

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

スピン偏極一イオン散乱分光法の開発

### 2. 氏名

鈴木 拓

### 3. 研究のねらい

磁性の解明には、磁気構造(スピン配列)の解析が欠かせない。磁気構造とは磁気モーメント(スピン)の配列状態を反映した結晶構造であり、物性の理解が結晶構造解析から始まるように、磁性の理解やその制御には、この磁気構造の解析が不可欠である。しかし、既存の分析法では、表面(最表面原子層)に限定した元素選別スピン状態が得られないため、表面の磁気構造解析が困難であった。

表面の磁気構造解析は、基礎的な表面科学の分野以外に、表面の効果が相対的に重要となる微小化した先進の磁気デバイス開発においても重要な課題となっている。とりわけ、その基本動作が非磁性体/強磁性体界面で発現するスピントロニクスの開発では、表面・界面の磁気構造解析が強く要請されている。

本研究では、表面・界面の磁気構造解析を可能にする新手法として「スピン偏極一イオン散乱分光法」(SP-ISS)の開発に取り組んだ。この SP-ISS の基本原理は、これまで分析手法に用いられたことのない物理現象である「イオン中性化のスピン依存」で、これによって最表面の元素選別スピン分析が初めて実現できると提案して、本さきがけ研究に至った。本研究の目的は、SP-ISSを開発し、この手法によって表面・界面の磁気構造分析が可能なことを実証することである。SP-ISS によって表面・界面の磁気構造分析が広く可能となれば、表面磁性発現機構の解明や、スピントロニクスの開発等の飛躍的な発展が期待される。

### 4. 研究成果

偏極ビームとは、スピンを人為的に揃えたビームであり、物質の特定のスピンの相互作用するので、スピンのプローブとなる。なかでも、ヘリウムイオン( $^4\text{He}^+$ )の偏極ビームである「偏極 $\text{He}^+$ ビーム」は、表面に接近すると高い確率で中性化されることから、電子や光子等の各種プローブビームの中で、表面の電子スピンに最も敏感である。表面のスピンの敏感なプローブとしてはこの他に偏極準安定He原子( $\text{He}^*, 2^3\text{S}_1$ )ビームがあるが、 $\text{He}^*$ は電荷を持っておらず、そのためビームの運動エネルギーの制御が困難である。この運動エネルギーの制御性は、後述の散乱分光計測を通じた元素選別スピン分析に不可欠な要素であるので、表面の元素選別スピン分析は偏極 $\text{He}^+$ ビームによってのみ可能である。

偏極 $\text{He}^+$ ビームの発生は、米国ライス大グループによって初めて実現された(1998年)。これを受けて私は、さきがけ研究課題として「パウリの排他律に従う表面におけるイオンの中性化はスピン

に依存すると考えられるので、偏極イオンを用いたイオン散乱分光法(SP-ISS)からこの中性化のスピンの依存性を求めることで、個々の標的要素のスピンの状態が得られる」と提案した。ここで、イオン散乱分光法とは、運動エネルギーの揃ったイオンを試料表面に入射し、散乱イオンのエネルギー分析から表面の組成や構造を分析する、既に確立された手法である。ただし、その測定感度が(ビーム偏極率) × (ビーム電流密度)<sup>1/2</sup>に比例するSP-ISSを実現するには、ライス大グループが報告した高々18%程度のビーム偏極率や、1nA以下のビーム電流の改善が不可欠であった。

このライス大グループでは、次の多段階プロセスによって偏極He<sup>+</sup>ビームの発生に初めて成功した。即ち、①放電によってHe\*を発生し、②このHe\*を光ポンピング(2<sup>3</sup>S→2<sup>3</sup>P)によって偏極し、③偏極したHe\*のペニングイオン化で偏極He<sup>+</sup>を発生させる。③のペニングイオン化ではスピンは保存されるので、He<sup>+</sup>の偏極率の改善に最も有効なのは、②の過程で高偏極He\*を発生させることである。

