

ビスマス表面におけるスピン依存イオン散乱[†]

一ノ倉 聖¹・平原 徹²・酒井 治³・長谷川修司¹・鈴木 拓³

¹東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 ☎ 113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

²東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻 ☎ 152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

³物質・材料研究機構 ☎ 305-0044 茨城県つくば市並木 1-1

(2015年2月15日受付; 2015年3月30日掲載決定)

Spin-Dependent Ion Scattering on Bismuth Surfaces

Satoru ICHINOKURA¹, Toru HIRAHARA², Osamu SAKAI³, Shuji HASEGAWA¹ and Taku SUZUKI³

¹University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

²Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8551

³National Institute for Material Science, 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044

(Received February 15, 2015 ; Accepted March 30, 2015)

We studied low-energy (~ 1.5 keV) spin-polarized $^4\text{He}^+$ ion scattering on Bi(111) ultrathin films epitaxially grown on a Si(111) substrate. Even though Bi is a non-magnetic element, we observed that the scattered ion intensity differed between the incident He^+ ions with up and down spins, i.e., a spin asymmetric scattering. The spin asymmetry was not affected by the surface structure but depended on the scattering angle and the incident energy. These data indicate that the spin asymmetry originates from the spin-orbit coupling that acts transiently on the He^+ $1s$ electron spin in the binary collision and the resonant electron transfer between $^4\text{He}^+$ ions and Bi electronic orbitals possibly alters the behavior of the spin asymmetry compared to established models.

KEYWORDS : low energy ion scattering, electron-spin, spin-orbit coupling, atomic collision

1. はじめに

イオン散乱分光法は古くから表面科学で用いられてきた構造解析の手法である。He⁺イオンビームを試料に照射すると、大部分のイオンは散乱の際に試料から電子を受け取って中性Heとなるが(Auger中性化)、少数ながら中性化を免れるイオンがある。入射エネルギーが数keV以下と低い場合にはこの中性化確率は1に近いいため、中性化を免れたイオンは最表面で散乱されたものに限られる。イオン散乱分光ではこの最表面で散乱されたイオンのエネルギー、散乱角依存性を分析することにより表面構造の解析を行う。

ここで、中性化がパウリの排他律を満たすことを考えると、試料からHe⁺イオンに移動する電子は元々の

He⁺イオンの1s軌道の電子とスピンの反平行である必要がある。よって、試料表面がスピン偏極している場合には、試料と平行な電子スピンを持つイオンは中性化の確率が低く、すなわち散乱強度が大きくなる。逆にいえば、スピン偏極したイオンビームを用い、up/downに対する散乱強度の差を測定することにより、試料最表面のスピン偏極を検出できる。鈴木らはスピン偏極He⁺イオンビーム源を開発し、磁性体表面に対する散乱強度がスピンの依存性を示した^{1,2)}。これをスピン偏極イオン散乱分光法(SP-ISS)と呼び、磁性体において最表面の元素組成と磁性の関係を調べる手法として用いられてきた。

しかし、近年、非磁性体試料でも有限のスピン非対称性が観測されることが報告された^{2,3)}。その起源はHe⁺と試料原子の衝突におけるスピン軌道相互作用(SOC)の効果と考えられるが、詳細は未解明であり、様々な物質の表面に対する研究が行われている⁴⁾。本研究では強

[†] 第34回表面科学学術講演会(2014年11月6日~8日)にて発表

E-mail : SUZUKI.Taku@nims.go.jp

い SOC を持つ Bi 表面において SP-ISS による He^+ イオン散乱のスピンの依存性を測定した。

2. スピン偏極イオン散乱分光

2.1 スピン偏極イオンビーム

スピン偏極イオンは、スピン偏極準安定 He 原子 ($2^3S_1(\text{He}^*)$) がペニングイオン化 ($\text{He}^* + \text{He}^* \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^0 + e^-$) することによって得られる。 He^* は He ガスを RF 放電によって励起することで得られ、円偏光を用いた光ポンピングによってスピン偏極される。ペニングイオン化においてはスピンの保存されるため、最終的にスピン偏極した He^+ を得る。ポンプ光の右回り/左回り円偏光を切り替えることにより、イオンビームのスピンの偏極を up/down に切り替える。このスピン偏極 He^+ イオンを約 1.5 kV の電圧で加速し、試料に照射する。

