

解説

# スピン偏極光電子分光

東京大学物性研究所

木下 豊彦

## Spin-Polarized Photoelectron Spectroscopy

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

Toyohiko Kinoshita

Spin-polarized photoelectron spectrometer has been constructed at the ISSP (Institute for Solid State Physics, University of Tokyo) beamline BL-19A of the Photon Factory. The measurements for the ferromagnetic materials are now in progress. The present status of the experimental station and the representative results are reported. The beamline has been opened for the users in October, 1993.

### 1. はじめに

我々は、昭和62年度にスタートしたビームライン計画の一環として、高エネルギー物理学研究所と共同で、フォトンファクトリーに3つの新しい光電子分光実験ステーションを建設してきた。このほど、BL-18Aの表面界面光電子分光実験装置(平成3年4月より共同利用開始)に引き続いて、BL-19Aに建設してきたスピン偏極光電子分光実験装置が立ち上がり、平成5年10月より、共同利用にオープンされている<sup>1)</sup>。今後は、表面磁性を含めた様々な磁性物質の研究などに成果をあげていくことが期待されている。ここでは、スピン偏極光電子分光実験の原理、BL-19Aに設置された装置の現在の性能を述べるとともに、最近ニッケル単結晶試料について得られた、いくつかの結果を紹介したい。

### 2. スピン偏極光電子スペクトルの測定法

物質の電子状態を調べる有力な手法の一つに光電子分光法がある。通常の光電子分光法では、軟X線や真空紫外光を物質に当てて放出された光電子の運動エネルギーや角度分布を測定することによって、物質内の電子の結合エネルギーや、運動量に関する情報を調べることができる。スピン偏極光電子分光 (Spin-polarized photoelectron spectroscopy) は、電子状態を記述するもう一つの良い量子数である電子スピンも同時に計測する手法である。最近の論文では、スピン分解光電子分光 (Spin-resolved photoelectron spectroscopy) とも記述されている場合があるが、本稿では、以下、スピン偏極光電子分光という言葉を用いる。スピン偏極光電子分光実験は、通常の電子エネルギー分析器の後ろにスピン検出器をとりつけることによって行う。スピン偏極電子を取り扱

う実験手法としては、光電子分光法のほかにも、逆光電子分光、電子エネルギー損失分光、走査電子顕微鏡など、数多くの実験がある。これらの実験については、光電子分光も含めて、たくさんの解説が書かれており<sup>2) - 6)</sup>、ここでは、ごく簡単な原理について述べることにする。

まず、スピン偏極度であるが、簡単には以下のように定義される。即ち、ある量子化軸にたいして上向きスピンを持つ電子の数を  $N \uparrow$ 、下向きものを  $N \downarrow$  とすると、スピン偏極度は、

$$P = (N \uparrow - N \downarrow) / (N \uparrow + N \downarrow) \quad (1)$$

のように表される。つまり、 $P = 1$  または  $P = -1$  の時の電子ビームは純粋に上向きまたは下向きスピンだけからなることになる。よく、強磁性体の交換分裂をしたバンドの状態密度を  $N \uparrow$  と  $N \downarrow$  で分離をした図にお目にかかるが、このような絵も  $P$  と全電子数  $N$  がわかれば、以下のようにして導くことができる。

$$\begin{aligned} N \uparrow &= (1 + P) N / 2 \\ N \downarrow &= (1 - P) N / 2 \end{aligned} \quad (2)$$

電子のスピン偏極度を検出するためには、散乱におけるスピン軌道相互作用を利用した分析器を使用するのが一般的である。その原理は、電子が標的原子核によって弾性散乱される際に、その微分散乱断面積がスピン軌道相互作用によって電子のスピン状態に依存することによる。スピン軌道相互作用は、重い原子ほど大きいので標的原子としては、Au, W, Hgなどが使われ、その標的からの後方散乱に現れる左右(偏極の向きによっては、上下)の非対称性を検出する。その非対称度がどの程度に現れるかは、標的原子核の種類、電子のエネルギー、装置の配置等による。

実際に光電子分光実験に使われているスピン検出器としては、(I) Au 薄膜からの高エネルギー

Mott散乱(20~100keV)、(II) Au蒸着膜からの低エネルギー散漫散乱(約150eV)、(III) W単結晶からの低速電子線回折(105eV)(SPLEED: Spin-polarized low energy electron diffraction)を利用したものが主なものである。詳しくは文献<sup>2) - 7)</sup>にゆずるが、それぞれの方法に一長一短があり、以下のような特徴がある。(I)のMott検出器では、電子を高速に加速するために、放電対策、信号処理系に工夫が必要となり、装置も大きくなってしまふ欠点があるが、安定な動作、スピン検出器としての自己較正ができることなどから、標準的なスピン検出器として使われている。(II)の散漫散乱を使った検出器では、動作がAu表面の清浄度に敏感なため、しばしばin situで金の蒸着を行ってやる必要があるが、非常にコンパクトな検出器であるために、角度分解光電子分光測定で威力を発揮している<sup>7)</sup>。(III)のSPLEED<sup>3), 4)</sup>では、W単結晶表面の清浄度を保つため、30分に1回の高温加熱が必要であるが、(II)と同様、コンパクトなスピン検出器である。後述する装置の性能を表すFOM(Figure of merit)は、どの装置も、 $10^{-4}$ 程度で大差はない。われわれが、BL-19Aに建設してきたのは、(I)のMott検出器であり、(III)のSPLEEDの立ち上げも、隣のBL-19Bで進んでいる。

さて、以下にMott検出器の動作を簡単に説明する。例として図1に、BL-19Aに設置されたMott検出器の散乱槽部分の拡大図<sup>5)</sup>を示す。実際の装置では、このほかに非弾性散乱された電子や、電子が壁などにあたって発生するエックス線などが荷電粒子検出器(SBD: Silicon surface barrier detector)に入らないようなシールドが施されている。光電子は、図に示す加速管に高電圧を印加することによって、100keVまで加速される。もし、やってきた電子ビームが、紙面に垂直にスピン偏極度を持っているならば、Auの薄膜に衝突した後、左右の後方散乱用荷電粒子検出器(互いに120°の角度に設置してある)でカウントされる電

