

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760032

研究課題名（和文） 偏極希ガスイオンビームの発生と、表面・界面磁性分析への応用

研究課題名（英文） Generation of polarized noble gas ion beams and their applications to analysis of magnetism at surfaces and interfaces

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

研究成果の概要（和文）：本研究では、磁気ヒステリシス測定等から、スピン偏極イオン散乱分光法による表面磁性分析の妥当性を確認した。さらにイオンビームでは初めて、非断熱遷移間での量子干渉をビーム偏極率の磁気振動として観測することに成功した。さらに、低速イオン散乱の衝突課程において、入射イオンの電子スピンの起因するスピン軌道相互作用を発見し、この相互作用を利用することで、電子スピンを有するイオンをスピン偏極出来ることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：Spin-polarized ion scattering spectroscopy (SP-ISS) has been developed as a novel analytical method of spin polarization at surfaces and interfaces. The validity of SP-ISS was investigated by magnetic hysteresis measurements. The quantum interference of non-adiabatic spin transitions was observed for the first time in ion beam experiments. It was also found that the spin-orbit coupling plays an important role in low energy ion scattering. The spin-orbit coupling in ion scattering can be used for generating electron-spin-polarized ion beams.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：薄膜・表面界面物性

キーワード：ビーム応用、電子スピン

## 1. 研究開始当初の背景

偏極ビームとは、スピンを人為的に熱平衡状態から偏らせたビームであり、物質の特定のスピンのみとのみ相互作用するので、スピンのプローブとなる。なかでも、イオン化エネルギーの大きな希ガス元素のイオンビームは、試料表面で容易に中性化されるため、最表面

に極めて敏感である。ゆえに、『電子スピン偏極希ガスイオンビーム』は、電子や光子等の様々なプローブの中で、最表面のスピンの最も敏感であるという特徴を持っている。

この偏極希ガスイオンの中で、発生の報告のあるものは He<sup>+</sup> だけであった。この He<sup>+</sup> の偏極に初めて成功したのは、米国ライス大グル

ープである(1998年)。ただし、 $\text{He}^+$ ビームを表面スピンのプローブとして用いるには、ライス大グループが報告した偏極率(13%以下)と電流(1nA以下)の改善が不可欠であった。

そこで、本研究者は偏極  $\text{He}^+$ ビームの開発に取り組み、新しい偏極方法( $D_0$ 線  $\pi + \sigma$ )を確立した結果、偏極率 25%、電流 5nA 以上を達成した(2007年)。そして、この偏極  $\text{He}^+$ ビームを用いるスピン偏極イオン散乱分光(SP-ISS)装置を開発し、これにより最表面や界面の元素を選別したスピン分極分析が可能であることを実証した。

このように、本研究者が開発した SP-ISS は、表面・界面の磁気構造(スピン配列)分析を可能にする手法であるが、SP-ISS を広く磁気構造分析に応用するには、元素識別能力の向上が課題となっていた。具体的には、Fe と Ni 等の原子量の類似した磁性元素を分離検出してそれぞれのスピン状態を分析することで、表面・界面における磁性元素間の電子相関を解明することが求められていた。また、SP-ISS による表面スピン分析の妥当性の検証も課題となっていた。

## 2. 研究の目的

SP-ISS の元素識別能力は、入射イオン種と試料表面の標的原子との質量差が最小の時に最大となる。ただし、後方散乱で標的原子を検出するには、入射種は標的原子よりも軽い必要がある。そこで本研究では、 $\text{He}^+$ 以外電子スピンを有するイオンの偏極方法を開発することを目的とした。これにより、SP-ISS の元素識別能力を格段に向上させることを最終目標とした。

また、SP-ISS による表面スピン分析の妥当性の検証も併せて行うこととした。

## 3. 研究の方法

SP-ISS による表面スピン分析の妥当性に関しては、磁気ヒステリシス測定と角度分解測定から評価した。さらに、類似の最表面スピン分析手法であり、既に確立した分析法であるスピン偏極準安定 He 原子脱励起分光法との比較も併せて行うことにした。

一方、 $\text{He}^+$ 以外のイオン種についての電子スピン偏極は、衝突の際のスピン軌道相互作用が利用できる可能性があることから、この相互作用の詳細を、角度分解測定等から評価することとした。