偏極He<sup>+</sup>ビーム発生方法としてはこの他に、強磁性体表面での電界イオン化や核スピン偏極<sup>3</sup>Heの超微細相互作用の利用が提案されているが、未だ実現されていない。そこで本研究では、まずライス大の方法(光ポンピング+ペニングイオン化)を踏襲することから出発し、次にその方法を改良することでビームの高偏極化と大電流化を目指すことを基本方針とした。

このような基本方針の下に、まず偏極He<sup>+</sup>ビームの開発に取り組み、世界で2番目にその発生に成功した。次に、He\*の高偏極化に不可欠な、放電環境下におけるHe\*の偏極率計測方法の開発に取り組んだ。放電中のHe\*偏極率に関しては、従来から吸収測定によって評価されてきたが、ドップラー効果による異種吸収線の重なりや誘導放出成分の混入の問題があった。そこで本研究では、この吸収測定に1083nm D<sub>0</sub>線の円偏光と直線偏光とを用いることでこれらの問題を回避して、より高い精度で放電中のHe\*偏極率が計測可能な方法を開発した[1]。図1は、このようにして可能となったHe\*偏極率と、(a)導入Heガス圧および(b)RF出力との関係を調べた結果である。

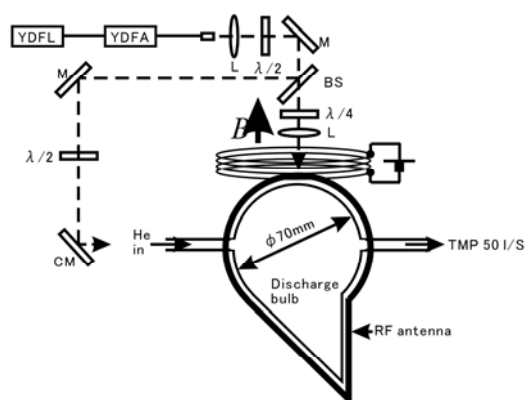


図2 本研究で開発した1083nm D<sub>0</sub>線(σ<sub>+</sub>)を用いた光ポンピング

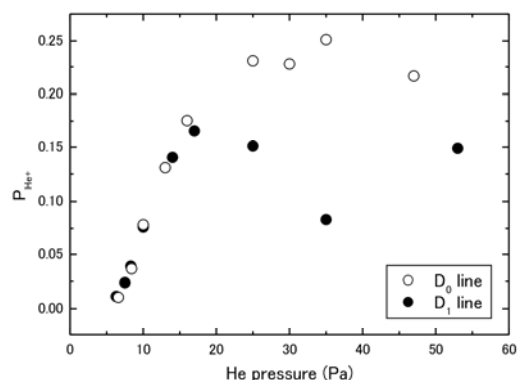


図3 本研究で開発した光ポンピング(D<sub>0</sub>line)及び従来の光ポンピング(D<sub>1</sub>line)によるHe<sup>+</sup>偏極率(P<sub>He<sup>+</sup></sub>)と導入ヘリウムガス圧との関係

これらの結果は、放電中のHe\*密度とHe\*偏極率との間の負の相関を示しており、このことからラディエーショントラッピングによるHe\*の脱偏極が初めて明らかとなった。また、脱偏極のメカニズムとして従来から提唱されてきたHe2<sup>3</sup>PとHeとの衝突によるP準位内でのスピン緩和は、実際には

