

特集 陽電子を用いた物質・材料研究の最前線と展望

スピン偏極陽電子ビームの 応用研究

河裾 厚男*

【キーワード】

スピン偏極陽電子ビーム、先端材料(スピントロニクス材料)

1. はじめに

β^+ 崩壊時に放出される電子ニュートリノのスピンの運動方向とは逆向きであるため、陽電子のスピンはその運動方向に偏っている。このことを「陽電子は縦スピン偏極している」という^{1)~3)}。他方、陽電子と電子のスピンの反平行の場合、二光子消滅が高い確率で起こるが、平行の場合は三光子消滅しか起こり得ない。このように陽電子のスピンの偏極性と、陽電子-電子対消滅のスピンの依存性を使うことで、物質中の電子スピンに関する知見を得ることができる。

近年、電子の電荷とスピンを活用することで、省電力かつ高速動作可能なデバイスの創出を目指すスピントロニクスという学問分野が生まれた。ハードディスク容量の飛躍的向上をもたらした巨大磁気抵抗やトンネル磁気抵抗は、その代表的成果として知られている。磁気ヘッドや磁気メモリへの応用から、大きな磁気抵抗を生じるハーフメタル物質や、電場や光により強磁性状態を制御できる磁性半導体に加えて、非磁性体でありながら表面にスピン偏極を生じるスピンホール効果・ラッシュバ効果、トポロジカル絶縁体、原子空孔誘起の強磁性などの新しい物質や現象にも注目が集まっている。さらなる現象の理解や物質探索のため、新しい評価技術も望まれている。

陽電子には、原子空孔や表面に対する高い感

度、薄膜・界面の深さプロファイリングができるという特徴に加えて、電子スピンに対する感度も備わっている。筆者らは、このような点に着目して、スピン偏極陽電子ビームの開発とその応用研究を進めている。本稿では、強磁性バンド構造と金属表面の電流誘起スピン偏極の研究について平易に紹介する。より詳しい邦文の解説については、他稿を参照して頂きたい⁴⁾。

2. スピン偏極陽電子ビーム

線源から放出される陽電子の平均の縦偏極率は、 $\langle v \rangle / c$ である。ここで、 v は陽電子の速度、 c は光速である。より強くスピン偏極した陽電子を得るためには、より高速の陽電子を放出する線源を使うことが重要である。

筆者らは市販の ^{22}Na ($\langle v \rangle / c = 0.7$)に加えて、イオン照射により ^{68}Ge 線源 ($\langle v \rangle / c = 0.9$)を製造し、図-1(a)~(b)に示すように利用している。図-1(a)では、磁場中に ^{68}Ge 線源と試料をおき、陽電子を直接試料に打込み消滅ガンマ線のドップラー拡がりスペクトルを計測する。これはバルク磁性体などの研究に適している。実測によるスピン偏極率は65%である。図-1(b)では、 ^{22}Na 線源と減速材を用いて、縦偏極陽電子ビームを形成する。これを磁場中で垂直磁化させた試料に打ち込み、消滅ガンマ線のドップラー拡がりスペクトルを計測する。この方法は薄膜磁性体などの研究に適している。実測によるスピン偏極率は27%である。図-1(c)では、 ^{68}Ge 線源または ^{22}Na 線源と減速材により陽電子ビームを形成する。これを静電偏向

* 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター 先端機能材料創製研究ディビジョン スピン偏極陽電子ビーム研究グループ Atsuo Kawasuso

