スピン偏極陽電子を使った物質材料研究について

原子カ機構・スピン偏極陽電子ビーム研究グループ 河裾厚男

ここでは、なぜいき、スピン偏極陽電子なのかについて解説します

陽電子消滅法は、主に陽電子と電子の対消滅過程の観測を通じて

●結晶中の原子空孔や高分子中の自由体積など「孔」を検出 ●金属のフェルミ面やバンド構造を研究

するための手法として伝統的に利用されています。

ところで、次ページに示すように、陽電子と電子の対消滅様式は相対的なスピン方向によって異なることが分かっています。

ちなみに陽電子と電子のスピンは同じ(磁気モーメントは反対)です。

陽電子 :スピン角運動量と磁気モーメントは平行

電子 :スピン角運動量と磁気モーメント反平行

※スピンと磁気モーメントの向きを明確に定義しておかないと混乱を招きます。

スピンに依存した陽電子-電子対消滅

陽電子スピンを⇒、電子スピンを→で表します。陽電子と電子の対には、合成スピンSと磁気量子数mに応じて次の4つの状態があります。

 $\mathbf{S=0,m=0} |00\rangle = |\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle \qquad \mathbf{S=1,m=0,\pm 1} |10\rangle = |\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle \quad |11\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \quad |1-1\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle$

対消滅ガンマ線の本数nは、陽電子-電子対のCP保存則により定まります。 (-1)^S = (-1)ⁿ S=0 \rightarrow 2, 4, 6··· S=1 \rightarrow 1, 3, 5··· $t_{\text{Elosive}}^{\text{tricl, 1光子消滅 link}}$



三光子消滅 エネルギー 0~511keV連続 断面積



0~511keV continuous

なお、四光子以上の消滅断面積はさらに小さいため観測が非常に難しく、物性研究に利用できるかは不明です。

このように、陽電子と電子の消滅様式はスピンの向きによって異なるので、 双方のスピンが偏極している場合には次のようなことが起こります。



陽電子と電子の自由消滅を観測します



測定される電子運動量分布や消滅寿 命がスピン反転に対して非対称性を示 します。

 $N_{+}(p) - N_{-}(p) \neq 0$ $L_{+}(t) - L_{-}(t) \neq 0$

強磁性体表面にスピン偏極した 陽電子を打ち込んだ場合

孤立した陽電子-電子結合状態(Ps)を観測します



使ってホントロニワムニ光子消滅確率か
スピン反転に対して非対称性を示します。

 $F_{P_s}^{3\gamma}(+) - F_{P_s}^{3\gamma}(-) \neq 0$

これらより、スピン偏極陽電子を使うと電子スピンに関する知見を得ることができます。特に最表面や原子空孔などについては、際立った情報が得られます。

実はスピン偏極陽電子を用いた強磁性体の研究は、陽電子の予言(ディラック)、 発見(アンダーソン)、ベータ崩壊におけるパリティ非保存の発見(ヤン・リー、ウ) の直ぐ後から色々な国で始められていました。



しかし1980年以後、スピン偏極陽電子を用いたスピン物性の研究は殆ど行われず、いつしか忘れられた感さえありました。理由はよく分かりません。

スピントロニクスとスピン偏極陽電子

現在、スピントロニクスの発展とともに、電子スピンに絡む新しい現象や物質が次々 に発見されています。それらを観るツールとしてのスピン偏極陽電子の復刻と、さら に新しい手法の開発は大きなインセンティブを感じさせるテーマです。



スピン偏極陽電子を得る方法

弱い相互作用におけるパリティ非保存のため、β崩壊に伴う電子や陽電子は 進行方向にスピン偏極しています。従ってβ線源を使えば、そのままでスピ ン偏極の実験ができます。他方、偏極ガンマ線による対生成からスピン偏 極陽電子を生成する方法もあります。これには大型の加速器施設が必要に なりますが、高強度・高偏極という観点から魅力的です。





