

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：12605

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13864

研究課題名（和文）強磁性体表面吸着を用いた気体原子スピン制御とそのメカニズムの解明

研究課題名（英文）Manipulation of gas atom spins by adsorption on ferromagnet surfaces

研究代表者

浅川 寛太（Asakawa, Kanta）

東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・助教

研究者番号：50817046

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、独自に開発した手法を用いて、スピン偏極したFe₃₀₄(001)表面から光誘起脱離したRb原子のスピン状態と運動状態を測定することで、脱離に伴うスピンダイナミクスや脱離メカニズムの解明を目指した。試料は電子ビーム蒸着法によってMgO(001)表面上に成膜し、磁化したFe₃₀₄薄膜を用いた。測定の結果、本研究で用いた条件下では光誘起脱離はある吸着量以下では起きず、脱離メカニズムは熱的であること、また、脱離したRb原子はスピン偏極していないことが明らかになった。これは、脱離が多層吸着領域でのみ起きており、脱離原子がスピン偏極した表面と直接相互作用していない可能性を示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、フェリ磁性体Fe₃₀₄表面から光誘起脱離したRb原子のスピン偏極度を測定し、脱離メカニズムの解明に役立てた。その結果、脱離のメカニズムは熱的であり、脱離はRbの吸着量がある一定の値以上の領域でのみ観測されることが分かった。また、脱離原子のスピン偏極度は検出感度以下であり、Fe₃₀₄表面の伝導電子のスピン偏極度より有意に小さかった。これらの結果は、Rbの光誘起脱離が多層吸着領域でのみ起こることを示唆している。本研究で用いた手法は今後スピンが関わる様々な表面過程の解明に役立つことが期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to elucidate the mechanism of the light-induced desorption of Rb from Fe₃₀₄(001) surface by using a method which measures the spin state and motion state of desorbed Rb atoms. A Fe₃₀₄ thin film deposited on the MgO(001) surface by electron beam evaporation and a magnetized by applying magnetic field was used. The results showed that under the conditions used in this study, photo-induced desorption did not occur below a certain coverage, and that the desorption was driven by a thermal mechanism. Furthermore, it was revealed that the desorbed Rb atoms were not spin-polarized. These suggest that light-induced desorption occurs only in the multilayer regime and that the desorbing atoms do not directly interact with the spin-polarized Fe₃₀₄ surface.

研究分野：表面物理学

キーワード：スピン偏極 光誘起脱離 磁性体 原子物理学

1. 研究開始当初の背景

固体と気体との界面である固体表面では、様々な特有の現象が起こる。その一つが、気体原子や分子の吸着・脱離現象である。固体表面への吸着は、そのメカニズムによって物理吸着と化学吸着に大分される。このうち物理吸着は表面と吸着子がファンデルワールス力で結合している場合を指し、化学吸着は、表面と吸着子が共有結合やイオン結合、金属結合などの化学結合により結合している場合を指す。化学吸着した原子と表面の原子の間では、多くの場合電子の移動が起こる。電子は電荷とスピンを持っている。吸着に伴って表面と吸着子の間を電子が移動する際、電子の持つ角運動量であるスピン角運動量も同時に移行する。従って、化学吸着を理解する上では、表面の原子の持つ電子のスピンのダイナミクスも、電荷やエネルギーなどの電子の持つ他の物理量のダイナミクスと同様に重要性を持つ。しかし、化学吸着に伴うスピン移行を実験的に観測する手法はないため、表面での化学反応におけるスピン移行の役割は、十分に明らかになっていない。