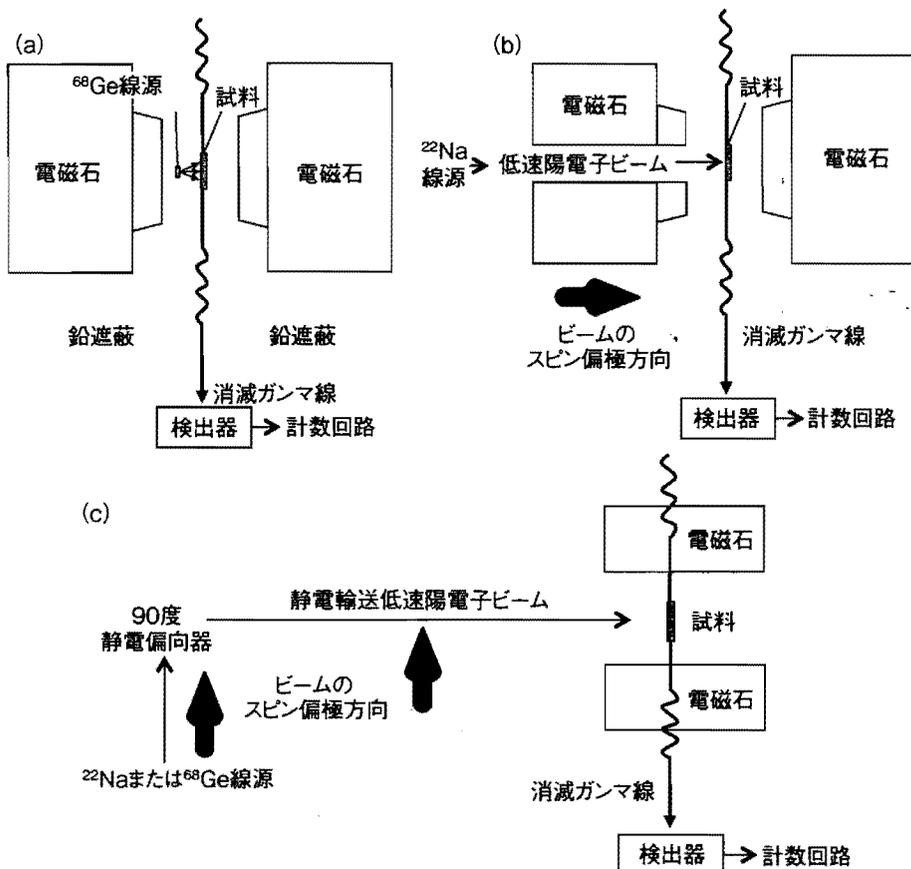


図-1 各種のスピン偏極陽電子消滅計測の方法。(a)磁場中におかれた ^{68}Ge 線源から放出される高エネルギー陽電子(最大1.9MeV)を試料に直接打ち込む。(b) ^{22}Na 線源から放出された陽電子を減速材で単色化して低エネルギービーム(1~15keV)を形成し、磁場中におかれた試料に打ち込む。(c) ^{68}Ge または ^{22}Na 線源から放出された陽電子を減速材で単色化して低エネルギービームを形成し、その軌道を90度偏向した後に試料に打ち込む。スピン偏極方向は、(a)と(b)の場合はビーム進行方向と同じ(縦スピン偏極)、(c)の場合はビーム進行方向に垂直な向き(横スピン偏極)である。消滅ガンマ線はドップラー拡がり法により計測する。

器により90°曲げた後に試料に打ち込み、消滅ガンマ線を計測する。この場合、陽電子の運動方向に対して、スピン偏極方向は垂直(横スピン偏極)となる。これは薄膜・表面の面内磁化やスピン偏極の研究に利用される。実測によるスピン偏極率は、47%(^{68}Ge 線源)と30%(^{22}Na 線源)である。上の陽電子ビームの偏極率が、線源から出てくる陽電子の平均の偏極率 $\langle v \rangle / c$ よりも低くなっているのは、放出立体角による平均化や単色化過程における減偏極のためである。

3. スピン偏極陽電子ビームの応用例

3-1. 強磁性体のスピン偏極電子運動量分布

強磁性体にスピン偏極陽電子を打ち込み消滅ガンマ線のドップラー拡がり測定すると、スピン偏極した電子運動量分布、即ち、多数スピンバンド

と少数スピンバンドの電子運動量分布の差分、が得られる。図-2は、筆者らが得た多結晶Fe、Co、Ni、及び、Gdに対するスピン偏極電子運動量分布である。図中の曲線は、第1原理バンド計算によるものである。実験値と理論値は非常に良く一致している。これは、理論的な強磁性バンド構造が非常に高い精度で計算されていることを示している。スピン偏極電子運動量分布は、強磁性バンド構造の研究に有用である。

そこで次に、ホイスラー合金のスピン偏極電子運動量分布に関する結果を示す。ホイスラー合金とは、ドイツの冶金学者Heuslerに因んだ三元合金である。その中には、フェルミ面近傍のスピン偏極率が100%になるものがあると考えられている。これは、フェルミ面近傍において、多数スピンバンドまたは少数スピンバンドのどちらかしか

