

令和 6 年 5 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14598

研究課題名（和文）スピン分解走査トンネル顕微鏡による強磁性共鳴の観測と磁化制御

研究課題名（英文）Detection of ferromagnetic resonance and control of magnetization by spin-resolved scanning tunneling microscopy

研究代表者

土師 将裕（Haze, Masahiro）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：50805869

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は走査トンネル顕微鏡（STM）法を用いたナノスケールでの磁気共鳴手法を開発し、ナノサイズの磁性体の動的特性を明らかにすることを目指すものである。本研究を通して、約16GHzという非常に高い周波数の電場印加可能なSTMの開発に成功した。また、単原子層磁性体である臭化クロム薄膜の作製に成功した。磁気共鳴を検出するために通常のSTM法より感度の高い走査トンネルポテンシオメトリ（STP）法に着目し、極低温STP手法の開発にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究を通して、単原子層磁性体薄膜を作製した。これまで、超伝導体や半導体など、様々な単原子層薄膜が作製されてきたが、磁性体の例は多くない。単原子層磁性体薄膜は、本研究で対象としたナノサイズ磁性体としてだけでなく、界面現象の研究にも応用可能であり、大きな意義がある。また、本研究を通して開発された極低温走査トンネルポテンシオメトリ法はナノメートルスケールかつ高感度での化学ポテンシャルを測定できるため、共鳴によって誘起されるスピンポテンシャル検出への応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：The purposes of this research are development of the system to detect nanoscale ferromagnetic resonance using scanning tunneling microscopy (STM) and investigation of dynamic properties of nanosized magnetic materials. We developed the STM system, which can apply very high frequency (about 16GHz) electric field. We also successfully fabricated monolayer chromium bromide, which shows a ferromagnetic order. In addition, to perform high sensitive measurements, we focus on scanning tunneling potentiometry (STP) methods. We developed low temperature STP system successfully.

研究分野：表面科学

キーワード：走査トンネル顕微鏡 磁気共鳴 化学ポテンシャル

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ナノデバイス開発にはナノサイズ構造体の評価は不可欠であり、その意味で、原子スケールでの電子状態と構造評価が可能な走査トンネル顕微鏡 (STM) は多大な貢献を果たしてきた。磁気・スピン構造の評価には、探針を磁性体に置き換えて STM 測定を行うスピン分解 STM と呼ばれる手法 (図 1) が有効であり、ナノ磁性体の評価手法として注目を集めている。

他方、STM 探針からの電場や電流などによって、表面原子を動かしたり励起させたりなど、原子スケールでの制御が STM を用いて実現可能であることが報告されている。

さらに近年、スピン分解 STM を応用して、単原子上での電子スピン共鳴を観測したことが報告され始めており、これらを組み合わせることで、磁性探針を用いた磁性体の磁化操作の提案はなされているが、上述の技術的な困難さから、実現報告は数える程度である。

そこで、STM 探針による個々のナノサイズ磁性体の共鳴検出及び制御の実現が可能か、またマクロサイズ磁性体と比較してどのようなナノサイズ効果が発現するのかという問いに対して取り組む。

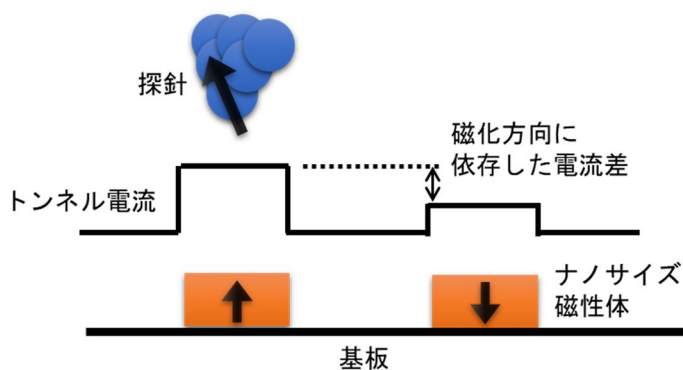


図 1 磁性体アイランド上でのスピン分解 STM 測定の模式図

2. 研究の目的

本研究では、磁性探針を用いた、磁性原子や分子、ナノアイランドなど、ナノサイズ磁性体の自在制御の実現させる先進的技術開発を目的とする。

ここでは、数層薄膜で形成されたナノサイズ磁性体アイランド構造に着目する。ナノサイズ磁性体を制御することは、数ナノメートルレベルの小ささまで高密度に集積された磁性体デバイスに向けて重要な課題である。STM 探針による磁化制御の困難さは手法そのものの困難さに加え、磁気異方性の制御が十分になされていないことにある。強磁性体は磁気異方性を持っており、その異方性の方向によって、面直もしくは面内方向に判定して磁化方向を保持している。特に、面直方向に磁化されたナノサイズ磁性体は、集積化において有利なことから注目されている。情報を保持するために強い磁気異方性があることは重要であるが、一方で磁化制御が困難であることを意味する。したがって、その磁気異方性を制御することは必要不可欠である。本研究では強磁性共鳴によって有効的に磁気異方性を抑制させる手法を用いて磁気異方性の制御を行う。

