

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540371

研究課題名(和文)非占有表面スピン電子構造の研究

研究課題名(英文)Study of unoccupied spin and electronic structure for solid surface

研究代表者

生天目 博文(Hirofumi, Namatame)

広島大学・放射光科学研究センター・教授

研究者番号：10218050

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円、(間接経費) 1,140,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、光電子分光を用いた新奇電子構造研究をすすめた。電子構造の詳細決定をするためには逆光電子分光装置の性能向上が重要である。逆光電子分光のエネルギー分解能の向上が最重要であることから、従来の熱電子源を活用した場合の実現可能性を検討するとともに、実用上高度の技術を必要とするものの応用が期待できる低温フォトカソードからの高分解能電子取出しに取組んだ。現在求められる高分解能のレベルにおいてはBoersch効果への配慮が極めて深刻になることが新たにわかったため、今後は、電子源の開発と同時にBoersch効果を低減した装置のデザインを進めることになる。

研究成果の概要(英文)：We investigated the electronic states of novel materials such as high Tc superconductors and topological insulators. To realize high stability of excitation photon energy, we tried to make clear relationship between the energy resolution and environmental parameters, atmosphere temperature and heat load of optical elements in the beamline. Next we investigated electron emission from photocathode and electron transport optics to develop higher energy resolution inverse photoemission spectrometer. Thermal electron source has large energy broadening depend on temperature intrinsically. The energy spread is decreased using electron energy analyzer, but it is limited by the space charge effect especially for low pass energy. Next we study about low temperature photocathode and electron transfer optics. Boersch effect of electron beam inside the electron optics determine the upper limit of energy resolution.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光電子分光 逆光電子分光 Boersch効果 フォトカソード スピン偏極

1. 研究開始当初の背景

放射光を活用した光電子分光実験の観測が近年格段に進展し、固体中の素励起のエネルギーを見分け、スピンの向きまでも評価できるようになった。結果、高温超伝導体における超伝導発現機構の解明に繋がる電子構造の研究や遍歴電子のスピンの軌道が密接に関連したトポロジカル絶縁体などの新奇物性現象の解明で重要な役割を担っている。占有電子構造の精密決定が実現されたことで、輸送現象や磁性などの物性現象の理解が進んだ。これに加え、非占有電子構造の解明が進むことで電子構造の全容を把握した上での物性を議論することが可能となることから、非占有電子構造を観測する逆光電子分光法の高分解能化への要請が高まってきた。

2. 研究の目的

占有電子構造と組み合わせて非占有電子構造の研究を進め物性を支配する電子構造の全容を明らかにする。このため、占有電子構造の研究においては、高いエネルギー分解能での測定を通して高温超伝導体やトポロジカル絶縁体の電子構造の解明に取り組むとともに、さらなるエネルギー分解能の向上、スピン分解能の向上などの実験技術の向上を図る。非占有電子構造の研究においては、これまで培った逆光電子分光実験による研究をさらに展開するとともに、逆光電子分光のエネルギー分解能の向上に資する装置学の展開を図る。特に電子源から試料までの電子光学系についての詳細な検討を行い実現に向けた取り組みを行う。

3. 研究の方法

占有電子構造の研究においては、固体の清浄表面や分子線エピタキシーによる薄膜創製等の表面科学研究に組み込み、実際の試料の計測を通して物性研究を進める。この中で、エネルギー分解能の向上、表面創製のための設備の性能向上にも取り組む。

非占有電子構造の研究においては、これまで問題とされてきたエネルギー分解能の向上に向けた開発研究を実施する。電子源の開発においては、従来の熱電子源からの電子をフィルタリングすることでエネルギーの揃った電子ビームを得ることを検討する。これとは別に、新しい電子源として GaAs を用いたフォトカソードの利用についての開発を行う。具体的には、GaAsNEA 表面の創製する設備の開発、GaAsNEA カソードを低温に冷却してエネルギーの揃った電子を取り出すセットアップ開発、GaAs カソードからの電子線を試料に導くための電子光学系の設計とその際問題となる Boersch 効果の評価に取り組む。

4. 研究成果

本科研費では「非占有表面スピン電子構造の研究」として、非占有表面電子構造と対となる占有電子構造も包含した形での研究を展

開した。

(占有電子構造研究)

