

スピン偏極原子線散乱法による表面スピンの時空相関の研究

山梨大学 工学部 電気電子システム工学科 助教授
鳥養 映子

1.はじめに

原子分解能の超高密度磁気メモリー、スピンドバイス、量子的スピン演算素子など、次世代機能性物質探索への期待と相俟って、表面スピンの計測と制御への関心が急速に高まっている。本研究の目的は、我々が独自で開発してきたスピン偏極原子線散乱法を確立して、物質表面のスピンの時間的・空間的相関をミクロに観測し、スピン相関と表面固有の諸物性との関係を明らかにすることである。

表面および表面を舞台とする量子スピン系の磁性では、スピンのゆらぎが本質的な役割をになうと予想される。例えばNi(100)表面においては、偏極低速電子線回折法 (SPLEED) ではバルクの T_c 以上で強磁性秩序が壊れる¹⁾が、偏極電子捕獲法 (ECS) では $2T_c$ より高温でも短距離秩序の存在が観測される²⁾。このような違いは、表面の磁気秩序状態が、観測の時空相関の尺度が異なれば多様な側面を見せること、すなわち表面特有のスピンのゆらぎが存在することを示唆している。

表面固有のスピン現象を理解するためには、表面第一原子層のみに感度を持ち、スピンの時空相関を広範囲にわたり観測可能な新しい表面スピン計測の方法が必要である。我々は、原子と表面の散乱過程における交換相互作用のスピン非対称性を通じて物質最表面のスピン相関を研究するため、スピンと運動エネルギーを自在に制御できるユニークな偏極原子プローブ (スピン偏極原子線) の開発を行った^{3,4)}。

本報告では、本研究助成によって実現した検出系の開発成果を中心に、研究の基本構想、スピン偏極技術およびスピンのゆらぎの研究への展開について、現状と展望を述べる。

2.基本構想

図1に、実験の概念を示す。

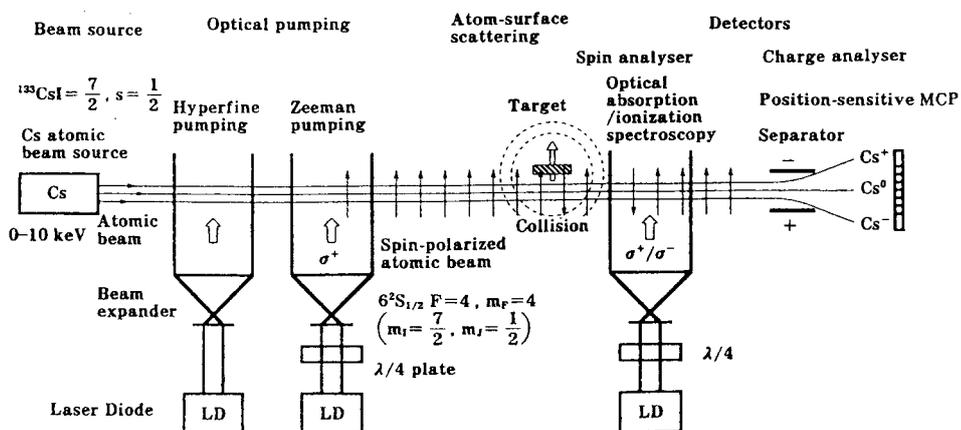


図1 スピン偏極原子線散乱法の概念

提案する表面スピンプローブは、光ポンピング⁵⁾によって核も電子も 100% スピン偏極させたセシウム (Cs) 原子線 (エネルギー範囲 0.03 eV から 10 keV) である。原子のゼーマン準位の共鳴周波数に同調した円偏光レーザーを用いることにより、光のスピンを原子に移行する。光のスピンの制御は極めて容易なので、原子の基底状態のスピンの配向、整列を自在に操ることができる。こうして、スピン方向または量子状態を揃えた原子を標的の表面すれすれに入射し、散乱原子のスピンの変化を、入射原子のスピンの変化とエネルギーの関数として測定することにより、表面電子スピン密度分布とその時空相関を調べようというものである。