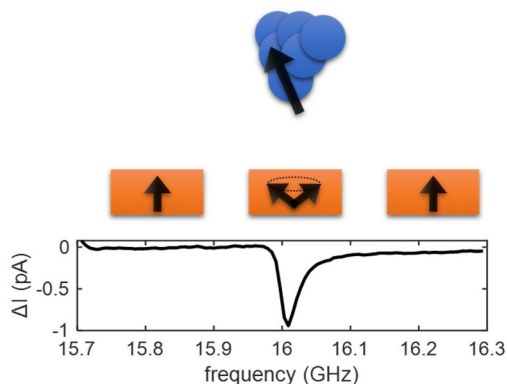


図 2 (上図) 磁気共鳴の模式図 (下図) MgO 上の Ti 原子で取得したスピン共鳴スペクトル

3. 研究の方法

STM を用いてナノサイズ磁性体の共鳴検出及び制御を目的としている。そのために、スピン分解 STM を用いて実効的な面直成分の磁化に関する情報を得る。高周波電場を印加した時、図 2 (上図) のように、印加電場

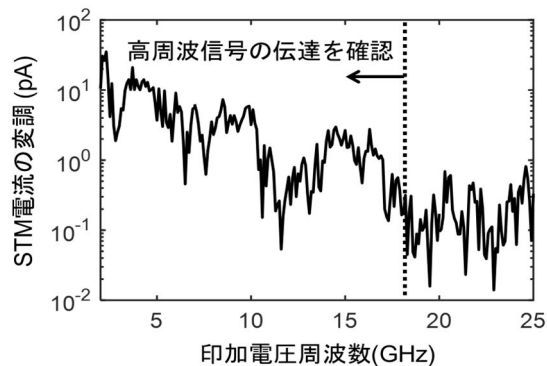


図 3 高周波電圧印加した時の STM 電圧変調。18GHz 以下では明確な電流変調が観察され、これは高周波電場が印加できていることを意味する。

周波数が強磁性共鳴周波数に一致した時、実効的に磁化の面直成分が抑制され、スピン分解 STM 信号の差として検出できることが期待される。(図 2 下図)このように、強磁性共鳴を引き起こすため探針試料間に GHz オーダーの高周波電場を印加し、強磁性共鳴を誘起する。電場による磁気共鳴は、Heinrich らによってその有効性が実証されているため、本研究でも同様の手法を採用する。

探針試料間に高周波電場を印加するために、高周波対応ケーブルを導入し動作確認を行ったところ、約 18GHz までの高周波印加に成功した(図 3)。

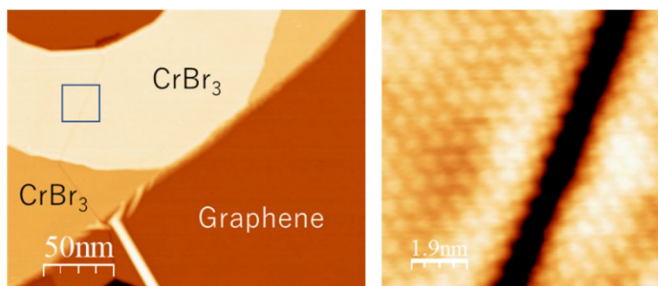


図 4 臭化クロム(III)薄膜の STM 像
(左) 100×80nm の範囲 (右) 9.5×9.5nm の範囲
相境界や原子レベルで平坦なテラスが確認できる

4. 研究成果

当初は Fe や Co 等の磁性体を用いることを計画していたが、異方性の制御が困難であり、システムで到達可能な周波数領域での共鳴観測が困難であることが判明した。そこで、臭化クロム薄膜に着目した。臭化クロムはそれ自身が異方性が大きくないため、異方性制御の必要は無い。従って、臭化クロム薄膜作製と STM 測定に取り組んだ。臭化クロムはバルクの場合は層状物質であり、層間はファンデルワールス力で結合している。そのような物質の場合、ファンデルワールス結合している物質を基盤として用いるが適切であることが知られている。そこで、炭化珪素上に形成されたグラフェンを基盤として用いた。で図 4 に臭化クロム薄膜の STM 像を示す。広い範囲で原子レベルで平坦な表面が観察されていることがわかる。さらに、臭化クロム領域を拡大して観察すると、原子像が観察された。ここから、原子レベルで平坦で非常に高品質な薄膜作製に成功したことが示された。