## 4. 研究成果

Fe(100)試料で、SP-ISS における鉄からの散乱イオン強度のスピン依存性と磁場との関係を調べた結果を図1に示す。この測定では鉛直方向に約 0.1 Gauss の磁場( $H_{\text{guid}}$ )を装置全体に渡って印加し、なおかつ試料直近に設置したコイルによって、それと垂直の磁

場( $H_{\text{sample}}$ )を発生させて、この磁場を掃引した(図1挿入図)。したがって、Fe(100)表面の近傍における入射  $\text{He}^+$ イオンのスピンの向きは、 $H_{\text{guid}}$  と  $H_{\text{sample}}$  の合成方向に平行、または反平行である。 $H_{\text{sample}}$  の掃引開始時の磁場(+9 Oe)によって鉄は[010]方向に磁化され、入射  $\text{He}^+$ イオンのスピンはこの磁化に平行、または反平行である。 $H_{\text{sample}}$  を減少させていっても、 $|H_{\text{sample}}| \gg |H_{\text{guid}}|$  の条件では鉄の磁化方向と入射  $\text{He}^+$ イオンスピンの向きの関係は変わらないので、スピン非対称率は約 5%で一定である。しかし、その極性が+から-に転ずると、磁化に対して平行(反平行)であった  $\text{He}^+$ イオンのスピンの向きが反平行(平行)になるので、それに伴い、スピン非対称率の極性も反転する。さらに  $H_{\text{sample}}$  を掃引すると、-3 Oe 付近でスピン非対称率の極性が再び-から+へと変化する。これは、鉄表面の磁化反転によるもので、この磁場が保持力に相当する。ここで観測されている保持力は、Fe(100)薄膜に関する過去の報告と一致する。-から+への  $H_{\text{sample}}$  を掃引する際に起こるスピン非対称率の変化も、+から-への掃引と同様に説明される。このようにして説明される磁気ヒステリシスの観測は、Fe(100)表面観測された散乱イオン強度のスピン間での違いが、試料表面の磁化(スピン)に由来することを示している。

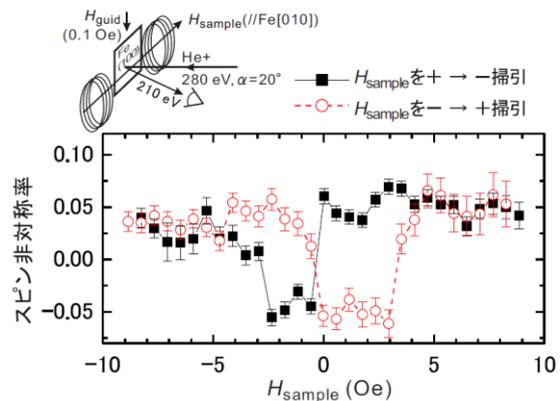


図1 Fe(100)表面での、SP-ISS による磁気ヒステリシス

ところで、 $\text{He}^+$ イオンの入射軌道において磁場が急峻に変化すると、 $\text{He}^+$ イオンのスピンは磁場の变化に追従できず、その結果スピンが反転する(非断熱スピン遷移)。SP-ISS では、イオン源から試料まで  $\text{He}^+$ イオンを、そのスピンを保持しながら輸送するので、このスピン反転を起こしてはならない。このスピン反転を防ぐ目的で、装置全体に渡って、磁場を微調整している。しかし、磁化した試料により誘起される不均一磁場によってスピン反転が起きている可能性がある。このスピン反転が起きているかどうかは、磁化した試料の

面内回転角  $\delta$  に対する依存性から評価できる (図2挿入図)。なぜなら、入射  $\text{He}^+$  イオンのスピンの試料表面まで保持できていれば、 $\text{He}^+$  イオンスピンの試料磁化方向成分は  $\cos \delta$  に比例するので、スピン非対称率は  $\delta$  の余弦関数になるからである。

SP-ISS ( $E_0=1240$  eV)、及びスピン偏極イオン中性化分光 (SP-INS,  $E_0=50$  eV) のスピン非対称率と、Fe(100) 試料の面内回転角との関係を調べた結果を図2に示す。SP-ISS と SP-INS のスピン非対称率は、面内回転角の余弦関数 (破線) で良く説明される。このことは、入射エネルギー50 eV から 1240 eV の範囲では、試料が誘起する磁場によるスピン反転は無いことを示している。