2.2 スピン偏極イオン散乱分光

測定時の入射ビーム、試料、検出器の位置関係を Fig. 1 (a) に示す。試料は試料面内回転および散乱面内回転が可能であり、検出器は散乱面内で移動できる。検出器には静電セクターアナライザ (Omicron SHA50) を用い、散乱 He^+ イオンをエネルギーおよび散乱角分析する。スピンの量子化軸は装置全体に 0.3 Oe の弱い様な磁場を印加することで定義しており、散乱面に垂直である。

散乱のスピンの依存性の指標として、スピン非対称性 A を次のように定義する。

$$A = \frac{1}{P_{\text{He}^+}} \frac{I_{\text{up}} - I_{\text{dn}}}{I_{\text{up}} + I_{\text{dn}}}$$

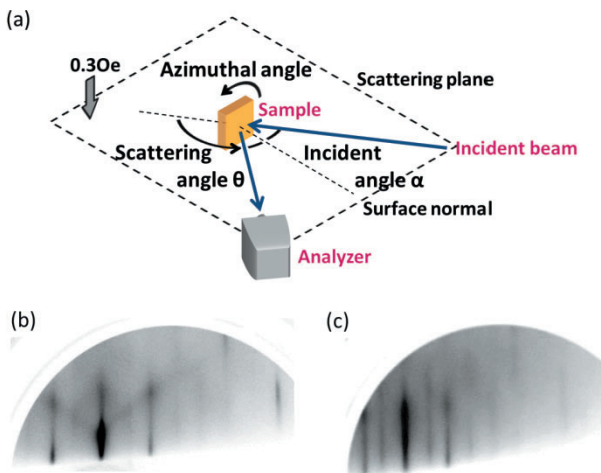


Fig. 1. (color online). (a) Schematic illustration of the experimental setup, (b), (c) A RHEED pattern of an epitaxially-grown Bi(111) ultrathin film (b) before and (c) after the SP-ISS measurement, respectively.

ここで、 I_{up} と I_{dn} はそれぞれ up, down にスピン偏極した He^+ イオンビームに対する散乱強度で、エネルギーと散乱角の関数である。 P_{He^+} はビームのスピンの偏極率であり、本研究を通じて 0.2 である。

3. Bi におけるスピン偏極イオン散乱分光

3.1 試料作成

試料作成は、SP-ISS チャンバー内で Si(111) 基板 (n 型, ~ 1 cm) 上への分子線エピタキシー法によって行い、*in situ* RHEED 観察によって評価した。基板の通電加熱 (約 1500 K) により Si(111) 7×7 表面を得た後、室温で Bi を蒸着し、約 350 K のポストアニールを行った。作成した試料は Fig. 1 (b) の RHEED 像に示すように結晶性の良い Bi(111) (本稿では rhombohedral indexing を用いる) 表面を持ち、ポストアニールによって 1000 Å オーダーの広いドメインサイズを持つ薄膜になる⁵⁾。RHEED による $\text{Si}(111)\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Bi 構造の観察から蒸着量を較正し、8 BL ($1 \text{ BL} = 1.14 \times 10^{15} \text{ atom/cm}^2$) 堆積した。

3.2 スピン依存散乱の観測

Fig. 2 (a) に up/down にスピン偏極した He^+ ビームに対する散乱イオンのエネルギースペクトルを示す。通常のイオン散乱と同様、エネルギーは標的原子核の質量で決まるため、元素ごとに散乱イオン強度のピークが現れる。up, down のいずれの場合でも 1520 eV にピークを持ち、Bi からの弾性散乱と同定できる。Fig. 2 (a) には $I_{\text{up}} - I_{\text{dn}}$ のスペクトル、すなわち SP-ISS スペクトルも示す。SP-ISS スペクトルから明らかのように、Bi からの弾性散乱ピークにおいて有限のスピン非対称性が現れていることがわかる。以下では Bi からの弾性散乱ピーク上で up, down の散乱強度を溜め込むことにより、スピン非対称性を測定する。

