

令和 元 年 10 月 17 日

海外特別研究員最終報告書

独立行政法人 日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 2018 年度

受付番号 201860037

氏 名

坂本祥哉

(氏名は必ず自署すること)

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。

なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

記

1. 用務地（派遣先国名）用務地： スタンフォード大学 （国名： アメリカ合衆国 ）
2. 研究課題名（和文）※研究課題名は申請時のものと変わらないように記載すること。
スピントロニクス材料の時間分解、スピン分解、角度分解光電子分光
3. 派遣期間： 平成 30 年 4 月 11 日 ～ 令和 元年 9 月 19 日
4. 受入機関名及び部局名
スタンフォード大学 物理学科
5. 所期の目的の遂行状況及び成果…書式任意 **書式任意 (A4 判相当 3 ページ以上、英語で記入也可)**
(研究・調査実施状況及びその成果の発表・関係学会への参加状況等)
(注)「6. 研究発表」以降については様式 10-別紙 1~4 に記入の上、併せて提出すること。

【Time-of-Flight 型スピン分解角度分解光電子分光(SARPES)】

この派遣では、Time-of-Flight (TOF) 型のスピン分解角度分解光電子分光(SARPES)を用いたスピントロニクス材料の研究を目的とした。従来の静電半球型のSARPES装置では、ある特定の角度に特定のエネルギーで放出された光電子のスピンしか分解できず、検出効率が低く測定に長時間かかることが大きな問題であった。本研究のTOF型のSARPES装置では、光電子のエネルギーを検出器までの到達時間として測定することで、ある特定の角度に放出された電子のスピンエネルギー依存性を一度に測定することができる。さらにスピン検出器として、従来のMott検出器でなく、強磁性体の薄膜によるExchange Scatteringを利用した検出器を用いることで、スピン検出効率をさらに高めている。

初めの一年は主に新規装置の立ち上げに従事した。派遣開始時には、スピン分解しない通常の光電子スペクトルがかろうじて測定できるだけの状態であったが、派遣終了までに高品質のスピン分解光電子スペクトルの測定が可能となった。下記が当時抱えていた主な問題とその解決方策である。

- スペクトルが歪んでいる。
試料マニピュレータの一部部品が帯電することで作られる漏れ電場の影響により、光電子の軌道が大きく影響を受けていることがわかった。適切なシールドを作成し、それを取り付けることで、歪みのないスペクトルを得ることに成功した。
- スペクトルが従来の静電半球を用いた光電子分光スペクトルに比べ、鮮明でない。
レーザーのスポットサイズが試料上で $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ と小さくないことから、スペクトルが非鮮明になっていることが原因と推測された。適切に光学系をデザインし、スポットサイズを $30 \times$

30 μm^2 程度までしぼることで、静電半球型の ARPES スペクトルと同程度かそれ以上の品質のスペクトルを得ることができた。

- タングステン基板上に成長したコバルト薄膜がスピフィルターとして、機能しない。
この装置では、強磁性薄膜の電子の反射率がスピンの向きと強磁性モーメントの相対的な向きに依存して変化することを利用して、スピン検出を行っている。しかしながら、本装置で使用するタングステン上のコバルト薄膜において、長い間スピフィルター効果が確認できていなかった。この解決のために、散乱チャンバーをそのまま低速電子線回折 (LEED) 装置へ移設し、実際の成長条件を保ちながら、その薄膜の品質評価を行った。LEED 測定の結果によると、タングステン基板の表面の状態が、非常にアニール温度に敏感で、少しの温度の違いで炭化物や酸化物が表面に形成されることがわかった。この実験を元に得られた条件で基板をアニールし、コバルト薄膜を成長することによって、効率の良いスピフィルター効果を実現した。
- その場解析用のソフトウェアの開発。
測定の円滑化のために、その場解析用のプログラムを構築した。これによって、上記の問題の解決も含め、作業の効率化ができた。

図 1 に測定したトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 のスピン分解していない通常の光電子スペクトルとスピン分解したスペクトルを示す。上記の課題を解決することで、派遣終了時までに非常に質の高いスピン分解光電子スペクトルを効率的に測定することが可能になった。