3. 光ポンピングによる原子のスピンの偏極⁶⁾

図 2 に、Cs 原子の基底状態と励起状態のエネルギー準位を示す。Cs 原子の超微細状態を特徴づける量子数は、全スピン F と磁気量子数 m_F である。原子のスピンの偏極は、超微細準位間の遷移とゼーマン準位間の遷移の 2 行程の光ポンピングで行った。(a) 基底状態 $|6^2S_{1/2}, F=3\rangle$ と励起状態 $|6^2P_{3/2}, F=4\rangle$ 間の遷移により超微細状態を $|6^2S_{1/2}, F=4\rangle$ に集め、(b) 円偏光レーザーによって基底状態 $|6^2S_{1/2}, F=4\rangle$ から励起状態 $|6^2P_{3/2}, F=5\rangle$ 間で $\Delta m_F = +1$ の遷移を繰り返すことにより、基底状態の最高磁気量子数 $m_F = 4$ の状態 $|6^2S_{1/2}, F=4, m_F=4\rangle$ に汲み上げた。量子化軸はレーザー光の入射方向により可変、スピン配向方向は、(b) で σ 偏光を用いると逆転する。スピンの配向方向は、励起レーザー光を原子ビームに平行に入射すれば縦スピン偏極、垂直に入射すれば横スピン偏極となる。スピン偏極度 $\langle m_F \rangle / F$ は、原子線と光の十分な相互作用の後では、原理的に 1 (完全スピン偏極状態) となる。

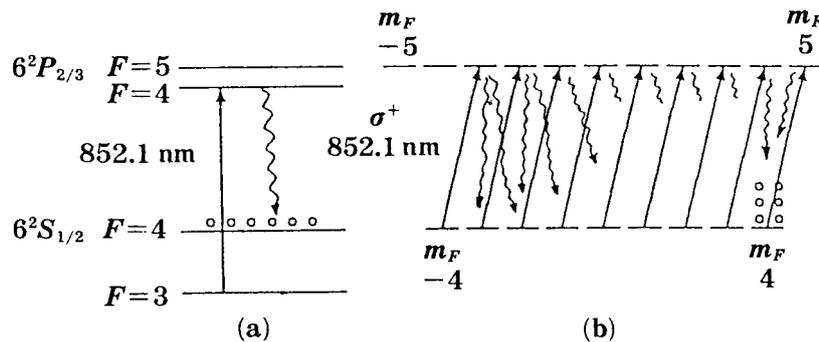


図 2 光ポンピングに用いた Cs 原子のエネルギー準位
(a) 超微細ポンピング、(b) ゼーマンポンピング

図 3(a), (b) に、熱エネルギー Cs 原子線を σ^+ 偏光レーザー (GaAsAl, 15 mW) でポンピングした時の光吸収スペクトルを示す。周波数掃引は、 $|6^2S_{1/2}, F=4\rangle$ から $|6^2P_{3/2}, F=3, 4, 5\rangle$ 各吸収線の共鳴エネルギー範囲で行った。(a) はプローブ光として σ^+ 偏光を用いたもの、(b) は σ 偏光を用いたものである。(c) はポンピング光なしの場合の吸収スペクトルで、遷移確率に比例する $F=3, 4, 5$ の吸収ピークが見られる。(a) は、基底

状態が完全に $|m_f=4\rangle$ に偏極されているので、 $\Delta m = -1, 0$ に対応する $F=3, 4$ への遷移はおこらないことを端的に示している。(a)-(c)の吸収線の強度比から求めたスピン偏極度 $\langle m_f \rangle / F$ は、98%以上であった。超微細ポンピング、ゼーマンポンピングの2行程を合わせて、ほぼ100%のスピン偏極率が達成できることが確認された。

加速原子線の場合には速度が $10^4 \sim 10^5$ m/s と早いので、光と原子の相互作用時間が光ポンピング率の上限を決める。計算によれば、出力 150 mW のレーザーの光径を 20 cm に広げれば、10 keV の原子線を 85 % 偏極することができる。

