

博士論文

走査トンネル顕微鏡によるカイラル磁性の
微視的評価と準粒子干渉の高効率計測

土師将裕

論文要旨

本論文は、以下の3項目で構成されている。

1. スピン偏極 STM を用いたカイラル磁性薄膜の実空間観察
2. スピン偏極 STM に適用可能な探針の特性評価
3. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化

1. スピン偏極 STM を用いたカイラル磁性薄膜の実空間観察

空間反転対称性が破れている表面や界面では、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用(DMI)によって、複雑な磁気秩序が引き起こされることがある。重い元素からなる基板（タンゲステンなど）の上に形成された磁性薄膜（鉄やマンガンなど）では、基板の持つ大きなスピン軌道相互作用によって界面 DMI が実効的に働く。このような磁性薄膜は基板と薄膜の組み合わせによって様々なカイラル磁気構造を示すことが報告されており、またそれらは DMI ベクトルの符号によって決定される特定の回転方向を持つ。DMI ベクトルの符号の決定には基板が大きく寄与しているとの報告があるが、薄膜の材料や厚さによって DMI ベクトルの符号がどのように変化するかは明らかではない。

本研究では、薄膜を構成する元素や厚さによって様々なカイラル磁気構造を示す W(110) 基板に着目した。W(110)上の単層及び二層の Mn 薄膜は、スピン偏極走査トンネル顕微鏡(SP-STM)によって、異なる構造のらせん磁性を示すことが報告されている。したがって、この二つの系から膜厚による回転方向の比較が可能である。しかし、二層 Mn 薄膜に関しては、カイラリティの有無や回転方向は明らかになっておらず、また、単層 Mn 薄膜に関しても、回転方向は左巻きと理論的には予測されているものの、実験的に調べた報告は無い。

そこで、二層 Mn 薄膜の磁気構造のカイラリティを調べ、DMI がらせん磁性の形成に寄与しているかを調べることで、一層 Mn の回転方向を調べ、二層 Mn との比較から DMI への基板と膜厚の寄与を明らかにした。

これらの実験から、二層 Mn 薄膜は右巻き、単層 Mn 薄膜は左巻きであることが判った。一見すると、これらは逆巻きであるように見えるが、以下の考察から DMI ベクトルの符号は同じであることが判る。単層 Mn 薄膜は反強磁性構造を有しているので、模式的に ($\downarrow \rightarrow \uparrow$) と表される。一方、二層 Mn 薄膜は ($\downarrow \leftarrow \uparrow$) と表される。前述の式からわかるように DMI は隣り合うスピンの外積の向きによって安定なスピン配置を決定する。隣り合うスピンの注目すると、外積の方向はいずれも同じであり、DMI の符号も同じといえる。以上から、単層および二層 Mn 薄膜の DMI ベクトルの符号は変化せず、DMI ベクトルの符号決定には、基板の影響が支配的であることを示唆している。

2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡に適用可能な探針の特性評価

SP-STM を行うに当たって、どのような磁性探針を選ぶかは重要な課題である。従来、STM で通常用いられる W 探針に磁性薄膜を蒸着したものが広く用いられてきたが、近年、反強磁性体である Cr のロッドを電気化学エッチングにより尖らせた探針（バルク Cr 探針）が、その作製の容易さから注目を集めている。磁性体を直接先鋭化させた探針は、スピン信号を与える意味で SP-STM 測定に有効と思われるが、Cr 以外の磁性体を用いた測定は行われておらず、その特性は明らかではない。そこで、W 探針に Fe を被覆した Fe 薄膜探針、バルク Cr 探針に加え、バルク Ni 探針、バルク Fe 探針の 4 つの探針の SP-STM 測定における特性を評価し、比較することを行った。

その結果、これらの 4 つの探針はいずれも SP-STM 探針として機能することが判った。また、面直方向に ± 2 T の磁場を印加して SP-STM 測定を行ったところ、バルク Ni 探針、バルク Fe 探針、Fe 薄膜探針では、取得した SP-STM 像のコントラストの反転が観察された。これは、探針の磁化方向が外部磁場によって反転することを意味する。一方、反強磁性体である Cr 探針では反転せず、外部磁場による磁化方向制御は難しいことを示す。同様に、面内磁場 ± 1 T での SP-STM 測定を行うと、Fe 薄膜探針では、SP-STM 像のコントラストは反転するが、Cr 探針では反転しなかった。一方、バルク Ni 探針とバルク Fe 探針では、走査領域が大きく移動し、安定した測定が困難であった。探針全体が強磁性体のため、磁場により強い横向きの力を受けたためと考えられる。

3. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化

準粒子干渉(Quasi-particle interference; QPI)とは、表面内に 2 次元的に束縛された準粒子（電子）の干渉現象であり、走査トンネル分光(STS)により観測される。QPI パターンの解析から表面電子状態の波数空間での情報が得られるため、QPI 計測により、フェルミ面形状やエネルギー分散関係を導き出すことができる。STS は極低温強磁場中でも利用可能であり、そうした環境下での電子状態を解明する上で非常に強力な手法である。最近では、単純な金属表面のみならず、トポロジカル絶縁体や非従来型超伝導体へと拡がりを見せており、さらにスピン偏極 STS を用いれば、スピン偏極した電子状態の観測も期待されている。しかし、QPI 計測を行うためには、長時間の測定が必要になり、作業効率が極めて悪い。

そこで、本研究では QPI パターンの波数空間におけるスパース性（信号のほとんどの構成要素がゼロ値を持つ性質）に着目し、圧縮センシングの手法の一つである LASSO (Least Absolute Shrinkage and Selection Operator)により、QPI 計測に要する時間を短縮できることを明らかにした。測定対象には、単純な円形の QPI パターンを示す Ag(111)表面を用いた。極低温 STM による同表面の QPI パターンから、LASSO により、サンプリング点数を減らしても QPI パターンの復元が可能なことを示した。

目次

1. 序論.....	1
1.1. はじめに.....	1
1.1.1. スピン偏極走査トンネル顕微鏡を用いたカイラル磁性薄膜観察.....	4
1.1.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡に用いられる探針.....	6
1.1.3. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化.....	7
1.2. 本論文の目的.....	8
1.3. 本論文の構成.....	9
2. Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用とカイラル磁性体.....	10
2.1. Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用とカイラル磁性体.....	10
2.2. 守谷ルール.....	13
2.3. 界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用.....	15
2.4. 界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の応用例.....	16
2.5. W(110)上の Mn 薄膜.....	19
2.6. カイラル磁性体の測定方法.....	20
3. 走査トンネル顕微鏡とスピン偏極走査トンネル顕微鏡.....	24
3.1. 走査トンネル顕微鏡.....	24
3.1.1. 走査トンネル顕微鏡の概要.....	24
3.1.2. 走査トンネル顕微鏡の原理.....	24
3.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡.....	27
3.2.1. スピン偏極走査トンネル顕微鏡の概要.....	27
3.2.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡の原理.....	28
3.3. ^4He 冷却型超高真空極低温 STM 装置の構成.....	30
4. W(110)上の Mn 薄膜の実空間観察.....	34
4.1. W(110)上の一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜の磁気構造.....	34
4.1.1. W と Mn の基礎物性.....	34
4.1.2. W(110)上の一層 Mn 薄膜.....	34
4.1.3. W(110)上の二層 Mn 薄膜.....	37
4.2. 試料の作製.....	38
4.2.1. W(110)基板の清浄化.....	38
4.2.2. Mn 薄膜の作製.....	41
4.3. 一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜上で取得した電子状態.....	43
4.4. 一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像.....	44

4.4.1.	一層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像	44
4.4.2.	Tunneling Anisotropic Magnetoresistance (TAMR)	46
4.4.3.	二層 Mn 薄膜上で取得した SP-STM 像	47
4.5.	二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極した電子状態	49
4.6.	一層 Mn 薄膜の回転型	50
4.6.1.	回転型とは	50
4.6.2.	回転型の調べ方	50
4.6.3.	測定結果	51
4.6.4.	考察	53
4.7.	二層 Mn 薄膜の回転方向	54
4.7.1.	二層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方	54
4.7.3.	二層 Mn 薄膜のカイラリティ	58
4.8.	一層 Mn 薄膜の回転方向	59
4.8.1.	スピン偏極した成分とスピン偏極していない成分の分離	59
4.8.2.	一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方	60
4.8.3.	一層 Mn 薄膜の回転方向の測定結果	62
4.8.4.	一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方 その 2	64
4.8.5.	一層 Mn 薄膜の回転方向の測定結果 その 2	65
4.9.	W(110)基板上に形成された磁性薄膜の回転方向	67
4.9.1.	一層及び二層 Mn 薄膜	67
4.9.2.	二層 Fe 薄膜	67
4.9.3.	一層 Cr 薄膜	68
4.9.4.	W(110)上の磁性薄膜	68
4.10.	本章のまとめ	72
5.	スピン偏極探針の評価	73
5.1.	スピン偏極探針の重要性	73
5.2.	探針の作製	74
5.2.1.	バルク探針	74
5.2.2.	薄膜探針	75
5.3.	バルク探針を用いたスピン偏極 STM 測定	76
5.3.1.	バルク Cr 探針	76
5.3.2.	バルク Fe 探針	78
5.3.3.	バルク Ni 探針	80
5.3.4.	バルク Fe 探針とバルク Ni 探針	83
5.4.	薄膜探針を用いたスピン偏極 STM 測定	84
5.5.	本章のまとめ	85

6. 準粒子干渉計測と圧縮センシング	87
6.1. 準粒子干渉計測とは.....	87
6.2. 走査トンネル分光を用いた準粒子干渉計測の課題	89
6.3. 圧縮センシングとは.....	90
6.4. 圧縮センシングの問題設定.....	91
6.5. 解の推定手法.....	92
6.5.1. 一般逆行列 (l_2 ノルム最小化)	93
6.5.2. l_0 ノルム最小化.....	95
6.5.3. l_1 ノルム最小化.....	95
6.5.4. LASSO.....	96
6.5.5. クロスバリデーション	97
7. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化.....	98
7.1. 1 エネルギー面での圧縮センシング	98
7.1.1. 用いたデータ	98
7.1.2. 解析方法.....	99
7.1.3. 周期的ダウンサンプリング	99
7.1.4. エイリアシングとランダムサンプリング	100
7.1.5. ランダムダウンサンプリング.....	102
7.2. 複数エネルギー面の解析	103
7.3. クロスバリデーション	104
7.4. ランダムサンプリングの実測定	105
7.4.1. 測定試料.....	105
7.4.2. 測定結果.....	105
7.5. 本章のまとめ.....	107
8. 総括.....	109
A. Appendix	111
A.1. カイ二乗検定.....	111
A.2. フーリエ変換と逆フーリエ変換の関係.....	113
A.3. ランダムサンプリング測定結果のデータ処理について	115
参考文献.....	118
謝辞.....	123

1. 序論

1.1. はじめに

Binnig と Rohrer らによって 1982 年に開発された走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy: STM) は、表面における結晶構造や電子状態密度をナノスケールで解明できるツールとして、それ以降急速な発展を遂げている。

STM では、先端の尖った探針を試料表面に近づけ、その際に流れるトンネル電流を測定している。トンネル電流の大きさは、探針試料間の距離に大きく依存するため、原子レベルの分解能で表面の原子配列・結晶構造に関連する情報が得られる。また、トンネル電流は探針と試料の局所的な電子状態密度に依存するため、トンネル分光測定から、局所状態密度に関連する情報も得ることができる。これらに関する詳しい原理は、3 章にて述べる。

STM は、今や表面科学のみならず、化学分野 [1] や生物分野 [2] にも拡がりも見せる一方、超伝導や磁性などの物質科学への拡がりを見せており、今や物性物理研究においても欠かせない測定手法の一つとなろうとしている。

STM が物性研究に欠かせない測定手法になりうる理由は、金属、半導体、超伝導体等、電気伝導性のある表面であれば測定でき、しかも、他の手法では及ばない極めて高い空間分解能での測定が可能である点にある。さらに、STM は、単に表面の原子構造を可視化するだけでなく、局所的な電子状態を測定できることもその理由の一つである。

ただし、STM を用いた物性研究はまだまだ発展に余地が残されている。特に、物性物理のメインテーマである、「磁性」と「超伝導」に対するアプローチは、十分に確立されたとは言えないのが現状である。

STM を用いて磁性研究にアプローチする手法の一つとして、スピン偏極走査トンネル顕微鏡 (スピン偏極 STM) が挙げられる。スピン偏極 STM とは、図 1.1 のように、磁性体からなる探針を用いて磁性試料表面を走査する。トンネル磁気抵抗効果により、探針のスピン向きと試料のスピン向きの相対的な角度に依存してトンネル電流の大きさが変調されるため、試料表面の磁化に依存した情報を得ることができる。

スピン偏極 STM は、Wiesendanger によって提案されて以降 [3]、強磁性体 [4]、反強磁性体 [3]、らせん磁性 [5, 6, 7, 8]、磁気スカーミオン構造 [9] など様々な磁気構造の観測に応用されてきた。さらには、スピン分解した電子状態の観測 [10, 11]、探針試料間に流れるスピン偏極したトンネル電流を用いたスピン状態の制御 [12, 13] など試みられている。

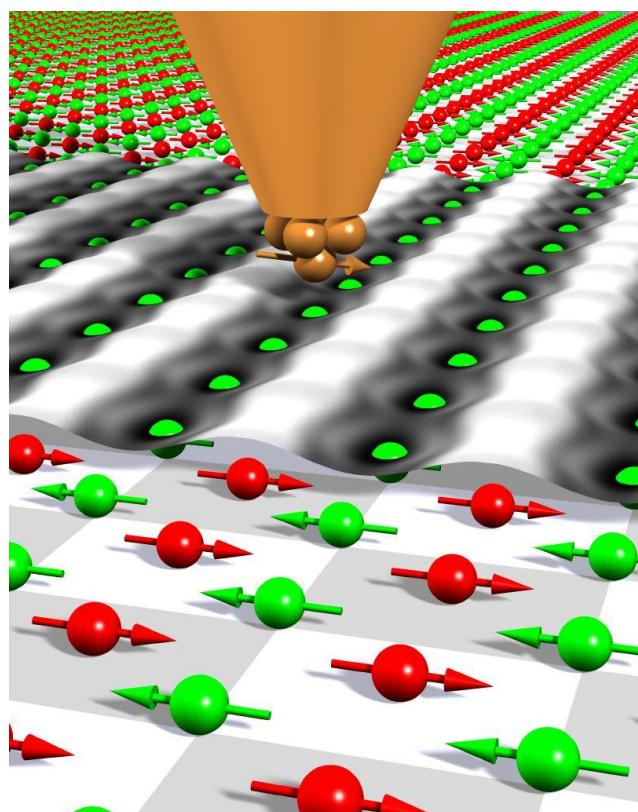


図 1.1. スピン偏極 STM の模式図 [14]

一方、STM を用いて超伝導研究にアプローチする手法として、準粒子干渉(Quasi-particle interference: QPI)計測と呼ばれる手法がある。QPI 計測とは、表面における準粒子の干渉を STM を用いて観察し、フーリエ解析から表面電子状態の波数空間の情報を導く手法である。QPI 計測を用いると、従来 STM では検出できなかった波数空間を含めた表面電子状態に関する情報が得られる。表面の電子状態の k 空間状態は、角度分解光電子分光法 (Angle Resolved Photoemission Spectroscopy: ARPES) でも得られるが、走査トンネル分光を用いた準粒子干渉計測は「強磁場環境下での測定」や「非占有準位の電子状態の測定」が可能のため、ARPES と相補的な情報を与える測定手法として注目を集めている。

準粒子干渉計測は、初めに貴金属表面上で発見された (図 1.2) [15, 16]。図 1.2(b)の局所状態密度像において、(a)のトポグラフ像には見られない変調構造がステップに沿って観察される。貴金属表面上での QPI 計測が示されて以降、非従来型超伝導体 [17, 18, 19]に適用され、さらには、トポロジカル絶縁体 [20, 21]に対しても応用されている。

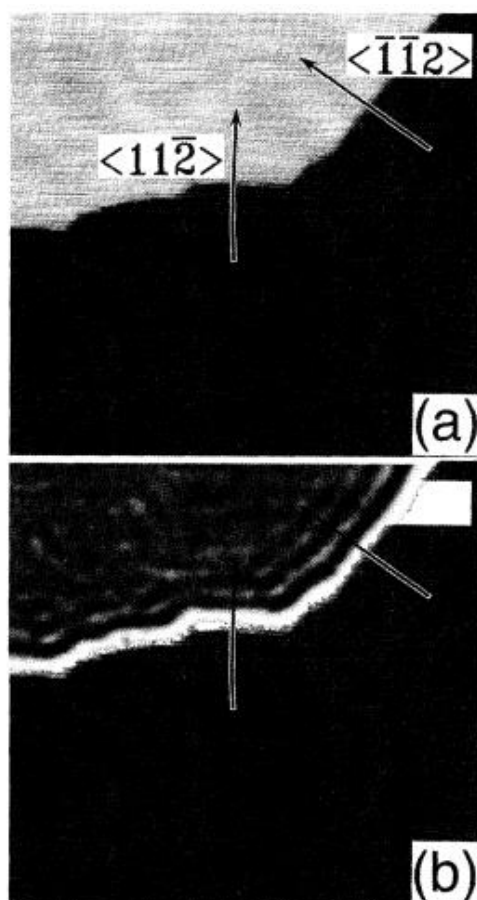


図 1.2. Au(111)表面上で発見された表面電子定在波
(a)トポグラフ像 (b) $(dI/dV)/(I/V)$ 像 [15]

両手法はそれぞれ単独でも非常に有益な手法であるが、準粒子干渉を誘起する基本現象である電子散乱過程においては、スピン保存やスピントリップ散乱など、散乱電子のスピンが絡む現象があり、準粒子干渉の観察を通じたスピン機構の解明や、スピン偏極準粒子干渉の出現など、両者が混在する場合も起こりうる。例えば、ラッシュバ分裂した表面上の磁性原子の周りで発生する準粒子干渉（図 1.3 は Au(111)上の Fe 単原子の周辺 [22]）も予測されており、スピン偏極 STM と準粒子干渉測定との融合も今後発展が期待されるテーマである。

したがって、今後の STM の発展を支える重要な計測手法であり、その技術を確立させ、物性研究に適用可能であることを示すことが必要不可欠である。

本論文では、これらの二つの測定に関して、より大きな発展を目的として研究を行う。

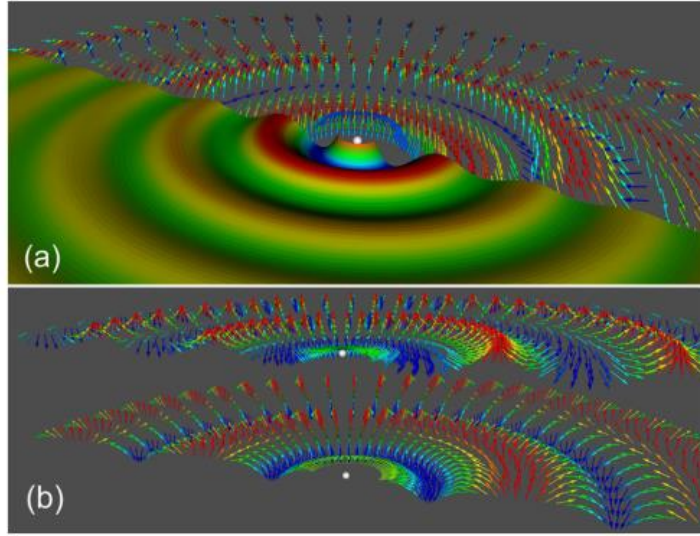


図 1.3. Au(111)上の Fe 原子周辺で予測されている干渉の模式図 [22]

1.1.1. スピン偏極走査トンネル顕微鏡を用いたカイラル磁性薄膜観察

先述の通り、スピン偏極走査型トンネル顕微鏡とは、原子スケールで表面の原子構造を可視化できる手法である。本研究では、スピン偏極 STM の高い空間分解能を生かして、原子レベルでカイラル磁性体（特にらせん磁気構造）の観察を行い、従来決定できていなかったらせん磁気構造の回転方向の決定を行う。さらに、回転方向の決定に重要な Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用についての議論を行う。

Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用とは、スピン軌道相互作用を交換相互作用に摂動として与えることで得られ、ハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \quad (1.1)$$

と表される。ここで、 \mathbf{S}_1 及び \mathbf{S}_2 はスピンモーメントである。 \mathbf{D} は \mathbf{D} ベクトルと呼ばれ、 \mathbf{D} ベクトルの向きは、結晶の対称性によって制約を受けており、空間反転対称性が破れているときに、 \mathbf{D} ベクトルはゼロでない値をもつ。空間反転対称性の破れている界面では Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が実効的に働くため、スピン軌道相互作用の大きな重い元素の基板上に形成された磁性薄膜において、カイラル磁性が現れることがある。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と空間対称性の関係については、2.2 節で詳しく述べる。

このハミルトニアンは、 \mathbf{S}_1 と \mathbf{S}_2 のクロス積を含んでいるため、二つのスピンの 90 度に整列させるように作用する。実際には、平行または反平行に作用させる交換相互作用との競合から、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が実効的に働いている場合、斜め向きに整列したときに最安定構造となる。そのため、らせん磁性などの複雑な磁気構造が現れる。また、 \mathbf{D} ベクトルがクロス積の方向と平行か反平行かによってエネルギーが異なる。すなわち、右巻きのらせん ($\uparrow\curvearrowright$) と左巻きのらせん ($\uparrow\curvearrowleft$) の間でエネルギー差があるため、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたらせん磁性などの複雑な磁性はカイラリティがある（回転方

向が 1 方向に決まっている)。したがって、 \mathbf{D} ベクトルの向きや符号を知ることは、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用を理解する上で非常に重要である。

\mathbf{D} ベクトルの向きによって、らせん構造の伝播方向や回転型が決まる。ここで、回転型とは、らせん構造の伝播方向に対してらせん構造の回転軸が平行か垂直かを表す言葉である。伝播方向と伝播軸が平行の場合はヘリカル型もしくはブロッホ型と呼び、伝播方向と伝播軸が垂直の場合はサイクロイド型もしくはネール型と呼ぶ。 \mathbf{D} ベクトルの向きは、結晶の空間対称性によって制約を受けている (2.2 節参照)。

ただし、結晶の対称性からは \mathbf{D} ベクトルの符号まで考えることはできない。 \mathbf{D} ベクトルの符号は、回転方向を決める重要な要素である。 \mathbf{D} ベクトルの符号に関しては、カイラル磁壁の回転方向の観察による報告や [23, 24]、単純な 3 原子モデル (2.3 節参照) を用いた理論計算による報告がある [25]。これらは、スピン軌道相互作用を与える非磁性基板の重要性を指摘している。しかし、一様ならせん磁性における \mathbf{D} ベクトルの符号に関する実験的な議論はなされていない。また、膜厚や薄膜材料によってらせん構造の回転方向がどのように変化するかについての議論は十分になされていない。その理由として、らせん磁気構造は周期が短いため、非常に高分解能な測定手法が必要であるため、スピン偏極 STM 以外の方法では、観察が困難であることが挙げられる。

そこで、本研究では、 $\mathbf{W}(110)$ 上の \mathbf{Mn} 薄膜に注目している。重い元素である \mathbf{W} 基板は大きなスピン軌道相互作用を持つ。そのため、 $\mathbf{W}(110)$ 上に形成された磁性薄膜は、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって、複雑な磁気構造が形成される。さらに、 $\mathbf{W}(110)$ 上の \mathbf{Mn} 薄膜は、一層の場合 [5] と二層の場合 [7] で異なるらせん磁気構造を持つ。そのため、両者の比較から、回転方向と膜厚の関係を議論できる。

$\mathbf{W}(110)$ 上の一層 \mathbf{Mn} 薄膜は Heinze らによって、反強磁性構造を有することがスピン偏極 STM 測定から明らかにされた [26]。その後、Bode らによって、その反強磁性構造は完全に反平行ではなく少し傾いて整列しており、結果としてらせん磁気構造を形成していることが、スピン偏極 STM 測定によって明らかにされ、測定結果の詳細な解析から、その傾き角は約 7° であることが明らかになった [5]。さらに、磁場によって制御された探針を用いたスピン偏極 STM 測定から、カイラリティを持つことが示されている [5]。また、理論計算と組み合わせて、一層 \mathbf{Mn} 薄膜のらせん磁性はサイクロイド型であり、左巻きであることが予想された [5]。しかし、回転型がサイクロイド型であることと、回転方向が左巻きであることに関しては、実験的に示された例は無い。

$\mathbf{W}(110)$ 上の二層 \mathbf{Mn} 薄膜は Yoshida らによって、より複雑なコニカル型のらせん磁性であることが明らかにされた [7]。ただし、二層薄膜に関しては、回転方向に関する議論はなされていない。また、カイラリティの有無も明らかになっていないため、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がらせん構造の形成に寄与しているかどうかは明らかではない。

以上のことを表 1.1 にまとめる。一層 Mn 薄膜に関しても、二層 Mn 薄膜に関しても、実験的に明らかになっていないことが多いため、本論文でそれらを明らかにし、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がどのようにはたらいているかの議論を行う。

表 1.1. W(110)上の Mn 薄膜におけるらせん構造

	一層 Mn 薄膜	二層 Mn 薄膜
カイラリティ	○	?
回転方向	左巻き (計算)	?
回転型	サイクロイド型 (計算)	コニカル型

1.1.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡に用いられる探針

スピン偏極 STM 測定を行う上でボトルネックとなるのは、スピン偏極探針の作製である。通常の STM 測定では、W 探針や PtIr 探針など、作製方法が確立されており、なおかつ探針の特性も明らかになっている。そのため、高い歩留りで高精度の測定が保証されている。一方、スピン偏極 STM の場合、どの探針が有効な探針であるかは明らかでなく、実験効率の向上を妨げる要因となっている。

スピン偏極 STM に用いる探針として、「探針が先鋭であること」、「漏れ磁場が小さいこと」が求められる。また、探針の磁化がどの方向を向いており、外部磁場によってどのような影響を受けるかを知っておくことも重要である。

現在広く用いられているのは「薄膜探針」である。ここで、薄膜探針とは、通常の STM で用いる W 探針に Fe や Cr などの磁性体をコーティングした探針のことを指す。薄膜探針は、コーティング材として強磁性を用いたとしても、薄膜のため、試料に対する漏れ磁場の影響が少ないという利点がある。さらに、薄膜の蒸着条件を調節すれば、探針の磁化方向を制御できるという利点もある。しかし、このような薄膜探針は、探針作製に手間がかかるため、適切な作製条件を求めるのに時間を要するという欠点もある。また、針先に蒸着された磁性材料が測定中及び針先の調整等による針先の変化で失われると、探針のスピン偏極度が失われてしまうという欠点もある。

一方、「バルク探針」と呼ばれる探針が最近注目を集めている。ここで、バルク探針とは、通常の STM で用いる W 探針のように、線材をエッチングして作製した探針である。この場合、線材の材料として磁性体を選べば、簡単に磁性体探針を作製することができる。また、探針全体が磁性体のため、スピン偏極度が失われる心配がない。バルク探針として最も広く用いられているのは、反強磁性体で漏れ磁場の影響を無視できるバルク Cr 探針である。ただし、Cr は反強磁性体のため、外部磁場で探針の磁化を制御することはできない。強磁性体であれば探針の磁化方向を制御できるが、漏れ磁場が大きいという欠点がある。そこで、磁気モーメントの小さな強磁性体を用いれば、外部磁場で磁化方向を制御できるバルク探針を作製できるのではないかという着想に至った。本研究では、Ni に着目している。Ni は

磁気モーメントの小さな ($0.6 \mu_B$) 強磁性体のため、試料に対する漏れ磁場の影響が大きくない。そのため、バルク Ni 探針は、スピン偏極探針の候補として考えてよい探針である。バルク Ni 探針は、STM 用探針として用いられた例はあるが、スピン偏極 STM 用探針として機能するかは明らかではない [27, 28, 29]。

また、本研究で用いるような、外部磁場・漏れ磁場による影響を受けにくい試料であれば、磁気モーメントの大きな強磁性体である Fe 探針 ($2.2 \mu_B$) [30, 31] もスピン偏極探針の候補として考えてもよい。

ただし、Ni や Fe によって作られた探針がスピン偏極 STM 測定に用いられた例は無く、スピン偏極 STM 用探針として機能するかどうかはわかっていない。そこで、バルク Ni 探針とバルク Fe 探針を用いたスピン偏極 STM 測定を行い、スピン偏極探針として機能するかどうかの評価を行い、外部磁場に対してどのように応答するかを調べる。

表 1.2. スピン偏極 STM に用いるバルク探針

探針の素材	Cr	Ni	Fe
スピン偏極信号	○	?	?
磁性	反強磁性	強磁性	強磁性
漏れ磁場	小	中	大
外部磁場に対する応答	変化しない	?	?

1.1.3. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化

上述の通り、準粒子干渉(QPI)計測は、波数空間の情報を含めて表面電子状態を明らかにできる強力な手法である。しかし、QPI 計測には測定時間が長大になるという大きな欠点がある。測定点数を減らすことができれば測定時間を短くすることが可能であるが、広い波数空間を確保するためには高い実空間分解能での測定が必要であり、高い波数空間分解能を確保するためには、広い実空間領域が必要である。そのため、測定時間を短くすることは困難である。そこで、本研究では、少ない測定データから大きな情報を復元する手法として注目を集めている「圧縮センシング」と呼ばれる統計的手法に着目している。

圧縮センシングとは、ビッグデータを取り扱う手法の一つとして、2000 年代から盛んに研究が行われている手法である [32]。圧縮センシングでは、スパース (ほとんどがゼロ) なデータが特に取り扱われる。従来はスパースなデータも非スパースなデータも同様に扱われてきたが、圧縮センシングでは、データのスパース性を利用して、情報を効率よく扱う。圧縮センシングの考え方は、データ圧縮のように「データを圧縮して保存する」というのとは逆に、「取得するデータ自体を減らす」という考え方である。減らして取得したデータは、情報のスパース性 (ほとんどがゼロであること) を利用して復元される。このような情報処理は、スパースモデリングと呼ばれる情報科学分野の一環として盛んに研究が進められている。

元来圧縮センシングは、ビッグデータを扱うデータ処理手法として開発されたが、最近では科学計測にも適用されつつある。特に、圧縮センシングが得意としているのは、フーリエ解析やウェーブレット解析などの周波数解析である。そのため、現在圧縮センシングが威力を発揮しているものの一つは、画像解析である。磁気共鳴イメージング (MRI) や宇宙分野におけるブラックホールの撮像などで、圧縮センシングが画像解析へ適応可能であることが示されている。計測時間をなるべく削減したい MRI や、取得できるデータ数に限りのあるブラックホールの撮像など、少ない計測から多くの情報を取り出す必要のある分野で大きな力を発揮している。なお、MRI の分野では、教科書にも記載されるなど [33]、一般的な手法となりつつある。

医学分野で主に用いられていた MRI であるが、近年、ダイヤモンド中の窒素欠陥 (NV センター) スピンの検出などにも MRI の考え方が用いられるようになり、圧縮センシングも物性物理分野に広がろうとしている [34]。

ここで、MRI と QPI 計測の違いについて考えてみる。MRI においては、周波数を掃引させてデータを取得し、実空間画像を復元する。実空間画像がスパースな場合、圧縮センシングが適用可能である。一方 STS の場合、実空間像を取得し、波数空間像を復元する。すなわち、波数空間の観測から実空間を導く MRI と、実空間の観測から波数空間を導く QPI 計測は、フーリエ変換と逆フーリエ変換の違いというだけで、基本的に同じものと考えてよい。したがって、波数空間がスパースであれば、QPI 計測にも圧縮センシングは適用可能と考えてよいはずである。しかし、このような圧縮センシングと呼ばれる手法が、QPI 計測に対して適用された例は無く、本論文でその効果を実証する意義は非常に大きい。そこで、本論文では、QPI 計測に対する圧縮センシングの効果を実証を行う。

1.2. 本論文の目的

超高真空・極低温・磁場環境下で観察可能な ^4He 冷却によるスピン偏極走査トンネル顕微鏡を用いて、カイラル磁性薄膜である W(110)基板上に形成された Mn 薄膜の磁気構造や電子状態を詳細に調べ、W と Mn 界面において Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がどのようなにはたっているかを明らかにすることを目的としている。さらに、スピン偏極 STM のさらなる発展のため、スピン偏極 STM 測定に適した探針の探索と評価を行うことを目的としている。

それに加えて、表面電子状態を測定できる準粒子干渉計測の発展のため、圧縮センシングと呼ばれる統計的手法を用いて、測定に要する時間を統計的手法によって削減し、高速高精度化を図る手法を開発することを目的としている。

1.3. 本論文の構成

第二章では、複雑な磁気構造の形成に重要な Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と、それによって形成されるカイラルな磁性体について述べる。第三章では、STM 及びスピン偏極 STM の測定原理、装置の構成について述べる。第四章では、スピン偏極 STM を用いた W(110)上の Mn 薄膜の測定結果について述べる。第五章では、スピン偏極 STM に有効な探針の評価について述べる。第六章では、準粒子干渉と圧縮センシングに関する基本的な事柄について述べる。第七章では、圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化について述べる。最後に第八章で総括を行う。本論文の最後には補足項目を付属してある。

2. Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用とカイラル磁性体

本章では、カイラル磁性体を考える上で最も重要な相互作用である Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用について、基礎的な事柄を述べる。その後、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたカイラル磁性体の応用例についても述べる。最後に、本研究で用いる試料と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の関係について述べる。

2.1. Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用とカイラル磁性体

空間反転対称性の破れは、様々な自然科学現象と密接に結びついている。特に、空間反転対称性の破れた系では、カイラリティを持つ構造が許される。「カイラリティを有する」とは、鏡像関係にあるものと重ね合わせることができないことを指す。「カイラリティ」という言葉は、ギリシャ語の「掌」に由来している。右手と左手は鏡像関係にあるが、互いに重ならないため、掌はカイラリティを有する代表例として知られる。カイラリティは、素粒子物理から生体系に至るまで様々な自然現象でみられ、特異な機能を見出すことがある。例えば、カイラルネマチック液晶における光学活性などが挙げられる。

本研究では特にカイラルな磁性体に注目している。カイラルな磁性体に関する研究では、特に Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と呼ばれる反対称な相互作用が密接に関連している。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は、Dzyaloshinskii によって結晶の対称性と磁気構造の関係から、現象論的に導入された [35]。その後、守谷は、スピン軌道相互作用を摂動とした原子論的な理論を立て、同様に以下の式を導いた [36]。

$$\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \quad (2.1)$$

ここで \mathbf{S}_1 及び \mathbf{S}_2 は、スピンモーメントを表しており、 \mathbf{D} は \mathbf{D} ベクトルと呼ばれ、物質の素材や原子配列の対称性から決められる。この理論によって、未解明であったアルファ・ヘマタイト ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) や MnCO_3 の弱強磁性 [37, 38] の起源が説明された。

Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は、交換相互作用にスピン軌道相互作用

$$\lambda (\mathbf{l} \cdot \mathbf{s}) \quad (2.2)$$

を 2 次の摂動として与えることで導かれる。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は、その相互作用の形式からわかるように、 $\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2$ の値が最小になるとき、すなわち 2 つのスピンが 90 度を向く時に最も安定となる。しかしながら、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用以外にも、平行もしくは反平行になるときに安定化するハイゼンベルク型の交換相互作用も働いているため、実際には、それらの競合から、スピンが傾いた磁気構造が現れる。また、その傾き角は、 \mathbf{D} と \mathbf{J} の大きさの比によって決定される (図 2.1)。なお、 \mathbf{D} の大きさは最大でも、 $|\mathbf{D}|/J \approx 1/10$ 程度の大きさである。

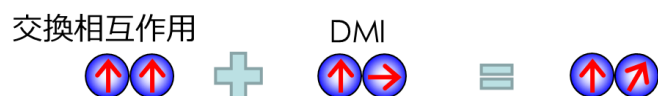


図 2.1. 交換相互作用と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用との競合

Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって、傾いた磁気構造が安定化されるため、複雑な磁気構造が形成されることがある。その代表的なものとして、らせん磁気構造 [39, 40, 41]や磁壁構造 [42, 43]、スカーミオン構造 [44, 45, 46, 47]など、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたと考えられる複雑な磁気構造が発見されている。

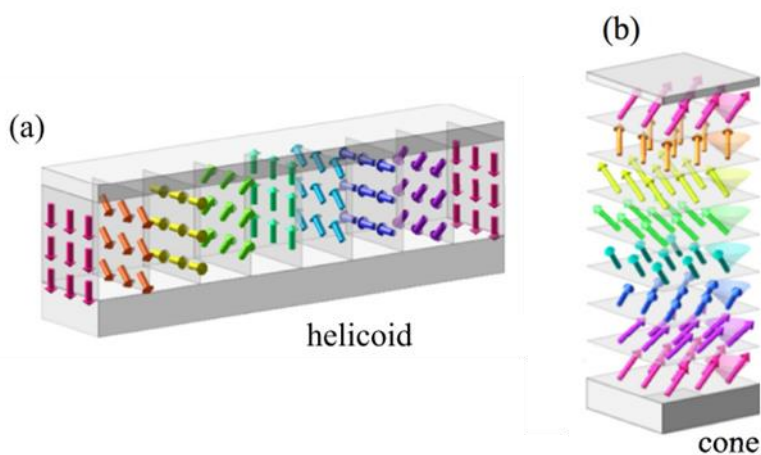


図 2.2. (a) ヘリカル型 (b) コーン型のらせん磁性の模式図 [48]

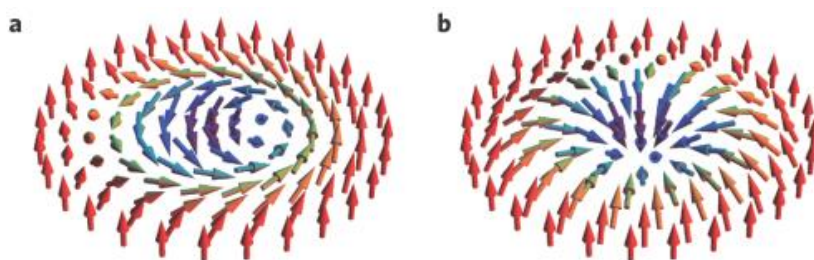


図 2.3. (a) ブロッホ型 (b) ネール型のスカーミオン構造の模式図 [47]

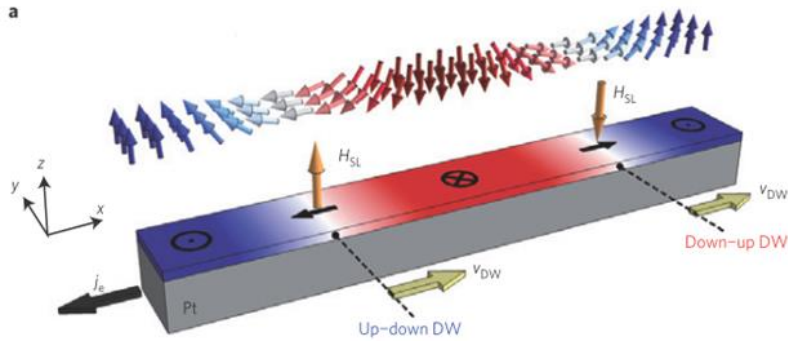


図 2.4. 磁壁構造の模式図 [49]

次に、カイラルな磁気構造と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の関係について述べる。図 2.5 のように、一軸のらせん磁気構造を例にとって考えてみる。らせん磁気構造は、右巻きもしくは左巻きらせんの回転方向の 2 種類が考えられる。上述のように、ねじれた磁気構造の形成には、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が重要であるが、2 つのスピンの注目した場合、右巻きと左巻きの間で、 $\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2$ の向きが異なる。すなわち、右巻きと左巻きで Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用ハミルトニアンが大きさが異なることを意味する。右巻きと左巻きの間にエネルギー差があることから、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたらせん磁性はカイラリティを持つ、すなわち、どちらか一方の回転方向しか持たないということがわかる。