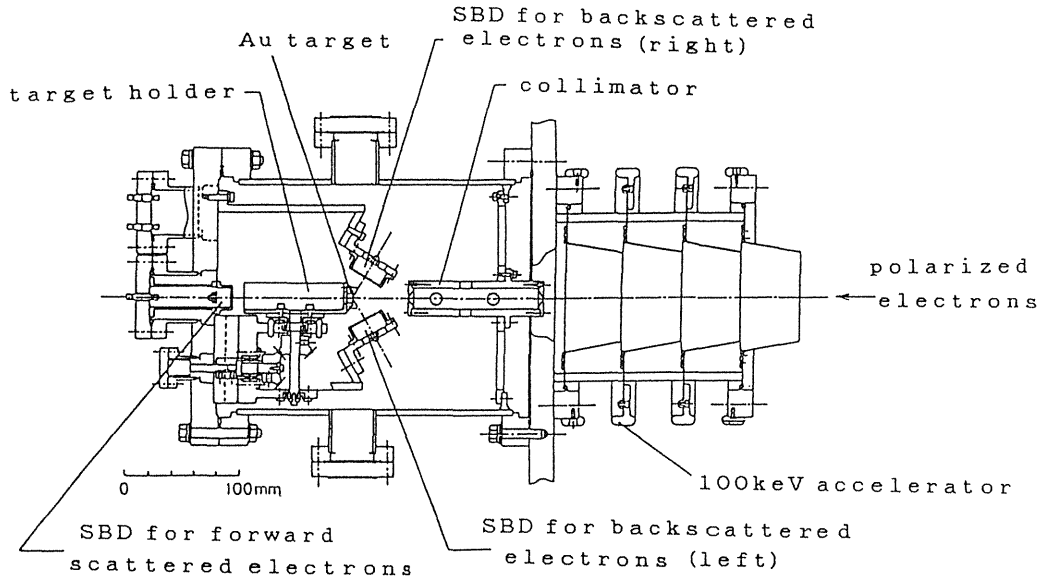


Fig.1 Schematic view of the Mott scattering chamber installed at BL-19A of the Photon Factory (Ref.5).

子の個数には、非対称が生じる。その非対称度と、(1)で定義されたスピンの偏極度との間には、以下の関係がある。

$$A = (N_l - N_r) / (N_l + N_r) = \text{Seff} \cdot P \quad (3)$$

ここで、 $N_l$ 、 $N_r$ は左右の検出器でのカウント数、 $\text{Seff}$ は、有効シャーマン関数である。有効シャーマン関数は、Au薄膜の厚さ、SBDの受け入れ立体角、電子の加速電圧などに依存する量であり、通常、0.15~0.35程度の値となる。(3)式は、完全に上または下向きにスピンの揃った、電子ビームが入射した場合に現れる左右の非対称度が、15~35%程度になることを意味しており、有効シャーマン関数は、スピン分析能力に相当する。Mott検出器の場合には、Auの膜厚がゼロの場合の理論値と、偏極ビームを入射したときに、様々な膜厚に応じて得られた非対称度を外挿する事によって、 $\text{Seff}$ を求めることができる<sup>5), 8)</sup>。(II)や(III)の小型スピン検出器の場合の有効シャーマン関数は、Mott検出器等によって、すでに偏極度のわかっている電子ビームを使って求めることが多い。(III)のSPLEEDの場合には、Wの結晶を2枚用意して

において、2重散乱法<sup>3)</sup>で $\text{Seff}$ を求めることもある。

我々は、GaAsスピン偏極電子源<sup>8), 9)</sup>や、強磁性Niからの2次電子を使うことによって、Mott検出器の有効シャーマン関数を求めた。加速電圧100keV、SBDの受け入れ立体角0.13str、Auの膜厚1500Åの条件で、 $\text{Seff} = 0.20$ を得た。我々のMott検出器には、前方散乱用のSBDも備えられており、Auの薄膜を透過してきた電子をカウントすることによって、スピン分解しない光電子スペクトル((2)式の $N$ )を得ることができる。Mott検出器の代わりに、通常の光電子分光測定に使用しているチャンネルトロンにおいてそのカウント数( $I_0$ )と比較してみると、後方散乱してくる電子数( $I$ )との比は、 $I/I_0 \approx 1/360$ となる。

ところで、スピンの偏極度の統計誤差は、

$$\Delta P = 1 / (\text{Seff}^2 \cdot (N_l + N_r))^{1/2} \quad (4)$$

で与えられる。今、我々の装置で±2%の統計誤差で測定を行うことを考えると、 $I_0$ として15000000カウントが必要である。この値は、スピン偏極光電子分光が、通常の光電子分光実験に比べて、3桁から4桁強いカウント数を必要とする

実験であることを示しており、後述のようなアンジュレーター放射光の利用が有効である。今、Figure of merit : FOMを

$$\text{FOM} = \text{Seff}^2 \cdot I/I_0 = 1 / ((\Delta P)^2 \cdot I_0) \quad (5)$$

とすると、この値が装置の性能を現す指標となり、FOMが大きければ大きいほどより短時間で統計誤差の小さなスピンの偏極光電子スペクトルをとれることを意味している。我々の装置の場合も、FOMは各国で稼働している装置と同程度の $\sim 10^{-4}$ である。

ごく最近になって、FOMが従来よりも1桁大きなスピン検出器が開発された<sup>10), 11)</sup>。この新しいタイプのスピン検出器では、スピン軌道相互作用ではなくて、交換相互作用を利用している。運動エネルギー約10eVの電子ビームをAg(001)面上にエピタキシャル成長させたFe(001)単結晶薄膜に入射する。その際にターゲットは、スピンと平行または反平行に磁化しておく。反射(00)ビームのカウント数に、磁化の平行、反平行それぞれの場合に差が生じるのが、スピン検出の原理である。この検出器では、 $\text{Seff} \approx 0.2$ ,  $I/I_0 \approx 0.15$ ,  $\text{FOM} \approx 3.8 \times 10^{-3}$ が報告されており、従来は難しかったFeの内殻準位スペクトルの測定<sup>11)</sup>などに威力を発揮している。また、最近では、Fe(110)面からの反射ビームを使うことによって、 $\text{FOM} \approx 8 \times 10^{-3}$ を実現できるという報告もある<sup>12)</sup>。こうした、新しいタイプのスピン検出器は、ターゲットの清浄化など、いくつか困難な点はあるが、微弱な信号の検出や、高分解能測定などスピンの偏極光電子スペクトルのデータの質を大幅に向上させるものとして、今後さらに改良が期待される。

スピンの偏極光電子スペクトルを測定する際には、スピンの量子化軸について考慮することも重要である。強磁性体試料を測定する際には、スピンの向きは磁化と平行になるために、測定する試料

部分の磁化が同一方向を向く(単一磁区になる)ようにする仕掛が必要となる。図2に我々が、強磁性Ni(110)単結晶試料を測定したときの実験配置を示す。図のように、試料は磁化容易軸である $\langle 111 \rangle$ 方向を1辺とする額縁型に切断されている。その1辺には、セラミックコートしたフレキシブルワイヤーで製作したコイルが巻かれており、このコイルにパルス的に電流を流すことによって、試料を磁化する。試料が額縁型をしたいわゆる磁気閉回路になっており、光電子分光測定に悪影響を与える漏れ磁場を最小限に抑えることができる。試料が磁化されて、単一磁区ができたかどうかをチェックするために、我々は、表面磁気光学Kerr効果(SMOKE: Surface magneto-optic Kerr effect)測定装置を組み立てて使用している<sup>13)</sup>(図3)。図4に得られた磁気履歴曲線を示すが、 $\pm 7\text{A}$ 以上で、試料の磁化は揃い、電流を切ってもそれが保持されていることがわかる。このような、磁化装置を試料と組み合わせる際には、試料の加熱清浄化の仕掛や、磁場と同様に光電子分光測定の障害となる絶縁物のチャージアップにも気をつけた設計が必要となる。試料を磁化する仕掛として