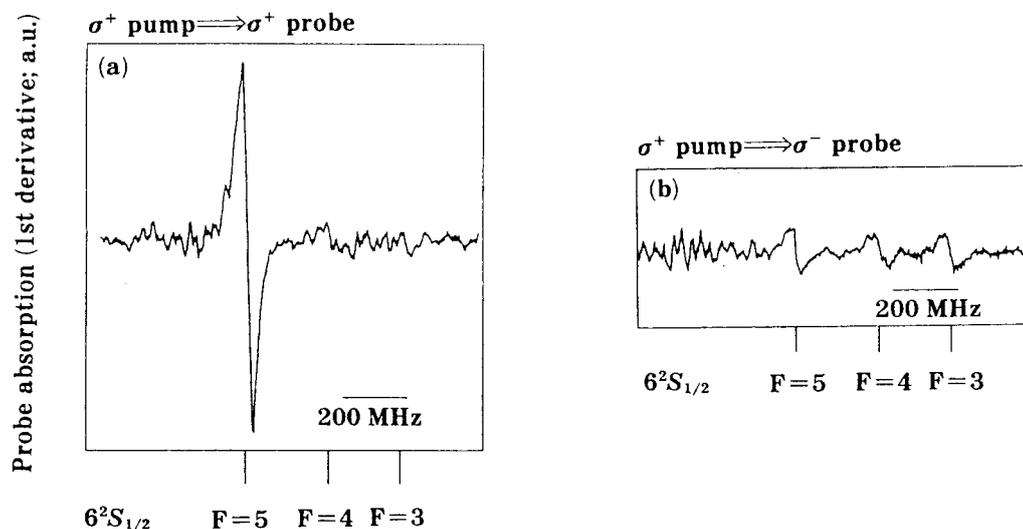


図3 熱エネルギー spin 偏極原子線の σ^+ 光吸収スペクトル：励起光の偏極が(a) σ^+ 偏光、(b) σ^- 偏光の場合。

4. 検出系の開発

実験の観測量は、原子-表面散乱後のプローブの荷電状態とスピン状態である。これらの始状態（散乱前）と終状態（散乱後）の差が、表面との相互作用を反映している。本研究助成のご支援により、本研究に不可欠な次の2つの検出系を開発することができた。

4.1 正負イオン化効率の測定：位置敏感型 MCP を用いた荷電状態検出系

散乱後の正負イオン化効率を測定するため、静電偏向板と位置敏感型 MCP (MCP、蛍光面および冷却 CCD カメラで構成) からなるイオン原子同時計測装置を設計した。

Cs 原子の MCP での検出感度、およびそのエネルギー依存性の測定例を図に示す。熱エネルギー原子線に対しては感度がゼロであるが、0.1 keV 以上の原子線に関しては、有限の感度が確認された。検出効率は、

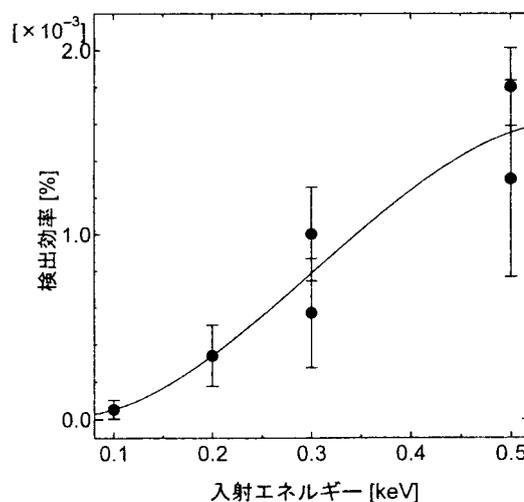


図4 MCP 荷電状態検出器による Cs 原子線検出効率のエネルギー依存性

0.1–0.5 keV で急激に上昇する。現在より精密な実験を遂行中であり、これをもとにイオンと原子の同時計測における検出効率の補正を行う。

4.2 スピン偏極度の高感度測定：共鳴 2 光子イオン化分光

先に述べた光ポンピングの実験結果 (図 3) は、偏極原子ビーム生成の確認と同時に、スピン偏極度の測定原理を確認するものでもある。散乱後の原子を再びスピン選択的に励起し、励起原子のみをイオン化する 2 光子共鳴イオン化分光により、原理的には単原子感度の検出が可能である。励起原子のイオン化に連続発振 He-Cd レーザー (440 nm, 20 mW)、生成イオンの検出にセラトロン (利得 10^8) を使い、パルスカウンティングを行った実験結果を、図 5(a), (b) に示す。図(a)は、共鳴 2 光子イオン化スペクトルで、スピン選択的励起光の偏光を反転させた時の各吸収線の強度比から、3 節と同様に偏極度を得られる。(b)は、共鳴励起レーザー光の強度を変えて検出イオン数を測定したもので、励起原子数を変化させることにより光イオン化の検出感度を調べた。この結果、散乱原子流率が、約 20 個/s までは検出可能なことを確認した。