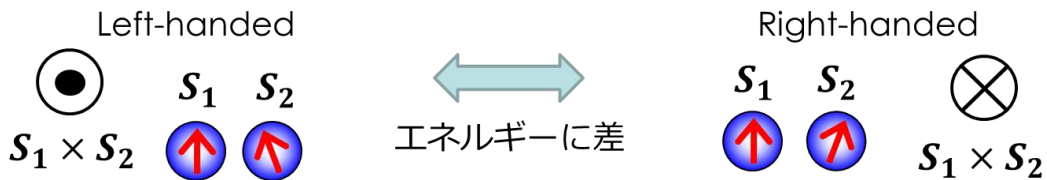


図 2.5. Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用に起因するらせん磁気構造とカイラリティ

一方、らせん磁性自体は、ハイゼンベルク型の交換相互作用のみから説明することもできる。図 2.6 のように、第一近接が強磁性的、第二近接が反強磁性的の場合、両者間の競合（フラストレーション）が起こり、ねじれた磁性が発現することもある。しかし、この場合、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用のようにクロス積の項を含んでいないので、右巻きと左巻きは等価であり、カイラリティを持たない。



図 2.6. フラストレーションによって起こるらせん磁気構造

したがって、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたらせん磁性は、カイラリティを持つ。言い換えれば、カイラリティの有無を調べれば、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が実効的に働いているかどうかを調べることができる。

本論文では特にらせん磁気構造に対するカイラリティを考える。らせん磁気構造においては、右巻きらせんと左巻きらせんが現れる可能性がある。なお、らせんの回転方向を表現する言葉として、「右巻き」「時計回り」など表現方法はいくつかあるが、本論文では、 $(\uparrow \rightarrow \downarrow)$ という回転を「右巻き(right-handed)」、 $(\uparrow \leftarrow \downarrow)$ という回転を「左巻き(left-handed)」とする表現を採用する。

2.2. 守谷ルール

Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用における \mathbf{D} ベクトルの方向は、その式の形式から、以下の 5 つのルールに則って、系の対称性から決めることができる。本章では、これらの 5 つのルールの導出を行う。

- ①原子 1 と原子 2 の中点が反転中心であれば、 $\mathbf{D} = 0$ 。
- ②原子 1 と原子 2 の中心に鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分は 0。
- ③原子 1 と原子 2 を含む鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分だけが残る。
- ④原子 1 と原子 2 の中点に 2 回軸があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分は 0。
- ⑤原子 1 と原子 2 を通る 2 回軸 (3, 4, 6 回軸) があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分だけが残る。

ここで、 $\mathbf{D} = (D_x, D_y, D_z)$, $\mathbf{S}_{1x} = (S_{1x}, S_{1y}, S_{1z})$, $\mathbf{S}_{2x} = (S_{2x}, S_{2y}, S_{2z})$ とすると、

$$\begin{aligned} \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) &= D_x(S_{1y}S_{2z} - S_{1z}S_{2y}) + D_y(S_{1z}S_{2x} - S_{1x}S_{2z}) \\ &\quad + D_z(S_{1x}S_{2y} - S_{1y}S_{2x}) \end{aligned} \quad (2.3)$$

となる。単純化のため、原子 1 及び原子 2 は x 軸上にあり、その中点を原点とする。以下では対称操作後のスピンを \mathbf{S}'_1 , \mathbf{S}'_2 とする。

①原子 1 と原子 2 の中点が反転中心であれば、 $\mathbf{D} = 0$

原子 1 と原子 2 の中点が反転中心であった場合、原子の入れ替えに関して、エネルギーが変化してはいけない。すなわち、 $\mathbf{S}_1 \rightarrow -\mathbf{S}_2$, $\mathbf{S}_2 \rightarrow -\mathbf{S}_1$ という操作に対して、ハミルトニアンは不変でなければならない。対称操作後のハミルトニアンは、

$$\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1' \times \mathbf{S}_2') = \mathbf{D} \cdot ((-\mathbf{S}_2) \times (-\mathbf{S}_1)) = \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_1) = -\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$$

となる。これが、 $\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ と等しくならないといけなないので、 $\mathbf{D} = 0$ となる。

②原子 1 と原子 2 の中心に鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分は 0

この場合、yz 面が鏡面になる。この鏡面操作を行うと、原子 1 と原子 2 の入れ替えに対して、x 成分のみが符号を変える。すなわち、 $S_{1x} \rightarrow -S_{2x}$, $S_{1y} \rightarrow S_{2y}$, $S_{1z} \rightarrow S_{2z}$, $S_{2x} \rightarrow -S_{1x}$, $S_{2y} \rightarrow S_{1y}$, $S_{2z} \rightarrow S_{1z}$ となる。したがって、

$$\begin{aligned} \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1' \times \mathbf{S}_2') &= D_x (S_{2y}S_{1z} - S_{2z}S_{1y}) + D_y (S_{2z}(-S_{1x}) - (-S_{2x})S_{1z}) \\ &\quad + D_z ((-S_{2x})S_{1y} - S_{2y}(-S_{1x})) \\ &= -D_x (S_{1y}S_{2z} - S_{1z}S_{2y}) + D_y (S_{1z}S_{2x} - S_{1x}S_{2z}) \\ &\quad + D_z (S_{1x}S_{2y} - S_{1y}S_{2x}) \end{aligned} \tag{2.4}$$

となる。式(2.3)と比較すると、 $D_x = 0$ が導かれる。

③原子 1 と原子 2 を含む鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分だけが残る

この場合、x 軸を通る面が鏡面である。この仮定では、鏡面を xz 面としても一般性は失われない。このとき、原子 1 と原子 2 の入れ替えはできないが、 $S_{1x} \rightarrow S_{1x}$, $S_{1y} \rightarrow -S_{1y}$, $S_{1z} \rightarrow S_{1z}$, $S_{2x} \rightarrow S_{2x}$, $S_{2y} \rightarrow -S_{2y}$, $S_{2z} \rightarrow S_{2z}$ という鏡面操作に対してエネルギーは不変でなければいけない。したがって、この対称操作によってハミルトニアンはこのように変化する。

$$\begin{aligned} \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1' \times \mathbf{S}_2') &= D_x ((-S_{1y})S_{2z} - S_{1z}(-S_{2y})) + D_y (S_{1z}S_{2x} - S_{1x}S_{2z}) \\ &\quad + D_z (S_{1x}(-S_{2y}) - (-S_{1y})S_{2x}) \\ &= -D_x (S_{1y}S_{2z} - S_{1z}S_{2y}) + D_y (S_{1z}S_{2x} - S_{1x}S_{2z}) \\ &\quad - D_z (S_{1x}S_{2y} - S_{1y}S_{2x}) \end{aligned} \tag{2.5}$$

式(2.3)との比較から、 $D_x = 0$, $D_z = 0$ が導かれる。

④原子 1 と原子 2 の中点に 2 回軸があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分は 0

2 回軸を z 軸としても、一般性は失われない。このとき、原子 1 と原子 2 の入れ替えに対して、z 成分以外が符号を変える。すなわち、 $S_{1x} \rightarrow -S_{2x}$, $S_{1y} \rightarrow -S_{2y}$, $S_{1z} \rightarrow S_{2z}$, $S_{2x} \rightarrow -S_{1x}$, $S_{2y} \rightarrow -S_{1y}$, $S_{2z} \rightarrow S_{1z}$ となる。この操作を行うと、ハミルトニアンは、このように変化する。

$$\begin{aligned}
\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1' \times \mathbf{S}_2') &= D_x \left((-S_{2y})S_{1z} - S_{2z}(-S_{1y}) \right) \\
&\quad + D_y (S_{2z}(-S_{1x}) - (-S_{2x})S_{1z}) \\
&\quad + D_z \left((-S_{2x})(-S_{1y}) - (-S_{2y})(-S_{1x}) \right) \\
&= D_x (S_{1y}S_{2z} - S_{1z}S_{2y}) + D_y (S_{1z}S_{2x} - S_{1x}S_{2z}) \\
&\quad - D_z (S_{1x}S_{2y} - S_{1y}S_{2x})
\end{aligned} \tag{2.6}$$

式(2.3)と比較すると、 $D_z = 0$ が導かれる。

⑤原子 1 と原子 2 を通る 2 回軸 (3,4,6 回軸) があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分だけが残る
 この場合 x 軸が 2 回軸 (3, 4, 6 回軸) である。このとき x 軸で角度 θ だけ回転させると、
 $S_{1x} \rightarrow S_{1x}$, $S_{1y} \rightarrow S_{1y} \cos \theta + S_{1z} \sin \theta$, $S_{1z} \rightarrow S_{1z} \cos \theta - S_{1y} \sin \theta$, $S_{2x} \rightarrow S_{2x}$, $S_{2y} \rightarrow S_{2y} \cos \theta + S_{2z} \sin \theta$, $S_{2z} \rightarrow S_{2z} \cos \theta - S_{2y} \sin \theta$ となる。回転操作後のハミルトニアンは、

$$\begin{aligned}
\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1' \times \mathbf{S}_2') &= D_x \left((S_{1y} \cos \theta + S_{1z} \sin \theta)(S_{2z} \cos \theta - S_{2y} \sin \theta) \right. \\
&\quad \left. - (S_{1z} \cos \theta - S_{1y} \sin \theta)(S_{2y} \cos \theta + S_{2z} \sin \theta) \right) \\
&\quad + D_y \left((S_{1z} \cos \theta - S_{1y} \sin \theta)S_{2x} - S_{1x}(S_{2z} \cos \theta - S_{2y} \sin \theta) \right) \\
&\quad + D_z (S_{1x}(S_{2y} \cos \theta + S_{2z} \sin \theta) - (S_{1y} \cos \theta + S_{1z} \sin \theta)S_{2x}) \\
&= D_x (S_{1y}S_{2z} - S_{1z}S_{2y}) \\
&\quad + D_y \left((S_{1z} \cos \theta + S_{1y} \sin \theta)S_{2x} - S_{1x}(S_{2z} \cos \theta + S_{2y} \sin \theta) \right) \\
&\quad + D_z (S_{1x}(S_{2y} \cos \theta + S_{2z} \sin \theta) - (S_{1y} \cos \theta + S_{1z} \sin \theta)S_{2x})
\end{aligned} \tag{2.7}$$

となり、 x 軸が 2 回軸の時は $\theta = 180^\circ$ 、3 回軸の時は $\theta = 120^\circ$ 、4 回軸の時は $\theta = 90^\circ$ 、6 回軸の時は $\theta = 60^\circ$ のときに、エネルギーは不変である。ここから、 $D_y = 0$, $D_z = 0$ が導かれる。

2.3. 界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用

通常、スピン軌道相互作用の大きくない 3d 遷移金属元素では、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は大きくない。しかし、5d 遷移金属のようなスピン軌道相互作用の大きな元素との軌道混成により大きな Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が働くことがある。P. M. Levy と A. Fert は、CuMn 合金中の 5d 遷移金属元素からなる非磁性不純物による効果を、図 2.7 のような 3 サイトモデルを用いて以下のように提案している [50]。

$$\mathcal{H}_{DM} = -V_1 \frac{\sin \left[k_F(R_a + R_b + R_{ab}) + \left(\frac{\pi}{10} \right) Z_d \right] \mathbf{R}_a \cdot \mathbf{R}_b}{R_a R_b R_{ab}} (\mathbf{R}_a \times \mathbf{R}_b) \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \quad (2.8)$$

ここで、

$$V_1 = \frac{135\pi}{32} \frac{\lambda_d \Gamma^2}{E_F^2 k_F^3} \sin \left[\left(\frac{\pi}{10} \right) Z_d \right] \quad (2.9)$$

であり、 k_F はフェルミ波数、 E_F はフェルミエネルギー、 Z_d は不純物の d 電子の数、 λ_d は不純物からの距離を考慮したスピン軌道相互作用の定数、 Γ は磁性原子スピン間の相互作用定数である。 $(\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ の係数部分をすべて含めて \mathbf{D} とすると、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と同様の表式となる。したがって、守谷ルールの①にあるように、空間反転対称性の破れた系で実効的に働く。不純物系では、不純物周辺では空間反転対称性が破れているため、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が実効的に働く。さらに、5d 非磁性金属上の 3d 磁性金属薄膜でも、薄膜と基板の界面において空間反転対称性が破れているため、同様に Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が働く [51, 52]。界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の場合も、式(2.1)と同じ形式のため守谷ルールが適用できる。さらに、この場合、 \mathbf{D} ベクトル内に $(\mathbf{R}_a \times \mathbf{R}_b)$ の項が含まれているため、 \mathbf{D} ベクトルは、非磁性元素と 2 つの磁性元素を結ぶ三角形に垂直であるという制約も含まれる。

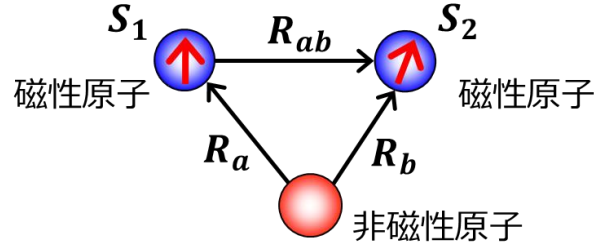


図 2.7.3 サイトモデル

2.4. 界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の応用例

このような界面における Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって形成されたカイラルな磁気構造は、スピントロニクス分野でも応用が期待されている。応用例の一つとして、電流による磁壁の移動をここで述べる (図 2.8 及び図 2.9 を参照)。

電流による磁壁の駆動を説明するためには、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用に加えてスピンホール効果 [53]が必要になる。スピン軌道相互作用の大きな非磁性基板層に電流を流すと、スピン流が発生する。スピン流は電流に対して垂直方向に流れるため、非磁性基板層からその上に積層された磁性薄膜層へスピン流を注入することができる (図 2.8)。ただし、どのような向きのスピン流が磁性薄膜層に注入されるかは、非磁性基板層のスピンホール

角に依存している。例えば Pt の場合、スピントール角が正なので、図 2.8 (a)のように電流の向きに対して右向きのスピントールが磁性薄膜層に注入される。一方、スピントール角が負の Ta が基板の場合、図 2.8 (b)のように、左向きのスピントールが注入される。

注入されたスピントールによって、磁性薄膜のスピントールは、図 2.8 の赤点線で示したような有効磁場を感じる。例えば、スピントール角が正の Pt 基板上の薄膜の場合、面直下向きを向いていたスピントールは電流に対して逆向きに向きを変えるような磁場を感じ、面直上向きを向いていたスピントールは電流に対して同じ向きに向きを変えるような磁場を感じる。その結果として、右向きの電流に対して、右回りに回転するような有効磁場を感じる。もしスピントールが面内でかつ電流に直交するような方向（紙面で手前向き）の場合はトルクを感じない。一方、スピントール角が負の Ta 基板上の薄膜の場合、逆に左回りに回転するような有効磁場を感じる。

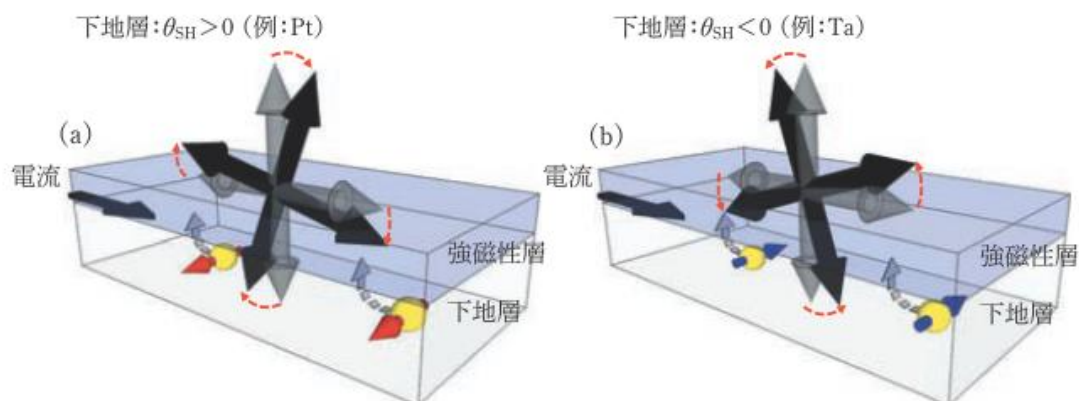


図 2.8. スピントール効果とスピントール移行トルク [54]

このような有効磁場を感じたとき、磁壁の移動現象が起きる。図 2.9 (a)のような、右巻きの磁壁を例に考える。基板層のスピントール角が正の場合、磁性薄膜のスピントールは右回りに回転するので、結果として電流とは逆方向に磁壁が移動する（図 2.9 (b)→(c)）。スピントール角が負の場合は、スピントールは左回りに回転するので、先ほどとは逆に電流と同じ方向に磁壁が移動する（図 2.9 (d)→(e)）。ここでは、右巻きを例に考えたが、左巻きの場合は移動方向がそれぞれ逆になる。

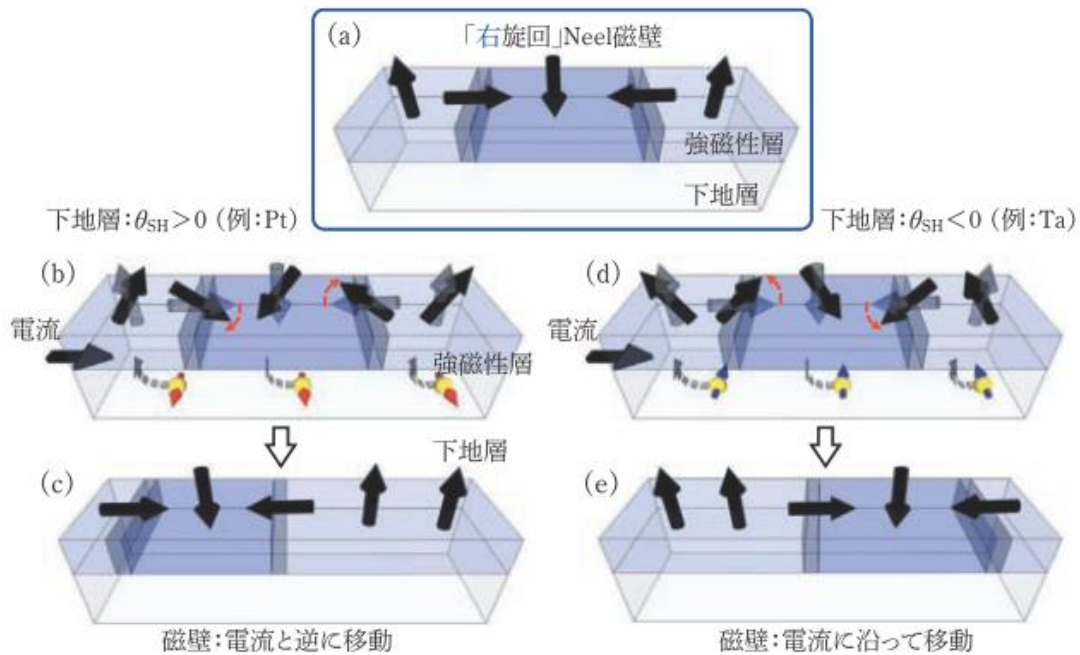


図 2.9. スピン移行トルクと磁壁の移動（右巻きの例） [54]

このように、磁壁は電流を用いて移動させることができるが、磁壁の移動現象を利用した図 2.10 のような「レーストラックメモリ」と呼ばれるものが、近年、スピントロニクス分野で盛んに研究が行われている [55]。さらに、磁壁だけでなくスカーミオンビットも電流で駆動することができる。スカーミオンビットの場合は駆動電流が磁壁に比べて小さくなるという報告があり、室温における結果も数多く報告されている [56, 57, 58]。このように、界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用を利用したスピントロニクスデバイスは実現可能性が期待されているものの一つであり、その移動方向に密接に結びついているパラメータである回転方向を制御することは、デバイスを作製するうえで最も重要な事柄の一つである。したがって、界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の機構解明を行う意義は非常に大きい。

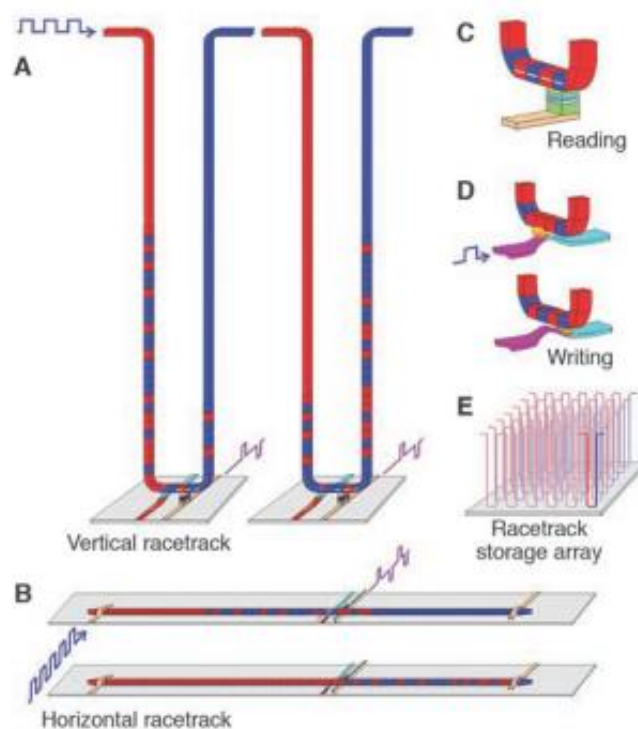


図 2.10. レーストラックメモリ [55]

2.5. W(110)上の Mn 薄膜

W(110)上の Mn 薄膜は、W の持つ大きなスピン軌道相互作用のため、その界面で Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が働き、Mn の反強磁性構造と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によるスピンのねじれによって、複雑な磁気構造が形成される。さらに W(110)上の Mn 薄膜は、その膜厚によって伝播方向や周期が全く異なるらせん磁性が形成されることが知られている [5, 7]。

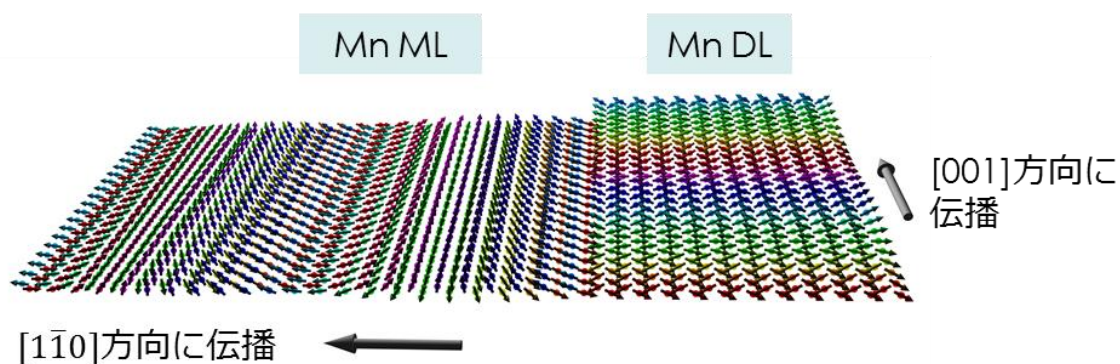


図 2.11. W(110)上の Mn 薄膜の磁気構造

一層 Mn 薄膜 (Mn monolayer; Mn ML) は、 $[1\bar{1}0]$ 方向に伝播する周期が 12nm のらせん磁性であり、カイラリティがある（回転方向が 1 通りに決まっている）ことが、スピン偏極走査トンネル顕微鏡（スピン偏極 STM）を用いた先行研究によって、報告されている。さらに、第一原理計算から、サイクロイド型のらせん磁気構造で、回転方向は左巻きであると報告されている [5]。一方、サイクロイド型で左巻きのらせん磁気構造であるという実験結果は報告されていない。

それに対して、二層 Mn 薄膜 (Mn double layer; Mn DL) は、 $[001]$ 方向に伝播する周期が 2.4nm のらせん磁性であることが、スピン偏極 STM を用いた先行研究によって報告されている [7]。しかし、回転方向やカイラリティの有無は議論されておらず、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が二層 Mn 薄膜においても実効的に働いているかどうかは明らかではない。

表 2.1. W(110)上の Mn 薄膜

	Mn ML	Mn DL
らせん磁気構造	○	○
周期	12 nm	2.4 nm
伝播方向	$[1\bar{1}0]$	$[001]$
回転型	サイクロイド型（計算）	コニカル型
回転方向	左巻き（計算）	？
カイラリティ	○	？

2.6. カイラル磁性体の測定方法

カイラル磁性体の回転方向を明らかにできる主な手法を表 2.2 に挙げ、2.5 節で示したような短い周期でかつ反強磁性構造を持つカイラル磁性薄膜の回転方向を調べるのに対して、どの手法が適しているかどうかをここで述べる。

中性子散乱

スピン偏極した中性子を用いた中性子散乱によって、波数空間の情報からカイラル磁性体の回転方向を調べることは可能である [59]。しかし、中性子散乱による手法は、並進対称性を仮定したバルク測定のため、ローカルな情報は得られない。そのため、今回のように、膜厚による違いを議論する測定や、単層のような超薄膜を対象とした測定には適さない。

ローレンツ顕微鏡

ローレンツ顕微鏡による実空間観察によってもらせん磁性の観察は可能である [41, 60]。しかし、この手法は、空間分解能が高くないため、短い周期を持つらせんの観測には適さない。

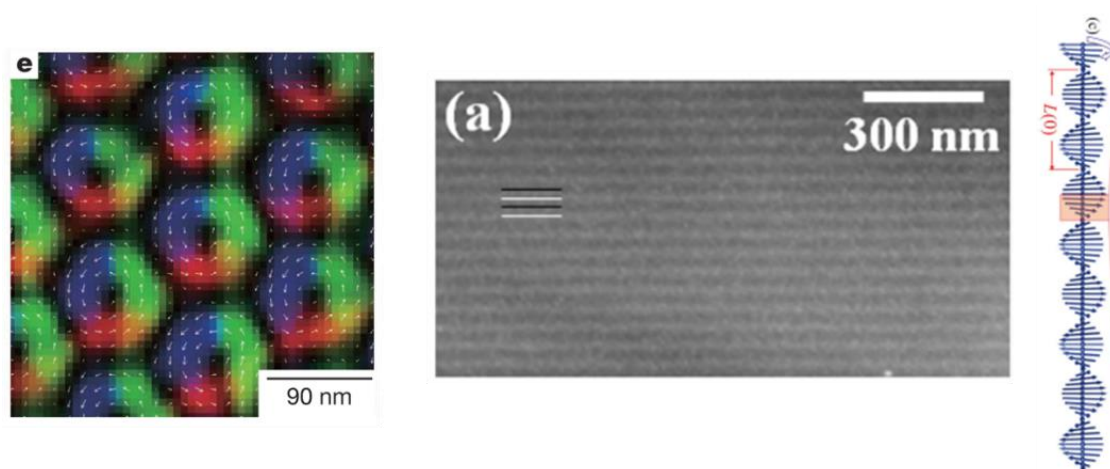


図 2.12. ローレンツ顕微鏡で観察されたスカイミオン [60] (左) とらせん磁性 [41] (右)

SP-LEEM

スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡 (SP-LEEM) を用いて磁壁が実空間観察された例もあるが [24]、ローレンツ顕微鏡と同様、空間分解能が高くないため、らせん磁気構造の観測には適さない。

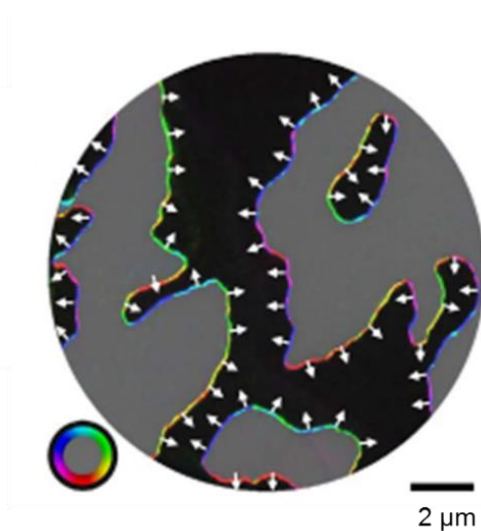


図 2.13. SP-LEEM で観察された磁壁の回転方向 [24]

磁壁の移動

磁壁構造に電流を流して、その移動方向から回転方向を見積もることもできる (2.4 節参照)。かけた電流に対しての磁壁の移動方向や速さは、 \mathbf{D} ベクトルの大きさに依存しているので、その移動の様子を他の顕微手法 (Kerr 効果顕微鏡など) で観察することにより、 \mathbf{D} ベ

クトルの大きさを見積ることができる [23]。しかし、電流で移動しない一様ならせん磁気構造に対しては、この方法を用いることはできない。

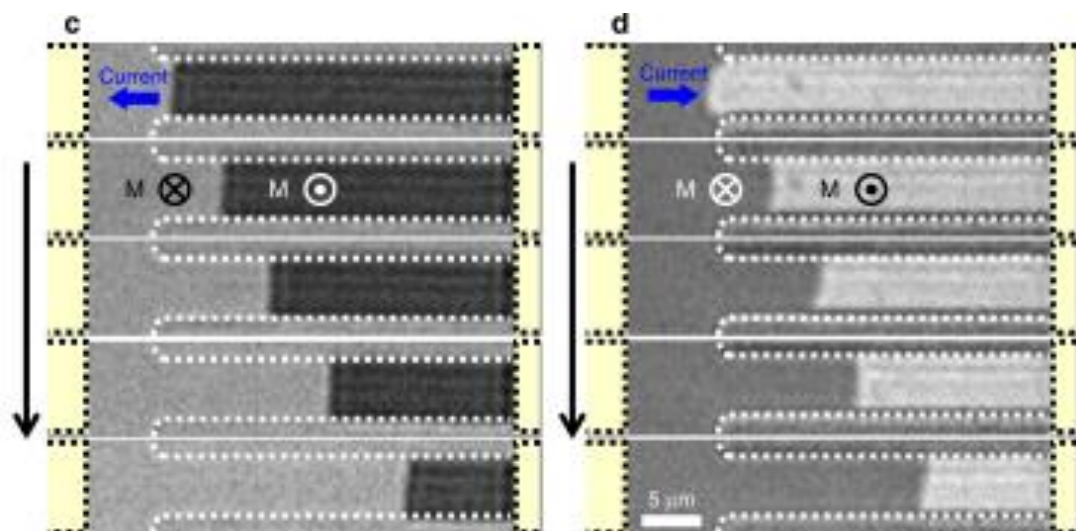


図 2.14. 磁壁の移動を利用して明らかにされた回転方向。顕微手法は Kerr 顕微鏡。 [23]

ブリルアン光散乱

実空間の顕微手法ではなく、ブリルアン光散乱という手法によるカイラル磁性体の研究もある [61]。これは光によって励起された強磁性体中のマグノン（スピン波）が薄膜中を伝播するときに、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用を受けるため、 \mathbf{D} ベクトルの大きさによってそのスピン波の周波数が変化することを利用したもので、スピン波の周波数の変化量から \mathbf{D} ベクトルを見積もることができる。しかし、この手法は、磁場によって磁気構造を変化させないといけなため、飽和磁化の大きい反強磁性構造の測定には適さない。

スピン偏極 STM

スピン偏極 STM は表面の磁気構造を原子レベルで観察できる強力な手法であり、カイラル磁性体の研究にも広く用いられている [5, 6, 7, 8, 62]。スピン偏極 STM を用いたカイラル磁性体の回転方向の研究に関しては、その測定の難しさから、W(110)上の二層 Fe 薄膜の磁壁構造において行われたのみである [62]。しかしながら、スピン偏極 STM は原子分解能を持っているため、W(110)上の Mn 薄膜のような、反強磁性の絡んだ複雑な磁気構造や、短い周期のカイラル磁気構造への適用も可能である。

表 2.2. カイラル磁性体の測定が可能な主な手法

手法	対象	らせん周期の分解能	その他の制約
中性子散乱	バルク物質	原子レベル	
ローレンツ顕微鏡	バルク物質	数十 nm	
磁壁の移動	バルク・表面	(磁壁のみ)	他の顕微手法と 組み合わせ
SP-LEEM	表面	数十 nm	
ブリルアン散乱	薄膜	-	磁場で飽和させた 状態が必要
スピン偏極 STM	表面	原子レベル	

3. 走査トンネル顕微鏡とスピン偏極走査トンネル顕微鏡

本章では、走査トンネル顕微鏡及びスピン偏極走査トンネル顕微鏡の測定原理について述べる。さらに、測定で用いた ^4He 冷却型走査トンネル顕微鏡装置の構成について述べる。

3.1. 走査トンネル顕微鏡

3.1.1. 走査トンネル顕微鏡の概要

走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy: STM) は 1982 年に Binnig、Rohrer らによって開発されて以降、様々な固体表面の原子分子の構造や電子状態の観察に用いられ、表面科学の発展に大きく貢献してきた [63]。本章では、STM の概要について述べる。

鋭くとがった探針を試料表面に、適当なバイアス電圧を印加した状態で、数 Å まで近づけると、量子力学的な効果によってトンネル電流が流れる。このトンネル電流は探針試料間距離に対して指数関数的に減衰する。すなわち、トンネル電流は距離に極めて敏感に依存するため、フィードバック制御によって、トンネル電流を一定に保ったまま表面上を走査し、その探針の軌跡を画像化すれば、表面凹凸に由来する像が極めて高い分解能で得られる。

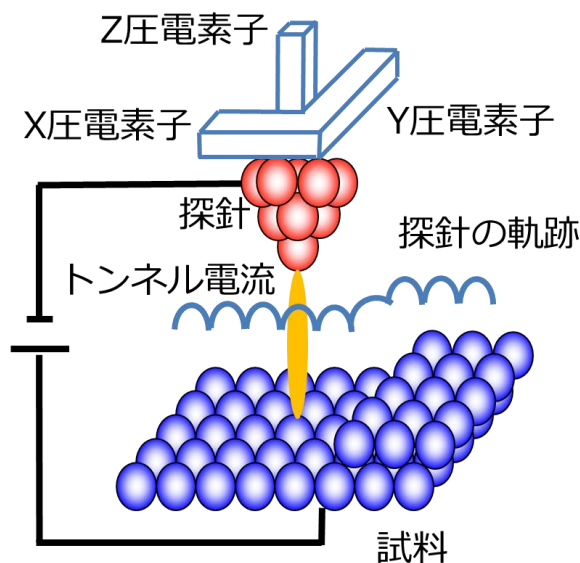


図 3.1. STM の概略図

3.1.2. 走査トンネル顕微鏡の原理

まず、トンネル電流の距離依存性について説明する。エネルギー E の電子がポテンシャル障壁 v に衝突したとき、シュレディンガー方程式から、ポテンシャル障壁の外側の波動関数 ψ は、

$$\psi(z) \propto e^{-\kappa z} \quad (3.1)$$

と表される。ただし、 z は座標を表しており、 $z=0$ がポテンシャルの境界である。 κ は減衰定数で、 $\sqrt{2m|E - v|/\hbar^2}$ で与えられる。(3.1)式は、指数関数的に減衰する波がポテンシャル障壁の外側に浸み出していることを表している。両者から浸み出した波動関数の重なりに比例するので、探針試料間距離を d とすると、試料から探針へのトンネル確率 w は、

$$w = |\psi(d)|^2 \propto e^{-2\kappa d} \quad (3.2)$$

と表される。もちろん、バイアス電圧がゼロのときは、探針から試料へも同じ確率でトンネルするので、全体の電流は 0 である。探針試料間にバイアス電圧を印加するとトンネル電流が流れる。したがってトンネル電流 I も

$$I \propto e^{-2\kappa d} \quad (3.3)$$

と表されるように、指数関数的な距離依存性を持つ。たとえば、探針と試料の平均仕事関数を 4 eV とすると、 $\kappa = 0.05 \text{ nm}^{-1}$ となり、探針試料間距離を 0.1 nm 小さくすると、トンネル電流は $e^2 \approx 7.39$ 倍になる。トンネル電流の高い距離依存性が、STM の高い空間分解能の要因となっている。

次に、トンネル電流をより詳細に考える。トンネル電流 I は Bardeen の摂動論 [64] から、バイアス電圧 V と位置 \mathbf{R}_T の関数として、

$$I = \frac{2\pi e}{\hbar} \sum_{\mu, \nu} [f(E_\mu^S - E_F) - f(E_\nu^T - E_F)] \times \delta(E_\nu^T - E_\mu^S - eV) |M_{\nu\mu}(\mathbf{R}_T)|^2 \quad (3.4)$$

と表される。ここで、 $f(E)$ はフェルミ分布関数、 E_ν^T および E_μ^S は探針および試料の波動関数 Ψ_ν^T , Ψ_μ^S のエネルギー、 E_F はフェルミエネルギーである。 $\delta(a)$ は、 $a=0$ のとき $\delta(a)=1$ で、 $a \neq 0$ のとき $\delta(a)=0$ となるデルタ関数となる。このデルタ関数によって、トンネルの前後でエネルギーが保存される、すなわち、弾性トンネルであることが保証されている。行列要素は、

$$M_{\nu\mu}(\mathbf{R}_T) = \langle \Psi_\nu^T | U_T | \Psi_\mu^S \rangle \quad (3.5)$$

で与えられる。ここで U_T は試料の電子状態に対する探針の摂動ポテンシャルである。さらに(3.5)式は面積分を用いて、

$$M_{\nu\mu} = -\frac{\hbar^2}{2m} \int dS (\Psi_\nu^* \nabla \Psi_\mu - \Psi_\mu \nabla \Psi_\nu^*) \quad (3.6)$$

と変形できる。

この行列要素を計算するためには、探針及び試料の波動関数 Ψ_ν^T , Ψ_μ^S が必要になる。しかし、探針の形状はわからないので、 Tersoff と Hamann は、探針のモデル化を行った [65]。探針先端を球と考え、さらに、探針先端の波動関数を s 波近似から、減衰定数 κ を用いて

$$\Psi_v^T = C \frac{e^{-\kappa\rho}}{\kappa\rho} \quad (3.7)$$

と仮定する。ここで、 C は規格化定数で、 ρ は探針先端の曲率中心からの距離である。(3.7) 式を用いると先の行列要素は、

$$M_{v\mu}(\mathbf{R}_T) = -\frac{2\pi C\hbar^2}{\kappa m} \Psi_\mu^S(\mathbf{R}_T) \quad (3.8)$$

となる。この近似は、行列要素が試料の電子状態に比例するということを表している。(3.8) 式を(3.4)式に代入し、 $k_B T \rightarrow 0$ の極限を考えると、トンネル電流は、試料及び探針の局所状態密度 (Local Density of State; LDOS) n^S , n^T を用いて、

$$I = \frac{16\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} V n^T \int_{E_F}^{E_F + eV} dE n^S(\mathbf{R}_T, E) \quad (3.9)$$

と表される。ここで、探針の状態密度はエネルギーによらず一定であるとした。この式からトンネル電流は、探針先端の曲率中心での試料の状態密度をフェルミ面から $\pm eV$ までの LDOS を積分したものに比例していることがわかる。さらに、トンネル電流をバイアス電圧 V で微分すると、

$$\frac{dI}{dV} = \frac{16\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} n^T n^S(\mathbf{R}_T, E_F + eV) \quad (3.10)$$

となる。そのため、トンネル電流をバイアス電圧で微分すると、あるバイアス電圧 V における試料の LDOS に関する情報が得られる。また、 V が十分小さい場合、(3.9)式は、

$$I = \frac{16\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} V n^T n^S(\mathbf{R}_T, E_F) \quad (3.11)$$

と近似できるため、トンネル電流自体が、フェルミ準位 E_F おける LDOS を観察していることになる。

LDOS を求めるために、 IV 曲線を測定して数値的に微分を行うことで dI/dV を求める方法もあるが、一般的には、バイアス電圧に変調電圧 V_{mod} を重畳し、ロックインアンプで復調することで dI/dV 値を取得するのが一般的である。

