

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 15 日現在

機関番号：82502

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K19061

研究課題名(和文) スピン偏極陽電子ビームで観るディラックフェルミオン系表面のスピン偏極状態

研究課題名(英文) Surface spin polarization of Dirac-Fermion systems observed by spin-polarized positron beam

研究代表者

河裾 厚男 (Kawasuso, Atsuo)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 先端機能材料研究部・上席研究員(定常)

研究者番号：20354946

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,800,000円

研究成果の概要(和文)：スピン偏極陽電子ビーム分光法を用いて、強磁性Co, Ni, Fe及びCo₂FeGa_{0.5}Ge_{0.5}(CFGG)上のグラフェン、そして、通電下にあるトポロジカル絶縁体(Bi₂Se₃及びBi₂Te₃)の最外層のスピン偏極状態を観測した。その結果、CoとNi上のグラフェンには強いスピン偏極が誘起されるが、ディラック電子状態が完全に破壊されること、CFGG上のグラフェンにはスピン偏極は殆ど誘起されないが、ディラック電子状態は維持されること、が明らかになった。トポロジカル絶縁体表面のスピン偏極率は、0.1%以下と極めて低いことが解明された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

単原子層物質であるグラフェンは、スピントロニクス分野において精力的に研究されている。通電下にあるトポロジカル絶縁体の表面には高いスピン偏極が誘起されると考えられており、これもスピントロニクスや量子テクノロジーで有望視されている。本研究で知り得た事実は、強磁性金属にグラフェンを接合して高いレベルのスピンを注入しようとするとも本来のディラック電子状態が破壊されるというものであり、これは基礎研究のみならず応用上も重要な知見である。また、トポロジカル絶縁体表面には、夢のような高スピン偏極状態は実現していないという事実は、応用を進める上では真剣に考えられなければならない。

研究成果の概要(英文)：We observed the topmost surface spin polarizations of graphene/Co, Ni, Fe and CFGG systems and the topological insulators, Bi₂Se₃ and Bi₂Te₃, upon DC application. We found that (i) a sufficient spin polarization is induced on graphene/Co and Ni, while the Dirac state is severely destroyed, (ii) less spin polarization is induced on graphene/CFGG, while the Dirac state is well maintained, (iii) the spin polarization on the topological insulator surface is less than 0.1%, i.e., very low.

研究分野：物性物理学

キーワード：陽電子 ポジトロニウム スピン グラフェン トポロジカル絶縁体 ディラック電子

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ディラック電子系として知られるグラフェンとトポロジカル絶縁体は、次世代のスピントロニクス研究開発において重要視され、精力的な研究開発が進められている。しかし、長い間、最表面における電子のスピン偏極状態をバルクの影響なく直接観測できる有効な手法が確立されていなかったため、その評価が立ち遅れていた。そして、そのような事情が、スピンデバイス創出のための物質探索研究のボトルネックとなっていた。例えば、グラフェンと強磁性体の接合系では、ディラック電子状態が保持され、かつ、多量のスピンをグラフェンに導入できる強磁性体を見出すことが、デバイス応用上は重要である。他方、グラフェンデバイスの絶縁バリア層として期待される六方晶窒化ホウ素 (h-BN) については、強磁性体に接合しても電気的な絶縁状態が維持され、かつ、スピンの導入も阻止できるかが重要である。しかし、グラフェンや h-BN 自体のスピン偏極状態を観測する手法がないために、依然として上記の要求を満たす強磁性体は見つかっていない。トポロジカル絶縁体表面では、無散逸のスピン流が存在し、電流印加によりスピン・運動量のバランスが崩れる結果として、強いスピン偏極が誘起されると考えられているが、それを直接観測したという結果がそもそも存在していない。このため、従来にはない優れた最表面感度を有するスピン検出技術の創出と、それによる基礎研究が求められていた。

2. 研究の目的

そこで研究代表者らは、物質最表面の電子のスピン偏極状態を極めて高感度に検出することができるスピン偏極ポジトロニウム分光法を世界に先駆けて開発した。本研究課題では、この手法を用いて強磁性体との接合状態にあるグラフェンや h-BN、そして通電下にあるトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 と Bi_2Te_3 に着目し、それら表面における電子スピン偏極状態の観測を試みた。

