

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560036

研究課題名(和文) 偏極イオン散乱におけるスピン軌道相互作用の解明と、最表面スピン分析への応用

研究課題名(英文) Spin-orbit coupling in electron-spin polarized 4He⁺ ion scattering

研究代表者

鈴木 拓 (Suzuki, Taku)

独立行政法人物質・材料研究機構・光・電子材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：60354354

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：偏極イオンビームを用いて最表面のスピン分析を行うためには、イオン散乱におけるスピン軌道相互作用の解明が欠かせない。本研究ではこの解明を目的に、偏極ヘリウムイオンと標的原子の衝突実験を行った。またこの衝突実験に必要な試料マニピュレータ等の設備の整備・開発を行った。衝突実験では、標的原子や衝突条件(入射エネルギー、入射角、出射角、散乱角)を系統的に変えて、散乱のスピン依存性を詳細に調べた。その結果、ヘリウムイオン散乱におけるスピン依存性は、ヘリウムイオンと標的原子の二体衝突において形成される量子力学的な中間状態でのスピン軌道相互作用で説明できることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：An electron-spin polarized 4He⁺ ion beam is useful for analyzing spin of solid surfaces. Deep understanding on spin dependent He⁺ ion interaction with solid surfaces is indispensable in those analyses. In the present study, systematic investigations of spin-polarized He⁺ ion scattering spectroscopy have been performed. It was found that spin dependent He⁺ ion scattering on non-magnetic targets arises from spin-orbit coupling in quantum-mechanical intermediate state during the He⁺ - target atom binary collision.

研究分野：イオンビーム表面分析

キーワード：スピン イオン散乱

1. 研究開始当初の背景

現在、スピントロニクス開発が広く進められている。その動作原理としては、例えば巨大磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果がある。これらはいずれも、磁性層/非磁性層界面で発現するので、スピントロニクス開発では、表面・界面のスピンの分析が不可欠である。とりわけ、いわゆる最表面に相当する表面第一原子層のスピンの特性は、スピントロニクスに向けた材料開発の指標として、その分析が強く求められてきた。

しかし現在の最先端の分析技術でさえ、最表面スピンを分析することは極めて困難であり、これがスピントロニクス開発の課題の一つとなってきた。

これに対し、“スピン偏極 4He^+ イオンビーム” (以降、偏極 He^+ ビーム) と呼ばれる新しいイオンビームは、最表面とスピンの双方に極めて敏感というユニークな特徴を有していることから、これを利用することで最表面のスピンの分析が実現すると期待される。本研究者は、これまで偏極 He^+ ビーム開発を進めてきた。そして最近、この偏極 He^+ ビームを用いた散乱分光 (スピン偏極イオン散乱分光法 (SP-ISS)) から、最表面のスピンの分析が可能であることを実証した。これまでにこの SP-ISS を用いて、分子吸着と表面磁性との関係、イオンビーム照射による表面磁性の制御、ハーフメタル最表面の構造とスピン分極率との相関、等について研究が進んでいる。

SP-ISS では、 He^+ イオンが最表面で電子を受け取り He 原子となる性質 (イオン中性化) を原理として利用する。イオン中性化が起こるのは、パウリの排他原理から、 He^+ イオンのスピンと最表面の電子スピンの逆向きの場合に限られる。したがって、 He 原子とはならず散乱された He^+ イオンを観測することで、最表面スピンの特性を構成元素ごとに分析することができる。

ただし、 He^+ イオンが最表面の原子で散乱される際、 He^+ イオンの持つスピンによって散乱されやすい方向が異なる性質 (スピン軌道相互作用 ($\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$)) がある。この散乱における $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ は、入射 He^+ イオン自身の標的原子核の周りの過渡的な回転運動による軌道角運動量と入射 He^+ イオンのスピンとの相互作用のことである。 $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ のこの効果は、イオン中性化にしばしば重畳する。その結果、散乱イオンのスピン依存性 (スピン非対称性) がイオン中性化と $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ のどちらによるものか判別ができず、データの解析に問題が生じてきた。この問題を解決するために、 He^+ イオン散乱における $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ の解明が求められている。