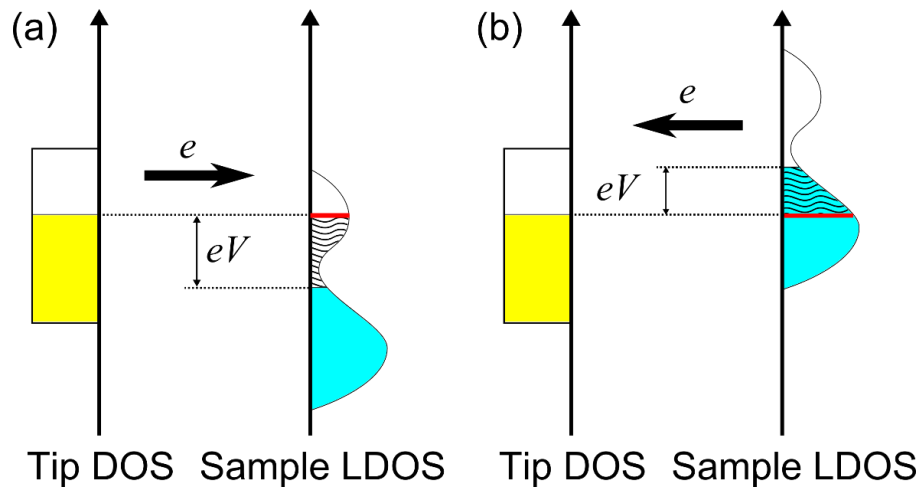


図 3.2. 探針試料間の電子エネルギーダイアグラム (a) $V > 0$ の場合 (b) $V < 0$ の場合
波線部がトンネル電流値、赤線部が dI/dV 値

3.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡

3.2.1. スピン偏極走査トンネル顕微鏡の概要

スピン偏極走査トンネル顕微鏡（以下、スピン偏極 STM）は STM をベースとして、磁気的秩序に由来する表面のスピン偏極した電子状態を実空間で可視化できる手法として、Wiesendanger らによって開発された [3]。ここでは、スピン偏極 STM の概要について述べる。図 3.3 のように、磁性体でできた探針を磁性体試料に近づけると、通常のトンネル電流成分 I_0 に加えて、探針の磁気モーメント \mathbf{m}_t と試料の磁気モーメント \mathbf{m}_s の相対的な方向に依存したトンネル電流 I_{SP} が流れるため、トンネル電流 I が変調される。

$$I \propto I_0 + I_{SP}(\mathbf{m}_t \cdot \mathbf{m}_s) \quad (3.12)$$

図 3.3 に、スピン偏極トンネル電流の模式図を示す。スピン偏極 STM では、通常の STM で検出する表面の凹凸や電子状態に由来する信号（非磁性情報）に加えて、スピン偏極信号（磁性情報）が得られる。磁性情報は、表面の磁気秩序に由来する情報のため、空間的にマッピングすると、表面の磁気秩序を反映した像が得られる。

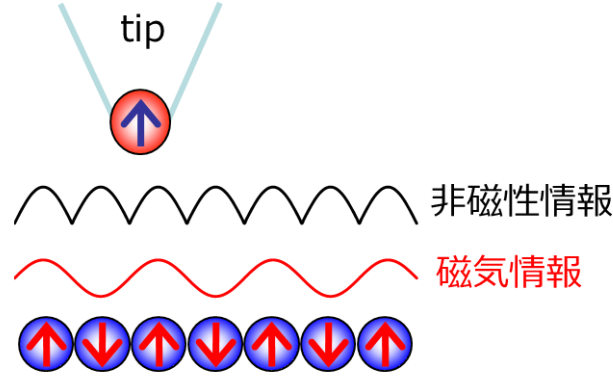


図 3.3. スピン偏極 STM の概要

3.2.2. スピン偏極走査トンネル顕微鏡の原理

さらに詳しくスピン偏極 STM の原理について説明する [66]。(3.4) 式をスピン偏極電流に拡張する場合、(3.5)式の波動関数をスピノルを用いて表す必要がある。図 3.2 のように、探針が完全にスピン偏極していると仮定すると、

$$\psi_v^T = \begin{pmatrix} \psi_{v\uparrow}^T \\ 0 \end{pmatrix} \text{ or } \psi_v^T = \begin{pmatrix} 0 \\ \psi_{v\downarrow}^T \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

と表すことができる。一方、試料の電子状態は、探針のスピン軸と試料のスピン軸が平行でない場合や完全にスピン偏極していない場合など、単純な形で表すことはできない。そのため、試料の波動関数はアップスピンとダウンスピンが混在した形で表される。

$$\psi_\mu^S = \begin{pmatrix} \psi_{\mu\uparrow}^S \\ \psi_{\mu\downarrow}^S \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

ここで、Tersoff-Hamann の理論 [65]に従い、探針は球対称であり、その電子状態は s 波で表されると仮定すると、先の行列要素は、

$$M_{v\mu}^\sigma = \langle \psi_{v\sigma}^T | U_{T\sigma\sigma} | \psi_{\mu\sigma}^S \rangle = -\frac{2\pi C \hbar^2}{\kappa m} \psi_{\mu\sigma}^S(\mathbf{R}_T) \quad (3.15)$$

と表される。ここで、 $\sigma = \uparrow, \downarrow$ であり、スピンの向きを与える。 κ は探針の波動関数の減衰定数、 C は規格化定数、 \mathbf{R}_T は探針先端を球と仮定したときの中心位置である。探針先端の s 波電子状態は、アップスピンもダウンスピンも同じ減衰定数 κ と規格化定数 C で表されると仮定する。また、探針の電子状態密度 (DOS) は、エネルギーに依らず一定で、磁化 \mathbf{m}_T の大きさと方向に依存すると仮定する。すなわち、磁化方向の単位ベクトル \mathbf{e}_M^T を用いて、 $\mathbf{m}_T = (n_T^\uparrow - n_T^\downarrow) \mathbf{e}_M^T$ と表されるとすると、

$$I = \frac{8\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} \int dE g_V(E) \sum_{\mu, \nu} \delta(E_\mu^S - E) \times \left[n_T^\uparrow |\psi_{\mu\uparrow}^S(\mathbf{R}_T)|^2 + n_T^\downarrow |\psi_{\mu\downarrow}^S(\mathbf{R}_T)|^2 \right] \quad (3.16)$$

となる。ここで、 $g_V(E) = f(E - E_F) - f(E + eV - E_F)$ である。

しかしながら、一般に電子状態のスピン分極は単純ではないため、 $|\psi_{\mu\uparrow/\downarrow}^S(\mathbf{R}_T)|^2$ は単純に LDOS (local density of state) で表すことができない。そこで、ILDOS (integrated local density of state) を導入して電流を以下のように書き下す。

$$\begin{aligned} I &= I_0 + I_{SP} \\ &= \frac{4\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} [n_t \tilde{n}_s(\mathbf{R}_T, eV) + \mathbf{m}_t \cdot \tilde{\mathbf{m}}_s(\mathbf{R}_T, eV)] \end{aligned} \quad (3.17)$$

\tilde{n}_s は試料の ILDOS、 $\tilde{\mathbf{m}}_s$ は試料のスピン偏極 ILDOS であり、

$$\tilde{n}_s(\mathbf{R}, eV) = \int dE g_V(E) n_s(\mathbf{R}_T, E) \quad (3.18)$$

$$\tilde{\mathbf{m}}_s(\mathbf{R}, eV) = \int dE g_V(E) \mathbf{m}_s(\mathbf{R}_T, E) \quad (3.19)$$

と書き表す。(3.17)式から、スピン偏極電流成分 I_{SP} は、探針と試料の磁化の相対的な角度に依存していることがわかる (図 3.4)。すなわち、 I_{SP} の違いから、表面のスピン構造を反映した像が得られる。

通常は試料の磁気状態による I_{SP} の変化はあまり大きくないため、スピン偏極していない電流 I_0 に埋もれてしまうことが多い。そのため、スピン偏極 STM の報告の多くは、定電流モードによるイメージングではなく、微分コンダクタンス dI/dV のイメージングによることが多い。微分コンダクタンス dI/dV は(3.17)式より、

$$dI/dV \propto n_t n_s(\mathbf{R}_T, eV) + \mathbf{m}_t \cdot \mathbf{m}_s(\mathbf{R}_T, eV) \quad (3.20)$$

となる。スピン偏極度の高い電子状態に、バイアス電圧 V を設定することで、より大きなスピン偏極信号を得ることができる。

図 3.4 にスピン偏極 STM のエネルギーダイアグラムの模式図を示す。図 3.4 のように、フェルミ面付近の探針の電子状態が完全にスピン分極していたとする。この場合、下向きスピンの電子が支配的にトンネルする。この模式図においては、フェルミ面よりややエネルギーが小さい部分の試料の電子状態は、下向きスピンの方が多い。そのため、図 3.4 (a) においては電流が多く流れ、図 3.4 (b) においては電流が流れにくい。ただし、ここでは正バイアスを印加した場合を考えたが、フェルミ面よりややエネルギーが大きい部分の試料の電子状態は、上向きスピンの方が多いため、負バイアスを印加した場合電流の流れやすさが逆になる。このように、必ずしも「電流が流れやすい場合は試料の磁化が平行」というわけではなく、電流の流れやすさは、探針や試料のスピン偏極した電子状態に大きく影響される。つまり、スピン偏極電流は、探針と試料の磁化の相対的な角度のコサインに依存はするが、平行・反平行のどちらの場合にスピン偏極電流が多く流れるかは自明ではないので注意が必要である。

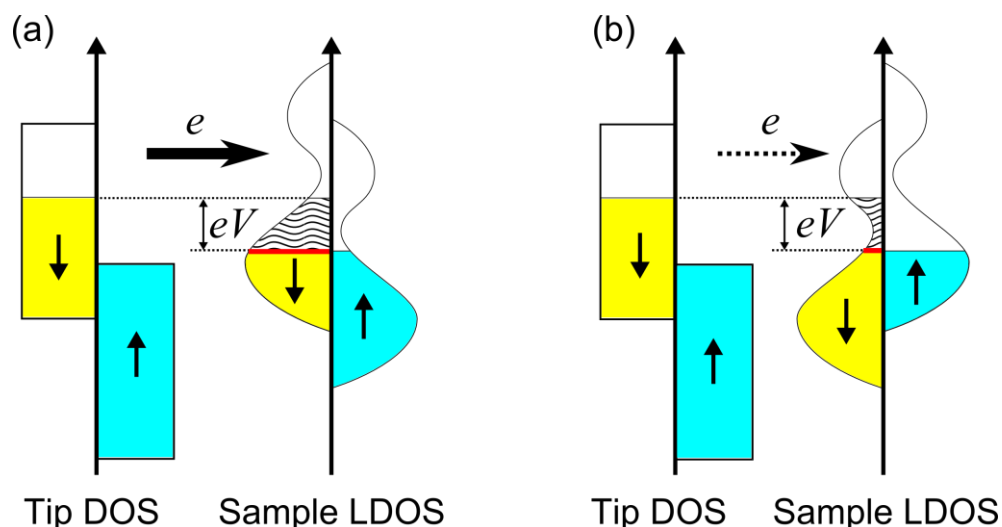


図 3.4. スピン偏極 STM のエネルギーダイアグラム (a)と(b)で試料の磁化が反対向き
波線部がトンネル電流値、赤線部が dI/dV 値

3.3. ^4He 冷却型超高真空極低温 STM 装置の構成

超高真空装置は、導入チャンバー・処理チャンバー①・処理チャンバー②・方向変換チャンバーの4つの真空チャンバーから構成されており、それぞれはゲートバルブで区切られていて、独立させることができる。方向変換チャンバーと STM 測定部は区切られておらず、1つの真空チャンバーでつながっている。この装置全体は、床振動を取り除くため、空気ばねを用いた除振台の上に設置されている。また、装置全体は防音室内に設置されており、音による振動も防いでいる。概略図を図 3.5 に示す。

導入チャンバー

導入室は探針や試料を導入するための部屋である。導入室には、試料ホルダーや探針ホルダーを固定するためのストッカー、それらを処理室へ運ぶためのトランスファーロッドが装備されている。このチャンバー内はスクロールポンプ (SP) とターボ分子ポンプ (TMP) により、 $\sim 10^{-5}$ Pa 程度の高真空状態に保たれている。

処理チャンバー①

処理チャンバー①には、電子ビーム蒸着源が設置されており、探針先端に Fe 薄膜の蒸着を行ったり、試料に Mn 薄膜の蒸着を行ったりするためのチャンバーである。また、真空度を測定するイオンゲージ真空計が取り付けられている。このチャンバーはチタンサブリメーションポンプ (TSP) とスパッタイオンポンプ (SIP) のコンビネーションポンプにより、 10^{-8} Pa 台の超高真空に保たれている。

処理チャンバー②

処理チャンバー②は探針や試料の脱ガス・フラッシング・アニール等を行うための部屋である。このチャンバーで、探針先端に付着している酸化物の電子ビーム加熱による除去や、試料の清浄化を行う。このチャンバーにも、イオンゲージ真空計、TSP、SIP、TMP、SP が取り付けられており、 10^{-8} Pa 台の超高真空に保たれている。

方向変換チャンバー

方向変換チャンバーは、試料や探針を STM 測定部に運ぶために、方向を変換するための部屋である。STM 測定部は、低温環境を保つため、ピット内の深い部分に設置している。そのため、試料や探針を STM 測定部に運ぶには、長いトランスファーロードが必要であり、このチャンバーに設置されている。このチャンバーにも、イオンゲージ真空計、TSP、SIP、TMP、SP が取り付けられており、 10^{-8} Pa 台の超高真空に保たれている。

STM 測定部

STM 測定部は、試料の観測を行う場所である。観測室には図 3.5（右図）で示す STM ユニットが取り付けられている。STM 測定部は、液体 ^4He で冷却されており、約 5 K の温度に保たれている。超伝導マグネットがデュワー内に設置されているため、試料表面に対して面直方向に 2 T、面内方向に 1 T までの磁場が印加可能になっている。

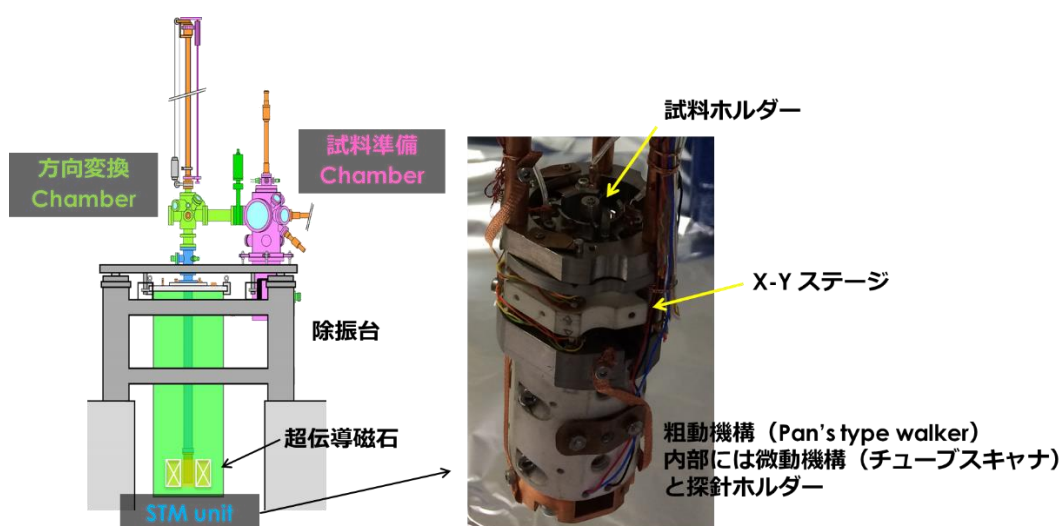


図 3.5. ^4He 冷却型 STM 装置

STM ユニット

STM ユニットは、探針ステージと試料ステージからなる。探針ステージには、探針試

料間距離を制御する二つの機構が取り付けられている。

一つは、探針試料間距離を大きく変える粗動機構である。粗動機構の作動には、6つの積層ピエゾを用いている。積層ピエゾは、図 3.6(a)に示すような、逆向きに分極したピエゾが電極を挟んで交互に積層されている。しかし、図中で黒色で表している電極も交互に積層されているので、電極間に電圧を印加すると、全てのピエゾは同じ方向に変形する。動かす対象（サファイア板）の下には平坦になるように磨いたアルミナ板を取り付けている。図 3.6(b)は印加する電圧ダイアグラムである。まず、図 3.6(b) ①のように、印加する電圧を変化させ、アルミナ板とサファイア板の間に滑らせる（図 3.6(a) 上図→中図）。次に、図 3.6(b) ②のように、徐々に電圧を変化させたときは、アルミナ板とサファイア板の間の摩擦のために、両者は同時に動く（図 3.6(a) 中図→下図）。結果として、アルミナ板を元の位置から動かすことができる。①の電圧を急激に変化させて滑りを生じさせる方式を慣性駆動方式と呼び、積層ピエゾがそれぞれ独立に動作し、①のタイミングをずらすことで、滑りを生じさせる方式を **Pan's type walker** 方式と呼ぶ。この粗動機構は **Pan's type walker** 方式を採用している。

もう一つは、探針試料間距離を精密に制御するチューブ型ピエゾである。円筒状の z 電極に電圧を印加することで、ピエゾ変形させて、**pm** オーダーで探針試料間距離の制御を可能にしている。また、外周 4つのピエゾは対向する 2つのピエゾを同時に伸び縮みさせることで、2次元走査を可能にしている。チューブ型ピエゾの先に、探針ホルダーを取り付けている。

試料ステージには **X-Y** ステージ機構が取り付けられている。**X-Y** ステージとは、走査範囲を大きく変化させる機構である。6つの積層ピエゾが取り付けられており、慣性駆動方式で駆動されている。ただし、**X-Y** ステージの駆動には、全てのシェアピエゾが同時に動く慣性駆動方式を採用している。試料ステージには、3つの電極が取り付けられているため、試料ホルダーを 120 度回転させることが可能であり、面内の磁場方向を変化させることができる。

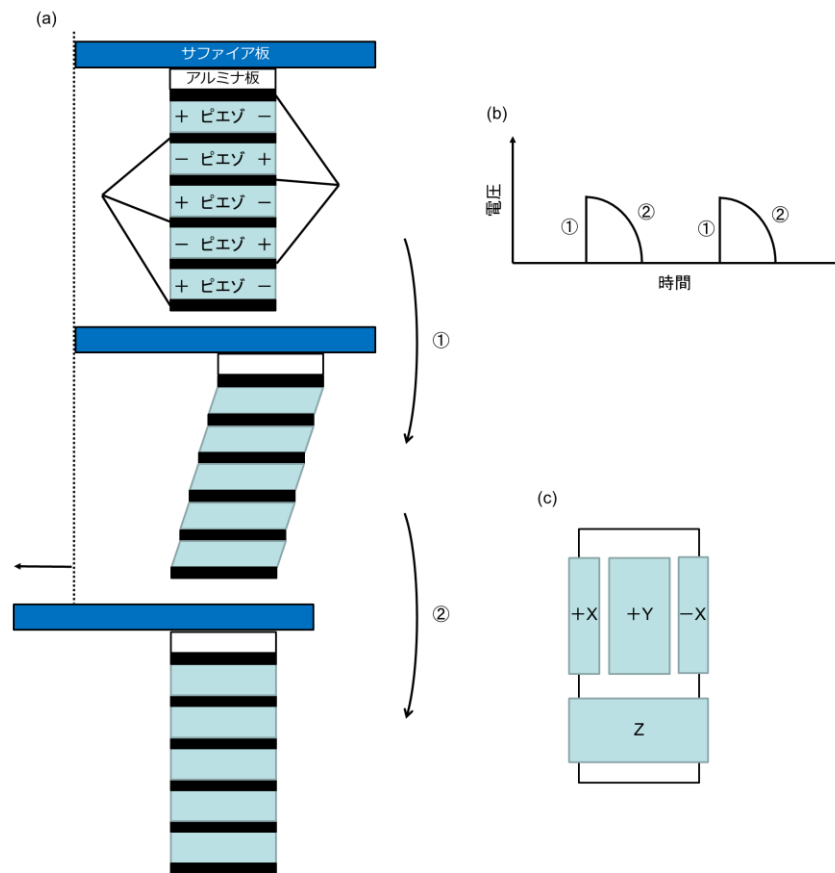


図 3.6. (a) 積層ピエゾの模式図 (b) 積層ピエゾに印加する電圧のダイアグラム
(c) チューブ型ピエゾの模式図

4. W(110)上の Mn 薄膜の実空間観察

本章では、W(110)上の Mn 薄膜に関する実験結果について述べる。

4.1. W(110)上の一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜の磁気構造

4.1.1. W と Mn の基礎物性

2.3 節で述べた通り、重い元素からなる基板上に形成された磁性薄膜は、界面での Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって、カイラリティを持つ複雑な磁気構造が形成される。タングステン原子は、原子番号 74、原子量 183.8 であり、5d 電子を 4 つ有している。そのため大きなスピン軌道相互作用が期待でき、界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の研究対象として広く用いられている。一方、薄膜に用いたマンガンは、3d 電子を 5 つ持つ元素で、常温単体では反強磁性を示す遷移金属元素として広く知られている。タングステンとマンガンの物理特性を表 4.1 にまとめている [67]。

表 4.1. タングステンとマンガンの物性表

	タングステン (W)	δ -マンガン (Mn)
原子番号	74	25
原子量	183.8	54.9
電子配置	[Xe] 4f ¹⁴ 5d ⁴ 6s ²	[Ar] 4s ² 3d ⁵
結晶構造	体心立方格子	体心立方格子
格子定数	0.317 nm	0.295 nm
融点温度	3680 K	1519 K

4.1.2. W(110)上の一層 Mn 薄膜

W(110)上に形成された一層 Mn 薄膜の磁気構造は、スピン偏極 STM を用いて、 $[1\bar{1}0]$ 方向に伝播するらせん磁気構造であることが明らかにされている [5]。この磁気構造は、図 4.1 のように、 $[001]$ 方向に隣り合う Mn スピンは、平行に揃っている。一方、 $[1\bar{1}0]$ 方向に隣り合う Mn スピンは約 7 度傾いた反強磁性を示している。そのため、 $[1\bar{1}0]$ 方向に伝播するらせん磁性を示し、その周期は約 12 nm である [5]。スピン偏極 STM 測定はすでに行われており、その先行研究を図 4.2 に示す [5]。図 4.2 の上図は、スピン偏極 STM 像で下図はその断面図である。細かな周期は反強磁性構造に由来する原子列毎の周期であり、大きな周期はらせん磁気構造に由来するものである。コントラストの強さ (図 4.3 右下) の解析から、この構造に関してはテラス幅と温度の依存性も調べられている (図 4.3)。このらせん磁気構造は、アイランドの大きさによるが、190-220 K まで安定であることが判っている [68]。

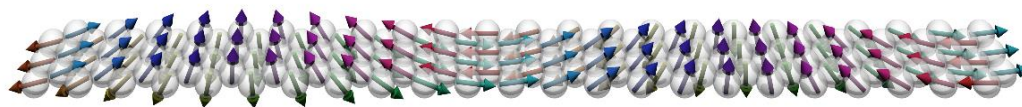


図 4.1. 一層 Mn 薄膜のらせん磁気構造の模式図

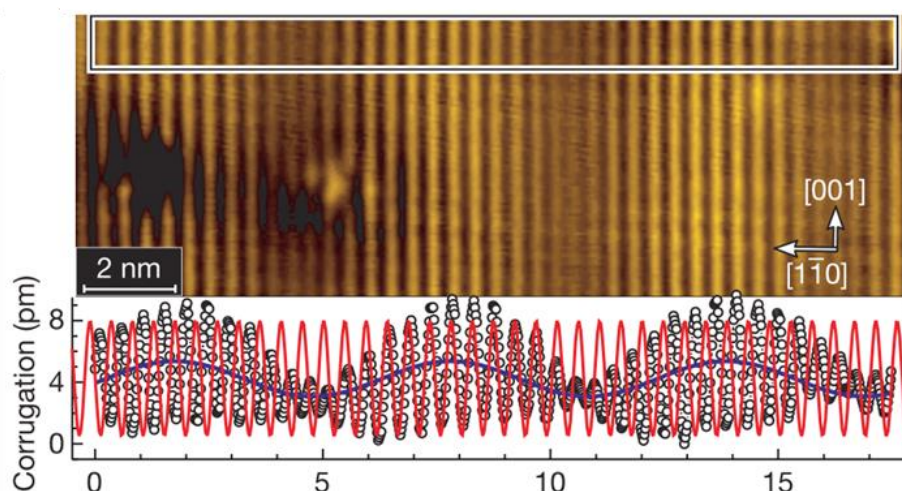


図 4.2. 一層 Mn 薄膜のスピン偏極 STM 像とその断面図 [5]

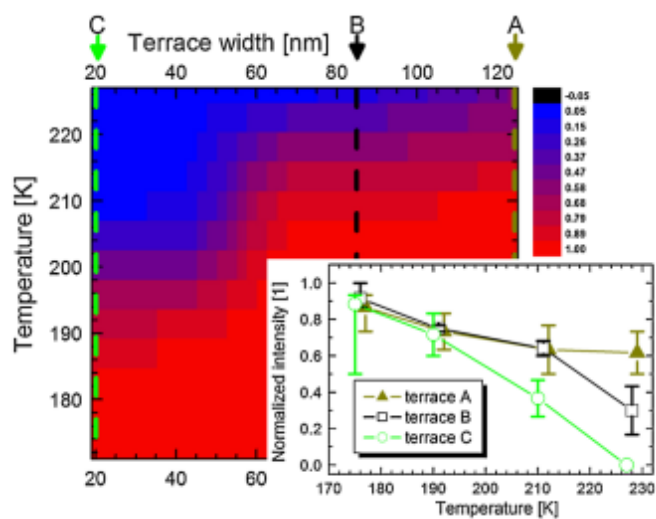


図 4.3. らせん磁気構造の安定性。横軸はテラス幅で、縦軸は温度である。赤色の領域ではらせん磁気構造が安定であり、青色の領域では、らせん磁気構造は壊されている。テラスが大きくなるにしたがってネール温度が高くなっている。インセットは図中の A, B, C における断面図であり、C では低い温度でらせん磁気構造が壊されている [68]。

また、この磁気構造は、図 4.4 の方法で、カイラリティがあることが明らかにされている [5]。図 4.4 は、上から 0 T, 1 T, 2 T の面直磁場下で取得されたスピン偏極 STM 像である。測定で用いられた Fe/W 探針は面内に磁化容易軸を持っているため、0 T の磁場下では、探針の磁化は面内方向を向いている。面直方向の磁場を大きくするにつれて、コントラストが強くなる部分（図中黒色点線）が左方向へとシフトしていることがわかる。このシフトの方向は、らせん磁気構造の回転方向に依存しているため、シフトの方向からカイラリティを調べることができる。Bode らは、この測定を 6 つのテラス上で行い、全てのテラス上でこのシフトの方向が一致することを確認し、一層 Mn 薄膜はカイラリティを持つということを結論付けている。しかし、この方法では、ゼロ磁場印加時の磁化方向がわからないため、回転方向を実験的に決定することはできていない。また、回転型がサイクロイド型かあるいはヘリカル型かということも、実験的には結論付けていない。Bode らは、理論計算によって、サイクロイド型の左巻きらせん磁気構造であることを予測している [5]。

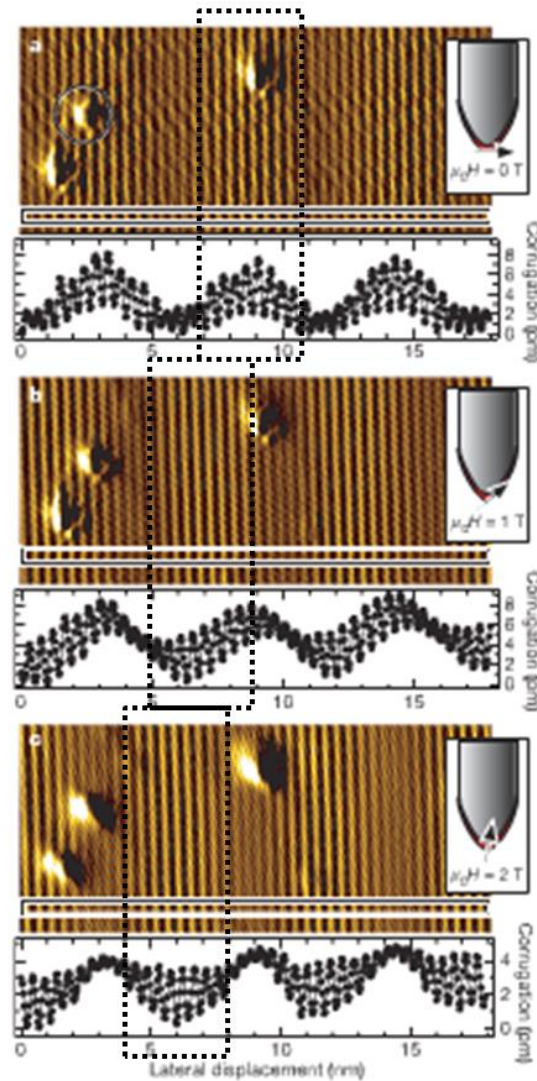


図 4.4. 一層 Mn 薄膜上のカイラリティの評価 [5]

4.1.3. W(110)上の二層 Mn 薄膜

W(110)上に形成された二層 Mn 薄膜の磁気構造も、スピン偏極 STM を用いて、[001]方向に伝播するらせん磁気構造であることが明らかにされている [7]。図 4.5 に、二層 Mn 薄膜の磁気構造を示す。[001] 軸に沿った Mn スピンは、 $[1\bar{1}0]$ 方向と $[\bar{1}10]$ 方向に交互に向いており、しかも $[1\bar{1}0]$ 方向から約 30 度傾いている。[001] 方向に進むに伴いスピンの向きは、その傾きによって作られる円錐上を回転し、らせん磁性を示す。 $[1\bar{1}0]$ 方向を向く列と $[\bar{1}10]$ 方向を向く列の両方は同じ位相で回転している。二層 Mn 薄膜に関しても、スピン偏極 STM による測定は行われている (図 4.6)。図 4.6 の右図は左図を拡大したもので、細かな周期は反強磁性構造に由来する原子列毎の周期であり、大きな周期はらせん磁気構造に由来するものである [7]。

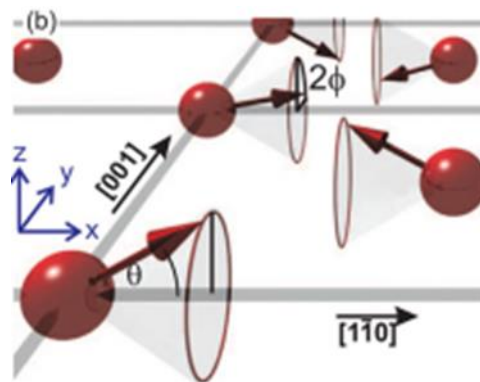


図 4.5. 二層 Mn 薄膜の磁気構造 [7]

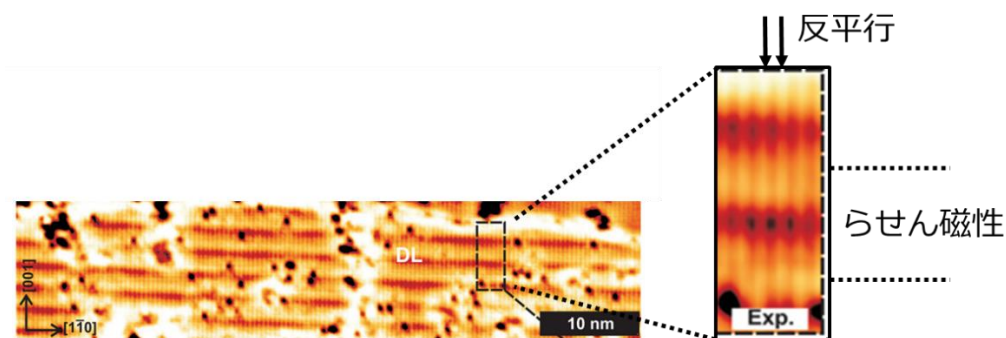


図 4.6. 二層 Mn 薄膜のスピンの偏極 STM 像 [7]

二層 Mn 薄膜におけるらせん磁性の形成に対しては、スピン軌道相互作用を含まないモデル計算かららせん磁気構造が再現できることから、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は重要ではないとの報告がある [7]。ただし、計算結果を説明するためには、交換相互作用のみでは良くフィッティングすることが難しく、多体交換相互作用の項を含んだフィッティングを行った方が計算結果とよく一致する。そのため、多体交換相互作用がらせん磁性の形成に重要であるとの結論が得られている。

しかし、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用に関する議論が十分になされておらず、回転方向・カイラリティが実験的に明らかにになっていないため、Mn と W の界面における Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が、この磁気構造の形成にどのように寄与しているかは明らかではない。また、詳細な局所状態密度に関する議論も行われていないのが現状である。

4.2. 試料の作製

4.2.1. W(110)基板の清浄化

まず基板として用いた W(110)表面の清浄化に関して述べる。タングステンは融点非常

に高く、清浄化には高温での加熱を要する。上述の通り、W(110)表面の清浄化には、2600 K 以上の高温に耐えられる試料ホルダーが必要なので、融点の低い素材（アルミニウム、SUS、銅など）を用いることはできない。そこで、試料ホルダーには、金属部分にモリブデン（融点 2896 K）もしくはタンタル（融点 3259 K）を、絶縁体の部分にはアルミナ（融点 2345 K）を用いたものを使用している。試料の加熱には、電子ビームによる加熱を用いている。電子ビーム加熱とは、試料ホルダー内に仕込まれたフィラメント（0.15 mmφ、トリエテッドタングステン）に通電した状態で、フィラメントと試料間に高電圧（試料側が正電圧）を印加することにより、フィラメントからの熱電子を試料に加速しつつ照射することで加熱する。以下では、フィラメントに流した電流と印加した電圧をそれぞれ I_{fil} と V_{fil} 、フィラメントと試料間に印加した電圧を V_{HV} 、熱電子によるエミッション電流を I_{EM} とする。

W(110)基板の清浄化は以下の手順で行った [69]。なお、温度は放射温度計で測定している。温度と同時にパラメータを記載しているが、試料と電極との接触具合などによってパラメータは少しずつ異なる。実際に実験では、温度を共通にするため、パラメータは毎回調整している。

- ① 試料ホルダー内に仕込まれたフィラメントに電流を流して、フィラメントの脱ガスを行う。
- ② 電子ビーム加熱により試料を 1600 K まで徐々に加熱し、試料と試料ホルダーの脱ガスを行う。1600 K を保持したまま 10^{-7} Pa 以下に保てる程度になるまで脱ガスを続ける。
- ③ 試料を 2600 K ($I_{fil}=3.0$ A、 $V_{fil}=5.0$ V、 $V_{HV}=0.8$ kV、 $I_{EM}=200$ mA) まで加熱し、試料の脱ガスと付着した不純物の除去を行う。15 秒間加熱し、その間に 1×10^{-7} Pa 以下を保てるようになるまで脱ガスを繰り返し行う。
- ④ 酸素雰囲気中 (10^{-4} Pa) で 1500 K ($I_{fil}=2.9$ A、 $V_{fil}=4.6$ V、 $V_{HV}=0.46$ kV、 $I_{EM}=41$ mA) の温度で加熱を 30 分間行い、表面に析出した炭素を取り除く（酸素アニール）。
- ⑤ 2600 K で 15 秒間の加熱を 3 回以上行い、酸素アニールにより付着した表面上の酸素分子を取り除く。このとき、真空度は 1×10^{-7} Pa 以下を保てるようにする。もし、真空度が悪くなるようであれば、時間を短くして回数を増やす。（フラッシュ）

①～③は、試料を超高真空内に入れてから一度だけ行い、その後④～⑤を数回繰り返す。④～⑤の繰り返しは、経験上 3 回以上行うことで清浄化することができる。

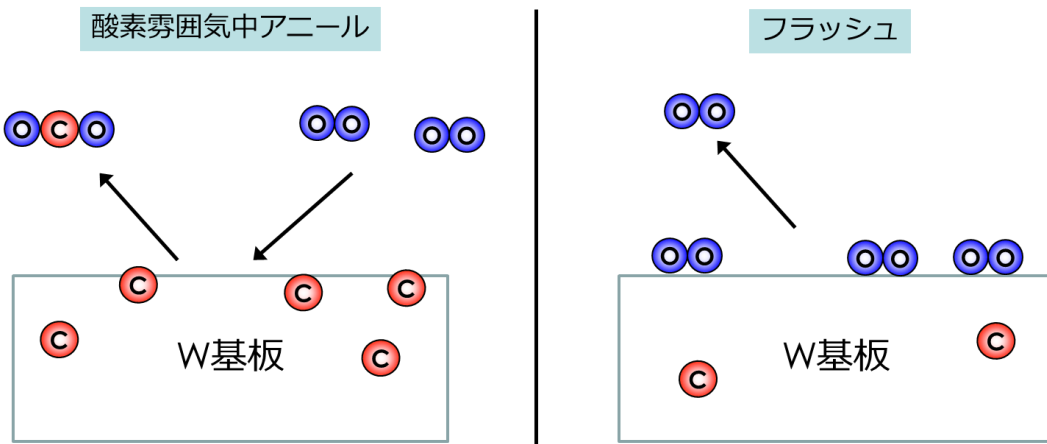


図 4.7. W(110)表面の清浄化

上記のサイクルを行って得た W(110)表面のトポグラフ像とその断面図を図 4.8 に示す。トポグラフ像から数十 nm の幅のテラスを持つステップ構造が確認できる。右図は、トポグラフ上の赤線部分で取得した断面図である。断面図から、ステップの高さは約 0.24 nm であった。W の格子定数は $a_w = 0.317$ nm であり、[110]面において期待されるステップ高さは $(1/\sqrt{2})a_w \approx 0.224$ nm であるため、このステップは単原子層ステップである。

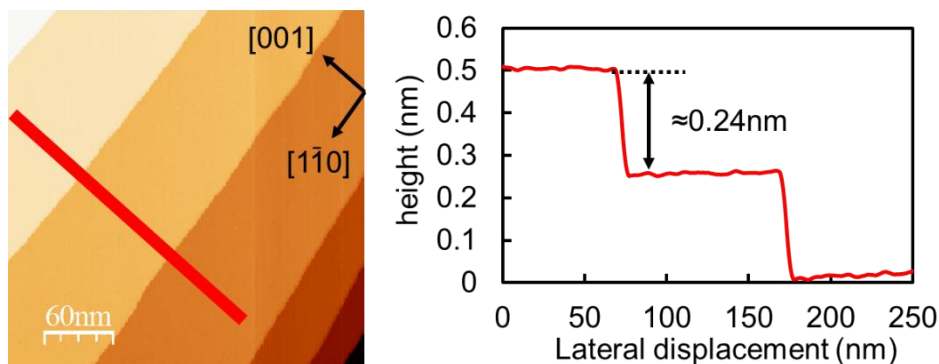


図 4.8. W(110)表面の STM トポグラフ像 (左) とその断面図 (右)

(PtIr 探針, $V_s = 1.2$ V, $I_t = 1.1$ nA, 300×300 nm)

次に、酸素アニールの重要性を示すため、酸素アニールを行った場合と行わなかった場合を比較した結果を図 4.9 に示す。上図が酸素アニールを行った場合で、下図が酸素アニールを行わなかった場合である。広い観察領域の STM 像では、どちらも広い平坦なテラスを持つステップ構造が観察されている。しかし、狭い領域を観察すると、酸素アニールを行わなかった表面では、ジグザグ構造が見られる。これは、タングステン内に残っている炭素が表面に析出されたものであることが、STM、LEED、オージェ電子分光の研究から結論付けられている [70, 71]。