陽電子のスピン偏極率はその速度を光速で割った値になります。β崩壊では陽 子、陽電子、ニュートリノが関与するために陽電子のエネルギー分布は、上の図 のように連続分布となります(☞詳しくは解説)。例えば²²Naの場合の平均偏極率 は70%、⁶⁸Ge/⁶⁸Gaでは94%となります。なので、高エネルギーの陽電子を放出する 線源を得ることが、高スピン偏極陽電子実験の一つの方策になります。

陽電子のスピン偏極率とエネルギーの関係

	半減期	E _{max} / MeV	<e> / MeV</e>	<v>/C</v>
¹⁸ F	110分	0.633	0.21	0.71
²² Na	2.6年	0.545	0.20	0.70
²⁶ AI	740000年	1.17		0.82
²⁷ Si	4.2秒	3.79	2.6	0.99
⁴⁴ Ti- ⁴⁴ Sc	49年	1.47	0.45	0.85
⁶⁴ Cu	12.7時間	0.653	0.27	0.76
⁵⁸ Co	70.8日	0.475	0.19	0.68
⁶⁸ Ge- ⁶⁸ Ga	271日	1.90	0.99	0.94

上の表は色々な陽電子線源の特性を示しています。平均偏極率は一番右の列 <v>/cになります。例えば²⁷Siのスピン偏極率はほぼ100%ですが、半減期が短い ので、オンライン利用できる加速器が必要になります。²⁶AIや⁴⁴Ti-⁴⁴Scはスピン偏 極率・半減期ともに魅力的ですが、核反応による生成断面積が非常に小さく高強 度化に難点があります。私たちは、市販の²²Nalに加えて、そこそこの半減期とスピ ン偏極率をもつ⁶⁸Ge-⁶⁸Gaを製造して使っています。ところで、94%の偏極率は線 源から出てくるものの値ですが、実際には放出角度や、ビーム形成のための減速 材などによって減偏極してしまします(☞詳しくは解説)。

陽電子線源と陽電子ビーム装置の例(筆者ら)



強磁性体中でのスピン偏極陽電子消滅

ここではスピン偏極陽電子が強磁性体電子と対消滅する場合について考えます。 アップ・ダウンスピン(↑,↓)の陽電子がアップ・ダウンスピン(↑,↓)の電子とS=0また はS=1状態に至り消滅するときの消滅速度は以下の様になります。

アップスピン
陽電子S=0S=1, M_S=0S=1, M_S=1
$$\lambda_i^{\uparrow 2\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_s w_i^{\downarrow}$$
 $\lambda_i^{\uparrow 3\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_T w_i^{\downarrow}$ $\lambda_T w_i^{\uparrow}$ $\lambda_T w_i^{\uparrow}$ 協電子S=0S=1, M_S=0S=1, M_S=-1ダウンスピン
陽電子 $\lambda_i^{\Downarrow 2\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_S w_i^{\uparrow}$ $\lambda_i^{\Downarrow 3\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_T w_i^{\uparrow}$ $\lambda_T w_i^{\uparrow}$ ダウンスピン
陽電子 $\lambda_i^{\Downarrow 2\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_S w_i^{\uparrow}$ $\lambda_i^{\Downarrow 3\gamma} = \frac{1}{2} \lambda_T w_i^{\uparrow}$ $\lambda_T w_i^{\downarrow}$

