. J. Mele: Phys. Rev. Lett. **98**, 106803 (2007).
- 3) X. L. Qi, T. L. Hughes and S. C. Zhang: Rev. B **78**, 195424 (2008).
- 4) M. Z. Hasan and C. L. Kane: Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
- 5) S. Souma *et al.*: Phys. Rev. Lett. **106**, 216803 (2011).
- 6) K. Kuroda *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 076802 (2010).
- 7) K. Kuroda *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 146801 (2010).
- 8) T. Sato *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 136802 (2010).
- 9) K. Miyamoto *et al.*: Phys. Rev. Lett. **108**, 066808 (2012).
- 10) K. Miyamoto *et al.*: Phys. Rev. B **86**, 161411(R) (2012).
- 11) K. Miyamoto *et al.*: Phys. Rev. Lett. **109**, 168802 (2012).
- 12) J. Kessler: *Polarized Electrons*, Springer (1976).
- 13) 奥田太一, 武市泰男, 柿崎明人: 日本物理学会誌 **65**, 849 (2010).
- 14) 奥田太一: 表面科学会 **30**, 312 (2009).
- 15) K. Iori *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **77**, 013101 (2009).
- 16) T. Okuda *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **82**, 103302 (2011).
- 17) Z. Ren *et al.*: Phys. Rev. B **82**, 241306(R) (2010).
- 18) T. Arakane *et al.*: Nature Commun. **3**, 636 (2012).
- 19) E. Rotenberg *et al.*: New. J. Phys. **10**, 023002 (2008).
- 20) R. Feder: *Polarized Electrons in Surface Physics*, World Scientific, Singapore (1985).
- 21) C. M. Schneider *et al.*: Phys. Rev. B **39**, 1031 (1989).
- 22) J. Wang *et al.*: Phys. Rev. B **85**, 235131 (2012).
- 23) O. V. Yazyev *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 266806 (2010).

● 著者紹介 ●



宮本幸治

放射光科学研究センター 助教

E-mail: kmiyamoto@hiroshima-u.ac.jp

専門: 固体物性, スピン分解光電子分光, 表面物性

【略歴】

2008年3月広島大学理学研究科博士課程終了, 博士(理学)。2008年4月-2010年3月広島大学放射光科学研究センター, 研究員。2010年4月から現職。