このように、酸素アニールを行わなければ、不純物である炭素原子による再構成表面が形成されてしまう。しかし、加熱温度が不十分の場合、表面の凹凸が大きく、炭素再構成表面すら観察されない。W(110)表面の清浄化がうまくいかない原因として、「加熱温度が低い」ことと、「酸素アニールが不十分である」ことなどが考えられるが、この炭素再構成表面の観察を試みて、炭素再構成表面が観察されれば、加熱温度は十分であることを確認することができる。

なお、酸素アニールを行った場合でも、一部に黒く見える不純物が観察されることがある。これは、除去しきれなかった炭素、もしくは酸素アニール時に付着した酸素であると考えられるが、Mn 薄膜の形成に関しては大きな問題にはならなかった。

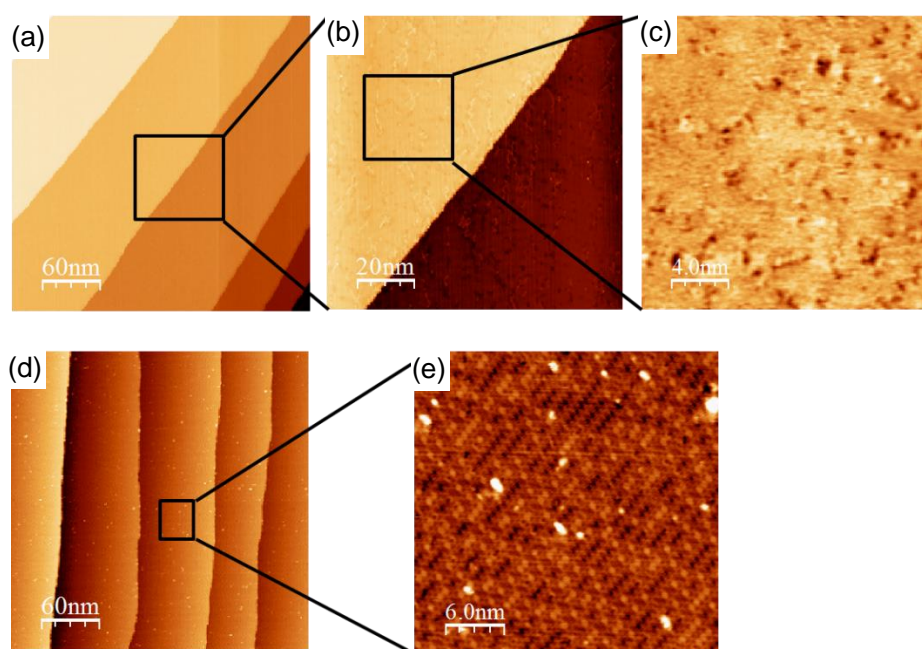


図 4.9. 酸素アニールを行った場合 (a-c) と行わなかった場合 (d, e) の W(110)表面の STM 像。全てのトポグラフ像は PtIr 探針で取得している。

(a) $V_s = 1.2 \text{ V}$, $I_t = 1.1 \text{ nA}$, $300 \text{ nm} \times 300 \text{ nm}$

(b) $V_s = 1.2 \text{ V}$, $I_t = 1.1 \text{ nA}$, $100 \text{ nm} \times 100 \text{ nm}$

(c) $V_s = 300 \text{ mV}$, $I_t = 1.0 \text{ nA}$, $20 \text{ nm} \times 20 \text{ nm}$

(d) $V_s = 840 \text{ mV}$, $I_t = 0.84 \text{ nA}$, $300 \text{ nm} \times 300 \text{ nm}$

(e) $V_s = 910 \text{ mV}$, $I_t = 0.66 \text{ nA}$, $30 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$

4.2.2. Mn 薄膜の作製

4.2.1 項で清浄化した W(110)基板の上に Mn 薄膜を蒸着した。Mn の蒸着は電子ビーム加熱によって、るつぼ内の Mn を気化させて W(110)基板に薄膜を形成させている。このときの蒸着条件は、フィラメント電流 $I_{fil} = 4.03 \text{ A}$, フィラメント蒸着源間電圧 $V_{HV} = 0.96 \text{ kV}$, エ

ミッション電流 $I_{EM}=13.8\text{ mA}$, フラックス電流 $I_{FLUX}=21.9\text{ nA}$ である。蒸着中は、チャンバ一の真空度を $1 \times 10^{-7}\text{ Pa}$ 以下に保つように行っている。

4.1.1 項で示したように、W 基板の格子定数 a_W は $a_W=0.317\text{ nm}$ で、同じく体心立方格子である $\delta\text{-Mn}$ の格子定数 a_{Mn} は $a_{Mn}=0.295\text{ nm}$ のため、格子不整合 $(a_W - a_{Mn})/a_{Mn}$ は約 7.3% であるが、W(110)上に Mn を蒸着した場合、二層まではエピタキシャル成長しており [72]、Mn 薄膜表面は、面内には W 基板と同じ大きさの格子を持つ体心立方格子の (110) 面となっている。

図 4.10 にそれぞれ蒸着量が異なる 3 種類の Mn 薄膜の STM 像を示す。図 4.10 (a) では、一層 Mn 薄膜が W 基板表面を部分的に覆っている。図 4.10 (b) では、一層 Mn 薄膜と二層 Mn 薄膜の領域が混在している。図 4.10 (c) では、全てが二層 Mn 薄膜で覆われている。また、図 4.10 (c) を取得した際、図 4.11 のような高さのあるアイランド構造も確認できた。この島は、トポグラフ像の高さから見積もると約 5 層分であった。今回の実験では、三層以上の Mn 薄膜をエピタキシャル成長させることはできなかった。

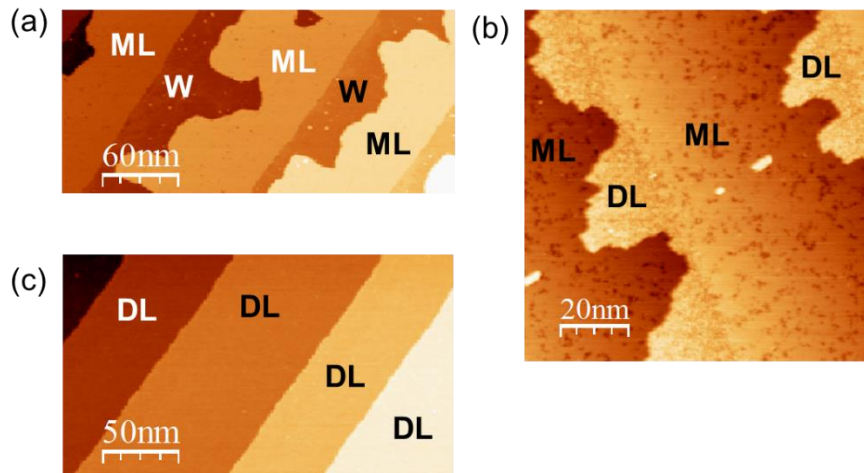


図 4.10. W(110)上の Mn 薄膜の STM 像

(a) $V_s = -600\text{ mV}$, $I_t = -500\text{ pA}$, $300 \times 140\text{ nm}$

(b) $V_s = 150\text{ mV}$, $I_t = 500\text{ pA}$, $100 \times 100\text{ nm}$

(c) $V_s = -700\text{ mV}$, $I_t = -50\text{ pA}$, $250 \times 140\text{ nm}$



図 4.11. W(110)上の Mn 薄膜の STM 像
 $V_s = -600 \text{ mV}$, $I_t = -130 \text{ pA}$, $300 \times 150 \text{ nm}$

また、Mn 薄膜形成時の注意事項として、以下のようなことを挙げておきたい。W(110)表面の清浄化プロセスの後、十分時間をあけてから Mn 蒸着を行うと、平坦な薄膜が形成されなかった。これは、基板の温度が室温まで下がってしまったため、吸着した Mn 原子が W(110)表面上を十分拡散しなかったためと考えられる。また、そのあと加熱を行うと、平坦なテラス構造は形成されたが、スピン偏極信号は得られなかった。これは、W と Mn が表面で合金構造を形成したためではないかと考えている。平坦な薄膜を作製するためには、清浄化プロセスの後直ちに Mn を蒸着する必要がある。目安として、最後の 2600 K へのフラッシュを終えたのちに 5 分以内に蒸着を開始するのがよい。また、装置の構造上行っていないが、基板を加熱しながら蒸着を行うと効果的である可能性もある。

4.3. 一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜上で取得した電子状態

電子状態を評価するため、一層 Mn 薄膜と二層 Mn 薄膜のそれぞれの領域で dI/dV スペクトル測定を行った結果を図 4.12 に示す。図 4.12 (a) が一層 Mn 薄膜領域で得られた dI/dV スペクトルであり、図 4.12 (b) が二層 Mn 薄膜領域で得られた dI/dV スペクトルである。一層 Mn 薄膜領域の dI/dV スペクトルでは、 -400 mV 近傍に大きく広いピークが見られ、 $+150 \text{ mV}$ 近傍に小さいピークが現れている。この結果は先行研究 [72]と良い一致を示す。一方、二層 Mn 薄膜領域では、負バイアス側のピーク電圧値は第一層と類似しているが、正バイアス側のピーク電圧値は $+200 \text{ mV}$ 近傍にシフトしているという結果が得られた [73]。

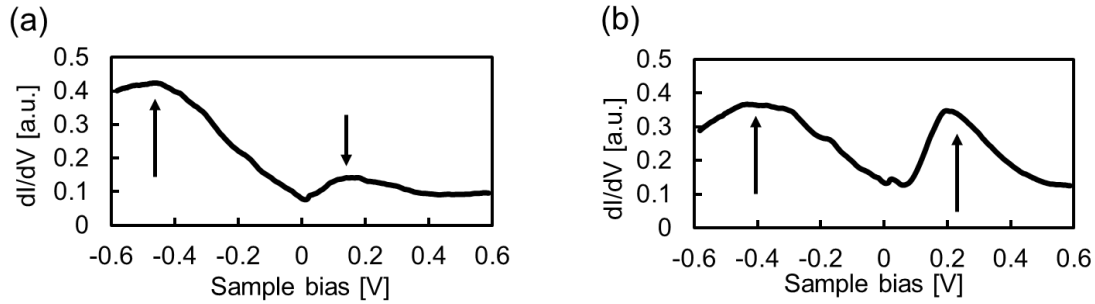


図 4.12. (a) 一層 Mn 薄膜上および、(b) 二層 Mn 薄膜上で取得した状態密度
(初期パラメータ $V_s = -0.6$ V, $I_t = -1.0$ nA)

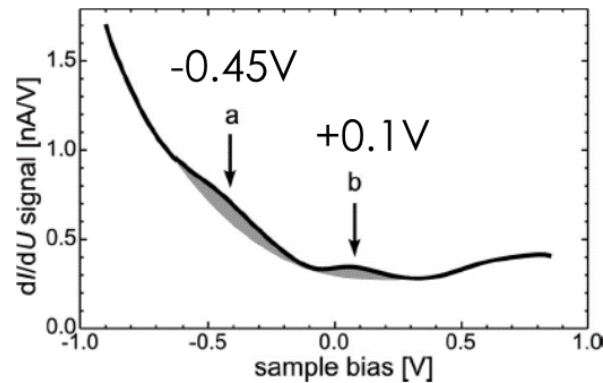


図 4.13. 一層 Mn 薄膜上で取得された dI/dV スペクトル [72]

4.4. 一層 Mn 薄膜及び二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像

4.4.1. 一層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像

まず、PtIr 探針を用いて行った一層 Mn 薄膜上における STM の結果を図 4.14 に示す。図 4.14 (a) はトポグラフ像である。バイアス電圧 V は 150 mV、トンネル電流 I は 0.5 nA に設定している。トポグラフ像において、ML と示した領域は一層 Mn 薄膜の領域を、DL と示した領域は二層 Mn 薄膜の領域を表している。トポグラフ像から、それらが混在した表面が得られていることがわかる。(b) は同時に取得した dI/dV 像である。 dI/dV 値はロックインアンプで取得しており、その際の変調電圧の振幅 V_{mod} は 40 mV、変調周波数 f_{mod} は 877.1 Hz に設定した。 dI/dV 像において、図中矢印で示すように、[001] 軸に沿った約 5.7 nm 周期のストライプパターンが観察されている。これは、一層 Mn 薄膜が示すらせん磁性に由来するコントラストではあるが、Tunneling Anisotropic Magnetoresistance (TAMR) と呼ばれる、表面のスピンの向きに依存した電子状態の変化を反映している。この電子状態の変化は全スピンの電子状態の和に現れ、非磁性探針である PtIr 探針でもイメージングできる (4.4.2 項を参照)。なお、二層 Mn 薄膜領域が一層 Mn 薄膜領域に比べて明るくイメージングされている

のは、図 4.12 に示すように、150 mV のバイアス電圧においては、二層 Mn 薄膜の方が電子状態密度が高いためである。

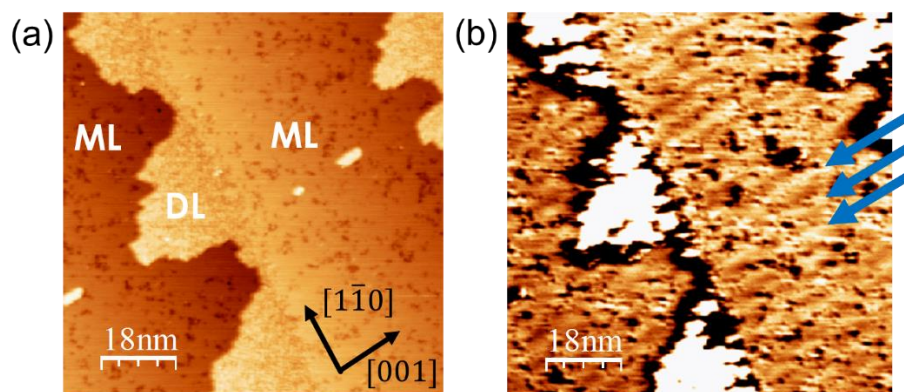


図 4.14. PtIr 探針を用いて行った STM トポグラフ像 (a) と dI/dV 像 (b)
($V = 150$ mV, $I = 0.5$ nA, $V_{mod} = 40$ mV, $f_{mod} = 877.1$ Hz, 90 nm \times 90 nm)

さらに狭い領域で、Fe/W 探針を用いてスピン偏極 STM 測定を行った結果が図 4.15 である。これは $V = 10$ mV, $I = 10$ nA で取得したトポグラフ像である。また、ここでは面直方向に 1 T の磁場を印加している。

スピン偏極電流は、探針と試料の磁化方向の相対的な角度のコサインに比例している。この測定では面直方向に磁場を印加しているため、探針の磁化の向きは面直である。試料の磁化が面直を向いているときは、探針と試料の磁化の相対的な角度は 0 度もしくは 180 度であるため、反強磁性コントラストを明瞭に観察することができる。一方、試料の磁化が面内を向いているときは、相対的な角度は 90 度もしくは -90 度のため、反強磁性コントラストを観察できない。すなわち、図中でコントラストが弱くなっている領域は、試料の磁化が面内を向いている領域であることを表している。コントラストが弱くなっている面内磁化の領域では、トポグラフの高さ自体は高くなっている。これは 4.4.2 項で述べる TAMR に由来するものである。

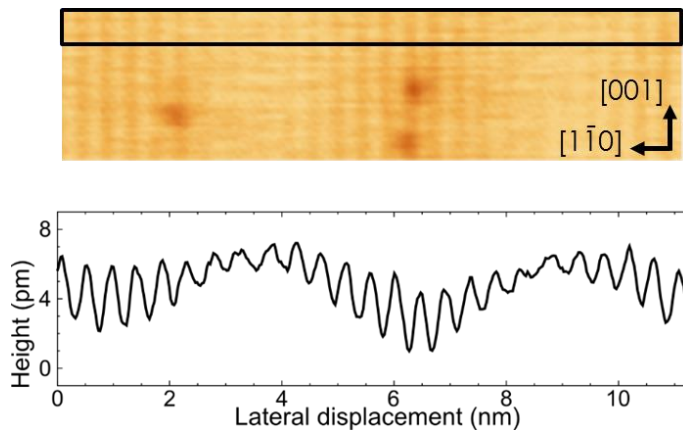


図 4.15. 一層 Mn 薄膜におけるスピンの偏極 STM 像とその断面図
(Fe/W 探針, $V = 10$ mV, $I = 10$ nA, $B_{\perp} = 1$ T)

4.4.2. Tunneling Anisotropic Magnetoresistance (TAMR)

Tunneling Anisotropic Magnetoresistance (TAMR) とは、スピン軌道相互作用によって電子状態密度、すなわちトンネルコンダクタンスがスピンの向きに依存して変化する現象である。図 4.16 のようなトンネル接合を考えたとき、磁性体の磁化方向が面直を向いているか面内を向いているかでトンネル電流が変化する。この変化は、スピン偏極電流に依るものではなく、電子状態密度自体の変化に依存するため、トンネル接合の反対側は磁性体でなくてもコンダクタンスに差は生まれる。

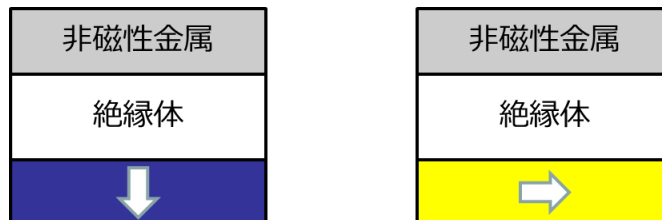


図 4.16. TAMR の模式図

TAMR は、STM では、W(110)上の二層 Fe 薄膜で最初に観察された。図 4.17 に二層 Fe 薄膜上で計算された電子状態を示す。スピン軌道相互作用を含まない計算では見られないが、スピン軌道相互作用を含めた計算では、面直（赤色線）と面内（青色線）で軌道混成による電子状態の違いがみられる。

スピン軌道相互作用による軌道混成が原因のため、3d 遷移金属単体より、5d 遷移金属と混成した方がより大きな TAMR によるコンダクタンスの違いが得られる [74]。W(110)上の二層 Fe 薄膜の場合においては、基板の W の 5d 軌道との混成が重要な役割を担っていると考えられる。

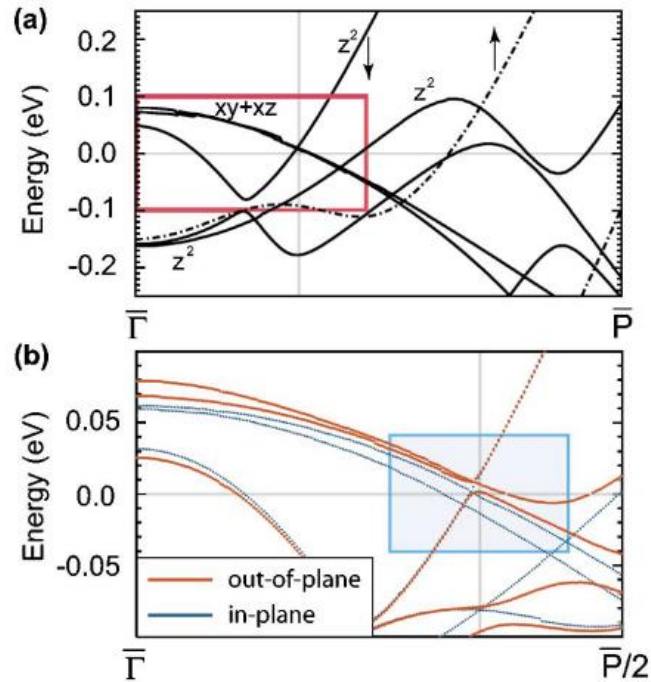


図 4.17. 二層 Fe 薄膜上で計算された電子状態 [75] (a) スピン軌道相互作用を含まない計算 (b) スピン軌道相互作用を含む計算

一層 Mn 薄膜の場合、TAMR によるコンダクタンスは、面内磁化領域で最も強くなり、面直磁化領域で最も小さくなる。このコントラストは、上下左右などの方向に依らず、面直を向いているか面内を向いているかのみ依存するため、コントラストの周期は実際のらせんの周期に比べて半分の約 6 nm になる [68]。

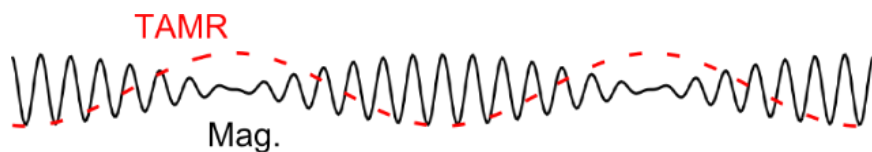


図 4.18. 一層 Mn 薄膜における TAMR とスピン偏極コントラスト (Mag.) の関係 (探針の磁化方向が面直の場合)

4.4.3. 二層 Mn 薄膜上で取得した SP-STM 像

図 4.19 に二層 Mn 薄膜上で観察したスピン偏極 STM 測定結果を示す。探針は、Fe/W 探針を用いている。ここで、 $V_s = -50$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 45$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz で取得しており、走査範囲は 100 nm \times 100 nm である。トポグラフ像においてはステップ構造が確認されており、4.3 節で示した方法で、全てが二層 Mn 薄膜で覆われていることを確認している。dI/dV 像において、 $[1\bar{1}0]$ 方向に平行なストライプパターンが観察される。これは、 $[001]$ 方向に伝播するらせん磁性に対応しており、先行研究でも観察されている [7]。

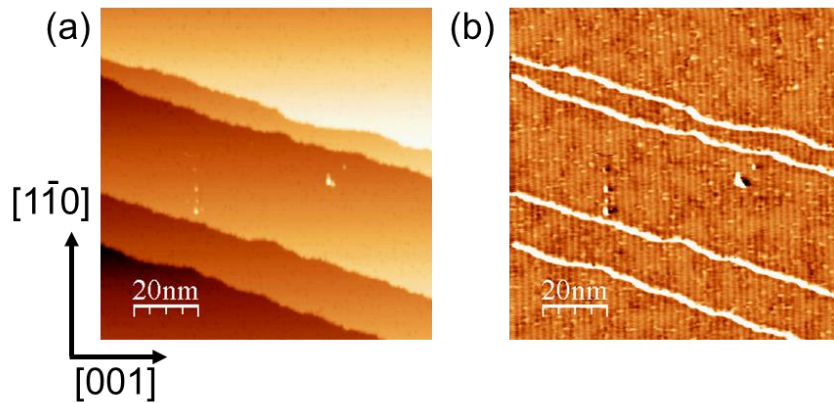


図 4.19. 二層 Mn 薄膜上で測定したスピン偏極 STM 像 (a) トポグラフ像 (b) dI/dV 像
(Fe/W 探針, $V_s = -50$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 45$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz, 100 nm \times 100 nm)

走査範囲を狭めて、さらに探針試料間距離を縮めて測定した結果を図 4.20 に示す。この像も Fe/W 探針を用いて取得した像で、 $V_s = -50$ mV, $I_t = -50$ nA, $V_{mod} = 45$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz のパラメータで取得しており、走査範囲は 100 nm \times 100 nm である。図 4.19 に比べて、トンネル電流値を 50 倍に設定しており、原子分解能で表面の磁気構造を観察できている。像中の丸い粒一つ一つが Mn 原子に対応している。 $[1\bar{1}0]$ 方向に平行なストライプパターンは、図 4.19 でも観察されたらせん磁気構造に由来するストライプである。さらに、 $[001]$ 方向に沿った原子列が、一列おきに明暗を変えていることがわかる。これは、 $[1\bar{1}0]$ 方向を向いたコニカル型らせん磁気構造と $[\bar{1}10]$ 方向を向いたコニカル型らせん磁気構造が、原子列ごとに交互に配置されていることに由来している。

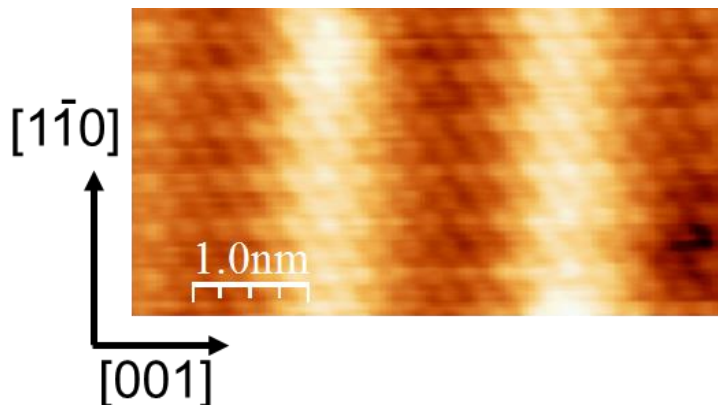


図 4.20. 二層 Mn 薄膜上で測定したスピン偏極 STM 像 (dI/dV 像)
(Fe/W 探針, $V_s = -50$ mV, $I_t = -50$ nA, $V_{mod} = 45$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz, 5 nm \times 2.5 nm)

4.5. 二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極した電子状態

二層 Mn 薄膜領域で詳しくスピン偏極トンネル分光測定を行った結果を図 4.21 に示す。図 4.21 (a)の白丸および黒丸は、図 4.20 で示す二層 Mn 薄膜領域のらせん磁気構造による明線上および暗線上で取得した dI/dV スペクトルである。フェルミ準位近傍でわずかに電子状態の差がみられる。スピン偏極探針で取得した dI/dV スペクトルは、スピン偏極していない電子状態とスピン偏極した電子状態の和である。したがって、両者の差はスピン偏極した電子状態の差、すなわちスピン偏極度に対応する。そこで、その差を明確にするために、両者の差を表示したものが図 4.21 (b)である。0 V 近傍でスピン偏極度が大きくなっており、このことから、二層 Mn 薄膜の場合、フェルミ準位近傍での測定が、スピン偏極信号を得るのに効果的であることがわかった [73]。

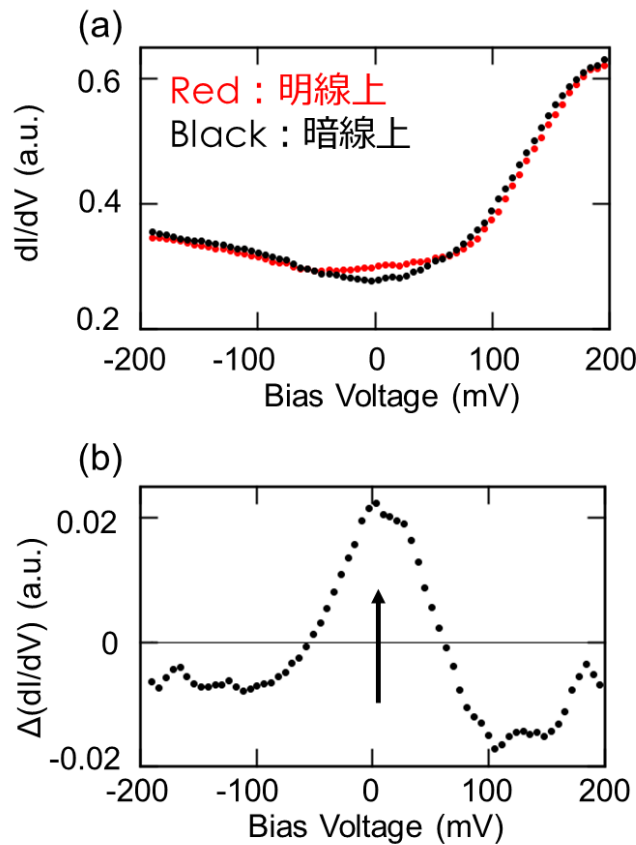


図 4.21. (a) 二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極した電子状態 (b) 明線上で取得したスペクトルから暗線上で取得したスペクトルを引いたもの
(Cr 探針, $V_s = -200$ mV, $I_t = -1.0$ nA, $V_{mod} = 30$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz)

4.6. 一層 Mn 薄膜の回転型

4.6.1. 回転型とは

磁壁にはブロッホ磁壁とネール磁壁が存在するのと同様、らせん磁性にも二つのタイプの回転型が考えられる。ここで、伝播方向に対して回転面が垂直であるもの（図 4.22(a)）をブロッホ型またはヘリカル型らせんと呼び、伝播方向と回転面が平行であるもの（図 4.22(b)）をネール型またはサイクロイド型らせんと呼ぶこととする。

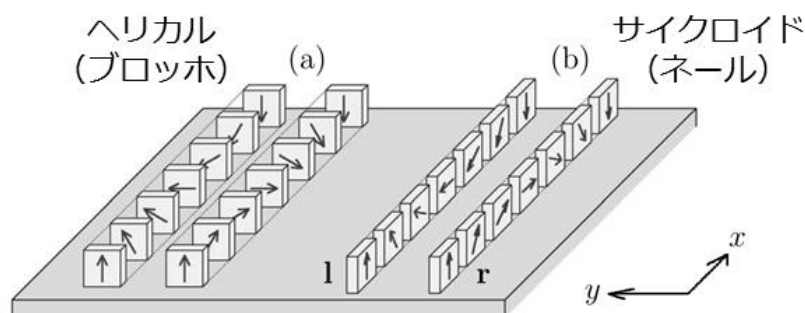


図 4.22. ヘリカル型（ブロッホ型）らせん構造と
サイクロイド型（ネール型）らせん構造の模式図 [76]

4.6.2. 回転型の調べ方

4.6.1 項で述べたように、らせん磁気構造にはサイクロイド型とヘリカル型が存在する。これを一層 Mn 薄膜に照らし合わせてみると、サイクロイド型らせんは図 4.23 (a, b)、ヘリカル型らせんは図 4.23 (e, f) のように模式的に表される。次に、これらの磁気構造に対して、スピン偏極 STM による磁気コントラストが探針の磁化方向によってどのように変化するか考える。探針の磁化が $[110]$ 方向（面直方向）に向いている場合と、 $[001]$ 方向に向いている場合の二つの場合を考える。まず、試料がサイクロイド型らせん磁気構造の場合、磁化が $[110]$ 方向（面直方向）に磁化させた探針を用いると、試料のスピンの面直を向いている部分でコントラストが最も大きくなる（図 4.23 (c)）。その一方、 $[001]$ 方向（面直方向）に磁化させた探針では、試料のスピンの $[001]$ 方向を向いている成分がないため、磁気コントラスト現れない（図 4.23 (d)）。次にヘリカル型らせん磁気構造の場合、試料のスピンは、 $[110]$ 成分と $[001]$ 成分の両方を持っているため、どちらの方向に磁化させた探針を用いても磁気コントラストが現れる。ただし、両コントラストの位相はずれるはずである（図 4.23 (g, h)）。したがって、探針の磁化の方向を変えた実験から、試料の回転型を調べることができる。また、TAMR はスピン偏極した電子状態ではないため、磁性探針を用いた場合でも非磁性探針を用いた場合でも同様に現れ、コントラストの位相や周期には影響を与えない。

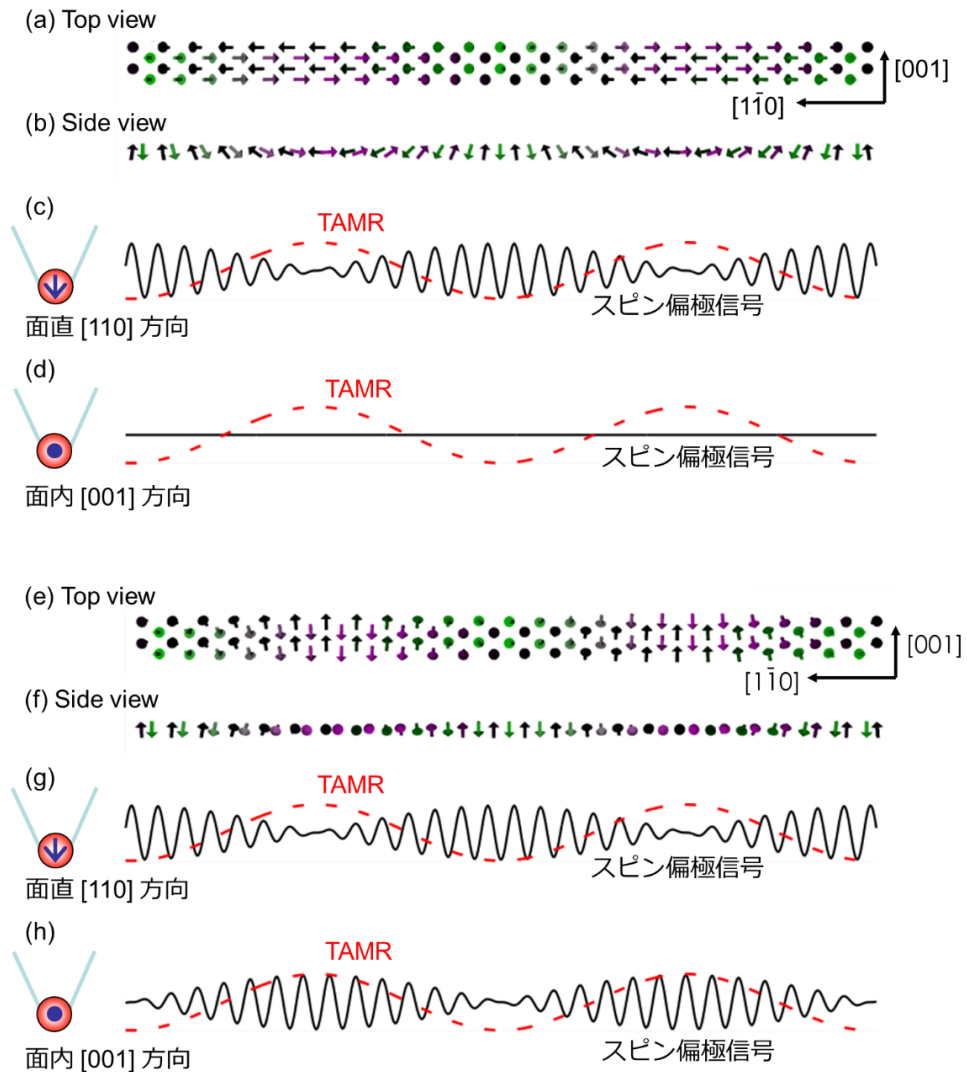


図 4.23. スピン偏極信号と TAMR の模式図

(a, b) サイクロイド型らせん磁気構造の (a) 上面図 (b) 側面図

(c, d) 面直 $[110]$ 方向 (c) と面内 $[001]$ 方向 (d) を向いた探針で取得できる STM 信号

(e, f) ヘリカル型らせん磁気構造の (e) 上面図 (f) 側面図

(g, h) 面直 $[110]$ 方向 (g) と面内 $[001]$ 方向 (h) を向いた探針で取得できる STM 信号

4.6.3. 測定結果

4.6.2 項で示したように、外部磁場によって探針の磁化を $[110]$ 方向（面直方向）と $[001]$ 方向に制御した探針を用いてスピン偏極 STM 測定を行い、回転型の決定を試みた。図 4.24 に測定結果を示す。図 4.24 (a) は、磁化方向が $[110]$ 方向（面直方向）を向いた探針を用いて取得したスピン偏極 STM 像であり、図 4.24 (b) は、磁化方向が $[001]$ 方向を向いた探針を用いて取得したスピン偏極 STM 像である。

図 4.24 (a) では、約 6 nm 周期の TAMR コントラストと反強磁性に由来する細かなコン

トラストの両方が観察されていることがわかる。一方、図 4.24 (b) では、TAMR コントラストは明瞭に観察されるが、反強磁性に由来するコントラストは得られていない。TAMR コントラストは先述の通り、スピン偏極していない電子状態を反映しているので、探針の磁化方向がどの方向を向いても得られる。反強磁性のコントラストは、探針の磁化方向が試料のスピンに平行もしくは反平行でないと得られない。すなわちこれは、試料のスピンは、[001] 方向の成分を持っていないことを意味する。4.6.2 項で予想したスピン偏極 STM 像(図 4.23 (c, d)) との比較からもわかるように、一層 Mn 薄膜のらせん磁気構造は、サイクロイド型であると結論付けることができる。一見、図 4.24 (b) で、反強磁性のコントラストが少し残っているようにも見える。これは、装置の特性上、試料の取り付け方法や超伝導マグネット取り付けの不正確さのため、外部磁場の方向を精密に合わせることができないことが原因と考えられる。しかし、断面図から明らかなように、両者のコントラストの大きさ全く異なるので、結果に影響を与えるものではない。

なお、一層 Mn 薄膜上の不純物には 2 種類あり、それぞれ、STM 画像上では、輝点と暗点として観察されている。STM 画像からだけではその不純物が何であるかを特定することは不可能であるが、暗点として観察される不純物（気体分子であると予測される）は、探針の走査によって、その位置が常に変化している。一方、輝点として観察される不純物（試料から取り出された Mn 原子、もしくは、探針から移動した Fe 原子と予測される）は、探針の走査によって位置は変化しない。図 4.24 中の二つの画像は、暗点として観察される不純物の位置が異なるため、一見異なる領域で取得された画像のように見えるが、この二つの画像は同じ位置で取得したものである。走査によって位置を変えない輝点の不純物に着目すると、同じ位置に観察されていることが確認できる。

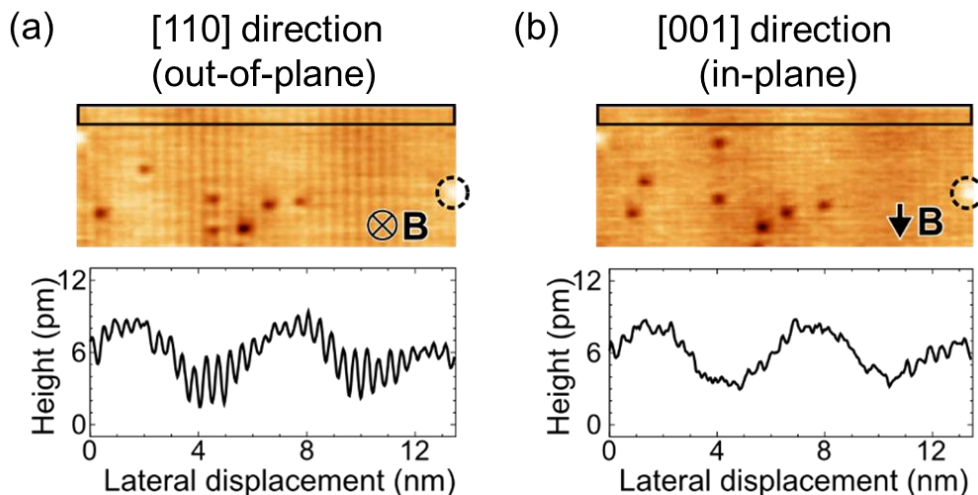


図 4.24. 一層 Mn 薄膜の回転型の測定結果

いずれもトポグラフ像 (Fe/W 探針, $V_s = 15$ mV, $I_t = 40$ nA, $B_{\perp} = 2$ T (a), $B_{\parallel} = 1$ T (b))

4.6.4. 考察

図 4.25 に bcc 構造の(110)面の上面図と単純な磁気構造の模式図を示す。この図からも、bcc の(110)面は、 C_{2v} の対称性を有しており、点線で示す面で鏡面对称性を持つ。鏡面对称性のある系の場合、その鏡面操作によってエネルギーが変化してはいけないという制約がある。図 4.25(左)は左巻きと右巻きのヘリカルらせん磁気構造の模式図であるが、ヘリカル左巻きに対して鏡面操作を行うと、ヘリカル右巻きと重なる。そのため、これらのエネルギーは等しいはずである。言い換えれば、「ヘリカル型らせん磁気構造を持つ場合、カイラリティがあってもいい。」ということになる。一方、サイクロイドの左巻きに鏡面操作を行っても、サイクロイドの右巻きとは重ならないため (図 4.25(右))、これらのエネルギーが等しい必要はない。言い換えると、「サイクロイド型らせん磁気構造を持つ場合、カイラリティがあってもよい。」ということになる。一層 Mn 薄膜は、先行研究によって、カイラリティがあることは明らかにされているため [5]、本研究によりサイクロイド型らせん磁気構造と確認されたことは、先行研究と矛盾しない。なお、表面に対して鏡面对称性を持つ場合 (バルク内部の場合)、サイクロイド型らせん磁気構造の右巻きと左巻きは重なる。このことが、表面や界面で空間反転対称性が破れたことによる Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によってサイクロイド型らせん磁気構造が現れやすい理由である。

