

スピン偏極陽電子ビーム研究グループの主な成果

Highlights of Research Group for Spin-Polarized Positron Beam

河裾 厚男 グループリーダー
Atsuo Kawasuso Group Leader



概要

スピン偏極陽電子ビーム研究グループでは、放射線ブロープの一つである陽電子ビームのポテンシャルを開拓し、先進的な材料研究に適用しています。本中期計画では、高いスピン偏極率を持つ陽電子ビームの開発とスピン偏極陽電子消滅法を用いたスピントロニクス材料研究を推進しました。本報告では、これらの成果の中から、スピン偏極陽電子消滅法を用いた電流誘起スピン蓄積効果の研究成果について記述します。

1. 研究の背景・経緯

近年、従来の電子の流れ（電流）を用いた電子デバイスではなく、電子のスピンを積極的に利用した新たなデバイス（スピントロニクス）の開発が急速に進められています[1,2]。このスピントロニクスの発展に伴い、物質中の電子のスピン振る舞いを調べることができる新たな測定法の開発も求められています。我々は、電子の反粒子である陽電子のポテンシャルに着目し、陽電子のスピンを揃える技術を開発するとともに[3]、物質中の電子のスピン振る舞いを直接的に調べることができるスピン偏極陽電子消滅法の開発に着手しました[4,5]。

2. 研究の内容

本研究では、スピントロニクス分野においてスピン流の生成メカニズムとして重要な電流誘起された電子スピン蓄積をスピン偏極陽電子ビームを用いて直接的に検出することを試みました。電流誘起された電子スピン蓄積メカニズムとして、スピンホール効果は重要なスピン流生成メカニズムの一つとして挙げられます。スピンホール効果とは、上向きと下向きの電子スピンの電流に対して垂直二方向に分離される効果であり、磁場を必要としないことと非磁性体においても発現することが大きな特徴です。このスピンホール効果は、これまで、Kerr効果を用いた光学的な検出や、ホールクロスバやマイクロ波を用いた電気的な検出によって調べられてきました。これらはいずれも間接的な電子スピンの検出であるため、定常電流を発生した状態で直接的に電子スピンを検出することが望まれていました。

これまで、我々のグループでは、スピン偏極陽電子ビームを開発し、磁性体中の電子スピンの磁場反転非対称性の検出に成功していました。本研究では、この手法をさ

Abstract

We have developed novel positron beam and applied it to studies of advanced materials. In this term, we developed a highly spin-polarized positron beam and studied spintronics materials using spin-polarized positron annihilation method. In this report, we described the recent result of current-induced spin accumulation on the material surfaces using the spin-polarized positron annihilation method.

1. Background

Recently, spintronics, in which electron spins are utilized in addition to the electron charges, attracts increasing attentions [1,2]. According to the progress in spintronics, new method to detect electron spins in materials is strongly needed [3]. We focused on the potential applications of positrons, anti-particle of electrons, and developed spin-polarized positron annihilation method to directly detect electron spins in materials [4,5].

2. Contents of the study

In this study, we tried to directly detect the current-induced spin accumulation, which is one of the important phenomena to produce spin currents, by using the spin-polarized positron annihilation. Spin-Hall effect is the key mechanism to producing spin currents. In the spin-Hall effect, up- and down-spin electrons move in the opposite directions depending on the direction of the electron current. This effect appears in non-magnetic field and non-magnetic materials. The spin-Hall effect has been investigated using Kerr effect, microwave, and so on. These are indirect methods to detect electron spins. Therefore, it is strongly required to develop the direct method detecting electron spins under the

らに発展させ、定常電流を流した状態で物質中の電子スピンをスピン偏極陽電子を用いて検出することを試みました。

陽電子は、物質中の電子と出会うと対消滅し、消滅ガンマ線を放出します。消滅ガンマ線のエネルギー分布には、消滅相手である電子の運動量分布の情報が反映されます。プローブである陽電子がスピン偏極している場合、電子スピンの情報も消滅ガンマ線のエネルギー分布に反映されます。以下にその詳細を記述します。

