スピン角度分解光電子分光を用いた
反強磁性スピントロニクス材料におけるスピン分裂バンドの直接検証

Direct observation of spin-split electronic bands in antiferromagnetic spintronic materials using spin-resolved angle-resolved photoemission spectroscopy

（日本放射光学会推薦）

代表研究者	広島大学	黒田　健太	Hiroshima University	Kenta KURODA
協同研究者	広島大学	木村　昭夫	Hiroshima University	Akio KIMURA
	物質材料機構	桜庭　裕也	NIMS	Yuya SAKURABA
	広島大学	藤澤　唯太	Hiroshima University	Yuita FUJISAWA
	マックスプランク研究所	山本 理香子	Max plank Institute	Rikako YAMAMOTO

Antiferromagnetic (AFM) spintronics has attracted considerable attention following the discovery of functionalities such as the anomalous Hall effect and magneto-optical responses in AFM materials. These phenomena are believed to originate from spin-split electronic bands and unconventional spin textures induced by AFM order, yet direct experimental evidence remains limited. In this project, we employed spin- and angle-resolved photoemission spectroscopy (Spin-ARPES) to directly probe the electronic spin structures of AFM materials. To enable Spin-ARPES studies of AFM thin films, we developed a portable ultra-high-vacuum (UHV) sample transfer system that preserves pristine surfaces during transportation between thin-film growth facilities and synchrotron beamlines. Although clear observation of AFM-derived band structures in thin films was not achieved, these efforts established an experimental platform and clarified key technical challenges for future studies. In parallel, we investigated the bulk antiferromagnet NdBi using laser-based Spin-ARPES. We directly observed spin-polarized surface bands in the AFM state and demonstrated that their spin textures are governed by the interplay between magnetic order and inversion-symmetry breaking. Comparison with first-principles calculations further revealed that 4f-electron magnetism strongly influences the surface-band dispersion and spin splitting. These results provide direct experimental evidence linking AFM order to electronic spin structures and establish a foundation for future control of AFM spin textures using external stimuli such as magnetic fields and strain.

研究目的

反強磁性体において，異常ホール効果や磁気光学効果など，従来は強磁性体に特有と考えられてきた機能物性が相次いで発見され，反強磁性スピントロニクスという新たな研究分野が急速に発展している。これらの機能物性は，実空間における反強磁性秩序が電子系に対称性の破れを与え，その結果として波数空間の電子バンド構造にスピン分裂や特異なスピン模様が形成されることに起因すると理解されている。しかしながら，数多くの反強磁性スピントロニクス材料が理論的に提案されている一方で，反強磁性秩序に紐づく波数空間スピン分裂やスピン模様を実験的に実証した例は極僅かである。本研究では，申請者が高い技術力を有するスピン角度分解光電子分光法（Spin-ARPES）を用いて，反強磁性体の電子バンドのスピン構造を直接観測し，「磁気秩序・スピン分裂・スピン模様」の相関を実証することを目的として研究を実施した。Spin-ARPES は電子の運動量・エネルギー・スピン自由度を同時に決定できる唯一の実験手法であり，反強磁性スピントロニクス

材料の機能発現機構を電子構造レベルで理解するために不可欠な測定技術である。

反強磁性体を対象とした Spin-ARPES 測定には，清浄な表面を得るための試料のへき開性，そして空間に点在する磁気ドメインを分離して測定できる空間分解能など克服すべき課題が存在する。

そこで本研究では，これらの課題に対して異なるアプローチから体系的に取り組むことで，反強磁性秩序と電子バンドのスピン構造との相関を明らかにすることを目指した。本研究は，以下に示す 2 つの研究項目から実施した。第 1 の研究項目では，超高真空（UHV）環境下で試料表面を保持可能な UHV 試料ケースを用いて薄膜磁性体試料を放射光施設へ輸送し，放射光 ARPES / Spin-ARPES 測定を行うことで，反強磁性薄膜における電子構造観測の実験基盤構築と検証を行った。第 2 の研究項目では，高い空間分解能を有するレーザー Spin-ARPES を用いてバルク結晶試料の測定を行い，反強磁性秩序に伴う電子スピン構造を直接観測することで，磁気秩序と電子バンドのスピン分裂・スピン模様との相関を調査した。