高温超伝導体や表面電子構造における多体効果を評価するためには電子間に関わる素励起のエネルギーレベルの高い分解能で電子構造を観測する必要がある。放射光を用いた高分解能光電子分光では、放射光の光学素子への熱負荷を低減する改善を試み、また、床の振動や気温変動による影響を調査し、これらの擾乱を抑えることで meV 分解能を長時間維持した実験が可能となった。この性能を活かして高温超伝導体のバンド構造の詳細研究を実施した。

また、励起光の偏光を活用した光電子分光実験のために導入した回転型光電子分光装置の性能向上に取組み、計測システムの自動化や極低温マニピュレータによる試料表面の位置制御を正確に行うことで複数のバンドが共存して観測される電子構造に対して、偏光に依存した選択則を活用することでバンドの対称性を選択した観測が実現できた。

超高真空中で結晶表面に金属を蒸着して作成する薄膜化の技術確立につとめ研究環境の整備を行った。表面電子構造は3次元的なバンド構造と異なり表面に局在する2次元電子構造が特色となる。薄膜化において表面の原子構造を正確に評価しつつ薄膜成長を行うことが当該分野の研究の基本的な要件となることから、放射光による電子構造解析のための試料評価として走査トンネル顕微鏡で表面構造を確認できるシステムの構築に努めた。超高真空中で分子線エピタキシーと低速電子線回折 (LEED) による表面周期構造ならびに LEED-IV 解析と組み合わせた薄膜の深さ方向の原子構造決定を軌道にのせ、磁性薄膜のスピン電子構造解析に取り組んだ。

光電子分光実験では、高いエネルギーの励起光を用いて電子を真空準位の遥か上の自由電子状態まで励起することで正確な占有電子構造を決定してきたが、紫外線域の低エネルギー励起光を用いた光電子分光を実施している。励起光が低エネルギーであるため、非占有電子構造が通常の逆光電子分光で観測するエネルギー領域にほぼ等しくなる。低エネルギーの光電子分光には多くのメリットがあることが研究の過程で認識されるようになってきた。1つは、低エネルギーにしたことで相対分解能が同じでも絶対精度の高い実験が可能となった点、低エネルギーにした結果、光電子の平均自由行程が長くなりバルク敏感な計測が可能となったこと。さらに光電子エネルギーが低くなった結果、光電子の運動量をより正確に決定できるようになった。これらの特長を活かして高温超伝導体とその関連物質や表面電子構造の研究を進めた。

研究の円滑な実施のため実験室光源の応用に取組み、Xe ガスの低エネルギー紫外線発光を利用できる設備の改善に取組み、かつて逆光電子分光装置で活用されたレンズを用

いた分光システムを再現し利用できるようにした。

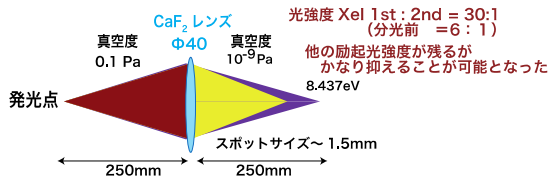


図1 . Xe 紫外線源の単色化光学系

(スピン偏極電子構造研究)

占有電子構造における正確なバンド構造の測定技術をベースにした物性研究が進むにつれ、電子のスピンに関連した物性現象も観測されるようになった。その1つが金属表面状態が示すラッシュバ分裂やトポロジカル絶縁体の特異な電子構造である。トポロジカル絶縁体では、スピン軌道相互作用の大きなピスマスなどの重元素をもつ化合物の表面電子構造で観測されている。高分解能光電子分光実験では、ディラックコーンとよばれる直線上のエネルギー分散を示すバンド構造が可視化されて表現されてきた。スピン偏極光電子分光実験装置でこれらの物質系の評価を行うことで明確にスピンの効果を検証することができる。この目的のためには高いエネルギー分解能をもつスピン偏極光電子分光装置の整備が不可欠となる。検出効率の高いスピン検出器 (VLEED 検出器) を装着した放射光高分解能光電子分光装置の整備に取組み、従来の高分解能光電子分光実験をスピン偏極光電子分光で実施可能となった。精密な電子構造をスピン分解で効率的にできるようになった結果、従来のスピン偏極光電子分光実験では強磁性体の対称軸に沿ったバンド構造解析に留まらず、表面や結晶構造などの対称性の異なる部分におけるスピン偏極を積極的に調べることで、これまで隠れて見えなかった電子間の相互作用などに関する知見が得られるようになってきている。その事例としてスピンと軌道が関わる特異な電子系であるラッシュバ分裂した表面電子構造やトポロジカル絶縁体の電子構造などの研究を精力的に進めている。

