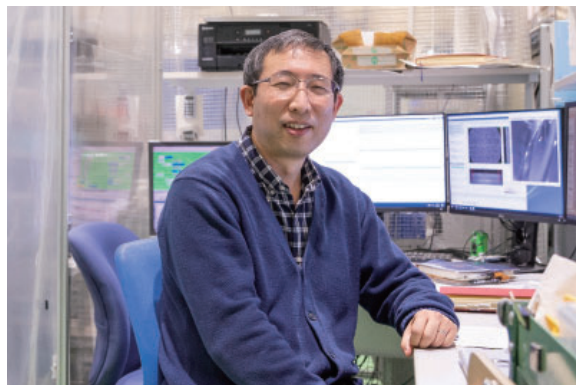


光電子究極微之愉

松井 文彦 極端紫外光研究施設 教授

1995年東京大学理学部化学科卒業
 2000年同大学大学院理学研究科博士後期課程修了、博士（理学）
 2000年奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科助手、07年助教
 2011年チューリッヒ大学物理学科客員研究員
 2013年奈良先端大准教授
 2018年分子科学研究所主任研究員
 2021年分子科学研究所・総合研究大学院大学 教授



緒言

光電萬華鏡 微界表層中
 称破秩序誕 会刻物性融
 幽微発新相 妙彩映双瞳
 未見驚天巧 至愉在奇逢

光電子万華鏡（運動量顕微鏡）を用い、表面のナノスケールの世界を探る。対称性が破れるとともに、新たな秩序が産声を上げる、その決定的な瞬間に立ち会うとき、未知の物性が鮮やかに形を成す。

ミクロの奥底から新たな相が湧き出し、えもいわれぬ美しい模様が、観察する私の瞳に映り込む。自然の造形が成す、人智を超えた精巧な仕組みに驚かされ、この奇跡のような出会いこそが、研究者にとって最高の喜びである。

1926年、量子力学の黎明期。シュレディンガー方程式の誕生と並び、物

理学の最前線を揺るがしたのが「電子スピン」であった。パウリによる第4の量子数の提唱から、激しい論争とシュテルン・ゲルラッハの実験を経てその正体が炙り出された過程は、科学史における白眉といえる^[1]。

一世紀を経た今もなお、スピンは物性物理の主役であり、次世代の量子技術を支える鍵である。しかし、その重要性に反して、不可視のスピンを真に理解することは容易ではない。私達はこの見えざるスピンの姿を捉えるべく、「スピン偏極光電子運動量顕微鏡」の開発に挑んでいる。本稿では、スピンの深淵に迫ることを今後のライフワークとする私流のアプローチを紹介したい。

磁化をひっくり返すメカニズム

私はこれまで、シングルショット

でミクロの世界を捉える「表示型エネルギー分析器」の開発に携わってきた^[2]。原子の内殻準位から放出される光電子の角度分布には、隣接原子方向へ輝く前方収束ピーク（FFP: Forward Focusing Peak）が現れる（図1）。この光電子回折の原理とX線吸収分光法（XAS: X-ray Absorption Spectroscopy）を組み合わせた独自の手法「回折分光法」を考案し、従来困難であった表面の各原子層における磁気スペクトル分離を実現した^[3]。

本手法を、磁性薄膜のスピン再配向転移の解明に応用した。例えばCu基板上のNi薄膜は、膜厚に応じて磁化容易軸が面内から垂直へと劇的に相転移する。解析の結果、この転移を誘起する駆動力は最表面のNi原子が持つ軌道磁気モーメントにあることを突き止めた。