1 章で述べたように、SP-ISS で観測されるスピン非対称性には試料表面のスピン偏極に由来する項とスピン軌道相互作用に由来する項がある。観測されている非対称性がそのどちらなのかを見分けるには、面内角依存性を測定するのがよい。なぜなら、スピン偏極に由来する項は、試料のスピン偏極ベクトルとイオンビームのスピン偏極ベクトルの内積であるのに対し、スピン軌道相互作用は表面原子核周りのイオンの過渡的な運動に由来するため、スピン非対称性は結晶方位と無関係なためである。実際に測定されたスピン非対称性の面内角依存性は、Fig. 2 (b) のように系統的な変化を示していない。結晶方位に依らないということは、表面構造と無関係であるということである。長時間の ISS 測定では、スパッタによる試料の損傷が無視できない。Fig. 2 (c) に四時

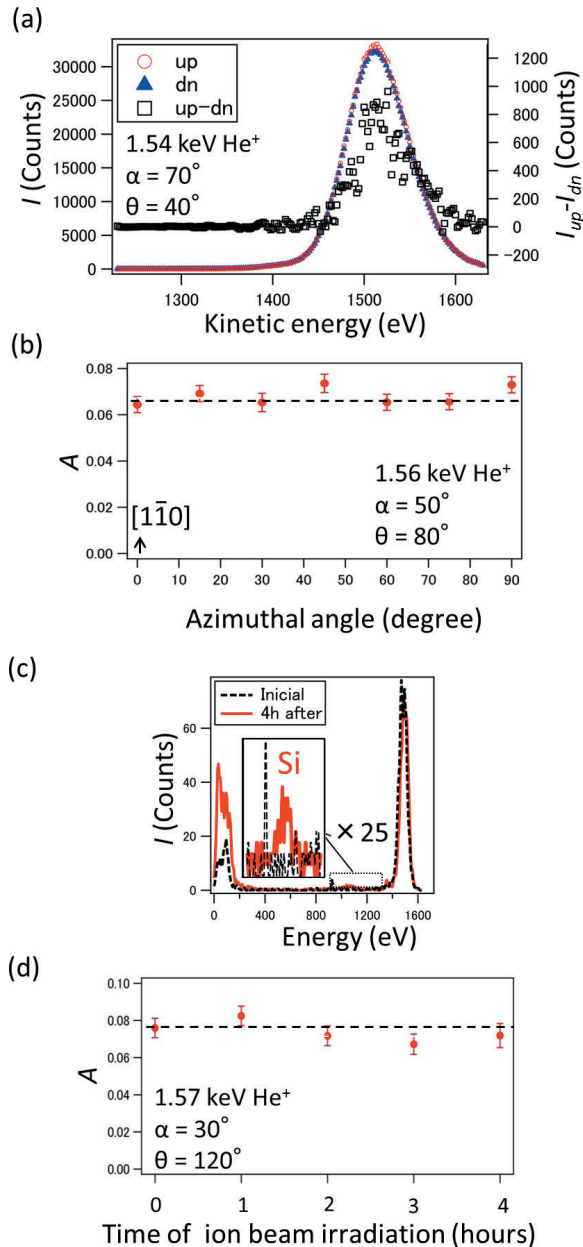


Fig. 2. (color online). (a) ISS spectra of a Bi(111) ultrathin film for up/down spin-polarized He⁺ ion beams and the SP-ISS spectrum, (b) spin asymmetry A as a function of azimuthal angle, (c) ISS spectrum for fresh Bi(111) surface (dashed line) and ion beam irradiated surface (solid line), (d) time dependence of the spin asymmetry A through the 4-hour measurement.