2. 研究の目的

本研究では、スピン偏極イオン散乱分光法 (SP-ISS) による最表面スピンの定量分析を実現するために、イオン散乱におけるスピン軌道相互作用 ($\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$) を解明する。応募者ら

によって開発された SP-ISS は、既に最表面スピンの分析に応用され始めているが、測定原理であるイオン中性化に $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ が重畳することで、しばしば解析が困難になる問題が生じてきた。本研究では $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ を解明することで、この解析の問題を解決し、SP-ISS を定量分析手法として確立することを目指す。

3. 研究の方法

スピン偏極イオン散乱分光法を用いて、ヘリウムイオンと標的原子の衝突実験を系統的に行った。ヘリウムイオンの電子スピンを偏極するには、これまでに開発した 1083nm D0 線を用いる光ポンピングと準安定ヘリウム原子のペニングイオン化を組み合わせる方法を用いた。標的は超高真空チャンバー中に設置し、実験の前にその表面を加熱やアルゴンイオンスパッタリング等の手法により清浄化するなど適宜処理した。散乱ヘリウムイオンの分光 (エネルギー分析) は、角度分解型の静電アナライザを用いた。さらに装置全体を 3 次的にコイルで覆い、ヘリウムイオンの感じる磁場を 10mGauss 以下の精度で制御した。

4. 研究成果

イオン散乱におけるスピン軌道相互作用の解明に向け、様々な非磁性体標的を用いてスピン偏極イオン散乱分光計測を系統的に行った。具体的には、Ag, Re, Pt, Ir, Au, Pb, Bi を標的に使い、1.57keV のスピン偏極 He^+ イオンを用いた散乱分光から、散乱のスピン依存性 (スピン非対称性) の入射角度、出射角度、散乱角度の依存性を調べた。以下にまず、Bi を標的にして行った実験の結果について詳述する。

図 1 は入射角 α 、出射角 β 、散乱角 θ 、散乱面の間の幾何学的な関係を示している。図 1 に示されるように、スピンの向きを定義する磁場 (通常は地磁気程度の大きさ) は、散乱面に対して垂直に印加した。

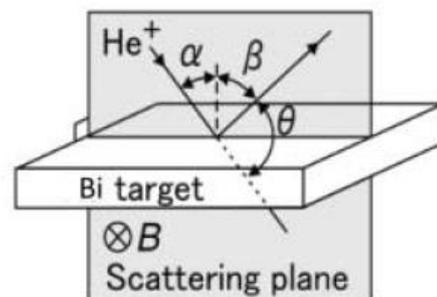


図 1 スピン偏極イオン散乱分光計測における入射角 α 、出射角 β 、散乱角 θ 、散乱面、磁場の関係

図 2 は典型的なイオン散乱分光スペクトルと、スピン間での差スペクトルである。標的は Bi (111) である。 He^+ とビスマスの弾性散乱

エネルギー位置に、有意なスピン依存散乱が観測されている。

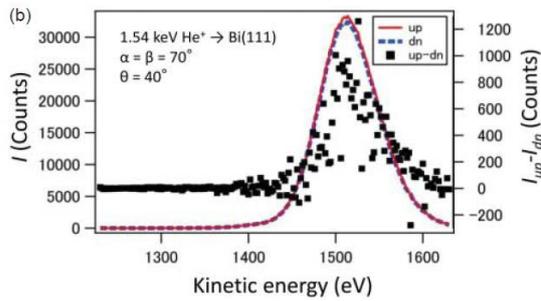


図2 Bi(111)を標的にしたスピン偏極イオン散乱分光の結果

このスピン依存散乱の、散乱ジオメトリに対する依存性を調べた。

図3は、試料面内角度 (azimuthal angle) に対する依存性を示している。スピン非対称性は試料面内角度に依存しないことが観測された。ただしスピン非対称性は、 $(I_{\uparrow} - I_{\downarrow}) / \{(I_{\uparrow} + I_{\downarrow}) \cdot P_{He^+}\}$ と定義した。 I_{\uparrow} と I_{\downarrow} はそれぞれ、定義磁場に対して平行と反平行にスピン偏極した He^+ イオンの散乱強度である。また P_{He^+} は入射イオンのスピン偏極率であり、本研究では約 0.2 である。