脱偏極にほとんど寄与しないことも明らかとなった[2]。ラディエーショントラッピングとは、光ポンピングで発生する $2^3P$ の $2^3S$ への緩和に伴う自発放出光を、周囲に存在する $He^*$ が再吸収することで起こる。この自発放出光は全体としては無偏光なので、これを偏極 $He^*$ が吸収すると脱偏極が起こる。したがって、ラディエーショントラッピングを抑制できれば、 $He^*$ 偏極率の改善が期待できる。この抑制の方法として、本研究では1083nm  $D_0$ 線を用いた新しい光ポンピング方法を開発した。これは、 $He^*$ の $D_0$ 線に対する光吸収断面積が、従来の光ポンピングで用いられてきた $D_1$ 線や $D_2$ 線に対するそれに比べて小さいので(無偏光に対しては、それぞれ1/3と1/5)、ラディエーショントラッピングの抑制が期待できるからである。ただし、従来の円偏光のみを用いる方法では、原理的に偏極率の上限は50%となる。この上限を排除するために、円偏光( $\sigma$ ポンピング)と直線偏光( $\pi$ ポンピング)とを組み合わせる光ポンピング方法を考案した。そして、 $He^*$ 偏極率が $0.1Wcm^{-2}$ 程度のポンピング光密度で飽和することを割り出した上で、1083 nm  $D_0$ 線( $\sigma + \pi$ )光ポンピングを実現するための光学系を構築し(図2)、それによって従来比1.5倍以上(25%程度)の偏極率を持つ $He^+$ ビーム発生に成功した(図3)[3]。この結果は、ラディエーショントラッピングが脱偏極の主要な因子であることを支持している。また、この新しい光ポンピング技術の開発過程において、光ポンピングによるイオンビーム電流の増大効果を発見した[4]。この増大効果は、イオンビーム電流やペニングイオン化速度の圧力依存の解析から、 $He2^3P$ による $He^*$ のペニングイオン化によると結論された。また、この解析から、ペニングイオン化/ダイレクトイオン化速度比の圧力依存を初めて明らかにした。

このように開発に成功した偏極 $He^+$ イオン源を用いて、図4に示すSP-ISS装置を構築した[5]。このSP-ISS装置では、排気効率の改善を目的に、全てのレンズ電極をパンチングメタルで製作した。その結果、ビームライン中の残留 $He$ ガスとの相互作用で支配されるビーム電流が、過去に報告のある偏極 $He^+$ イオン源と比べて、一桁以上改善した。さらに、(ビーム偏極率) × (ビーム電流) $^{1/2}$ が最大となるように引き出し電極形状を最適化する、放電管断面をホーン形状として光ポンピング照射光の放電管内での反射を防止することで脱偏極を抑制する、ビームに接する全ての部品を非磁性の銅製とする、等の工夫を施した

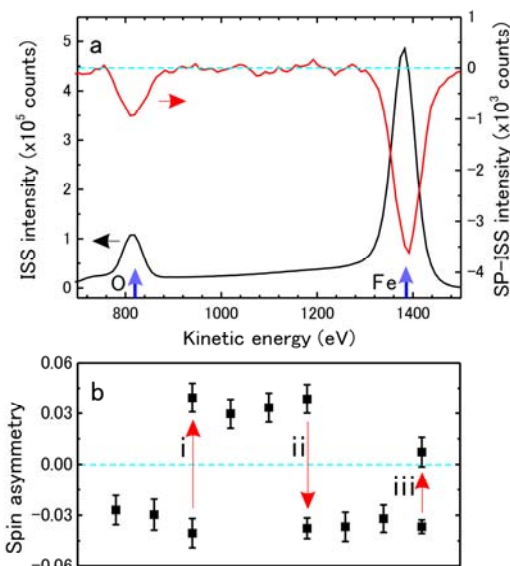
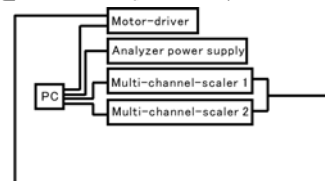


図5(a)O<sub>2</sub>(3L)/Fe(100)のSP-ISSスペクトルと、(b)入射 $He^+$ ビームのスピンを反転し(i,ii)、また光ポンピングをしないで(iii)得られた酸素のスピンス対称率

