# 光物性測定器開発研究部門 (極端紫外光研究施設)

# 松井 文彦(主任研究員)(2018年4月1日~2021年11月15日) (教授)(2021年11月16日昇任)

佐藤 祐輔(助教) 萩原健太(特任研究員(IMSフェロー)) 松田 博之(特任研究員) 大門 寛(研究員) 佐々葉 遼平(特別共同利用研究員) 石原 麻由美(事務支援員) 加茂 恭子(事務支援員) 横田 光代(事務支援員)

A-1) 専門領域:表面物性物理学,電子分光計測技術,放射光科学

### A-2) 研究課題:

- a) 電子分光装置・マルチモーダルスピン分析器の新規開発を突破口とした UVSOR の高度化
- b) 運動量分解光電子分光による相転移やスピン物性など新規現象を基盤とした測定手法確立
- c) 新奇表面電子物性・化学特性・スピン科学の応用展開
- d) 諸分光手法の融合による電子状態計測データベース構築と利用コミュニティーの開拓

### A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ① UVSOR オリジナルの Photoelectron Momentum Microscope (PMM) 拠点構築を主務とする。PMM は空間・波数空間・エネルギーの幅広い範囲での高分解能測定を可能にするユニークな分析器である。電子物性研究に適した VUV/EUV 領域での高強度・可偏光などといった UVSOR の光源特性を活かした測定機能を実装する PMM の導入を実現し、論文・プレスリリースを通じて成果発信を続けている。②並行して全天球電子レンズ及び電子エネルギー・スピン分析器を考案し国際特許出願した。上記の PMM は 3 Å-1 までの波数空間の一括測定ができるため価電子帯研究で有効な運動エネルギー 36 eV 以下の領域では全天球をカバーすることができるが、原子配列を研究するのに有効な運動エネルギー 500 eV 以上の領域ではせいぜい 15°の領域でしかない。新規分析器は 2 keV でも全天球の放出光電子を取り込むことができ (こちらは特許が 2 件成立した)、後段のスピン偏向器でスピンの 3 次元ベクトル解析ができるようになる。①は high-end 型価電子帯光電子分光装置、②は内殻光電子ホログラフィー測定装置である。両者を融合させ、スピン 3 次元ベクトル解析を実・逆空間で自在にマッピングできる唯一無二の装置を構築する。
- b) 物性評価に適した光波長帯の連続的なエネルギー可変性が UVSOR の最大の特徴である。BL6U は軟 X線領域(45-700 eV)をカバーする直線偏光ビームラインである。③分子科学で重要となる CNO 吸収端の光を用い,元素選択的な共鳴励起によって価電子帯の原子軌道構成を解明できる共鳴光電子分光の実験を成功させた。特に,吸収端にてグラファイトの $\pi$ バンドが選択的に励起される様子を波数空間上で可視化したが,共鳴 Auger 電子スペクトルに価電子帯分散が重なる現象の発見は重要である。グラフェンから $\pi$  共役系分子への展開に歩を進め,お家芸としての共鳴光電子回折法を確立した。当グループで確立した「運動量分解光電子顕微鏡法」はグラファイトの単原子層ステッ

プの可視化で威力を発揮し、プレスリリースを行った。表面の劈開や分子吸着のエネルギーに関する詳細な議論ができるようになった。④光エネルギー可変性を活かした  $k_2$  分散測定による全 Brillouin 域価電子帯分散マッピングや 偏光特性を活かした原子軌道波動関数解析技術は BL6U での共同研究推進の基盤であるが、さらに精緻な測定を行い、表面特有の電子状態や現象の情報を引き出す研究展開を進めている。

- c) BL7U は真空紫外領域(6-40 eV)をカバーする偏光可変ビームラインである。ブランチ化を行い、新たに PMM に直入射配置で導入することに成功した。軟X線の照射位置と同じ場所で真空紫外光による全立体角光電子分光を行うことができる。特にバンドを構成する原子軌道の対称性を直接的に解析することができる新しい手法の展開が始まった。二つのアンジュレータ光源を駆使する包括的な光電子分光ステーションの構築が実現した。この直入射配置を活用した PMM 展開 (J. Synchrotron Radiat. 2024 プレスリリース済)をもとに、高対称の光励起実験が可能となり、価電子帯を構成する原子軌道の情報が得られること、および解析で問題となる散乱現象の見分け方を早速実証実験で示すことに成功した。念願の多次元スピン分析解析機能が立ち上がり、基礎データの取得を系統的に進めている段階である。直入射配置と組み合わせたスピン分析は唯一無二の手法となる。
- d) 光電子回折・分光を用いて典型的な高温超伝導体 Bi2212 や代表的層状物質 TaSe2, TiSe2 の相転移前後の電子状態をとらえた。graphite 表面の単原子ステップの顕微像の撮影に成功した(Phys. Rev. B 2022)は大きな前進である。新たに確立した顕微 ARPES/ARPES 顕微法の論文(J. Phys. Soc. Jpn. 2022)および(Rev. Sci. Instrum. 2023)は両方とも Editor's Choice に選定された。劈開試料表面の局所部分の精密分析の成功は今後の共同研究を呼び込む重要な成果である。共同研究先から Ir 単結晶薄膜の電子状態評価の依頼を受け、バンド分散の測定に成功した。この薄膜は新しいスピン 2 次元フィルターとして有望な材料であり、上記で述べたスピン 3 次元ベクトル解析への応用展開につながるものである。