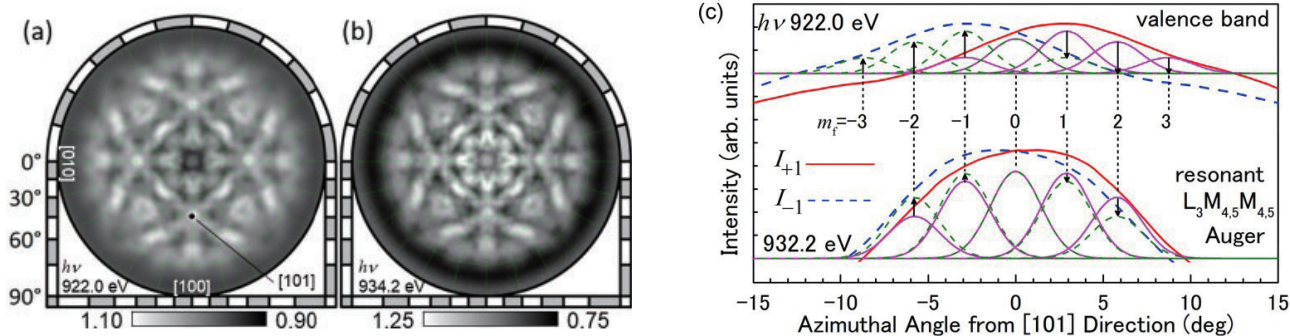


図1 (a) Cu価電子帯および (b) Cu LMM オーজে電子の角度分布において観測されたFFP（前方収束ピーク）の円偏光二色性シフト。(c) 異なる軌道角運動量成分へと分離されたFFP。

さらに、垂直磁化に伴う $3d(m_l = \pm 2)$ 軌道の占有率の顕著な偏極を検出することにも成功した^[2]。これらの成果は、微視的な電子軌道の振る舞いがいかにしてマクロな磁気特性を決定づけるかを示すものであり、次世代磁気素子の設計指針となる重要な知見である。

光電子運動量顕微鏡 (PMM: Photoelectron Momentum Microscope) による新展開

研究は螺旋を描くように発展を遂げる。私達は現在、新たな物性研究基盤として「光電子運動量顕微鏡 (PMM、図2)」の展開に注力している。本装置は、光電子放出顕微鏡 (PEEM: Photoelectron Emission Microscope) にエネルギー分析器と投影型2次元検出器を統合したもので、等エネルギー面の2次元運動量分布や、実空間におけるドメイン選択的な顕微像の一括取得を可能にする。特にスピフィルターとの高い親和性を活かした、スピン偏極分布の高効率計測は本装置の最大の強みである。ドイツで発祥したこの技術は、国内放射光施設では分子科学研究所のUVSORに初めて導入された^[4]。UVSORでは、特性の異なる二つのビームラインを使い分けることで、多角的な解析を実現している^[5]。

- ・軟X線 BL6U (40-700 eV) : 試料法線から 68° のp偏光斜入射配置を採用。内殻準位・価電子共鳴励起や、価電子帯の kz 分散測定に最適化されている。
- ・真空紫外光 BL7U-branch (6-30 eV) : 直入射s偏光および偏光可変機能を備える。遷移行列要素の解析や、価電子帯の全半球角度分布計測に威力を発揮する。

PMMならではの運動量顕微法

PMMの最大の長は、運動量空間

(価電子帯分散) と実空間 (物質の構造) の情報を密接に相関させる点にある。その好例が、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板上のIr(111)薄膜におけるフェルミ面計測である^[6]。本試料は結晶方位の異なる「双晶ドメイン」を含み、測定位置によって鏡面对称な一対の3回対称パターンが観測される。本装置では、まずディフレクタを用いて特定の強度ピークを視野中心へ移動させる。次に、微小なコントラストアパーチャーでその信号のみを抽出し、装置を顕微モードへと切り替える。これにより、特定のドメインの空間分布を明瞭なコントラストとして可視化できる。この運動量顕微法は、電子回折において特定の回折スポットを選択する「暗視野結像法」の原理を光電子イメージングに応用したものであり、微視的な電子状態とマクロな組織構造を直接結びつける独創的なアプローチである。