スピン統計上、陽電子と電子が結合すると、1重項と3重項が形成されます。ここで、 $P \uparrow (P \downarrow)$ と $E \uparrow (E \downarrow)$ をそれぞれ陽電子と電子の上向き（下向き）スピンとすると、1重項 ($|00\rangle$) の生成割合は、 $(P \uparrow E \downarrow - P \downarrow E \uparrow)/2$ となり、3重項 ($|11\rangle$ 、 $|1-1\rangle$ 、 $|10\rangle$) の生成割合は、 $(P \uparrow E \uparrow, P \downarrow E \downarrow, (P \uparrow E \downarrow + P \downarrow E \uparrow)/2)$ と表すことができます。例えば、陽電子と電子の両者が無偏極の場合、1重項と3重項の生成割合は、1:3となります。一方、陽電子が50%、電子が10%偏極していると、両者のスピンの平行の場合では1:3.21、反平行の場合では1:2.81の生成割合になります。したがって、プローブである陽電子ビームが偏極することにより、消滅ガンマ線を通して物質中の電子スピンの情報を得ることができます。

線源から放出される陽電子は、パリティ非保存のため、スピン偏極をしています。放出される陽電子のエネルギーが高いほど、高いスピン偏極率を持ちますが、実際にはエネルギーと方向性のそろった良質の陽電子ビームを形成する段階で、ある程度減偏極します。今回用いた ^{22}Na 陽電子線源では、陽電子ビームのスピン偏極率は約30%と見積もられました。

線源から放出される陽電子は、進行方向に偏極（縦偏極）しています。本研究では、電流誘起された物質中の電子スピンを検出するため、静電偏向器を用いて横偏極への変換を行いました。また、表面近傍に蓄積した電子スピンを高効率で検出するため、12 kVで輸送した陽電子ビームを、試料直前に取り付けられた減速管を用いて50 eVのエネルギーまで低減させ、試料表面に打ち込むことを行いました（図1）。試料表面から放出された消滅ガンマ線は、試料近傍に設置したGe半導体検出器を用いて測定しました。今回の実験では、より表面感度が高くなる、消滅ガンマ線のエネルギー分布のエネルギー領域350-495 keVの3光子消滅強度に注目し、解析を行いました。

今回は6種類（Pt、Pd、Au、Cu、Ta、W）の薄膜試料を作製し、測定に用いました。初めに、試料の通電方向を交互に変えながら、消滅ガンマ線のエネルギー分布を測定しました。図2は、50 eVのエネルギーの陽電子ビームをそれぞれの薄膜表面に打ち込んだ時に放出される消滅ガンマ線の3光子消滅強度の増加分をプロットしたものです。横軸の $+jc$ と $-jc$ は、試料に流した電流の方向を表しています（図1参照）。この結果から、AuとCu

condition that electron currents flow.

So far, we developed highly spin-polarized positron beam and successfully observed the change in the excess electron spins in ferromagnets due to the magnetic field reversal. In this study, we developed this method and tried to directly detect electron spins in materials under the condition that electron currents flow using the spin-polarized positron beam.

The positron is annihilated with the electron and hence the annihilation radiation gamma-rays are emitted. The energy distribution of the annihilation radiation gamma-rays reflects the momentum distribution of the electrons annihilated with the positrons in the material. For instance, when the positron and electron spins are anti-parallel, the annihilation probability becomes larger. The details is described below.

When the positron is bonded to the electron, singlet and triplet states are formed. The formation probability of singlet ($|00\rangle$) can be expressed by $(P \uparrow E \downarrow - P \downarrow E \uparrow)/2$, where positron and electron up- (down-) spins are denoted by $P \uparrow (P \downarrow)$ and $E \uparrow (E \downarrow)$, respectively. Similar to it, the formation probabilities of triplet ($|11\rangle$, $|1-1\rangle$, $|10\rangle$) can be expressed by $P \uparrow E \uparrow$, $P \downarrow E \downarrow$, and $(P \uparrow E \downarrow + P \downarrow E \uparrow)/2$, respectively. For example, the formation ratio of singlet to triplet is 1:3 when the positron and electron are not spin-polarized. When the spin-polarizations of the positron and electron are 50 % and 10 %, respectively, the formation ratio of singlet to triplet is 1:2.81. Thus, when the positron beam is spin-polarized, we can obtain the information about the electron spins in the materials through the annihilation radiation gamma-ray spectra.

