

令和元年6月24日現在

機関番号：14401
 研究種目：基盤研究(B) (一般)
 研究期間：2016～2018
 課題番号：16H03851
 研究課題名(和文)最先端スピン光電子分光と摂動下共鳴非弾性散乱による機能性材料電子状態の完全解明

研究課題名(英文)Frontier Spin ARPES and SXRIXS under external perturbations of functional materials

研究代表者
 菅 滋正 (SUGA, Shigemasa)
 大阪大学・産業科学研究所・名誉教授

研究者番号：40107438
 交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：機能性材料の利用にはその電子状態の完全解明が必須である。本研究では1)スピン分解2次元波数空間顕微光電子分光(SP-2D-MM)、と2)完全にバルク敏感な光分光である軟X線共鳴非弾性散乱での磁性体の磁場摂動下での測定を行った。たとえば低温でトポロジカル近藤絶縁体になる可能性のあるSmB6についての2D-MMに成功した後、走査トンネル分光によって低温で生成する近藤gap中に極低温で出現するtopologicalに保護された表面電子状態を観測した。つぎに半金属Heusler合金のMn₂VAlについてMnのmajorityバンドのフェルミ準位近傍のgapと矛盾しないRIXS-MCDの測定に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
 角度分解光電子分光は固体電子状態のバンド構造を知る最も有力な手段と考えられている。しかもトポロジカル絶縁体のDirac Coneのスピン偏極が知られて以来膨大なスピン偏極角度分解光電子分光が実験室や放射光施設で莫大な予算を投下して行われている。本研究で開発利用しているSP-2D-MMはそれらより約百万倍以上の測定効率があり、1台でほぼ国内全体の需要を満足する。まだ開発途上の部分もあるにせよこの装置を起爆剤として我が国での研究が世界をリードできるという意味において更なる研究投資が必須である。また磁場下での軟X線RIXSは完全に成功し、これは磁性体バルクや超格子などの研究の主流になったと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In order to fully utilize functional materials, full studies of electronic structures of both the surface and bulk are required. The former is tackled with the spin resolved 2 dimensional Momentum Microscopy and the latter can be tackled with the resonance inelastic soft X-ray scattering (SX-RIXS) under external perturbations. We studied such materials as transition metal dichalcogenides as well as Kondo Insulator system of SmB₆ with the 2D-MM and Scanning Tunneling Spectroscopy (STS) and half-metallic Ferrimagnetic Heusler alloy Mn₂VAl by means of the SX-RIXS under the external magnetic field of H=0.25T. It is found that the behavior of the electronic structures of the SmB₆ is in consistence with the Kondo topological insulators below 10 K, although the Kondo gap opens below 150 K from the metallic states. In the case of Mn₂VAl, half-metallicity is confirmed by the present SX-RIXS MCD.

研究分野：スピントロニクス of 基礎研究

キーワード：光電子分光 光電子顕微鏡 角度分解光電子分光 共鳴X線非弾性散乱 放射光 軟X線 磁気円二色性 (MCD)

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

トポロジカル絶縁体の出現以来、波数空間(k 空間)での電子帯のバンド分散に加えて、波数に依存するスピン分析が必須となって来た。ところがシングルチャンネルのスピン検出器の効率を示す Figure of Merit は 10^{-4} 程度であり、同等の角度分解光電子分光の 1 万倍の測定時間がかかり、その間に試料表面が酸化したり吸着したり化学変化したりでこれまでの測定では、信頼度の高い実験は全く不可能であった。さらにへき開面が一般的な範囲が $10\ \mu\text{m}$ 以下のような試料では光スポットをそれ以下に絞らないと信頼度のある測定は不可能であった。しかし光をここまで絞ると光子数が桁違いに激減したり、あるいは Laser 集光だと光子密度が激増し集光されている試料の微小領域が変質する恐れが大である。

さらに光電子分光は表面敏感な手法であるためにバルクの電子状態を理解するのは極めて困難な現実がある。少しバルク感性の高い硬 X 線光電子分光でさえ測定深度は 10nm 未満であり、極低エネルギー光電子分光の場合には物質により、かつ測定対象の電子帯により表面感性が小さくなったりもすれば表面敏感なままであったりと、こちらも信頼度の高い実験は不可能であった。

遷移金属磁性体の電子状態のように安定性の担保されないへき開面においてその物質のバルク電子状態を議論するのは極めて重要であるが、一方で相当に困難であると言わざるを得ない。さらに実用状態に近い外部摂動下での波数分解角度分解光電子分光も極めて困難と考えられる。後者を可能にする研究が模索されて来たわけである。