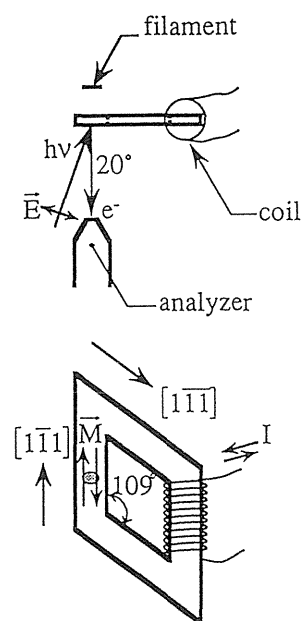


Fig.2 The Ni (110) sample and spin-polarized photo-emission geometries.

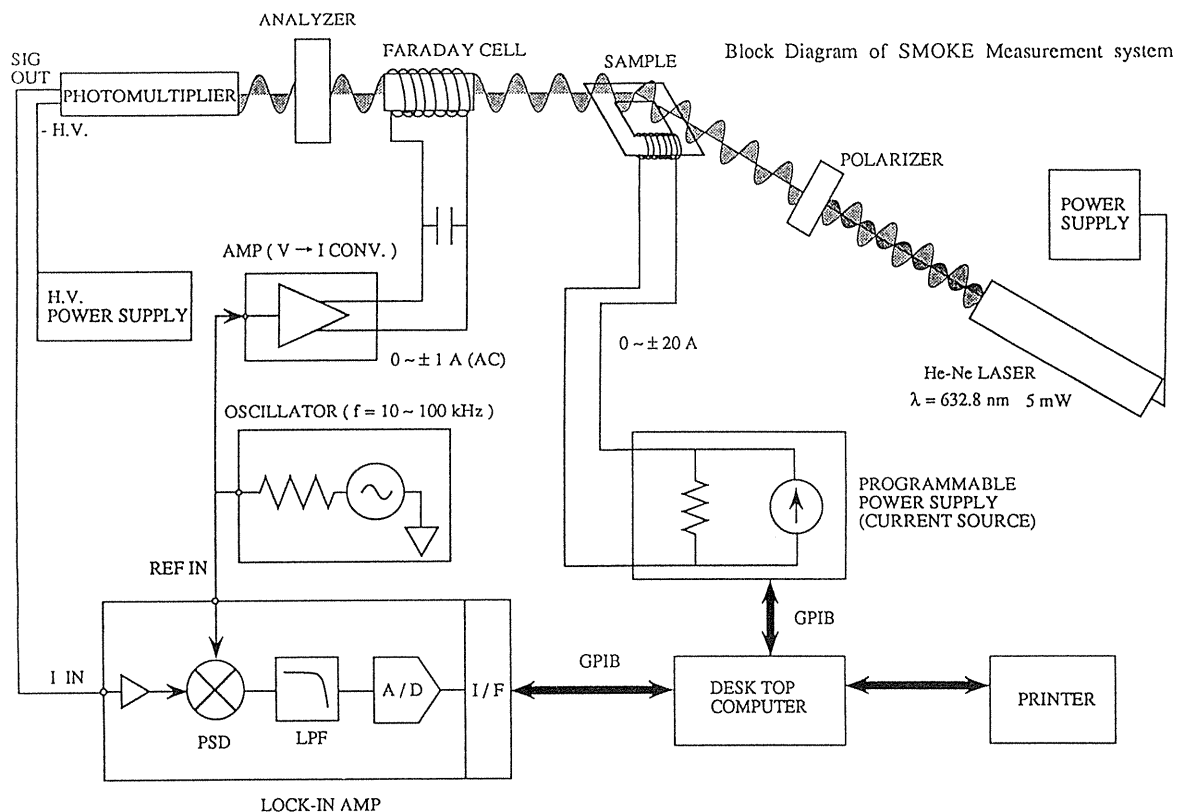


Fig.3 Schematic diagram of the surface magneto-optic Kerr effect (SMOKE) measurements.

はこの他に、馬蹄型のヨークを作ってそれに試料をはりつけたり、試料の上下に空芯コイルを配置し、それにパルス大電流を流して磁化する方法が考案されており、実際に表面磁性の研究などに使われている。

最近では、偏光を利用したスピン偏極光電子分光測定<sup>14),15)</sup>も行われるようになっており、非磁性体に関する研究も報告されている。円偏光を励起光とした場合には、スピン量子化軸は、円偏光の入射方向になり、直線偏光を使った実験では、試料の対称性と光の入射方向に依存したスピン量子化軸を考える必要がある。

さて、実験的に求めた非対称度Aからスピン偏極度Pを求めるのは、どのタイプのスピン検出器でも(3)式によって同様にすればよい。しかし、Aの中には、必ず、装置自身の問題に由来する非対称度(検出器の感度、アンプの増幅率、軸からのズレなど)があり、その不確定さを除かなくては

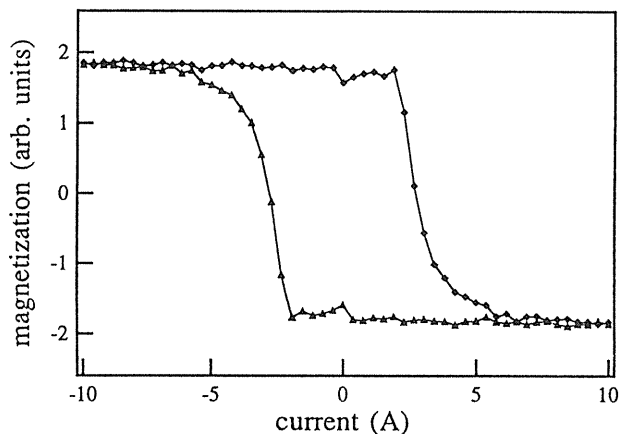


Fig.4 Magnetic hysteresis curve obtained for the picture-frame Ni (110) single crystal.

