

## ■第6回放射光科学賞受賞研究報告

# 真空紫外領域の光電子分光を用いた固体物理学研究と放射光科学への貢献

## —個性輝く小型放射光施設の創生—

谷口雅樹 (広島大学放射光科学研究センター)

### 1. はじめに

広島大学放射光科学研究センター (HiSOR) は、1996年に学術審議会の議を経て紫外線～軟 X 線領域の放射光利用研究の推進と人材育成を目的とする学内共同教育研究施設 (省令施設: 10年時限)<sup>1,2)</sup>として設置されました。

その後、2002年に全国共同利用施設の新設、2010年には共同利用・共同研究拠点として認定され、今日に至っています。

ここでは、個性や特色が際立つ小型放射光施設の創生に向けた考え方、設備の整備、固体物理学と放射光科学への貢献について紹介します。

### 2. 放射光源・ビームラインと重点研究の概要<sup>2)</sup>

光源加速器システムは、入射用マイクロトロン (150 MeV)、ビーム輸送ライン、レーストラック型蓄積リング (周長22 m、蓄積ビームエネルギー700 MeV) から構成されています。

2つの180°偏向電磁石 (B) から発生する放射光 ( $h\nu$ : 2 eV～5 keV) は、14箇所のビームポートから取り出すことができます。また2つの直線部にはそれぞれ挿入光源 (ID) (直線偏光アンジュレータと準周期 APPLE-II 型可変偏光アンジュレータ) が装着され、大強度放射光 ( $h\nu$ : 4-300 eV) の利用が可能となっています。

重点研究として (1) 準粒子物性の研究 (BL-1(ID),  $h\nu$ : 26-300 eV), (BL-7(B),  $h\nu$ : 20-380 eV) および BL-9A (ID),  $h\nu$ : 4-40 eV), (2) スピン物性の研究 (BL-9B(ID),  $h\nu$ : 16-80 eV)), (3) 物性生命異分野融合研究 (BL-12 (B),  $h\nu$ : 12-20 eV), (4) 放射光ナノサイエンスの研究 (BL-14(B),  $h\nu$ : 100-1200 eV) 及び (5) 次期小型放射光源の研究を推進しています。

### 3. 固体物理学の本質に関わる基本的課題と放射光 ARPES

一般に、「固体物理学は、物質が示す多様な性質・機能・現象を、構成要素であるミクロの粒子の運動法則に基づき統一的に解明する事を目的としている。」と理解されて

います。

物質中の電子は結晶中の格子振動やスピン構造等との相互作用に影響された状態の電子 (準粒子) として運動しています。従って正確には、物質の性質・機能の解明には、準粒子の量子状態の情報が必須であり、量子状態を定義する3つの物理量 (エネルギー、波数、スピン) の高精度・直接決定が必要となる、ということになります。

多くの場合、相互作用は10 meV 程度の小さな相互作用で、これらを直接調べるには1 meV、或いは、これより高いエネルギー分解能 ( $\Delta E$ ) が必須となります。

準粒子の量子状態を高精度で直接決定する観点から、放射光を用いた角度分解光電子分光 (放射光 ARPES) は、確かに、「原理的には理想的で魅力的な手段」となります。しかし、2000年当時、1 meV をきる放射光 ARPES の技術は確立していませんでした。

### 4. HiSOR と放射光 ARPES

1996年に、放射光 ARPES 装置の開発を想定して、広島大学の実験室に光電子分光装置 (仕様 放射光極低温角度分解光電子分光装置) (大学院最先端設備) を導入しました。この装置には、大強度ヘリウム放電管、二次元検出方式を採用した光電子エネルギー分析器のほか、液体ヘリウムフロー型の試料冷却装置、層状物質表面へき開装置、試料マニピュレータ、試料位置決め用カメラ等の周辺設備も装備されています。当時としてはかなり先進性の高い仕様の ARPES 設備となっています。