The positron beam emitted from a radioactive source is spin-polarized owing to the parity non-conservation. The spin-polarization becomes high when the energy of the emitted positrons is large. In actual, the spin-polarization of the positron beam decreases due to the production of the beam with high quality. The spin-polarization of the positron beam used in this study (^{22}Na positron source) was estimated to be approximately 30 %.

The longitudinally polarized positrons are emitted from the source. In this study, the transversely polarized positrons are injected into the sample using an electrostatic deflector to detect electron spins in the materials. Moreover, the energy of the positron beam transported through the beam line decreases from 12 keV to 50 eV using deceleration tubes to detect electron spins at surfaces with high efficiency (see Fig. 1). The annihilation radiation gamma-rays were measured with a Ge detector, which was placed near the sample. In this experiment, we measured the intensity of three photon

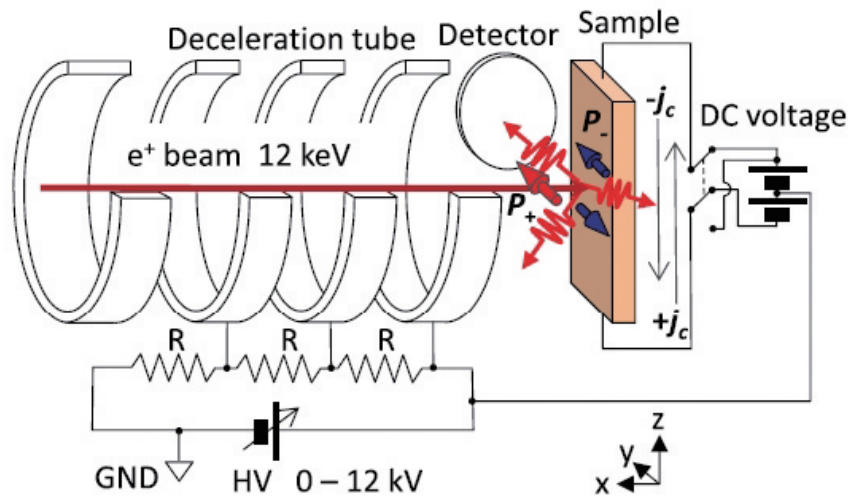


図1 スピン偏極陽電子ビームの消滅スペクトルの測定原理

線源から放出された陽電子ビームを 12 keV で輸送し、試料の直前の減速管を用いて、ビームのエネルギーを 50 eV まで下げた後に試料に入射させます。試料から放出される消滅ガンマ線は試料近傍に設置した Ge 半導体検出器によって検出します。試料に流す電流は、スイッチ回路を用いて $+j_c$ と $-j_c$ 方向に変えることができます。

Fig.1 Principle of annihilation radiation spectrum measurements using spin-polarized positron beam

Spin-polarized positron beam with an energy of 12 keV is transported through the beam line. The beam energy is decelerated to 50 eV using the deceleration tubes and then is implanted into the sample. The annihilation photons are detected by the Ge detector. The directions ($+j_c$ and $-j_c$) of currents are changed with a switch circuit.

薄膜では、電流の方向を変化させても、3光子消滅強度の増加分はほとんど変わらないことがわかりました。一方、AuとCu薄膜以外の物質では、電流の方向を交互に変えていくと、3光子消滅強度の増加分がジグザグ状に変化することがわかりました。PtとPd薄膜では、 $+j_c$ 方向に電流を流した時のほうが、逆の $-j_c$ 方向に流した時に比べ、その増加分が大きいことが見て取れます。また、TaとW薄膜では、PtとPd薄膜の時と逆の傾向がみられ、 $-j_c$ 方向に電流を流した時のほうが、3光子消滅強度の増加分が大きいことがわかりました。さらに、試料に流す電流量を変えて測定したところ、電流量が大きくなるにつれて、3光子消滅強度の増加分のジグザグの振幅が大きくなることもわかりました。