ならない。このためには、強磁性体の場合には磁化の向き、偏光を使った実験の場合には、その偏光方向を反転することによって、スピンを反転させたスペクトルをとり、反転前後の平均値をとればよい。今、磁化が上向きの時の(または、例えば右回り円偏光を励起光としたときの)左右の



SBDでカウントされる電子の数を $Nl^+$ ,  $Nr^+$ , 下向きの時(左回り円偏光の時)を $Nl^-$ ,  $Nr^-$ とすると, 最終的には,

$$P = \frac{1}{\text{Seff}} \cdot \frac{(Nl^+ Nr^-)^{1/2} - (Nl^- Nr^+)^{1/2}}{(Nl^+ Nr^-)^{1/2} + (Nl^- Nr^+)^{1/2}} \quad (6)$$

によって, 正しいスピンの偏極度の測定ができる。

### 3. BL-19A スピン偏極光電子分光実験ステーション

図5に, BL-19Aに設置したスピン偏極光電子分光装置<sup>8)</sup>の模式図, 図6にはその写真を示す。装置は, 試料準備槽, 測定槽, レンズ室, 及びMott検出器からなる。試料準備槽は, オージェ電子分光用の円筒鏡型電子分析器(CMA), 低速電子線回折装置(背面LEED), 試料スパッタリング用イオン銃などがとりつけられており, 必要に応じて, ガス導入バルブ, 金属蒸着源, 膜厚計,

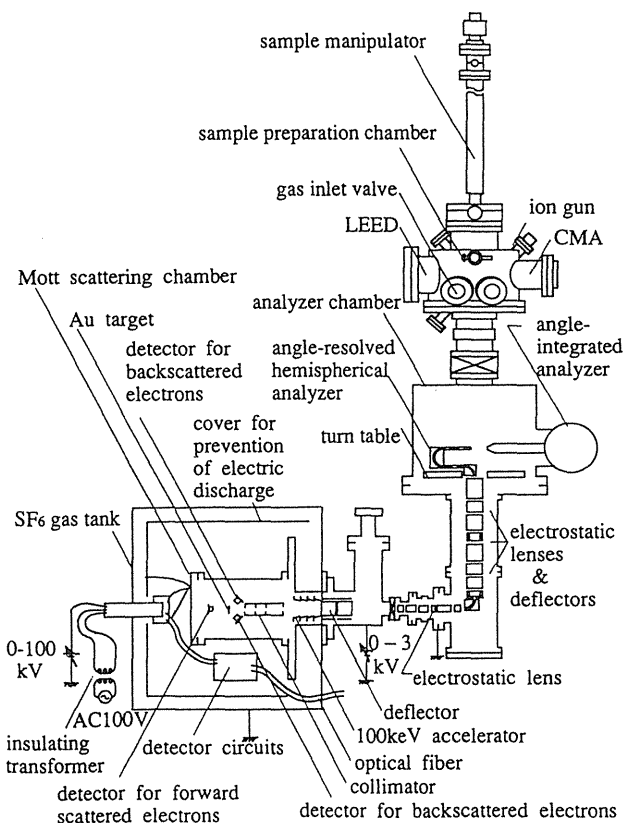
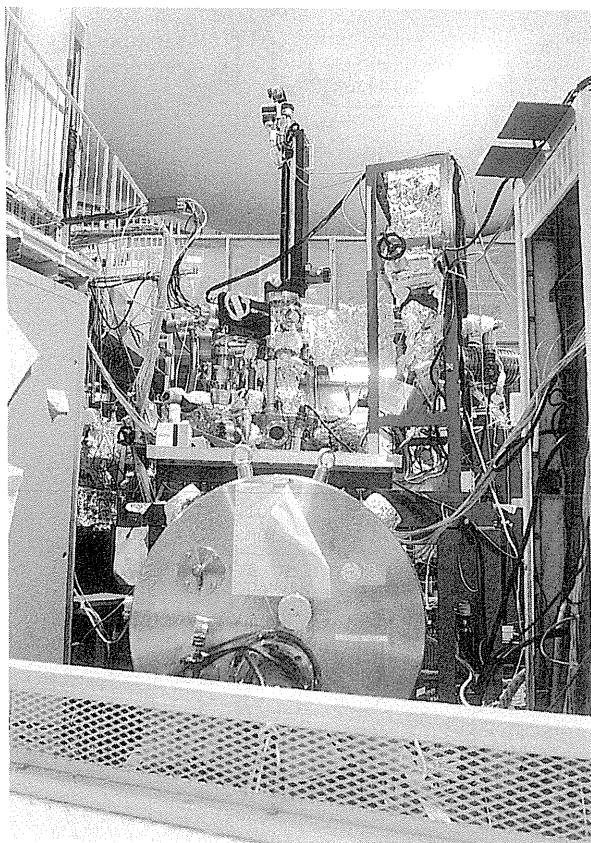


Fig.5 Schematic view of the spin-polarized photoelectron spectrometer installed at BL-19A (Ref.8).

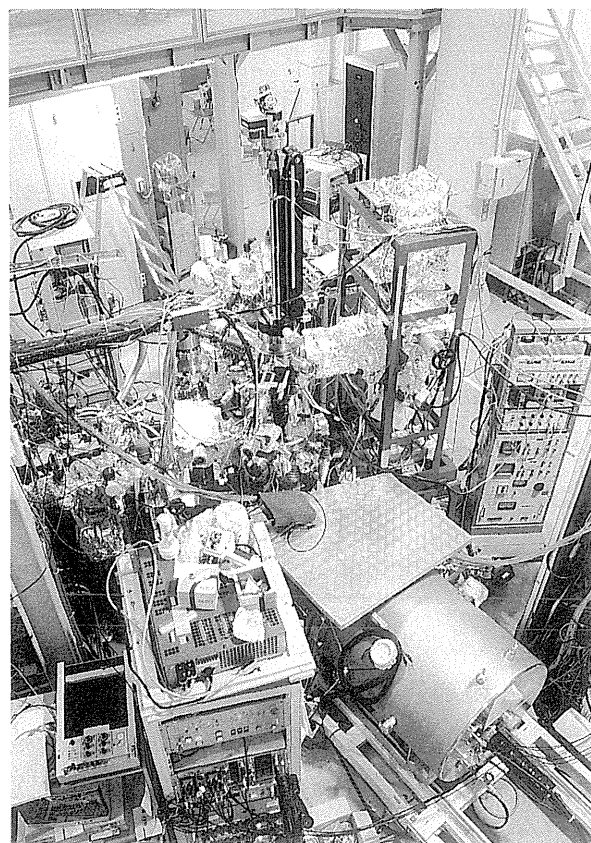


Fig.6 Photographs of the spin-polarized photoelectron spectrometer installed at BL-19A.