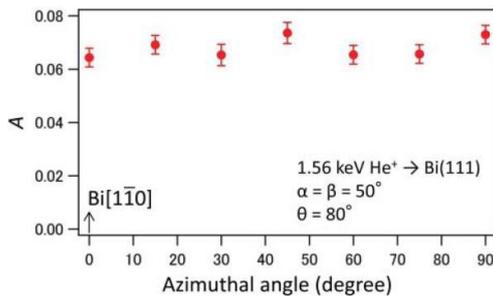


図3 Bi(111)を標的にした際に観測されたスピン非対称性と試料面内角との関係

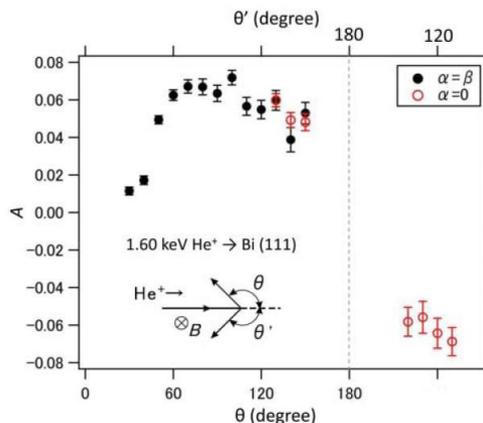


図4 Bi(111)を標的にした際に観測されたスピン非対称性と散乱角との関係

一方、図4に示されるように、スピン非対称

性は散乱角度に強く依存することが観測された。さらに、同じ散乱角度であっても、入射方向から見て右方向と左方向に散乱されるジオメトリの間では、絶対値が等しく符合が逆のスピン非対称性が現れることが明らかになった。

以上の結果は、非磁性体を標的にしたスピン偏極イオン散乱分光計測に於いて、スピン依存散乱の起源が、 He^+ イオンと標的原子の二体衝突でのスピン軌道相互作用であることを示している。

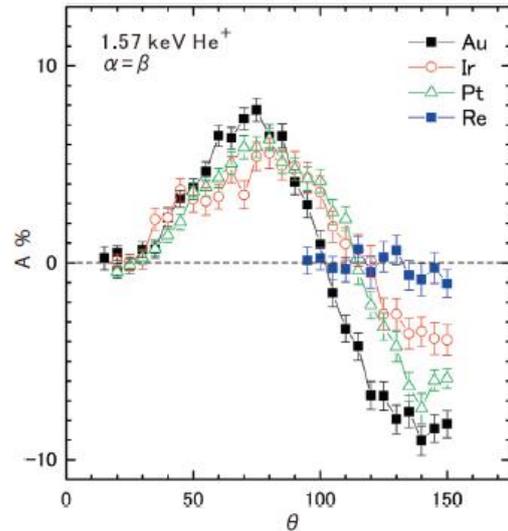


図5 5d遷移金属 (Au, Ir, Pt, Re) を標的にした際に観測されたスピン非対称性と散乱角との関係

次に、Bi 以外の元素を標的にした結果について簡潔に結果を示す。

図5は、幾つかの 5d 遷移金属を標的にした際に観測されたスピン非対称性と散乱角との関係である。これらの標的間では、散乱角に対する依存性は同様であるが、一方で非対称性の大きさは異なる。すなわち、非対称性の大きさは、Au, Ir, Pt, Re の順になっており、有意な標的元素依存性が観測されている。この標的元素依存性の起源は、解析の結果、 He^+ の再イオン化によるものであることが明らかになった。つまり再イオン化はスピンに依存しない過程であるため、実効的に入射ビームのスピン偏極率を低下させる効果がある。この脱偏極の結果、実効的なビーム偏極率 P_{He^+} は次のように表される。

$$P_{He^+}' = P_{He^+} \frac{1 - P_N}{1 - P_N + P_R P_N} \quad (1)$$

ここで P_N と P_R はそれぞれ、中性化確率と再イオン化確率である。

図4と図5に示されている散乱角に対する依存性では、図4では0度と180度の間で極大が一つあるのに対して、図5では0度と180度の間で極性が反転しており、その結

果、極大が二つある。この散乱角度 θ に対する依存性を詳細に調べた結果、標的が遷移金属の場合にはスピン非対称性は $\sin\theta \cos\theta$ の依存性を示す一方、標的が非遷移金属の場合には $\sin\theta$ の依存性を示すことが明らかになった。これらのスピン非対称性の角度依存性は、He⁺イオンと標的原子の二体衝突に於いて形成される量子力学的な中間状態でのスピン軌道相互作用で説明出来ることが明らかになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