状態を持たないものであり、ハーフメタルと呼ばれる。ハーフメタルを使うと、トンネル磁気抵抗を増大させることができるため、高いハーフメタル性を持つ物質の探索研究が精力的に行われている⁵⁾。

以下では代表的なホイスラー合金として Co_2MnSi (CMS)と Co_2MnAl (CMA)を取り上げる。これらはフルホイスラー合金と呼ばれ、BCC構造の立方体頂点にCoが、体心位置にMnとSi (またはAl)が交互に配置したものである。規則的な構造を $L2_1$ 、MnとSi (またはAl)が無秩序に混ざった構造をB2と呼ぶ。適当な熱処理により、CMSでは $L2_1$ 構造の比率が増すが、CMAの場合にはB2構造が優勢である。CMSの方が高いハーフメタル性を示すことが知られており、その原因の一つとして結晶規則化度が挙げられている。図-3は、アーク溶解後に 800°C で熱処理したCMSとCMAについて得られたスピン偏極電子運動量分布である。X線回折測定の結果、CMSは $L2_1$ 構造とB2構造の混在、CMAはほぼ完全なB2構造であった。CMSでは $p=0 \times 10^{-3} m_0 c$ と $p=10 \times 10^{-3} m_0 c$ の付近に山があるが、CMAでは $p=0 \times 10^{-3} m_0 c$ の強度が失われている。これは、CMSがより規則化度の高い $L2_1$ 構造にあるのに対して、CMAが規則化度の低いB2構造にあるためであるかという、以下で述べるように実はそうではない。

図-3の黒の実線は、図-4に示す $L2_1$ 構造を仮定した第1原理バンド計算から得られたバンド毎のスピン偏極電子運動量分布である。細線と破線はそれぞれ正と負のスピン偏極を示している。極太実線は、それらの総和である。CMS ($L2_1 + B2$)・CMA (B2) どちらの実験結果も理論計算と良く合っている。このことは、B2構造であっても、そのバンド構造は $L2_1$ 構造のものと同通っていることを示唆している。実際、図-3に示すB2構造を仮定したスピン偏極電子運動量分布(中太実線)は $L2_1$ 構造のそれと殆ど同じである。CMSに現れる $p=0 \times 10^{-3} m_0 c$ と $p=10 \times 10^{-3} m_0 c$ の付近の山は、それぞれ比較的幅の狭いsp的な分散を持つ第17~19バンドと幅の広いd的な分散を持つ第13~16バンドが正にスピン偏極しており、負にスピン偏極したその他のバンド(破線)の強度を上回っているためである。これに対してCMAでは、d的分散の第13~16バンドについてはCMS

