

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18766

研究課題名(和文) スピン偏極STM発光分光法の開発及び二次元半導体におけるスピン-光変換の解明

研究課題名(英文) Development of spin-polarized scanning tunneling luminescence spectroscopy for elucidation of spin-photon conversion in two-dimensional semiconductors

研究代表者

今田 裕 (Imada, Hiroshi)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・研究員

研究者番号：80586917

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、スピン偏極STM技術を導入することにより、我々のもつSTM発光分光法にスピン分解能を与える新技術、スピン偏極STM発光分光法(SP-STL)を開発する課題である。1,2年目までにスピン偏極STMの導入とSP-STL確立を実現し、発光物質GaAsにおいて原子スケールでのスピン-光変換ダイナミクス観測に成功した。3年目では、更なる実験と詳細な解析により、SP-STLを用いることでスピン流の緩和ダイナミクスを捉えることが可能なことを、世界で初めて明らかにした。また、こうした個別電子と光の間の角運動量変換とは別に、集団電子(プラズモン)と光の間にも角運動量相関が存在することも明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の最も大きな意義は、スピントロニクス基礎研究において、原子スケールでスピン-光変換ダイナミクスを議論できる、唯一無二の強力な手段が確立された事である。スピン-光変換も含めた、様々な機能性で注目される二次元物質は、その二次元性から欠陥や不純物に大きく影響される特徴を持つ。そのため、Photoluminescence(PL)法などでは解明できなかった欠陥や不純物によるスピン散乱を直接測定できるようになった点は、測定手法としての明らかな優位性となる。また、スピン流のダイナミクスを原子スケールで可視化できる点は、他に類を見ない測定手段が実現されたという意味で、本研究の独創的な価値である。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to develop a unique technique, spin-polarized scanning tunneling luminescence spectroscopy (SP-STL), giving spin resolution to our STL system. In the 1st and 2nd years, we have established the SP-STL system, as well as spin-polarized STM technique. It allows us to observe spin-photon conversion dynamics at the atomic scale in a semiconductor GaAs. In the 3rd year, further experiments and detailed analysis of the SP-STL measurements revealed that SP-STL captured the relaxation dynamics of spin current. In addition to the angular momentum conversion between individual electrons and photons, we also found that there is an angular momentum correlation between collective electrons (plasmon) and photons.

研究分野：ナノ光学

キーワード：スピントロニクス 光物性 走査トンネル顕微鏡

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピン-光変換は、電子のスピン状態を光の偏光状態に転写する事で、スピントロニクスにおいて電子にはない光の特性を利用可能とする重要な概念である。例えば、電子の持つ電荷とは異なり、電子のスピン状態は散乱によって失われてしまうため、マクロスケール($\geq 1 \mu\text{m}$)にスピン情報を伝達することは困難である。一方、そのスピン状態を光の円偏光に変換する事ができれば、長距離伝達も可能となる上、伝達速度の超高速化も期待できる。そのため、スピン流を高効率で円偏光に変換できるデバイスの探索が行われていた。こうした潮流の中、近年、二次元半導体である二硫化タングステン(WS_2)において、高いスピン-光変換効率(95%)を示す事が報告され、大きな注目を集めている。しかし、二次元性に由来した問題も存在し、欠陥や不純物から強い影響を受ける事やスピン注入が困難であることが、二次元半導体におけるスピン-光変換研究の進展を妨げている。

2. 研究の目的

走査トンネル顕微鏡(STM)のトンネル電流をスピン偏極電流に変換できる“スピン偏極 STM”と、STMのトンネル電流によって誘起される発光を測定する“STM発光分光法”とを融合させた、「スピン偏極 STM 発光分光」法の開発を提案する。この手法により、上記の問題に捕らわれず、 WS_2 のスピン-光変換プロセスを調べる事が可能となる。本研究では、スピン偏極 STM 発光分光法の確立、スピン-光変換における欠陥/不純物効果の解明、スピン流の原子スケールマッピング、の三研究項目を遂行する。よって、スピン-光変換プロセスにおけるブラックボックスが排除され、原子スケールでスピン流を可視化する唯一無二の測定が実現されるため、本研究は、次世代スピントロニクスにおける基礎研究手段を確立する意義をもつ。

3. 研究の方法

本研究で行ったことは、(1)新しい測定手法となるスピン偏極 STM 発光の開発、及び、(2)この手法によるスピン-光変換ダイナミクスの観測である。この実験を遂行する上で、標準試料 GaAs において予想外の重要な発見があったため、二次元物質上での探索に入る代わりに、GaAs におけるスピン-光変換ダイナミクスの詳細な解析を優先させた。

4. 研究成果

(1) スピン偏極 STM 発光の開発

スピン偏極 STM の実現には、磁性探針と磁性試料に加え、磁場印加が不可欠となる。そこで我々は、磁場コイルの導入が難しい既存の STM において、永久磁石を探針と試料の近傍に組み込む設計を行い、 $\pm 0.2\text{T}$ の定磁場印加を実現した。この技術を元に、磁性探針及び磁性試料に関する試行錯誤の末、単原子レベルでのスピン秩序状態(反強磁性秩序)観測に成功した[図 1]。他にも、磁性アイランドにおける単磁区状態や磁壁観測にも成功しており、スピン偏極 STM 技術が確立されたといえる。