3. 研究の方法

本研究で用いたグラフェンと h-BN は、強磁性の Co(0001)、Ni(111)、Fe(001)、 $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (001) (CFGG(001)) そして非磁性の Ru(0001) を基板として、化学気相成長法により成膜したものである。これらの試料を一旦大気中より取り出し、以下で述べるスピン偏極陽電子ビーム装置のチャンパー (真空度: 10^{-7} Pa 以下) 内の試料ホルダーに取り付けた。その後、最高 700 °C で加熱することにより、表面吸着物を除去した。トポロジカル絶縁体については、市販品の Bi_2Se_3 と Bi_2Te_3 単結晶を用いた。スペック表による比抵抗は 0.1-0.001 Ωcm である。表面にスコッチテープを貼り付け、大気中で引き剥がすことにより光沢面を得た。その後、スピン偏極陽電子ビーム装置のチャンパー内の試料ホルダーに取り付け、1keV のアルゴンイオンスパッタリングを 10 秒程度行うことで表面吸着物を除去した。

研究代表者らが開発した静電型のスピン偏極陽電子ビーム装置を用いて、表面ポジトロニウム分光測定を行った。この装置では、密封型の ^{22}Na 線源、線径 30 μm のタングステン減速材 (100 メッシュ/inch を 7 枚積層)、そして 5 本のアインツェルレンズ、平行平板型の 90 度偏向器を使用しており、偏極率約 30% の横スピン偏極陽電子ビーム (エネルギー: 12keV) を発生することができる。これを減速電界に置いた上記の試料に注入し、表面で生成するポジトロニウムの三光子消滅イベントを高純度 Ge 検出器で計測した。この際、陽電子ビームのスピン偏極方向に対して、表面電子のスピン偏極方向を平行または反平行にしたときの三光子消滅イベント数の変化から、電子のスピン偏極率を決定した。グラフェン/強磁性試料の場合には面内磁場の印加により、トポロジカル絶縁体の場合には電流印加により、電子のスピン偏極方向を制御した。なお、本助成により試料冷却ステージを整備し、10~700K の温度範囲で測定が可能となった (図 1)。

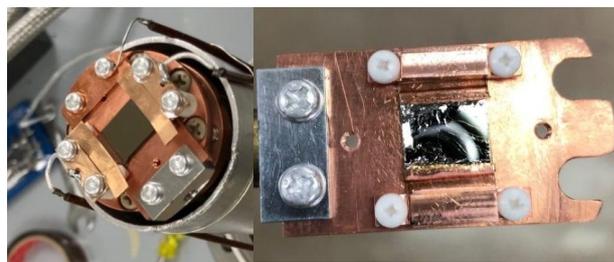


図 1 本助成により整備した極低温試料ホルダー。

4. 研究成果

【グラフェン・h-BN】

図 2 は、Co(0001)、Ni(111) 及び Ru(0001) 表面上に成膜したグラフェンに対して観測されたスピン偏極率の磁化方向依存性を示している。これより、熱処理を施していない状態では、Co と Ni の上のグラフェンにスピン偏極は生じないが、熱処理を施すことでスピン偏極が生ずることが分かる。他方、非磁性の Ru の上のグラフェンの場合には、熱処理をしてもスピン偏極は生じない。また、Co を基板とした方が Ni を基板とした場合よりも高いスピン偏極が得られることが分かる。さらに、Ni 基板の温度を強磁性・常磁性転移温度の 370 K 以上にすると、グラフェンのスピン偏極が消失することも知られた。図 3 に示すように、絶縁体である h-BN についても、グラフェンと非常に似通った結果が得られた。

上述の結果を解釈するために、第一原理計算を行った。その結果、グラフェンと h-BN の何れも Co や Ni 表面の電子状態と強く混成するため、前者では Dirac コーンが破壊され、後者ではバンドギャップが消失し、Co や Ni の電子状態に凌駕されることが分かった。また、ポジトロニウム生成領域であるグラフェン・h-BN と真空の界面において、陽電子と電子の波動関数の重な