次に、電流誘起された電子スピンの方向を調べるために、試料を回転させながら、3光子消滅強度の増加分を測定しました。図3は、通電方向を固定し、試料を 0° から 180° まで 30° ずつ変化させたときの3光子消滅強度の増加分の非対称度をプロットしたものです。 $\theta = 0^\circ$ と $\theta = 180^\circ$ はそれぞれ、試料に通電した電流の向きと陽電子スピンの向きが平行と反平行の場合に対応します。ここで、非対称度は以下のように定義しました。

$$A = (\Delta R(+j_c) - \Delta R(-j_c)) / (\Delta R(+j_c) + \Delta R(-j_c)) \quad (1)$$

この結果から、3光子消滅強度の増加分の非対称度は、試料の回転角に対して、 \sin 関数のように変化することがわかりました。このことから、通電により蓄積された電子スピンは、電流に対して垂直方向のスピンの偏極を持つことがわかりました。

今回得られた結果から、電流誘起された電子スピンの

annihilation in the energy region between 350 and 495 keV.

We fabricated six different thin films as samples using a magnetron sputtering. First, we measured the intensity of three photon annihilation from these samples with changing the directions of the electron currents. Figure 2 shows the intensity increments of three photon annihilation when the spin-polarized positron beam with a energy of 50 eV is injected into the thin films (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, and W). The horizontal axis indicates the cycle number of measurement, in which the current directions ($+j_c$ and $-j_c$) were changed alternately (see Fig. 1). We found that for Au and Cu thin films, the intensity increments of three photon annihilation do no change with the direction of the electron current. On the other hand, for materials other than Au and Cu, the intensity increments of three photon annihilation regularly oscillate with changing the direction of the electron current. For Pt and Pd thin films, the intensity increments of three photon annihilation at $+j_c$ are larger than those at $-j_c$. For Ta and W thin films, the intensity increments at $-j_c$ are larger than those at $+j_c$, which is opposite to those for Pt and Pd thin films. We also measured the intensity increments of three photon annihilation with changing the density of the electron current. As a result, the amplitude of the oscillation of the intensity increments increases with increasing the density of the electron current.

In order to investigate the direction of the electron

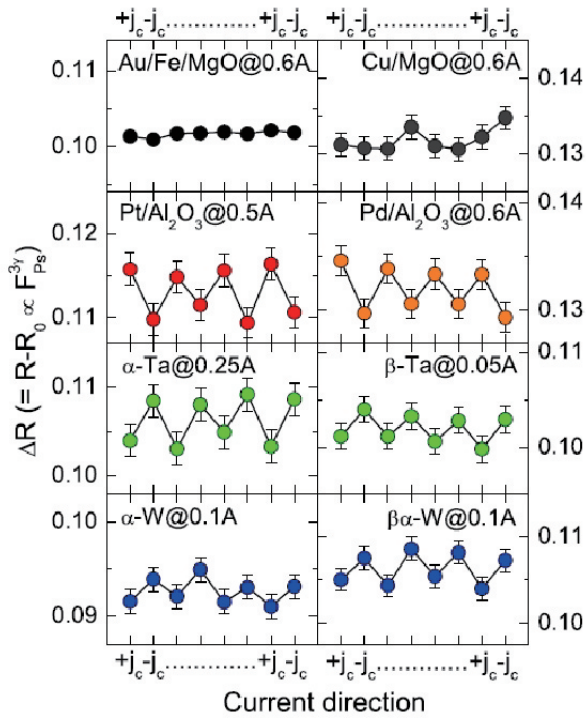


図2 50 eVのエネルギーを持つスピンの偏極陽電子ビームを6種類 (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, W)の薄膜表面に打ち込んだ時に放出される消滅ガンマ線の3光子消滅強度の増加分 (ΔR)
横軸は測定の順番を表し、電流の $+j_c$ 方向と $-j_c$ 方向を交互に変えて測定しました。

Fig.2 Intensity increments (ΔR) of three photon annihilation when spin-polarized positron beam with a energy of 50 eV is injected into six different thin films (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, and W)
Horizontal axis indicates the cycle number of measurement, in which the current directions ($+j_c$ and $-j_c$) were changed alternately.