ただし $\lambda_{s}=4\pi r_{e}^{2}c(r_{e}:古典電子半径、c:光速), \lambda_{T}=\lambda_{s}/1115, w_{i}^{\uparrow(\downarrow)}$ はi番目のバン ドのアップ(ダウン)スピン電子と陽電子の波動関数の重なり: $w_{i}^{\downarrow(\uparrow)} = \int_{-\infty}^{+\infty} N_{i}^{\uparrow(\downarrow)}(p_{z})dp_{z}$ 従って、アップ・ダウンスピンの陽電子の全消滅速度(寿命の逆数)は次のようになります。 $\lambda^{\uparrow(\downarrow)} = \frac{1}{2}\sum_{i}^{\infty} [\lambda_{s}w_{i}^{\downarrow(\uparrow)} + \lambda_{T}(w_{i}^{\downarrow(\uparrow)} + 2w_{i}^{\uparrow(\downarrow)})]$

$$L_{+(-)}(t) = \frac{\lambda_s}{4} \sum_{i=1}^{occ.} \left[w_i^{\downarrow}(1 \pm P) \exp(-\lambda^{\uparrow} t) + w_i^{\uparrow}(1 \mp P) \exp(-\lambda^{\downarrow} t) \right]$$

即ち、強磁性体中の消滅寿命には ニ成分あり、多数スピンと少数スピン の数が違うことに起因している。

強磁性体中でのスピン偏極陽電子消滅

i-thバンドの運動量密度 $\rho_i^{\downarrow(\uparrow)}(\boldsymbol{p}) = \left| \int e^{-i\boldsymbol{p}\boldsymbol{r}} \boldsymbol{\Psi}_+(\boldsymbol{r}) \boldsymbol{\Psi}_i^{\downarrow(\uparrow)}(\boldsymbol{r}) \sqrt{\gamma(n_-(\boldsymbol{r}))} d\boldsymbol{r} \right|^2$ i-thバンドの電子運動量分布 $N_i^{\downarrow(\uparrow)}(p_z) = \iint \rho_i^{\downarrow(\uparrow)}(\boldsymbol{p}) dp_x dp_y$

正磁場・負磁場の電子運動量分布

$$N_{+(-)}(p_z) = \frac{\lambda_s}{4} \sum_{i=1}^{occ.} \left[\frac{(1\pm P)N_i^{\downarrow}(p_z)}{\lambda^{\uparrow}} + \frac{(1\mp P)N_i^{\uparrow}(p_z)}{\lambda^{\downarrow}} \right]$$

これらの差分

$$\Delta N = N_+(p_z) - N_-(p_z) = \frac{\lambda_s P}{2} \sum_{i=1}^{occ.} \left[\frac{N_i^{\downarrow}(p_z)}{\lambda^{\uparrow}} - \frac{N_i^{\uparrow}(p_z)}{\lambda^{\downarrow}} \right]$$

これらの和

$$\Sigma N = N_+(p_z) + N_-(p_z) = \frac{\lambda_s}{2} \sum_{i=1}^{occ.} \left[\frac{N_i^{\downarrow}(p_z)}{\lambda^{\uparrow}} + \frac{N_i^{\uparrow}(p_z)}{\lambda^{\downarrow}} \right]$$

多数スピン電子と少数スピン電子の運動量分布の差分は以下の様に得られます。

単なる差分△Nでも強磁性効果は分かりますが、こちらの方がバンド構造との比較がより明確になります。これにはスピン依存した消滅寿命を決めて、このように再規格化することが必要です。

Berkoらはこれが三光子消滅強度の磁場反転に等しいとしています。

強磁性体中でのスピン偏極陽電子消滅

正負磁場中で電子運動量分布の差分(スピン依存消滅寿命による再規格化なし)



化と同じ傾向

強磁性体中でのスピン偏極陽電子消滅

スピン依存消滅寿命による電子運動量分布の再規格化:Fe, Co, Niのλ^{↑(4)}の場合

$$\lambda^{\uparrow(\downarrow)} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{occ.} \left[\lambda_S w_i^{\downarrow(\uparrow)} + \lambda_T (w_i^{\downarrow(\uparrow)} + 2w_i^{\uparrow(\downarrow)}) \right]$$

の括弧内第一項は二光子消滅、第二項は三光子消滅に対応しています。陽電子が偏極していないとして、多数(少数)スピン電子との二光子消滅速度を $\lambda_{mai(min)}$ とおくと以下になります。

$$\lambda^{\uparrow(\downarrow)} = \lambda_{maj(\min)} + (\lambda_{maj(\min)} + \lambda_{\min(maj)})/1115$$