放射光 ARPES の高性能化で最も重要な要素となる光電子のエネルギー分析の機能について性能評価を行ったところ、 $\Delta E$  として6 meV が得られました。

この性能評価や周辺機器等の整備を通して、放射光を用いた ARPES の  $\Delta E$  の向上、ひいては1 meV、或いはそれ以下のサブ meV 分解能の可能性について、見通しをたてて検討を進める環境ができました。

放射光 ARPES によって、1つの準粒子の量子状態の高精度・直接決定が現実のものとなれば、固体物理で必須となる基本情報がそのまま得られることとなり、固体物理研究に新たな地平が開かれる可能性が高くなってきます。

全国共同利用施設の新設の前後から、HiSOR のビジョ

ンとして、「量子状態の直接決定を最大の強みとする特色ある研究施設の創生」が、実現可能性を含め、最もふさわしいと認識する状況になってきました。

## 5. HiSORの目指したもの

「HiSORの目指したもの」は、個性・特色が際立つ国際的な小型放射光施設の創生です。

この施設は、物質中の電子（準粒子）の量子状態を定義する3つの物理量（エネルギー・波数・スピン）を極めて高い精度で直接決定できることを最大の強みとしています。

目指す施設を具現化するために、低エネルギー放射光の特長を生かした計測技術の開発とこれらを活用した未踏領域への挑戦を進めてきました。分野は、固体物理学を中心とする物質科学分野です。

## 6. 放射光を用いた高分解能 ARPESの整備

アンジュレータビームラインの稼働に伴い、2000年末に実験室にある光電子分光装置全体をそのままの形でHiSORのBL-1(ID)に移設し、放射光を用いた光電子分光<sup>註1)</sup>においてmeV分解能が得られることを確認しました( $\Delta E_{\text{tot}}$ : 7.5 meV @hv: 42 eV, 16 meV @hv: 122 eV)<sup>3)</sup>。

2001年1月に開催された「第14回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウムで特別講演の機会が与えられ「動き始めたHiSOR：現状と利用計画」について報告しました<sup>4)</sup>。まだ立ち上げ間もないにもかかわらず、すでにアンジュレータを用いた光電子分光で10 meV以下の高分解能で観測ができるようになってきていることなど、学会誌にも報告<sup>5)</sup>が掲載されました。

BL-1では、2003年に、meV分解能のARPESが軌道に乗り、その後、偏光依存高分解能ARPES実験で $\Delta E$ が4.8 meV、波数分解能( $\Delta k$ )が $1 \times 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$  (@hv: 28 eV)及び試料温度として10 Kの性能が得られています。

一方、BL-9Aでは、2004年、ついに $\Delta E$ が1 meVをきる0.66 meV、 $\Delta k$ が $4 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$  (@hv: 7 eV)、試料温度5 Kの水準に達し、放射光を用いた高分解能ARPESに革新がもたらされました。HiSORで、名実ともに世界最高性能の放射光高分解能ARPESビームラインが誕生しました。

極低温・超精密多軸マニピュレータ（国立研究開発法人産業技術総合研究所との共同研究）は、BL-1とBL-9Aともに、これなくして放射光ARPESは成立し得ないほど

註1) BL-1に移設した設備は角度分解光電子分光仕様の設備で、本来、光電子のエネルギーと波数を分析するためものです。建設途上の段階で、エネルギー分解能の評価のために装置の一部のみを使用しているような場合には、設備全体は角度分解光電子分光の設備ですが、「光電子分光」として表記するようにしました。

重要な機能を担っています。

## 7. 低エネルギー放射光を用いた高分解能 ARPESの特徴と利用研究

真空紫外領域の放射光を用いた高分解能ARPESは、実験室光源には無い優れた特性を持っています。

(特徴)