間にわたる測定の前後のイオン散乱スペクトルの変化を示す。四時間後のスペクトルでは Si に由来する散乱ピークが現れており、スパッタリングによって局所的に膜が破壊されていることがわかる。この効果は測定後の RHEED 観察によっても確認しており、Fig. 1 (c) に示すように結晶性の低下したパターンが見られる。しか

し、Fig. 2 (d) に示すように、そのような長時間の測定においてもスピン非対称性には変化は現れない。これらの事実から、Bi 表面で観測されるスピン非対称性はスピン軌道相互作用に由来することがわかる。

スピン軌道相互作用に由来するスピン非対称性 A は、He⁺ イオンのスピンの中心に存在し、かつスピン軌道相互作用が古典回帰点でのみ作用すると仮定すると、次の式 (1) に従うことが知られている^{2,3)}。

$$A \propto \frac{v_0^3 \cos(\theta/2)}{1 + 1/\sin(\theta/2)} \quad (1)$$

ここで、 v_0 は入射イオンの速度である。すなわち、散乱角 θ と入射イオンの速度 v_0 に対して特徴的に変化することが予想される。

Fig. 3 (a) に散乱角依存性を示す。散乱角 90 度付近で極大をとり、180 度を越え、試料に向かって左方向から右方向への散乱に変わると非対称率の符号が逆転している。これは Pb 単結晶表面で観測されたスピン依存イオン散乱の振る舞い^{2,3)} と定性的に一致し、式 (1) によってフィッティングできる。

入射イオンの速度依存性は Fig. 3 (b) に示すように、速度が大きいほどスピン非対称性が大きくなっている。これは、電子の Mott 散乱に見られるように、散乱エネルギーが大きいほどスピン軌道相互作用が大きくなる⁶⁾ ことで定性的には理解できる。式 (1) より、スピン非対称性 A は入射イオン速度の三乗 v_0^3 に比例することが予想される。Fig. 3 (c) に、Bi 上でのスピン非対称性の絶対値の v_0^3 依存性を先行研究³⁾ より引用した Au 表面に対するものとともにプロットする。Au 表面の結果では式 (1) のとおり v_0^3 に比例し、外挿すると $v_0^3 = 0$ で $A = 0$ である。静止したイオンに対してはスピン非対称散乱は生じないため、この結果は自明である。一方、本研究で得られた Bi 表面の結果に v_0^3 で近似を行っても原点を通らない。したがって、Bi 上でのスピン非対称性は v_0^3 則を外れ、測定範囲で急峻に変化していることがわかる。

この理由は何であろうか。先行研究⁴⁾ では 5d 遷移元素表面について、同じ散乱条件のもとでのスピン非対称性が議論されている。5d 遷移元素上でのスピン非対称性は Au 表面で最大であり、次いで Ir, Pt, そして Re, Hf, Ta では無視できるほど小さい。この元素依存性は He⁺ イオンが試料原子に接近した際の中性化と再イオン化によって説明されている。再イオン化した He⁺ イオンのスピンは無偏極であるため、再イオン化の確率が高いほど実効的に入射イオンビームのスピン偏極率が下がるが、その再イオン化確率は標的要素に依存し、Re よりも軽い 5d 遷移元素では顕著に影響する⁷⁾。このこ