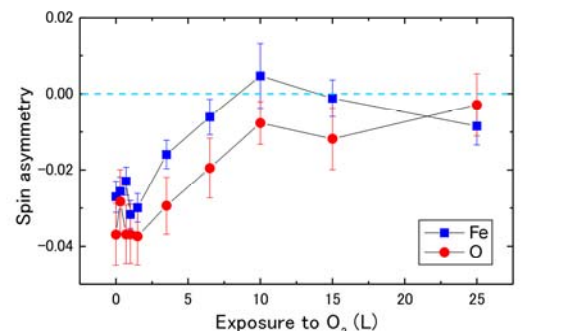


図6 鉄と酸素のスピンス対称率と、Fe(100)表面の酸素雰囲気への暴露量との関係

結果、図5に示すSP-ISSスペクトルの測定に成功した。このスペクトルは、1.7keVの運動エネルギーを持つ偏極He<sup>+</sup>イオンを用いて、Fe(100)単結晶薄膜を3 ラングミュア(L)の酸素雰囲気中に暴露した表面で得られた。入射角と散乱角はそれぞれ、45°と115°である。ISSとSP-ISS強度は、それぞれ、 $I_{\uparrow}+I_{\downarrow}$ と $I_{\uparrow}-I_{\downarrow}$ と定義される。ここで $I_{\uparrow}$  ( $I_{\downarrow}$ )は、試料の多数スピンの平行(反平行)に偏極したHe<sup>+</sup>イオンの散乱強度である。このSP-ISSスペクトルでは、二体衝突エネルギーから計算された鉄と酸素のピーク位置(青矢印)でそれぞれ、散乱イオン強度に明瞭なスピン依存性が観測され、これからイオン散乱のスピン依存性が初めて明らかとなった。更に、酸素の暴露量の関数として鉄と酸素のスピン非対称率を調べた結果(図6)からは、鉄と酸素との間に有意な差が検出され、イオン散乱のスピン依存性が表面の標的原子のスピンを反映していることが明らかとなった[6]。これらの結果は、SP-ISSの元素識別性を示しており、解析の結果、SP-ISSは標的原子のフェルミレベル付近のスピンを検出することが明らかとなった。さらに、SP-ISSの入射角度分解測定を通じてシャドーコーンを利用することにより、表面2~3原子層程度に限定された深さ領域で、原子層を選別したスピン解析の可能性も示された。ただし、SP-ISSの元素識別性や原子層識別性は試料の電子状態に依存すると考えられ、定量測定のためには「イオン中性化のスピン依存」機構の更なる詳細な検討が必要である。

ところで、偏極イオンビームの発生技術開発にはイオンビームそのものの偏極率を評価する手法が不可欠である。しかし、この評価手法は一般には確立されておらず、これが偏極イオンビーム開発の障害となってきた。本研究では、まずStern-Gerlach分析器を用いてHe\*の偏極率を調べておいて、次にHe\*とHe<sup>+</sup>との間で電子スペクトルを比較することによってHe<sup>+</sup>偏極率を評価した[7]。しかし、この評価方法では、偏極率を求めるまでに時間がかかることや試料表面の状態に結果が左右される等問題が多かった。

そこで本研究では、イオンビームのスピン偏極率分析器の実現を目指して、Longitudinal Stern-Gerlach 計測の要素技術となる静電型線形イオントラップを開発した。

静電型線形イオントラップとは、静電ポテンシャルのみを用いてイオンを線形空間に蓄積するイオントラップであり、1997年にイスラエルワイズマン科学研究所のZajfmanとローレンスバークレー国立研究所のBennerによって独立に開発された。その後、質量分析や原子衝突実験への応用を目指して、世界の数グループがこのイオントラップの開発に着手した。これまでに、このイオントラップを利用して1keV以上の運動エネルギーを持つ種々のイオンビームの安定した蓄積が報告されている。これに対し、本研究目的のイオンビーム偏極率計測の実現には、1keV以下の低速イオンビームの蓄積が不可欠である。そこで、①1keV以下の低速イオンを効率よくイオントラップに注入可能な構造とする、②蓄積されたイオンビームそのものを飛行時間法で検出可能な構造とする、の2点を基本方針として、図7に示すイオントラップを開発した。そして、このイオントラップを用い