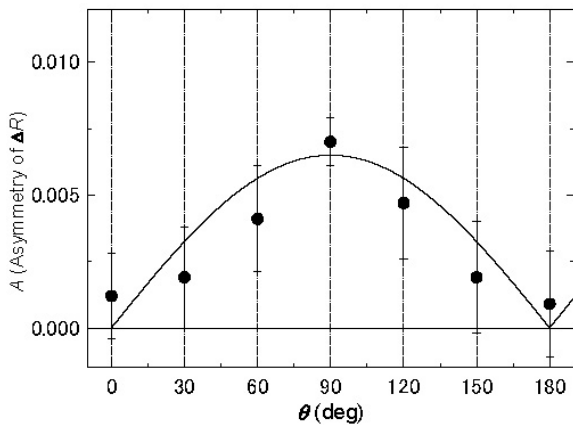


図3 Pt薄膜における3光子消滅強度の増加分の非対称度の試料回転角依存性

Fig.3 Asymmetry of the intensity increment of three photon annihilation for the Pt thin film as a function of the rotation angle of the sample

蓄積量を見積もりました。(1) 式の3光子消滅強度の増加分の非対称度は、陽電子と電子スピンの偏極度 (P_e) に比例します。図4は、今回見積もった、電流により誘起された各種薄膜表面 (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, W) に

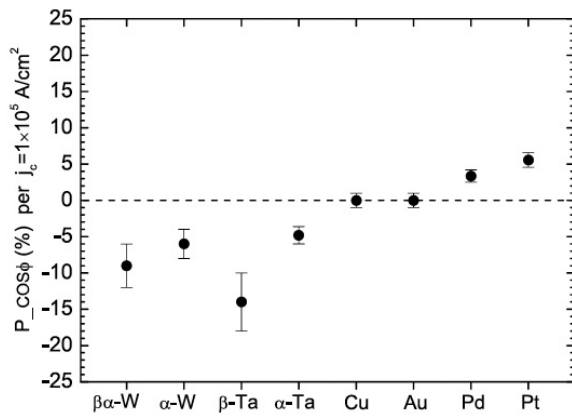


図4 今回見積もられた各種薄膜表面 (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, W) に蓄積された電子スピンのスピンの偏極率 (P_e)
ここで、 ϕ は陽電子と電子スピンの偏極方向のなす角を表しています。

Fig.4 Spin polarizations (P_e) for six different thin films (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, and W) estimated in this study
 ϕ indicates the angle between the positron and electron polarization directions.

spin induced by the electron current, we measured the intensity increments of three photon annihilation with changing the rotation angle of the sample. Figure 3 shows the asymmetry of the intensity increments of three photon annihilation for Pt thin film changing from 0 to 180° at a step of 30° with a fixed direction of the electron current. $\theta = 0^\circ$ indicate that the directions of the positron spin and the electron current are parallel. Here, we defined the asymmetry of the intensity increments of three photon annihilation as follows:

$$A = (\Delta R(+j_c) - \Delta R(-j_c)) / (\Delta R(+j_c) + \Delta R(-j_c)) \quad (1)$$

We found that the asymmetry of the intensity increments of three photon annihilation changes like a sine function with changing the rotation angle of the sample. This result indicates that the electron spins induced by the electron current is perpendicular to the direction of the electron current.

We estimated the electron spin polarization induced by the electron current. The asymmetry of the intensity increments of three photon annihilation (denoted by eq. (1)) is proportional to the product of the positron and electron spin polarizations. Figure 4 shows the electron spin polarizations estimated by using eq. (1) for various thin films (Pt, Pd, Au, Cu, Ta, W). We found that the electron spin polarizations for Pt and Pd thin films are positive and those for Ta and W are negative. For Au and Cu thin films, the electron spin polarizations are negligibly small. The sign of the electron spin polarization obtained in this study is consistent with that of spin-Hall angle determined by the other experiments

