

## スピンドイナミクス可視化技術の開拓と 新奇機能素子開発への展開

Exploring spin dynamics visualization and  
its application to new functional devices

重川 秀実 (SHIGEKAWA HIDEMI)

筑波大学・数理物質系・教授



### 研究の概要：

走査トンネル顕微鏡に量子光学の技術を融合し、時空両領域で極限的な分解能を有する顕微鏡法を開発してきた。本プロジェクトでは、こうした技術を更に発展させ、スピンのダイナミクスまで含めた現象をSTMを用いて計測することが可能な新しい顕微鏡技術を開拓することを目指す。光学的ポンププローブ法で観察されてきた幅広い領域にまたがる現象をSTMで評価する技術の開発が、ナノスケール科学の新たな展開に役立つことを願っている。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性

キーワード：走査トンネル顕微鏡、スピン、超高速分光、イメージング、ナノ科学

### 1. 研究開始当初の背景

例えば、半導体素子はそのサイズが数十nmで制限される領域に達し、特性を制御するために導入されたドーパントの空間分布や界面の揺らぎが、得られる機能に直接影響を及ぼす段階に至っている。現在、電荷に加えスピンを利用した新しい特性を持つ機能材料・素子の開発が盛んであるが、局所的な秩序や構造の揺らぎは電荷同様スピンの生成や消滅、相互作用（量子相間）などにも大きな影響を与え、これら過程の理解と制御が重要な課題となる。しかし、最近の著しい進展による社会の要請にもかかわらず解決すべき課題は多く、ナノスケールの量子ダイナミクスを定量的に解析した結果を基盤とする議論、科学としての展開は、まだ端緒にすぎない。

### 2. 研究の目的

我々は、これまで、高い空間分解能を持つ走査プローブ顕微鏡（SPM）を核として、例えば、光励起によるエネルギー及び時間領域での選択制・分解能を組み合わせることで、ナノスケールでの新しい計測・解析法を開発する試みを進め、これら極限領域での制御・物性実験が可能な装置・手法を開拓してきた。

本プロジェクトは、これまでに開発を進めてきた時間分解走査トンネル顕微鏡（STM）技術を更に展開し、機能材料・素子中のスピンドイナミクスをナノスケールで計測し実空間で可視化する為の新しい基盤技術の

確立を目指すものである。スピンまで含めた様々な状態間の遷移や相間などの局所特性を明らかにする基盤技術を開発することで、例えば、現在、急速に進展中のスピントロニクスにおける重要課題である、スピンドイナミクス機構の詳細、微細構造と特性ゆらぎの関係など、量子マニピュレーションを基盤として展開する新たな機能材料・素子開発のための指針を得ることも可能になるものと期待している。

### 3. 研究の方法

先に述べたように、STMとその関連技術に光学的な手法を融合させることで、キャリアダイナミクス（電荷）を実空間・ナノスケールで可視化する技術を開発してきた。素子中に注入された少数キャリアの様子や、異なる寿命を持つ材料からなる微細構造中のキャリアダイナミクスの空間マッピングが可能になっている。これに励起光や探針を制御する機構を組み込むことで、磁性の選択性を導入し、スピンのダイナミクスの計測・解析技術を取り入れることを試みる。

光学的なスピン制御は広く開発されてきた技術であるが、これをSTMと組み合わせるには、乗り越えなくてはならない多くの課題が存在する。そこで、まず時間分解STMの基本原則を改めて詳細に解析するとともに、それを基に、微弱なスピン関連の信号を取り出すシステム開発を押し進める。

最近、マルチトンネル分光なども可能な段階になりつつあるが、常に、こうした技術を導入することで、新しい情報を得るための新しい技術開発を工夫・検討する取り組みが大切であると考えている。

#### 4. これまでの成果

##### (1) 測定技術の高度化：

アトムトラッキング法を組み合わせ探針の位置を制御することで、単一原子レベルでの時間分解測定に成功した。原子レベルの分解能で光励起キャリアダイナミックスの計測を可能にした初めての結果である。単一原子を対象とすることで理論計算との比較も容易になり、新たな展開を生む可能性を持つものと期待している。他、内蔵電位の評価等。

##### (2) 光励起キャリアの直接計測：

スピン計測の準備として、間接遷移のバンド構造を持つ  $\text{WSe}_2$  を試料として光励起電流の直接計測を試み、バルク側で励起されたキャリアの拡散電流、表面に一時的に捕獲されたキャリアダイナミックスの測定（通常の測定法では検出できない）に初めて成功した。