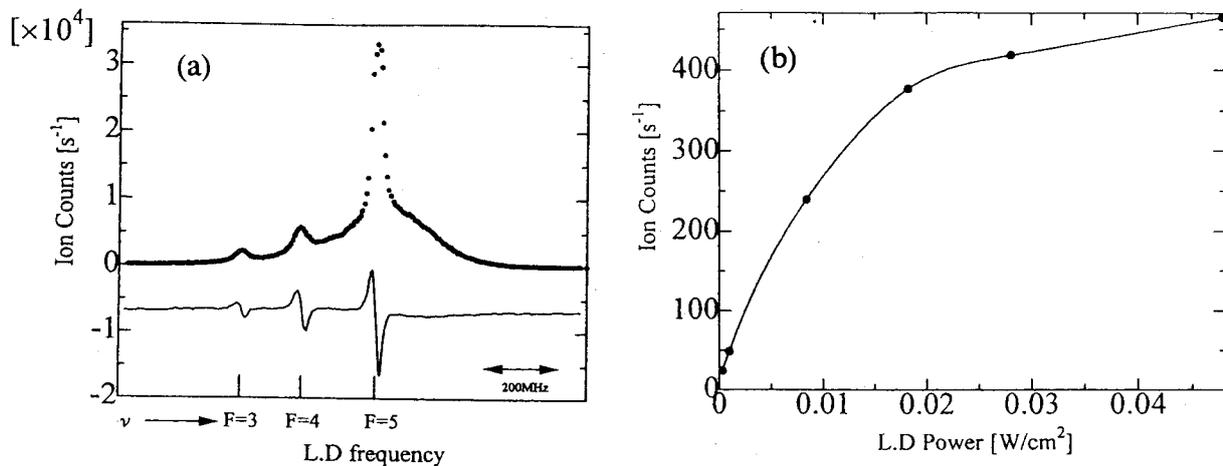


図 5 (a) Cs 原子の共鳴 2 光子イオン化分光スペクトル
(b) 検出イオン数の共鳴励起光強度特性

5. 超低磁場環境の構築

スピン偏極した原子のスピンは、飛行中に地球磁場や実験装置の磁場でラーマー歳差し、エネルギー幅で減偏極する。本実験では、原子を偏極後基板まで約 0.7m 飛ばすことになるので、偏極度を 90 % 以上に保つには飛行経路の磁場を $10\mu\text{G}$ 程度に抑えたい。

これまでは直径 2.5 m の矩形 2 重ヘルムホルツコイルを自作して、均一磁場を発生させていたが、もともと建物にある磁場分布 (最大 5 mG) によって低磁場の限界が決まってしまう。地球磁場を 1/100 に減衰することを仕様に磁気シールドルームを構築した。2 重の μ メタル (PC II、厚さ 2 mm、間隔 15cm) でできた直方体で、内径は $2.9 \times 2.9 \times 2.8\text{m}$ (床下 0.1m) である。実験装置搬入のための扉を 2 方向に、またクレーン走査のための窓を天井に、ビームライン、電線、配管およびレーザー光導入のための窓がついている。排気系など、実験装置周りの磁場を零にすることは困難な

ので、磁気シールドルームは1/100までに減衰し、さらに超高真空槽内に磁気シールドを入れて偏極原子線飛行路を超低磁場にしようという発想である。完成した磁気シールドの性能は、中央部の磁束密度が0.5 mG 以内、2枚扉の合わせ目と、床付近の磁束密度は一桁大きい。スピン偏極電子線散乱実験装置の内部に装着した2重の μ メタルシールドを合わせて、偏極原子線散乱室内部の磁束密度が1/4000 になっていることを確認した。本実験遂行のために理想的な実験環境が得られた。