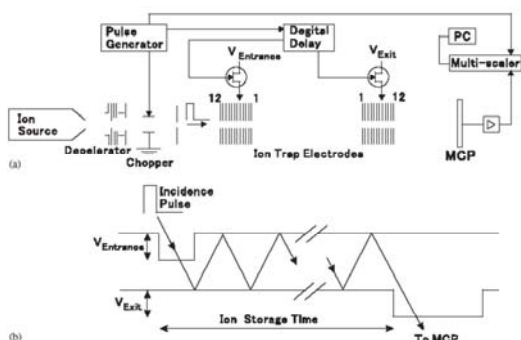


図7 開発した静電型線形イオントラップ

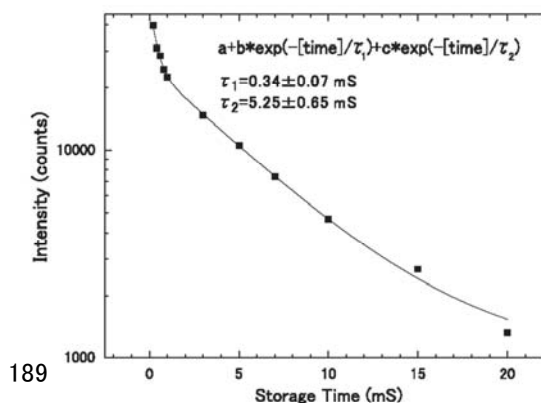


図8 208eV He<sup>+</sup>ビームの静電型線形イオントラップ内の寿命測定

て、200eV程度の低速He<sup>+</sup>ビームに対して 5mS以上の蓄積寿命を初めて達成した(図8)。また、蓄積されたイオンビームを任意の時間にイオントラップから取り出し、これを飛行時間法で測定することにも成功した。この飛行時間測定から、ポテンシャルの動的変化による所謂パルスバンチング現象が、静電型線形イオントラップでは初めて確認された。さらに、蓄積寿命が残留ガスとの衝突で支配されていることを明らかにした[8]。これにより、イオンビームのスピンの偏極率計測の実現に必要な蓄積寿命 50mSを達成する見通しを得た。

#### 参考文献

- [1] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 46 (2007) 3673.
- [2] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* B256 (2007) 451.
- [3] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* A575 (2007) 343.
- [4] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *J. Phys.* B40 (2007) 2817.
- [5] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Ana. Sci.* 24 (2008) 81.
- [6] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Surf. Sci.* 602 (2008) 579.
- [7] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Phys. Rev. A* 77 (2008) 022902.
- [8] T. Suzuki and Y. Yamauchi, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* A562 (2006) 53.

#### 5. 自己評価

本研究の当初の目標は、新しい表面・界面磁気構造分析手法として、SP-ISSを開発することであった。この目標に向けて、まず偏極He<sup>+</sup>ビーム発生 of 技術開発に取り組み、従来比 1.5 倍以上の 25%程度の偏極率を持つHe<sup>+</sup>ビーム発生を実現した。次に、この偏極He<sup>+</sup>イオン源を用いたSP-ISS装置を開発し、これにより当初の目標であったSP-ISS計測に成功した。さらに、このSP-ISS計測から表面の元素選別スピン解析が可能であることを、世界で初めて実証した。また、当初の目標以外の成果として、イオンビームのスピンの偏極率分析を目指した静電線形イオントラップの開発に成功し、200eV程度の低速He<sup>+</sup>イオンビームの蓄積に初めて成功した。

このように本研究では、SP-ISS の開発に成功し、これによる表面・界面の磁気構造分析の可能性を示すことが出来たので、当初の目標は達成出来たと考えている。

SP-ISS を今後、実用レベルの分析手法として確立するには、ビーム偏極率改善による測定感度の向上や、定量分析に向けた「イオン中性化のスピン依存」現象の詳細な理解が必要である。これらを今後の研究の課題としたい。また本研究では、Longitudinal Stern-Gerlach 計測の要素技術として静電型線形イオントラップの開発に成功したので、今後、イオンのスピンの偏極率分析器の実現に向けた研究も併せて推進したい。

#### 6. 研究総括の見解

イオン中性化のスピン依存という物理現象に着目して、表面・界面のスピン配列を調べる独創的なスピン偏極イオン散乱分光計測システムの開発に挑戦した。主たる成果は次の 2 点である。