### B-1) 学術論文

- T. KOBAYASHI, F. MATSUI, E. IWAMOTO, H. KIZAKI, M. MIYATA, M. KOYANO, I. YAMAMOTO, S. SUGA and K. SAKAMOTO, "Temperature-Dependent Electronic Structure of a Quasi-Two-Dimensional Conductor η-Mo<sub>4</sub>O<sub>11</sub>," *Sci. Rep.* **15**, 9034 (2025). DOI: 10.1038/s41598-025-93355-0
- Y. SATO, Y. FUKAYA, A. NAKANO, T. HOSHI, C. C. LEE, K. YOSHIMI, T. OZAKI, T. NAKASHIMA, Y. ANDO, H. AOYAMA, T. ABUKAWA, Y. TSUJIKAWA, M. HORIO, M. NIIBE, F. KOMORI and I. MATSUDA, "Surface Structure of the 3×3-Si Phase on Al(111), Studied by the Multiple Usages of Positron Diffraction and Core-Level Photoemission Spectroscopy," *Phys. Rev. Mater.* **9(1)**, 014002 (2025). DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.9.014002
- Y. HASHIMOTO, J. MIZUNO, H. MATSUDA, F. MATSUI and T. MATSUSHITA, "High-Resolution Electron Energy Analyzer with Wide Acceptance Angle for Hard X-Ray Photoelectron Holography: Integrating PESCATORA and Retarding Field Analyzer," *Jpn. J. Appl. Phys.* **63(12)**, 124001 (2024). DOI: 10.35848/1347-4065/ad9447
- F. MATSUI, K. HAGIWARA, Y. SATO, E. NAKAMURA, R. SAGEHASHI, S. KERA and S. SUGA, "Dual-Beamline Photoelectron Momentum Microscopy for Valence Orbital Characterization," *Synchrotron Radiat. News* 37(4), 43–48 (2024). DOI: 10.1080/08940886.2024.2391256
- T. INOUE, T. INA, H. MASAI, N. KONDO, F. MATSUI, T. KINOSHITA and A. NAKAJIMA, "Extended X-Ray Absorption Fine Structure (EXAFS) Measurements on Alkali Metal Superatoms of Ta-Atom-Encapsulated Si<sub>16</sub> Cage," *J. Phys. Chem. Lett.* **15(20)**, 5376–5381 (2024). DOI: 10.1021/acs.jpclett.4c00492

K. HAGIWARA, E. NAKAMURA, S. MAKITA, S. SUGA, S. TANAKA, S. KERA and F. MATSUI, "Development of Dual-Beamline Photoelectron Momentum Microscopy for Valence Orbital Analysis," J. Synchrotron Radiat. 31(Pt3), 540-546 (2024). DOI: 10.1107/s1600577524002406

H. MATSUDA, K. OZAWA, Y. HASHIMOTO, T. MATSUSHITA and F. MATSUI, "Use of Planar Retarding Field to Improve Energy Resolution of Projection-Type Electron Spectroscopy Collimator Analyzer," Jpn. J. Appl. Phys. 63(4), 046503 (2024). DOI: 10.35848/1347-4065/ad3ab8

### B-3) 総説, 著書

H. DAIMON, T. MATSUSHITA, F. MATSUI, K. HAYASHI and Y. WAKABAYASHI, "Recent Advances in Atomic Resolution Three-Dimensional Holography," Adv. Phys.: X 9(1), 2350161 (2024). DOI: 10.1080/23746149.2024.2350161

S. KERA, T. ARAKI, K. TANAKA, Y. TAIRA, M. KATOH and F. MATSUI, "UVSOR Synchrotron Facility 40th Anniversary," Synchrotron Radiat. News 37(2), 41-42 (2024). DOI: 10.1080/08940886.2024.2330876

T. YOKOYAMA, F. MATSUI, H. ABE and T. KINOSHITA, "60 Years of Synchrotron Radiation in Japan (JPSR60)," Synchrotron Radiat. News 37(2), 43-44 (2024). DOI: 10.1080/08940886.2024.2330877

## B-4) 招待講演

松井文彦、「光電子運動量顕微鏡による電子状態研究:ミルからワカルへ」、日本物理学会領域 2, 5, 9, 10合同シン ポジウム 「先端計測のフロンティア~見えないモノを見る挑戦」、札幌、2024年9月.

松井文彦、「マルチモーダル光電子シネマトグラフィー:表面相転移の観察から解明へ」、NIFS 研究会数理科学・プラ ズマ科学・物質科学の共通研究拠点形成, 土岐, 2024年5月.