(非占有電子構造研究)

低エネルギー励起光による占有電子構造に関する研究が進展するに対応して、非占有電子構造の研究の重要性も総体的に増している。これまで開発し整備してきた逆光電子分光装置を活用した非占有電子構造の研究にも取組んだ。フェルミレベルに電子相関に由来してエネルギーギャップをもつ物質において、そのバンドギャップサイズの正確な計測は理論計算との比較において大変重要となる。また、電子相関により占有と非占有電子状態に大きく分裂した構造を特定し分裂サイズを評価することなどの研究も実施した。非占有電子構造の研究は、光電子分光ほどにエネルギー分解能が高くないことや大きな電子線照射をとまなう実験であるた

め実験技術的に難しい面を持っているが、光電子分光の低エネルギー化や高性能化にも重要な重要性は増してきているといえる。

(逆光電子分光の開発研究)

非占有電子構造を観測する手法として光電子分と相補的な関係にある逆光電子分光が一般的な手法として確立している。電子線のエネルギー分布を単一にし、観測する発光スペクトルを高い精度で計測する必要がある。逆光電子分光 (IPES) の放出断面積が2桁以上小さいことから実験上の問題が残されてきた。本研究では、高分解能を実現するために必要とされる電子線のエネルギー分布の抑制と分光精度の向上に着目した取組みを行った。

電子源の高分解能化には熱電子をエネルギーフィルターを通して単色化する方法、電子源からの電子自体を単色化する方法である。前者については電子線エネルギー分析器を逆向きに利用することで達成される。後者においては、熱によるエネルギー・運動量分布の発散を抑えるために低温での電子取り出しに適したフォトカソードの研究を行った。まず、従来からの技術で対応できればその方が安定した運用ができるため電子エネルギー分析器における可能性を数値計算等を用いて評価を行った。電子線エネルギー分析器の入射・出射スリットを通過させてパスエネルギーに相当する電子のみを選別する。これを電子銃に当てはめると、光電子分光での pA 以下の電流値に対し、 μA レベルの電流を扱うため空間電荷効果を考慮した評価が不可欠である。熱電子のエネルギー幅が約 300meV 程度ありアナライザーを応用することで 0.1 μA 程度で 100meV 近い分解能が得られたとする事例がある。高分解能化においては、空間電荷効果によるビームプロファイルの変化だけでなく電子間相互作用によるエネルギーの拡がりの効果、すなわち Boersch 効果を考慮する必要がある。これを数値計算により下図のような実用的な電子光学系で評価したところ表のようになった。

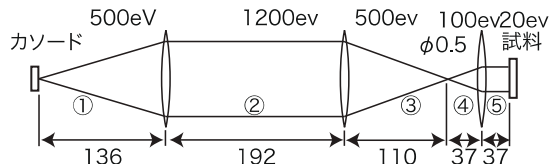


図2 . IPES の電子光学系

E (meV)	I=0.5 μA	I=1 μA	I=5 μA	I=10 μA
25	39	115	183	
8.1	13	37	59	
20	31	93	148	
17	26	77	122	
9.7	15	42	64	
総和	38	60	176	279

表1 各部分における Boersch 効果

この解析から低温フォトカソードから分解能の高いビームを取り出した後、試料に電子を導くまでの経路において、エネルギー分解能を支配しているものがBoersch効果にあることを示すことができた。

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72件)

Sunagawa, M, Ishiga, T, Tsubota, K, Jabuchi, T, Sonoyama, J, Iba, K, Kudo, K, Nohara, M, Ono, K, Kumigashira, H, Matsushita, T, Arita, M, Shimada, K, Namatame, H, Taniguchi, M, Wakita, T, Muraoka, Y, Yokoya, T,

Characteristic two-dimensional Fermi surface topology of high-Tc iron-based superconductors
SCIENTIFIC REPORTS 4, 4381 (2014). (査読有)

Zhu, ZH, Veenstra, CN, Zhdanovich, S, Schneider, MP, Okuda, T, Miyamoto, K, Zhu, SY, Namatame, H, Taniguchi, M, Haverkort, MW, Elfimov, IS, Damascelli, A,

Photoelectron Spin-Polarization Control in the Topological Insulator Bi₂Se₃
PHYSICAL REVIEW LETTERS 112, 076802 (2014). (査読有)