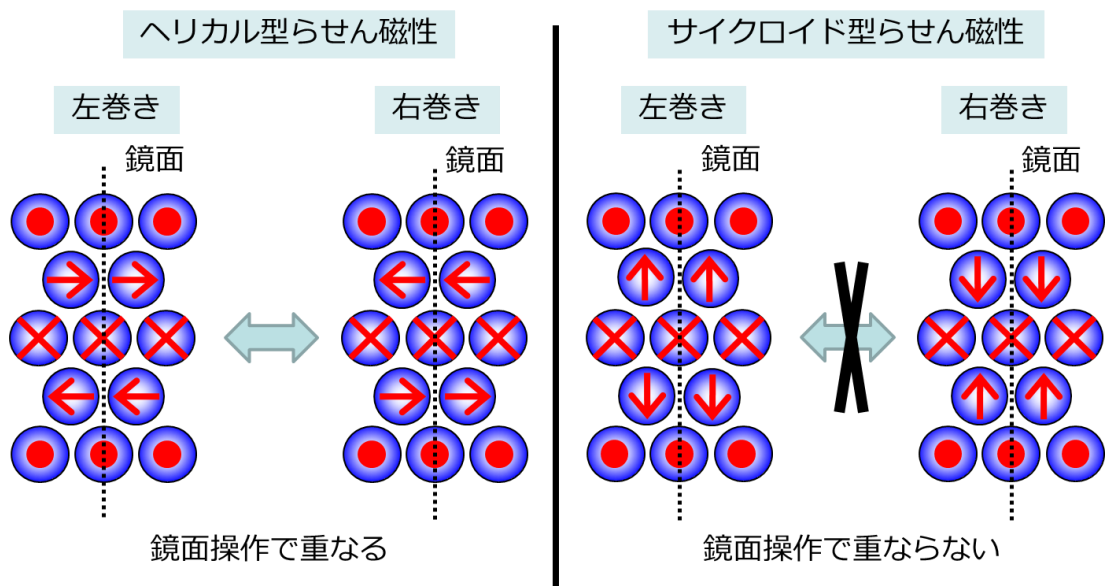


図 4.25. bcc 型結晶構造の(110)面における
ヘリカル型らせん磁性とサイクロイド型らせん磁性の模式図

また、このことは、2.2 節で述べた守谷ルールから考えることもできる。 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向に伝播するらせん構造を考えると、図 4.26 のように、原子 1、原子 2 を定めればよい。このとき、守谷ルールを適用して考えてみる。

①原子 1 と原子 2 の中点が反転中心であれば、 $\mathbf{D} = 0$

界面ではすでに空間反転対称性が破れているので、考える必要はない。

②原子 1 と原子 2 の中心に鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分は 0。

図 4.26 から、原子 1 と原子 2 の間では、 $(1\bar{1}0)$ 面が鏡面になっている。したがって、 \mathbf{D} の $[1\bar{1}0]$ 方向成分は 0 となる。

③原子 1 と原子 2 を含む鏡面があれば、 \mathbf{D} の鏡面に垂直な成分だけが残る。

原子 1 と原子 2 を含む (001) 面は鏡面である。したがって、 $[001]$ 方向成分のみが残り、 $[1\bar{1}0]$ 方向成分と $[110]$ 方向成分は 0 となる。

④原子 1 と原子 2 の中点に 2 回軸があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分は 0。

原子 1 と原子 2 の中点を通る面直方向に平行な直線は 2 回軸である。したがって、 \mathbf{D} の面直成分は 0 となる。

⑤原子 1 と原子 2 を通る 2 回軸 (3,4,6 回軸) があれば、 \mathbf{D} の軸に平行な成分だけが残る。

界面では、このようなことはあり得ないので、考える必要はない。

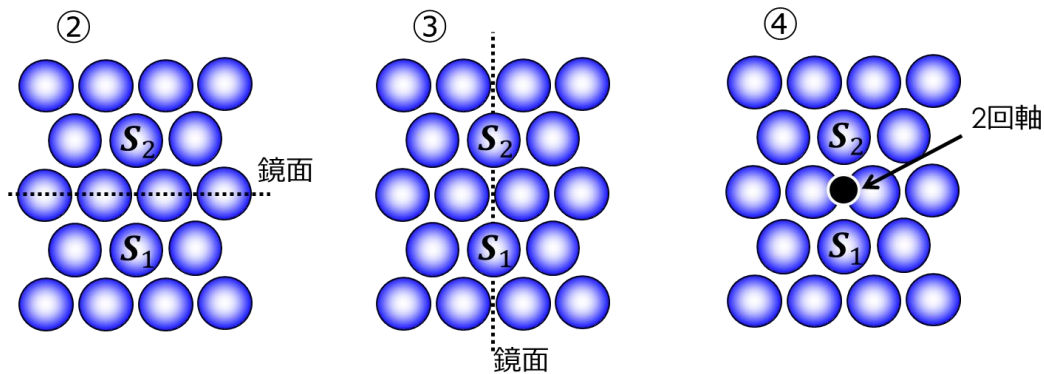


図 4.26. (110) 面の上面図と対称性

以上のことから、 \mathbf{D} ベクトルは $[001]$ 方向に平行、すなわち、サイクロイド型のらせん構造になるといえる。なお、守谷ルールでは、 \mathbf{D} ベクトルは $[001]$ 方向に平行であることまでは結論できるが、 $[001]$ 方向を向いているのか、 $[00\bar{1}]$ 方向を向いているのかまでは議論できない。なお、この二つの差は、回転方向が左巻きか右巻きかに効いてくる。次項以降で回転方向について調べた結果について述べる。

4.7. 二層 Mn 薄膜の回転方向

4.7.1. 二層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方

まず、二層 Mn 薄膜のらせん磁気構造が左巻きであるか右巻きであるかを調べる。らせん

の回転方向を調べるためには、らせんの回転面に射影して考えるのが良い。言い換えると、回転軸方向かららせんを眺めたときに、どのように回転しているかを調べる。二層 Mn 薄膜の場合、回転面は $(1\bar{1}0)$ 面なので、 $(1\bar{1}0)$ 面への射影を考える。すなわち、 $[1\bar{1}0]$ 方向から見たときにらせんがどのように回転しているかを考える。一見、二層 Mn 薄膜は複雑な磁気構造のように感じるが、 $(1\bar{1}0)$ 面へ射影させると、 $[1\bar{1}0]$ 方向の反強磁性構造はキャンセルされる。そのため、回転方向を考える上では、単純なサイクロイド型らせん磁気構造と考えてよい (図 4.27)。

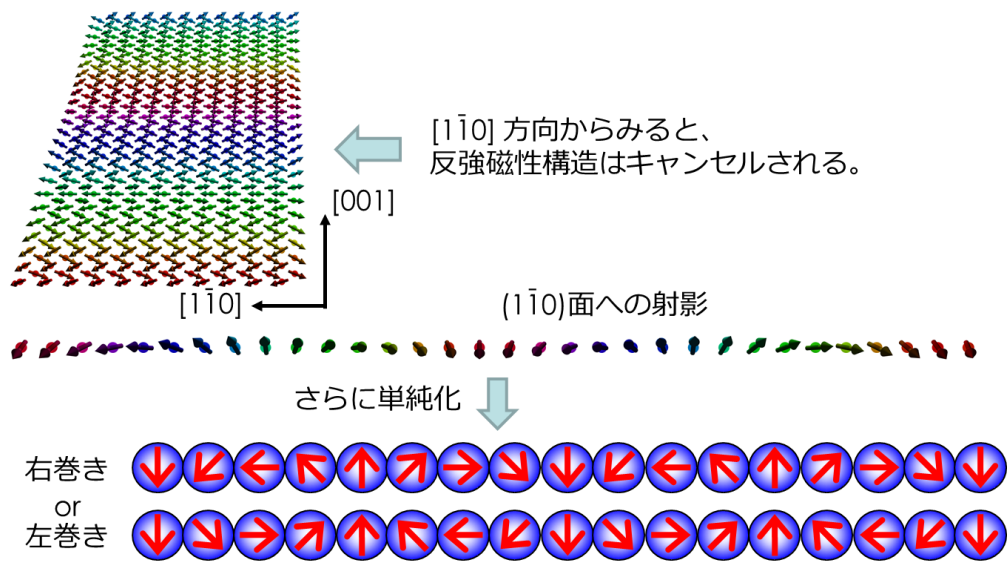


図 4.27 二層 Mn 薄膜の磁気構造の $(1\bar{1}0)$ 面へ射影

上のように、単純ならせん模型で考えたとき、スピン偏極 STM のコントラストがどのようなになるかを模式的に表した図を図 4.28 に示す。図 4.28 の左図は試料のらせん磁気構造が左巻きの場合の模式図である。上から順に、面内左向き・面直上向き・面内右向き・面直下向きの磁化方向の探針で取得したスピン偏極 STM コントラストを示している。なお、ここでは、スピン偏極信号は探針と試料の磁気モーメントが平行の時に最大になると仮定している。一つのピークに注目したとき、ピーク的位置は左に 90 度ずつシフトしていることがわかる。一方、図 4.28 の右図は試料のらせん磁気構造が右巻きの場合の模式図である。右巻きの場合は、ピーク位置は右にシフトしている。すなわち、この 4 種類の探針を用いてスピン偏極 STM 測定を全く同じ領域で行うことにより、ピークシフトの方向かららせんの回転方向を決定できる。本研究では、外部磁場を印加して探針の磁化方向を制御した上でスピン偏極 STM 測定を行った。

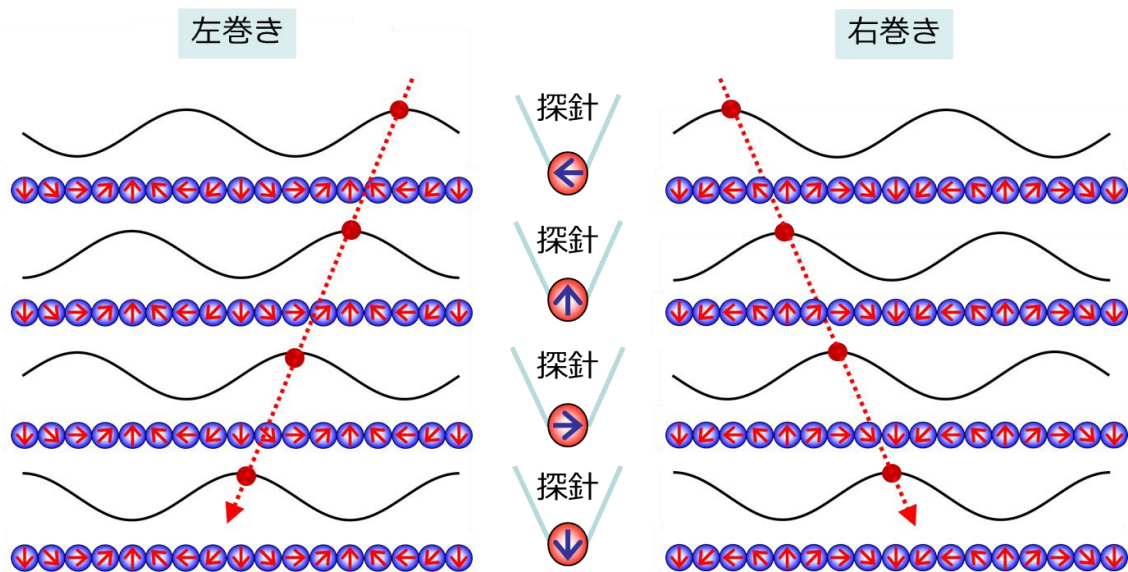


図 4.28 二層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方

図 4.28 では、探針と試料の磁気モーメントが平行の時にトンネル電流が最大になると仮定している。しかし、スピン偏極 STM は、実際には表面の磁気モーメントではなく、スピン偏極した電子状態を検出している。そのため、試料及び探針のスピン偏極率の正負によって、トンネル電流に寄与するのが **majority channel** であるか、**minority channel** であるかが変わるため、両者の磁化方向が反平行の時にトンネル電流が最大になる可能性もある。そこで、平行の時にトンネル電流が最大になる場合と、反平行の時に最大になる場合を、右巻きを例にして考えたときのコントラストを図 4.29 に示す。コントラストの位相はそれぞれ 180 度ずれているが、コントラストのシフトの方向自体は変わらない。そのため、実験結果を考察する際、磁化方向が平行のときにトンネル電流が最大になると仮定して差し支えない。

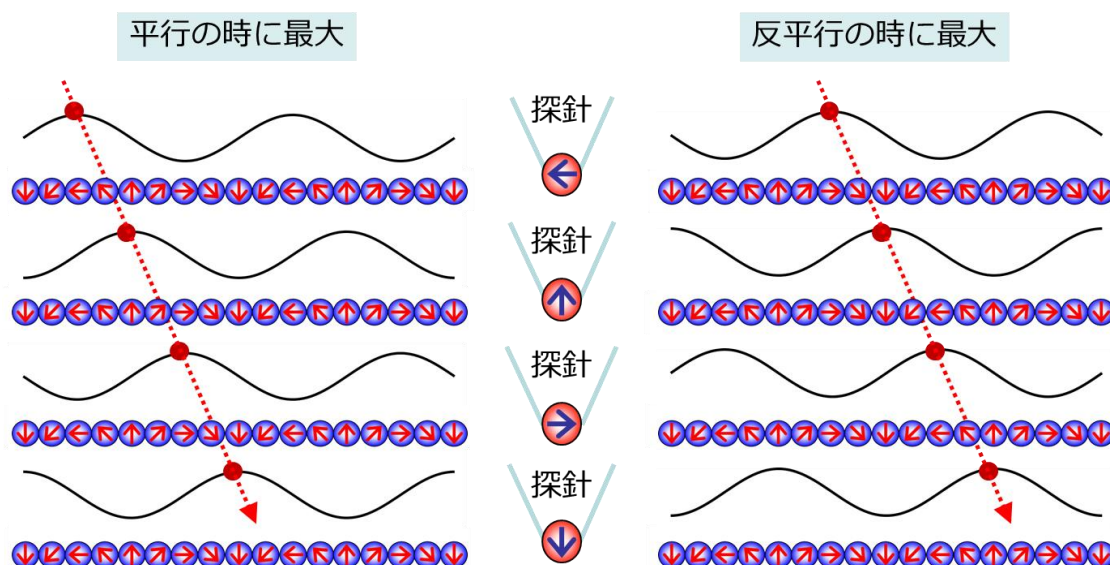


図 4.29 スピン偏極率の正負によるコントラストの違い（どちらも右巻き）

4.7.2. 二層 Mn 薄膜の回転方向の測定結果

図 4.30 に測定結果を示す。上から順に、磁場の方向を 4.7.1 項の通り、面内左向き、面直上向き、面内右向き、面直下向き方向に変化させたときのスピン偏極 STM 画像とその断面図である。この画像は、点線で囲んであるマーカーと左下に見えている不純物のみトポグラフィ像であり、その画像に、 dI/dV 像を重ね合わせたものである。このようにして、マーカーとして用いた不純物とコントラストの位置関係を明確化している。スピン偏極 STM 像でのらせん構造による一つの明線に注目した場合、その明線の位置が右にシフトしていることがわかる。断面図でも同様のシフトが確認できる。このことを 4.7.1 項と照らし合わせると、二層 Mn 薄膜の回転方向は**右巻き**であると結論付けることができる。

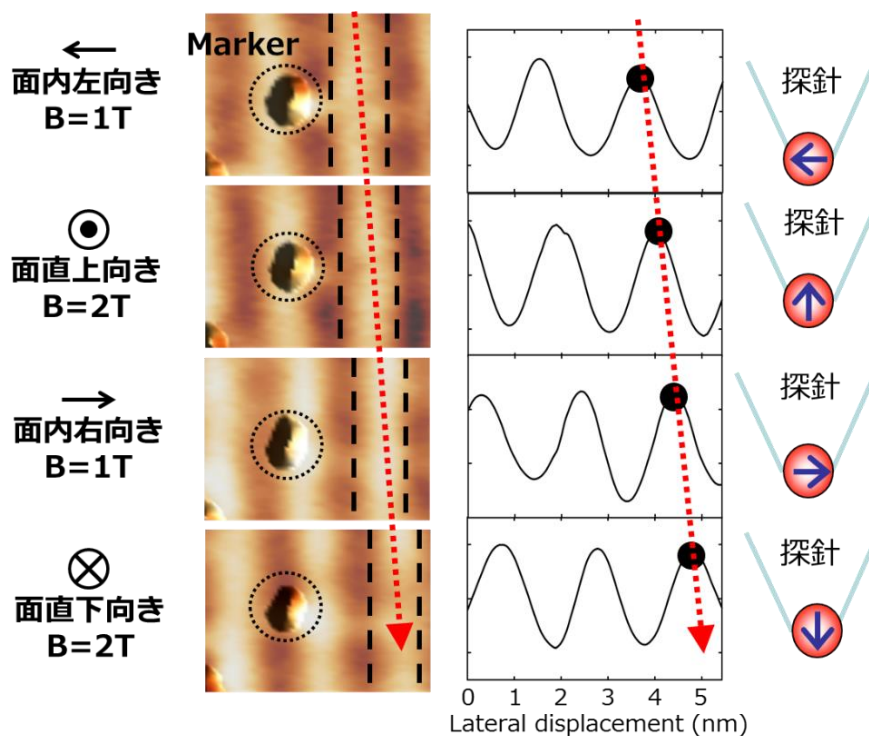


図 4.30. 二層 Mn 薄膜上で測定したスピン偏極 STM 測定結果
トポグラフィ像に dI/dV コントラストを重ねている。

($V_s = -50$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 45$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz)

4.7.3. 二層 Mn 薄膜のカイラリティ

上記の測定を 7 つのテラス上で行ったところ、全てのテラス上で右巻きという結果が得られた。同一の試料内の別テラスで 6 か所、一度 Mn を蒸発させたのちに薄膜を作り直した試料で 1 か所の、計 7 か所で測定しており、それぞれの相関は無く、各試行は独立と考えることができる。したがって、もしカイラリティがなければ、右巻きと左巻きが 50% となるはずである。ここで、この試料はカイラリティを持っているかどうかに関して、カイ二乗検定による判定を行った。カイ二乗検定とは、「観測されたデータの分布は、理論値の分布と同じと見なせる」という仮説に対して答えを与える検定である (A.1 を参照)。今回の場合、右巻きと左巻きが 7:0 であった観測結果が、「右巻きと左巻きがそれぞれ 50% の確率で形成される」とした場合、妥当であるかどうかを考える。図 4.31 は、カイ二乗検定結果である。ここから、7 回の試行すべてで右巻きであったという観測結果は、「右巻きと左巻きがそれぞれ 50% の確率で形成される」という仮説をわずか 0.8% の有意水準で棄却することができる。すなわち、二層 Mn 薄膜にはカイラリティがあると言える。

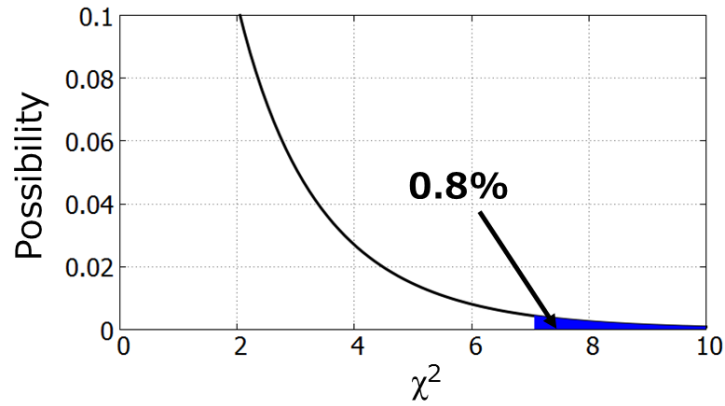


図 4.31. カイ二乗検定結果

4.8. 一層 Mn 薄膜の回転方向

ここでは、一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方とその結果について報告する。今回、二通りの方法を試みたので、その両方について述べる。

4.8.1. スピン偏極した成分とスピン偏極していない成分の分離

4.4.2 項で述べた通り、一層 Mn 薄膜上では、TAMR と呼ばれるスピン偏極していない電子状態によるコントラストが観察される。これは、探針の磁化の向きに依存しないので、4.7 節のような、探針の向きの変化による効果を考える際には邪魔になる。そこで、まずはスピン偏極成分のみの分離を行った [77]。

スピン偏極電流 I は、スピン偏極成分 I_{SP} とスピン偏極していない成分 I_0 の和と考えられるので、

$$I = I_{SP} + I_0 \quad (4.1)$$

となる。次に、探針が上向き（下向き）のときのスピン偏極電流を I_{\uparrow} (I_{\downarrow}) とし、そのスピン偏極成分を $I_{SP\uparrow}$ ($I_{SP\downarrow}$) とすると、

$$I_{\uparrow,\downarrow} = I_{SP\uparrow,\downarrow} + I_0 \quad (4.2)$$

となる。ここで、 $I_{SP\uparrow} = -I_{SP\downarrow}$ であるから、

$$I_0 = \frac{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}}{2} \quad (4.3)$$

$$I_{SP\uparrow,\downarrow} = I_{\uparrow,\downarrow} - I_0 \quad (4.4)$$

となり、スピン偏極成分のみを抽出できる。実際には、電流をマッピングしているわけではないが、低電流モードでトポグラフ像を取得することは、間接的に電流をマッピングしていることと同等と考えられるので、トポグラフ像に対しても同様の議論を行うことができる。

反対向きに磁化した探針で取得したスピンの偏極 STM 像の平均をとると、スピン偏極していない成分のみを抽出でき、元画像との差から、スピン偏極成分を取り出すことができる。実際にスピン偏極成分を抽出した図を図 4.32 に示す。

図中の記号は、磁場の向きを表している。スピン偏極していない成分では、左下の不純物が強調されていることがわかる。なお、二層 Mn 薄膜でも TAMR の効果はあるが [78]、今回測定したバイアス電圧では、無視できる程度であるため、このような処理は行っていない。

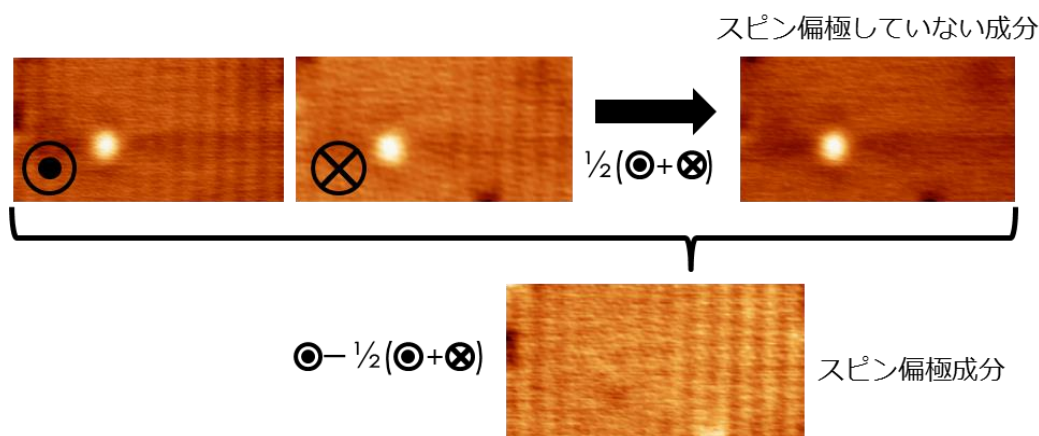


図 4.32. スピン偏極成分の抽出

4.8.2. 一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方

二層 Mn 薄膜の場合と同様に、4 方向に磁場を印加して探針の磁化を制御して、回転方向を調べる。一層 Mn 薄膜は $[1\bar{1}0]$ 方向に伝播するサイクロイド型らせん磁性のため、スピンの回転面である (001) 面内で探針の磁化方向を回転させる。図 4.33 に、右巻きを例として、一層 Mn 薄膜上で検出できる、スピン偏極信号の模式図を示す。ここでは、TAMR によるコントラストは無視している。一層 Mn 薄膜は反強磁性構造を有しているので、図 4.33 のようにうなり状のコントラストとなる。そのため、これらは一見、90 度の探針の磁化方向変化に対して、位相が 180 度ずつシフトしているように見える。そのため、二層 Mn 薄膜と同じ様に回転方向を調べるのは困難である。

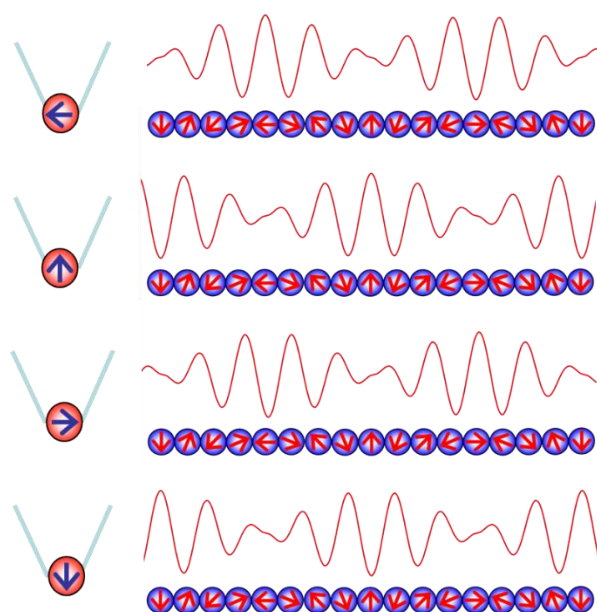


図 4.33. 一層 Mn 薄膜上で取得できるスピン偏極信号の模式図
(右巻きの場合)

そこで、上二つの図（面内左向き・面直上向きの探針で取得したスピン偏極信号）に注目して考える。図 4.34 のように、一つおきの原子に着目した場合、単純なサイン波として考えられ、これら二つの信号は 90 度のシフトとして考えることができる。全ての場合に同様の操作を行うと、図 4.35 のようになる。したがって、一つおきの原子に着目することで、二層 Mn 薄膜の場合と同様に考えることができ、サイン波の位相が右にシフトすれば右巻き、左にシフトすれば左巻きとなる。

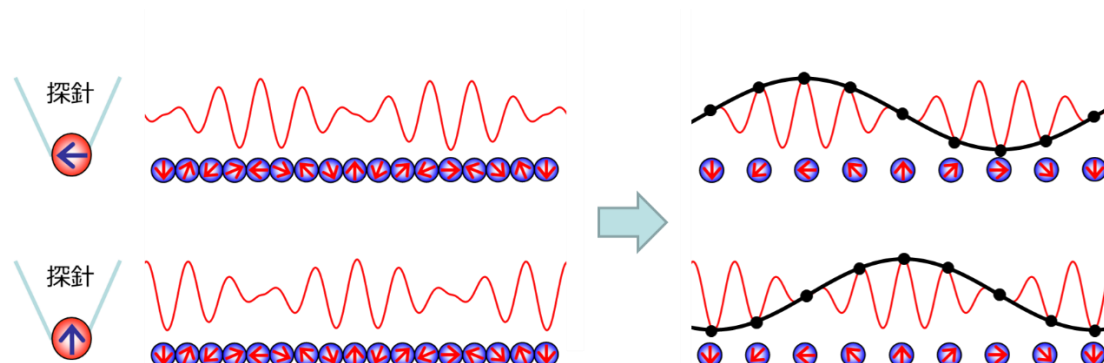


図 4.34. 一つおきの原子に注目した場合のスピン偏極信号

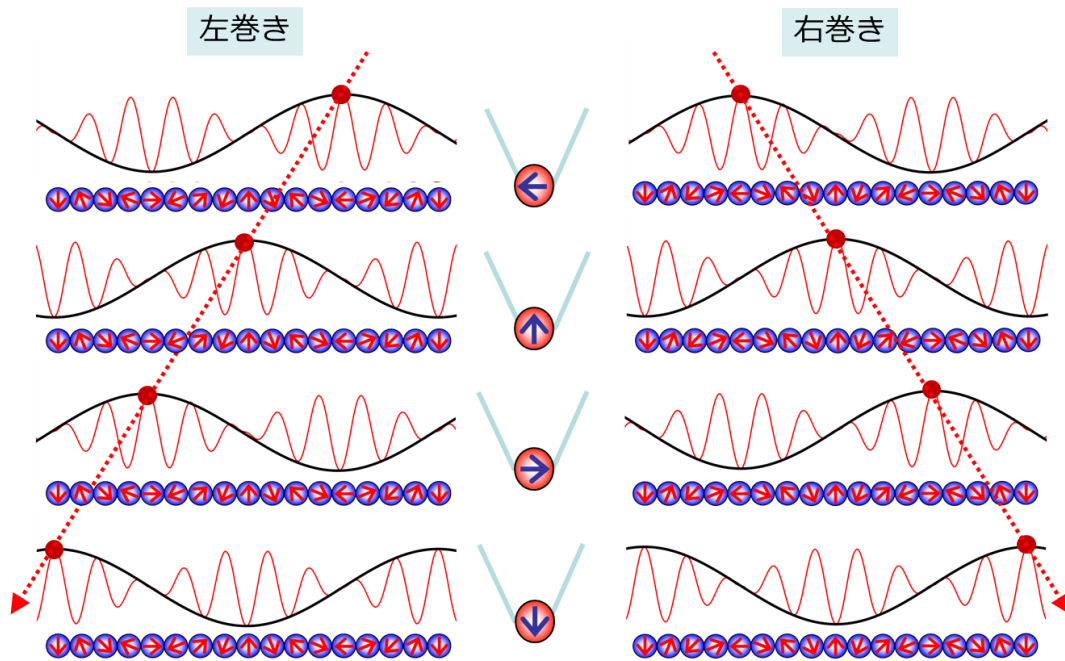


図 4.35. 一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方

コントラストが左にずれると左巻き、右にずれると右巻き

4.8.3. 一層 Mn 薄膜の回転方向の測定結果

図 4.36 に測定結果を示す。上から順に、外部磁場の方向を 4.8.2 項の通り、面内左向き、面直上向き、面内右向き、面直下向き方向に変化させたときのスピン偏極 STM 画像とその断面図である。画像は全てトポグラフ像である。このトポグラフ像は、4.8.1 項で記載した処理によって磁気成分のみを抽出している。ただし、同じ位置であることを明確にするため、不純物のトポグラフ像を重ね合わせている。不純物が全て同じ位置にあることから、この 4 つの画像は全て同じ領域で取得されていることが確認できる。虹色の丸印は、一つおきの原子列に配置されている。画像上における丸印と断面図上の丸印は同じ原子位置を指している。

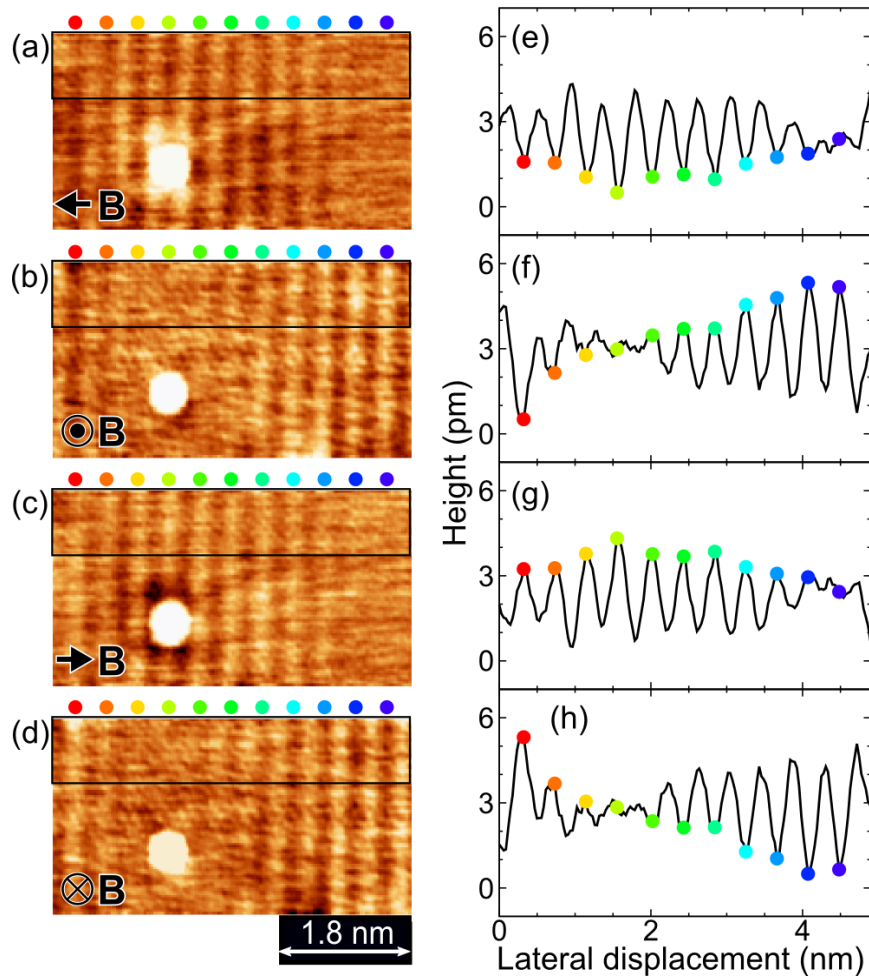


図 4.36. 一層 Mn 薄膜上で測定したスピンの偏極 STM 像とその断面図。全てトポグラフィ像に対して 4.8.1 項で述べた処理を行っている (Fe/W 探針, $V_s = 15\text{mV}$, $I_t = 10\text{nA}$)。 (a, e) 面内左向き 1 T (b, f) 面直上向き 2 T (c, g) 面内右向き 2 T (d, h) 面直下向き 1 T

コントラストのシフト方向を明確にするため、断面図のみに注目する。虹色の丸印をつなぎ合わせると、これらはサイン波の一部であることがわかる。そこで、図 4.37 のように、丸印をつなげて、サイン波を重ねる。図 4.37 から、これらのサイン波は左方向にシフトしていることがわかる。したがって、一層 Mn 薄膜は左巻きであると結論できる。また、この結果は、先に示された第一原理計算の結果と一致する [5]。

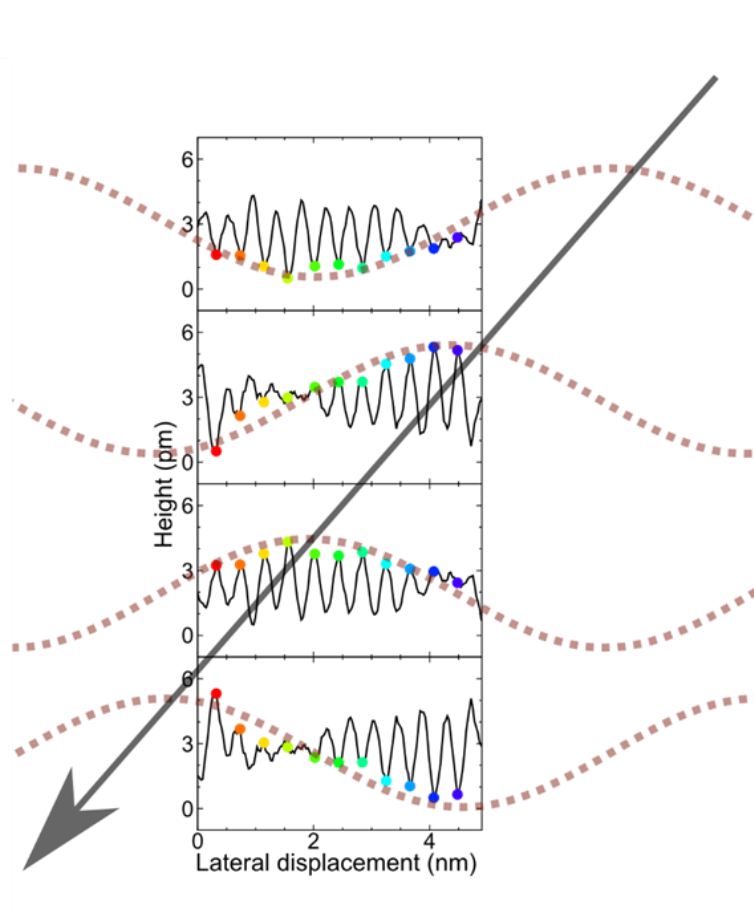


図 4.37. 一層 Mn 薄膜の回転方向 (図 4.36 (e - h)と同じ図)

4.8.4. 一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方 その2

次に、Bode らの行った方法を踏襲した方法も試みたので、それについて述べる。4.1.2 項で示した Bode らによる方法では、カイラリティの存在を明示しているが、回転方向までは決定していない [5]。それは、ゼロ磁場下で探針の磁化方向が面内のどの向きを向いているかが定かではないからである。つまり、ゼロ磁場下で探針の磁化方向を特定してから、同様の実験を行えば、回転方向を決めることができる。

例えば、ゼロ磁場下での探針の向きが面内左向きであったとする。そこから、少しだけ面直上向き方向に磁場を印加すると、探針の磁化の向きは面直でも面内でもなく、斜め左上を向くはずである。さらに磁場を強くすると、完全に面直上向きに向く。そのときのスピン偏極信号の模式図を図 4.38 に示す。回転方向が左巻きの場合、コントラストは左に、回転方向が右巻きの場合、コントラストは右にシフトする。この方法では、前記のように一つおきに原子列を比べる必要はない。

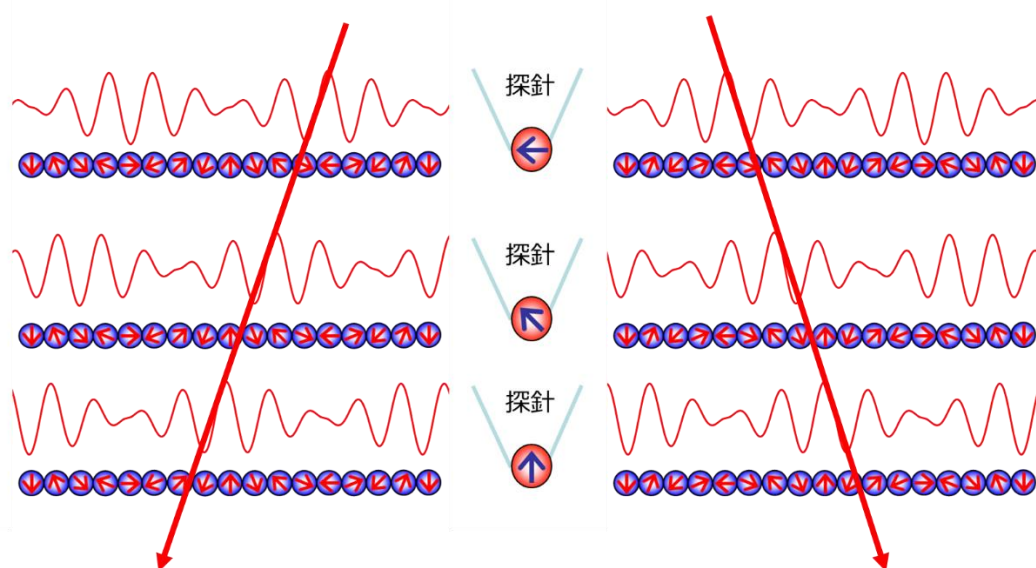


図 4.38. 一層 Mn 薄膜の回転方向の調べ方 その 2

4.8.5. 一層 Mn 薄膜の回転方向の測定結果 その 2

まず、ゼロ磁場下で探針が面内のどの方向を向いているかを調べる。そのためには、「面内左向きに磁場を印加したとき」、「面内右向きに磁場を印加したとき」、「ゼロ磁場に戻したとき」の3つの像を比較して、ゼロ磁場に戻したときの像が、左向きに印加したときの像と、右向きに印加したときの像の、どちらに近いことから、ゼロ磁場下での探針の磁化の向きを決定する。

