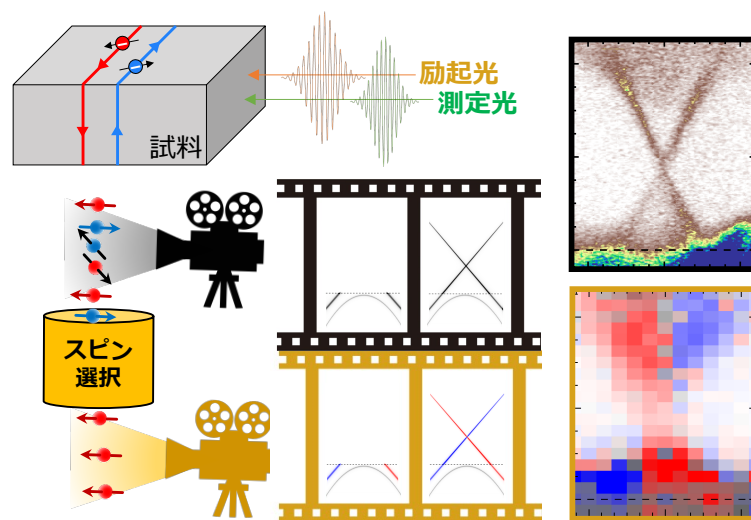


2023年8月8日
 東京大学
 広島大学

光に操られるスピンの超高速な動きを可視化する装置を開発 ——スピン流が光で発生する瞬間を捉えた ——

発表のポイント

- ◆物質に光を照射した際に電子が持つスピン（最も小さな磁気）の向きと運動量が、10兆分の1秒スケールという超高速で変化する様子を可視化する装置を開発した。
- ◆本装置をトポロジカル絶縁体に適用することで、光を当てた瞬間にスピン流（最も小さな磁石の流れ）が発生する現象を観察することに成功した。
- ◆太陽電池やスピントロニクス材料を効率的かつ超精密に性能評価する唯一無二の実験手法として、最先端の基礎研究への活用はもとより、産業界への普及が今後期待される。



スピン流が光で発生した瞬間のスナップショット

発表概要

東京大学物性研究所の川口海周研究員と黒田健太助教（現在、広島大学大学院先進理工系科学研究科准教授）、近藤猛准教授らの研究グループは、同物性研究所の Zhigang Zhao 研究員（現在、山東大学情報理工学部（中国）教授）、谷峻太郎助教、小林洋平教授らの研究グループと共同で、物質内の電子が持つスピン（最小の磁気）が光によって操られる様子を観察する革新的な装置を開発しました。最近注目されているトポロジカル絶縁体（注1）を同装置により測定することで、応用が期待される光誘起スピン流の観測に成功しました。

スピンの流れ（スピン流）を光で制御し情報伝達技術に活かすスピントロニクス研究が現在活発に行われています。しかし、物質内の電子が持つスピンの動きが光の照射と共に具体的にどう動くのかを微視的に観察することは困難なため、新たな実験手法の開発が求められていました。本研究では、物質内の電子一つ一つの動きを描く電子構造（電子の運動量とエネルギーの関係）を実験的に決定できる角度分解光電子分光（注2）技術を発展させ、光の照射と共に変化する電子のスピンのベクトル量を3次元かつ10兆分の1秒間隔の超高速で観察可能な装置の開発に成功しました。本装置を用いることで、スピン流がトポロジカル絶縁体表面にパル

ス光の照射直後に発生するまさにその瞬間を超高速度で観察することに成功しました。物質内電子のスピンの振る舞いが手に取るように見える本装置は、日本発の技術として世界的に着目されているペロブスカイト太陽電池（注 3）の動作原理の微視的解明および効率向上に向けた評価方法となるなど、広範囲に渡るスピントロニクス研究の基盤を支える実験技術になることが考えられます。