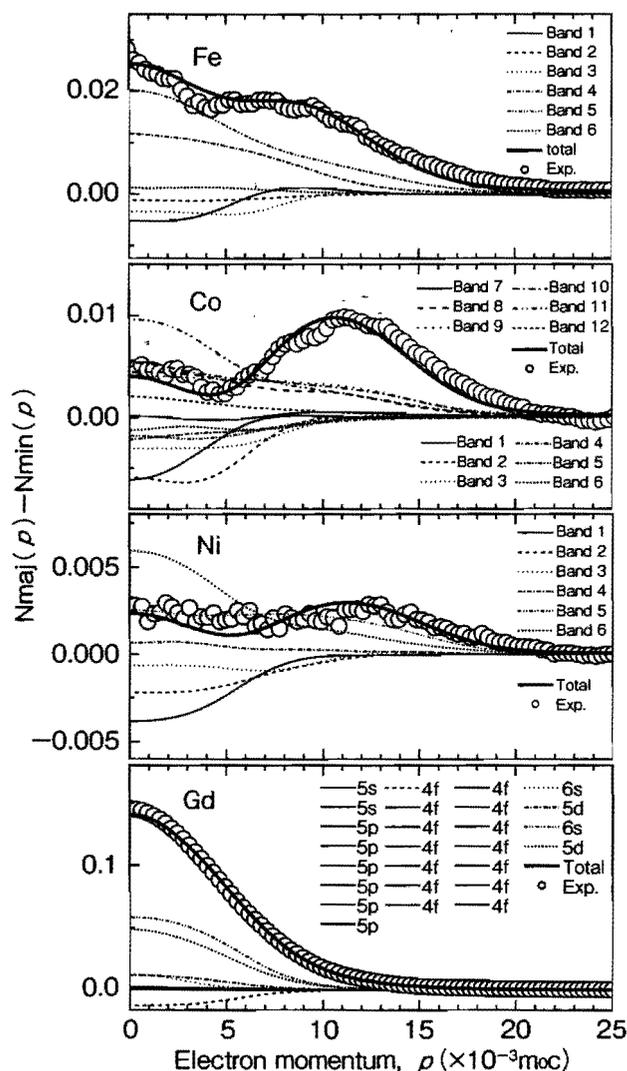


図-2 白抜き丸は、Fe、Co、Ni、Gd多結晶に対して得られたスピン偏極電子運動量分布(多数及び少数スピンバンド間の電子運動量分布の差分)。図中の曲線は第1原理バンド計算により得られたものである。

と同様であるが、sp的な第17~19バンドの状態が殆どないために、その他の負にスピン偏極したバンドの寄与を上回れず、 $p=0 \times 10^{-3} m_0 c$ 付近に谷が生ずる。ところで、図-4の計算は、CMSの方がCMAよりも高いハーフメタル性を持つ可能性を示唆している。以上を総括すると、図-3での実験と理論の一致はCMSが高いハーフメタル性を持つこと、 $L2_1$ からB2への不規則化がハーフメタル性を著しく損なう原因とはならないこと、が結論できる。

このように、CMSは高いハーフメタル性を持つにも関わらず、これまで報告されているフェルミ面のスピン偏極率は50%程度に留まり、トンネル磁

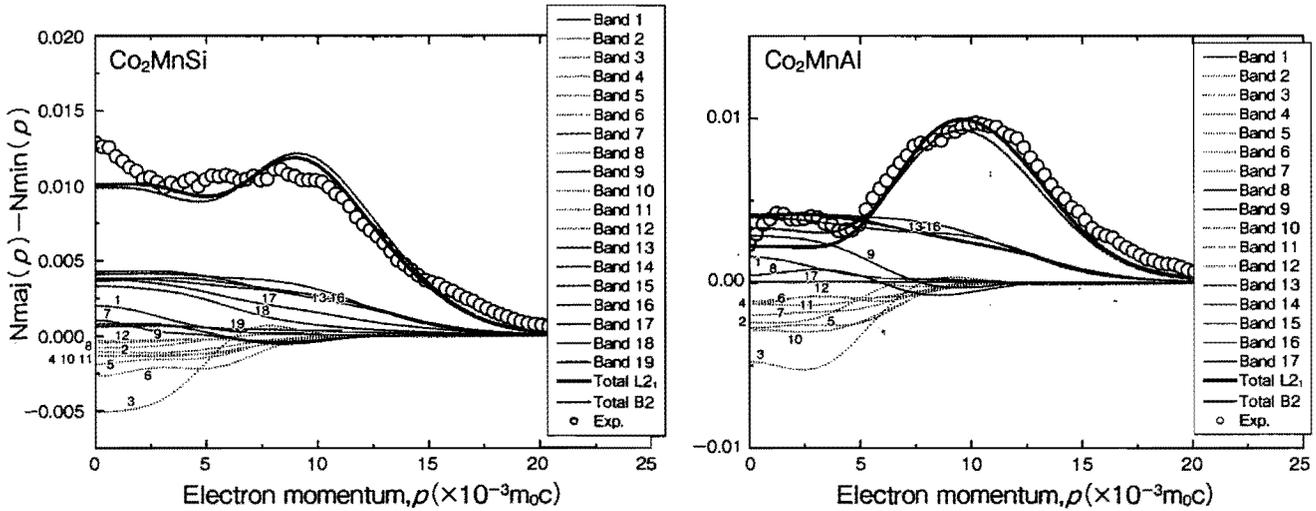


図-3 アーク溶解後800°Cで熱処理した多結晶Co₂MnSiとCo₂MnAlに対して得られたスピン偏極電子運動量分布(多数及び少数スピンバンドの電子運動量分布の差分)。図中の極太実線はL2₁構造を仮定した第1原理バンド計算から得られたもの(図-4)である。細線と破線は各バンド(図-4の番号に対応)からの寄与であり、それぞれ正・負のスピン偏極を示している。中太実線はB2構造を仮定した全体曲線である。