SMOKE 観測装置がとりつけられるようになって  
いる。

測定槽には2つの光電子分光用の電子分析器が  
備えられている。1つは、VG社製のCLAM IIア  
ナライザーで、通常角度積分光電子分光測定に  
用いる。もう一つが、スピン偏極光電子分光用の  
アナライザーで、5段入射レンズと1mmφのアパ  
チャーをもち、中心半径は、40mmである。角度とエ  
ネルギー分解能は、それぞれ、 $\Delta\theta = \pm 2^\circ$ 、 $E/\Delta$   
 $E = 80$ であり、ターンテーブル上に固定されてい  
る。このターンテーブルを回転することにより、  
アナライザーを試料回りで回転させることができ  
る。測定槽及び、アナライザーは、 $\mu$ メタルの磁  
気シールドで覆われている。真空排気は、磁気浮  
上型のターボ分子ポンプ、チタンサブリメーショ  
ンポンプ、イオンポンプによって行っている。試  
料準備槽と測定槽の真空度は、 $2 \times 10^{-10}$ Torr以下  
に保たれており、金属表面の研究にも対応でき  
るようになっている。角度、及びエネルギー分析を  
された光電子は、3系統の輸送レンズ系を通っ  
て、Mott散乱室に導かれる。途中には、4組のデ  
ィフレクターがついており、電子ビームの軌道を  
調節している。角度分解測定でアナライザーを回  
転させるときには、軸のズレが起こるのでこのデ  
ィフレクターの電圧を調整する。しかし現在のと  
ころ、電圧の最適値の追い込みには半日程度を要  
するため、通常は垂直放出光電子分光測定だけ  
を行うようにしているのが現状である。

電子レンズを通った電子は、加速管を通過する  
間に100keVまで加速される。コリメーターを通  
り抜けた迷走電子以外の電子のみが、Auのターゲ  
ットに衝突する。このAu薄膜は、コロジオン膜の  
上に蒸着して作成した。ターゲットの周りには5  
つの荷電粒子検出器(SBD)が配置されており、  
それぞれ、薄膜を透過してきた前方散乱電子と、  
後方散乱電子をカウントする。4つの後方散乱電  
子用SBDは、上下方向及び、紙面に垂直方向のス  
ピン成分の測定ができるようにセットされている。

図6の写真でわかるように、Mott検出器は、ビ  
ームラインと $110^\circ$ の角度をなすように設置されて  
いる。これは、光の入射角 $20^\circ$ で垂直放出光電子  
分光測定を行ったときには、試料表面に垂直なス  
ピン偏極度を測定できるような配置である。

Mott散乱槽は高電圧になっているために、安全  
と放電防止のため、SF<sub>6</sub>ガスを封入したタンクに  
納められている。SF<sub>6</sub>ガスは装置の調整が終わり  
た後、タンク内をロータリーポンプで真空排気  
し、その後1気圧まで封入される。SBDに入って  
きた電子の信号を増幅する回路系(電荷敏感型の  
プリアンプ、リニアアンプ)は高電圧に浮いてい  
る。これらの回路系と、0V電位にあるコンピュー  
ター側のディスクリミネーターとは、光ファイ  
バーによって接続されている。コンピューター  
は、NEC社製のPC-9801RXであり、GP-IBイ  
ンターフェイスによって電子レンズやアナライ  
ザーの電源を駆動している。また、5つのSBDか  
らのカウントを同時に取り込むことができ、カ  
ラーディスプレイ、レーザープリンター、5イン  
チフロッピイディスクにデータを出力する。プロ  
グラムはごく1部を除いて、MS-DOS版の  
N88BASICでかかっている。

SBDに入ってくるシグナルは、Auのターゲッ  
トで弾性散乱された電子のみならず、いろいろな  
場所で非弾性散乱された電子及び、電子散乱にと  
もなって生じるX線や2次電子のシグナル、その  
他のノイズを含んでいる。スピン偏極度を正しく  
測定するためには、弾性散乱された電子のみをカ  
ウントすることが必要であるので、マルチチャ  
ネルアナライザーによって、SBDからのシグナル  
の波高分析を行い、ウインドウ型のディスクリ  
ミネーターにかけることによって、弾性散乱電子  
のカウントを弁別している。

先に述べたように、スピン偏極光電子分光は通  
常の光電子分光より3桁ほど大きなカウントを必  
要とする実験であり、それにはアンジュレータ  
光のような高輝度放射光を使うことが望ましい。

東京大学物性研究所では、フォトンファクトリーのB-18と19の間の直線部に、広い波長範囲をカバーできるリボルバー型のアンジュレーター<sup>16)</sup>を設置した。図7に、BL-19ビームラインの模式図を示す。BL-19Aのステーション<sup>17), 18)</sup>では斜入射定偏角分光器(CDM)を設置した。この実験ステーションでは、20~250eVの光エネルギー範囲をカバーする。角度積分型のアナライザー(CLAM II)を用いた通常の光電子分光実験では、分解能( $E/\Delta E$ )1000を越える実験も可能であるが、スピン偏極光電子分光実験では、光の強度をかせぐために、分解能を300~500程度に抑えて使用する。20~150eVの範囲では、この分解能で毎秒 $10^{12}$ ~ $10^{13}$ 個の光子数が得られ、後に述べる強磁性Ni単結晶の3dバンドのスピン偏極光電子スペクトルをとるのに要する時間は、1~2時間である。

フォトンファクトリーでは、アンジュレーターの磁極間距離を、電子蓄積リングの軌道に影響を与えずに変える、いわゆるインディペンデントチューニングを行うことができる<sup>19)</sup>。従って、分光器の波長スキャンを行う際には、同時に磁極間距離も変えることによって、アンジュレーターからの基本波の強い光を広い波長範囲にわたって利用することができる。このインディペンデントチューニングを行うことによって、後で述べるよう

なスピン偏極度の励起光エネルギー依存性(励起スペクトル)を測定するような実験も、比較的容易に行うことができる。

#### 4. 測定結果(強磁性ニッケル単結晶のスピン偏極光電子分光)

ここでは、最近我々が行った強磁性Ni(110)単結晶のスピン偏極光電子分光実験の結果を紹介する。

Ni(110)単結晶は、図2に示すような額縁型に切断され、Mo製の試料ホルダーにとりつけられている。その背後には、電子衝撃加熱用のW製フィアメントがはってあり、ネオンイオン衝撃との併用で、試料をクリーニングする。最後までわずかに残る炭素による汚染は、ごく微量の酸素中で試料を加熱することにより取り除くことができる。測定槽は、先に述べたように、 $2 \times 10^{-10}$ Torr以下の超高真空に保たれているが、試料の汚染する前に(約1時間以内)に測定を終えて、再清浄化を行うようにしている。

図8<sup>20)</sup>には、3d価電子帯のスピン偏極光電子スペクトルを示す。(a),(b)はそれぞれ、励起光のエネルギーが、21.2eVと37eVで測定した角度分解垂直放出光電子スペクトルであり、ブリリアンゾーンのX点及びK点付近のバンド構造を反映したスペクトルとなっている。室温のスペクトル(T

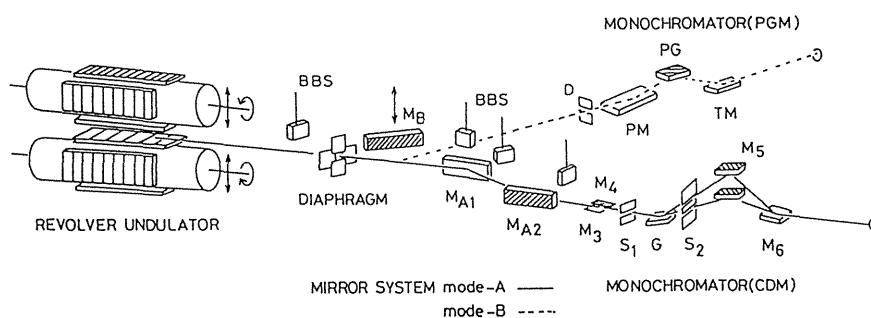


Fig.7 Schematic diagram of the Revolver undulator beamline BL-19 at the Photon Factory. In Mode-A, undulator radiation is led the grazing incidence constant deviation angle monochromator (CDM). In Mode-B, it is led into the plane grating monochromator (PGM) by inserting Au coated SiC mirror ( $M_B$ ) in the beamline (Refs.17 and 18).