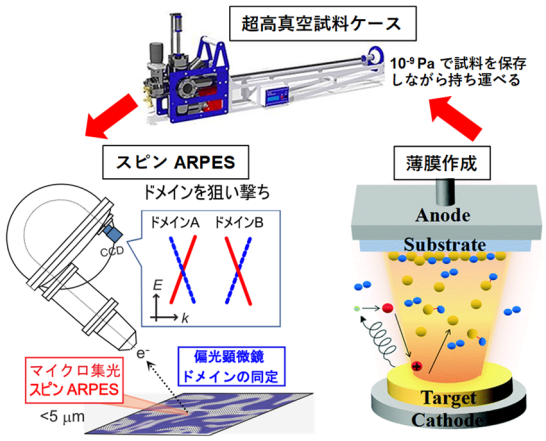

図 1: 研究内容の構成。薄膜試料作成から超高真空ケースを用いた薄膜導入を行い， Spin-ARPES を実施。

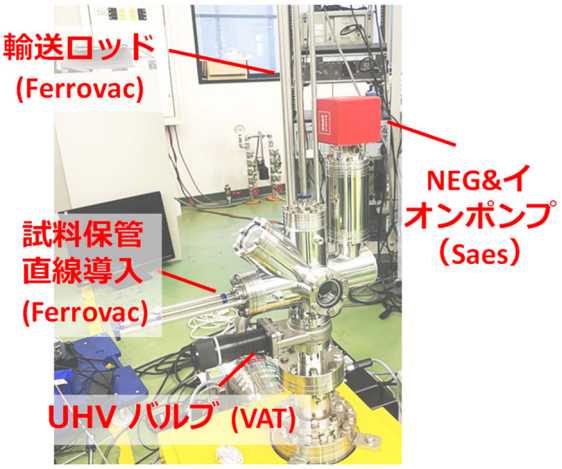

図 2: 本研究で利用した UHV 試料ケースは，NEG ポンプと電池駆動イオンポンプを備え，1×10^{-8} Pa 程度の UHV 環境を維持したまま試料を外部施設へ輸送できるように設計・自作した。

研究経過

【UHV 試料ケースを利用した薄膜磁性体試料の測定】反強磁性スピントロニクス材料の多くは 3 次元性の強い結晶構造を持ち，へき開が困難であるために原子レベルで平坦かつ清浄な表面を要求する光電子分光測定は本質的に難しい。まずはこの問題を克服するため，UHV 環境下で試料表面を保持したまま外部研究施設までの長距離輸送を可能とする UHV 試料ケースを設計・自作した。自作した UHV 試料ケースは，物質・材料研究機構（NIMS）や広島大学放射光科学研究所 (HiSOR)で作製された薄膜試料を SPring-8 や HiSOR といった研究施設に設置された様々な ARPES / Spin-ARPES ビームラインへ輸送し，各ビームラインの超高真空槽へ直接接続することで，試料表面を大気暴露することなく *in-situ* で測定を行える構造を有している。本装置により，薄膜作製から光電子分光測定に至るまでを施設横断的に結び付ける実験環境を体系的に整備した（図 1）。

自作した UHV 試料ケースの全体像を図 2 に示す。UHV 環境を構築するためにターボ分子ポンプを備えた簡易 UHV 槽から立ち上げた。結果として 1×10^{-8} Pa まで到達する UHV 試料ケースが完成した。薄膜試料は，反強磁性体 MnTe や強磁性体 Fe_4N などの薄膜試料を HiSOR や NIMS で作成・評価を行って，複数の国内放射光施設で薄膜試料の ARPES / Spin-ARPES 測定に挑戦した。しかしながら，反強磁性材料における電子バンド構造を明瞭に観測するには至らなかった。その主因として，各施設で使用されている試料ホルダーや加熱機構の設計の違いにより，超高真空槽内での試料移送やアニール条件に制約が生じ，反強磁性薄膜において特に重要となる清浄表面の安定形成が困難であった点が挙げられる。この過程で得られた知見は，反強磁性薄膜の電子構造観測が、試料ホルダーや搬送機構を含む測