図 4.39 (a) は面内右向きに磁場を印加したときのスピンの偏極 STM 像、図 4.39 (b) は面内左向きに磁場を印加したときの像、図 4.39 (c) はゼロ磁場に戻したときの像である。ここで、磁場はどちらも 1 T を印加している。3つの像はいずれもトポグラフ像で、測定条件は $I_t = 10 \text{ nA}$, $V_s = 15 \text{ mV}$ である。図の中心部にある不純物に着目したとき、図 4.39 (a) では不純物は明線上にあることがわかる。一方、図 4.39 (b) では不純物は暗線上にあった。吸着物は移動しないので、探針の磁化方向が変化したことを意味する。磁場をゼロに戻した図 4.39 (c) では、不純物は暗線上にあることがわかる。したがって、ゼロ磁場環境下では、探針の磁化の向きは図 4.39 (b) の時と同じ、すなわち左向きであることがわかる。

ここで、この測定は、右向きの磁場、左向きの磁場、ゼロ磁場の順に行っている。そのため、ゼロ磁場下での探針の磁化の向きは、直前の印加磁場により左向きに保持されていると予想していた。しかし、左向きの磁場、右向きの磁場、ゼロ磁場の順に行っても、左向きであった。すなわち、探針の磁化は左に向きやすい状態であった。その理由として交換バイアスの存在が考えられる。測定前に何度か探針と試料が接触することがあったので、試料の Mn 原子が探針側に付着していても不自然ではない。反強磁性である Mn の作用によって、

左に向きやすい状態ができていたと予想できる。なお、図 4.39 (c) では(a, b)と比較してコントラストが弱いように見えるが、これは、完全に左方向を向いていないことが原因であると考えられる。

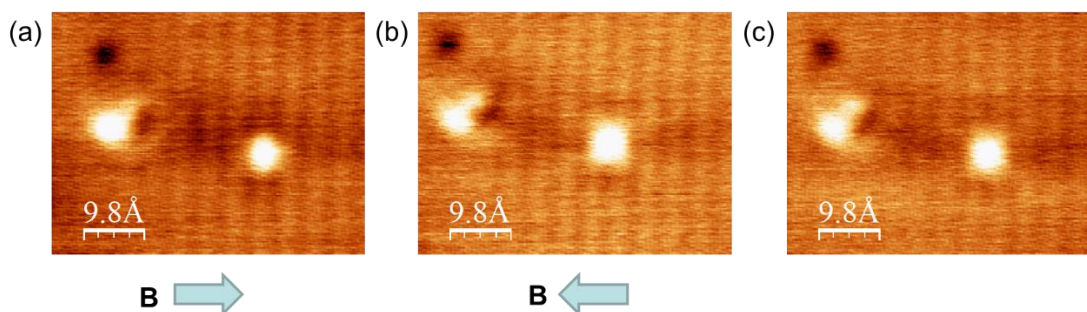


図 4.39. 面内磁場印加時のスピン偏極 STM 像 (a) 右向き 1 T (b) 左向き 1 T (c) ゼロ磁場。全てトポグラフ像 (Fe/W 探針, $V_s = 15$ mV, $I_t = 10$ nA)

ゼロ磁場下で探針の磁化が左向きであることがわかったので、次に、上向きに磁場を印加したときの結果を図 4.40 に示す。図 4.40(a)(b)(c)はそれぞれ 0 T, 0.5 T, 1.0 T を印加したときに取得したスピン偏極 STM 像である。3つの像はいずれもトポグラフ像で、測定条件は $I_t = 10$ nA, $V_s = 15$ mV である。黒枠線内の吸着物をマーカーとしてストライプパターンの位相変化を調べると、磁場の印加に伴って、磁気コントラストの位相は左にシフトしていることがわかる。ここから、一層 Mn 薄膜の回転方向は左巻きであることが結論できる。この結果は、4.8.3 項の結果と一致している。

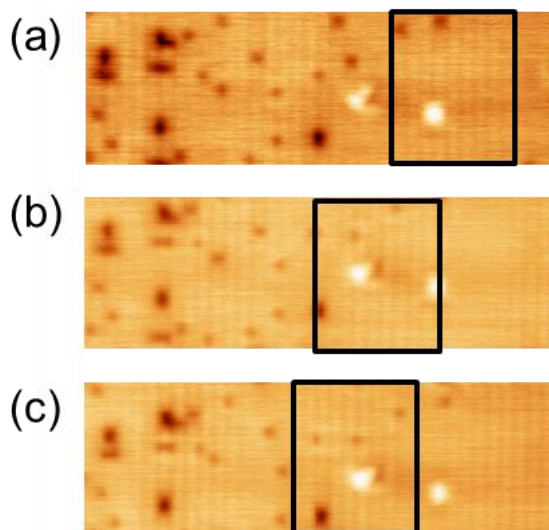


図 4.40. 一層 Mn 薄膜の面直上向き磁場依存性 (a) 0 T (b) 0.5 T (c) 1.0 T
全てトポグラフ像 (Fe/W 探針, $V_s = 15$ mV, $I_t = 10$ nA)

4.9. W(110)基板上に形成された磁性薄膜の回転方向

4.9.1. 一層及び二層 Mn 薄膜

4.7 節及び 4.8 節の結果から、二層 Mn 薄膜は右巻きであり、一層 Mn 薄膜は左巻きであることがわかった。一見すると、これらは逆巻きであるように見えるが、以下の考察から、D ベクトルの符号は同じであることが判る。一層 Mn 薄膜は、反強磁性構造を有しているの、模式的に図 4.41 (a) のように描ける。隣り合う Mn スピンに注目したとき、 S_1 が上向きとすると、 S_2 は右下を向く。したがって、その二つのクロス積 $S_1 \times S_2$ は、紙面から奥に向いている。一方、二層 Mn 薄膜は、らせん方向に対して反強磁性構造を有していないため、模式的に図 4.41 (b) のように描ける。隣り合う Mn スピンに注目したとき、 S_1 が上向きとすると、 S_2 は右上を向く。したがって、二層 Mn 薄膜の場合も、クロス積 $S_1 \times S_2$ は、紙面から奥に向いている。

したがって、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって安定化されているクロス積の方向が同じのため、D ベクトルの方向も同じ向きを向いている。

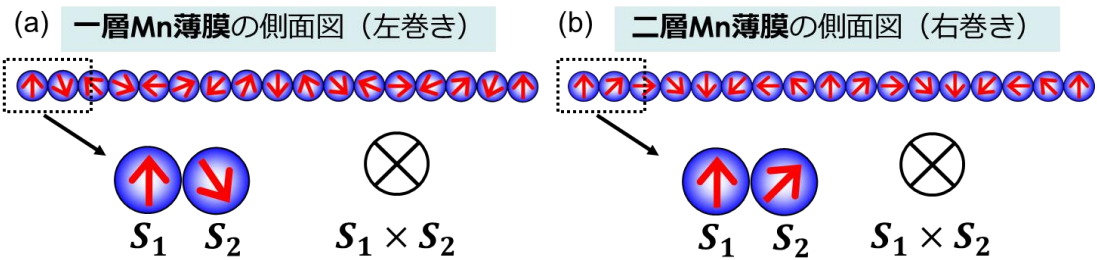


図 4.41. 一層及び二層 Mn 薄膜の磁気構造の模式図

4.9.2. 二層 Fe 薄膜

W(110)基板上での磁性薄膜の磁気構造に関しては、Mn 以外にも Fe、Cr で研究が行われている。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用における基板の役割を議論するため、これらの系に対する先行研究を以下に言及する。W(110)基板上に形成された二層 Fe 薄膜は、面直方向に磁化した構造を示し、らせん構造はとらないが磁壁はネール磁壁となり、その回転方向にはカイラリティが存在することが知られている。二層 Fe 薄膜における磁壁構造の回転方向は、本研究と同様の方法で調べられている [62]。本項では簡単に方法と結果について述べる。図 4.42 では、面内方向に磁化された探針を用いているので、白線（山）及び黒線（谷）は磁壁に対応しており、その間に磁区が広がっている。まず磁場によって探針の磁化方向をコントロールして、試料の磁壁内の磁化の向きを調べている（図 4.42 左）。その後、面直方向に磁場を印加して、磁区の拡がりから、磁区内の磁化の向きを調べている（図 4.42 右）。これらの測定から、二層 Fe 薄膜におけるネール磁壁の回転方向は右巻きであると結論付けられている。

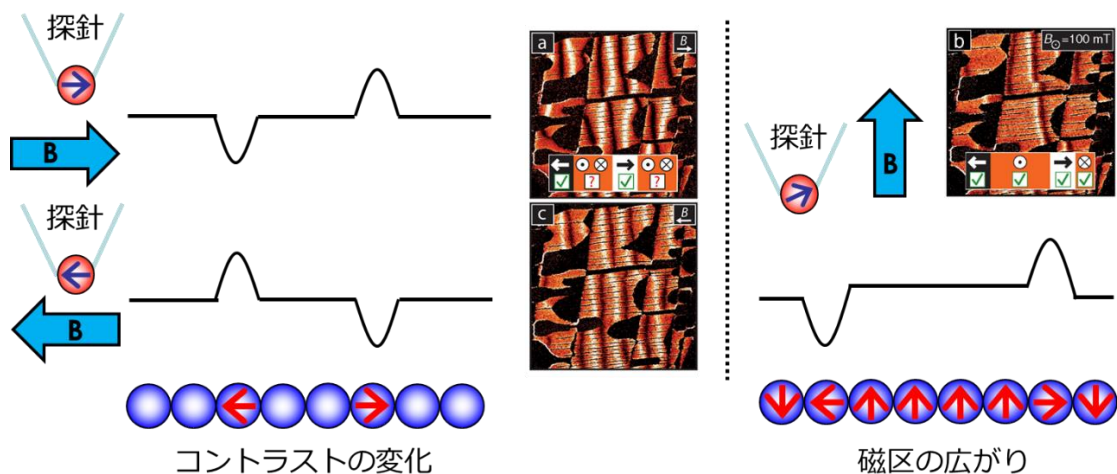


図 4.42. スピン偏極 STM による二層 Fe 薄膜における磁壁の回転方向の評価 [62]

4.9.3. 一層 Cr 薄膜

W(110)基板上の一層 Cr 薄膜も、スピン偏極 STM [79]と第一原理計算 [80]によって、らせん磁性を示すと結論付けられている。図 4.43 のように、一層 Cr 薄膜は、一層 Mn 薄膜と同様、最近接原子列間では反強磁性的に結合しているらせん磁性である。ただし、伝播方向は一層 Mn 薄膜と異なり、[001] 方向である。第一原理計算から、一層 Mn 薄膜と同様左巻きであることが予想されている [80]。

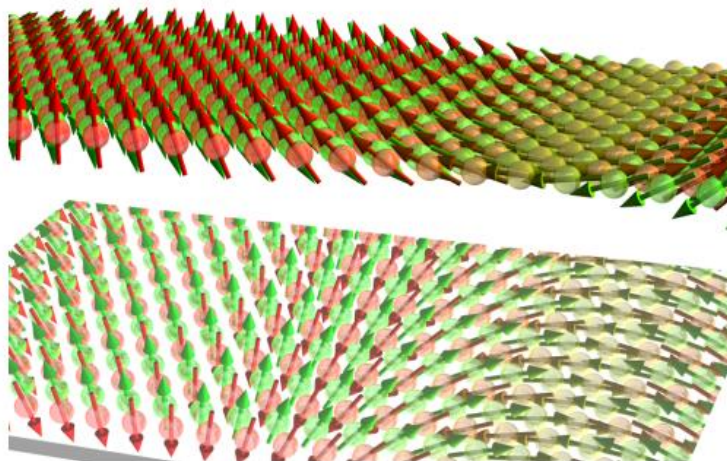


図 4.43. 第一原理計算によって予測された一層 Cr 薄膜の磁気構造の模式図 [80]

4.9.4. W(110)上の磁性薄膜

以上の結果から、W(110)上の磁性薄膜の回転方向を表 4.2 にまとめた。二層 Fe 薄膜は二

層 Mn 薄膜と同様、単純な強磁性の右巻き ($\uparrow\rightarrow\downarrow$) であり、一層 Cr 薄膜は一層 Mn 薄膜と同様、反強磁性の左巻き ($\uparrow\leftarrow\downarrow$) である。また、先の議論から、一層 Mn 薄膜と二層 Mn 薄膜の D ベクトルの符号は同じであるとの結論を得ている。したがって、これらの 4 種類の薄膜において、いずれも D ベクトルの符号は同じであるという結論が得られる。ここから、界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用における D ベクトルの決定には、基板の効果が大きいのではないかと予想ができる。

表 4.2. W(110)上の磁性薄膜

	カイラリティ	回転方向	カップリング	手法	文献
一層 Mn	○	左巻き	反強磁性	実験	[5] 本研究
二層 Mn	○	右巻き	強磁性	実験	[7] 本研究
二層 Fe	○	右巻き	強磁性	実験	[62]
一層 Cr	?	左巻き	反強磁性	計算	[79, 80]

界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用において、カイラル磁壁構造における基板の重要性が示された先行研究がある [23]。基板の種類を変化させて、CoFeB および CoFe 薄膜における D ベクトルの値を見積もった研究結果を図 4.44 に示す。ここでは、Hf, Ta,, TaN,, W の 4 種類の基板を用いている。それぞれのグラフの横軸は基板の膜厚であり、縦軸は D ベクトルの値である。点線は 0 を表しており、点線より上側は D ベクトルの符号が正（右巻き）であり、点線より下側は D ベクトルの符号が負（左巻き）である。Hf 基板では左巻き、TaN と W 基板では右巻き、Ta 基板ではその中間になっている。ここから、基板の素材によって回転方向が変化していることがわかる。それぞれの横軸は基板の厚さである。基板の厚さは、D ベクトルの絶対値の大きさには影響するが、符号自体には影響していない。

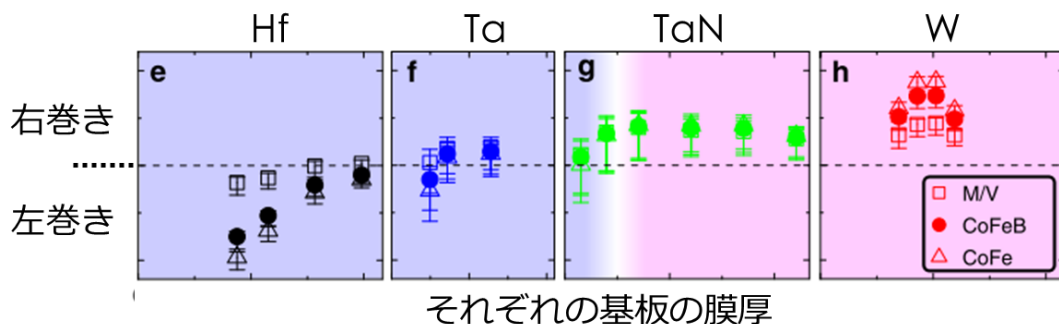


図 4.44. 基板による回転方向の違い [23]

図 4.45 は、Co と Ni のヘテロ界面超周期構造における磁壁を調べた先行研究である [24]。図 4.45 の右図に示すように、Pt 基板上にヘテロ構造を成長させている。さらに、基板とヘ

テロ構造との間に Ir 層を挟んで、その Ir 層の膜厚によって磁壁の状態がどのように変化するかを調べている。図 4.45 の左図はその結果である。横軸は Ir の膜厚で、縦軸はヘテロ構造の膜厚である。Ir の膜厚が 0 のとき、Pt 基板に由来する効果から、右巻きの磁壁が形成されている。そして、Ir の膜厚を厚くするにしたがって、Ir の効果が大きくなり、左巻きの磁壁に変化する。ここからも回転方向の決定に対する基板の効果を確認できる。

また、磁性体側の膜厚を大きくすると、界面での Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が磁性体全体へ及ぼす影響が小さくなり、「Achiral (カイラリティがない)」状態へと変化する。Ir の膜厚が約 2 nm のときにも、Achiral 状態が強く出現しており、Pt による効果と Ir の効果の競合によると説明される。さらに、Achiral な磁壁は Bloch 磁壁になっており、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が影響していないことを示唆している。言い換えると、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がなければ、カイラリティのない Bloch 状態が安定であるが、界面では、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって Neel 磁壁が誘起されていると言える。このことは、4.6.4 項で示した回転型とカイラリティの関係とも一致している。

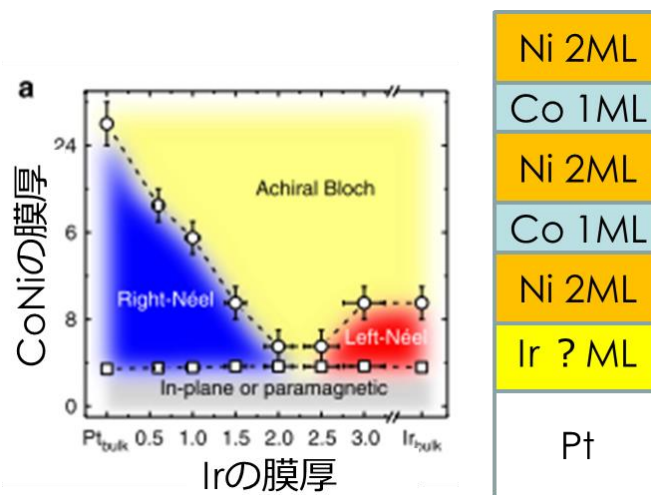


図 4.45. Ir と CoNi の膜厚による回転方向の違い [24]

林らは、基板と薄膜の電気陰性度が回転方向と密接に結びついているのではとの提案を行っている (図 4.46)。オールレッド・ロコウの電気陰性度によると、Hf は 1.23, Ta は 1.33, W は 1.40 であり [81]、電気陰性度が大きくなるほど右巻きになっている。

しかし、図 4.45 の実験においては、基板を電気陰性度の小さな Pt から大きな Ir に変化させていくにしたがって、右巻きから左巻きになっていることから、林らの考察とは一致していない。そのため、巻き方の決定には、より複雑な機構があると考えられる。

ただし、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は基板側のスピン軌道相互作用が由来しているため、基板側の電子状態が大きく影響していると考えられる。本研究で示した W(110)上の磁性薄膜は全て右巻きであり、図 4.44 に示す W 基板上の CoFeB 薄膜も右巻きであるため、

W 上の薄膜は全て同じではないかと予想できる。

ここで疑問となるのは、W(001)上の一層 Mn 薄膜である。W(001)上の一層 Mn 薄膜は、左巻きのらせん磁性を示すことが報告されている [6]。ただし、この報告は、理論計算によるもので、実験的に示された例はまだない。基板や薄膜の素材が重要になるのか、もしくは面方向も重要なのかを明らかにするために、さらなる実験が必要である。

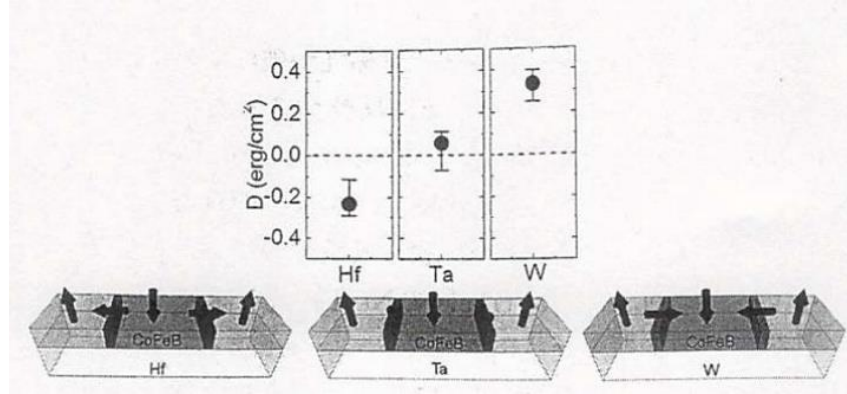


図 4.46. 各基板と D ベクトルの関係 [82]

Table 1. A Complete Set of Electronegativity Values

H																	He				
2.1																	—				
Li	Be															B	C	N	O	F	Ne
0.97	1.47															2.01	2.50	3.07	3.50	4.10	—
Value for hydrogen from Pauling (1).																					
Values in bold type are from this work.																					
Values in parentheses () are rough estimates.																					
All other values are from Allred and Rochow (10).																					
Na	Mg															Al	Si	P	S	Cl	A
1.01	1.23															1.47	1.74	2.06	2.44	2.83	—
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr				
0.91	1.04	1.20	1.32	1.45	1.56	1.60	1.64	1.70	1.75	1.75	1.66	1.82	2.02	2.20	2.48	2.74	—				
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe				
0.89	0.99	1.11	1.22	1.23	1.30	1.36	1.42	1.45	1.35	1.42	1.46	1.49	1.72	1.82	2.01	2.21	—				
Cs	Ba	*	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn				
0.86	0.97		1.23	1.33	1.40	1.46	1.52	1.55	1.44	1.42	1.44	1.44	1.55	1.67	1.76	1.90	—				
Fr	Ra	**																			
0.86	0.97																				
* La Ce Pr Nd Pm Sm Eu Gd Tb Dy Ho Er Tm Yb Lu																					
1.08	1.08	1.07	1.07	1.07	1.07	1.01	1.11	1.10	1.10	1.10	1.11	1.11	1.11	1.06	1.14						
** Ac Th Pa U Np Pu Am Cm Bk Cf Es Fm Md No?																					
1.00	1.11	1.14	1.22	1.22	1.22	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(1.2)						

図 4.47. 電気陰性度表 [81]

最後に、カイラル磁性の形成機構を考えるため、以下のハミルトニアンを考える。

$$\mathcal{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \sum_{ij} D_{ij} (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) + \sum_i K_i (S_i^z)^2 \quad (4.5)$$

ここで、 J_{ij} は交換相互作用（第一項）、第二項は Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用、 K_i は磁

気異方性である（第三項）。交換相互作用は、膜厚や基板にも影響されるが、主に薄膜材料によって決まる。今回考えた Fe は強磁性、Mn と Cr は反強磁性である。磁気異方性に関しても、膜厚や基板や薄膜材料によって決まる。磁気異方性と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の競合から、らせんが起きるかどうかが、また起きるとすればその伝播方向を決定している。例えば、一層 Mn 薄膜の場合、[001]方向に磁化困難軸があるため、(001)面内で回転するらせん磁気構造が形成される。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の交換相互作用に対する大きさから、らせんの周期が決定される。一層 Mn 薄膜の場合、らせんの周期から見積もって、 $|D|/J = 0.12$ であった。また、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の符号がらせん磁性の回転方向を決定している。本研究の結果から、その符号の決定に関しては、基板によって決まっていると考えられる。

ただし、二層 Mn 薄膜においては、らせん磁性の形成に Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は重要ではなく、多体交換相互作用が重要であるとの結論が出ている [7]。実際、らせんの周期から見積もると、 $|D|/J = 0.45$ であり、2.1 節で述べたように、 $|D|/J \approx 0.1$ であることから考えると大きすぎる。ただし、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が働いていない場合は、カイラリティは持たない。二層 Mn 薄膜の場合は、らせんの形成自体には Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用は重要ではないが、回転方向の決定に対して重要であるといえる。

4.10.本章のまとめ

W(110)上の Mn 薄膜を作製し、スピン偏極 STM 測定により、そのスピン構造を原子スケールで調べた。スピン偏極 STM を用いて、W(110)上の一層及び二層 Mn 薄膜の観察を行い、二層 Mn 薄膜のスピン偏極した電子状態を明らかにした。W(110)上の一層 Mn 薄膜は、左巻きのサイクロイド型らせん磁性であることを実験的に明らかにした。W(110)上の二層 Mn 薄膜は、カイラルな右巻きらせん磁性であることを実験的に明らかにした。W(110)上に形成された他の磁性薄膜との比較から、W(110)上の磁性薄膜における D ベクトルの向きは共通していることを示し、基板がその決定に重要な役割を担うことが示唆された。

5. スピン偏極探針の評価

本章では、スピン偏極 STM 測定において重要な磁性探針を作製し、それらの評価を行ったのでその結果について述べる。

5.1. スピン偏極探針の重要性

スピン偏極 STM を行うにあたって、試料や測定目的に応じて、適切な磁性探針を選定することは非常に重要である。実績のある探針を用いるのがベストではあるが、後述するようにその機能には様々な側面があり、用途に応じて使い分けると、質の良い結果が効率よく得られる。

そこで本章では、種々の磁性探針を作製し、評価を行ったので、その結果について述べる。評価内容としては、4 章のように回転方向や回転型を厳密に決定するケースを想定して、「スピン偏極探針として機能するか」「磁場に対してどのような応答をするか」についての評価を行う。また、今回の評価項目には含めないが、「漏れ磁場の影響はないか」も、常磁性体・軟磁性体試料を対象とした場合には重要になる。

現在、スピン偏極探針としては、通常の STM で用いる W 探針に Fe や Cr などの磁性体をコーティングした探針が広く用いられている [83, 84]。このような探針を「薄膜探針」と呼ぶこととする。薄膜探針は、コーティング材として強磁性を用いたとしても、薄膜のため、試料に対する漏れ磁場の影響が少ないという利点がある。さらに、薄膜蒸着条件を調節すれば、探針の磁化方向を制御できるという利点もある。しかし、このような薄膜探針は、探針作製に手間がかかるため、適切な作製条件を求めるのに時間を要するという欠点もある。また、針先に蒸着された磁性材料が測定中及び針先の調整等による針先の変化で失われると、探針のスピン偏極度が失われてしまうという欠点もある。

一方で、通常の STM で用いる W 探針のように、線材をエッチングして探針を作製するという手法もある。この場合、線材の材料として磁性体を選べば、簡単に磁性体探針を作製することができる。また、探針全体が磁性体のため、スピン偏極度が失われる心配がない。本論文では、このような探針を「バルク探針」と呼ぶこととする。バルク探針として最も広く用いられているのは、反強磁性体で漏れ磁場の影響を無視できるバルク Cr 探針である [85, 86, 87, 88, 73]。

強磁性ではあるが、磁気モーメントがあまり大きくない Ni 探針 ($0.6\mu_B$) は、スピン偏極探針の候補として考えてよい探針である。バルク Ni 探針は、STM 用探針として用いられた例はあるが、スピン偏極 STM 用探針として機能するかは明らかではない [27, 28, 29]。

また、本研究で用いるような、外部磁場・漏れ磁場による影響を受けにくい試料であれば、磁気モーメントの大きな強磁性体である Fe 探針 ($2.2\mu_B$) [30, 31] もスピン偏極探針の候補として考えてもよい。

探針の評価のための試料として、W(110)上の二層 Mn 薄膜を用いた。この試料は、4 章で示したように、らせん磁気構造を示す。二層 Mn 薄膜は、[001] 方向に伝播するらせん磁気構造のため、磁性探針の磁化方向が完全に $[1\bar{1}0]$ 方向を向いていない限り、らせん磁気構造に由来したスピン偏極信号を検出できる。

5.2. 探針の作製

5.2.1. バルク探針

Cr, Ni, Fe のバルク探針及び、Fe/W 探針の土台に用いる W 探針は電気化学的なエッチングにより先端を先鋭化した (図 5.1)。Ni, Fe, W は線材を入手可能なので、そのまま用いた。Cr に関しては板材しか手に入れることができないので、ダイヤモンドカッターで適切な細さの角棒に加工してからエッチングを行っている。Cr, Ni, Fe のエッチングには HCl 溶液を、W のエッチングには KOH 溶液を用いた。濃度はそれぞれ 2 mol/L とした。

直流電源でエッチングを行う方が先端の鋭い探針を作製できるが、長い時間を要するという欠点がある。そこで、まず交流電源である程度をエッチングしたのちに最終的に先鋭化させる段階では、直流電源を用いてエッチングを行った。図 5.2 にバルク Cr 探針の走査電子顕微鏡 (SEM) 像を示す。探針先端が十分に先鋭であることがわかる。

Cr, Ni, Fe に関しては、探針先端に付着した水分等の除去のために、使用前に超高真空中で約 500°C 程度の加熱を試みたが、評価の点では特に違いはなかったなので、必ずしも加熱は必要ではないと考えられる。

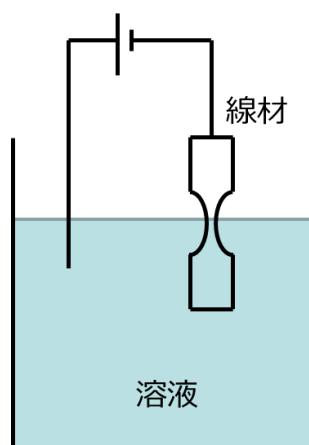


図 5.1. バルク探針の作り方

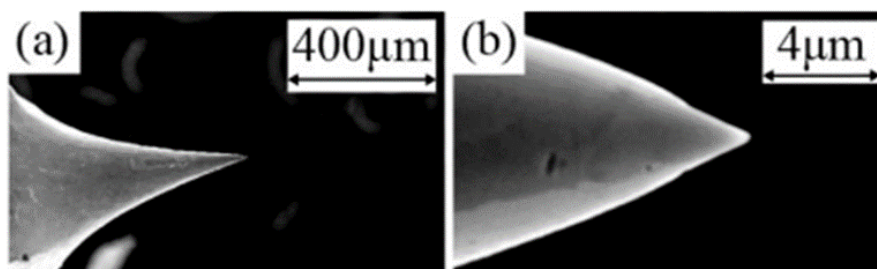


図 5.2 バルク Cr 探針の SEM 像

5.2.2. 薄膜探針

薄膜探針として、Fe/W 探針を作製した。Fe/W 探針は、5.2.1 項の要領でバルク W 探針を作製し、さらに超高真空中で Fe を蒸着させるという方法で行った。その手順を以下で説明する。①の W 探針作製のプロセス以外は、STM 装置と接続された超高真空チャンバー内で行っており、大気中に晒すことなくスピン偏極 STM 測定を行っている。

① バルク W 探針の作製

5.2.1 項の要領で作製する。

② バルク W 探針のフラッシュ処理

エッチングした探針には、水分や酸化物が付着しているので、それらを除去する必要がある。そのために、超高真空中で高温での短時間の加熱処理を行う。探針は微小なため、温度を正確に測るのは難しいが、黄色くなる程度まで加熱を行う。電子ビーム加熱しており、その際の条件は、フィラメント電流 $I_{fil} = 2.7\text{ A}$ 、フィラメント電圧 $V_{fil} = 5.85\text{ V}$ 、フィラメント探針間電圧 $V_{HV} = 2.8\text{ kV}$ 、エミッション電流 $I_{EM} = 2.6\text{ mA}$ であった。真空度は $5 \times 10^{-7}\text{ Pa}$ 以下に保つようにしながら、十数秒間の加熱を 5 回程行った。この処理が不十分な場合、探針が鈍ってしまい、double tip と呼ばれる現象（トンネル電流に寄与する探針先端が 2 つ以上ある状態）が起こりやすいので注意が必要である。

十分高温な加熱が行えていることを確認するため、テスト用 W 探針を用意し、少しずつフィラメント探針間電圧 V_{HV} を大きくしていきながら、どの条件で W 探針の温度が上昇し過ぎて融けるかを調べた。本番用探針では、溶けた時の条件に比べて若干低めのパラメータで加熱処理を行った。

もし、加熱が不十分と考える場合には、この行程を行ってパラメータを調節することが肝要である。

③ Fe 薄膜の蒸着

Oxford 製の電子ビーム蒸着装置を用いて、W 探針上に Fe 薄膜を作製した。蒸着条件は、フィラメント電流 $I_{fil} = 4.30\text{ A}$ 、フィラメント蒸着源間電圧 $V_{HV} = 1.11\text{ kV}$ 、エミッション電流 $I_{EM} = 12.5\text{ mA}$ とした。蒸着量はイオンフラックスによる電流値を用いて制御を行っており、

フラックス電流 $I_{FLUX} = 20 \text{ nA}$ で行っている。この蒸着装置には4つのポケットがあり、探針に用いた Fe と試料に用いた Mn は、同じ蒸着装置内の別のポケットに設置している。探針を作製する場合も試料を作製する場合も、蒸着装置から対象までの距離はほとんど等しいので、フラックス電流値が等しい場合、粗い見積もりではあるが、蒸着レートがは同じと考えることができる。Mn の蒸着も $I_{FLUX} = 20 \text{ nA}$ で行っており、Mn の蒸着レート（約 2.0 層/分）から推測して、30 分間蒸着した Fe は約 60 層の薄膜が形成されていると予測できる。

④ アニール処理

Fe を蒸着したのちに、さらに平坦な薄膜にするため、アニール処理を行った。この行程を行わないと、double tip になりやすい。電子ビーム照射により加熱しており、フィラメント電流 $I_{fil} = 2.5 \text{ A}$ 、フィラメント電圧 $V_{fil} = 4.95 \text{ V}$ 、フィラメント探針間電圧 $V_{HV} = 0.55 \text{ kV}$ 、エミッション電流 $I_{EM} = 0.3 \text{ mA}$ の条件で 10 分間行った。目安として、フラッシュ処理でのワット数 ($V_{HV} \times I_{EM}$) と比較して、1/5 程度に設定している。

金属材料を引き延ばしてワイヤー状にした場合、その長軸方向には最密面が現れやすい。W の結晶は体心立方格子のため、(110) 面が最密である。そのため、W 探針は先端に (110) 面が現れるので、Fe/W 探針は、W(110)上に形成された Fe 薄膜と同様の物性を示すことが予測される。W(110)上の Fe 薄膜は面内磁気異方性を持っているとの報告があるので [89]、Fe/W 探針の磁化は面内方向を向くと信じられている [90]。実際、本研究でも、Fe/W 探針を用いてスピン偏極測定を行ったところ、面内を向いていることを確認できた。

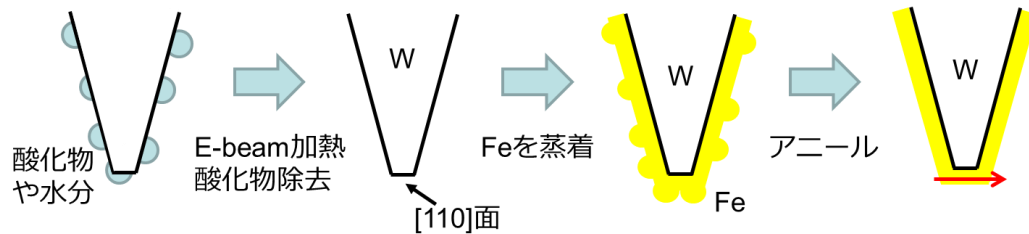


図 5.3. Fe/W 探針作製の模式図

5.3. バルク探針を用いたスピン偏極 STM 測定

本節では、上記の探針を用いて、二層 Mn 薄膜上で行ったスピン偏極 STM の結果について述べる。

5.3.1. バルク Cr 探針

図 5.4 にバルク Cr 探針を用いて、二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像を示す。左図がトポグラフ像であり、右図が dI/dV 像である。測定条件は、 $V_s = -40 \text{ mV}$ 、 $I_t = -1 \text{ nA}$ 、

$V_{mod}=30\text{ mV}$, $f_{mod}=1.877\text{ kHz}$, $34\text{ nm}\times 34\text{ nm}$ である。トポグラフ像上の ML と示した部分が一層 Mn 薄膜の領域、DL と示した部分が二層 Mn 薄膜の領域である。トポグラフ像上ではそれらの区別は困難であるが、二層 Mn 薄膜上の dI/dV 像上では、ストライプ構造が確認できるため、それらははっきりと区別ができる。このストライプの周期は約 2 nm であるので、このストライプ構造は、二層 Mn 薄膜のらせん磁気構造を反映している。本来であれば一層 Mn 薄膜上でも Tunneling Anisotropic Magnetoresistance (TAMR) コントラストや反強磁性に由来するスピン偏極コントラストが得られるはずであるが (4.4.2 項参照) この測定では得られていない。TAMR コントラストが得られなかった原因は、バイアス電圧の設定の問題と考えている。TAMR コントラストは、試料バイアスを $+150\text{ mV}$ に設定したときにもっとも強く現れる、本測定でのバイアス電圧では TAMR 信号が弱いと考えている。反強磁性に由来するスピン偏極信号が観察されない理由は、探針が先鋭でないためと考えている。実際、二層 Mn 薄膜上でも反強磁性コントラストは得られていない。他のバルク探針にも共通して言えることであるが、W 以外のバルク探針は W 探針に比べてどうしても鈍っており、原子分解能を得るのは困難であった。(厳密には、反強磁性コントラストの周期は原子間隔よりも $\sqrt{24/3}$ 倍長くなる。)

次に、バルク Cr 探針に面直方向に $\pm 2\text{ T}$ 、面内方向に $\pm 1\text{ T}$ の磁場を印加した状態でスピン偏極 STM 測定を行ったが、コントラストは変化しなかった。それは、Cr は反強磁性体なので、外部磁場によって磁化が変化しなかったためと考えられる。また、一層 Mn 薄膜の結果であるが、らせん磁性秩序が壊される温度は 200 K 前後であるため [68]、Mn 薄膜におけるらせん磁性を破壊するためには 200 T 程度の磁場が必要であり、今回印加した 2 T 程度の外場が影響を与えるとは考え難い。すなわち、Mn 薄膜におけるらせん磁性は外場に対して強く、試料の磁気状態も外部磁場によって変化しなかったと考えられる。

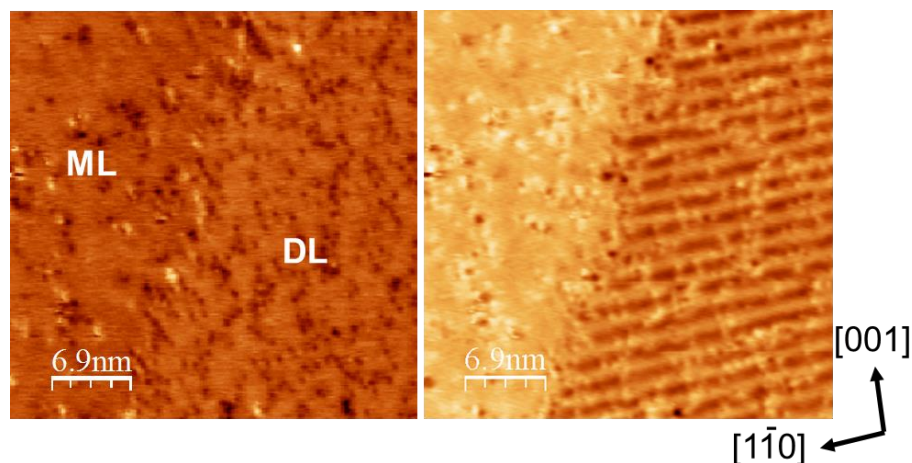


図 5.4. バルク Cr 探針を用いたスピン偏極 STM 像

(左) トポグラフ像 (右) dI/dV 像

($V_s = -40\text{ mV}$, $I_t = -1\text{ nA}$, $V_{mod} = 30\text{ mV}$, $f_{mod} = 1.877\text{ kHz}$, $34\text{ nm}\times 34\text{ nm}$)

5.3.2. バルク Fe 探針

図 5.5 に、バルク Fe 探針を用いて二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像を示す。左図がトポグラフ像であり、右図が dI/dV 像である。トポグラフ像から、バルク Fe 探針は通常の STM 用探針として十分安定して測定が行えることがわかる。トポグラフ像において、ML と示した領域は、一層 Mn 薄膜を表しており、DL と示した領域は二層 Mn 薄膜の領域を表している。 dI/dV 像をみると、二層 Mn 薄膜上で、横方向 ($[1\bar{1}0]$ 方向) に沿ってストライプ状のパターンが観察されていることがわかる。これは、二層 Mn 薄膜のらせん磁気構造を反映している。一層 Mn 薄膜領域が明るく見えるのは、このバイアス電圧においては、一層 Mn 薄膜の方が、局所状態密度が大きいからである (4.3 節)。