PMMによるスピンキャラクタリゼーション

UVSORにて世界初のスピン回転器を装備したPMMの性能評価として、面内磁化を示すNi(110)単結晶表面のバンド計測を行った (図3)^[6]。スピン

検出器の感度符号 (正負) を確定させるには、磁化方向を厳密に制御した状態での計測が不可欠である。磁化制御のため、回転導入器の先端にサマリウムコバルト磁石を備えた独自の機構を開発し、 $[\bar{1}11]$ 方向に磁場を印加した。実験では、「点付近の少数スピンバンド Σ 」を選択的に抽出するため、入射光エネルギーを60.5 eVに設定し、フェルミ準位 (E_F) における運動量分布を計測した。続いてIr(001)スピフィルターを用いた計測を実施したところ、スピン回転器の磁場方向 (CCW/CWモード) に応じて光電子強度に顕著な増減が確認された。この結果は、物質の磁性を担う電子スピンの、いかなるバンドにある電子の運動量と結びついているかを詳細に解明できる本装置の能力を実証するものである。

先述した回折分光法が、物質の磁性を形作る「磁気モーメントの森」を俯瞰する手法であるならば、PMMによるアプローチは「スピンを特徴づける一本一本の木 (個別の電子軌道)」の素性を詳らかにする試みであるといえる。

Au(111)表面におけるラッシュバ分裂とスピンヘリシティの確定

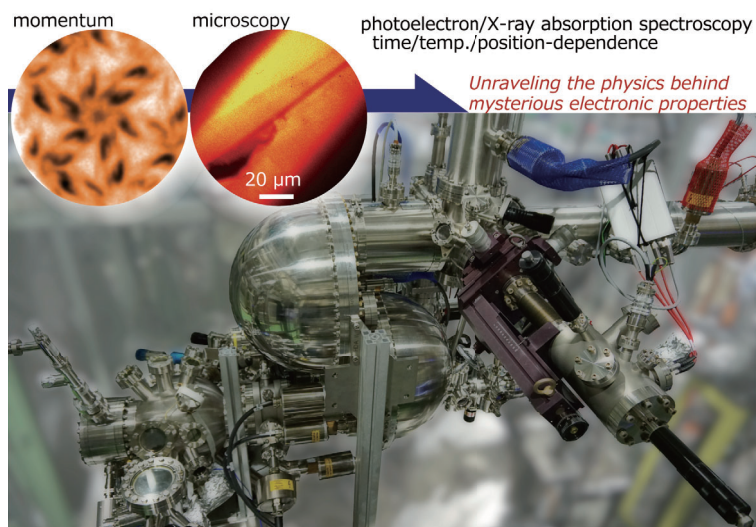


図2 UVSORに導入した光電子運動量顕微鏡。

こうした電子物性の基盤を可視化する研究を進める中で、私達は最近、Au(111)表面に発現するスピンの偏極電子状態を巡る「20年来の混乱」に終止符を打つ成果を挙げた^[7]。Au(111)表面には、電子が最表面領域に閉じ込められた「ショックレー (Shockley) 表面状態」が存在する。表面の面直方向に生じる異方的な電場は、電子の運動とスピンを結合させるラシュバ (Rashba) 効果を引き起こし、バンドをスピンの向きが互いに逆方向となる2本の同心円状に分裂させる。しかし、これら分裂したバンドのスピンのヘリシティ (時計回りか反時計回りか) については、過去20年間にわたり真逆の帰属が混在し、議論が続いていた。

本研究では、スピン分解PMMを用いてAu(111)の表面状態を精密に計測した (図4)。その結果、外側のバンドが時計回り、内側のバンドが反時計回りのスピン配置であることを、その符号 (向き) を含めて明確に実証した。図4(d)は、運動量を中心からの距離に置き換えて描いたスピン配列の模式図である。本成果の詳細については、ぜひプレスリリースをご参照いただきたい。

謝辞

コロナ禍が本格化する直前、PMMの基礎システムを構築し、待望のファーストデータの取得に成功した。その後、萩原健太氏 (現東大工)、佐藤祐輔助教、菅滋正阪大産研招聘教授をはじめ