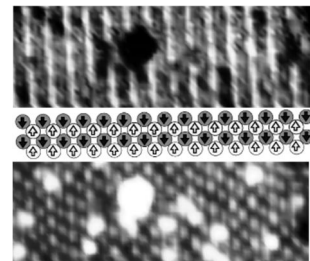


図 1. 基板上的 Fe 原子(下)とそのスピン秩序コントラスト

スピン偏極 STM は、上述のスピン秩序観測だけでなく、スピン偏極電子の注入(スピン注入)も可能にする。そのため、スピン注入を半導体などの発光物質に対して行うことにより、スピンの光に変換される際の電子ダイナミクスを明らかにできると考えられる(スピン-光変換)。そこで我々は、スピン偏極 STM を用いて半導体 GaAs にスピン注入および、その応答として生じる光の偏極を(分光とともに)測定する技術の確立を行った。こうした測定を行った結果、注入スピンの向きに応答して GaAs 発光が偏極する様子の観測に成功し[図 2]、GaAs におけるスピン-光変換プロセスを明らかにした。

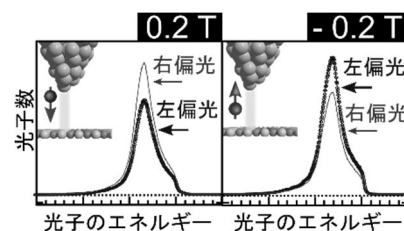


図 2. スピン偏極 STM 発光分光法の実現。スピン注入に対する GaAs の偏光発光応答を示している。

(2) スピン-光変換ダイナミクスの観測

この技術を更に発展させ、原子レベルでこの測定を実現することにより、GaAs におけるスピン偏極電子の緩和ダイナミクスをバンド選択的に可視化することに成功した。これにより、スピン偏極電子のダイナミクスを捉える新しい手法として、スピン偏極 STM 発光分光法が確立されたといえる。

また、ここで開発した偏光分光測定技術により、STM 探針が発する光(プラズモン発光)も高い偏極率を示すことが明らかとなった。これは、高い偏極率で偏光を発生させる基礎原理を解明した意義と同時に、(プラズモンが持つ光の増幅効果を考慮すると)外部から導入する光の偏極率を増強して物質に伝える“レンズ”となる可能性も示唆している。よってこれは、前述の例とは逆過程の、光によるスピン制御(光-スピン変換)が実現可能なことを示しており、今後の研究課

題となると考えている。さらに、プラズモン発光の偏極方向と注入スピンの向きに関して相関分析を行うことにより、両者に線形相関が存在する事を明らかにした。この関係は、従来の解釈では説明できないプラズモン偏光発光に関する新奇現象の存在を示しており、これまで観測し得なかった現象を、スピン偏極 STM 発光分光法により捉えることが可能になったといえる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kimura Kensuke, Miwa Kuniyuki, Imada Hiroshi, Imai-Imada Miyabi, Kawahara Shota, Takeya Jun, Kawai Maki, Galperin Michael, Kim Yousoo	4. 巻 570
2. 論文標題 Selective triplet exciton formation in a single molecule	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 210~213
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1038/s41586-019-1284-2	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jacubia Rafael B., Imada Hiroshi, Miwa Kuniyuki, Iwasa Takeshi, Takenaka Masato, Yang Bo, Kazuma Emiko, Hayazawa Norihiko, Taketsugu Tetsuya, Kim Yousoo	4. 巻 15
2. 論文標題 Single-molecule resonance Raman effect in a plasmonic nanocavity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 105~110
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1038/s41565-019-0614-8	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Imada Hiroshi, Miwa Kuniyuki, Imai-Imada Miyabi, Kawahara Shota, Kimura Kensuke, Kim Yousoo	4. 巻 119
2. 論文標題 Single-Molecule Investigation of Energy Dynamics in a Coupled Plasmon-Exciton System	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 13901
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.013901	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計25件（うち招待講演 7件/うち国際学会 10件）