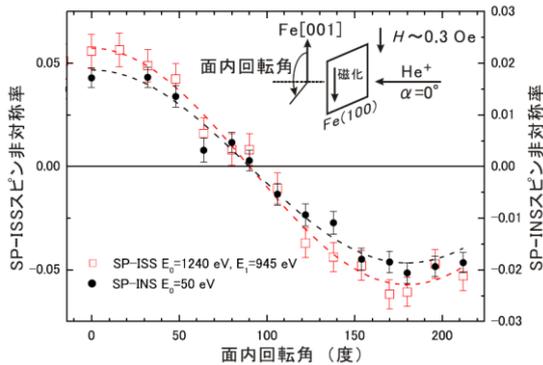


図2 Fe(100)表面での、SP-ISS と SP-INS のスピン非対称率と、試料の面内回転角との関係

$\text{He}^+$  イオンが表面原子に最接近する場所 (古典的回帰点) 以外でのイオン中性化が、スピン非対称性に与える影響 (軌道効果) は、スピン非対称性の入射角度  $\alpha$  に対する依存性から評価できる。これは、古典的回帰点に比べて、軌道効果が入射角度  $\alpha$  に強く依存するためである。ただし、イオンの軌道を良く定義するために、1回散乱の条件で評価する必要がある。1回散乱の条件が満たされているかどうかは、ISS ピークのエネルギーと2体衝突エネルギーとを比べればよい。図3挿入図は、この比較を Fe(100) 表面で行った結果で、出射角度  $\beta$  が  $90^\circ$  では、入射角度  $\alpha$  を  $80^\circ$  から  $30^\circ$  の範囲で、鉄ピークのエネルギーと計算から求められた  $\text{He}^+$  と Fe の2体衝突のエネルギー (縦棒の位置) が良く一致していることから、鉄ピークは主に、1回散乱を経た  $\text{He}^+$  イオンによって構成されていることがわかる。

つぎに、上記の散乱条件で調べた入射角度  $\alpha$  と鉄ピーク位置でのスピン非対称率との関係 (図3) を見ると、スピン非対称率は入射角度  $\alpha$  には依存せず、2~3%でほぼ一定である。このことから、Fe(100) 表面でスピン非対称性が、 $\text{He}^+$  イオンが衝突パートナーである鉄原子に再接近する場所のイオン中性化

によって支配されていることが示される。

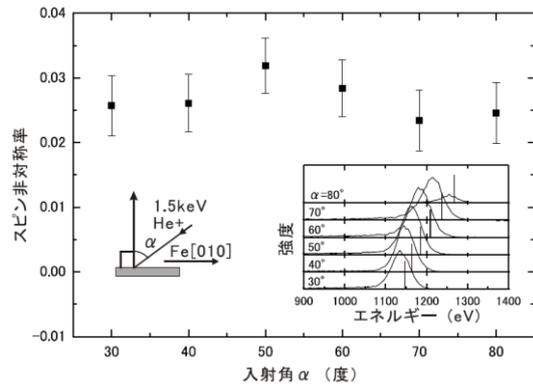


図3 Fe(100)表面での、SP-ISS のスピン非対称率と入射角  $\alpha$  との関係

図4は、Fe(100)表面を酸素雰囲気暴露した際に観測された、(a)ISS、(b)SP-ISSの鉄と酸素のスピン非対称率、(c)SP-INSのスピン非対称率である。SP-ISSでは、酸素と鉄のスピン非対称率が有意に異なり、SP-ISSの元素選択性が実証された。また、SP-INSのスピン非対称率は、類似の手法であるスピン偏極準安定 He 原子の結果と良く合致することから、偏極  $\text{He}^+$  イオンビーム計測の妥当性が支持された。