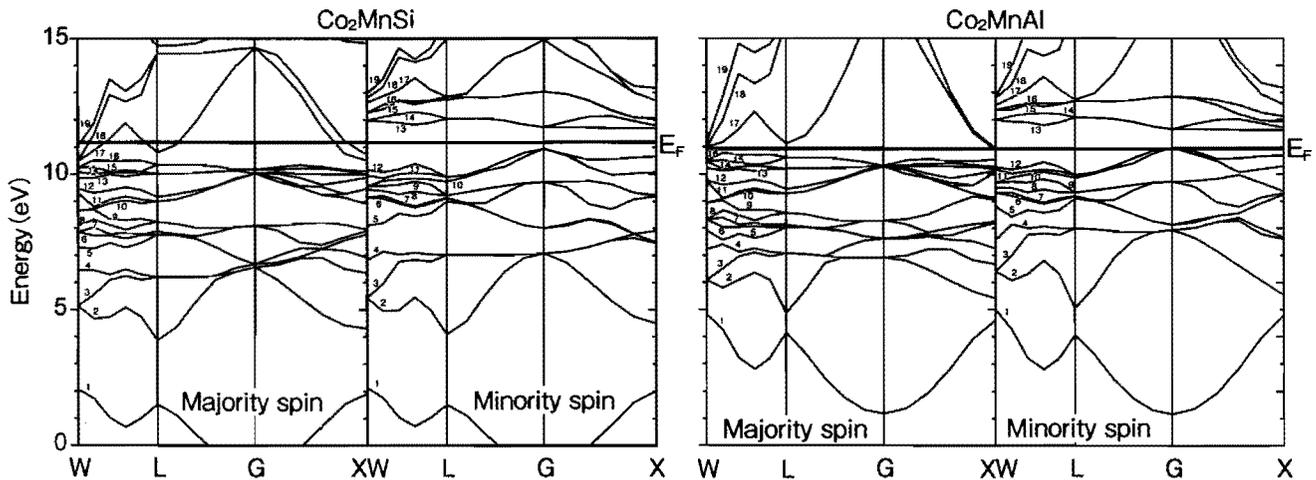


図-4 L2₁構造のCo₂MnSiとCo₂MnAlに対して計算されたバンド構造。バンドにはエネルギーの低い方から順に番号をふってあり、それぞれのバンドに対応するスピン偏極電子運動量分布が図-3に示されている。

気抵抗比も低い。これらの原因としては、CMS自体のハーフメタル性よりも、素子の接合界面や熱影響など別の要因を考える必要がある。

3-2. 金属表面の電流誘起スピン偏極効果

現在、スピントロニクス研究分野では、非磁性体の金属最表面にスピン偏極を生じるスピンホール効果・ラシュバ効果・トポロジカル絶縁体について精力的な研究が行われている。これらは異なる現象・物質であるが、共通することは強いスピン軌道相互作用が起源となり、試料への電場印加

により表面電子がスピン偏極することである。

筆者らは、スピン偏極した陽電子を金属表面に入射させた際に形成される表面ポジトロニウムの観測から、最表面電子のスピン偏極率の決定を試みた^{6),7)}。図-5(a)は実験の概略を示している。エネルギー12keVで輸送された横スピン偏極陽電子ビームを減速管により数十eVに減速し、試料表面に打ち込む。一部の陽電子は最表面の電子と結合してポジトロニウムとなり真空外に放出される。ポジトロニウムにはスピン-重項のパラポジトロニ

ウムと三重項のオルソポジトロニウムがあり、それぞれ二光子と三光子に崩壊する。電子がスピン偏極していれば、電流の向きを反転させることで、オルソ・パラの割合が変化することから、電子のスピン偏極率を決定することができる。

図-5 (b)に示すように、AuとCuの表面では電流方向を入れ替えてもオルソポジトロニウムの強度は変化しないが、Pt、Pd、Ta、W表面では強度振動が起こる。さらに、PtとPd対TaとWでは振動方向が逆転する。以上の結果は、AuとCuの電流誘起スピン偏極は検出限界(1%)以下であるのに対して、それ以外の金属では十分大きなスピン偏極が誘起されていること、及び、PtとPd対TaとWではスピン偏極の符号は逆転していることを示している。