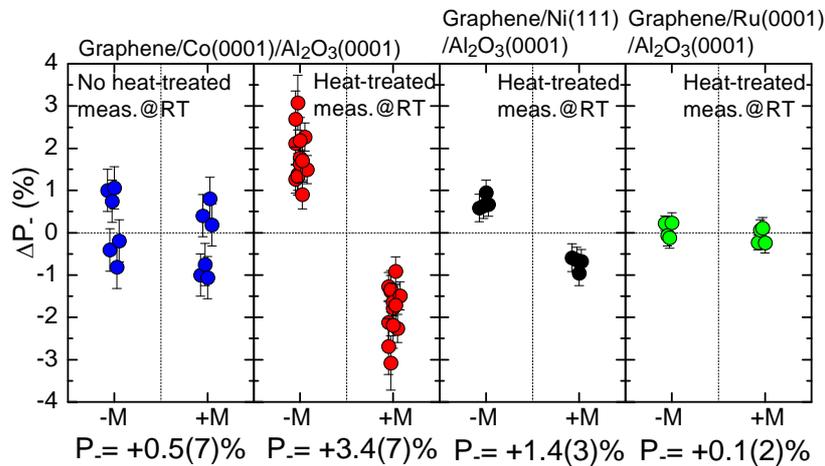


図2 左よりグラフェン/Co(0001)(熱処理前)、グラフェン/Co(0001)(熱処理後)、グラフェン/Ni(111)(熱処理後)、グラフェン/Ru(0001)(熱処理後)について得られたスピン偏極率。

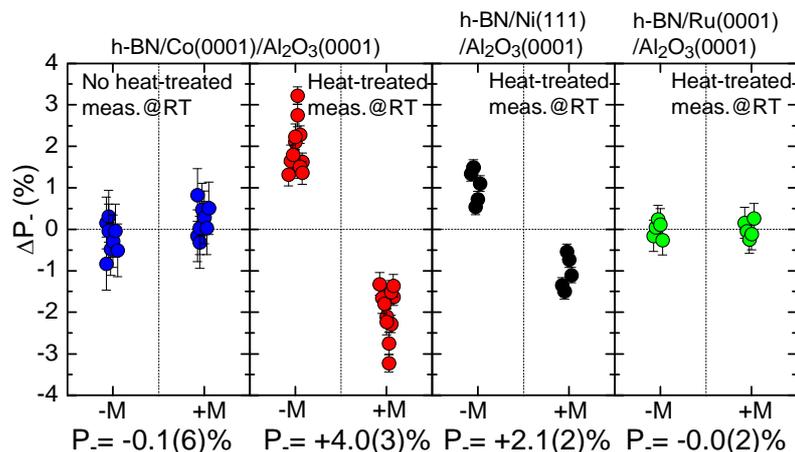


図3 左より h-BN/Co(0001)(熱処理前)、h-BN /Co(0001)(熱処理後)、h-BN /Ni(111)(熱処理後)、h-BN /Ru(0001)(熱処理後)について得られたスピン偏極率。

りを計算したところ、スピン偏極率の実験値を定量的に説明できることが分かった。これらより、下地金属が同じ場合にグラフェンと h-BN で類似するスピン偏極特性が現れる原因は、グラフェン・h-BN の π 電子と金属の d 電子が強く混成することで、各々の物質に特徴的なディラックコーンやバンドギャップが消失し、互いに似通った金属電子状態になるためであることが判明した。グラフェンと h-BN の何れも、Co・Ni との格子ミスマッチングが非常に小さく高品質の膜を形成することができ、強い混成のためにスピン偏極を誘起することができる反面、それぞれに固有の特性が失われる。即ち、Co や Ni を用いる限り、Dirac コーンを維持した状態でグラフェンにスピン注入すること、及び、h-BN の電気的絶縁性を維持することは、何れも困難であり、デバイス開発ではこれらの事情を考慮すべきであることが示唆された。上の結果は、米国物理学会誌(PRB97 (2018)195405)に論文掲載された。