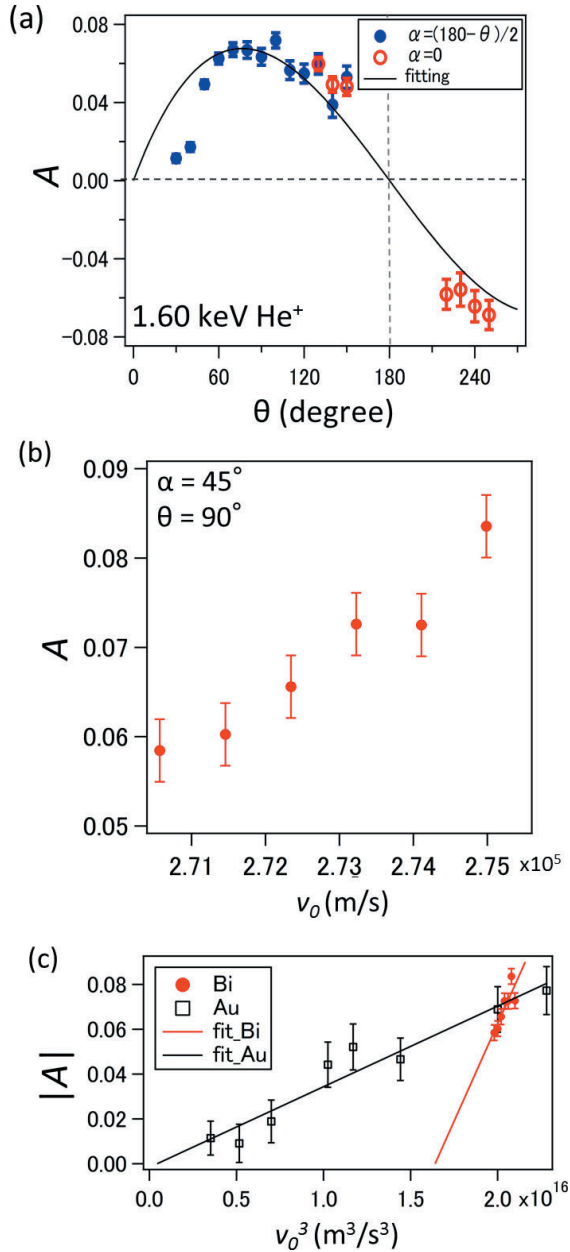


Fig. 3. (color online). Spin asymmetries A as a function of (a) scattering angle θ , where filled circle is measured satisfying $\alpha = (180 - \theta)/2$ and blank circle is measured at $\alpha = 0$, (b) incident velocity v_0 . (c) Absolute value of A as a function of the third power of v_0 .

とは、 He^+ のスピン依存散乱を記述する際、 He 原子と標的原子の間での電子移動を考慮する必要があることを示している。

今回の Bi の場合は、中性化・再イオン化という二段階のプロセスだけでなく、 $5d$ 軌道と He の $1s$ 軌道のエネルギーが近接しているため、電子は共鳴的に Bi の $5d$ 軌道と He の $1s$ 軌道間を遷移する可能性がある。それは共鳴電荷移行と呼ばれ、原子・イオンの衝突において電荷移行確率の衝突速度や衝突係数に対する振動として観測されている^{8~11)}。中性化・再イオン化はイオンビームのスピン偏極度を減少させるのみであったが、共鳴電荷移行の場合には 1 keV 程度で入射速度の変化に対して電荷移行の確率は激しく変化するため、今回見られたような急峻な入射速度依存性を引き起こす可能性がある。

4. ま と め

Bi 表面に対して SP-ISS 測定を行い、スピン軌道相互作用に由来するスピン依存イオン散乱を観測した。その散乱角依存性は従来のモデルに一致するが、入射イオンの速度に対してはモデルの予想よりも急峻な変化を見せた。これは、イオン散乱においては、従来から示されているように原子間の電子移動の影響があること、そして特に Bi の場合には共鳴電荷移行の効果が存在する可能性を示唆している。

文 献

- 1) T. Suzuki and Y. Yamauchi : Surf. Sci. **602**, 579 (2008).
- 2) 鈴木 拓 : 固体物理 **47**, 217 (2012).
- 3) T.T. Suzuki, Y. Yamauchi and S. Hishita : Phys. Rev. Lett. **107**, 176101 (2011).
- 4) T.T. Suzuki, O. Sakai, S. Ichinokura, T. Hirahara and S. Hasegawa : Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **354**, 163 (2015).
- 5) T. Nagao, J.T. Sadowski, M. Saito, S. Yaginuma, Y. Fujikawa, T. Kogure, T. Ohno, Y. Hasegawa, S. Hasegawa and T. Sakurai : Phys. Rev. Lett. **93**, 105501 (2004).
- 6) J. Kessler : "Polarized Electrons" (Springer NY, 1985).
- 7) R. Souda, T. Aizawa, C. Oshima, S. Otani and Y. Ishizawa : Phys. Rev. B **40**, 4119 (1989).
- 8) G.J. Lockwood and E. Everhart : Phys. Rev. **125**, 567 (1962).
- 9) G.J. Lockwood, H.F. Helbig and E. Everhart : Phys. Rev. **132**, 2078 (1963).
- 10) L.W. Muller and F.J. de Heer : Physica **48**, 345 (1970).
- 11) V. Dose and V. Meyer : Phys. Lett. **23**, 69 (1966).