##### (3) 時間分解信号の解析：

時間分解信号の起源を明らかにする事を目的として、シミュレーションを行い実験と比較することで、半導体を試料とする複雑な計測過程を解析し、信頼できる測定を行う為の条件などを明らかにする事を試みた。光量依存性の実験結果とシミュレーションの結果の一致は非常によく、まず、モデルの妥当性が示された。これら結果を基に、上述の単一原子レベルでの信号や、スピン計測実験の解析などを行い、メカニズムを理解するとともに、信頼できる測定条件などを確認した。

##### (4) スピン計測用 STM システムの構築：

低温、2軸磁場、光励起導入が可能で、広帯域の信号を計測可能な新しい装置を開発し、目的とした性能が得られることを確認。

##### (5) 新しい円偏光変調法の開発：

新しい円偏光の変調方式を開発し、評価を兼ねて STM を用いたピコ秒領域の光励起スピン緩和寿命の測定を試み成功した。

##### (6) スピンダイナミックス計測実験：

上記手法を用いた更に詳細な実験を進め、GaAs を試料として、スピン寿命の温度依存性や Mn 吸着量によるスピン寿命の変化などを直接計測することに成功した。何れもピコ秒レベルのスピンダイナミックスを STM で時間分解測定した初めての結果である。

#### 5. 今後の計画

これまでに得られた結果を基に、1. ナノスケール構造を持つ試料を対象としたスピン輸送ダイナミックスに関する計測や、2. 磁場を絡めたスピン歳差運動の計測等、次段階のレベルの技術開発を押し進める予定である。

こうした試みには、例えば磁場の安定性が必要不可欠であるが、磁場を評価しながら実

験を行える新しい仕組みを導入済みである。また、新しく考案した試料台を作製しており、先に述べた広帯域の計測システムと組み合わせることで、スピンダイナミックスを高い精度で制御しながら測定することを試みる。

励起光の波長を調整するには、より高い光強度を持つレーザーの導入が望ましいが、それは今後の課題として、まずは、試料を調整することで対応することを検討する。

その他の試みを含め、引き続き魅力ある成果を出せるよう、皆で取り組む所存である。

#### 6. これまでの主な発表論文・授賞等

(1) S. Yoshida, Y. Terada, M. Yokota, O. Takeuchi, H. Oigawa and H. Shigekawa: Optical pump-probe STM probing ultrafast dynamics on the nanoscale, *European Physical Journal*, in print.

(2) S. Yoshida, M. Yokota, O. Takeuchi, H. Oigawa, Y. Mera, and H. Shigekawa: Single-Atomic-Level Probe of Transient Carrier Dynamics by Laser-Combined STM, *Appl. Phys. Exp.*, 6, 032401 (2013).

(3) S. Yoshida, Y. Terada, M. Yokota, O. Takeuchi, Y. Mera, and H. Shigekawa: Direct Probing of Transient Photocurrent Dynamics in p-WSe<sub>2</sub> by Time-Resolved STM, *Appl. Phys. Exp.*, 6, 016601 (2013).

(4) S. Yoshida, Y. Terada, R. Oshima, O. Takeuchi and H. Shigekawa: Nanoscale probe of transient carrier dynamics modulated in GaAs-PIN junction by laser-combined STM, *Nanoscale* 4 (3), 757 (2012).

(5) H. Shigekawa, S. Yoshida, M. Yoshimura and Y. Mera: Laser-combined STM and related techniques for the analysis of nanoparticles/clusters, *Nanoparticle/Book I*, ed. A. Hashim, INTECH, 2012.

(6) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa: Laser-Combined STM on the Carrier Dynamics in LT-GaAs/AlGaAs/GaAs, *Advances in Optical Technologies*, 2011, 510186 (2011)

(7) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa: Real space imaging of transient carrier dynamics by nanoscale pump-probe microscopy, *Nature Photonics*, 4, 12, 869 (2010).

(8) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa: Laser-combined STM for probing ultrafast transient dynamics, *J. of Phys.: Con. Mat.* 22, 264008 (2010).

(9) 日本表面科学会学会賞

(10) 応用物理学会フェロー

(11) 日本表面科学会フェロー  
ホームページ等

<http://dora.bk.tsukuba.ac.jp/>