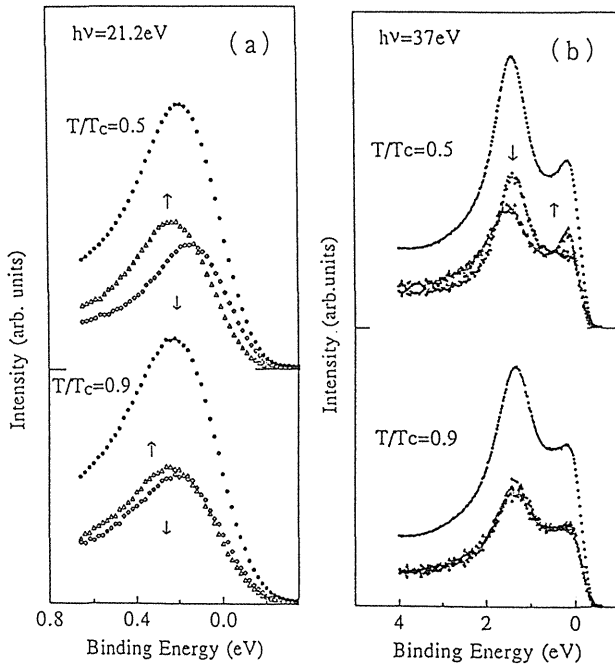


Fig.8 Spin-polarized angle-resolved photoelectron spectra of the ferromagnetic Ni (110) single crystal in 3d valence band region. Dots show the spin-integrated spectra. Triangles and squares show the majority and minority spin contributions, respectively. The excitation photon energies are 21.2eV in Fig.(a) and 37eV in Fig.(b), respectively. The spectra are measured at room temperature ( $T/T_c=0.5$ ) and near the Curie temperature ( $T/T_c=0.9$ ) (Ref.20).

$T/T_c=0.5$ ) では、交換相互作用によって分裂した 3d バンドのマジョリティとマイノリティ成分がはっきりわかる。温度が上昇し、磁気相転移点付近 ( $T/T_c=0.9$ ) になってくると、両成分は近づいてくる。このようなデータは、磁性の発現機構に関して貴重な情報を与えるものと期待される。

Ni の光電子分光の実験は、数多くあるが、その中でも、1977 年の Guillot ら<sup>21)</sup> の研究以来、特に興味をもたれてきたのが、結合エネルギー 6eV 付近に存在する、サテライトの共鳴現象である。図 9 に<sup>22)</sup> 我々が測定した Ni 3d 価電子帯領域の光電子スペクトルと、そのスピン偏極度を示す。3d バンドの左側 (結合エネルギー 6eV) のところにサテライト構造が存在しているのがわかる。これは、ちょうど Ni 3p 内殻励起しきい値付近でとったスペクトルであり、6eV サテライトが強い条件である。

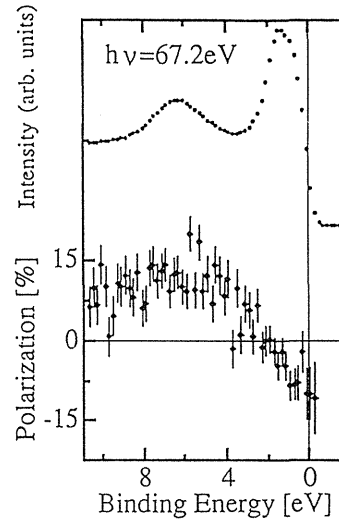
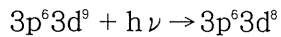


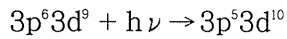
Fig.9 Normal emission photoelectron spectrum and the spin polarization in the valence-band region of Ni (110) at an excitation energy of 67.2eV. Error bars of the spin-polarization degree are indicated (Ref.22).

Guillot らは、この 6eV サテライトの強度を励起光のエネルギーの関数 (いわゆる励起スペクトル, Constant-initial-state spectroscopy : CIS) として測定し、Fano 型の共鳴<sup>23)</sup> を示すことを見いだした。

その後理論実験双方の立場から、精力的にこの 6eV サテライトの共鳴現象の研究が進められている<sup>24) - 29)</sup>。この現象の説明には、2通りの異なった解釈がなされていた。そのうちの1つは、2正孔束縛状態に由来するという説明である<sup>25), 27)</sup>。Ni の 3d バンドは、交換相互作用で、マジョリティとマイノリティスピンバンドに分裂しており、マイノリティスピンバンドには、正孔が存在する。結晶に光が入射し、3d 電子が放出される過程を考えると、クーロン相互作用によって、2種類の終状態を考えることができる。1つは、マイノリティバンドに存在した 3d 正孔と、光電子放出によって生じる正孔とが互いに近づかない状態であり、もう一つが 2正孔束縛状態である。前者が 3d メインバンドとなり、後者が 6eV サテライトを与えると考えられている。2正孔束縛状態が生ずる過程にはこの、



という価電子帯3d電子の直接励起の他に、3p吸収端以上の光エネルギーに対しては、



という中間状態を経た後、オージェ遷移が起こって (super-Conster-Kronig : sCK過程),  $3p^6 3d^9$  が生ずる場合がある。この2つの過程がFano型の共鳴を起こして、3p内殻励起しきい値付近で強度が増大するわけである。

6eVサテライトの共鳴増大のもう一つの説明として、Kanskiらは<sup>26)</sup>、上のような多体効果による説明ではなく、1電子のバンド間遷移による強度の変化として説明を試みた。このKanskiらによるバンド間遷移による構造は、Ni(100)面に対する、Claubergら<sup>30)</sup>や、岡根等<sup>31)</sup>による、角度分解光電子分光実験によって、一部存在が確認されているが、一般的にはこの共鳴増大は多体効果によるものとしてとらえられている。