1. 発表者名 今田裕, 三輪邦之, 今井みやび, 河原祥太, 木村謙介, 金有洙
2. 発表標題 光STMを用いた単一分子分光
3. 学会等名 2019年日本表面真空学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今田裕, 今井みやび, 木村謙介, 三輪邦之, 金有洙
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡を用いた単一分子の蛍光分光
3. 学会等名 第31回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木村謙介, 三輪邦之, 今田裕, 今井みやび, 河原祥太, 竹谷純一, 川合眞紀, マイケル ガルペリン, 金有洙
2. 発表標題 STM蛍光分光法を用いた選択的な三重項励起子形成の単一分子計測
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本駿玄, 今田裕, 金有洙
2. 発表標題 スピン偏極STM蛍光分光法を用いた原子精度でのスピン注入と磁気二色性の観測
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Imada
2. 発表標題 Plasmon-exciton coupling at an STM junction: fundamental and applications for spatially-resolved single-molecule spectroscopy
3. 学会等名 27th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM27) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 H. Imada
2 . 発表標題 STM study of exciton creation and annihilation in a single molecule
3 . 学会等名 The 81st Okazaki Conference "Forefront of Measurement Technologies for Surface Chemistry and Physics in Real-Space, k-Space, and Real-Time" (招待講演)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Kimura, K. Miwa, H. Imada, M. Imai-Imada, Y. Kim
2 . 発表標題 Creation of spin singlet and triplet excitons in a single molecule
3 . 学会等名 International School and Symposium on Nanoscale Transport and photonics (ISNTT2019)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 H. Imada
2 . 発表標題 Atomic-scale study of exciton creation and annihilation in a molecular system
3 . 学会等名 IBS-RIKEN Joint Conference
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Kimura, K. Miwa, H. Imada, M. Imai-Imada, S. Kawahara, J. Takeya, M. Kawai, M. Galperin, Y. Kim
2 . 発表標題 Investigation of selective triplet exciton formation in a molecule with an STM
3 . 学会等名 704.WE-Heraeus-Seminar "Exploring the Limits of Nanoscience with Scanning Probe Methods" (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 山本駿玄, 今田裕, 金有洙
2. 発表標題 スピン偏極STM発光分光法を用いた原子精度でのスピン注入と磁気二色性の観測
3. 学会等名 表面・界面スペクトロスコピー2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山本駿玄, 今田裕, 金有洙
2. 発表標題 スピン偏極STM発光分光法を用いた原子精度でのスピン注入と磁気二色性の観測
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Kimura, H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, S. Kawahara, J. Takeya, M. Kawai, Y. Kim
2. 発表標題 Investigation of the Exciton Formation in a Single Molecule with a Scanning Tunneling Microscope
3. 学会等名 American Physical Society March Meetings (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Miwa, H. Imada, F. Chen, K. Kimura, M. Imai-Imada, Y. Kim, M. Galperin
2. 発表標題 Theory of current fluctuation for single molecule junction with intra-molecule Coulomb interaction and multimode vibronic interactions
3. 学会等名 American Physical Society March Meetings (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 三輪邦之, 今田裕, 木村謙介, 今井みやび, M. Galperin, 金有洙
2. 発表標題 分子内電子間相互作用および振電相互作用を考慮した単一分子の電界誘起発光の量子多体理論,
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木村謙介, 今田裕, 三輪邦之, 今井みやび, 河原祥太, 竹谷純一, 川合眞紀, 金有洙
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡を用いた電荷注入による三重項励起子の選択的形成
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, K. Kimura, S. Kawahara, Y. Kim
2. 発表標題 Single-molecule investigation of plasmon-exciton coupling
3. 学会等名 5th Ito International Research Conference (IIRC5) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 K. Miwa, H. Imada, M. Imai-Imada, K. Kimura, Y. Kim
2. 発表標題 Interference effects on scanning tunneling microscope-induced light emission from coupled system of molecular exciton and interface plasmons
3. 学会等名 5th Ito International Research Conference (IIRC5) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 S. Yamamoto, Y. Yoshida, H. Imada, Y. Kim, Y. Hasegawa
2 . 発表標題 Direct visualization of Surface Phase of Oxygen Molecules Physisorbed on the Ag(111) Surface: A Two-dimensional Quantum Spin System
3 . 学会等名 5th Ito International Research Conference (IIRC5) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 K. Kinura, H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, S. Kawahara, J. Takaya, M. Kawai, Y. Kim
2 . 発表標題 Phosphorescence detection from a single molecule with an STM
3 . 学会等名 5th Ito International Research Conference (IIRC5) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 H. Imada
2 . 発表標題 Spectroscopic investigation of single molecule energy dynamics with a scanning tunneling microscope
3 . 学会等名 The 4th International Conference & Exhibition for Nanotechnology(NANOPIA 2017) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 H. Imada
2 . 発表標題 Single molecule investigation of energy absorption, emission, and transfer dynamics with a scanning tunneling microscope
3 . 学会等名 Nano Korea 2017 (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1. 発表者名 今田裕
2. 発表標題 光と走査トンネル顕微鏡を組み合わせる単一分子エネルギー変換/移動ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三輪邦之, 今田裕, 木村謙介, Michael Galperin, 金有洙
2. 発表標題 単一分子の電界誘起発光における電子相関効果
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 木村謙介, 今田裕, 三輪邦之, 今井みやび, 河原祥太, 竹谷純一, 川合眞紀, 金有洙
2. 発表標題 絶縁体超薄膜上に吸着したPTCDA単一分子からの選択的な燐光発生
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 今田裕
2. 発表標題 光STMを用いた単一分子エネルギーダイナミクスの分光解析
3. 学会等名 第37回表面科学学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----