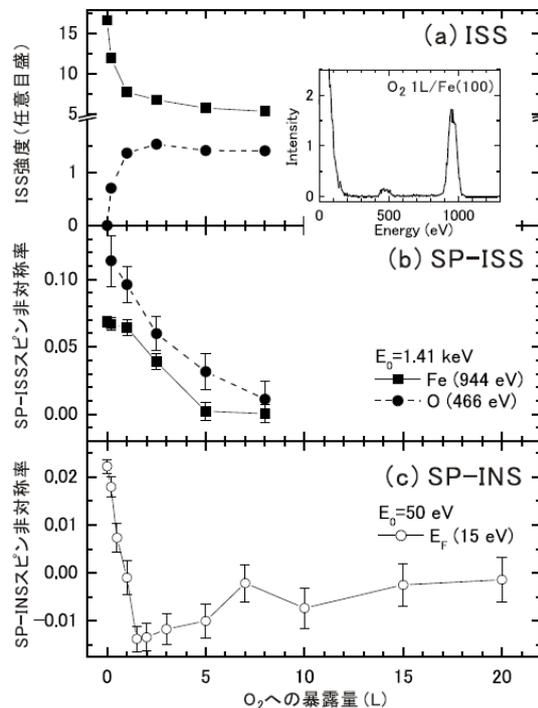


図4  $\text{O}_2$  雰囲気暴露された Fe(100) 表面での、(a) ISS、(b) SP-ISS、(c) SP-INS の結果

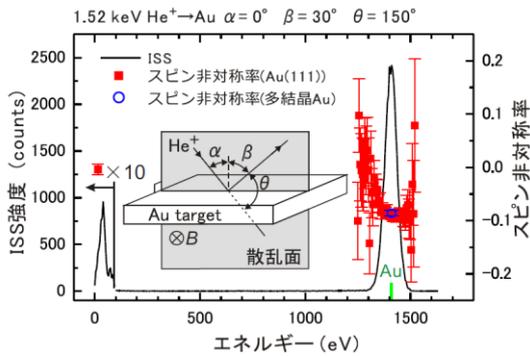


図5 Au(111)表面でのISSスペクトル(黒実線)と、Au(111)表面(■)と多結晶金表面(○)でのSP-ISS スピン非対称率

図5は、金表面で観測された  $\text{He}^+$  イオン散乱のスピニ依存性を示す。金からの散乱ピーク位置で(2体衝突エネルギーは縦棒位置)で、約9%のスピニ非対称性が現れている。詳細な解析から、金ピーク位置で観測されたこのスピニ非対称性は、 $\text{He}^+$  イオンと金原子の2体衝突における散乱断面積が  $\text{He}^+$  イオンのスピニによって異なることによるものと結論された。さらに、散乱におけるスピニ軌道相互作用についての理論モデルを構築し、この検証を進めた。

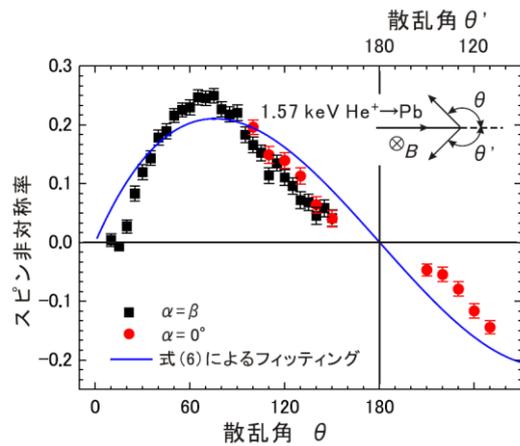


図6 入射角  $\alpha$  と出射角  $\beta$  が等しい場合(■)と入射角  $\alpha$  が  $0^\circ$  の場合(●)での、SP-ISS によって多結晶鉛表面で測定された鉛のスピニ非対称率と散乱角  $\theta$  および  $\theta'$  との関係

そして、図6に一例として示すように、この理論モデルの妥当性が実験的に確かめられ、非磁性体表面でのスピニ非対称性の出現は、散乱におけるスピニ軌道相互作用の結果と結論された。

上の議論から、SP-ISS によるスピニ非対称性の起源は、表面スピニに限らないことが明らかとなった。そこで SP-ISS による表面スピニ分析では、表面スピニとそれ以外の効果

(スピニ軌道相互作用)を切り分ける必要がある。これは、スピニ非対称性と面内回転角  $\delta$  との関係を探ることで可能である。これは、表面スピニに起因したスピニ非対称性は、 $\cos \delta$  に比例するが、スピニ軌道相互作用は2体衝突で発現するので面内回転角  $\delta$  とは無関係に一定となるからである。