正負磁場中の二光子消滅スペクトルで観測される消滅速度は以下の様になります。

$$\lambda_{\pm} = \frac{1 \pm P_{\pm}}{2} \lambda_{maj} + \frac{1 \mp P_{\pm}}{2} \lambda_{mi}$$

このように二光子消滅測定から $\lambda_{maj(min)}$ 、故に $\lambda^{\uparrow(\downarrow)}$ が分かります。

実際に得られた入意の実験値と理論値の比較

	Fe		Со		Ni	
	$1/\lambda^{\Downarrow}$	$1/\lambda^{\uparrow}$	1/λ [↓]	$1/\lambda^{\uparrow}$	1/λ [↓]	$1/\lambda^{\uparrow}$
実験	109ps	120ps	100ps	114ps	106ps	100ps
理論	95ps	107ps	95ps	98ps	101ps	97ps

理論は金沢大斎藤先生

強磁性体中でのスピン偏極陽電子消滅

鉄単結晶についてスピン依存消滅 寿命により再規格化した電子運動 量分布の正負磁場の差分



実験(O)とバンド理論(線)は良く一致 ⇒理論の検証となっている 左と同じデータについて約40年前 に決定されたP^{3γ}を使って再規格化 した電子運動量分布の差分

左のバンド理論と一致していない ⇒理論の検証となっていない

スピン1重項|00>は二光子消滅、スピン3重項|10>, |11>, |1-1>は三光子消滅します。 二光子消滅は、試料内部の自由消滅と区別が難しいので三光子消滅を利用します。 ガンマ線の異方性を考慮すると三光子消滅強度は以下の様になります。

$$F_{Ps}^{3\gamma} = \varepsilon(1)(F_{|11\rangle} + F_{|1-1\rangle}) + \varepsilon(0)F_{|10\rangle}$$

 $\epsilon(1,0)$ はm=±1と0のPsからの消滅ガンマ線の検出効率です。

消滅ガンマ線エネルギースペクトルにおいて511keV以下のスペクトルの強度をR値とすると、Ps生成がない場合のR₀からの差△R (図の灰色の部分)がポジトロニウム 三光子消滅強度になり、そのスピン反転Aが表面電子のスピン偏極率を与えます。

左の図のように面内に磁化させた強磁性体 にスピン偏極陽電子を打ち込み、磁化の向き を変えてポジトロニウムの三光子消滅を測定 すると、両者に差が見られ、表のようにスピン 偏極率が得られます。マイナスの符号は多数 スピン電子が優勢であることを示しています。 他方、得られたスピン偏極率は磁性体内部 (30-50%)よりも相当に低い値です。

これはポジトロニウムがスピン偏極率の低い 金属最外層で形成されることに起因しており、 実際に理論的に説明することができます

今度は全く同じ方法で、金属表面の電流誘起ス ピン蓄積効果の測定を行った結果を示します。 近年、巨大なスピンホール効果やラシュバ効果、 トポロジカル絶縁体などの表面スピン偏極系が 見つかっています。4d,5d遷移金属は特に強い スピンホール系として知られています。

Pd

Pt

Ag

Au

電流方向を交互に入れ 替えてポジトロニウムの 三光子消滅強度を計る と左図に示す通り、Au とCu以外の場合には振 動が現れることが分か ります。また、振動方向 (及びスピン偏極率)が 逆転することがわかりま す。これはスピン軌道相 互作用の予測と一致す る結果です。

さらに、陽電子のスピンと電流方向の角度を変えながらスピン偏極率を求めると、陽電子スピンが電流と垂直の場合に電子のスピン偏極率が最大になることが知られます。

このことは電子スピンが電流に対して垂直に偏極して いることを示しています。

その結果、BiとAgの最外層で逆のスピンが蓄積が 蓄積され、膜厚とともに指数関数的に減衰するこ とがわかります。これはBi-Agの界面で発生したス ピン偏極が膜中を拡散して表面に現れたためと言 えます。実際得られたスピン拡散長は別の実験で 得られていた値と良く一致しています。

Diffusion length Bi ~ 2 nm Ag ~330 nm

Consistent with previous values. e.g., APL.101(2012)042403.