① T. T. Suzuki, O. Sakai, S. Ichinokura, T. Hirahara, S. Hasegawa, “Target element dependent spin-orbit coupling in polarized 4He⁺ ion scattering”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 354 (2015) 163-166.

② T. Suzuki, Y. Adachi, N. Saito, M. HASHIGUCHI, I. Sakaguchi, N. Ohashi, S. Hishita : “Surface segregation of W doped in ZnO thin films” Surf. Sci. 625 (2014) 1-6

③ Y. Adachi, N. Saito, M. HASHIGUCHI, I. Sakaguchi, T. Suzuki, N. Ohashi, S. Hishita : “Electrical and optical properties of W-doped ZnO films grown on(11-20) sapphire substrates using pulsed laser deposition” J. Ceram. Soc. Jpn. 122[10] (2014) 908-913

④ Kobayashi takane, kamoshida atsushi, akiyama hideo, K. Watanabe, T. Ohnishi, K. Takada, T. Suzuki : “Development of microscopy for lithium analysis using medium-energy” Appl. Phys. Express 7[10] (2014) 106601-1

⑤ S. Ichinokura, hirahara toru, O. Yanagimachi, hasegawa shuji, T. Suzuki : “Electron-spin-dependent 4He⁺ ion scattering on Bi surfaces” Radiat. Eff. Defects Solids 169[12] (2014) 1003-1009

⑥ 鈴木拓 : “スピン偏極 4He⁺イオンビームの開発、および最表面スピンと構造の複合分析への展開” 固体物理 47[5] (2012) 217-228

⑦ T. T. Suzuki and S. Hishita : “Atomic arrangement and magnetism of iron silicide on Fe(100) surface” Appl. Surf. Sci. 259 (2012) 166-171

⑧ D. Paramanik, T. Suzuki, N. Ikeda, T. Nagai, C. Van Haesendonck : “Fabrication of self-masked InP nanopillars by electron cyclotron resonance ion etching” Physica E 44[7-8] (2012) 1644-1648

[学会発表] (計 34 件)

①2015/03/21-24 : 鈴木拓 : “極低温固体水素表面からの2次イオン放出” 日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学(東京・新宿区)

②2015/03/21-24 : 柳町治, 鈴木拓, 西野正理 : “スピン偏極 He⁺ビーム散乱における異常なスピン軌道相互作用の起源” 日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学(東京・新宿区)

③2015/03/11-14 : 山内泰, 倉橋光紀, 鈴木拓, 孫霞, AndrewPratt, 張晗, 吉武道子 : “スピン偏極準安定原子線を用いた放出電子顕微鏡” 第62回応用物理学会春期学術講演会、東海大学(神奈川・平塚市)

④2015/03/02-06 : T. Suzuki : “Possible detection of surface melting on solid hydrogen by TOF-SIMS” APS march meeting、San Antonio (米国)

⑤2014/12/05-06 : 鈴木拓 : “Enhancement of secondary ion emission from solid hydrogen films at cryogenic temperature” 第15回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会、筑波大学(茨城県・つくば市)

⑥2014/11/26-28 : S. Ichinokura, hirahara toru, O. Yanagimachi, hasegawa shuji, T. Suzuki : “Study of spin dependent ion scattering on Bi ultrathin film” International Symposium on the Functionality of Organized Nanost、未来科学館(東京・江東区)

⑦2014/11/06-08 : 一ノ倉聖, 平原徹, 柳町治, 長谷川修司, 鈴木拓 : “Bi表面におけるスピン依存イオン散乱” 日本表面科学会、くにびきメッセ(島根・松江市)

⑧ 2014/11/02-06 : S. Ichinokura, O. Yanagimachi, Univ. of Tokyo, Tokyo Inst. of Tech., T. Suzuki : “Electron-spin dependent 4He⁺ ion scattering on epitaxially-grown Bi surfaces” ISSS-7、くにびきメッセ(島根・松江市)