- (1) 励起光として単色性の高い放射光が利用可能  
励起光源のエネルギー幅が( $\Delta E_{\text{ph}}$ ) 230  $\mu\text{eV}$  (@hv: 7 eV)の、極めて単色性の高い大強度放射光を利用することができます。
- (2) ARPESで極めて高いエネルギー分解能と波数分解能  
励起光と光電子エネルギー分析器の両方の分解能を繰り込んだ装置全体の $\Delta E_{\text{tot}}$ は600–700  $\mu\text{eV}$ 、即ち、1 meV以下の0.66 meVの分解能が得られます。また、高い波数分解能 $\Delta k$ :  $4 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$  (@hv: 7 eV)も得られます。
- (3) 励起光がエネルギー連続可変、偏光性も可変  
これらの特徴を活用すると、光学遷移のエネルギー依存性や偏光に依存する選択則を利用した微細構造の分離観測やバルク敏感、或いは表面敏感な観測（光電子脱出深度を制御）が可能となります。

以上のように、低エネルギー放射光を用いた高分解能ARPESは、実験室光源には無い優れた特性を持っており、研究に奥行きと広がりをもたらすこととなります。

低エネルギー放射光を用いた高分解能ARPESの情報は、放射光装置に関する第9回国際会議(SRI2006)の基調講演<sup>6)</sup>を通して国内外の研究者に広く紹介されました。

(利用研究)

Bi系銅酸化物超伝導体(Bi2212)は隣接する二つの超伝導層を持っており、これらの層間相互作用により準粒子バンドの分裂が生じます。しかし、その分裂の大きさや結合・反結合バンドの散乱確率の違いなどに関する定量的情報を得ることは困難な状況でした。

当時のARPES実験（縦軸：エネルギー、横軸：波数）について、Heランプを使用した1999年の結果は分解能が不十分で幅広い構造がひとつ<sup>7)</sup>、HiSOR(BL-9A)では二つの構造を明確に分離観測<sup>8)</sup>、一方、レーザーを用いた実験では、何故か、ピークは一つだけ<sup>9)</sup>となっています。

HiSORで、放射光のエネルギー可変性を活用して観測すると、励起エネルギーに応じて結合バンドと反結合バンドが明瞭に観測され、励起エネルギーによっては一つの構造になって観測されることがわかりました。

また、層間の相互作用による準粒子バンドの分裂は $0.0075 \text{ \AA}^{-1}$ であること、ノード準粒子のピーク幅は $0.0065 \text{ \AA}^{-1}$ で150  $\text{\AA}$ 程度の緩和距離に相当すること、超伝導転移とともに、散乱確率の大部分(60–70%)が抑制

されることなど、はじめて定量的な情報が得られました。

これらの状況は、放射光を用いた高分解能 ARPES を用いた準粒子量子状態の高精度・直接観測への道が開けたこと示しています。国際外部評価では、「HiSOR の高分解能 ARPES は世界的にも比類のない独自の水準にあり、高い国際競争力を有している」とたいへん高い評価<sup>註2)</sup>が得られました。

## 8. 放射光スピン ARPES 装置の整備と利用研究

### (装置の整備)

2008年、物性研で低速電子線回折型 (VLEED型) と呼ばれる新型の高効率スピン検出器が開発され、これを装着したスピン ARPES 装置の1号機が稼働しました。

2009年に研究開発をおこなった研究者を HiSOR 専任スタッフとして招聘し、専用ビームラインでスピン ARPES 装置の建設を行うとともに、更なる高度化を進めることにしました。

2011年には、従来の Mott 型スピン検出器に比べて100倍以上のスピン検出効率、10倍高いエネルギー分解能 ( $\Delta E$ : 7.5 meV) と5倍高い波数分解能 ( $\Delta k$ :  $1 \times 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ ) (@hv: 21 eV) の高性能の放射光スピン ARPES 装置<sup>10)</sup>が完成しました。その後、2013年には、2台目のスピン検出器の増設が行われ、3次元スピンベクトル解析<sup>11)</sup>も実現しています。