定系全体の施設間整合性に強く依存することを示しており，今後の装置改良に向けた指針を与えるものである。

一方で, NIMS 桜庭裕弥氏率いる研究グループの協力で作製した強磁性体薄膜試料 Fe_4N［図 3(a),(b)］について, HiSOR の Spin-ARPES を用いた測定を行ったところ，明瞭なスピン分裂バンドの観測に成功した。ARPES/Spin-ARPES により得られた電子スピン構造を図 3(c)–(e) に示す。スピン偏極度に注目すると [図 3(d)]，フェルミ準位から離れたエネルギー領域では，波数全体にわたって正のスピン偏極が支配的であることが分かる。これは，強磁性体において一般的に観測される多数スピン状態にスピン偏極した二次電子によるバックグラウンド成分に起因すると考えられる。これに対して，フェルミ準位近傍では負のスピン偏極が強くなっており，本研究で観測された電子バンド構造の大部分は少数スピン由来であると結論づけられる。この結果は, Spin-ARPES スペクトルでよく確認できる [図 3(e)] 。Cut1 の多数スピンのスペクトルは顕著な構造が見られない一方で，少数スピンのスペクトルにはフェルミ準位近傍および約 −0.4 eV に 2 つの明瞭なピーク構造が確認できる [図 3(e)] 。このうち，少数スピン状態の −0.4 eV 付近のピークは, cut-1（$k_{//}$=−0.5 Å^{-1}）から cut-3（$k_{//}$=0.0 Å^{-1}）までで，フェルミ準位へ近づいていく様子と共にピーク強度が増大していることが分かるが観測された。

以上の結果から，本研究で観測された Fe_4N 薄膜のフェルミ準位近傍の電子状態は，主として少数スピン状態に由来であることが明らかとなった。これは, Fe_4N における電気伝導が少数スピン状態によって支配されていることを直接的に示す実験的証拠である。強磁性体においては，多数スピン状態が伝導を担うことが多いが，本研究の結果はその直感に反し, Fe_4N が示す逆トンネル磁気抵抗や負の異方性磁気抵抗といった特異な磁気輸送特性の起源が，少数スピン状態の電子バンド構造に深く関係していることを示唆している。したがって，本研究で得られたスピン分解電子構造の知見は, Fe_4N における磁気輸送現象を電子構造レベルで理解するための重要な基盤を与えるものであり、今後のスピントロニクス材料設計に対しても有用な指針となる。

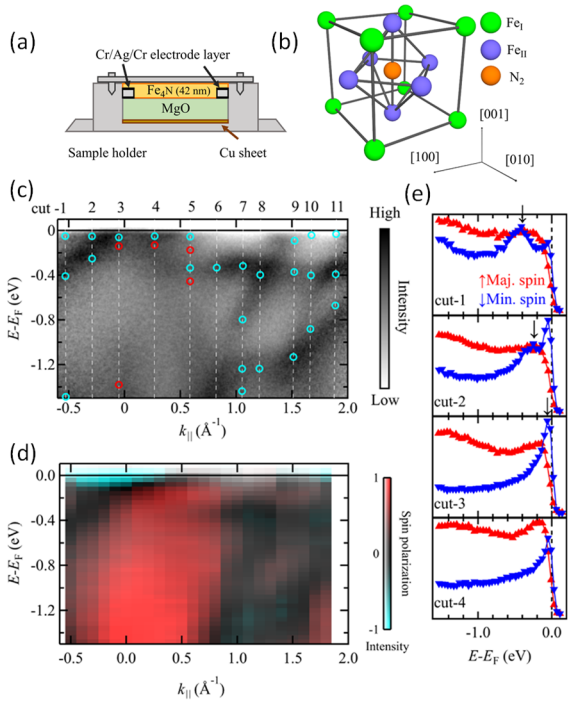

図 3:本研究で得られた強磁性体 Fe_4N 薄膜の結果。(a) 薄膜試料ホルダーの構成図。(b) Fe_4N の結晶構。(c) 放射光 $h\nu$ = 85 eV で[110] 方向に沿って測定した ARPES 結果。(d) スピン偏極度マップ。(e) Spin-ARPES スペクトル。観測したピーク位置は、多数と少数スピン (c) にプロットした。

【高空間分解能 Spin-ARPES を用いた反強磁性体 NdBi におけるスピン分裂電子バンドの観測】

希土類モノプニクタイド RX（R: 希土類元素、X: プニクトゲン元素）の一種である反強磁性体 NdBi にも注目した。一般に Nd 化合物では, Nd の 4f 電子が強く局在しているため，磁気秩序と遍歴電子のバンド構造は独立に取り扱えると考えられてきた。しかし Nd モノプニクタイド NdBi においては，反強磁性転移温度 T_N=24 K において表面状態が出現し, T_N 以下で電子バンド構造にギャップが発達することが報告されており, Nd 系としては例外的に反強磁性秩序と電子構造が密接に関連していることが指摘されている。そこで本研究では，スピン自由度を直接的に観測可能な Spin-ARPES を用いて, NdBi の電子構造におけるスピン自由度とその波数依存性を決定した。