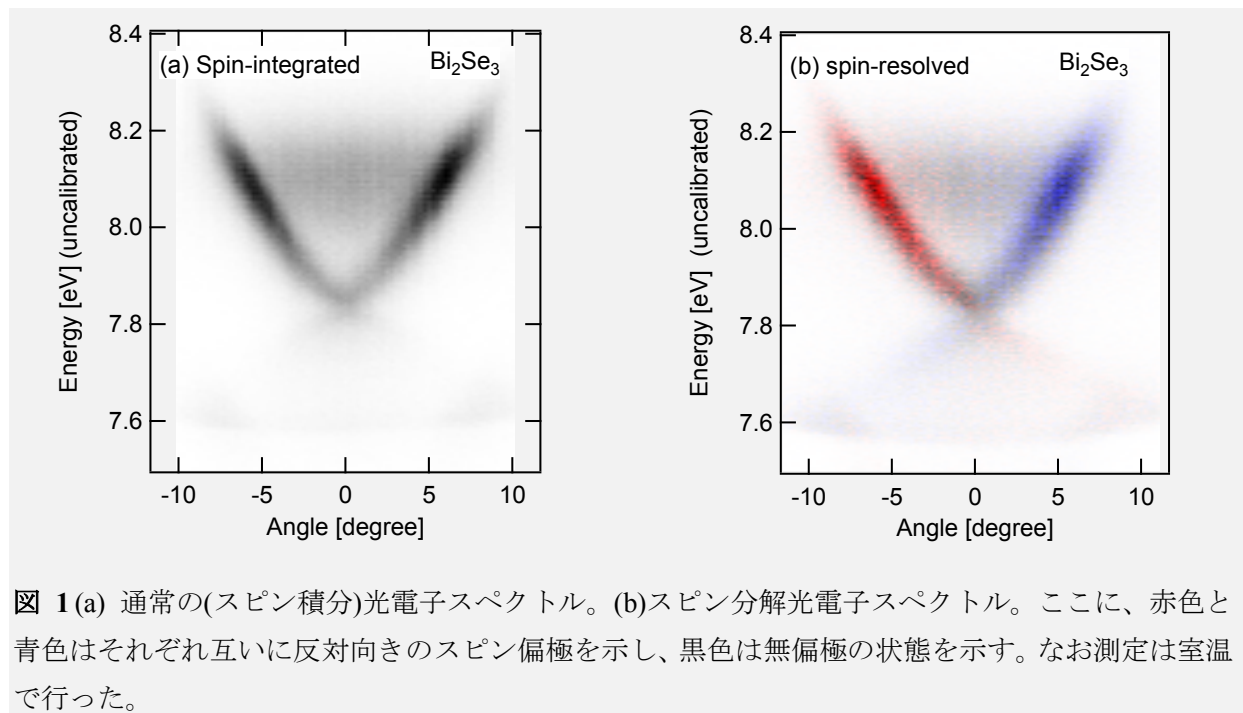


図 1 (a) 通常の(スピン積分)光電子スペクトル。(b)スピン分解光電子スペクトル。ここに、赤色と青色はそれぞれ互いに反対向きのスピン偏極を示し、黒色は無偏極の状態を示す。なお測定は室温で行った。

図 2 は、 $\text{Sb}(111)$ 表面に対して行なった SARPES 実験の結果である。 Sb はラッシュバ分裂した表面状態をもち、表面面内方向かつ波数ベクトルと垂直にスピン偏極することが知られている。図 2(a) は $\text{Sb}(111)$ 面内方向のスピンを測定した SARPES スペクトルである。よく知られている通り、 Γ 点を中心としてスピンの向きが反転していることがわかる。一方、図 2(b) には表面に垂直なスピンの成分を測定したスペクトルであるが、こちらは予想に反し有限のスピン偏極が観測された。これはバルクのバンドとの混成の結果として理解可能であると思われ、現在理論計算による再現を試みている。

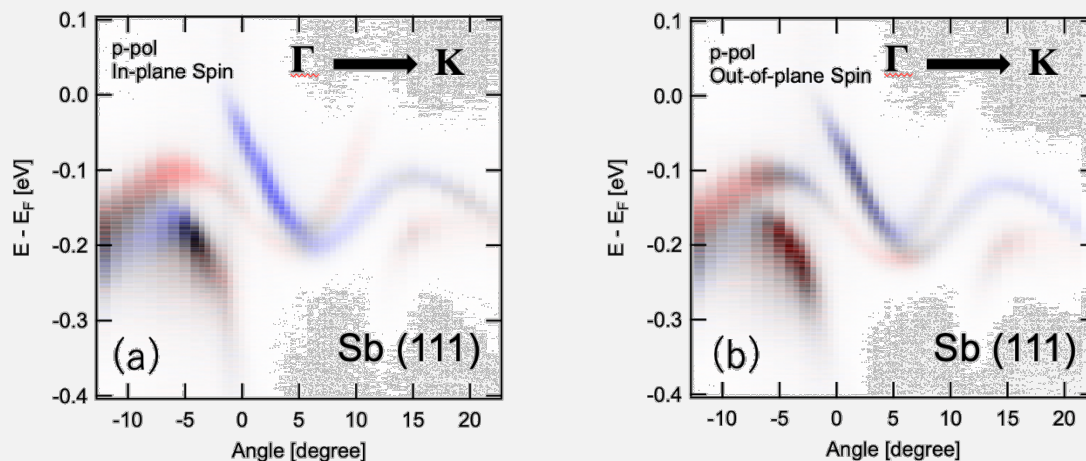


図 2 Sb(111) 表面のスピ分解光電子スペクトル。(a) Sb(111) 表面面内方向成分のスピ S_y を示す。(b) Sb(111) 表面面内方向成分のスピ S_z を示す。赤色と青色はそれぞれ互いに反対向きのスピンを示す。