本成果は米国物理学協会が発行する Review of Scientific Instruments の 8 月 4 日（現地時間）に掲載されました。

発表内容

〈研究の背景〉

人々の生活を豊かにするための材料開発・デバイス開発は進化を続けており、特に、エネルギー問題の解決を大きな課題として、光を効率的に活用する発電技術やエレクトロニクスに変わる新しい情報技術の開拓が求められています。その身近な例となる太陽電池では、光が半導体に当たると、その内部の電子が光のエネルギーを吸収することで、電気エネルギーに変換されます。最近では特に、電子が持つ電荷だけでなく、スピンの性質も活用した太陽光発電が着目されています。日本で最初に発見されたのち世界中で研究競争が進むペロブスカイト太陽電池の高い性能は、電子のスピンの向きが光のエネルギーを吸収することで反転する現象により実現すると考えられています。スピンの活用は、エレクトロニクスに変わるスピントロニクスにおける情報技術においても重要で、その制御に光を用いるデバイス応用が期待されています。ある種類のトポロジカル絶縁体では、光が当たることでスピンが流れる現象が提案されており、その直接的な観察を通じた制御技術の構築が望まれています（図 1）。

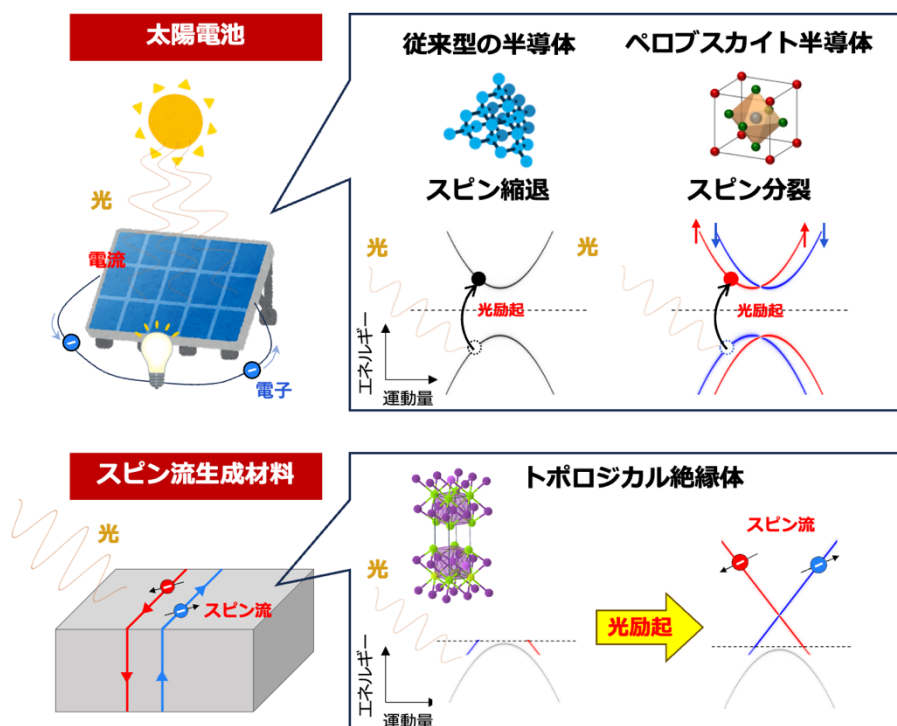


図 1：電子・スピン・光と電子構造の関わり

スピンと電子構造における、光励起との関わりを示した概念図。太陽電池では、電子が高いエネルギーに光で励起されることで電気エネルギーに変換される。最近着目されるペロブスカイト半導体では、ラッシュバ構造（注4）と呼ばれるスピン分裂した電子構造が発電効率に大きな役割を果たしていると考えられている。トポロジカル絶縁体では、光励起によってスピン偏極したコーン状の電子構造が出現し、光によってスピン流の制御が可能であることが本研究からも明らかになった。

電子の動きを視覚的に理解する手法が、光電子分光法による電子構造の観察です。電子構造とは、電子1つ1つをエネルギーと運動量の関係でプロットすると浮かび上がる模様を意味します。物質内では、無数の電子があたかも乱雑に動き回っているため、その集団運動を理解することは一見不可能に思われます。しかし、それを電子構造に焼き直すと物質固有の美しい模様が描け、量子力学に則った規則正しい集団運動として視覚的に理解できるようになります。電子の持つスピンの情報まで電子構造の模様を反映させる実験手法がスピン分解光電子分光であり、電子構造に対してスピンの向き（上向・下向きなど）に応じて赤青で着色し表現することが一般的です（図1）。このように、スピンの情報を盛り込んだ電子構造の模様を“見る”ことで、電子やスピンの物質内部でどう動き、物質の電気・磁気的な性質を司っているのかを直観的に理解することが可能となります。しかしながら、上に述べたペロブスカイト太陽発電や光によるスピン流の生成などを視覚化するために、光で制御されるスピン情報を含む電子構造を決定することは、実験技術的に非常に困難であるとされていました。