反強磁性体における電子バンドのスピン構造を研究する上で重要な課題となるのが反強磁性ドメインの存在である。NdBi は常磁性状態では立方晶構造をとるが, 反強磁性転移に伴い図 4(a) に示すように正方晶構造へと歪む。この構造変化により, 三つの等価な反強磁性磁気ドメインが形成され, それぞれに対応してバンド分裂が生じる波数方向も異なる。その結果, ドメインを平均した測定では異なる寄与が重なり合い, 本来のスピン分裂やスピンテクスチャが不明瞭になる。したがって, この問題を克服するためには, ドメイン分解とスピン分解の双方を同時に行うことが不可欠である。そこで本研究では, まず NdBi における反強磁性ドメインサイズを評価するため, 光学クライオスタットと組み合わせた偏光顕微鏡を構築して観察を行った。図 4(b) には, 劈開した (001) 面について, T_N 前後で取得した偏光顕微鏡像の差分像を示す。 T_N を境に明瞭なコントラスト変化が観測されており, これは正方晶構造への歪みに起因する複屈折効果によるものと考えられる。また, 観測された反強磁性ドメインは, 後述する空間分解能 10 μm 以下の ARPES および Spin-ARPES 測定において十分に分離可能な大きさであることを確認した。

本研究では, HiSOR で申請者らが開発した 6 eV レーザーを光源とする Spin-ARPES 装置を主に用いた。本装置は, 高いエネルギー分解能・波数分解能でのスピン検出に加えて, マイクロ集光された光源を利用することで 10 μm の高い空間分解能を有している。さらに, 本装置は最低温度 10 K までの低温測定に対応しており, 電子構造の空間依存性とスピン構造を高精度で分解した。

図 4(c) にレーザー ARPES により観測された単一反強磁性ドメインにおけるフェルミ面を示す。このドメインでは kx 方向に二つの表面バンド（ss1, ss2）が現れる一方で, ky 方向には対応する分裂は観測されない。図 4 (d) に示すレーザー ARPES によるバンド分散からも, kx~0.2 Å^{-1} 付近に二本の表面バンド ss1, ss2 が明瞭に確認できる。次に Spin-ARPES 測定を行ったところ, kx~0.25 Å^{-1} および kx~0.27 Å^{-1} における Sy 成分のスピン偏極を観測した [図 4 (e)] 。kx~0.25 Å^{-1} では, アップとダウン成分が異なるエネルギー位置にピークを持ち, 明瞭なスピン分裂が観測された。kx~0.27