さて、金の様な非磁性体表面で散乱された  $\text{He}^+$  イオンの強度が、そのスピニによって異なるという実験事実は、非磁性体標的が  $\text{He}^+$  イオンビームのポラライザとなることを示している。例えば、図6では、散乱角  $\theta$  が  $70^\circ$  付近でスピニ非対称率が約25%となっている。このことから、同じ散乱条件(入射エネルギー1.57 keV、入射角  $\alpha$ =出射角  $\beta$ )で、無偏極の  $\text{He}^+$  イオンビームを鉛標的に照射すると、 $70^\circ$  方向に散乱される  $\text{He}^+$  イオンは偏極していて、その偏極率は25%であることが分かる。このような散乱のスピニ軌道相互作用を利用した偏極源に関しては、電子ビームについては報告があるものの、原子ビームやイオンビームの電子スピニ偏極については報告がない。もしもこの方法によってイオンビームの偏極が可能になれば、光ポンピングのための高価なレーザーが不要になる。また、 $\text{He}^+$  イオンビームのみならず、電子スピニを有する他のイオン種も同様の方法によって偏極できる可能性がある。

非磁性体標的を使った偏極イオン源の実現可能性は、分析への応用に耐えうる偏極イオンビーム電流が得られるかどうかにかかっている。これに関しては、例えば鉛標的の場合(図6)、アクセプタンス角度  $5^\circ$ 、動作距離25 mmのアナライザにおいて、散乱角  $70^\circ$  では数kcpsのカウンティングレートが得られた。これと、入射イオンビーム電流密度(約  $0.1 \text{ nA} \cdot \text{mm}^{-2}$ )とから、1回の散乱でビーム強度は  $10^{-5}$  になると見積られるので、 $10 \mu\text{A} \cdot \text{mm}^{-2}$  の  $\text{He}^+$  イオンビームをこの条件で散乱させれば、 $0.1 \text{ nA} \cdot \text{mm}^{-2}$  の電流密度で25%の偏極率を持つ偏極  $\text{He}^+$  イオンビームが得られると見込まれる。 $10 \mu\text{A} \cdot \text{mm}^{-2}$  のイオンビーム電流密度は市販のイオン源で十分に達成可能である。また、本実験では装置の都合上、入射エネルギーを2 keV以下としたが、これを上げることで、ビーム偏極率の更なる改善が期待できる。これらのことから、非磁性体表面での散乱を利用する方法によって、既存の性能を凌駕する偏極イオンビームの発生が可能であ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6件)

① 鈴木拓、スピニ偏極  $^4\text{He}^+$  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、査読有、Vol. 47、2012、217-228

② 鈴木拓、桑原仁史、山内泰、Effect of ion beam irradiation on magnetism of Fe(100) outermost surfaces studied by spin-polarized ion scattering spectroscopy、Surface Science、査読有、Vol. 605、2011、1197-1201

③ 鈴木拓、山内泰、菱田俊一、Spin dependent low energy  $4\text{He}^+$  ion scattering on non-magnetic surfaces、Physical Review Letters、査読有、Vol. 107、2011、1761011-1761015

④ 鈴木拓、桑原仁史、山内泰、Element-selective spin polarization analysis of surfaces by spin-polarized ion scattering spectroscopy、Surface Science、査読有、Vol. 604、2010、1767-1771

⑤ 鈴木拓、山内泰、Stuckelberg oscillations in nonadiabatic spin transitions of an electron spin-polarized  $4\text{He}^+$  ion beam、Physical Review A、査読有、Vol. 82、2010、0427091-0427097

⑥ 王中平、倉橋光紀、鈴木拓、丁沢軍、山内、Silicon Micro/Nanofabrication Using Metastable Helium Atom Beam Lithography、JOURNAL OF NANOSCIENCE AND NANOTECHNOLOGY、査読有、Vol.10、2010、7443-7446

[学会発表] (計 20 件)

① 鈴木拓、山内泰、菱田俊一、Spin-polarized ion scattering spectroscopy; applications for magnetic structure analysis of outermost surfaces、ISSS-6、2012年12月11日、タワーホール船堀 (東京)

② 鈴木拓、菱田俊一、Si/Fe(100)最表面の構造とスピン、日本物理学会、2012年3月24日、関西学院大学 (西宮市)

③ 鈴木拓、Surface analysis by electron spin-polarized  $4\text{He}^+$  ion beam、Rutgers 大学物理学科セミナー、2012年3月5日、Rutgers 大学 (New Brunswick)