【トポロジカル半金属 Sb の時間分解角度分解光電子分光(TrARPES)】

上記した装置の開発に主に従事した一方で、既存の装置を用いて Sb(111)表面の TrARPES の実験も行なった。Sb はラシュバ型のスピ偏極した表面状態をもつが、その二つのバンドはそれぞれ価電子帯と伝導帯に接続し、トポロジカル表面状態であるとされる。以前行われたトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 に対して行われた TrARPES 実験では、ポンプ光により励起されたフォノンによって表面バンドがバルクバンドと同じように強く振動し、その表面バンドの振動にはバルクバンドにはない振動モードが存在することが明らかになった[1]。一方で Sb に構造や電子構造の似た Bi においては表面のバンドはバルクに比べ、ほとんど振動しないことが報告されている[2]。本実験では Sb の表面バンドとバルクバンドのフォノン応答、特に、表面バンドがバルクバンドに接続するにつれ、そ

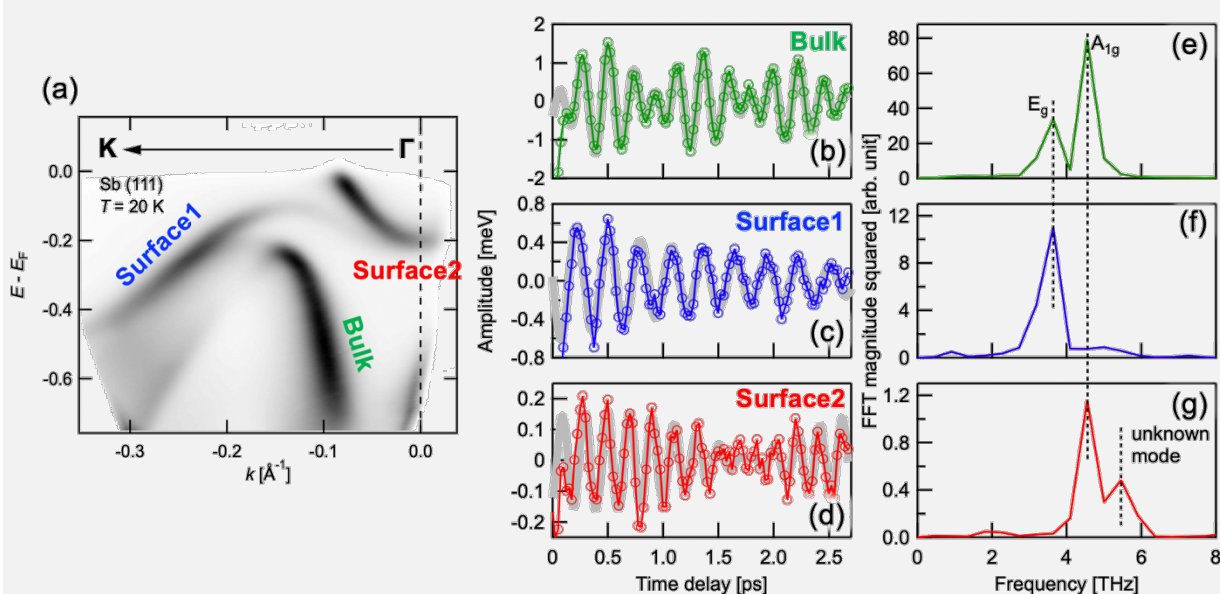


図 3 (a) Sb(111)劈開面における Γ -K 方向の ARPES スペクトル。二本の表面バンド(Surface1, Surface2)と一本のバルクバンド(Bulk)が観測された。(b)-(d) それぞれのバンドの時間領域での振動の様子と(e)-(g)その周波数スペクトル。バルクバンドと表面バンドで異なる振動数で振動していることがわかる。