とする多くの共同研究者やUVSORのスタッフとともに、二つのビームラインを同時に利用可能な「二刀流エンドステーション」や、実空間および逆格子空間の双方に対応するマルチモードな2次元スピン検出器の立ち上げを行った。こうした最先端装置の開発と研究は、次世代を担う研究者の育成の場ともなっている。例えば、先述のIr薄膜の測定を共同で行った橋本恵里氏 (当時青山学院大学) は、学部生時代から本施設での研究に従事し、その成果を結実させて無事に博士号を取得した。装置開発というハードウェアの構築から、それを生きた物理現象の解明に至るプロセスは、教育的な側面からも極めて重要な意義を持っていると信じている。

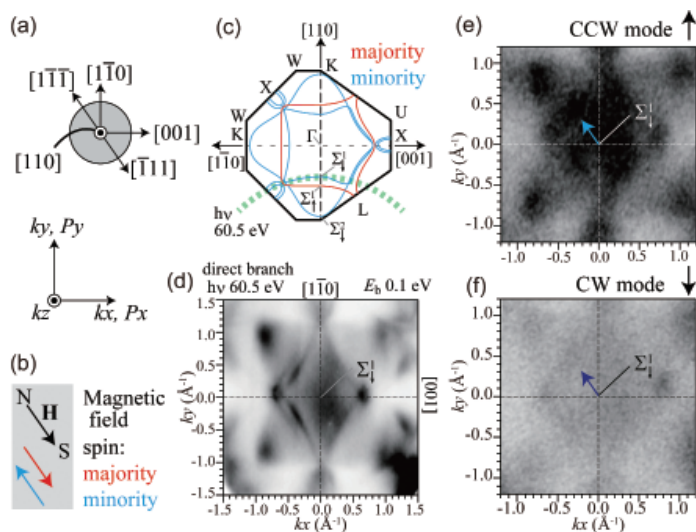


図3 (a)Ni(110)試料の結晶方位。(b)[-111]磁化における残留スピンの方位。(c)Niフェルミ面の模式図。 Σ_1 状態は入射光エネルギー60.5 eVで観測可能である。(d)ダイレクトブランチ (非スピン分解モード) で観測された Σ_1 状態。(e)および(f)異なるスピン回転モードにおいて、スピンのブランチ (スピン分解モード) で観測された Σ_1 状態。

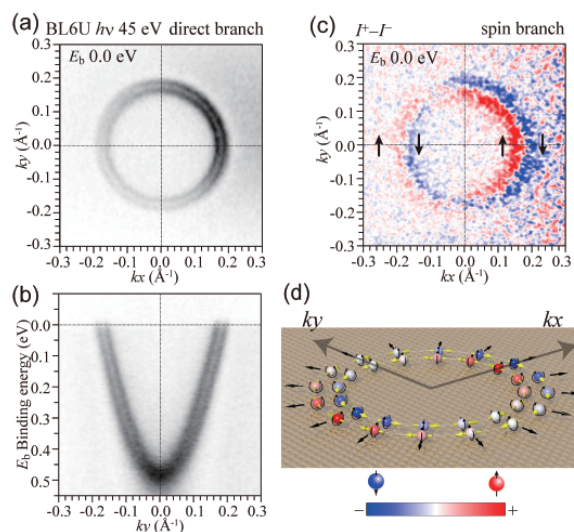


図4 (a)Au(111)表面状態のフェルミ面、および(b)そのバンド分散。(c)スピン偏極の運動量分布。(d)スピン偏極の模式図。

参考文献

- [1]「量子革命」マンジット・クマール/著、青木薫/訳 新潮社 2013
- [2] 松井文彦、松下智裕、大門寛「光電子分光詳論」丸善出版 (2020).
- [3] F. Matsui, et al., *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008) 207201.
- [4] F. Matsui, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 067001 (2020).
- [5] K. Hagiwara et al., *J. Synchrotron Radiat.* **31**, 540 (2024).
- [6] E. Hashimoto, et al., *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **24**, (2026) in print.
- [7] F. Matsui, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **94**, 114707 (2025).