これらの装置は、世界の頂点に立つ性能を有し、しかも安定な動作や精密なスピン分解測定を可能としており、HiSOR の最も重要な設備のひとつになっています。

2011年、HiSOR は、固体中の電子(準粒子)の量子状態を定義する3つの物理量(エネルギー、波数、スピン)のすべてを高精度で直接決定できることを最大の強み・特色とする、世界で唯一の小型放射光施設となりました。

### (利用研究)

一般に、トポロジカル絶縁体と呼ばれる物質は、3次元物質の場合、内部は絶縁体ですがその表面ではスピン偏極した金属状態が生じています。

HiSOR で高効率の放射光スピン ARPES 装置が構築されて間もなく、ポロジカル絶縁体  $\text{Bi}_2\text{Te}_3\text{Se}$  とその関連物質  $\text{Bi}_2\text{Se}_2\text{Te}$  のスピン構造が、スピン偏極度の値も含め明らかにされました<sup>12)</sup>。

トポロジカル表面状態のスピン偏極度はフェルミ波数付

近で77%と高い値を示し、しかも、ディラクポイントの近傍まで高い偏極度が観測されるなど、応用の観点からも理想的な特長をもつことがはじめて明らかにされました。

このスピン物性分野の研究は、その後、HiSOR で整備された放射光スピン ARPES 装置を効率的に稼働させて「破竹の勢い」で進化していくことになりました。

なお2003年、BL-9はBL-9AとBL-9Bの2本のブランチとなっています。ヘリカルアンジュレータは、2011年にAPPLE-II型可変偏光アンジュレータに更新<sup>13)</sup>されています。

## 9. HiSOR 全体の研究成果

### (2004-2009年)

2004-2009年の期間の成果の状況について紹介します。総論分数は254編、Top 10%論文数は14編で総論分数の6%、国際共著論文数は43編で、総論分数の17%となっています。

高いIF (>8.0)の論文数は23編で、2006-2007年頃から増えはじめ、その後も今日に至るまで増加し続けていきます。この動きは、2003年に放射光を用いたmeV分解能のARPESが軌道に乗り、2004年には $\Delta E$ が0.66 meVの放射光ARPESが登場した2~3年後に生じています。

### (2010-2015年)

次の2010-2015年の期間、総論分数は260編、Top 10%論文数は、前の期間(2004-2009年)のデータの14編(6%)から2倍以上の36編(14%)と急増しています。また、高いIF (>8.0)の論文数も、前の期間のデータの23編から40編へと1.7倍に増えています。

更に、国際共著論文は43編(17%)から2.7倍の115編(42%)へと、こちらも大幅に増加しています。

2011年から利用開始した放射光スピン ARPES の成果が更に重なってきたことによると見られます。

この頃分野別分布(2012-2016年)は、物理学(固体物理学)(76.7%)、化学(9.6%)、材料科学(5.6%)、生命(5.6%)、環境科学(1.5%)、工学(1.0%)でした。小型放射光源を利用して特定領域に特化した研究を展開していることがよく表れています。

### (2016-2021年)

総論分数は254編、Top 10%論文数は28編(11%)、高いIF (>8.0)の論文数は、前の期間(2010-2015年)のデータ43編から1.2倍の53編へと引き続き増加しました。また、国際共著論文数は、115編から1.4倍の157編で総論分数の半分を超える62%となりました。

### (スピン物性分野)

スピン分野の部分だけを抽出して見てみると、2011年頃から今日に至るまで、ワイル半金属など理論的に提案される新物質群の実証実験やカイラル構造誘起の特異なスピン構造の観測など、放射光スピン ARPES はスピン量子物

註2) 外部評価書2012-2017 (2018)、国際評価委員会報告要約(2018)、自己点検評価報告書2007-2011 (2012)、国際評価委員会報告書(2012)及びHiSOR ACTIVITY REPORTが、広島大学放射光科学研究センターのホームページに掲載されています。また、自己点検評価報告書2002-2006 (2007)、国際外部評価報告書(2007)については、センター事務室にお問合せください(hisor@hiroshima-u.ac.jp)。