そこで次に、グラフェンとの混成が低減されると考えられる Fe 及び CFGG を基板とした場合について検討した。その結果、まず Co や Ni 表面上のグラフェンと比較して、Fe と CFGG 表面上のグラフェンでは、ポジトロニウムの生成量が格段に低く(1/4 以下)、アルゴンスパッタリングによりグラフェン層を除去し CFGG 表面を露出させると、ポジトロニウム生成量が急増(最大 70%程度)することが判明した。図 4 は、CFGG 上のグラフェンに対して得られたスピン偏極率を示している。これより、熱処理前と熱処理後の何れにおいても、スピン偏極は殆ど誘起されておらず、アルゴンスパッタリングにより CFGG 表面を露出させると、有限のスピン偏極が発現することが判明した。Fe についてもほぼ同様の結果が得られた(図示省略)。

これらの結果を解釈するために、グラフェン/CFGG に対する第一原理計算を行った(グラフェン/Fe の計算については、格子ミスマッチングが相当に大きいため非常に大規模計算が必要であることから、将来の課題としている)。その結果、CFGG とグラフェンの接合は弱いファンデルワールス力に基づいているため、層間距離が Co や Ni と比較して 1 程度長く、層間の空隙に陽電子がトラップされるために、ポジトロニウム生成量が低くなることが解明された。また、グラフェンと CFGG 表面の混成も抑制されるために、グラフェンのディラック電子状態は保持されるも、スピン偏極が殆ど誘起されないことが明らかになった。このように、Co や Ni とは異なり Fe や CFGG 表面上のグラフェンは磁性体になることはない。これは当所の目論見には反する結果であるが、パイアス下でのスピン注入や縦型スピンバルブへの展開は可能ではないか

と考えられる。今回は時間切れのため研究対象とすることができなかったが、h-BNの絶縁破壊も回避できると期待され、トンネル磁気接合素子への可能性も考えられる。上の成果は米国物理学会誌への論文として投稿され、現在審査中である。

【トポロジカル絶縁体】

まず、陽電子の注入エネルギーが高い場合、Bi₂Se₃とBi₂Te₃の表面では、ポジトロニウム生成量が極めて低いことが判明した。第一原理計算の結果、これはBi₂Se₃とBi₂Te₃のポジトロニウム仕事関数が正值であるため、その自発生成が起こらないためとして説明できることが分かった。そこで、照射する陽電子のエネルギーを低く設定することで、散乱中性化の過程で生ずるポジトロニウムを観測することにした。ただし、陽電子のエネルギーが100eV以下になると、試料に印加した電流によって生ずる磁場により陽電子の軌道が影響を受けることが確認された。そこで、その影響が排除できる200

eVのエネルギーで実験を行った。図5は、Bi₂Se₃に対して得られたポジトロニウム生成量の電流反転依存性である。測定毎に電流方向を逆転して電子スピンを反転させており、電子のスピンの偏極が十分大きければ振動現象が見られるはずである。しかし、電流密度を最大10⁵ A/cm²まで増大させるとともに、試料温度を10Kから室温まで変化させてはみたものの、表面電子のスピンの偏極を示す兆候は得られなかった。Bi₂Te₃についても同様の結果が得られた。これよりBi₂Se₃とBi₂Te₃表面に誘起されるスピンの偏極率は、最大でも0.1%以下であることが結論される。

トポロジカル絶縁体の表面には、表面固有の電子状態とは別に、バルクの電子状態に起因するディラック電子状態を持つトポロジカル表面状態が存在すると提案されている。また、この状態は、表面の欠陥や不純物に何ら影響を受けないともされている。電流印加をしない状態では、上向きと下向きのスピンの運動量をもっている(無散逸の純スピン流)が、電流印加により運動量分布のバランスが崩れるために、特にパリスティック領域では100%に近いスピン偏極が誘起されると考えられている。拡散領域におけるスピンの偏極率は、この1/1000以下(即ち0.1%以下)であると見積もられる。本研究で得られたスピン偏極はほぼゼロであるが、この要因としては、本実験が拡散領域に対応しており、スピン偏極が検出限界以下であることが挙げられる。今後の課題としては、スピン偏極の検出感度を上げることが考えられるが、現行のスピン偏極陽電子ビームのスピン偏極度(30%)を仮に100%にできたとしても、感度は3倍程度にしかならないので、拡散領域においてトポロジカル絶縁体表面のスピン偏極を検出することは中々難しいと言える。パリスティック領域での実験を可能にすることも挙げられる。これには、100nm程度の微小領域における観測が必要であることから、現行のスピン偏極陽電子ビームの径(1mm)をさらに1/100に収束させる技術開発が必要である。これも、かなりのハードルである。