この共鳴現象を多体効果によるものとする根拠になった有力な研究が、今から10年程前に行われた。Feldkamp & Davis<sup>24)</sup>は、sCK過程が起こって、2正孔束縛状態が生じた場合の6eVサテライトのスピンの偏極度を計算した。強磁性Niの3d↑(上向きスピン:この場合は、マジョリティスピンを意味する)バンドは完全に満たされているので、3p吸収端付近の励起光にたいして、3p↓電子のみが3d↓非占有バンドに励起される。この中間状態が、 $3p^6 3d^9$ 終状態に緩和するわけであるが、スピンの保存を考えると、下向きスピンの光電子放出が3重項状態( $^3F, ^3P$ )に対してのみ起こるのにたいして、上向きスピンの光電子放出は、1重項( $^1S, ^1G, ^1D$ )、3重項ともに許される。各多重項の広がりや強度を考えて( $^1G$ がもっとも強い)、彼らは、6eVサテライトのスピンの偏極度を60%と予想した。Claubergら<sup>29)</sup>は実際にスピン

偏極光電子分光実験を行い、6eVサテライトが高いスピン偏極度(バックグラウンドを差し引いて、 $57 \pm 15\%$ )を示すことを確かめた。さらに彼らは、その励起光エネルギー依存性(Constant-Initial-State Spin-polarization Spectrum: CISSPS)を測定し、3p励起しきい値付近でスピンの偏極度が共鳴増大することを報告した。(図9に示す我々のデータ<sup>22)</sup>でも、6eV付近の構造に正のスピン偏極度があることがわかる。)

城ら<sup>27)</sup>は、4sおよび3dバンドの混成を考えた詳しい計算を行って、CISSPSには、上述の直接遷移とsCKとの干渉効果のためにdipが生じるはずであると予想した。しかし、Claubergたちの実験結果は、統計誤差が非常に大きく、また、励起光のエネルギー範囲も狭いために、はっきりしたことが言えない状況であった。そこで今回我々は、BL-19Aの特徴である強い強度で波長の変更が比較的楽に行える点を生かして、より精密なCISSPSを測定する実験を行った。

統計誤差をできるだけ小さくしてCISSPSの測定を行うために、スピンの偏極度の測定は6eVサテライト近辺に限って行った。励起光エネルギーを変えて測定したスペクトルのうち数例を図10に示す。これらの測定の中から6eVサテライトの中心(正確には結合エネルギー $E_b = 6.2\text{eV}$ )のところだけをプロットして、CISSPSを描いたのが図11である。図ではっきりと城らの予言したFanoの干渉によるdipが見えていることがわかる。また我々のデータでは、3p吸収端から離れたところでも、正のスピン偏極度を示すことがみてとれる。このことは、Feldkamp & DavisというようなsCK過程だけでなく、直接遷移の影響をも考えることが重要であることを示している。

ごく最近、田中と城<sup>32)</sup>は先の理論を見直し、多重項構造も含めたCISSPSの計算を行った。彼らは配置間相互作用を考慮した計算を行い、Fanoの干渉効果のみならず、中間状態における3p-3d交換相互作用と3pスピン軌道相互作用の効果によっ

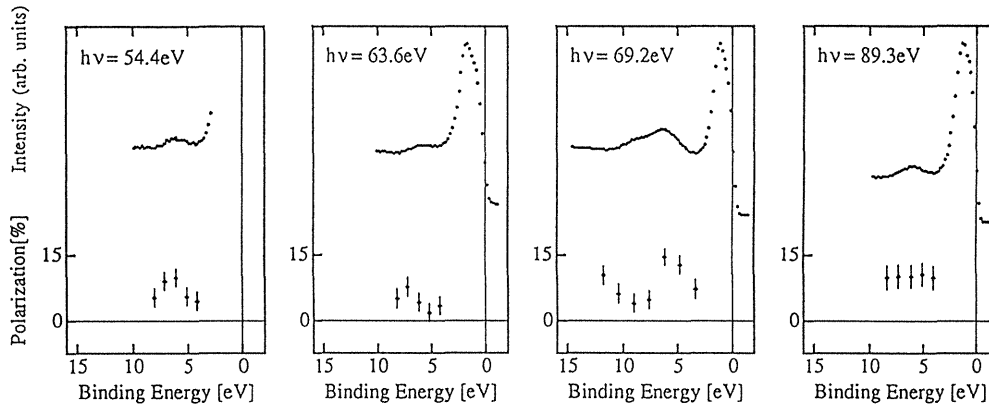


Fig.10 Some of the normal emission photoelectron spectra of Ni (110) and the spin polarization degree around the 6eV satellite.

でもその dip が生じることを示している。今後より詳しい情報を得るためには、高分解能での測定や、2p 吸収端付近での同様な実験を行うことなど、さらに研究を進めていく必要がある。

## 5. おわりに

本稿で述べたことは、ビームライン建設やその後の測定に参加した多くの方々との共同研究である。文献に掲げたそれら多くの人々のご尽力に感謝を申し上げたい。

我々のスピン偏極光電子分光実験もようやく軌道に乗ってきたが、この分野の先進国であるドイツでは、常に5つ以上のグループが先駆的な実験データを出している。例えば BESSY では、3つの Mott 検出器が常時稼働し、そのほかにユーザーが独自の小型スピン検出器を持ち込んで実験を進めている段階にある。今後はユーザーの皆様の優れたアイデアを結集して、一人でも多くの方々がこの種の実験を行っていただけること、即ち、裾野を広げていくことが必要であろう。本稿が、そのための一助になれば幸いである。はじめにも述べたように、BL-19A は、1993年10月より共同利用に公開されている。関心のある方は、ぜひ担当者に連絡していただきたい<sup>1)</sup>。

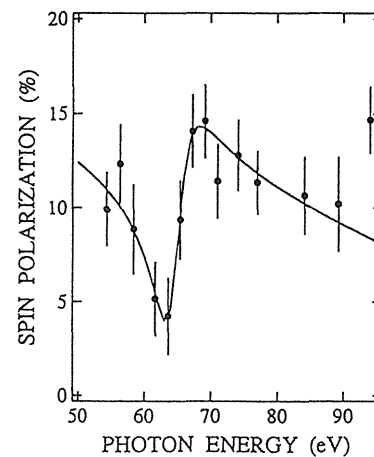


Fig.11 Constant-initial-state spin-polarization spectrum (CISSPS) of the 6eV satellite (exact binding energy being  $E_b=6.2\text{eV}$ ) in Ni (110). Since it is difficult to estimate the exact contribution from the slightly polarized background, the background correction was not made here. Solid line shows the curve fitted by Fano's formula (Ref.22).

## 文献

- 1) 柿崎明人, 木下豊彦, 伊藤健二: PFニュース, **11**(1), 7(1993).
- 2) J. Kessler: "Polarized Electrons" (Springer-Verlag, Berlin, 1985).
- 3) J. Kirschner: "Polarized Electrons at Surfaces" (Springer-Verlag, Berlin, 1985).
- 4) 菅滋正: 固体物理, **23**, 706(1988).
- 5) 曾田一雄: 日本物理学会誌, **45**, 804, (1990).
- 6) 早川和延, 小池和幸, 松山秀生: 固体物理, **22**, 875(1987).