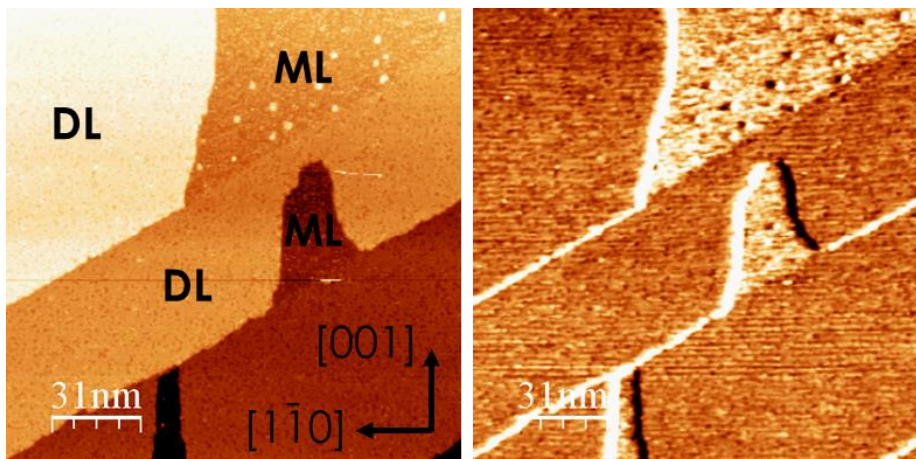


図 5.5. バルク Fe 探針を用いたスピン偏極 STM 像

(左) トポグラフ像 (右) dI/dV 像

($V_s = -100$ mV, $I_t = -0.3$ nA, $V_{mod} = 35$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz, $B = 1$ T)

次に、二層 Mn 薄膜上のより狭い領域で取得したスピン偏極 STM 像を図 5.6 に示す。上図がトポグラフ像、下図が dI/dV 像を示している。トポグラフ像では観察できないが、 dI/dV 像においては、ストライプパターンが観察されていることがわかる。ここから、バルク Fe 探針がスピン偏極 STM 用の探針としても機能していると言える。

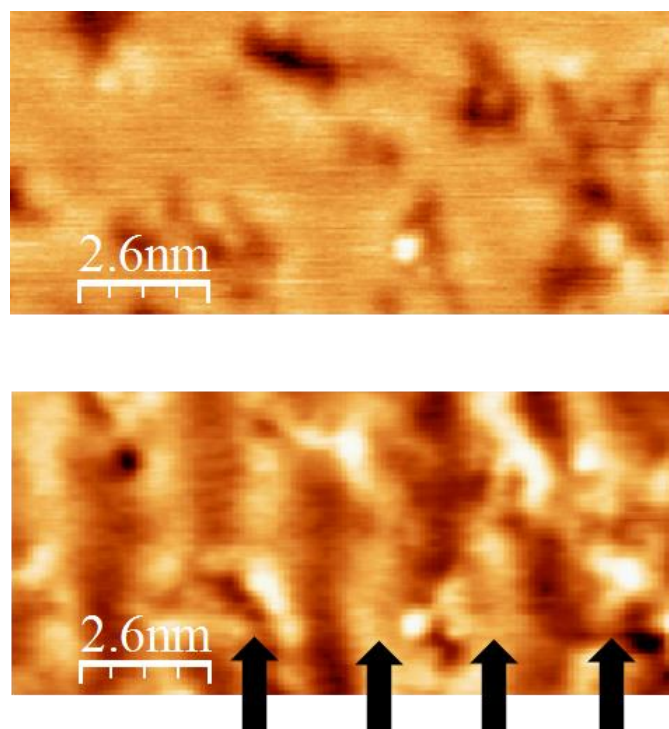


図 5.6. バルク Fe 探針を用いて、二層 Mn 薄膜上で取得したスピン偏極 STM 像
 (上) トポグラフィ像 (下) dI/dV 像
 ($V_s = -50$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 20$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz)

さらに、磁場下でスピン偏極 STM 測定を行った結果を図 5.7 に示す。上図は面直下向きに 2 T の磁場を印加しながら取得したスピン偏極 STM 像であり、下図は面直上向きに 2 T の磁場を印加しながら取得したスピン偏極 STM 像である。なお、この像は、3 次元化したトポグラフィ像に、 dI/dV 像のコントラストを重ねたものである。こうすることで、トポグラフィ像と dI/dV 像との位置関係がはっきりとわかる。図中の矢印と破線は、明線の位置を示している。図中白丸で示した不純物に着目する。上図では、矢印で示した明線の位置とこの不純物の位置が重なっている。一方、下図では、白丸で示した不純物は、矢印で示す明線と明線の間に位置している。ここから、これらの二つの像ではストライプパターンコントラストが反転していることがわかる。5.3.1 項からわかるように、少なくとも 2 T 以下の磁場で試料の磁気秩序は変化しないため、これは、探針の磁化方向が磁場によって変化したと考えてよい。このことから、バルク Fe 探針の磁化方向は、外部磁場によって制御できることがわかる。

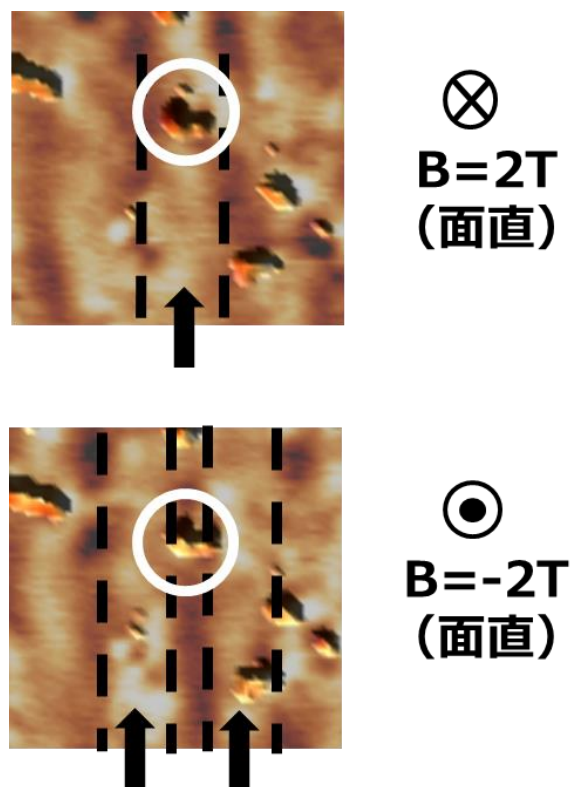


図 5.7. バルク Fe 探針を用いて、磁場下で行ったスピンの偏極 STM 像
 (上) 面直下向きに 2 T (下) 面直上向きに 2 T
 ($V_s = -50$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 20$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz)

5.3.3. バルク Ni 探針

図 5.8 に、バルク Ni 探針を用いて取得したスピンの偏極 STM 像を示す。上図がトポグラフィ像であり、下図が dI/dV 像である。トポグラフィ像から、バルク Ni 探針も通常の STM 用探針として十分安定して測定が行えることがわかる。トポグラフィ像において、一層 Mn 薄膜領域と二層 Mn 薄膜領域の両方がイメージングされている。 dI/dV 像をみると、ここでも二層 Mn 薄膜上で、 $[1\bar{1}0]$ 方向に沿って二層 Mn 薄膜のらせん磁気構造を反映したストイプパターンが観察されていることがわかる。

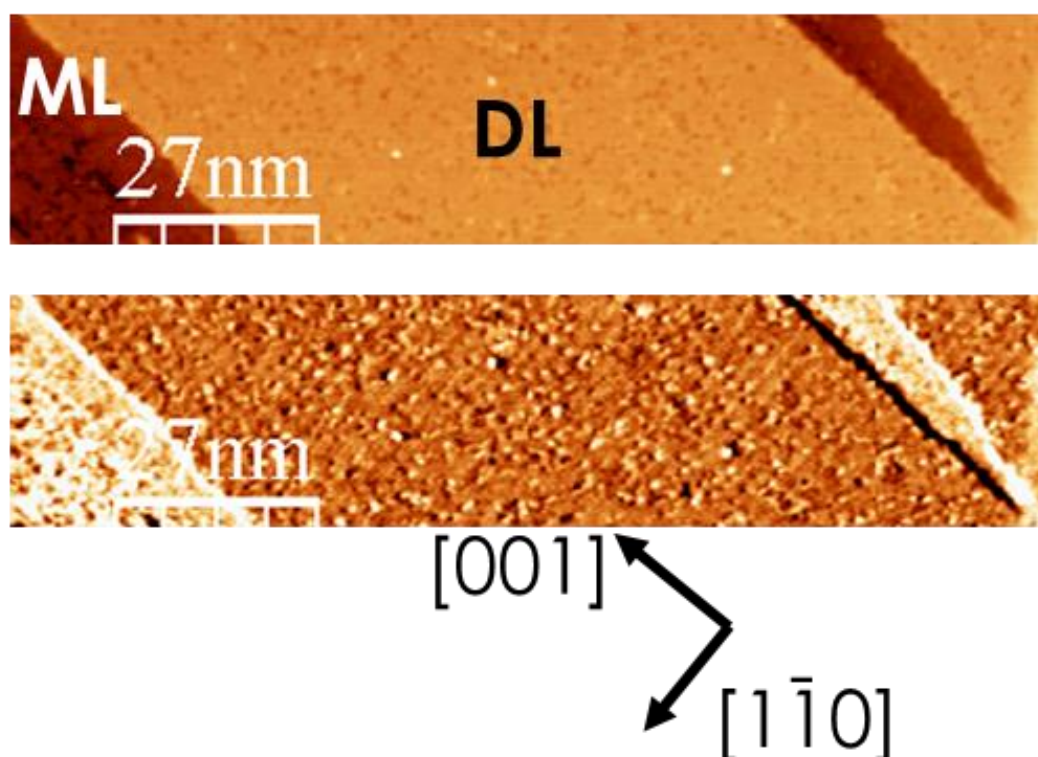


図 5.8. バルク Ni 探針を用いたスピン偏極 STM 像（上）トポグラフィ像
（下） dI/dV 像 ($V_s = -100$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 30$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz,
134.5 nm \times 30.2 nm, $B = 0.5$ T)

次に、バルク Ni 探針を用いて二層 Mn 薄膜上のより狭い領域で取得したスピン偏極 STM 像を図 5.9 に示す。上図がトポグラフィ像、下図が dI/dV 像を示している。ここで、 $V_s = -100$ mV, $I_t = -1$ nA, $V_{mod} = 30$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz, 134.5 nm \times 30.2 nm であり、面直方向に $B = 0.5$ T の磁場を印加している。バルク Ni 探針を用いても、 dI/dV 像において、ストライプパターンが観察されているため、バルク Ni 探針は、スピン偏極 STM 用の探針として機能すると言える。

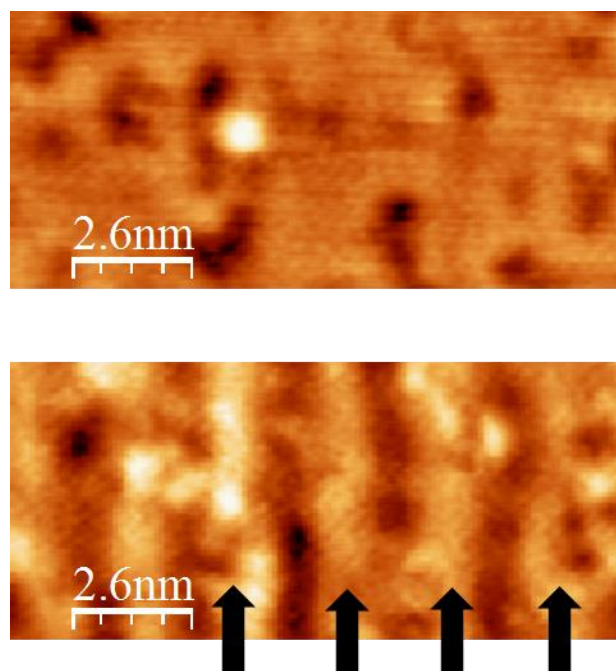


図 5.9. バルク Ni 探針を用いて、二層 Mn 薄膜上で取得したスピンの偏極 STM 像（上）トポグラフィ像（下） dI/dV 像

($V = -50$ mV, $I = -1$ nA, $V_{mod} = 20$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz, $B = 0.5$ T)

バルク Fe 探針と同様、磁場下でスピンの偏極 STM 測定を行った結果を図 5.10 に示す。上図は面直下向きに 0.5 T の磁場を印加しながら取得したスピンの偏極 STM 像であり、下図は面直上向きに 0.5 T の磁場を印加しながら取得したスピンの偏極 STM 像である。この像においても、3 次元化したトポグラフィ像に、 dI/dV 像のコントラストを重ねている。図中白丸で示した不純物に着目したとき、上図では、矢印で示した明線の位置とこの不純物の位置が重なっている。その一方、下図では、白丸で示した不純物は、矢印で示す明線と明線の間に位置している。したがって、これら二つの画像では、ストライプパターンのコントラストは反転していることがわかる。以上から、バルク Ni 探針の磁化方向も、外部磁場によって制御できることがわかった。

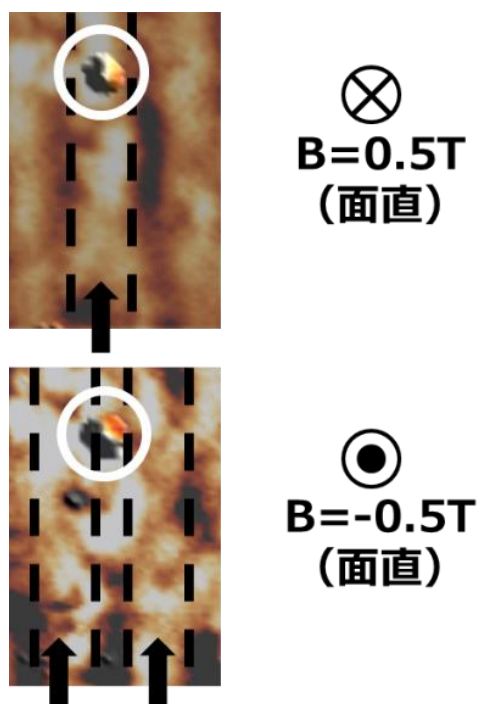


図 5.10. バルク Ni 探針を用いて、磁場下で行ったスピン偏極 STM 像
 (上) 面直下向きに 0.5 T (下) 面直上向きに 0.5 T
 ($V = -50$ mV, $I = -1$ nA, $V_{mod} = 20$ mV, $f_{mod} = 1.877$ kHz)

5.3.4. バルク Fe 探針とバルク Ni 探針

バルク Fe 探針とバルク Ni 探針に水平方向の磁場を印加したところ、磁場を印加しなかったときの走査範囲から大きくずれることが判明した。本研究で用いた STM 装置では、探針の走査範囲は最大で $1.3\ \mu\text{m} \times 1.3\ \mu\text{m}$ であるが、強磁性探針への水平方向への磁場の印加は、図 5.11 のように探針を大きく変形させ、その走査範囲に収まりきらなくなる。以上から、強磁性探針の磁化を、水平方向への磁場の印加により制御することは有効ではないと言える。

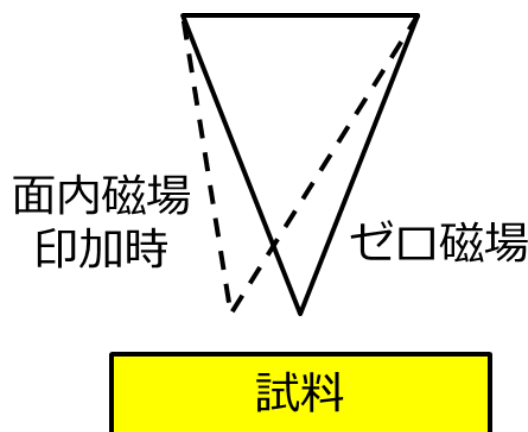


図 5.11. バルク Ni 探針及びバルク Fe 探針に面内磁場を印加したときの模式図

5.4. 薄膜探針を用いたスピン偏極 STM 測定

4 章でも示したように、Fe/W 探針を用いてスピン偏極 STM 測定を行うことができ、磁場による磁化方向の制御も可能である。ここでは、磁化状態を制御するには、どの程度の大きさの磁場が必要かを測定した結果について述べる。本節では、試料に一層 Mn 薄膜を用いている。

0 T から、0.2 T ずつ面直に磁場を印加したときのスピン偏極 STM 像をを図 5.12 に示す。なお、これらは全て $V = 15 \text{ mV}$, $I = 40 \text{ nA}$ で取得したトポグラフ像である。4.8.4 項および 4.8.5 項で示したように、0 T の磁場下では面内を向いているが、面直磁場を印加していくと、徐々に Fe/W 探針の磁化方向が面直方向に向いていくため、反強磁性コントラストが強く表れる位置がずれていく。0 T から 0.6 T までは反強磁性コントラストが強く表れる位置がすこしずつずれているが、0.6 T 以降はその位置が変化していない。これは、磁化方向が完全に面直に向いたことを意味する。ここから、約 0.6 T で探針の磁化が飽和していると言える。

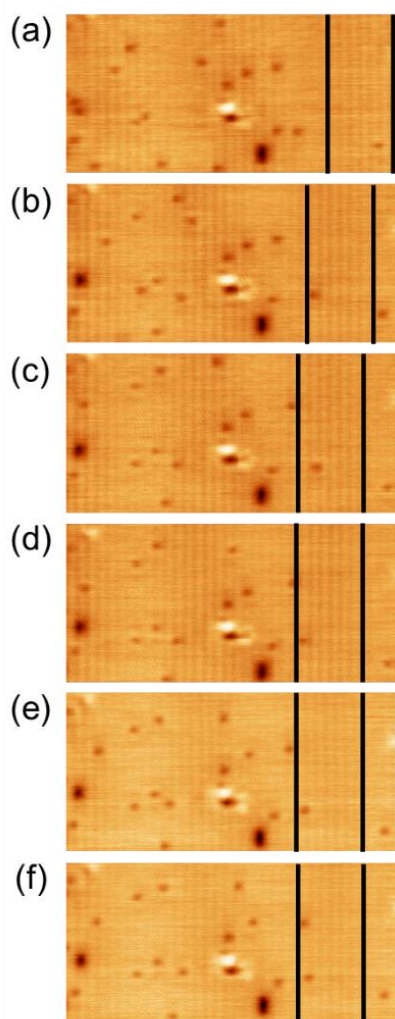


図 5.12. Fe/W 探針を用いた面直磁場下での一層 Mn 薄膜上のスピン偏極 STM 測定(a) 0 T (b) 0.2 T (c) 0.4 T (d) 0.6 T (e) 0.8 T (f) 1.0 T の面直磁場下で得られたトポグラフ像
($V_s = 15$ mV, $I_t = 40$ nA, 14.5 nm \times 6.9 nm)

5.5. 本章のまとめ

Cr, Fe, Ni のバルク探針と W 上の Fe 薄膜探針の 4 種の探針を用いてスピン偏極 STM 測定を行った。全ての探針でスピン偏極 STM 測定を行えることを確認し、以下のようなそれぞれの探針の特徴を得た。

バルク Cr 探針

手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化が影響して欲しくないときに適している。

バルク Fe 探針

手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化を変化させたいときに用いるのが良い（面直のみ）。ただし、探針の漏れ磁場による試料への影響を考慮する必要がある。

バルク Ni 探針

手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化を変化させたいときに用いるのが良い（面

直のみ)。探針の漏れ磁場による試料への影響は少なからずあるが、バルク Fe 探針に比べると小さい。しかし、スピン偏極信号はバルク Fe 探針の方が得やすい。

Fe/W 探針

作製は面倒だが、面内方向を含めて外部磁場により探針の磁化の向きを精密に制御したいときに用いるのが良い。また、磁化を飽和させるためには、0.6 T を印加すれば十分である。

表 5.1. 4 つの磁性探針の特性

	バルク Cr 探針	バルク Fe 探針	バルク Ni 探針	Fe/W 探針
スピン偏極信号	○	○	○	○
磁場応答	× 変化しない	△ 面直のみ	△ 面直のみ	○
作製の容易さ	○ エッチング	○ エッチング	○ エッチング	× 薄膜作製
漏えい磁場	○ 反強磁性	× 強磁性	△ 強磁性	○ 薄膜

6. 準粒子干渉計測と圧縮センシング

本章では、走査トンネル分光による準粒子干渉と圧縮センシングに関して基礎的な事柄を述べる。

6.1. 準粒子干渉計測とは

レーザー光など、コヒーレントな波を扱うときに、常に「干渉」という現象は起こりうる。粒子性だけでなく波動性を持つ電子においても、当然干渉は起こる。空間上で電子の干渉現象が起こった場合、局所状態密度 (Local Density of States: LDOS)、すなわち局所的な電子の存在確率が空間的に変調される。電子のエネルギーは eV のオーダーで、その波長は長くても nm のスケールのため、通常可視化するのは困難であるが、原子スケールで LDOS を実空間観察できる STM もしくは走査トンネル分光 (Scanning Tunneling Spectroscopy: STS) は、電子の干渉現象を実空間観察できる有効な手法である。

干渉現象自体はどのような系の電子でも起こるが、STS は表面敏感な手法のため、干渉現象を観察するためには、電子が表面に 2 次元的に束縛されている必要がある。この電子の干渉現象は、Au、Ag、Cu などの貴金属表面における表面電子状態に束縛された 2 次元電子が、表面における散乱体 (不純物、欠陥、ステップなど) の周りで、入射電子と反射電子の干渉によって引き起こす電子定在波の観察から見いだされた [15, 16]。

例えば、図 6.1 に示すような Ag(111) では、バルクの L 点近傍のギャップ内にショックレー状態と呼ばれる表面準位が形成されている。そのため、不純物やステップによって散乱された電子定在波が観察される (図 6.1 (a-d))。また、この定在波の波数をバイアス電圧に対してプロットすると、表面電子状態の波数とエネルギーの分散関係が得られる。Ag(111) 表面の場合、束縛された電子が自由電子的に振る舞うので、その電子は、シュレディンガー方程式から導かれる分散関係、

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*} k^2 \quad (6.1)$$

を持つ。ここで、 E はエネルギー、 \hbar はプランク定数を 2π で割ったもの、 m^* は有効質量、 k は波数である。ただし注意すべきは、ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ を持つ散乱体による干渉パターン $S(\mathbf{r})$ は、等エネルギー面上の状態間 $\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ と $\Psi_{\mathbf{k}'}(\mathbf{r})$ の弾性散乱強度の二乗和

$$S(\mathbf{r}) \sim \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})^* V(\mathbf{r}) \Psi_{\mathbf{k}'}(\mathbf{r})|^2 \quad (6.2)$$

で表される。表面散乱体による散乱ポテンシャルは通常 k 依存性が弱いので、フーリエ変換を行うと、等エネルギー面 k 空間での自己相関パターンが得られる。言い換えると、 $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$ の散乱ベクトル $\mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ のマッピングとも言える。Ag(111) の場合、等方的なエネルギー分散をもつので、 \mathbf{k} 空間で円形の等エネルギー面をもつ。あるエネルギーにおける円の半径を

k_V とすると、STS で得られる定在波の波数は $2k_V$ である (図 6.1 (a-d))。すなわち、STS 画像をフーリエ変換すると、半径 $2k_V$ の円形パターンが得られる (図 6.1 (e-h))。そして、フーリエ変換像を輪切りにしてエネルギーに対してプロットすると、(6.1)式から予想されるように、放物線形状の分散関係が得られる (図 6.1 (i))。

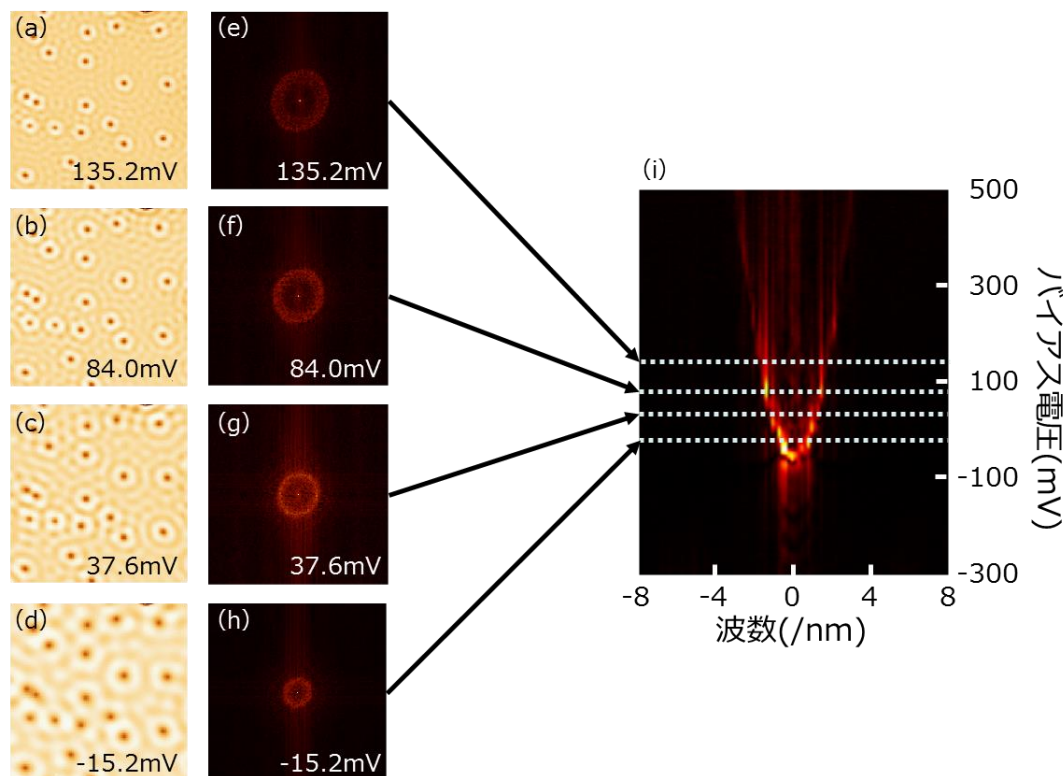


図 6.1. Ag(111)表面上で観察された電子定在波と分散関係

(a-d) 実空間での dI/dV 像 (e-h) それぞれの実空間像をフーリエ変換した像。

図中に記載された値は、 dI/dV 値を計測した試料バイアス電圧 V_s を表す。

(i) (e-h)の像を輪切りにして並べた像。電子のエネルギー分散関係に対応

このような電子定在波のように電子が干渉する現象、超伝導におけるボゴリューボフ準粒子の干渉も含めて、準粒子干渉 (Quasi-particle interference: QPI) と呼ばれている。2次元電子系が形成されていれば、QPI の観察が期待できる。QPI 計測を行うことができれば、表面の電子状態密度を、 k 空間情報を含めて、STS を用いて調べることができる。電子状態の k 空間状態は、角度分解光電子分光 (Angle Resolved Photoemission Spectroscopy: APRES) でも得られるが、光電子を検出する ARPES では困難な極低温環境下・磁場環境下でも測定が可能である。さらに、STS には、占有準位だけでなく、非占有準位の測定も可能であるという利点もある。

こうした利点から QPI 計測は、例えば、トポロジカル絶縁体 [20,21]や非従来型超伝導体

[17, 18, 19]など、物性物理分野にける主要テーマの研究にも広く用いられつつある (図 6.2)。

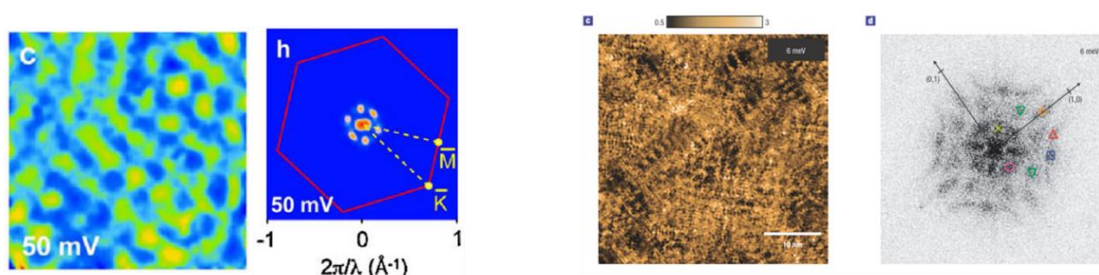


図 6.2. トポロジカル絶縁体 Bi_2Te_3 [21]や非従来型超伝導体 $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ [17]上で観察された準粒子干渉 (どちらも左が実空間、右が波数空間)

6.2. 走査トンネル分光を用いた準粒子干渉計測の課題

まず、STS を用いて QPI 計測を行う手法について説明する (図 6.3)。まず、見たい領域を決め、その領域を格子状に分割する。そして、その各格子点上で、 dI/dV スペクトル測定を行う。例えば、見たい領域を $50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$ 、格子の分割を 128×128 点とする。 dI/dV スペクトルを取得するためには、バイアス電圧を掃引する必要がある。例えば、 -500 mV から 500 mV まで 15 秒で掃引するとする。すると、STS 測定は、各 15 秒の dI/dV スペクトル測定を 128×128 回行う必要があることになる。そのとき、 $128 \times 128 \times 15 = 245760$ 秒 = 約 2.8 日の測定時間が必要になる。探針を動かす走査時間も考慮すべきのように感じるかもしれないが、例えば、 $50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$ の領域の場合でも、走査時間自体は長くても 30 分程度であるため、スペクトル測定時間に比べて重要ではない。

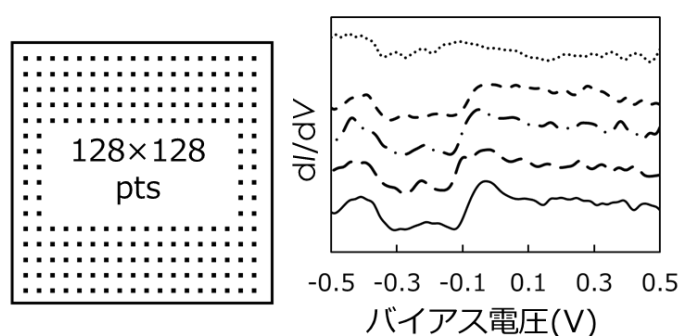


図 6.3. QPI 計測の方法

測定時間が長くなった場合、様々な問題が生じる。例えば、測定時間が長くなると、高価な液体 He の消費量が多くなるという問題がある。また、 He デュワーを補充してから枯れるまでの時間 (用いた装置では約 3 日) が一度の測定で使える最大の時間のため、それ

より長時間の測定は不可能になる。さらに重要な問題としては、熱ドリフトがある。熱ドリフトとは、熱によって装置全体が時間的に変形していく現象で、4 K オーダーの極低温で測定していたとしても、一時間あたり数 Å の熱ドリフトが起こることがある。ドリフト量は時間に依存するので、長時間測定すると測定結果が歪んでしまい、結果自体の信頼性が失われることもある。しかしながら、 k 空間で広い範囲をカバーするためには狭い格子点間隔を保たないといけない。(ブリルアンゾーンをカバーするためには、格子間隔は原子間隔より小さくしなくてはならない。) 一方、 k 空間で分解能を上げるためには、十分広い範囲を測定する必要がある。(計測範囲を x とすると波数空間分解能は $2\pi/x$ 。) したがって、同測定を得られる情報の質は落とさずに短い時間で測定できることへの要請は極めて高い。

6.3. 圧縮センシングとは

近年、ビッグデータという単語をよく耳にする。今日のような情報化社会では、インターネット等様々なメディアを通して大量の情報に触れることができる。しかし、情報が大量になった分、情報を見逃す可能性も増えている。そこで、いかに効率よく重要な情報を取り出すかを考えることは、情報科学の一大テーマとなっている。

圧縮センシングとは、このようなビッグデータを取り扱う手法の一つとして、2000 年代から盛んに研究が行われている手法である [32]。圧縮センシングでは、スパース (ほとんどがゼロ) なデータが特に取り扱われる。従来はスパースなデータも非スパースなデータも同様に扱われてきたが、圧縮センシングでは、データのスパース性を利用して、情報を効率よく扱う。圧縮センシングの考え方は、データ圧縮のように「データを圧縮して保存する」というのとは逆に、「取得するデータ自体を減らす」という考え方である。減らして取得したデータは、情報のスパース性 (ほとんどがゼロであること) を利用して復元される。このような情報処理は、スパースモデリングと呼ばれる情報科学分野の一環として盛んに研究が進められている。

元来圧縮センシングは、ビッグデータを扱うデータ処理手法として開発されたが、最近では科学計測にも適用されつつある。特に、圧縮センシングが得意としているのは、フーリエ解析やウェーブレット解析などの周波数解析である。そのため、現在圧縮センシングが威力を発揮しているものの一つは、画像解析である。図 6.4 のように磁気共鳴イメージング (MRI) や宇宙分野におけるブラックホールの撮像などで、圧縮センシングが画像解析へ適応可能であることが示されている。計測時間をなるべく削減したい MRI や、取得できるデータ数に限りのあるブラックホールの撮像など、少ない計測から多くの情報を取り出す必要のある分野で大きな力を発揮している。

医学分野で主に用いられていた MRI であるが、近年、ダイヤモンド中の窒素欠陥 (NV センター) スピンの検出などにも MRI の考え方が用いられるようになり、圧縮センシングも

物性物理分野に拡がろうとしている [34]。

ここで、MRI と QPI 計測の違いについて考えてみる。MRI においては、周波数を掃引させてデータを取得し、実空間画像（図 6.4 (a)）を復元する。図 6.4 (a)においては、血管の位置（図中の白線部）が欲しい情報で、それ以外はゼロと考える。したがって、血管の位置以外はスパースなので、圧縮センシングが適用可能である。一方 STS の場合、図 6.1 のように、実空間像を取得し、波数空間像を復元する。波数空間像において欲しい情報は、どの波数成分が存在するか（図 6.1 においては(e-h)の円環）なので、それ以外はスパースであると考えてよい。すなわち、波数空間の観測から実空間を導く MRI と、実空間の観測から波数空間を導く QPI 計測は、フーリエ変換と逆フーリエ変換の違いというだけで、基本的に同じものと考えてよい。したがって、MRI に圧縮センシングが適用できるのであれば、QPI 計測にも圧縮センシングは適用可能と考えてよいはずである。

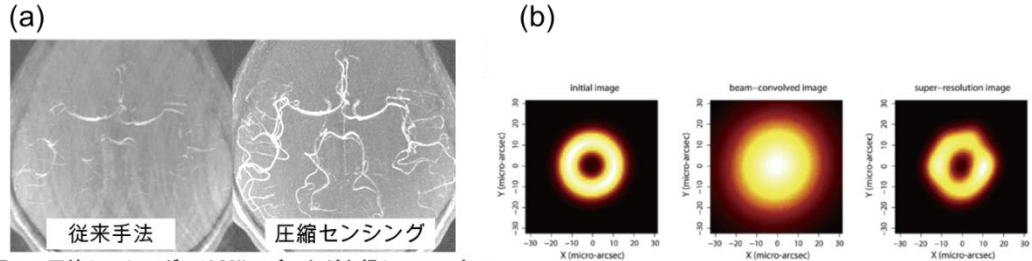


図 2 : 圧縮センシングでは80%のデータが欠損していても血管画像が再構成できる

図 6.4. 圧縮センシングの適用例。(a) 約 1/5 の計測時間で行った MRI による脳血管像の再構成。 [91] (b) 微弱な電波から再現されたブラックホールの画像。左から、シミュレーション、計測結果、圧縮センシングによる解析結果である。圧縮センシングを用いた解析で、シミュレーションで見られたリング形状が再現されている。 [92]

6.4. 圧縮センシングの問題設定

N 回の観測で、 M 個の解を得る場合を考える。また、解は観測値の線形変換で得られるものとする。すなわち、解ベクトルを \mathbf{x} とすると、 \mathbf{x} の次元は M であり、観測ベクトルを \mathbf{y} とすると、 \mathbf{y} の次元は N である。そして、 \mathbf{x} と \mathbf{y} は線形変換の行列 \mathbf{A} で結ばれているとする。このとき、 \mathbf{x} と \mathbf{y} と \mathbf{A} の関係は、

$$\begin{pmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{N-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{0,0} & A_{0,1} & \cdots & A_{0,M-1} \\ A_{1,0} & A_{1,1} & \cdots & A_{1,M-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ A_{N-1,0} & A_{N-1,1} & \cdots & A_{N-1,M-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{M-1} \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

$$\mathbf{y} = \mathbf{A}\mathbf{x} \quad (6.4)$$

と表現できる。

QPI 計測の場合で具体的に考えてみる。この場合、観測行列 \mathbf{y} は、実空間の画像データであり、その次元 N は測定ピクセル数に対応する。そして、解の行列 \mathbf{x} は、フーリエ変換後の波数空間像であり、その次元 M は波数空間像のピクセル数に対応する。また、観測行列 \mathbf{A} は離散逆フーリエ変換に対応し、解と観測値は線形変換可能である。

もう少し具体的に考える。簡単のため、計測は一次元とする。ある座標 r_n において観測値 y_n が得られたとする。そして波数空間座標 q_m における波数空間データを x_m とする。離散フーリエ変換の式は、

$$y_n = \sum_{m=0}^{M-1} x_m e^{i(r_n q_m)} \quad (6.5)$$

となるため、行列形式で表示すると、

$$\begin{pmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{N-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{i(r_0 q_0)} & e^{i(r_0 q_1)} & \dots & e^{i(r_0 q_{M-1})} \\ e^{i(r_1 q_0)} & e^{i(r_1 q_1)} & \dots & e^{i(r_1 q_{M-1})} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ e^{i(r_{N-1} q_0)} & e^{i(r_{N-1} q_1)} & \dots & e^{i(r_{N-1} q_{M-1})} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{M-1} \end{pmatrix} \quad (6.6)$$

となる。したがって、(6.4)式と同様の形式で書くことができる。より詳しい説明は補足 A.2 で述べる。

この一次元の観測を二次元で考える場合、一次元離散フーリエ変換を二次元離散フーリエ変換へと拡張すればよい。すなわち、座標 r_n を座標ベクトル $\mathbf{r}_n = (r_{nx}, r_{ny})$ とし、運動量 \mathbf{q} を運動量ベクトル $\mathbf{q}_m = (q_{mx}, q_{my})$ と拡張すればよい。

観測 \mathbf{y} から解 \mathbf{x} を求めることは、 \mathbf{x} を変数とする連立一次方程式と考えることができる。通常、 \mathbf{x} を求めるためには、 $N = M$ であることが必要十分条件である。ただ、 $M \leq N$ であれば、最適な解を探すことが可能であることは直感的に理解できる。最小二乗法によるフィッティングが良く知られている一つの方法である。しかし、 $M > N$ の場合、通常連立方程式は不定となり、解を一意に求めることはできない。解を求めたい場合、無数にある解から、最適な解を選択する必要がある。不定である方程式を、「解 \mathbf{x} はスパースである」という仮定に基づいて推定する手法を「圧縮センシング」と呼ぶ。なお、スパースとは、非ゼロ要素が少ない（ほとんどの要素がゼロ）ということである。

圧縮センシングを用いれば、少ない観測(N)から、解を推定することができるかもしれない。 N を減らすことは、測定ピクセル数を減らすことに対応し、すなわち、測定時間の削減につながる。したがって、圧縮センシングは、QPI 計測の高速化に有効となる可能性がある。

6.5. 解の推定手法

解が不定、すなわち複数の解がある連立方程式を解く手法を考える。以下に示す方法は、いずれも複数ある解のうち、どの解を選択するのが解の推定値として最適であるかを検討する手法である。本節の内容は文献 [93, 94] を参考にしている。

6.5.1. 一般逆行列 (l_2 ノルム最小化)