次に、スピン分解 STM の標準試料の一つである、W(110)上に形成された Fe 薄膜を用いてスピン分解 STM 測定を行った。図 5 にその成果を示す。明るい領域は下向きに磁化しており暗い領域は上向きに磁化していることを表している。外部磁場を上向きに印加するにしたがって、暗い領域が増えているが、それは各領域が外部磁場に沿った方向に磁化されていることを占めている。ここからスピン分解 STM は正常に働いていることが判る。一方、共鳴検出に取り組んだものの、今回共鳴観測には至らなかった。

そこで、検出感度の向上に取り組んだ。高感度検出方法として、走査トンネルポテンシオメトリ(STP)法に着目した。STP 法とは、表面の電気化学ポテンシャルを実空間で観察する手法である。エネルギー分解能はマイクロ電子ボルトスケールであり、通常の STM に比べて高エネルギー分解能を達成することができる。一方、STM をベースとしているため、サブナノメートルスケールの空間分解能を持つという利点がある。本手法が共鳴検出に有用であると考えている。検出方法の模式図を図 6 に示す。金属と磁性体界面を作製し、磁性体を共鳴励起させると、スピンポンピングと呼ばれる現象が発生する。この現象が発生したとき、その金属側にスピン流が発生する。スピン流が発生した場合スピンポテンシャルが発生するため、そのポテンシ

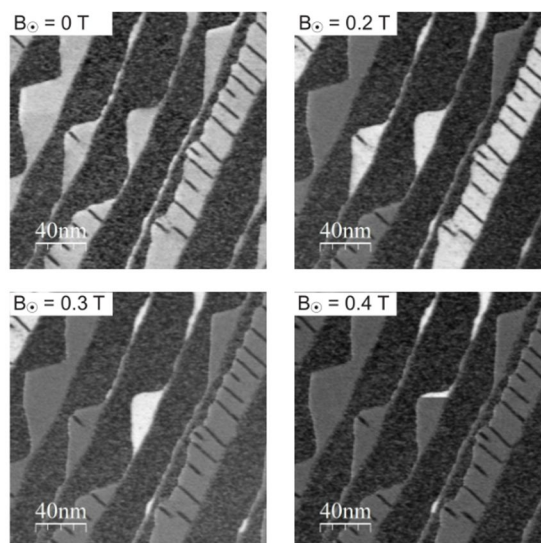


図 5 W(110)上に形成された Fe₂ 層薄膜上で取得されたスピン分解 STM 像

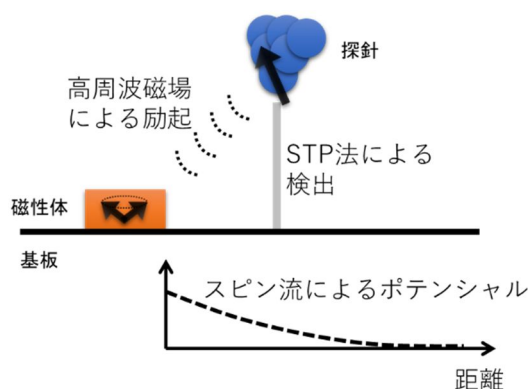


図 6 走査トンネルポテンシオメトリ法を用いた強磁性共鳴計測

ヤルの変化を STP 法を用いて検出する。

しかしながら、STP 法は確立された手法とは言いがたく、システム開発が必要となる。特に、本研究で対象としているような極低温環境での測定例はほとんどない。そこでまずは極低温 STP 法の開発に取り組んだ。

極低温 STP 法の試料のために、Si(111)上に鉛単原子層薄膜[Y. Sato, M. Haze et al., Phys. Rev. Lett. **130**, 106002 (2023).]を作製した。ここで、純粋に単原子層薄膜のポテンシャルを測定するために、Si(111)基板はドーピングを施していない絶縁体を用いた。通常絶縁体基板は伝導性が必要な STM 測定には不向きであり測定自体が困難であるが、予めタンタルで電極を作製しておき、単原子層薄膜自体と電極との伝導を持たせることで、測定を達成した。

図7にその結果を示す。左がトポグラフィ像、右がポテンシャル像を示す。ここで、ポテンシャルを正しく検出できていることを確かめるため、図の左側から右側に向かって電流を流してポテンシャル勾配を持たせている。そのポテンシャル勾配に従って、ポテンシャル像においても勾配が検出できていることがわかる。ここから、ナノスケールでの電気化学ポテンシャル測定が極低温で達成された[論文準備中]。