〈研究の内容〉

本研究チームは、パルス光により活性化された電子のスピンの情報を含めた電子構造を、超高速に動画として撮影できる装置「時間・スピン・角度分解光電子分光装置」を開発しました（図2）。光電子分光では、光を物質に照射した際に外へ飛び出す電子（光電子）のエネルギーを測定します。光電子の角度からは、物質内の電子の運動量が決定されます。スピンの情報は、スピン検知器によって、光電子のスピンのどちらの向きを向いているかを選択的に測定することで得られます。超高速動画を得るための時間分解測定では、パルス光により活性化された物質内の電子が元の状態へ戻る前に2発目のパルス光を照射し光電子分光を行うことで可能となります。今回開発した装置では、光で活性化された物理現象の時間経過を10兆分の1秒間隔という超最速で撮影することが可能です。

この測定手法が実現した際の有用性については認識されていました。それにも関わらずこれまで成功していなかった主な理由は、通常の光電子分光測定に比べスピンの検出効率が桁違いに低いことに加え、パルス光により活性化された電子のスピンを測定するとなるとさらに効率が落ちることから、実現が難しい実験手法であるとみなされて来たことにあります。その悲観的な常識を打破するために本研究チームは、従来のスピン検出とは異なる測定原理を用いた高効率スピン検出器、および新たに開発した大強度レーザー光源を用いた装置開発を行いました。これまでの装置では、スピン検出としてはモット検出器、またレーザー光源としてはチタン添加サファイアレーザーが一般的に用いられてきました。本研究ではこれらを一新し、スピン検出には磁石の反射を利用することで高効率化させた低速電子線回折（VLEED）方式を、また、レーザー光源としては高繰り返しパルス発生に最適なイッテルビウム添加ファイバーレーザーを初めて採用しました。これらの試みにより、従来の測定と比べ約100倍もの高効率化を達成しました。さらに、測定用のパルス光として、10.7eVという高いエネルギーのレーザー光源を開発しました。これにより、物質の電子構造を決定する上で必要となる電子の運動量全域を測

定することを可能にしました。これらすべての要素を集結させることで、「時間・スピン・角度分解光電子分光装置」の開発を実現できました。

この新たな装置を使って本研究チームは、パルス光により活性化された瞬間に発生するスピン流を直接観測することに成功しました。特に注目すべきは、トポロジカル絶縁体 Sb_2Te_3 についての発見です。この物質では、光を照射する前の安定状態ではスピン流が存在しませんが、パルス光によって電子を活性化すると瞬時にスピン流が発生することを電子構造の観察によって視覚的に示すことに世界で初めて成功しました。