⑨ 2014/11/02-06 : Y. Yamauchi, M. Kurahashi, T. Suzuki, X. Sun, A Pratt, H. Zhang, M. Yoshitake : “Imaging Surface Spin Using a Polarized Metastable Helium Atom Beam” 7th International Symposium on Surface Science、くにびきメッセ(島根・松江市)

⑩2014/09/17-19 : 坂口勲, 橋口未奈子, 渡邊賢, 齋藤紀子, 鈴木拓, 菱田俊一 : “酸化錫緻密多結晶体への水蒸気からの重水素拡散” 日本鉱物科学会2014年年会・総会、熊本大学(熊本県・熊本市)

- ⑪ 2014/09/14-18 : Y. Yamauchi, M. Kurahashi, T. Suzuki, X. Sun, A Pratt, H. Zhang, M. Yoshitake : “Development of a spin-polarized metastable-atom emission electron microscope” LEEM / PEEM 9、ベルリン (ドイツ)
- ⑫ 2014/09/09-11 : 坂口勲, 橋口未奈子, 齋藤紀子, 鈴木拓, 菱田俊一 : “2次イオン質量分析法による酸化物水素センサに向けた水素検出技術と問題点” 第27回秋季シンポジウム、鹿児島大学 (鹿児島県・鹿児島市)
- ⑬ 2014/09/07-10 : 鈴木拓, 柳町治, 一ノ倉聖, 平原徹, 長谷川修司 : “ヘリウムイオン散乱におけるスピン軌道相互作用の標的要素依存性” 日本物理学会 2014年秋季大会 中部大学 (物性会場) (愛知県・春日井市)
- ⑭ 2014/09/07-10 : 一ノ倉聖, 柳町治, 長谷川修司, 平原徹, 鈴木拓 : “Bi表面におけるスピン偏極イオン散乱分光” 日本物理学会 2014年秋季大会 中部大学 (物性会場) (愛知県・春日井市)
- ⑮ 2014/07/14-18 : T. Suzuki, kamoshida atsushi, taiyo co., K. Watanabe, T. Ohnishi, K. Takada, kobayashi takane : “Development of a new microscope for lithium analysis with a spatial resolution better than 10 nm” ICACS26、デブレツェン (ハンガリー)
- ⑯ 2014/07/13-18 : T. Suzuki, O. Yanagimachi, S. Ichinokura, hirahara toru, hasegawa shyuji : “Spin-orbit coupling in low-energy He⁺ ion scattering” ICACS26、デブレツェン (ハンガリー)
- ⑰ 2014/07/09-12 : T. Suzuki, O. Yanagimachi, S. Ichinokura, hirahara toru, hasegawa shyuji : “Abnormally large spin-orbit coupling in He⁺ ion - surface collisions” SEVENTH INTERNATIONAL MEETING ON RECENT DEVELOPMENTS IN THE STUD、ブダペスト (ハンガリー)
- ⑱ 2014/07/07-11 : kobayashi takane, kamoshida atsushi, akiyama hideo, T. Suzuki : “Development of a Lithium Analysis Microscope with a spatial resolution less than 10 nm” 14th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and applications, Padova (イタリア)
- ⑲ 2014/06/19-20 : M. HASHIGUCHI, I. Sakaguchi, K. Watanabe, N. Saito, T. Suzuki, Y. Adachi, N. Ohashi, S. Hishita : “Light element analysis in oxide and nitride materials” SISS-16、北海道 (札幌市)
- ⑳ 2014/03/27-30 : 一ノ倉聖, 平原徹, 鈴木拓, 一ノ倉聖 : “スピン偏極イオン散乱分光法を用いた Bi 超薄膜における電流誘起スピン偏極の検証” 日本物理学会第69回年次大会、東海大学、神奈川県・平塚市
- ㉑ 2014/03/17-20 : 鈴木拓, 安達裕, 齋藤紀子, 橋口未奈子, 坂口勲, 大橋直樹, 菱田俊一 : “ZnO 単結晶薄膜にドーパされた W の表面偏析” 応用物理学会、青山学院大学、神奈川県相模原市