①ヘリウム励起過程におけるラディエーショントラッピング現象を解明し、円偏光と直線偏光を最適化したポンピング法によりHe<sup>+</sup>偏極率 25%を達成した。

②上記高偏極率 $\text{He}^+$ を用いて、表面から2~3原子層の元素の識別とそのスピン状態の計測に成功した。

スピン偏極ビームの脱励起や中性化の基本的メカニズムを解明し、目的達成に必要な全要素の技術開発を計画的に実施し、スピン偏極イオン散乱分光計測法を完成させ、その測定例を示したことは極めて高く評価できる。また、スピン偏極率分析計の開発のために静電型イオントラップの開発にも成功した。

研究成果は16篇の原著論文にまとめられている。この研究成果に基づく特許4件を出願している。

今後、偏極率向上を主とする装置面の改良を行い、本開発の計測法が表面磁気構造研究への応用が更に進展すると考える。既存の分析手法では不可能な表面・界面のスピン配列解析を可能にし、スピントロニクス等の電子スピン応用技術の進展に寄与することが強く期待される。

## 7. 主な論文等

### (A)さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

#### (1)論文(原著論文)発表

##### 論文(国際)

- ・鈴木拓、山内泰 “Development of spin-polarized ion scattering spectroscopy”, Ana. Sci. 24 (2008) 81.
- ・鈴木拓、山内泰 “Spin polarized ion scattering spectroscopy as a novel analytical method of magnetic structure at outermost surfaces”, Surf. Sci. 602 (2008) 579.
- ・鈴木拓、山内泰 “Determination of spin polarization of a  $^4\text{He}^+$  ion beam”, Phys. Rev. A 77 (2008) 022902
- ・鈴木拓、山内泰 “Generation of polarized  $^4\text{He}^+$  ion beam by optical pumping using circularly and linearly polarized radiation tuned to D0 line (He metastables  $2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_0$ )”, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A 575 (2007) 343.
- ・鈴木拓、山内泰 “Current enhancement of a  $\text{He}^+$  ion beam by optical pumping”, J. Phys. B 40 (2007) 2817.

#### (2)特許出願

発明者:鈴木拓、山内泰

発明の名称:イオンビーム発生方法とそれを実施するためのイオンビーム発生装置

出願人:独立行政法人物質・材料研究機構

出願日:2006.11.29(未公開)

出願番号:特願2006-321053

発明者:鈴木拓、山内泰

発明の名称: 偏極イオンビーム発生方法とその実施に使用する偏極イオンビーム発生装置

出願人: 独立行政法人物質・材料研究機構

出願日: 2006.11.29(未公開)

出願番号: 特願 2006-321044

発明者: 鈴木 拓、山内 泰

発明の名称: 磁気構造解析方法とそれに使用するスピン偏極イオン散乱分光装置

出願人: 独立行政法人物質・材料研究機構

出願日: 2007.7.23(未公開)

出願番号: 特願 2007-190277

発明者: 鈴木 拓、山内 泰

発明の名称: スピン偏極イオンビーム発生装置及びそれを用いたスピン偏極イオン散乱分光装置並びにスピン偏極イオンビームを用いた試料加工装置

出願人: 科学技術振興機構

出願日: 2007.11.29(未公開)

出願番号: PCT / JP2007 / 73121

### (3) 学会発表

#### 口頭発表(国際)

・ 鈴木拓、“Development of spin-polarized ion scattering spectroscopy”、18th International Conference on Ion Beam Analysis、2007

#### ポスター発表(国際)

・ 鈴木拓、“Spin-polarized ion scattering spectroscopy as a new analytical tool of surface and interface magnetism”、Atomic Level Characterizations、2007

・ 鈴木拓、山内泰、“Generation of polarized 4He<sup>+</sup> ion beam by optical pumping using circularly and linearly polarized radiation tuned to D0 line”、12th international conference on ion sources、2007

・ 鈴木拓、山内泰、“Development of electron-spin-polarized 4He<sup>+</sup> ion source and application to spin-polarized ion neutralization spectroscopy”、International conference of atomic collision in solids、2006

### (B) その他の主な成果

なし