松井文彦、「顕微 ARPES と光電子顕微鏡: 光電子運動量顕微鏡を中心に」、JVSS-MBA 研修セミナー「多様な表面分 析が可能な電子分光法」、仙台、2024年4月.

F. MATSUI, "Dual-beam (Soft X-ray/VUV) Photoelectron Momentum Microscope," Korea-Japan Symposium on Molecular Science, Cutting-Edge Molecular Science from Elementary to Complex Systems, Busan (Korea), June 2024.

# B-5) 特許出願

登録

特許第7505794号、「球面収差調整カソードレンズ、球面収差補正静電型レンズ、電子分光装置、及び光電子顕微鏡」、 松田博之,松井文彦(自然科学研究機構),2020年.(登録日2024年6月17日)

特許第7607953号、「静電偏向収束型エネルギー分析器、結像型電子分光装置、反射結像型電子分光装置、およびス ピンベクトル分布イメージング装置」、松田博之、松井文彦(自然科学研究機構)、2021年. (登録日 2024年 12月 20日)

## B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面真空学会理事 (2021.5-), 協議員 (2023-2025).

学会の組織委員等

表面構造に関する国際学会 ICSOS 国際アドバイザー委員 (2017-).

VUV·SX 高輝度光源利用者懇談会幹事 (2024-2026).

日本表面真空学会若手部会運営委員(2025).(佐藤祐輔)

文部科学省,学術振興会,大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会R026先端計測技術の将来設計委員会運営委員 (2019-2025), 副委員長 (2024-2025).

広島大学放射光科学研究所協議会委員 (2024-2026).

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所人事委員会委員 (2024).

量子科学技術研究開発機構 Nanoterasu 利用研究検討委員会委員 (2024-2025).

### 学会誌編集委員

日本表面真空学会出版委員 (2013-).

#### B-8) 大学等での講義, 客員

総合研究大学院大学先端学術院、「放射光科学」、2024年7月-8月.

#### B-10) 競争的資金

科研費挑戦的研究(開拓),「ドーパントの価数ごとの立体原子配列を観測する小型測定装置の研究」(代表:松下智裕), 松井文彦(研究分担者)(2021年度-2025年度).

科研費基盤研究(C),「全角取り込み光電子分光法の開発」, 松田博之(2021年度-2025年度).

### B-11) 産学連携

共同研究, 三菱ケミカル(株), 松井文彦 (2020年度-).

共同研究, SPECS Surface Nano Analysis GmbH, 「Development of 2D-projection analyzers」, 松井文彦 (2022年度-2024年度).

# C) 研究活動の課題と展望

UVSOR 型 Photoelectron Momentum Microscope (PMM) 利用研究を推進する。顕微角度分解光電子分光, 共鳴光電子分光, 3D 波数空間分解光電子分光法を協力研究に供するとともに自身の表面物性科学研究を進める。軟 X 線ビームラインと VUV ビームライン両方を同時に PMM に導く two-beam PMM 実験ステーションを構築し, 2023 年度は両方での運用が始まった。現在 2D スピンフィルタが立ち上がり、最適化を進め、両ビームラインを利用したスピンを含めた電子状態解析環境の構築を進めている。基礎研究として磁性薄膜・キラル分子膜の電子状態・原子構造研究を進める。

PMM 開発の先駆者がいる Forschungszentrum Jülich (FZJ) の電子物性部門 (PGI-6) と学術協定を結び、表面電子物性の共同研究を進めてきたおかげで、UVSOR でも PMM が順調に立ち上がった。時間分解型の PMM 開発を進めるドイツ・DESY の M. Hoesch らとも共同研究を密にし、こちらからスピン研究に関して相手から時間分解測定法に関して経験技術交流を進めている。本装置を活かした実験を積極的に進めるユーザーコミュニティ構築のための第1回 (2019)・第2回 (2020.10) 国際ワークショップ・第3回 (2022.10) 国際会議特別セッション共催、第4回 (2023.7) 分子

研研究会, 第5回(2024.11)国際会議特別セッション共催と継続的に開催し, 東アジア圏でのPMM 開発グループの 萌芽のネットワークが密になった。2022年にはDESYにて招待講演を行った。UVSORの国内外からのビジビリティ を高めるとともに、他のビームラインにも先端拠点を目指す機運と風土の定着を活動指針として進めている。

各種分光研究で取得されるデータを有効活用するためのデータフォーマット策定や公開のためのインフラつくりの重 要性が近年認識されてきている。多量のデータを協力研究の研究者と共同で解析するために、データ解析ソフトや 手法の整備を進めている。学会(放射光学会), 産学連携委員会(R026先端計測), 計測コミュニティー(XAFS)な どでデータフォーマット整備の活動に加わっている。UVSOR 放射光利用を産業界を含めた広い潜在的ユーザーに拡 大する機会ととらえている。