- 7) J. Unguris, D. T. Pierce and R. J. Celotta: *Rev. Sci. Instrum.*, **57**, 1314(1986).
- 8) J. Fujii, T. Kinoshita, K. Shimada, T. Ikoma, A. Kakizaki, T. Ishii, H. Fukutani, A. Fujimori, K. Soda and H. Sugawara: Proceedings of the 10th International Symposium on "High Energy Spin Physics", Nagoya, Nov. 9-14, 1992, edited by T. Hasegawa et al., (Universal Academy Press, Tokyo, 1993) p.885.
- 9) D. T. Pierce, R. J. Celotta, G. -C. Wang, W. N. Unertal, A. Galejs, C. E. Kuyatt and S. R. Mielczarek: *Rev. Sci. Instrum.* **51**, 478(1980).
- 10) D. Tillmann, R. Thiel and E. Kisker: *Z. Phys.* **B77**, 1 (1989).
- 11) R. Jungblut, Ch. Roth, F. U. Hillebrecht and E. Kisker: *Surf. Sci.* **269/270**, 615(1992).
- 12) G. Fahsold, M. S. Hammond, J. Kirschner, J. W. Krewer and R. Feder: *Solid State Commun.* **84**, 541(1992).
- 13) 電子技術総合研究所, 鈴木義茂氏のご指導による。  
: 鈴木義茂, 大関実, 菊地英幸, 片山利一, 腰塚直己:  
日本応用磁気学会誌, **13**, 167(1989).
- 14) H. Heinzmann: *Phys. Scr.* **T17**, 77(1987): "Optical Orientation" edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (North - Holland, Amsterdam, 1984): F. Meier and D. Pescia: Chap. 7: M. Wöhlecke and G. Borstel: Chap. 10.
- 15) N. Irmer, R. David, B. Schmiedeskamp and H. Heinzmann: *Phys. Rev.* **B45**, 3849(1992) and references therein.
- 16) G. Isoyama, S. Yamamoto, T. Shioya, H. Ohkuma, T. Mituhashi, T. Yamakawa and H. Kitamura: *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 1863(1989).
- 17) 柿崎明人: 日本放射光学会誌, **5**, 1(1992).
- 18) A. Kakizaki, T. Kinoshita, A. Harawawa, H. Ohkuma, T. Ishii, M. Taniguchi, M. Ikezawa, K. Soda and S. Suzuki: *Nucl. Instrum. Methods* **A311**, 620(1992): A. Kakizaki, H. Ohkuma, T. Kinoshita, H. Harasawa and T. Ishii: *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 367(1992).
- 19) H. Ohkuma, S. Yamamoto, T. Shioya and H. Kitamura: Activity Report of SRL - ISSP **1990**, 64(1991).
- 20) A. Kakizaki, T. Kinoshita, K. Ono, T. Ikoma, T. Ishii, K. Tanaka, J. Fujii, H. Fukutani, K. Shimada, A. Fujimori, A. Kamata and S. Nakai: to be published.
- 21) C. Guillot, Y. Ballu, J. Pagné, J. Lecante, K. Jain, P. Thiry, R. Pinchaux, Y. Pétrouff and L. M. Falicov: *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1632(1977).
- 22) T. Kinoshita, T. Ikoma, A. Kakizaki, T. Ishii, J. Fujii, H. Fukutani, K. Shimada, A. Fujimori, T. Okane and S. Sato: *Phys. Rev.* **B47**, 6787(1993).
- 23) U. Fano: *Phys. Rev.* **124**, 1866(1961).
- 24) L. A. Feldkamp and L. C. Davis: *Phys. Rev. Lett.* **43**, 151(1979).
- 25) 例えば, L. C. Davis: *J. Appl. Phys.* **59**, R25(1986).
- 26) J. Kanski, P. O. Nilsson and C. G. Larsson: *Solid State Commun.* **35**, 397(1980).
- 27) T. Jo, A. Kotani, J. -C. Parlebas and J. Kanamori: *J. Phys. Soc. Jpn.* **52**, 2581(1983).
- 28) J. Barth, G. Kalkoffen and C. Kunz: *Phys. Lett.* **74A**, 360(1979).
- 29) R. Clauberg, W. Gudat, E. Kisker, E. Kuhlmann and G. M. Rothberg, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1314(1981).
- 30) R. Clauberg, W. Gudat, W. Radlik and W. Braun: *Phys. Rev.* **B31**, 1754(1985).
- 31) T. Okane, T. Kashiwakura, S. Suzuki, S. Sato, T. Kinoshita, A. Kakizaki and T. Ishii: *Z. Phys.* **B91**, 437, (1993).
- 32) A. Tanaka and T. Jo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 1118(1993).

## キーワード

### Mott 散乱

クーロン力による粒子の散乱であり、1930年イギリスのN. F. Mottによりその散乱公式が導かれた。原子核と電子の散乱の場合、原子核のZが大きい時には、スピン軌道相互作用によって、スピン偏極度の測定に利用できる。スピンが偏極した場合のMott散乱の微分断面積は、

$$I(\theta) = I_R(\theta) \{1 + P \cdot S(\theta) \sin \phi\}$$

で表される。ここで $I_R(\theta)$ は無偏極電子の微分断面積であり、Rutherfordの公式で近似できる。 $\phi$ は散乱面と、これに垂直なベクトルのなす角度である。Pはスピン偏極度、 $S(\theta)$ はスピン軌道相互作用による非対称度を表す関数である。

### シャーマン関数

通常、Mott散乱によって、非対称度を表す関数 $S(\theta)$ のことをいう。Au原子に対する計算が、N. Shermannによってなされており、その結果が比較的信頼できるものとされている。その計算では、100keVの電子をAu原子に衝突させた場合、 $\theta = 120^\circ$  近辺に大きな非対称度(約40%)が現れることが示されている。実際のMott検出器では、ある有限の膜厚を持ったAu箔からの有限立体角への散乱を使っているために、この値より小さな非対称度になる。実験的に非対称度を決め、実際のスピン偏極度測定に用いる値が有効シャーマン関数 $S_{eff}$  (effective Shermann function) である。

## 一口メモ

## “レンギョウ”

立春を過ぎますと、周囲の草木がすこしずつでありますが開花にそなえて生気を取りもどし始めます。また啓蟄の前後から地下で冬ごもりしていた昆虫・動物が顔を出してきます。そんな中で、早春を告げる花としてはレンギョウの黄色が目に入ってきます。

モクセイ科レンギョウ属の落葉性低木であり、我が国に自生するヤマトレンギョウ、ショウドシマレンギョウの他はすべて外来種です。よく栽培されている一般のレンギョウは中国原産です。また、花が大きく枝が垂れるチョウセンレンギョウ、花と同時に葉が出て、花を下向きにつけるシナレンギョウなどの類似種もあります。これらはいずれも雌雄異種です。

レンギョウは切り枝を土中に差したりしていとも簡単に増やすことが可能ですのでぜひ試みて下さい。

(K.Oshima)