本結果はスピンプンピングによって発生したスピンポテンシャルを通した磁気共鳴検出につながる非常に重要な結果となった。

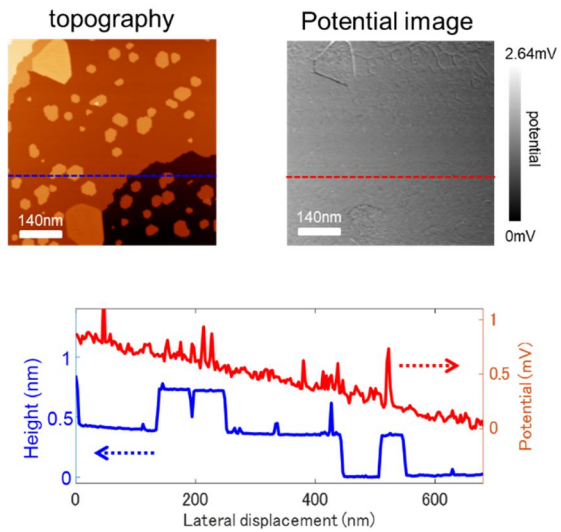


図7 走査トンネルポテンシオメトリ法を用いた強磁性共鳴計測

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Wang Yu, Haze Masahiro, Bui Hong T., Soe We-hyo, Aubin Herve, Ardavan Arzhang, Heinrich Andreas J., Phark Soo-hyon	4. 巻 9
2. 論文標題 Universal quantum control of an atomic spin qubit on a surface	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 npj Quantum Information	6. 最初と最後の頁 1~6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41534-023-00716-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Phark Soo-hyon, Chen Yi, Bui Hong T., Wang Yu, Haze Masahiro, Kim Jinkyung, Bae Yujeong, Heinrich Andreas J., Wolf Christoph	4. 巻 17
2. 論文標題 Double-Resonance Spectroscopy of Coupled Electron Spins on a Surface	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 14144 ~ 14151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.3c04754	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 該当する
1. 著者名 Wang Yu, Chen Yi, Bui Hong T., Wolf Christoph, Haze Masahiro, Mier Cristina, Kim Jinkyung, Choi Deung-Jang, Lutz Christopher P., Bae Yujeong, Phark Soo-hyon, Heinrich Andreas J.	4. 巻 382
2. 論文標題 An atomic-scale multi-qubit platform	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science	6. 最初と最後の頁 87 ~ 92
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/science.ade5050	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 該当する
1. 著者名 Sato Yudai, Haze Masahiro, Nemoto Ryohei, Qian Wenxuan, Yoshizawa Shunsuke, Uchihashi Takashi, Hasegawa Yukio	4. 巻 130
2. 論文標題 Squeezed Abrikosov-Josephson Vortex in Atomic-Layer Pb Superconductors Formed on Vicinal Si(111) Substrates	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 106002-1 から -6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.130.106002	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10件(うち招待講演 1件/うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Masahiro Haze, Yoshinori Nakanishi-Ohno, Yudai Sato, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Monte Carlo based method for fitting of a superconducting spectrum measured by low temperature STM
3. 学会等名 EUROPEAN CONFERENCE ON SURFACE SCIENCE 36 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yudai Sato, Masahiro Haze Shunsuke Yoshizawa, Takashi Uchihashi, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Microscopic Study of Quantum Phase Transition on Atomic Layer Superconductors
3. 学会等名 EUROPEAN CONFERENCE ON SURFACE SCIENCE 36 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Haze, Masayuki Hamada, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Scanning tunneling microscopy/potentiometry on metal monolayer films formed on Si(111)
3. 学会等名 31st International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Haze, Yudai Sato, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Quantum Phase Transition on Atomic Layer Superconductor
3. 学会等名 ASPM Fall 2023 Workshop (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Haze
2. 発表標題 Quantum control of atomic spin quantum bit
3. 学会等名 The 8th University of Tokyo-Tsinghua University Joint Symposium 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 浜田雅之, 土師将裕, 長谷川幸雄
2. 発表標題 The development of low-temperature scanning tunneling potentiometry (II)
3. 学会等名 2023年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 土師将裕, 浜田雅之, 佐藤優大, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Surface conductivity on monolayer Pb films formed on Si(111) measured by low temperature scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 2023年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 土師将裕, 中西(大野)義典, 佐藤優大, 長谷川幸雄
2. 発表標題 モンテカルロ法によるSTMスペクトル解析
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 土師将裕, 浜田雅之, 長谷川幸雄
2. 発表標題 磁場印加下における極低温走査トンネルポテンショメトリ測定
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Masahiro Haze
2. 発表標題 Magnetic properties studied by scanning tunneling microscopy combined with radio frequency
3. 学会等名 THE 22ND INTERNATIONAL VACUUM CONGRESS IVC-22
4. 発表年 2023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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------