

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： バルク敏感スピン分解超高分解能光電子分光装置の開発

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

高橋 隆(東北大学原子分子材料科学高等研究機構 教授)

3. 研究実施概要

高温超伝導体などの新機能物質の物性発現には、表面でなく物質本来のバルク電子状態が重要である。そのバルク電子構造を、高いエネルギー分解能で運動量とスピンに分解して測定する「バルク敏感スピン分解超高分解能光電子分光装置」の開発を行った。そのための要素技術として、(1)バルク敏感測定を可能とする高輝度キセノンプラズマ放電管、(2)超高分解能測定のための電子エネルギー分析器、(3)スピン分解測定を行うモット検出器、(4)極低温マニピュレーターと試料準備・作製槽、および、(5)パルスレーザー堆積薄膜作製装置を開発した。

開発したキセノンプラズマ放電管は、マイクロ波を励起源としてプラズマを生成させ、そこからの発光を利用する新たな光源で、バルク敏感性と高分解能測定を同時に達成するものであるが、プラズマによる放電管内部の激しい浸食が大きな問題となった。本研究グループでは、領域アドバイザーとの討論によるプラズマエッチング軽減のためのアルミ蒸着も含めて、放電管全体のデザイン、キャピラリーの形状、マイクロ波の入力方向、プラズマ位置、強制冷却法など、あらゆる原因要素を検討して放電管の製作改良を行い、超高分解能測定に十分耐えうる 1,000 時間以上の安定発光に成功した。また、従来型放電管に比べて 100 倍の高強度を達成し、スピン非分解時で 900 μeV という超高エネルギー分解能を達成した。また、キセノン放電管による超高分解能測定とスピン分解測定を両立できる新型電子エネルギー分析器を開発すると同時に、その後段に、電子偏向器を通してモット検出器を配置したスピン分解測定システムを開発した。電子偏向器においては、数値シミュレーションや電子エネルギー分析器との幾何学的配置の調整などにより 100%のトランスミッタンスを達成した。モット検出器においてはターゲット改良、ノイズ対策、漏洩磁場評価などを行い、電子散乱効率 $I/I_0=4.6\times 10^{-2}$ を達成した。さらに電子分析器、電子偏向器、モット検出器、キセノン放電管、試料マニピュレーターを含むシステム全体でマッチング調整を行い、スピン分解光電子分光装置として世界最高のエネルギー分解能 8 meV を達成した。

装置のスピン分解測定性能を評価するため、標準試料である Sb(111)と Au(111)のスピン分解光電子分光を行い、表面ラッシュバ効果によりスピン分裂したバンドをこれまでに無い精度で観測することに成功した。また、スピン分解測定用パルスレーザー堆積薄膜作製装置の製作と調整を行って全システムに接続し、銅酸化物やマンガニ酸化物の単結晶薄膜を育成して、その高分解能光電子分光測定を行った。

建設した装置を用いて、鉄系超伝導体やグラファイト層間化合物などを中心とした新規超伝導体、グラフェン、表面ラッシュバ系、トポロジカル絶縁体などの新機能性物質やスピントロニクス関連物質の高分解能角度分解光電子分光実験を行い、フェルミ準位近傍における微細電子構造を決定し、物性発現機構との関連を明らかにした。例えば、鉄系超伝導体においては、世界に先駆けて超伝導ギャップの波数依存性の直接観測に成功し、超伝導電子対の対称性が s 波であることを確立して超伝導機構と反強磁性相互作用の密接な関連を明らかにした。また、トポロジカル絶縁体においては世界に先駆けてタリウム系三元カルコゲナイド TlBiSe_2 がこれまで発見された物質中で最もバンドギャップの大きいトポロジカル絶縁体であることを明らかにした。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

①原著論文発表 (国内(和文)誌 0件、国際(欧文)誌63件)、その他の著作物・総説、書籍 10件

②学会招待講演 (国内会議 15 件、国際会議 17 件)

- ③学会口頭発表（国内会議 54 件、国際会議 5 件）、ポスター発表（国内会議 3 件、国際会議 21 件）
- ④国内特許出願（0 件）、海外特許出願（0 件）
- ⑤受賞 4 件、新聞報道等 11 件

以上のように、国際原著論文発表、国際・主要国内学会発表、受賞、マスコミ報道等、情報の発信は極めて活発で、質的にも十分に満足できるものである。特に、インパクトファクターが高く(6.8)、当該分野で最重要論文誌の一つである *Physical Review Letters* 誌 10 報、および、話題性に著しい *Nature Physics* 誌 2 報を含む、重要国際誌に多くの発表があり、発表成果が高い注目を浴びていることがわかる。国際会議での招待講演が非常に多いことから、本研究の成果が世界的に注目され高い評価を受けていることが分かる。一点、あえて言うならば、特許出願があるとさらに良かったと考える。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

本研究における Xe 放電管を用いた光電子分光は世界初であり、また、モット検出器を用いたスピン分解光電子分光でも世界をリードしている。今回開発された装置により、世界最高レベルのエネルギー分解能をもつスピン分解光電子分光が可能となり、すでに多くの材料の測定に活用され、高温超伝導体やトポロジカル絶縁体の物性解明に貢献している。それらによって得られた成果は、その多くが *Physical Review Letters* 誌などの物理分野最高レベル論文誌に掲載され、国際的に高い評価を得ている。プロジェクトで実現された装置は、今後話題となる、スピントロニクスなどの材料戦略や加工技術開発や評価に、主要な測定器のひとつになると期待される。さらに、Xe ランプ光源は、光電子分光用の光源として他の研究者も自由に使えるようになり、サイエンスの振興という意味でも高く評価できる。以上により、本研究の科学的・技術的インパクトは非常に高いと評価できる。

本研究により、これまで表面計測に用いられてきた光電子分光を応用して、バルク現象の解明と応用に資する新しい電子状態計測手法が開発された。世界で断然トップの超高分解能スピン分解光電子分光は、今後特に重要となるスピンが関与する現象のメカニズム解明に大きな力を発揮でき、この研究分野の進展が期待される。また、Fe 系超伝導体やグラフェンを始めとして、各種新規材料の開発に貢献できると期待される。したがって、本研究は、本研究領域の戦略目標に向けて大いに貢献し、また社会的にも多大なインパクトを与えると評価される。

4-3. 総合的評価

本研究では、He 放電管を用いることが主流であった光電子分光において、Xe 放電管を用いて試料の表面から深い領域、すなわちバルク領域の情報も得られるバルク敏感光電子分光装置を実現することに挑戦した。いくつかの困難を克服して実用に耐えるコンパクトな Xe 放電管の開発に成功して、この放電管を用いたバルク敏感光電子分光を実証した。この Xe 共鳴線は、グラフェンやトポロジカル絶縁体など表面に特徴的な情報をきれいに測定することにも威力を発揮した。さらに、自作のモット検出器による世界最高分解能のスピン分解光電子分光も実現した。これらの成果は光電子分光装置として世界を断然リードするものであり非常に高い評価に値する。この装置はすでに多くの材料の測定に活用されており、高温超伝導体やトポロジカル絶縁体の物性解明に貢献している。その多くが *Physical Review Letters* 誌、*Nature Physics* 誌などインパクトファクターの高い雑誌へ掲載されていることから、開発された装置の持つオリジナリティとポテンシャルが分かる。特許出願がないため、このプロジェクトの成果の知財貢献は限定的となるが、研究者間の交流を通して国内外の材料・物性研究に与えるインパクトはきわめて大きい。