以上簡単ですが、スピン偏極陽電子を用いたスピン物性の研究について紹介しました。陽電子を用いた分析ツールは各種ありますが、そこにスピンと言う自由度を付加 することで新しい分析ツールとして生まれ変わり、陽電子の分析ツールとしての可能 性を広げることができるかも知れません。以下はその一例として考え得るものです。

普通の陽電子消滅法	スピン偏極陽電子消滅法
原子空孔、バンド構造、析出異相	偏極バンド構造、強磁性誘起原子空孔・析出異相
ポジトロニウム飛行時間測定法	スピン偏極ポジトロニウム飛行時間測定法
表面電子状態	スピン偏極表面電子状態
陽電子/ポジトロニウム回折	スピン偏極陽電子/ポジトロニウム回折法
表面構造	表面構造+表面磁性
陽電子誘起二次電子分光	陽電子スピン偏極二次電子分光
電子状態	表面スピン偏極、磁性ドメイン
陽電子誘起オージェ電子分光	陽電子誘起 スピン偏極オージェ電子分光
組成分析	元素スピン分析

このような新規開発を進めるためには、当然ですが、もっと陽電子に関する物理を洞察して行く必要があります。例として最後にスピン偏極Ps飛行時間測定に触れます。

分析ツールとしての発展性~Ps飛行時間測定を例に~

先ほど最表面におけるポジトロニウムを通じたスピン偏極測定の事例を紹介しました。表面ポジトロニウムに付随する情報について、もう少し考えてみます。ポジトロニウムは水素原子様の結合状態で、6. 8eVという結合エネルギーを持っています。これに陽電子と電子の仕事関数を足したものがポジトロニウムの仕事関数となり、通常、負値となります。このため真空へ飛び出したポジトロニウムは有限の運動エネルギーを持ちます。

Relationship between DOS and Ps TOF spectrum

Ps TOF spectrum=Positron-weighted DOS

最大運動エネルギーはフェル ミ面上の電子がポジトロニウム 形成に与る場合で、それよりも 深い位置にある電子がポジトロ ニウム形成に与る場合は、運 動エネルギーはこれより小さく なります。フェルミ面からポジト ロニウム仕事関数分だけ深い 位置にある電子がポジトロニウ ム形成に与る場合は、運動エ ネルギーはゼロとなります。

つまり、左に示すように、ポジ トロニウムの運動エネルギー分 布(通常、飛行時間測定により 得られる)は、ポジトロニウム形 成に与る電子と陽電子の状態 密度(陽電子で重みづけされた 電子状態密度)となります。

分析ツールとしての発展性~Ps飛行時間測定を例に~

以上をまとめると、最も単純なポジトロニウム飛行時間測定は、表面電状態密度に関する情報与えます。 もし、ポジトロニウムの角度分解測定が可能になると、それに加えてバンド分散に関する知見が得られる 可能性があります。さらに、スピン偏極陽電子を使えば、表面電子のスピン偏極状態密度に関する情報を 引き出すことができると考えられます。これは電子エネルギー準位毎にスピン偏極率を決定することがで きるので、電流誘起スピン蓄積効果の観測などには極めて有用と考えられます。

Simplest Ps TOF measurement • Electron density of states

Angle-resolved Ps TOF measurement Band dispersion

Spin-polarization of positrons Spin-polarized density of states $P(E) = \frac{D^{\uparrow}(E) - D^{\downarrow}(E)}{D^{\uparrow}(E) + D^{\downarrow}(E)}$