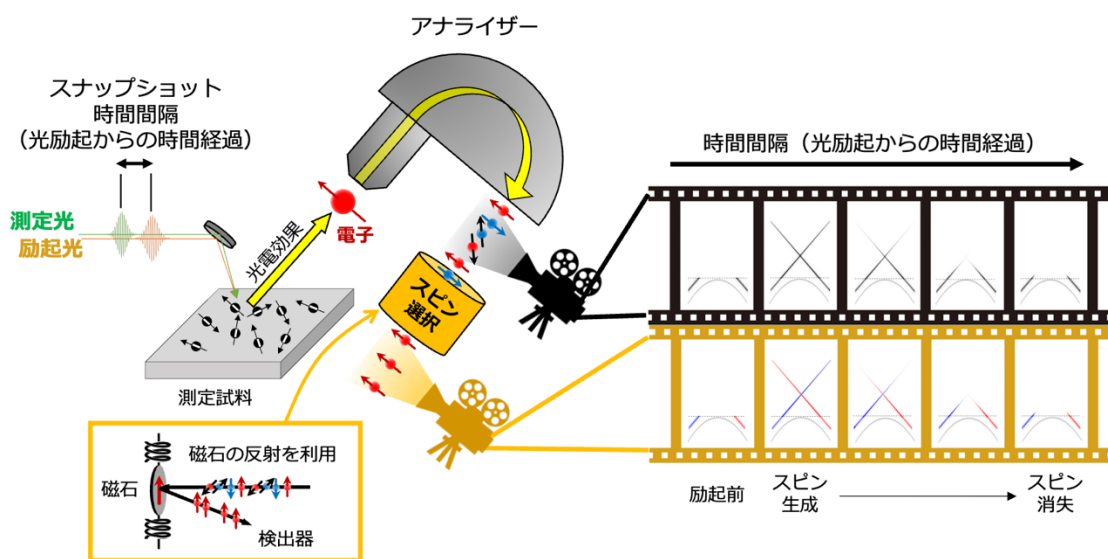


図 2：本研究で開発した「時間・スピン・角度分解光電子分光装置」の概念図

本装置では、励起光と測定光を用いたスナップショット方式により、光励起以後の電子構造の変化を時間分解観測することができる。電子構造は光電効果によって放出された電子をアナライザーに通すことで得られる。さらに、本装置の特徴として、磁石の反射を利用したスピン検知器を搭載しており、光励起後の電子構造変化をスピンまで含めて明らかにすることができる。

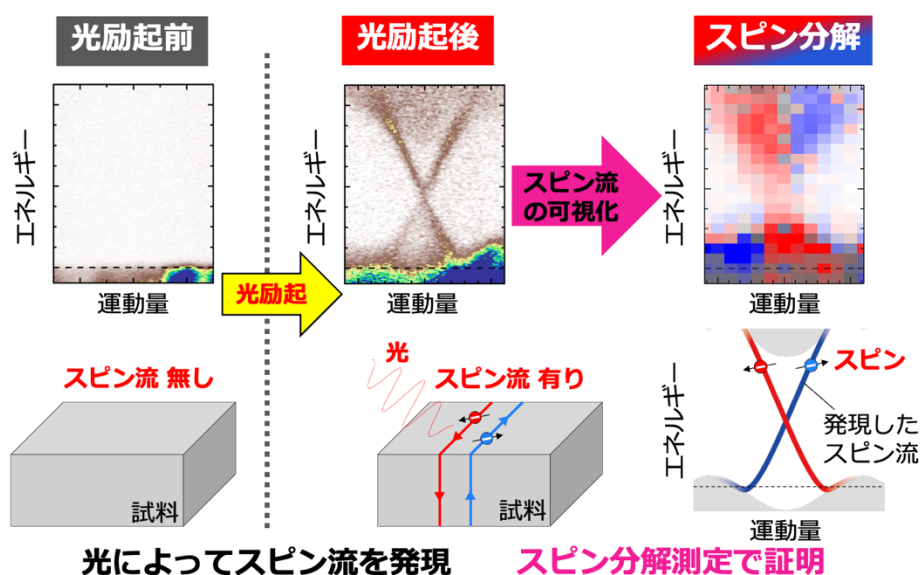


図3：本装置で測定されたスピン流生成の直接観測結果

開発した装置を用いて測定した、トポロジカル絶縁体 Sb_2Te_3 の光励起後における電子・スピン状態のダイナミクスを電子構造として可視化した。光励起前には存在しなかった電子構造が光励起によって出現し、それがスピン流に由来することが、スピン分解された電子構造の測定により初めて直接的に示された。この結果は、スピン流が光によりスイッチングされたことを意味する。

〈今後の展望〉

開発した本装置によって、光で活性化された物質内の電子やそれらのスピンの状態が超高速で時間変化する様子を、視覚的に捉える電子構造から解明できるようになりました。この新しい実験技術の有用性を、光励起によるスピン流の生成を世界で初めて直接視覚化し、実証しました。今後の研究ターゲットは、ペロブスカイト太陽電池で予想されるスピン偏極電子構造に基づく光スピン変換理論の構築、光磁気デバイスの性能向上に求められる材料の物性理解、スピントロニクス材料の特性評価など、幅は広大です。これらを実現する上で必須となるツールとして、本実験技術は今後、学界・産業界問わず普及して行くことが期待されます。