2. 研究の目的

アルカリ金属原子を始めとしたイオン化傾向の大きい原子が表面に吸着すると、多くの場合電子の移動が起きる。その例として、 Fe_3O_4 表面へのアルカリ金属原子吸着が挙げられる^[1]。 Fe_3O_4 表面にアルカリ金属原子が吸着する際、電荷移動が起きるとともに表面の Fe 原子のスピン角運動量が変化し、その結果 Fe_3O_4 の触媒としての性能が向上することが知られている。吸着や脱離により表面の Fe 原子のスピン角運動量が変化する際、角運動量保存則を満たすために、Fe 原子のスピンと他の角運動量の間で角運動量の移行が起きるはずである。その移行先の有力な候補が、吸着原子のスピンである。このような場合、吸着した原子を光誘起脱離などの方法で脱離させた場合、脱離に伴い表面 - 吸着子間でスピン移行が起き、脱離した原子がスピン偏極することが予想される。そこで本研究では、強磁性体表面と、そこに吸着したアルカリ金属原子との間のスピン移行量を測定し、脱離メカニズムの解明に役立てることを目指した^[3]。

3. 研究の方法

試料には $\text{MgO}(001)$ 基板上に製膜した膜厚 20 nm の Fe_3O_4 薄膜を用いた。電子ビーム蒸着法を用いて薄膜を成膜後、反射光速電子線回折法を用いて結晶性を評価し、大気中に取り出し 1.0 T の磁場印加により磁化したのち、測定を行う真空装置内に移動した。その後、大気暴露により吸着した不純物を取り除くため、試料を 1.4×10^{-4} Pa の酸素雰囲気下、504 K にて 19 時間の加熱を行った。また、加熱前後に X 線光電子分光法を用いて試料表面の組成を評価した。その結果、加熱前には不純物として C 原子が検出されたが、加熱後には検出感度以下になり、十分な清浄度が得られたことが確認された。

スピン移行量の測定に用いた装置の概略図を図 1 に示す。測定室はベース圧力 2×10^{-7} Pa 以下の超高真空中に保たれている。Rb 原子は Rb 原子線照射により試料表面に吸着させ、Nd:YAG レーザーの 3 倍波の照射によって光誘起脱離させられる。脱離した原子は、試料と平行に入射したプローブ光によって検出される。脱離した原子はプローブ光を吸収するため、透過したプローブ光の強度をフォトダイオードで測定することで、脱離原子によるプローブ光の吸収を検出する。なお、プローブ光の周波数は、 ^{85}Rb の D_2 $F = 3 \rightarrow F = 4$ 遷移周波数にロックされている。 F および F は、それぞれ基底状態と励起状態において電子スピンと核スピンを合成して得られた量子数を示す。 ^{85}Rb 基底状態の $F = 3$ 状態は時期量子数 $M = -3$ から $M = +3$ の 7 つの磁気副準位からなる。脱離原子がスピン偏極しており、磁気量子数の平均値が 0 からずれているとき、プローブ光の円偏光の状態が σ^+ 偏光と σ^- 偏光の場合で遷移強度に差が出る。そこで本研究では、脱離原子に σ^+ 偏光と σ^- 偏光の円偏光状態のプローブ光を交互に照射し、その吸光度の比から脱離原子のスピン偏極度を見積もる。また脱離用の紫外光源として用いた Nd:YAG レーザーは、Q スイッチによりパルス化され、そのパルス幅は 5-10 ns と短いため、プローブ光の吸光度の時間変化から脱離原子の飛行時間分布を取得することができ、脱離原子の温度や脱離メカニズムに関する情報を得ることができ