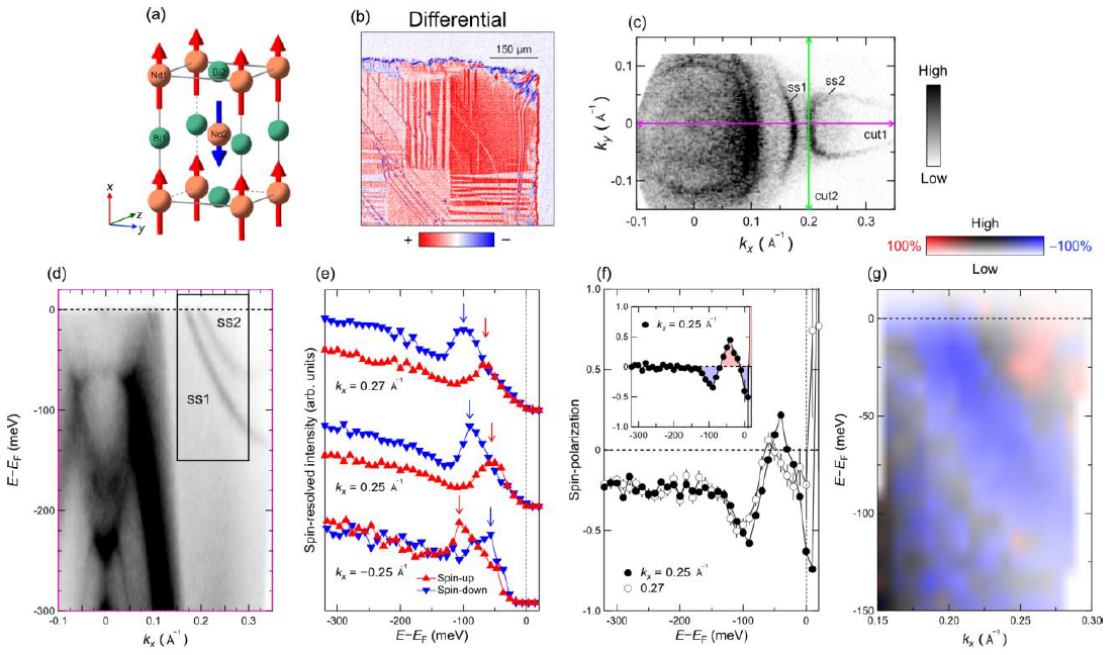

図 4: 反強磁性体 NdBi で得られた結果。(a) NdBi の single-q 反強磁性構造。矢印は Nd 磁気モーメントの向きを示している。(b) 偏光顕微鏡像について、反強磁性転移温度 TN 前後で取得した画像の強度差をとることで得られた微分強度像。(c) T_N 以下でレーザー ARPES により測定したフェルミ面マップ。(d) 反強磁性状態における kx 方向のバンド分散。(c) に示した cut1 に対応する。(e) 代表的な k_x 位置における Sy 成分の Spin-ARPES スペクトル。(f) kx ~0.25 および 0.27 Å^{-1} における対応するスピン偏極スペクトル。挿入図には、スピン偏極度のバックグラウンド成分を差し引いた結果を示している。(g) 特定の E-kx 領域 [(d) 中の枠] において取得したスピン偏極度マップ。

Å^{-1} においても同様のピーク構造が現れるが, ピーク位置は低エネルギー側へとシフトしており, 表面バンドの分散と整合している。

図 4(f) に示す各波数での Spin-ARPES スペクトルから得られたスピン偏極度から, ss1 および ss2 の両バンドが有意にスピン偏極していることが分かる。波数を変化させながら Spin-ARPES 測定を行うことで, スピン偏極度マップを得た [図 4 (g)]。この結果からも, 二本の表面バンドが互いに反対向きのスピン偏極を有していることが確認できる。加えて, k_x~−0.25 A^{-1} における Spin-ARPES スペクトルを測定したところ、アップスピンとダウンスピンのエネルギー関係が k_x>0 の場合と反転していることが分かった。この結果は、表面における反転対称性の破れによりスピン縮退が解消されていることを示している。

本研究により, 反強磁性体における磁気秩序と電子スピン構造を直接結び付けて議論するための実験基盤を構築した。特に, Spin-ARPES により反強磁性秩序に伴うスピン分裂やスピン模様を電子構造レベルで直接観測できることを示した。今後は, 磁場や応力などの外部パラメータを組み合わせた測定へ展開し, スピン構造の可変性と機能発現機構の解明を進めることで, 反強磁性スピントロニクスデバイス設計への貢献が期待される。

研究の発表

口頭発表

1. Kenta Kuroda: Electronic correlation phenomena in low-carrier rare-earth monopnictides investigated by laser-ARPES, ICAMD2025, Busan, 2025.12.
2. Kenta Kuroda: Electronic correlation phenomena in low-carrier rare-earth monopnictides investigated by laser-ARPES, A2S-2026, Hokkaido, 2026.01

誌上発表

1. Rikako Yamamoto, Takeru Motoyama, Takuma Iwata, Towa Kosa, Yukimi Nishioka, Kazumasa Ideura, Masashi Arita, Koji Miyamoto, Taichi Okuda, Akio Kimura, Takemi Yamada, Yuki Yanagi, Takahiro Onimaru, and Kenta Kuroda: “Spin splitting in the surface electronic structure of antiferromagnet NdBi”, Phys. Rev. Res. **7**, L022005 (2025).
2. Y. Morita, K. Nakanishi, T. Iwata, K. Ohwada, Y. Nishioka, T. Kousa, M. Nurmamat, K. Yamagami, A. Kimura, T. Yamada, H. Tanida, and K. Kuroda: “Zone-selection effect of photoelectron intensity distributions in the nonsymmorphic”, Phys. Rev. B **111**, L081116 (2025).
3. K. Nakanishi, M. Kakoki, K. Ohwada, K. Kuroda, K. Sumida, H. Sato, K. Miyamoto, T. Okuda, S. Isogami, K. Masuda, Y. Sakuraba, and A. Kimura: “Visualizing bulk band structure in Fe4N thin-films by spin- and angle-resolved photoelectron spectroscopy”, Phys. Rev. Res. *in press*.