6. おわりに

原子-表面散乱における交換相互作用のスピン依存性により表面スピン相関を計測する、新しい実験手法の開発を行った。本手法は次のような特徴をねらったものである。

- a) 広い範囲に亘るスピン時間・空間相関の観測
- b) 表面第一原子層のスピン状態に高感度
- c) 金属から絶縁体まで、多様な標的表面への応用

このような特徴を実現する上で、まず比較的研究の進んでいる遷移金属表面を標的に、スピン偏極原子線散乱の基礎過程を、原子線のエネルギーとスピン、および表面の温度をパラメータに系統的に解明することが、我々の現在の最重要課題である。

3次元空間群と2次元空間群の境界という特異な対称性を持つ表面におけるスピンのゆらぎは、交換相互作用の働く全ての表面現象の機構に深くかかわりあっている。今後、開発した手法を用いて、共鳴電荷移行反応におけるスピン依存性を系統的に調べることにより、表面の動的量子反応過程におけるスピンの役割を明らかにしていく所存である。

謝辞

本研究に対して多大なご支援と激励を頂きました高柳記念電子科学技術振興財団および財団の関係者の皆様に心から感謝致します。

参考文献

- ¹ R. Wiesendanger, H. -J. Guentherodt, G. Guentherodt, R. J. Gambino and R. Ruf, Phys. Rev. Lett., 65, 247 (1990) .
- ² S. F. Alvarado and P. Renaud, Phys. Rev. Lett., 68, 1387 (1992) .
- ⁹ E. Torikai and H. Hori, in A. Okiji et al. (Eds.), Solid State Science 121; Elementary Process in Excitation and Reaction on Solid Surface(Springer, Berlin, 1996) 126.
- ⁴ Spin-polarized atomic scattering: a new probe for dynamical spin correlation at surface and interface, E. Torikai, Advances in Colloid and Interface Science, 71-72, 317-336, 1997.
- ⁵ W. Happer, Rev. Mod. Phys. 44, 169 (1972).
- ⁶ H. Hori, Y. Kitayama, M. Kitano, T. Yabuzaki and T. Ogawa, IEEE J. Quantum Electron. QE-19, 169 (1983).

発表論文

1. Spin-Polarized Atomic Beam as a Probe of Spin Correlation at the Topmost Layer of Surfaces, E. Torikai and H. Hori, Springer Series in Solid-State Sciences 121; Elementary Processes in Excitations and Reactions on Solid Surfaces, Eds. A. Okiji et al. (Springer, Berlin, 1996), pp.126-137.
2. 表面第一原子層のスピン計測：偏極原子線散乱法の開発, 鳥養映子、堀裕和, 日本応用磁気学会誌, 21, 29-34, 1997.
3. Spin-polarized atomic scattering: a new probe for dynamical spin correlation at surface and interface, E. Torikai, Advances in Colloid and Interface Science, 71-72, 317-336, 1997.
4. Surface crystal structure of magnetite $\text{Fe}_3\text{O}_4(110)$, Y. Oda, S. Mizuno, S. Todo, E. Torikai and K. Hayakawa, Jpn. J. Appl. Phys. 37, 4518-4521, 1998.
5. 表面スピン観測のための偏極原子線散乱法の開発, 池戸豊、木島一広、堀裕和、鳥養映子, J. Vac. Soc. Jpn. (真空) 42, 297-300 (1999).
6. 反射高速電子回折で励起した2次電子のスピン計測, 居島薫、水野清義、中村浩次、清水三郎、不破耕、関清爾、鳥養映子、早川和延, J. Vac. Soc. Jpn. (真空) 42, 557-564 (1999).
7. Interaction of Mu with Spin Current in GaAs/GaAsP/Si, E. Torikai, Y. Ikedo, K. Shimomura, K. Nagamine, T. Saka and T. Kato, Physica B 289-290, 558-562, 2000.
8. Study of the self-organization of spin-polarized atomic clusters on a solid rare gas surface, Eiko Torikai, RIKEN Review No. 27, 82-85, (2000).