おける電子スピンのスピン偏極度をまとめたものです。PtとPd薄膜のスピン偏極度はプラスであり、TaとW薄膜ではその逆のマイナスでした。また、CuとAu薄膜のスピン偏極度はほとんど0でした。これらのスピン偏極度の符号は、別の実験で得られているスピントロニクス角の符号と一致しています[6]。このことから、今回観測した電流誘起電子スピン蓄積効果は、スピン軌道相互作用に深く関連していることがわかりました。

一方、今回得られたスピン偏極度の絶対値は数%のオーダーであり、スピン拡散理論から予想される値(0.0001%)より4桁も大きいこともわかりました。このことから、今回の結果は、通常のスピンホール効果だけでは説明できず、最表面で発現する巨大ラッシュバ効果[7]をとらえている可能性があります。

3. 成果の意義と波及効果

今回の結果は、従来の手法を用いた間接的な検出ではなく、新たに開発したスピン偏極陽電子ビームを使って、物質表面に蓄積したスピン蓄積を直接的に検出したものであり、大きな意義があります。今回の結果は、従来のスピン拡散理論では説明できないスピン蓄積が検出を示唆し、電流誘起による新たなスピン蓄積メカニズムの理論的な発展へとフィードバックされるものと思われる。これらの新たな実験手法の開発とそれによる測定結果は、さらなるスピン流発生メカニズム解明に寄与するものと思われる。

4. 今後の予定

今回の実験は、試料表面から放出されたすべてのエネルギーの消滅ガンマ線を検出しました。そのため、表面近傍の平均的なスピン蓄積を検出したこととなります。もし、放出されたポジトロニウム（陽電子と電子が結合した状態）のエネルギー分解した消滅ガンマ線スペクトルを測定することができれば、スピン蓄積の深さ分布の詳細がわかるようになり、スピントロニクスの発展に大きく寄与するものと思われる。今後は、エネルギー分解できるスピン偏極陽電子消滅装置を開発し、従来の非磁性体の表面だけでなく、最近注目を集めているトポロジカル絶縁体などの新奇材料のスピン蓄積メカニズムの解明に役立てたいと考えています。

[6]. Therefore, the electron-induced spin accumulation observed in this study is closely related to the spin-orbit interaction discussed in the spin-Hall effect.

On the other hand, the absolute value of the electron spin polarization obtained in this study reaches about a few %, which is much larger than that (0.0001%) expected by using the spin diffusion theory. Thus, this result cannot be explained only by the spin-Hall effect. This indicates the existence of additional effects such as Rashba effect [7].

3. Importance of the result and its impact

The result obtained in this study is important for the progress in spintronics because it was obtained by the direct detection of the electron spins in the materials using the spin-polarized positron annihilation method, instead of indirect detection using the conventional method. This result indicates the large electron spin polarization at material surfaces, which cannot be explained by the spin diffusion theory. Based on this result, the theoretical considerations concerning the current induced spin accumulation will be developed.

4. Perspectives

In this study, we observed the annihilation radiation gamma-ray spectrum from the reemitted positrons with a wide energy range. Thus, we obtained the averaged information about the spin accumulation near the surface of the thin film. If we observe the annihilation radiation gamma-ray spectrum from the reemitted positrons with a specific energy, we determine the depth profile of the electron spin accumulation at material surfaces. This leads to the development of the spintronics materials because the depth profile of the electron spin accumulation remains unresolved. In near future, we will develop the energy-resolved spin-polarized positron annihilation method and apply it to studies of new spintronics materials such as topological insulators.

参考文献 References

- [1] S. Murakami, N. Nagaosa, and S.-C. Zhang, *Science* **301**, 1348 (2003).
- [2] for example, S.O. Valenzuela and M. Tinkham, *Nature* **442**, 176 (2006).
- [3] M. Maekawa *et al.*, *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B* **308**, 9 (2013).
- [4] A. Kawasuso *et al.*, *J. Mag. Mag. Mater.* **342**, 139 (2013).
- [5] H. J. Zhang *et al.*, *Sci. Rep.* **4**, 4844 (2014).
- [6] T. Tanaka *et al.*, *Phys. Rev. B* **77**, 165117 (2008).
- [7] J. C. Rojas Sanchez *et al.*, *Nat. Commun.* **4**, 2944 (2013).