発表者

東京大学

物性研究所 附属極限コヒーレント光科学研究センター

川口 海周 (研究員)

Zhigang Zhao (研究員) <現在：山東大学情報理工学部 (中国) 教授>

谷 峻太郎 (助教)

小林 洋平 (教授)

近藤 猛 (准教授) <トランススケール量子科学国際連携研究機構 准教授>

広島大学

大学院 先進理工系科学研究科

黒田 健太 (准教授) <研究当時：東京大学物性研究所 助教>

論文情報

- <雑誌> Review of Scientific Instruments
<題名> Time-, spin-, and angle-resolved photoemission spectroscopy with a 1-MHz 10.7-eV pulse laser
<著者> Kaishu Kawaguchi, Kenta Kuroda*, Zhigang Zhao, Shuntaro Tani, Ayumi Harasawa, Yuto Fukushima, Hiroaki Tanaka, Ryo Noguchi, Takushi Iimori, Koichiro Yaji, Masami Fujisawa, Shik Shin, Fumio Komori, Yohei Kobayashi, and Takeshi Kondo* (*責任著者)
<DOI> 10.1063/5.0151859

研究助成

本研究は、日本学術振興会の科学研究費（課題番号 JP21H04439, JP21H04652, JP22H01943, JP23K17351）、文部科学省の光・量子飛躍フラッグシッププログラム（Q-LEAP 課題番号 JPMXS0118068681）、旭硝子財団、村田学術振興財団、および日本科学協会の笹川科学研究助成による助成を受けたものです。

用語解説

（注1）トポロジカル絶縁体：

その内部（バルク）が絶縁体である一方で、表面（エッジ）においては導体となる新種の量子物質です。この性質は「バルク-エッジ対応」とも呼ばれ、数学のトポロジーと量子力学の理論に基づいて説明されます。つまり、内部で電子が移動できないが、表面では自由に移動できる特異な物性を持つ物質です。表面で伝導する電子はスピン偏極したスピン流として考えられるため、スピントロニクスなどへの応用が期待されています。

（注2）角度分解光電子分光：

角度分解光電子分光（Angle-resolved photoemission spectroscopy、ARPES）は、固体表面の電子状態を直接観察する実験手法の一つです。この手法は、光（通常はX線や紫外線）を固体に照射することで電子を励起し、その励起電子の運動量とエネルギーを測定します。これにより、電子のバンド構造（エネルギーと運動量の関係）が明らかになります。ARPESは特に、新奇的な電子状態を持つ物質（例えば高温超伝導体やトポロジカル絶縁体）の研究に非常に重要な手法となっています。

（注3）ペロブスカイト太陽電池：

特定の結晶構造を持つ材料であるペロブスカイトを活性層に使用した新型の太陽電池です。この種の太陽電池は、製造コストが低く、柔軟性があるという特性を持つ一方で、変換効率も高いという利点があります。高い光電気変換効率の背景として、バンド構造の特徴的なスピン分裂構造が関係していると考えられています。

（注4）ラシュバ構造：

非対称な電子環境下で、スピン軌道相互作用により分裂した電子構造です。スピン軌道相互作用とは、電子のスピン（内部の角運動量）とその軌道運動量が結びつく相互作用のことです。ラシュバ構造は特に、非対称的な電場下で重要になり、電場の方向によって電子のスピン状態が変わるという性質があります。これは電子の運動方向とスピンが連動するため、これを利用したスピントロニクスという新たな電子デバイス技術において重要な役割を果たします。

問合せ先

〈研究に関する問合せ〉

東京大学 物性研究所 附属極限コヒーレント光科学研究センター

准教授 近藤 猛（こんどう たけし）

TEL : 04-7136-3370

E-mail : kondo1215@issp.u-tokyo.ac.jp

〈報道に関する問合せ〉

東京大学 物性研究所 広報室

TEL : 04-7136-3207

E-mail : press@issp.u-tokyo.ac.jp

広島大学 広報室

TEL : 082-424-3749

E-mail : koho@office.hiroshima-u.ac.jp