2. 研究の目的

本研究の目的は世界最先端の角度分解スピン分解光電子分光を可能にする手法を開発する事のみならず、 μm 顕微領域の角度分解光電子分光を、試料表面に damage を与える可能性のある微小集光ではなくて、光電子顕微鏡を用いて可能にする事と、さらに全波数空間のスピンを明らかにする事と、それとは別の手法である軟 X 線の共鳴非弾性散乱を用いて、外部摂動下でのバルク電子帯を金属のみならず絶縁体や、金属-絶縁体相転移物質等についておこない解明することであった。

3. 研究の方法

2 次元同時角度分解、顕微領域角度分解光電子分光については、入射部に光電子顕微鏡を用い、エネルギー分析部に S 字配置の 2 つの静電半球型電子エネルギー分析器を用いた Momentum Microscope を用いる。試料からの引き出し電圧を 10kV から 20kV に設定できるため $h\nu$ が 100eV 以下のような場合には電子放出の全立体角 2π ステラジアン of 光電子全部を電子エネルギー分析器に取り込めるので従来手法より 2 桁程度高い計測効率となる。光電子の円偏光 2 色性、直線偏光 2 色性の計測はこのメリットを利用できる。さらにスピンを分析するのに 100x100 チャンネルの 2 次元反射型スピンフィルターを用いるので Figure of Merit は 10^2 倍となり Au のモット検出器 10^{-4} 程度の百万倍、最先端の Fe-O VLEED 検出器の 1 万倍となる。これに上記の 2π ステラジアン of 計測効率を考えると、これまでより百万倍から 1 億倍の効率でのスピン分解 2 次元波数分解顕微光電子分光が可能となる。

軟 X 線の共鳴非弾性散乱については低磁場で飽和磁化を示す半金属フェリ磁性体の Mn_2VAl について 0.25T の永久磁石を用いて零磁場と $\pm 0.25\text{T}$ の磁場下で、磁場に平行に入射した光の 90 度方向への非弾性散乱と発光を計測し、磁気円 2 色性の結果を第 1 原理バンド計算から理論予測される結果と比較検討することで半金属性の妥当性の検討を行った。

4. 研究成果

2 次元同時角度分解、顕微領域角度分解光電子分光については室温で金属、150K 以下で近藤 gap の生成による近藤絶縁体となり 10K 程度以下で近藤 gap 内にフェルミ準位をよぎる電子帯の生成する SmB_6 についての Momentum Microscopy を 21.2eV の He ランプと 6eV の laser を用いて行った。再現性の乏しいへき開に代えて表面 sputtering と超高真空下での制御アニールングで最表面に Sm が来る清浄表面を再現性良く準備した後に測定を行った。励起光の $h\nu$ の違いにより測定可能な面直波数 k_z の値の範囲が大きく異なり、励起断面積が大きく強く観測される $\text{Sm}5d$ 電子状態の分散の大きな違いが観測されたのみならず、広い波数空間(k_x, k_y)での $\text{Sm}5d$ 状態、 $\text{Sm}5d$ や $4f$ と混成した B 電子状態の分散を実験的に明らかにし、第 1 原理計算で求めたバンド分散との比較検討を行った。さらに同等な面について走査トンネル顕微分光で 80K と 4K での測定を行い後者では Sm 秩序のいかにかわらず表面で安定な Fermi 面をよぎる表面電子状態の存在を確認した。今後は Sm 最表面基板を再現性良く準備できるこの試料を基に、各種原子や磁性体原子を吸着した際の電子状態の解明をスピン偏極 Momentum Microscope とスピン STM, STS を用いて行える基礎が確立した。

遷移金属磁性体電子状態の研究での軟 X 線スペクトル計測はまずは内殻吸収磁気円偏光 2 色性 (MCD) で行った。この際は放出光電子の全収量を計測する Total electron yield の手法で行ったので測定深度は 10nm 程度である。 Mn_2VAl については Mn と V の $2p$ XAS-MCD の符号が反転しておりフェリ磁性体であることがわかる。幸いに低磁場 $H=0.25\text{T}$ で飽和磁化の 95%程度が実現するために、弱磁場小型永久磁石を RIXS 計測試料近くに 11mm 磁極 gap で置き、上下に抜き出ししたり、180 度回転で磁場反転したりした高信頼度の測定を行

った。
光入射方向と磁場方向は一致させ円偏光励起選択則を最大限利用した。試料表面を励起光に対して45度方向に置くことで磁化とは90度方向の発光や非弾性散乱光を分光測定した。勿論一番強くエネルギーの高いのは弾性散乱光である。その結果Vの2p励起では E_F 近傍のV3d電子状態は極めて小さいことが判明し、第1原理バンド計算と矛盾が無いことが分かった。Mnについては E_F 近傍での電子状態は大きなことが分かったがこれが、光励起時に、どちらかのスピンのみに限定されているのかどうかを見極めることが、半金属の検証には必要である。そこで第1原理バンド計算の結果をもとにMn2p内殻正孔のZeeman分裂を考慮した発光スペクトル計算を行い実験の発光MCDを再現するのに成功し、upスピンバンドに E_F 近傍の電子状態が存在しないとのバンド計算結果と矛盾しない説明が可能となった。今後外部摂動下の軟X線RIXSはバルク電子状態の解明に向けて大きく発展することが期待できる。