Jiang, J, Tsirkin, SS, Shimada, K, Iwasawa, H, Arita, M, Anzai, H, Namatame, H, Taniguchi, M, Sklyadneva, IY, Heid, R, Bohnen, KP, Echenique, PM, Chulkov, EV,
Many-body interactions and Rashba splitting of the surface state on Cu(110)
PHYSICAL REVIEW B 89, 085404 (2014). (査読有)

Okuda, T, Maegawa, T, Ye, M, Shirai, K, Warashina, T, Miyamoto, K, Kuroda, K, Arita, M, Aliev, ZS, Amiraslanov, IR, Babanly, MB, Chulkov, EV, Ereemeev, SV, Kimura, A, Namatame, H, Taniguchi, M,

Experimental Evidence of Hidden Topological Surface States in PbBi₄Te₇
PHYSICAL REVIEW LETTERS 111, 206803 (2013). (査読有)

Nurmamat, M, Krasovskii, EE, Kuroda, K, Ye, M, Miyamoto, K, Nakatake, M, Okuda, T, Namatame, H, Taniguchi, M, Chulkov, EV, Kokh, KA, Tereshchenko, OE, Kimura, A,

Unoccupied topological surface state in Bi₂Te₂Se
PHYSICAL REVIEW B 88, 081303 (2013). (査読有)

Ueno, T, Sawada, M, Kishimizu, Y, Kimura, A, Namatame, H, Taniguchi, M,

End station for nanoscale magnetic materials study: Combination of scanning tunneling microscopy and soft X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy,
REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS 83, 123903 (2012). (査読有)

Okamoto, K, Kuroda, K, Miyahara, H, Miyamoto, K, Okuda, T, Aliev, ZS, Babanly, MB, Amiraslanov, IR, Shimada, K, Namatame, H, Taniguchi, M, Samorokov, DA, Menshchikova, TV, Chulkov, EV, Kimura, A,
Observation of a highly spin-polarized topological surface state in GeBi₂Te₄
PHYSICAL REVIEW B 86, 195304 (2012). (査読有)

Miyamoto, K, Kimura, A, Okuda, T, Miyahara, H, Kuroda, K, Namatame, H, Taniguchi, M, Ereemeev, SV, Menshchikova, TV, Chulkov, EV, Kokh, KA, Tereshchenko, OE,
Topological Surface States with Persistent High Spin Polarization across the Dirac Point in Bi₂Te₂Se and Bi₂Se₂Te
PHYSICAL REVIEW LETTERS 109, 166802 (2012). (査読有)

Kim, B, Kim, CH, Kim, PJ, Jung, WS, Kim, YK, Koh, YY, Arita, M, Shimada, K, Namatame, H, Taniguchi, M, Yu, JJ, Kim, C,
Spin and orbital angular momentum structure of Cu(111) and Au(111) surface states,
PHYSICAL REVIEW B 85, 195402 (2012). (査読有)

Yamaoka, H, Thunstrom, P, Jarrige, I, Shimada, K, Tsujii, N, Arita, M, Iwasawa, H, Hayashi, H, Jiang, J, Habuchi, T, Hirayama, D, Namatame, H, Taniguchi, M, Muraoka, U, Hosoya, S, Tamaki, A, Kitazawa, H,
High-resolution photoelectron spectroscopy study of Kondo metals: SmSn₃ and Sm_{0.9}La_{0.1}Sn₃
PHYSICAL REVIEW B 85, 115120 (2012). (査読有)

Yokoya, T, Yoshida, R, Utsumi, Y, Tsubota, K, Okazaki, H, Wakita, T, Mizuguchi, Y, Takano, Y, Muro, T, Kato, Y, Kumigashira, H, Oshima, M, Harima, H, Aiura, Y, Sato, H, Ino, A, Namatame, H, Taniguchi, M, Hirai, M, Muraoka, Y,
Te concentration dependent photoemission and inverse-photoemission study of FeSe_{1-x}Tex

SCIENCE AND TECHNOLOGY OF
ADVANCED MATERIALS 13 , 054403
(2012).(査読有)
Arita, M , Shimada, K , Utsumi, Y ,
Morimoto, O , Sato, H , Namatame, H ,
Taniguchi, M , Hadano, Y , Takabatake,
T , Electronic structure of a narrow-gap
semiconductor FeGa₃ investigated by
photoemission and inverse
photoemission spectroscopies
PHYSICAL REVIEW B 83 , 245116
(2011).(査読有)

[学会発表](計54件)

永田偉士,羽淵隆文,Eike Fabian Schwier,
岩澤英明,姜健,林博和,堀家大希,相浦
義弘,島田賢也,生天目博文,谷口雅樹,
La/W(110)の共鳴角度分解光電子分光,
第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同
シンポジウム,2014年1月11日,広島国
際会議場.

堀家大希,E.F. Schwier,有田将司,宮本
幸治,姜健,岩澤英明,永田偉士,林博和,
相浦義弘,島田賢也,生天目博文,谷口雅
樹,偏光依存高分解能角度分解光電子分光
によるPb(110)単結晶の表面・バルク電子
状態,第27回日本放射光学会年会・放射
光科学合同シンポジウム,2014年1月11
日,広島国際会議場.

黒田健太,棗田翼,白井開渡,宮本幸治,
奥田太一,植田義文,生天目博文,谷口雅
樹,木村昭夫,トポロジカル絶縁体 Bi₂Se₃
における表面状態の偏光に依存した光電
子のスピン偏極度,第27回日本放射光学
会年会・放射光科学合同シンポジウム,
2014年1月13日,広島国際会議場.

安齋太陽,井野明洋,市來健吾,有田将司,
生天目博文,谷口雅樹,石角元志,藤田和
博,石田茂之,内田慎一,過剰ドーブ
Bi_{1.54}Pb_{0.6}Sr_{1.88}CaCu₂O₈₊ の準粒子繰り
込み構造とその波数依存性,第26回日本
放射光学会年会・放射光科学合同シンポ
ジウム,2013年1月12日,名古屋大学 ES
総合館.

白井開渡,黒田健太,岡本和晃,叶茂,
宮原寛和,宮本幸治,奥田太一,有田将
司,島田賢也,生天目博文,谷口雅樹,
植田義文,木村昭夫,トポロジカル絶縁
体 TlBiSe₂ のヘリカルスピン構造とキャ
リア制御,第26回日本放射光学会年会・
放射光科学合同シンポジウム,2013年1
月12日,名古屋大学 ES 総合館.

上野哲朗,澤田正博,古田尚史,岸水悠介,
生天目博文,谷口雅樹,Ni/Pd(001)超薄膜
の軟 X 線内殻吸収磁気円二色性分光,
第26回日本放射光学会年会・放射光科学合同
シンポジウム,2013年1月12日,名古屋
大学 ES 総合館.

奥田太一,宮本幸治,白井開渡,黒田健太,
木村昭夫,生天目博文,谷口雅樹,低速電

子回折スピン検出器による高効率3次元ス
ピン解析装置の開発,第26回日本放射光
学会年会・放射光科学合同シンポジウム,
2013年1月14日,名古屋大学 ES 総合館.
市來健吾,安齋太陽,中島陽祐,原豪太
郎,長門真平,井野明洋,有田将司,
生天目博文,谷口雅樹,石田茂之,石角元
志,内田慎一,放射光角度分解光電子分光
によるBi₂212の超伝導転移に伴う繰り込
み効果の研究,第25回日本放射光学会年
会・放射光科学合同シンポジウム,2012
年1月8日,佐賀県鳥栖市民文化会館・中
央公民館.

安齋太陽,井野明洋,加茂剛,藤田泰輔,
有田将司,生天目博文,谷口雅樹,藤森淳,
Z.-X. Shen,藤田和博,石角元志,石田茂
之,内田慎一,Bi₂Sr₂Ca_{0.8}Dy_{0.2}Cu₂O₈₊ の
準粒子構造の低エネルギー励起角度分解
光電子分光,第25回日本放射光学会年会・
放射光科学合同シンポジウム,2012年1
月8日,佐賀県鳥栖市民文化会館・中央公
民館.

宮本幸治,木村昭夫,黒田健太,奥田
太一,島田賢也,生天目博文,谷口雅樹,
M.Donath,W(110)のディラックコーン型
スピン偏極表面電子構造,第25回日本放
射光学会年会・放射光科学合同シンポジ
ウム,2012年1月9日,佐賀県鳥栖市民文
化会館・中央公民館.

[その他]

ホームページ等

<http://www.hsrc.hiroshima-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

生天目博文 (NAMATAME HIROFUMI)

広島大学放射光科学研究センター・教授

研究者番号: 10218050