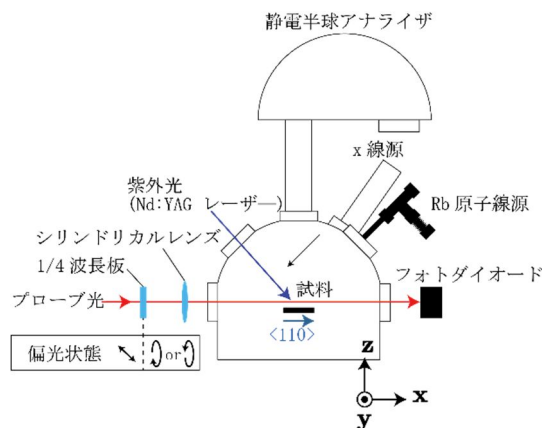


図 1 測定に用いた装置の概略図

4. 研究成果

(1) 脱離量と脱離原子速度

図2(a)に、Fe₃O₄ (001)薄膜表面に吸着した Rb 原子の光誘起脱離に伴う透過プローブ光強度の時間変化の典型例を示す。時間原点は Nd:YAG レーザーの入射時刻と一致させてある。Nd:YAG レーザー入射直後から 20 μs 付近まで見られる減衰は、脱離原子によるプローブ光の吸収によるものであり、ここから脱離原子量や脱離原子の飛行時間分布を算出することができる。また、プローブ光の偏光状態をσ⁺偏光とσ⁻偏光を交互に切り替えながら測定することで、脱離原子の磁気量子数の平均値も見積もることができる。この測定を、Rb 原子線を試料に照射しながら繰り返し、脱離原子量に比例する量 I_{des} および脱離原子の平均速度 \bar{v}_z を評価した。その結果をそれぞれ図2(b)と図2(c)に示す。いずれも横軸は Rb 原子線と紫外光の照射を開始した時刻からの時間を表している。 I_{des} は、以下の式によって求めた。

$$A(t) = \ln \left(\frac{v_0}{v_{out}(t)} \right)$$

$$I_{des} = \int_{t_1}^{t_2} A(t) v_z(t) dt$$

$$= \int_{t_1}^{t_2} A(t) \cdot \frac{l}{t} dt$$

なお $v_{out}(t)$ は時間 t におけるフォトダイオードの出力、 v_0 は脱離原子がない状態でのフォトダイオード出力の平均値、 v_z は脱離原子の z 方向の速度、 l はプローブ光と試料表面間の距離を表す。測定の結果、照射開始直後は脱離原子が検出されず、 3.24×10^3 s から脱離原子量の増加が見られた。これは、Rb 吸着量が閾値以下の領域では脱離が起きにくいということを示唆している。また、Rb 原子線曝露時間を増やすにつれ脱離原子の平均速度が増加することも明らかになった。これは、脱離が熱的なメカニズムで起きていることを示している。

(2) 脱離原子のスピンの偏極度

次に、σ⁺偏光とσ⁻偏光のプローブ光の吸光度の比から、脱離原子のうち $F = 3$ 基底状態にあるものの磁気量子数の平均値 $\langle m_{F=3} \rangle$ が取りうる値の範囲を求めた。その結果を図3に示す。横軸は、Rb 原子線の照射開始からの時間を示す。測定の結果、 $\langle m_{F=3} \rangle$ の値が -0.05 と 0.05 の間に収まっており、有意なスピン偏極は見られなかった。電子のスピン角運動量子数が 1/2 であることと、Fe₃O₄ (001) 表面のフェルミ準位における電子のスピン偏極度が 40%程度^[2]であることを考慮すると、脱離した Rb 原子のスピン偏極度は Fe₃O₄ (001) 表面のフェルミ準位における電子スピン偏極度より有意に小さいといえる。光誘起脱離がある閾値以上の吸着量でのみ起きることから、脱離原子のスピン偏極度が小さい理由は、Rb の光誘起脱離が多層吸着領域でのみ起き、そのため脱離した Rb はスピン偏極した Fe₃O₄ 表面と直接相互作用しておらず、脱離に伴ってスピン偏極した電子を脱離原子が受け取ることがないためであると考えられる。金属 Rb は高い蒸気圧を持つため、本研究で用いた実験条件では多層吸着は起きない。本研究で多層吸着が起きた理由として考えられるのが、吸着した Rb が表面の酸素を奪い、Rb 酸化物として安定化したという可能性である。従って、酸素を含まない強磁性体で、表面と直接相互作用したアルカリ金属原子が光誘起脱離できるような系を探索し、本手法を適用すれば、今後表面吸着子間のスピン移行を観測できる可能性が高いと期待される。