AuやCuのスピンホール効果が弱いのに対して、Pt、Pd、Ta、Wは何れも強いスピンホール効果を示し、しかもPtとPd対TaとWではスピンホール角の符号が反転することが知られている⁶⁾。上の結果は、このスピンホール効果の大小及び符号の関係と一致している。スピンホール角の符号反転は、最外殻のdバンドが半分以下または半分以上の占有状態にあるかで、sd混成によるスピン軌道相互作用が反転するためとして説明されている。従って、本研究で観測された電流誘起スピン偏極効果も、基本的にスピン軌道相互作用に起因していると言える。

4. まとめ

以上、スピン偏極陽電子ビームを用いたスピントロニクス材料の研究について簡単に紹介した。スピントロニクス分野では新しい現象や物質が相次いで見つかっており、数十年後の情報化社会に変革をもたらす可能性がある。スピン偏極陽電子ビームは、スピントロニクス材料が示す現象の基礎的理解や物質探索研究において、有用な役割を果たすと期待される。

参考文献

- 1) T.D.Lee, C.N.Yang, Phys.Rev. 104 (1956) 254.
- 2) C.S.Wu et al., Phys.Rev. 105 (1957) 1413.
- 3) S.S.Hanna and R.S.Preston, Phys.Rev. 106 (1957) 1363.
- 4) 河裾厚男, 陽電子科学 4 (2015) 9-22.
- 5) 猪俣浩一郎, 岡村進, 手束展規, まてりあ 44 (2005) 654.

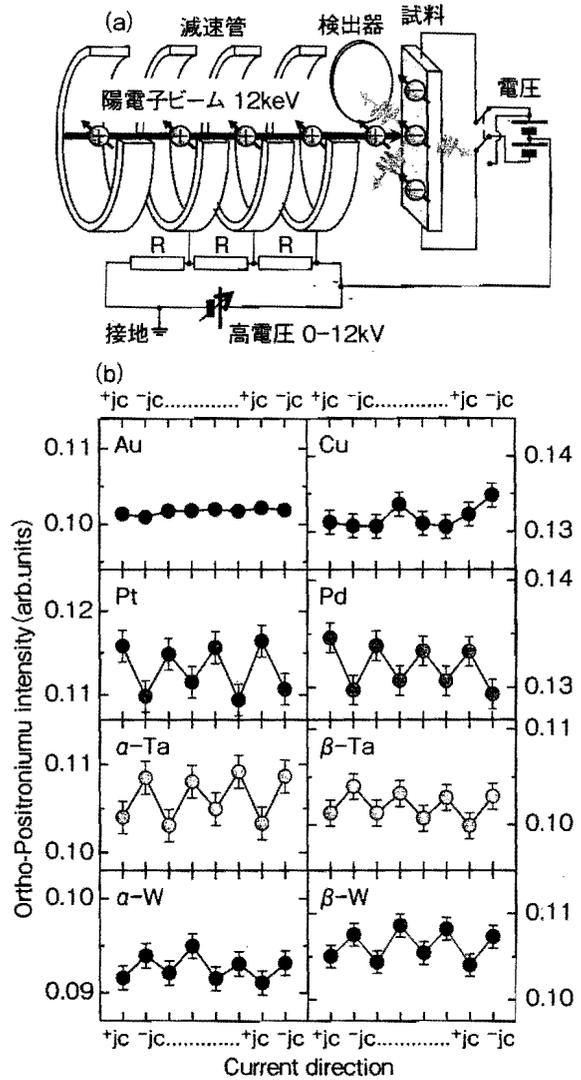


図-5 (a)金属表面における電流誘起スピン偏極の検出実験の概略図。エネルギー12keVの横偏極陽電子ビームを減速管により50eV程度に減速し試料表面に打ち込む。一部の陽電子は試料表面で電子と結合してポジトロニウムとなって真空外に放出される。ポジトロニウムの消滅ガンマ線を検出器で捉える。(b)Au、Cu、Pt、Pd、Ta、及び、Wの表面について得られたオルソポジトロニウム強度の電流反転効果。

- 6) H.J.Zhang, S.Yamamoto, Y.Fukaya, M.Maekawa, H.Li, A.Kawasuso, T.Seki, E.Saitoh & K.Takanashi, Scientific Reports 4, (2014) 04844.
- 7) H.J.Zhang, S.Yamamoto, B.Gu, H.Li, M.Maekawa, Y.Fukaya, and A.Kawasuso Phys.Rev.Lett. 114 (2015) 166602.
- 8) 紺谷浩, 平島大, 井上順一郎, 日本物理学会誌 65 (2010) 239.