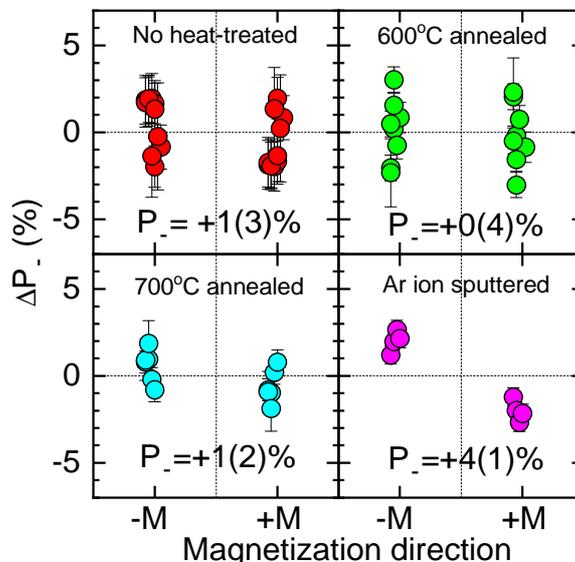


図4 グラフェン/CFGGについて得られたスピン偏極率。左上：熱処理前、右上：600 熱処理後、左下：700 熱処理後、右下：アルゴンイオンスパッタリング後。

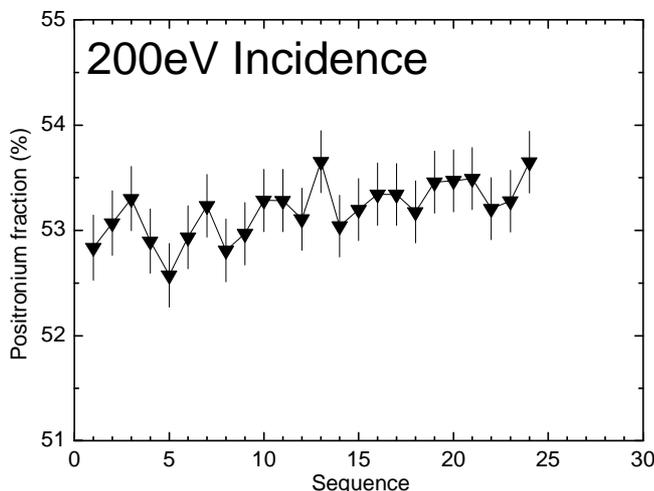


図5 Bi₂Se₃について得られたポジトロニウム生成量の電流方向依存性(一回ごとに電流方向を逆転しスピンを反転させている)。印加電流は3A。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4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 A. Miyashita, M. Maekawa, K. Wada, A. Kawasuso, S. Entani, T. Watanabe, S. Sakai	4. 巻 97
2. 論文標題 Spin polarization of graphene and h-BN on Co(0001) and Ni(111) observed by spin-polarized surface positronium spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195405-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.97.195405	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Wada, A. Miyashita, M. Maekawa, S. Sakai, A. Kawasuso	4. 巻 1970
2. 論文標題 Spin-Polarized Positron Beams with ^{22}Na and ^{68}Ge and Their Applications to Materials Research	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 040001-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5040213	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 -
1. 著者名 A. Kawasuso, M. Maekawa, A. Miyashita, K. Wada, T. Kaiwa and Y. Nagashima	4. 巻 97
2. 論文標題 Positronium formation at Si surfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245303-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.97.245303	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 M. Maekawa, K. Wada, A. Miyashita, A. Kawasuso	4. 巻 137
2. 論文標題 Construction of a Spin-Polarized Positronium Time-of-Flight Measurement Apparatus	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Acta Physica Polonica A	6. 最初と最後の頁 105-108
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.12693/APhysPoIA.137.105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 河褔厚男、前川雅樹、和田健、宮下敦巳、長嶋泰之、海和俊亮
2. 発表標題 シリコン表面におけるポジトロニウム生成
3. 学会等名 第55回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 前川雅樹、和田健、宮下敦巳、河褔厚男
2. 発表標題 表面ポジトロニウム飛行時間測定装置の開発
3. 学会等名 第55回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 河褔厚男、和田健、前川雅樹、宮下敦巳、萩原聡、岩森大直、海和俊亮、長嶋泰之
2. 発表標題 単結晶4H-SiC表面におけるポジトロニウム生成
3. 学会等名 平成30年度京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 前川雅樹、和田健、宮下敦巳、萩原聡、河褔厚男
2. 発表標題 スピン偏極ポジトロニウム飛行時間測定装置の開発
3. 学会等名 平成30年度京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 萩原聡、前川雅樹、河裾厚男、飯田進平、長嶋泰之
2. 発表標題 二成分密度汎関数法によるポジトロニウムエネルギースペクトルの理論的研究
3. 学会等名 平成30年度京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 河裾厚男、宮下敦巳、前川雅樹、和田健、萩原聡、李松田、圓谷志郎、境誠司