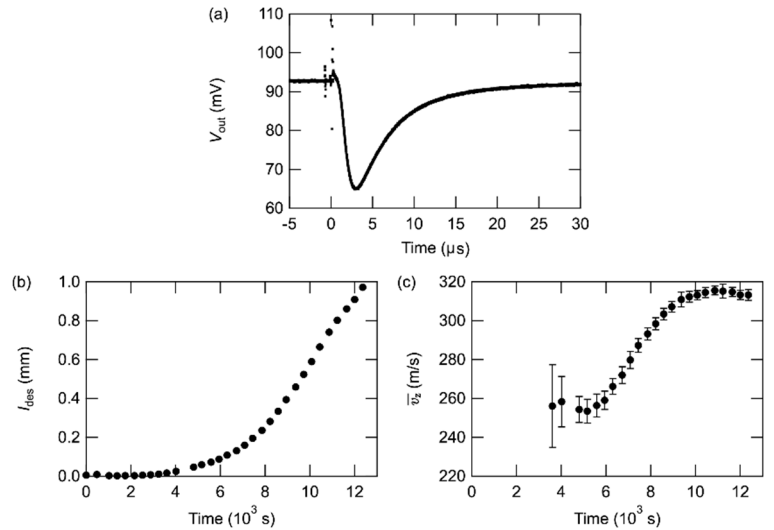


図2 (a)紫外光入射直後のフォトダイオード出力の応答と、(b) I_{des} および(c) \bar{v}_z の Rb 原子線照射時間依存性

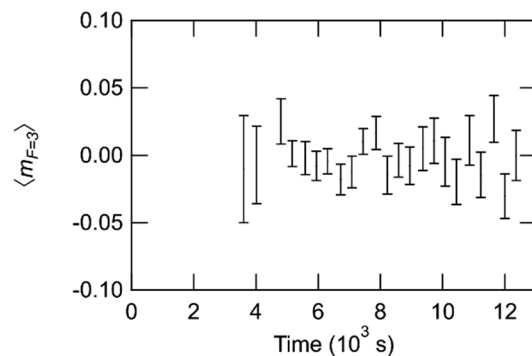


図3 脱離原子の磁気量子数の平均値の Rb 原子線照射時間依存性。

- [1] T. Yang, X.-D. Wen, Y.-W. Li, J. Wang, and H. Jiao: *Surface Science* 603 (2009) 78
- [2] J. G. Tobin, S. A. Morton, S. W. Yu, G. D. Waddill, I. K. Schuller, and S. A. Chambers: *Journal of Physics: Condensed Matter* 19 (2007) 315218.
- [3] K. Asakawa, N. Tanabe, T. Kawauchi, K. Fukutani, and A. Hatakeyama: *Scientific Reports* 13 (2023) 14965.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Asakawa Kanta, Tanabe Naoki, Kawauchi Taizo, Fukutani Katsuyuki, Hatakeyama Atsushi	4. 巻 13
2. 論文標題 Optical and spin-selective time-of-flight measurement of light-induced desorption of Rb from Fe ₃ O ₄ surfaces	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-023-41937-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 浅川寛太、谷悠志、河内泰三、福谷克之、畠山温
2. 発表標題 Fe ₃ O ₄ (100)表面からのRb光誘起脱離機構の解明
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田邊直樹、浅川寛太、河内泰三、福谷克之、畠山温
2. 発表標題 磁性体表面上からの光誘起脱離原子のスピン移行観測
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kanta Asakawa, Yushi Tani, Taizo Kwauchi, Katsuyuki Fukutani, and Atsushi Hatakeyama
2. 発表標題 Light induced atomic desorption of Rb from Fe ₃ O ₄ surface
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅川寛太, 谷悠志, 河内泰三, 福谷克之, 畠山温
2. 発表標題 Fe304(100)表面に吸着したRbの光誘起脱離
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関