- ㉒ 2014/03/11 : 鈴木拓 : “リチウムイオン顕微鏡開発への参画について (電池について無知の、イオンビーム表面分析の研究者の立場から)” 次世代リチウムイオン電池の開発及びその分析の研究会、理化学研究所、埼玉県和光市
- ㉓ 2014/03/03-07 : T. Suzuki, Y. Adachi, N. Saito, M. HASHIGUCHI, I. Sakaguchi, N. Ohashi, S. Hishita : “Surface Segregation of W doped in ZnO thin films” American Physical Society March Meeting, Denver (米国)
- ㉔ 2013/12/27-28 : 一ノ倉聖, 平原徹, 鈴木拓, 長谷川修司 : “Experiment of current induced spin polarization on Bi ultrathin film using spin-polarized ion scattering spectroscopy” 第三回 固体中のディラック電子研究会、Spring-8、兵庫県佐用郡
- ㉕ 2013/11/16-17 : 柳町治, 鈴木拓, 西野正理 : “He⁺イオンビーム衝突におけるスピン軌道相互作用の増強効果” 原子衝突学会年会、理化学研究所、埼玉県和光市
- ㉖ 2013/10/24-25 : 坂口勲, 齋藤紀子, 鈴木拓, 安達裕, 橋口未奈子, 大橋直樹, 菱田俊一 : “酸化亜鉛への W₂O₃ の添加と格子欠陥に関する研究” 第33回エレクトロセラミックス研究討論会、研究交流センター、茨城県つくば市
- ㉗ 2013/09/25-28 : 鈴木拓, 菱田俊一 : “液体ヘリウムフリー超高真空試料冷却マニピュレータの試作” 日本物理学会、徳島大学、徳島県徳島市
- ㉘ 2013/09/04-06 : 坂口勲, 齋藤紀子, 鈴木拓, 安達裕, 渡邊賢, 橋口未奈子, 大橋直樹, 菱田俊一 : “W₂O₃ を添加した酸化亜鉛の欠陥構造に関する研究” 第26回秋季シンポジウム、信州大学、長野県長野市
- ㉙ 2013/06/05-07 : T. Suzuki, S. Hishita : “Spin-polarized He⁺ ion beam for surface magnetism analysis” Advanced Materials 2013、蘇州 (中国)
- ㉚ 2013/03/18-22 : T. Suzuki, S. Hishita : “Spin-polarized ion scattering spectroscopy study on Si/Fe(100) surfaces” American Physical Society March Meeting, Baltimore (米国)
- ㉛ 2013/01/15 : 鈴木拓, 菱田俊一 : “電子スピンの関与する低速イオン-固体表面間の相互” 学術会議シンポジウム「物性物理学・一般物理学の未来を語る」、日本学術会議講堂、東京都港区
- ㉜ 2013/01/15-18 : T. Suzuki : “Spin dependent 4He⁺ ion-surface interaction” The Symposium on Surface and Nano Science 2013 (SSNS' 13)、ホテル樹林、山形県蔵王
- ㉝ 2012/10/21-25 : T. Suzuki, Y. Yamauchi,

S. Hishita : “Polarized 4He+ ion-surface collisions” 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids、京都大学(京都府左京区)
④2012/09/16-21 : T. Suzuki, Y. Yamauchi, S. Hishita : “Scattering of spin-polarized 4He+ ions at surfaces” 19th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions、Frauenchiemsee (ドイツ)

[図書] (計 1件)

① 鈴木拓 : “偏極イオン源” マイクロビームアナリシス・ハンドブック (2014) 53-55

[産業財産権]

○出願状況 (計 1件)

名称 : 表面観測用試料冷却装置及び表面観測装置

発明者 : 鈴木拓、菱田俊一

権利者 : 物質・材料研究機構

種類 : 特許

番号 : 特願2013-154298

出願年月日 : 2013年7月25日

国内外の別 : 国内

[その他]

ホームページ等

http://samurai.nims.go.jp/SUZUKI_Taku-publication-j.html#Paper

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 拓 (SUZUKI, Taku)

物質・材料研究機構 光・電子材料ユニット

主幹研究員

研究者番号 : 60354354