2. 発表標題 スピン偏極陽電子ビームによるグラフェン/強磁性薄膜のスピン偏極の検出
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kawasuso, M. Maekawa, K. Wada, A. Miyashita, S. Hagiwara
2. 発表標題 Spin Detection with Positron and Positronium
3. 学会等名 18th International Conference on Positron Annihilation (ICPA-18) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Hagiwara and A. Kawasuso
2. 発表標題 Theoretical study on positronium formation at metal surfaces based on two-component density functional theory
3. 学会等名 The 21st Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 河裾厚男
2. 発表標題 スピン偏極陽電子ビームによるグラフェン・窒化ボロン/コバルト系のスピン偏極状態の観測
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 河裾厚男
2. 発表標題 Application of spin-polarized positron annihilation spectroscopy to spintronics materials
3. 学会等名 International Workshop on Physics of Positrons at Jefferson Lab, JPos2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 河裾厚男
2. 発表標題 Spin polarizations of graphene or h-BN-covered ferromagnetic surfaces observed by spin-polarized positron beam spectroscopy
3. 学会等名 8th International Symposium on Surface Science, ISSS-8 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 河裾厚男
2. 発表標題 陽電子を利用した表面・スピントロニクス材料の研究
3. 学会等名 第6回先進的放射光メスパワー分光研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Kawasuso
2. 発表標題 Positronium Formation at Metal, Semiconductor and Graphene Surfaces
3. 学会等名 15th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques & Applications (SLOPOS-15) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Maekawa, K. Wada, S. Hagiwara, A. Miyashita, a. Kawasuso
2. 発表標題 Construction of a spin-polarized positronium time-of-flight measurement apparatus
3. 学会等名 15th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques & Applications (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 河裾厚男、和田健、宮下敦巳、前川雅樹、萩原聡、岩森大直、長嶋泰之
2. 発表標題 六方晶SiC単結晶表面におけるポジトロニウム生成
3. 学会等名 日本アイソトープ協会第56回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 前川雅樹、和田健、宮下敦巳、萩原聡、河裾厚男
2. 発表標題 スピン偏極ポジトロニウム飛行時間測定装置の開発
3. 学会等名 日本アイソトープ協会第56回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 河裾厚男、和田健、前川雅樹、宮下敦巳、岩森大直、長嶋泰之
2. 発表標題 H-SiC表面におけるポジトロニウム生成
3. 学会等名 令和元年度京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 前川雅樹、和田健、宮下敦巳、萩原聡、河裾厚男
2. 発表標題 スピン偏極ポジトロニウム飛行時間測定装置の開発
3. 学会等名 令和元年度京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」
4. 発表年 2019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