④ 鈴木拓、山内泰、菱田俊一、Spin-dependent low-energy  $4\text{He}^+$  ion scattering on nonmagnetic surfaces、American Physical Society、2012年2月27日、ボストン

⑤ 鈴木拓、山内泰、菱田俊一、低速  $\text{He}^+$  イオン散乱におけるスピン軌道相互作用、第12回「イオンビームによる表面・界面解」析特別研究会、2011年12月9日、東京大学生産技術研究所 (東京)

⑥ 山内泰、倉橋光紀、鈴木拓、低速準安定ヘリウム原子のパルスビーム技術開発、プラズマ・核融合学会第28回年会、2011年11月

22日、石川県立音楽堂 (金沢市)

⑦ 鈴木拓、究極に表面敏感な「磁性」と「構造」の複合分析手法、新技術説明会、2011年10月25日、JST 東京本部

⑧ 鈴木拓、山内泰、菱田俊一、非磁性表面でのスピン偏極イオン散乱分光、日本物理学会、2011年9月21日、富山大学

⑨ 山内泰、倉橋光紀、鈴木拓、低速準安定ヘリウム原子線のパルス化、第72回応用物理学会学術講演会、2011年8月29日、山形大学

⑩ 鈴木拓、山内泰、Magnetic structure of outermost surfaces studied by spin-polarized ion scattering spectroscopy (SP-ISS)、ICSOS-10、2011年8月1日、City University of Hong Kong (中国)

⑪ 山内泰、孫霞、圓谷志郎、Andrew Pratt、倉橋光紀、鈴木拓、Induced spin polarization of organic molecular layers、JSPS York-Tohoku Res. Sympo. on Mag Materials and Spintronics、2011年6月27日、The University of York (英国)

⑫ 鈴木拓、山内泰、Analysis of surface magnetism with electron spin-polarized ion beam、20th International Conference on Ion Beam Analysis、2011年4月10日、Plaza Itapema Resort & Spa (ブラジル)

⑬ 鈴木拓、倉橋光紀、山内泰、 $4\text{He}^+$  ビーム偏極率の磁気振動、日本物理学会、2011年3月25日、新潟大学 (東日本大震災により開催中止。ただし、大会は成立)

⑭ 鈴木拓、倉橋光紀、山内泰、電子スピン偏極  $^4\text{He}^+$  イオンビームのスピン非断熱遷移における Stükelberg 振動、第11回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会、2010年12月3日、名城大学

⑮ 山内泰、倉橋光紀、鈴木拓、原子・分子レベルの表面改質とスピン偏極、第51回真空に関する連合講演会、2010年11月4日、大阪大学

⑯ 桑原仁史、鈴木拓、山内泰、The origin of magnetic oscillations in SP-ISS、9th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics、2010年10月4日、Korean Institute of Advanced Study (韓国)

⑰ 山内泰、孫霞、圓谷志郎、Andrew Pratt、倉橋光紀、鈴木拓、SPIN POLARIZATION OF ORGANIC MOLECULES ON MAGNETIC SURFACES PROBED BY A METASTABLE HELIUM BEAM、18th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions、2010年9月26日、Park Vista Hotel (Gatlinburg, 米国)

⑱ 鈴木拓、桑原仁史、山内泰、非磁性表面でのスピン偏極イオン散乱分光、原子衝突研究協会年会、2010年8月9日、奈良女子大学

⑲ 鈴木拓、桑原仁史、山内泰、Magnetic

oscillations in ion scattering spectroscopy, ICACS-24、2010年7月18日、Jagiellonian 大学 (ポーランド)

⑩ 鈴木拓、偏極イオンビームの開発とその応用、けいはんな物質科学フォーラム、2010年4月23日、けいはんなプラザ・ラボ棟 (京都府)

[産業財産権]

○出願状況 (計 2 件)

名称：電子スピン偏極イオンビームの発生方法及びその発生装置

発明者：鈴木拓、山内泰、菱田俊一

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許

番号：特願 2011-166145

出願年月日：2011年7月29日

国内外の別：国内

名称：スピン反転装置、スピン反転評価システム及びスピン反転方法

発明者：鈴木拓、桑原仁史、山内泰

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許

番号：特許公開 2012-052970

出願年月日：2010年9月3日

国内外の別：国内

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 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

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし