

固体表面におけるスピン・プロトン・電荷ダイナミクス

	研究代表者	東京大学・生産技術研究所・教授 福谷 克之（ふたに かつゆき）	研究者番号：10228900
	研究課題情報	課題番号：24H00040 キーワード：水素、表面スピン構造、スピン緩和、吸着・反応	研究期間：2024年度～2028年度

なぜこの研究を行おうと思ったのか（研究の背景・目的）

● 研究の全体像

水素をエネルギー源として利用するためには、水素を生成、貯蔵、エネルギーへ変換することが必要であり、そのとき固体表面での水素のダイナミクスが重要な鍵を握る。水素は軽元素であるうえにスピンの自由度を持つため、そのダイナミクスにおいてトンネル効果や量子回転などの量子性を示す。本研究では、水素の持つ自由度であるスピン、プロトン、電荷の観点から水素の表面ダイナミクスの理解を深めるとともに、磁性や外部磁場を利用した表面反応制御の可能性を探索する。

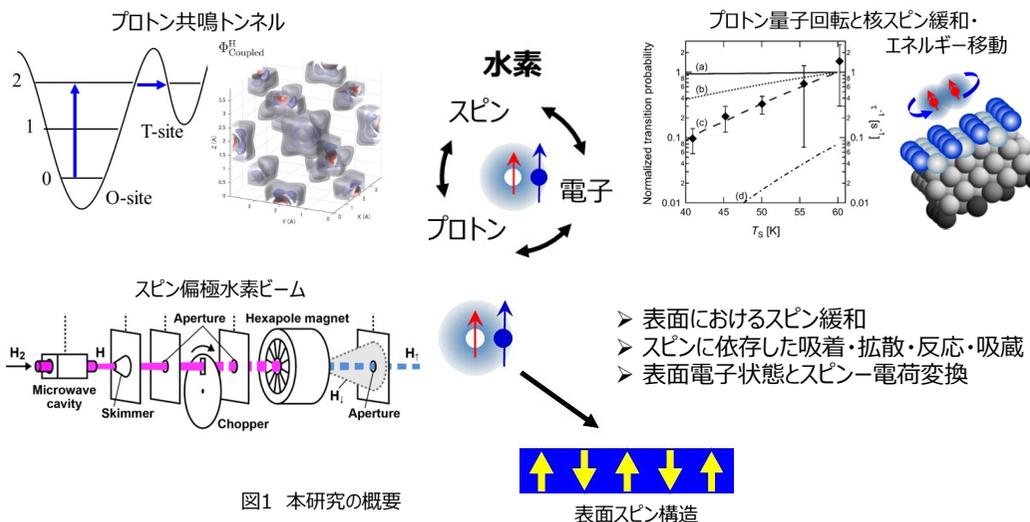


図1 本研究の概要

● 研究の背景・目的

水素を金属内部へ取り込む水素貯蔵や炭化水素の水素化反応、二酸化炭素の還元反応などは、エネルギー・環境問題において重要な課題である。これらの過程において、水素分子を原子へと解離することが必要で金属の触媒機能が利用される。また2つの水素原子から水素分子を生成する反応も、表面の助けを借りて生じる。これまでの研究により、水素の解離吸着や拡散、反応の電子的な機構の理解が進んできた。水素の構成要素であるプロトンと電子はスピンの自由度を持つ。近年、表面磁性や分子のスピン自由度を利用して、水素の吸着や反応を制御し高効率の反応を実現しようとする試みがなされつつある。しかし、水素の表面ダイナミクスにおけるスピンの役割は未解明である。申請者のグループでは、これまで独自に電子スピンが偏極した水素ビームの開発を行ってきた。図2は生成したビームのスピン偏極度をシュテルンゲルラッハ分光器で測定した結果で、偏極率>98%を達成した。

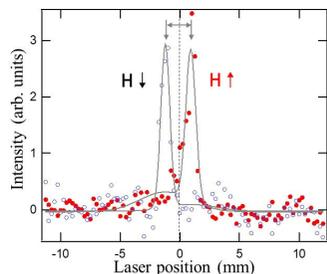


図2 スピン偏極率の測定結果

一方で、固体表面は様々なスピン構造を呈することが知られている。強磁性体ではその磁化の向きが表面に対して垂直になる場合と傾いた方向を取る場合がある。またマクロな磁性を示さない物質も、スピン軌道相互作用に起因してラシュバ効果やトポロジカルな効果により、電子のスピンと運動量が結合した電子構造を取ることが明らかになりつつある。このような表面では、水素のスピンと磁化方向に依存して相互作用が変化したり、スピン偏極した水素が特定の表面電子状態と相互作用したりすることが期待される。それに対応してプロトンの運動も影響を受け、スピンに依存した吸着・反応が生じると予想される。本研究では、スピン偏極水素ビームを用いて、種々のスピン構造を持つ表面での水素ダイナミクスの研究を行う。固体表面において、水素のスピンはどのような速度で緩和するのか、水素のスピン状態はプロトンの運動にどのように影響するのか、さらにスピン状態は表面電子状態とどのような相関を持つのか、これらの問いに答えることで表面における水素ダイナミクスの全貌を明らかにするとともに、磁性・外部磁場による反応制御の可能性を探索する。

この研究によって何をどこまで明らかにしようとしているのか

● 研究の方針

本研究では、種々のスピン構造を持つ表面を作製し、電子スピンが偏極した水素ビームを用いて、表面におけるスピン緩和速度と吸着・拡散・反応におけるスピン方向依存性の実験を行う。さらに理論解析と合わせてスピン・プロトン相関、スピン・電荷相関の観点から解析を行い、スピン・プロトン・電子複合粒子としての水素の表面ダイナミクスを明らかにする。具体的な表面として、Ni薄膜、Ag(111)-Bi_xPb_{1-x}、Bi₂Se₃薄膜、Ptなどの表面で研究を行う。Ni薄膜は強磁性を示し、温度によって磁化方向が変化することが知られている。Ag(111)-Bi_xPb_{1-x}表面は巨大ラシュバとして知られる一方、Bi₂Se₃はトポロジカル絶縁体であり、いずれもスピン偏極した表面状態を有する。またPtは大きなスピンホール効果を示すことが知られている。

● スピン緩和

スピン偏極水素ビームを上記試料表面に入射し、表面で散乱される水素のスピン偏極度をシュテルンゲルラッハ分光器とレーザー共鳴イオン化法で測定する（図3）。角度依存性、速度依存性、同位体依存性、および温度依存性の結果に基づき、表面スピン緩和速度を解析する。表面スピン構造とスピン緩和速度との相関を明らかにする。

● スピン・プロトン相関

熱脱離分光、赤外吸収分光を併用し、水素の吸着確率・拡散速度のスピン依存性・同位体依存性を観測する。さらに吸着水素の引き抜き反応（水素分子生成）、吸着酸素の還元反応（水分子生成）、炭化水素の水素化反応などにおけるスピン依存性を調べる。第一原理計算に基づく量子ダイナミクス解析により、水素-表面相互作用ポテンシャルのスピン依存性を明らかにする（図4）。さらにトンネル効果やポテンシャル間の非断熱遷移の効果を明らかにする。

● スピン・電子相関

スピン偏極したラシュバ系やトポロジカル絶縁体表面において、スピン偏極水素はスピン選択的に表面電子状態と相互作用することが期待される（図5）。それに伴い、スピン誘起電流も期待される。光電子分光による電子状態計測を併用し、水素の吸着・拡散・反応におけるスピンに依存した電子的相互作用の詳細を明らかにする。

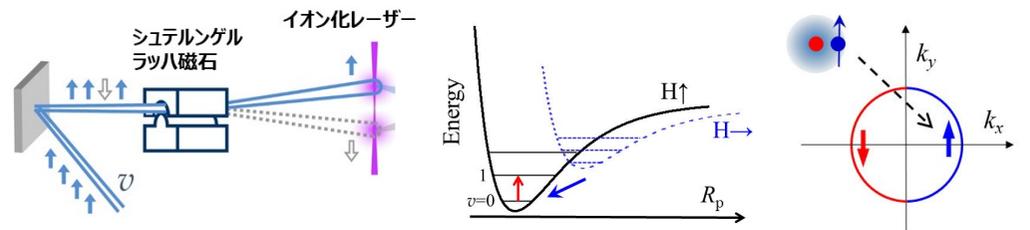


図3 表面でのスピン緩和測定の様式図

図4 スピンに依存した水素-表面相互作用ポテンシャルの様式図

図5 トポロジカル表面状態とスピン偏極水素の相互作用