5 . 主な発表論文等 査読あり

- (1) Kink far below the Fermi level reveals new electron-magnon scattering channel in Fe
E.Mlynczak, M.C.T.D.Muller, P.Gospodari, T.Heider, I.Aguilera, M.Gehlmann, M.Jugovac,
G.Zamborlini, C.Tusche, S.Suga, V.Feyer, L.Plucinski, C.Friedrich, S.Blugel, and C.M.Schneider
Nature Commun. **10**, 505 (2019). 査読あり
- (2) Half-metallicity of the ferrimagnet Mn_2VAl revealed by resonant inelastic soft x-ray scattering in a magnetic field, R.Y.Umetsu, H.Fujiwara, K.Nagai, Y.Nakatani, M.Kawada, A.Sekiyama, F.Kuroda, H.Fujii, T.Oguchi, Y.Harada, J.Miyawaki, and S.Suga
Phys. Rev. B **99**, 134414 (2019). 査読あり
- (3) Electronic Structure and Magnetic Properties of the Half-metallic Ferrimagnet Mn_2VAl Probed by Soft X-ray Spectroscopies,
K.Nagai, H.Fujiwara, H.Aratani, S.Fujioka, H.Yomosa, Y.Nakatani, T.Kiss, A.Sekiyama, F.Kuroda, H.Fujii, T.Oguchi, A.Tanaka, J.Miyawaki, Y.Harada, Y.Takeda, Y.Saitoh, S.Suga, and R.Y.Umetsu,
Phys.Rev.B**97**, 035143 (2018). 査読あり
- (4) Evidence for in-gap surface states on the single phase $SbB_6(001)$ surface
T.Miyamachi, S.Suga, M.Ellguth, C.Tusche, C.M.Schneider, F.Iga, and F.Komori,
Scientific Reports **7**, 12837 (2017). 査読あり
- (5) A Compact Permanent Magnet System for Measuring Magnetic Circular Dichroism in Resonant Inelastic Soft X-ray Scattering
J.Miyawaki, S.Suga, H.Fujiwara, H.Niwa, H.Kiuchi, and Y.Harada,
J.Synchrotron Rad. **24**, 449-455(2017). DOI:10.1107/S1600577517000923 査読あり
- (6) Dzyaloshinskii-Moriya Interaction in α - Fe_2O_3 Measured by Magnetic Circular Dichroism in Resonant Inelastic Soft X-ray Scattering,
J.Miyawaki, S.Suga, H.Fujiwara, M.Urasaki, H.Ikeno, H.Niwa, H.Kiuchi, and Y.Harada
Phys. Rev.B **96**, 214420 (2017). 査読あり
- (7) Interface electronic structure at the topological insulator-ferrimagnetic insulator junction
Y. Kubota, K. Murata, J. Miyawaki, K. Ozawa, M.C.Onbashi, T.Shirasawa, B. Feng,
Sh. Yamamoto, R.-Y Liu, S. Yamamoto, S. K. Mahatha, P. Sheverdyaeva, P. Moras, C.A. Ross, S.Suga, Y. Harada, K.L.Wang, and I. Matsuda,
J. Phys. Condens. Matter **29**, 055002-1~6 (2017). DOI: 10.1088/1361-648X/29/5/055002 査読あり
- (8) Laser-induced fine structures on silicon exposed to THz-FEL
Akinori Irizawa, Shigemasa Suga, Takeshi Nagashima, Atsushi Higashiya, Masaki Sakabe,
Shuji Sakabe, APPLIED PHYSICS LETTERS **111**, 251602 (2017). 査読あり
- (9) Fermi surface manipulation by external magnetic field demonstrated for a prototypical thin film

ferromagnet,

E. Mlynczak, M. Eschbach, S. Borek, J. Minar, J. Braun, I. Aguilera, G. Bihlmayer, S. Doring, M. Gehlmann, P. Gospodaric, S. Suga, L. Plucinski, S. Blugel, H. Ebert, and C. M. Schneider
Phys.Rev.X6, 041048-1~13 (2016). 査読あり

(10) Momentum microscopy of SmB₆ single crystals with detailed surface characterization

M. Ellguth, C. Tusche, F. Iga, and S. Suga,
Philosophical Magazine **96**, 3284-3306 (2016). 査読あり

〔雑誌論文〕(上記以外の論文 計 5 件 うち査読あり 3 件)

〔学会発表〕(計 23 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：入澤明典

ローマ字氏名： Akinori IRIZAWA

所属研究機関名：大阪大学産業科学研究所

部局名： 量子ビーム研究部門

職名： 助教

研究者番号(8桁): 90362756

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：