性研究における新概念への実験的アプローチに欠かすことのできない実験手法となっています。

また、プロポーザル数は年間20–25件、論文数の累計は増加し続けています。特に、2009–2021年の期間の公表論文総数は69編、引用総数は4274回と、研究水準はかなり高い水準にあることがわかります。また、共同研究のほぼ半数が海外との研究になっています。

## 10. 共同研究機関数 ほか

共同研究機関数は2004年から2015年までの累計が国内58、海外24機関でした。2021年までの累計は国内78機関、海外81機関となっており、国際化が大きく進んだことを示しています。

また、採択課題数については、2016–2021年の6年間の平均値は117件、内、海外は29件で全体の25%を占めています。

## 11. 真空紫外領域の光電子分光を用いた固体物理学研究と放射光科学への貢献

### (固体物理学研究)

HiSOR で、真空紫外領域の低エネルギー放射光を用いた ARPES とスピン ARPES の高度化を組織として推進し、世界最高水準の性能を持つ先端設備を構築・実用化しました。更に、これらの設備を固体物理学の共同利用・共同研究に供しました。

個々の準粒子の量子状態を突出した高精度、或いは検出効率で直接観測できるようになり、新物質の発見や理論の検証等の新領域の開拓が進展したほか、公表論文の量と質ともに関係者の期待を大きく上回る成果につながりました。

### (放射光科学)

真空紫外領域の放射光を用いた角度分解光電子分光が固体物理学の新領域開拓にその真価を發揮し、大型・中型の放射光施設と相補的役割を果たすことが多くの研究者による利用研究で確認され、国内外の研究者コミュニティに強いインパクトを与えました。

固体中の電子（準粒子）の量子状態を定義する3つの物理量（エネルギー、波数、スピン）のすべてを高精度で直接決定できることを最大の強み・特色とする世界で唯一の小型放射光施設が整備されました。

## 12. あとがき

### (異分野融合研究について)

HiSOR では上述の固体物理学研究にとどまることなく、2000年に生体分子の構造解析に用いる円二色性分光と固体物理の研究に用いる放射光装置学を融合し、生体物質の立体構造解析に適した放射光円二色性分光（放射光

VUVCD）システムを開発しています<sup>14)</sup>。

HiSOR で開発された放射光 VUVCD 装置は、糖類などの生体分子が実際に機能する水中での立体構造研究に利用され、それぞれの分野の新展開に貢献してきました<sup>15)</sup>。また、同設備は海外7カ国8施設に波及しました。

この手法は、原子分解能は持ちませんが、溶液試料を対象とすることができ試料の分子量にも制約がないので、標準的な X 線回折法や核磁気共鳴法では対応困難な未踏領域への挑戦が可能です。

最近では、細胞内薬物輸送のメカニズム解明や環境変化に起因する生体物質構造の時間変化をリアルタイムで追跡するための技術開発が進められています。

### 謝辞

このたびの放射光科学賞の受賞は、特色ある小型放射光施設の構築に向けて長年にわたり多くの方々と取り組んだ成果が認められたものとたいへん光栄に思います。

HiSOR の計画段階から、広島大学関係者（教員、事務職員・技術職員・学生・大学院生）、国内外の研究者・学会関係者、外部評価等でご尽力賜った国内外の学識経験者、広島の経済界・産業界による HiSOR 支援活動の担当者、放射光源、ビームライン及び観測システム等の建設・性能向上に関わる大学・民間企業の研究者・技術者など、たいへん多くの皆様に支えられ、励まされ、応援していただきました。心から感謝申し上げます。

1987年から5年間、太田俊明先生のもとで広島大学中規模放射光計画の推進に従事し、放射光計画に必要な基本事項について実に多くのことを教えていただき現場の経験も積むことができました。これらの貴重な財産は、その後の小型放射光施設計画の企画立案で存分に生きてくることになりました。太田先生に改めて感謝申し上げます。