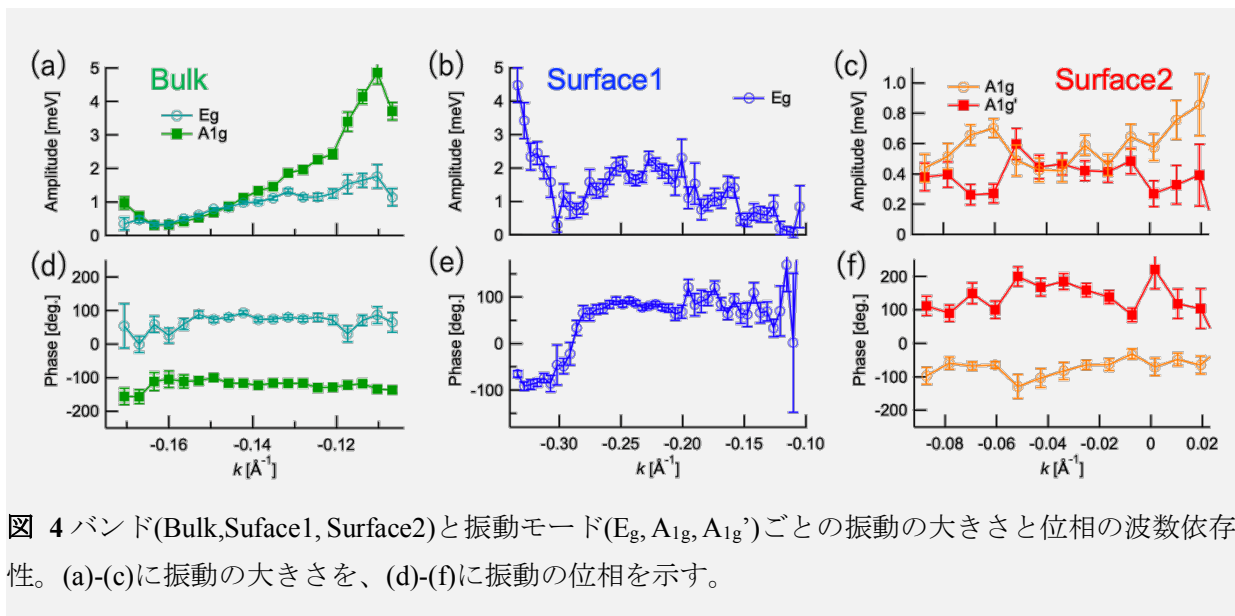


図 4 バンド(Bulk, Surface1, Surface2)と振動モード(E_g , A_{1g} , $A_{1g'}$)ごとの振動の大きさと位相の波数依存性。(a)-(c)に振動の大きさを、(d)-(f)に振動の位相を示す。

のフォノン応答がどのように変化するかという波数依存性に着目した。

実験は 1.5 eV の光をポンプ光、6 eV の光をプローブ光として用いた。この実験における時間分解能はおよそ 80 fs ほどであった。測定は 20 K で行った。

図 3(a)は光励起する前の定常状態 ARPES スペクトルであり、ラッシュバ分裂した表面バンド (Surface1, Surface2 バンドと呼ぶこととする)とバルクバンド(bulk)が明瞭に観測された。またポンププローブ法によって、それぞれのバンドのフォノンによる振動の観測にも成功した(図 3(b)-(d))。図 3(e)-(g)にはそのフーリエ変換である周波数スペクトルを示す。バルクバンドは 3.7 THz と 4.5 THz 付近に二つのピークを持ち、それぞれ E_g と A_{1g} フォノンモードに対応する。一方で、Surface1 バンドは E_g モードのみを示し、Surface2 バンドは A_{1g} モードとさらに高い周波数のモード($A_{1g'}$)を示した。これは表面の Sb 原子が内部の原子と異なるフォノン応答をしていることを示唆している。

図 4 に振動の波数依存性を示す。図 4 (a) - (c) には振動の大きさを (d) - (f) にはその位相を表示している。バルクバンドは Γ 点に近づくにつれて A_{1g} 振動の振幅が E_g 振動の振幅に比べ大きくなっていくことがわかった。Surface1 バンドにおいては、波数が $-0.3 \text{ \AA}^{-1}$ 付近で E_g 振動の位相が反転していることがわかった。これはフォノンの励起が単純に束縛エネルギーを上下させるだけでなく、バンド幅などのバンドの形も変えていることを意味している。Surface2 バンドはあまり大きな波数依存性はみられなかった。

現在、上記したバンドの振動の波数依存性を第一原理計算によって再現することを試みており、電子格子相互作用の波数依存性などについて議論を深めていく予定である。

～参考文献～

- [1] J. A. Sobota et al., Physical Review Letters **113**, 157401 (2014)
- [2] E. Papalazarou et al., Physical Review Letters **108**, 256808 (2012)