今後とも、新たな計測技術の開発や探索、これらによって初めて見える課題への挑戦などが活力の源泉となって、放射光科学が力強く発展していくことを期待しています。

### 参考文献

- 1) 谷口雅樹：放射光 **13**, 36 (2000).
- 2) 谷口雅樹：加速器 **19**, 69 (2022).
- 3) 島田賢也：放射光 **16**, 213 (2003).
- 4) 谷口雅樹：動き始めた HiSOR (特別講演), 第14回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (2001年1月12日–14日, 広島大学).
- 5) 田村剛三郎：放射光 **14**, 59 (2001).
- 6) M. Taniguchi: The Ninth International Conference in Synchrotron Radiation Instrumentation, EXCO Center, Daegu, Korea, May 28– June 2, 2006. (Plenary Talk), AIP Conf. Proc. 879, pp. 1723–1730 (2007).
- 7) T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson, B. O. Wells, S. L. Hulbert, Q. Li, G. D. Gu and N. Koshizuka: Science **285**, 2110 (1999).
- 8) T. Yamasaki, K. Yamazaki, A. Ino, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, A. Fujimori, Z.-X. Shen, M. Ishikado and S.

- Uchida: Phys. Rev. B **75**, 140513 (2007).
- 9) J. D. Koralek, J. F. Douglas, N. C. Plumb, Z. Sun, A. V. Fedorov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. T. Cundiff, Y. Aiura, K. Oka, H. Eisaki and D. S. Dessau: Phys. Rev. Lett. **96**, 017005 (2006).
- 10) T. Okuda, K. Miyamoto, H. Miyahara, K. Kuroda, A. Kimura, H. Namatame and M. Taniguchi: Rev. Sci. Instrum. **82**, 103302 (2011).
- 11) T. Okuda, K. Miyamoto, A. Kimura, H. Namatame and M. Taniguchi: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **201**, 23 (2015).
- 12) K. Miyamoto, A. Kimura, T. Okuda, H. Miyahara, K. Kuroda, H. Namatame, M. Taniguchi, S. V. Eremeev, T. V. Menshchikova, E. V. Chulkov, K. A. Kokh and O. E. Tereshchenko: Phys. Rev. Lett. **109**, 166802 (2012).
- 13) 佐々木茂美, 宮本 篤, 後藤公德: 加速器 **9**, 3 (2012).
- 14) 月向邦彦, 松尾光一: 放射光 **17**, 118 (2004).
- 15) K. Matsuo, H. Namatame, M. Taniguchi and K. Gekko: Biosci. Biotech. Biochem. **73**, 557 (2009).

## ● 著者紹介 ●



## 谷口雅樹

広島大学名誉教授

放射光科学研究センター 顧問

E-mail: taniguch@hiroshima-u.ac.jp

専門: 放射光科学, 固体物理学

## 【略歴】

1977. 5 大阪大学大学院基礎工学研究科 工学博士 (大阪大学)
1977. 4 日本学術振興会奨励研究員・大阪大学 (～1979年3月)
- 1979.10 東京大学助手物性研究所 SOR 施設
- 1987.11 広島大学助教授理学部
1991. 1 広島大学教授理学部
- 1995.10 広島大学放射光科学研究センター長 (併) (～2005年5月)
2003. 8 広島大学大学院理学研究科長 (併), 理学部長 (併)
2005. 5 国立大学法人広島大学理事・副学長
2007. 5 広島大学放射光科学研究センター長 (併) (～2015年3月)
2013. 4 広島大学大学院理学研究科長 (併), 理学部長 (併)
2015. 4 広島大学名誉教授, 特任教授 (～2017年3月)
2017. 4 広島大学放射光科学研究センター顧問  
第72回中国文化賞 (中国新聞社主催: 2015年度)