最も単純に連立方程式を求める方法は逆行列を求めることである。しかし、一般に、行列 \mathbf{A} が正方行列でなければ、逆行列は定義できない。そこで、ペンローズは長方形行列でも定義できる一般逆行列という考え方を導入した。一般逆行列 \mathbf{A}^\dagger とは、以下の 4 つの式を満足するような行列である [95]。

$$\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A} = \mathbf{A} \quad (6.7)$$

$$\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger = \mathbf{A}^\dagger \quad (6.8)$$

$$(\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger)^* = \mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger \quad (6.9)$$

$$(\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A})^* = \mathbf{A}^\dagger\mathbf{A} \quad (6.10)$$

\mathbf{A} が正則の場合、 \mathbf{A}^\dagger は \mathbf{A}^{-1} と一致する。また、これらを満たす一般逆行列 \mathbf{A}^\dagger は一意に決めることができる。

では、この一般逆行列がどのような意味をもつのかについて述べる。基本的に、一般逆行列は、不定である連立方程式を解く方法であると考え。まず、 \mathbf{A} が縦長の長方形行列の場合、すなわち、解の個数に対して方程式の数が多すぎる場合、この一般逆行列は、

$$\min_{\mathbf{x}} \|\mathbf{y} - \mathbf{A}\mathbf{x}\|_2^2 \quad (6.11)$$

を満たす解 \mathbf{x} を求めることに一致する。(6.11) 式は最小二乗法を意味している。

次に、 \mathbf{A} が横長の長方形行列の場合、すなわち、解の個数に対して方程式の数が少なすぎる場合、この一般逆行列は、「 l_2 ノルム」の最小化に対応する。 l_2 ノルム $\|\mathbf{x}\|_2$ とは、いわゆる「ノルム」であり、2 乗和の平方根を与えるものである。

$$\|\mathbf{x}\|_2 = \sqrt{\sum (x_i)^2} \quad (6.12)$$

すなわち、 $\mathbf{y} = \mathbf{A}\mathbf{x}$ を満たす解のうち、最も l_2 ノルムの小さな解を一般逆行列によって求めている。このことを最適化問題として式で表現すると以下ようになる。

$$\min_{\mathbf{x}} \|\mathbf{x}\|_2 \quad \text{subject to} \quad \mathbf{y} - \mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{0} \quad (6.13)$$

では、 l_2 ノルムの最小化によってどのような解が得られるのかを考える。例えば、解 \mathbf{x} の次元が 3 で、観測 \mathbf{y} の次元が 2 とする。すなわち、以下のような連立方程式を考える。

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{13} \\ A_{21} & A_{22} & A_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \end{pmatrix} \quad (6.14)$$

この場合、解の次元の方が大きいため、解は不定である。ただし、2 回の観測があるため、解 \mathbf{x} は「ある程度」の制約を受けているはずである。図 6.5 に、この連立方程式の模式図を示す。解 \mathbf{x} は 3 次元のため、この 3 次元空間のどこかにある $\mathbf{x} = (x_1, x_2, x_3)$ という座標の「点」を見つけることが、連立方程式を解くことと同義である。観測が一つもなければ解は 3 次元空間内のどこにあるかわからない。観測 y_1 があれば、 $y_1 = A_{11}x_1 + A_{12}x_2 + A_{13}x_3$ を満たす「平面」内に解がある。今回、観測は 2 回行われているので、解は二つの平面が交わる

「直線」内にある。その直線を図 6.5 の点線で示す。この直線内から解を探すわけであるが、一般逆行列を用いた解法では、 l_2 ノルムが最小になる解を探す。ここで、 l_2 ノルム $\|\mathbf{x}\|_2 = \sqrt{(x_1)^2 + (x_2)^2 + (x_3)^2}$ であるため、 l_2 ノルムは原点からの「距離」に対応する。 l_2 ノルムが最小になる解を探すということは、直線上の点のうち原点からの距離が最も小さい点を探すことに相当する。言い換えれば、直線と接する最も小さな球を探すことに相当する。

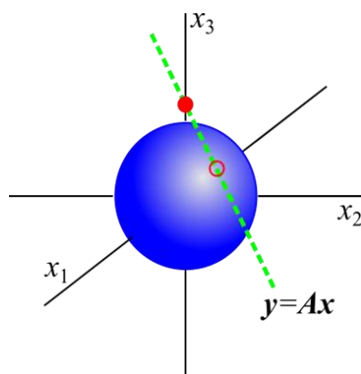


図 6.5. l_2 ノルム最小化の模式図

一般逆行列を用いて導いた解は、スパースであるという制約を与えていない。この方法はノイズの無い測定には有効であるが、ノイズのある測定には有効ではない。これについて簡単に説明する。本当の信号はデルタ関数的に一点で信号があり、それ以外は0だとする（図 6.6 (a)）。測定にノイズが含まれていれば、本来は0である部分にもノイズとして信号が含まれてしまう（図 6.6 (b)）。スパースであるという制約を含まなければ、図 6.6 (b) のような信号が復元されてしまう。スパースであるという仮定を用いれば、ノイズの部分を0であると考えて復元できるので、より原信号に近い信号の復元が期待できる。

当然、STS 測定にはノイズが含まれているので、 l_2 ノルム最小化よりも良い復元手法が求められる。

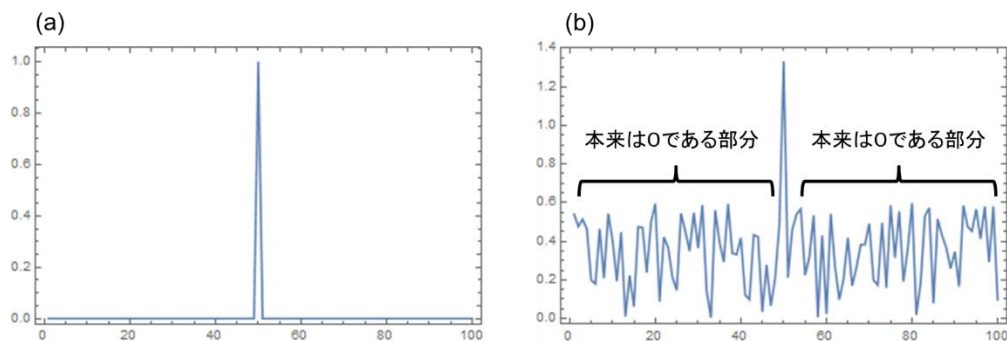


図 6.6. (a) スパースな現信号 (b) ノイズを含んだ測定

6.5.2. l_0 ノルム最小化

では、スパースな解をどのようにして得るかを考える。最も単純に考えた場合、「 l_0 ノルム」を最小化させると、最もスパースな解が得られる。ここで、 l_0 ノルム $\|\mathbf{x}\|_0$ とは、ベクトル \mathbf{x} に含まれる 0 でない要素の数である。式で表すと、

$$\|\mathbf{x}\|_0 = \sum \delta(x_i) \quad (6.15)$$

となる。ここで、 $\delta(a)$ は、 $a = 0$ のとき $\delta(a) = 0$ となり、 $a \neq 0$ のとき $\delta(a) = 1$ となる。もし、 $0^0 = 0$ と定義すれば、 l_0 ノルムは各項の 0 乗和と考えることもできる。 l_0 ノルムの最小化は以下の最適化問題を解くことに対応する。

$$\min_{\mathbf{x}} \|\mathbf{x}\|_0 \quad \text{subject to} \quad \mathbf{y} - \mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{0} \quad (6.16)$$

次に、なぜ l_0 ノルムを最小化させるとスパースな解が得られるかを考える。6.5.1 項と同様、 $\mathbf{y} = \mathbf{A}\mathbf{x}$ を満たす直線上で解を探す。図 6.7 のように、 l_0 ノルムが最も小さくなる点というのは、軸との交点を探すことに対応する（もし交点がなければ、二つの軸が作る平面）。この方法はスパースな解を探すという観点では最も有効な方法である。しかしながら、一般に計算量が NP (Non-deterministic Polynomial time) 困難となるため、計算時間が長くなるといった欠点があるため現実的な方法ではない。

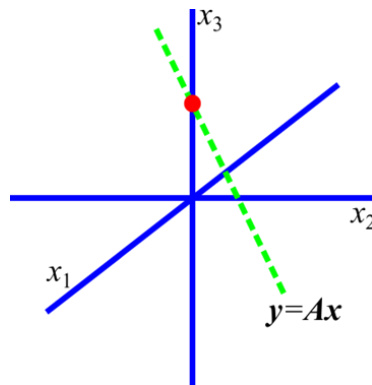


図 6.7. l_0 ノルム最小化の模式図

6.5.3. l_1 ノルム最小化

ある程度のスパースな解が得られかつ計算量が少なく済む方法として、「 l_1 ノルム」最小化という方法がある。 l_1 ノルム $\|\mathbf{x}\|_1$ とは、各項の絶対値和であり、

$$\|\mathbf{x}\|_1 = \sum |x_i| \quad (6.17)$$

と表される。0 乗和の l_0 ノルムと 2 乗和の l_2 ノルムに対して、 l_1 ノルムは 1 乗和である。 l_1 ノルム最小化は以下の最適化問題を解くことである。

$$\min_{\mathbf{x}} \|\mathbf{x}\|_1 \quad \text{subject to} \quad \mathbf{y} - \mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{0} \quad (6.18)$$

では、 l_1 ノルム最小化によってなぜスパースな解が得られるかを考える。6.5.1 項と同様に

考えた図を図 6.8 に示す。この方法は、原点を中心とした正八面体が直線と接するときの最も小さな正八面体を選択する方法である。球とは異なり、正八面体は「尖っている」ので、軸上にある正八面体の頂点が選ばれる。したがって、 l_1 ノルム最小化では、スパースな解が選択できる。さらに、 l_1 ノルム最小化は計算量が少なく済むことから、スパースな解を効率よく探す最適な手法である。

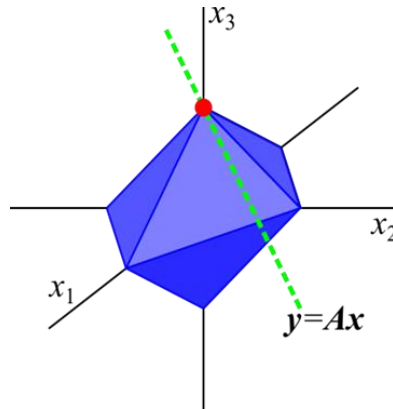


図 6.8. l_1 ノルム最小化の模式図

6.5.4. LASSO

l_1 ノルム最小化が、効率よく最適なスパース解を導けることがわかったが、次に具体的にどのようにして l_1 ノルム最小解を見つけるかを説明する。

得られる信号は、理想的には 0 であっても測定ノイズなどにより 0 でない値が得られてしまう。そういった信号によってスパースでない推定結果が得られてしまう可能性もある。そこで、ある程度の残差 ε を許して、

$$\min_x \|x\|_1 \quad \text{subject to} \quad \|y - Ax\|_2^2 < \varepsilon \quad (6.19)$$

という方法が Tibshirani らによって提案された。この方法を用いると、スパース性をより積極的に活用できる。このような方法は、Least Absolute Shrinkage and Selection Operator (LASSO) と呼ばれている [96]。最小化しているのは l_1 ノルムのため、スパースな解を見つけやすくなっている。

また、この解を見つけることは、以下の最小化問題を解くことと同等である。

$$\min_x \{\|y - Ax\|_2^2 + \lambda \|x\|_1\} \quad (6.20)$$

第一項が解の正確性、第二項がスパース性を表しており、 λ は両者の比重を決めるパラメータである。以上のことをまとめると表 6.1 のようになり、最適解の探索には、 l_1 ノルム最小化 (LASSO) が最適である。

表 6.1. 最適化手法の比較

	軸 (理想法)	正八面体 (LASSO)	球
最小化ノルム	l_0 ノルム	l_1 ノルム	l_2 ノルム
成否	○	○	×
計算量	×	○	○

6.5.5. クロスバリデーション

本項では、(6.20) 式にある、パラメータ λ をどのように決定するかについて説明する。 λ は解の正確性とスパース性のうち、どちらに重きを置くかを定めるパラメータである。 λ が無限大になれば、スパース性のみが現れて、得られる解は $\mathbf{x} = \mathbf{0}$ である（解が完全にスパース）。逆に、 λ が 0 のとき、第二項が消えるため、スパース性は考慮されない（ただし、この場合は解を求めることはできない）。すなわち、 λ は、 \mathbf{x} がどれだけスパースであるかによって決まるパラメータであるとも言える。

\mathbf{x} がどれだけスパースであるかを調べる方法として、本研究では「クロスバリデーション」と呼ばれる手法を用いた。まず、元データ \mathbf{y} を \mathbf{y}_{test} と \mathbf{y}_{train} に分解する。ここでは、それぞれのデータ数の比は、 $\mathbf{y}_{test}:\mathbf{y}_{train} = 1:15$ とした。それに合わせて行列 \mathbf{A} も、 \mathbf{A}_{test} と \mathbf{A}_{train} に、 $\mathbf{A}_{test}:\mathbf{A}_{train} = 1:15$ となるように分解する。なお、データはランダムに分解している。

まず、 λ をある値に設定し、 \mathbf{y}_{train} と \mathbf{A}_{train} を用いて、(6.20)式の最小化を行う。その最小化によって得られた解を \mathbf{x}_{train} とする。次に、 \mathbf{x}_{train} と \mathbf{A}_{test} を用いて \mathbf{y} を復元する。 \mathbf{x}_{train} が正確に復元されていれば、 $\mathbf{A}_{test}\mathbf{x}_{train}$ と \mathbf{y}_{test} は一致するはずである。

ここで、ある λ に対するクロスバリデーションエラー値 CVE を導入する。

$$CVE(\lambda) = \|\mathbf{y}_{test} - \mathbf{A}_{test}\mathbf{x}_{train}\|_2^2 \quad (6.21)$$

正確に復元できた場合、 CVE は最小になるはずである。そこで、 λ を掃引したときに最も CVE が低くなるときの λ の値を最適値とする。このようにして λ を決定する手法をクロスバリデーションと呼ぶ。この手法は、観測データから λ を推定できるため、人為的な操作は行っていない。また、(6.20) 式から解の正確性は担保されている。

7. 圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化

本章では、6章で説明した LASSO と呼ばれる圧縮センシングに基づく解析手法を実際に QPI 計測に適用した結果について述べる。

7.1. 1 エネルギー面での圧縮センシング

最終目標は表面電子状態のエネルギー分散関係を描くことであるが、本節ではまずその第一段階として、1つのエネルギーでの準粒子干渉パターンに対して LASSO を適用し、波数空間での電子状態分布を効率良く得ることができたので、その結果について述べる。本章の結果は、文献 [97] にて報告済みである。

7.1.1. 用いたデータ

本項では解析に用いた測定データについて説明する。解析には、最も単純な準粒子干渉パターンを示すことが知られる貴金属表面の電子定在波を用いた。具体的には、Ag(111)表面上で観測される電子定在波を観測した結果を用いて解析を行った。Ag(111)表面には、表面ショックレー状態と呼ばれる表面に束縛された 2 次元的な電子状態が形成される。表面に束縛された電子は等方的かつ自由電子的なエネルギー分散関係を持ち、定在波パターンをフーリエ変換すると、円形の QPI パターンが観測され、その円の半径をエネルギーに対してプロットすると、放物線が描かれる。

図 7.1 に用いたデータとそのフーリエ変換像を示す。図 7.1 (a) は実空間像である。実空間像上に、いくつかの不純物が吸着していることがわかる。そして、それらの吸着物のまわりで表面電子による定在波が観測されている。図 7.1 (b) は実空間像をフーリエ解析した結果である。

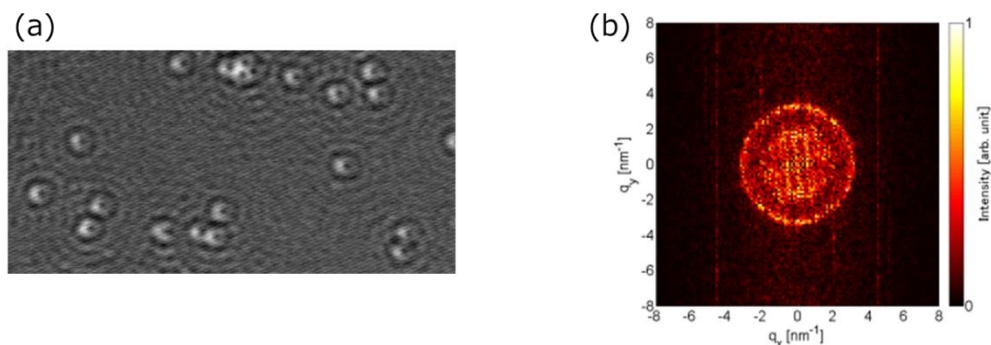


図 7.1. Ag(111)表面上の電子定在波 (a) 実空間 dI/dV 像 (b) FFT 像
($V_s = 200$ mV, 70 nm \times 35 nm, 360×180 ピクセル)

7.1.2. 解析方法

本項では行った解析方法について述べる。目的は、粗い測定であっても、密に取得した測定と同等の結果が得られることを示すことである。そこで、解析には、図 7.2 に示すように、密に取得したデータと、そこから意図的にデータを除いて仮想的に測定点を粗くしたデータを用いた。密に測定したデータによる解析と、粗くしたデータによる解析を比較し、どの程度粗く測定しても密に測定したデータによる解析で見られる円形パターンが復元できるかを検討した。

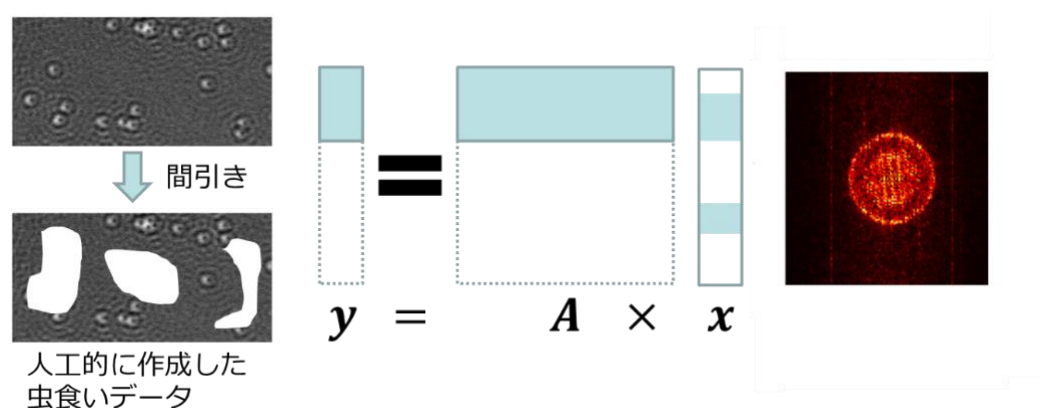


図 7.2. 実空間と波数空間の関係

7.1.3. 周期的ダウンサンプリング

人工的に虫食いデータを作成する方法として、まずは、図 7.3 のように、周期的にデータをサンプリングする方法を試みた。その結果を図 7.4 に示す。ここでは、 360×180 の計 64800 点で測定されたデータと、それから 3 点おきにサンプリングした 7200 (120×60) 点のデータを用いて解析している。図 7.4 (a)(b)は、それぞれ、64800 点、7200 点で取得したデータを用いて行ったフーリエ変換パターンである。7200 点まで減らすと、円形パターンの外側に、もう一つ同じような円形パターンが現れ始める。次に、図 7.5 (a)(b)は、それぞれ、64800 点、7200 点で取得したデータをに対して LASSO を適用したパターンである。バックグラウンドのノイズは LASSO を適用することで軽減されていることがわかる。ただし、フーリエ変換パターンと LASSO を適用したパターンのどちらにおいても、7200 点まで減らすと、円形パターンの外側にその鏡像のような構造が見られる。これは、7.1.4 項で述べる、エイリアシングと呼ばれるアーティファクトである。

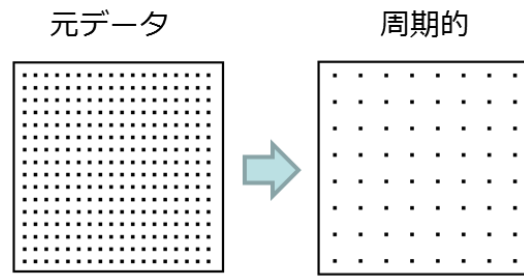


図 7.3. ダウンサンプリング方法の模式図

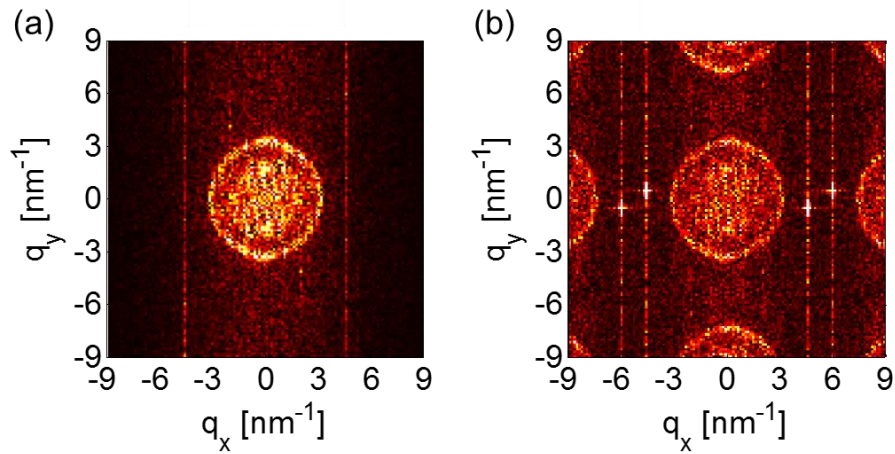


図 7.4. 周期的にダウンサンプリングしたデータのフーリエ変換パターン
(a) 64800 pts (b) 7200 pts

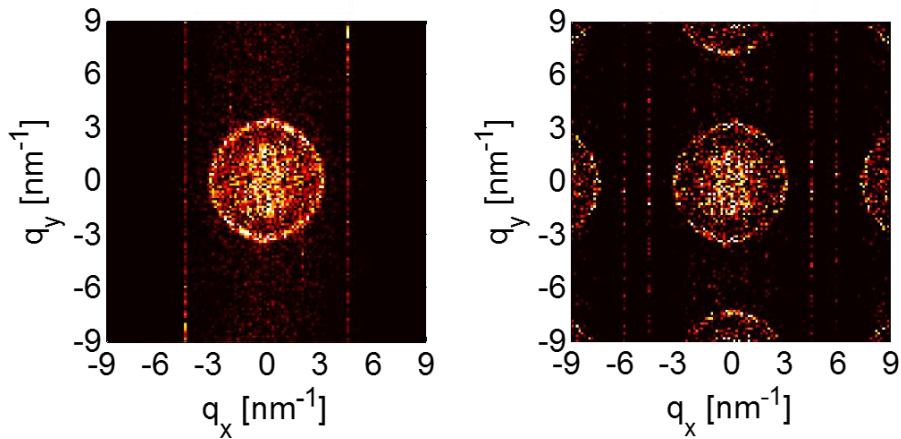


図 7.5. 周期的にダウンサンプリングしたデータの LASSO パターン
(a) 64800 pts (b) 7200 pts

7.1.4. エイリアシングとランダムサンプリング

周期的にサンプリング数を落としたとき、エイリアシングと呼ばれるアーティファクト

が現れる。ここでは、エイリアシングについて簡単に説明する。図 7.6 にエイリアシングの模式図を示す。図 7.6 の黒線は本来の信号であり、赤点が観測点である。観測点の間隔は全て等しく、すなわち、観測は周期的に行われているとする。この場合、フーリエ変換を行って周波数成分に分解したときに、図 7.6 の紫線で示すように、サンプリングの周期性に由来するエイリアシングと呼ばれるアーティファクトが現れる。このエイリアシングの原因は、実際の信号の周波数とサンプリングの周波数が区別できないためである。サンプリングの周期が十分に短いときは、実際の信号の周波数よりも十分高くなるため、エイリアシングの周波数は問題にならない。しかし、サンプリング数が少なくなると、エイリアシングの周波数も小さくなり、実際の信号の周波数と近くなってしまうので、問題になる。

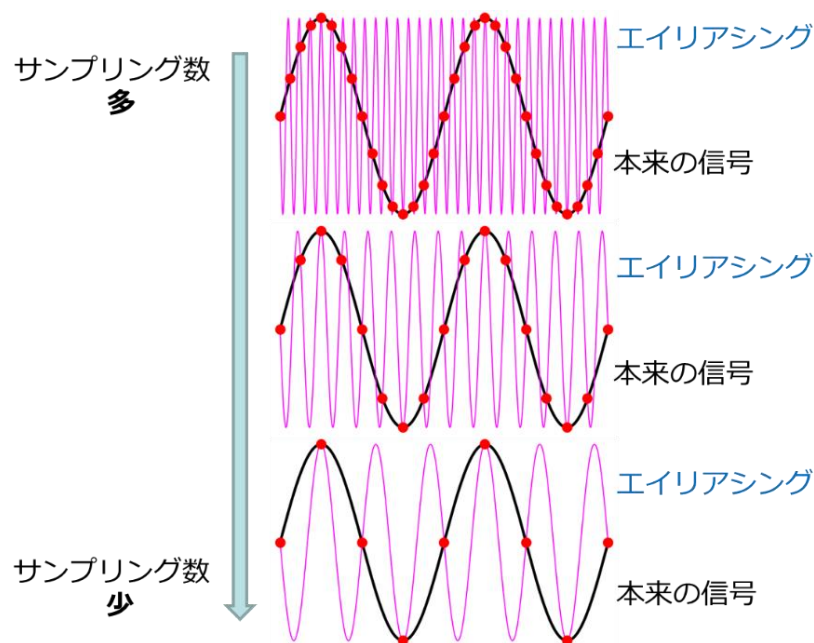
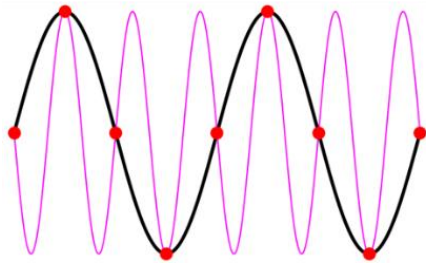


図 7.6. エイリアシングの模式図

では、このエイリアシングを防ぐにはどのようにすれば良いのだろうか。当然、サンプリング数を増やせば良いのであるが、それでは本研究の目的は達成できない。そこで、ランダムサンプリングを導入する。エイリアシングはサンプリングの周期性に由来するため、サンプリングの周期性を無くせば、エイリアシングが問題にならなくなる。図 7.7 に、周期的サンプリングとランダムサンプリングの模式図を示す。これらは観測点数は同じであるが、ランダムサンプリングにおいては、サンプリングに周期性がないため、エイリアシングが高周波になる（完全に周期性がないということはあるが、十分高周波になるので問題にはならない）。

周期的サンプリング



ランダムサンプリング

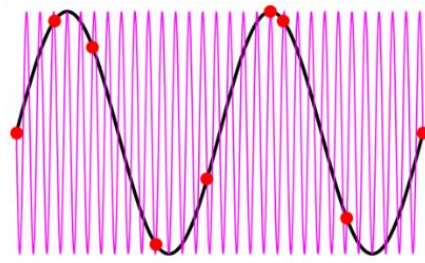


図 7.7. 周期的サンプリングとランダムサンプリング

エイリアシングの影響を受けることなく、欲しい波数空間の情報を完全に再現するために必要なサンプリング間隔は、ナイキストのサンプリング定理によって求められる。ナイキストのサンプリング定理によると、ある周波数の波を再現するためには、1 周期に 2 回以上サンプリングしないと行けない。すなわち、ピクセル間隔を粗くすると、波数空間の領域が狭くなる。ただし、細かいピクセル間隔を保つために走査領域を狭くすることは、波数空間分解能を低下させることにつながる。したがって、細かいピクセル間隔を確保しつつ広い空間領域を保つため、ランダムサンプリングは有効であると推測できる。

7.1.5. ランダムダウンサンプリング

図 7.8 に元データからランダムにダウンサンプリングしたデータを用いて行った解析を示す。図 7.8 (a)は 64800 点からなるデータをフーリエ変換したもので、図 7.4 (a)と同一である。64800 点からなるデータから、ランダムに選んだ 16200 点を用いてフーリエ変換を行った結果が図 7.8 (b)である。バックグラウンドのノイズが図 7.8 (a)に比べて増加し、円形の QPI パターンを見出しにくくなっている。しかしながら、ランダムダウンサンプリングを適用することで、先に示したエイリアシングは見られない。

図 7.9 はランダムダウンサンプリングしたデータに対して LASSO 解析を行った結果である。図 7.9 (a)は 64800 点の元データに対して LASSO 解析を行ったパターンである（図 7.5 (a)と同一）。図 7.9 (b)は 7200 点のデータに対する LASSO 解析を行った結果であり、バックグラウンドノイズが軽減され、円形パターンはしっかりと再現できていることがわかる。以上の結果から、従来の 1/9 の量のデータからでも LASSO とランダムダウンサンプリングを組み合わせることにより、準粒子干渉パターンが復元できることが判明した。圧縮センシングにより、QPI 計測が大幅に高速・高精度化される可能性を示すことができた。

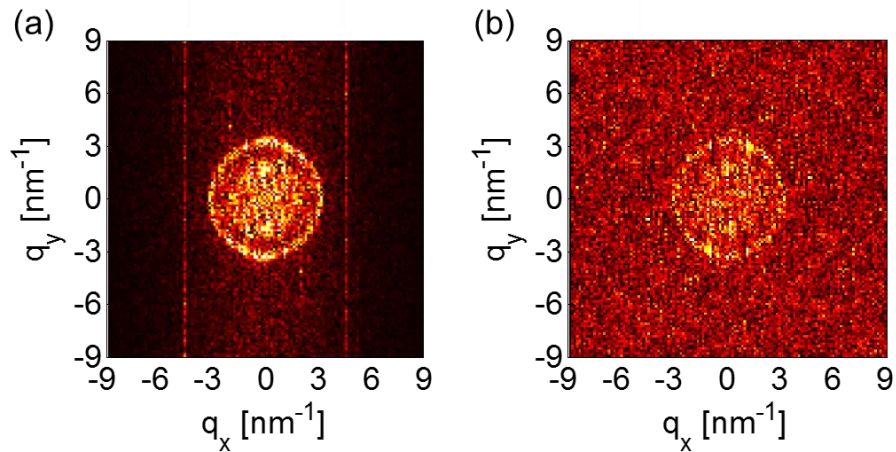


図 7.8. ランダムにダウンサンプリングしたデータのフーリエ変換パターン
(a) 64800 pts (b) 7200 pts

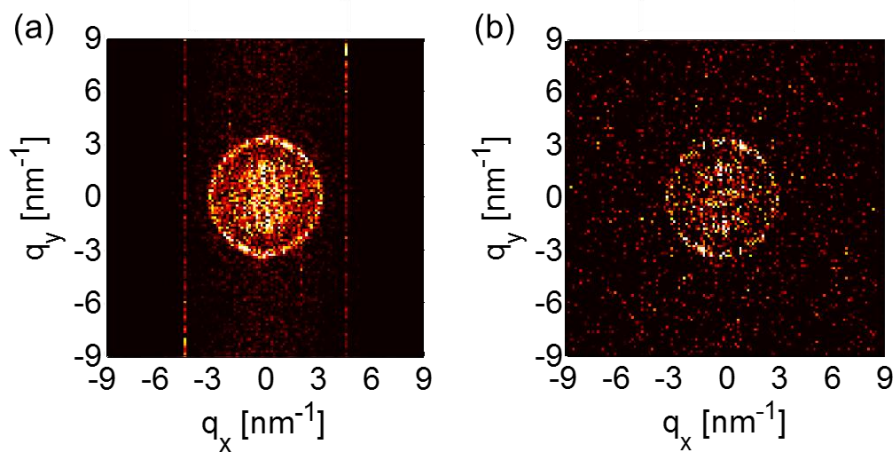


図 7.9. ランダムにダウンサンプリングしたデータの LASSO パターン
(a) 64800 pts (b) 7200 pts

7.2. 複数エネルギー面の解析

準粒子干渉 (QPI) パターンのエネルギー依存性についても圧縮センシングによる解析方法が適用可能かを調べた結果を本節で示す。dI/dV スペクトルを Ag(111) 上の $69.5 \text{ nm} \times 68.4 \text{ nm}$ の領域内の 128×126 点で周期的に取得し、各バイアス電圧で取得される QPI パターンそれぞれに対して LASSO 解析を行い、それらを重ねた図を図 7.10 に示す。通常のフーリエ解析を用いても予測される放物線状のエネルギーの分散関係は観察できているが、LASSO 解析を用いても同様の分散関係をは再現できている。次に、どの程度 LASSO 解析によって精度が向上しているかを考えるために、サンプル電圧 $V_s = 31.2 \text{ mV}$ における断面図を図 7.11 に示す。従来のフーリエ解析法に比べて、LASSO 解析を行った方が、バックグ

ラウンドノイズが軽減されており、本来ゼロであるべき値に対して、正しくゼロ値を与えていると言える。ここから、LASSO 解析は、複数エネルギー面の解析に対しても有効であることがわかる。

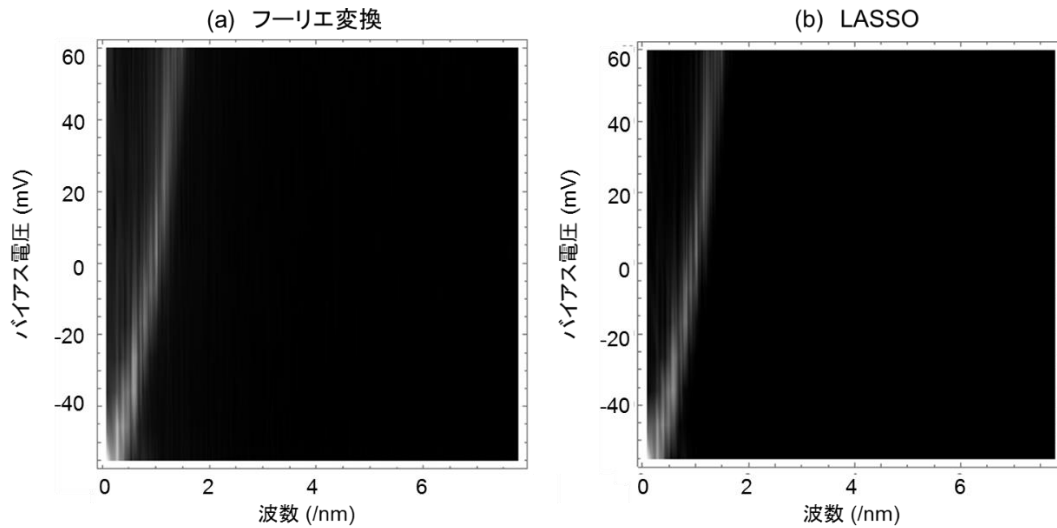


図 7.10. Ag(111)上で取得した QPI パターンのバイアス電圧依存性
(a) 従来法であるフーリエ変換による結果 (b) LASSO 解析による結果

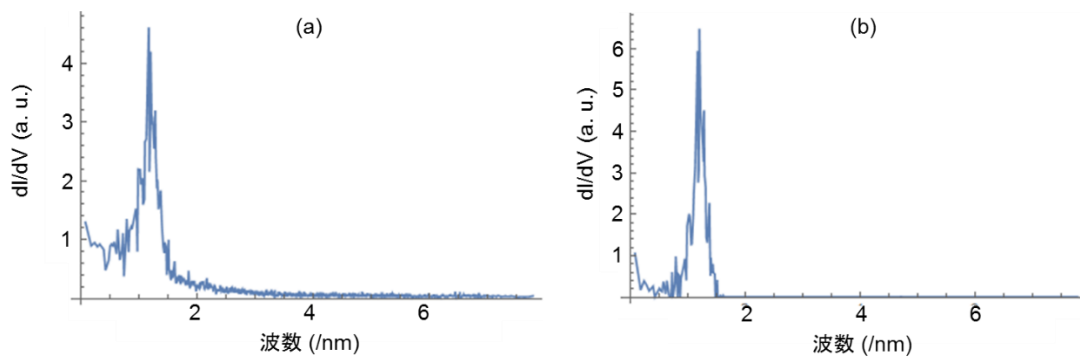


図 7.11. 図 7.10 の $V_s = 31.2$ mV における断面図
(a) 従来法であるフーリエ変換による結果 (b) LASSO 解析による結果

7.3. クロスバリデーション

全ての LASSO 解析を行うに当たって、6.5.5 章で説明したクロスバリデーションを用いて λ を決定している。7.2 章における解析のうち $V_s = -36$ mV での QPI パターンの LASSO 解析の際に行ったクロスバリデーションの結果を図 7.12 に示す。横軸が λ 、縦軸が CVE (クロスバリデーションエラー) 値である。 λ が小さい部分では、解が決まらないため、CVE 値

が大きくなる。一方、 λ が大きい部分では、解が完全にゼロになるので、CVE 値は 1 に近づく。 $\lambda = 2$ で CVE 値が最小になっていることから、この λ を最適値とし、LASSO 解析を行った。

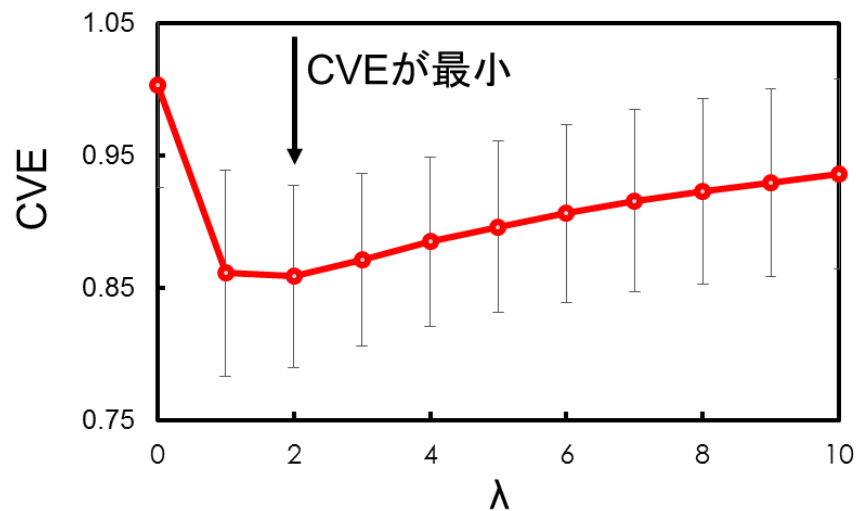


図 7.12. クロスバリデーション

7.4. ランダムサンプリングの実測定

7.1 節で、ランダムサンプリングと LASSO を組み合わせることで、QPI 計測の高速化ができることを示した。しかし、通常 STS においては、ランダムに測定されることはない。そこで、ここでは、実際にランダムな測定点での dI/dV スペクトル測定を行ったので、その結果を本節で述べる。

7.4.1. 測定試料

マイカ上に形成された Au の厚膜を用いて行った。マイカ上の Au 厚膜は、Au(111)面が形成されることが知られており、Au(111)面では、Ag(111)面と同様、表面ショックレー状態が形成される。そのため、STS で定在波を観測することができ、波数空間の QPI パターンは Ag(111)の場合と同様円形になる。なお、Au(111)の表面準位の結合エネルギーは -485 mV である。

7.4.2. 測定結果

通常のフーリエ変換を行って解析した結果を図 7.13 に示す。なお、解析方法の詳細は A.3 節に記載している。図 7.13 (a)は、150 nm × 150 nm の範囲を 512 × 512 のメッシュに区切り、262144 点のうちから 16000 点をランダムに選択し、 dI/dV スペクトルを測定している。図

7.13 (b)は、 $50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$ の範囲を 128×128 のメッシュに区切ったデータであり、全ての点で dI/dV スペクトルを取得している。したがって、測定点数はほとんど同じであるが、図 7.13 (a)の方がメッシュ間隔は細かく、走査範囲が広い。したがって、広い波数領域と高い波数空間分解能が期待できる。図 7.13 (a)(b)はいずれも、予測される放物線状の分散関係が見られる。以下で、これらの比較を行う。

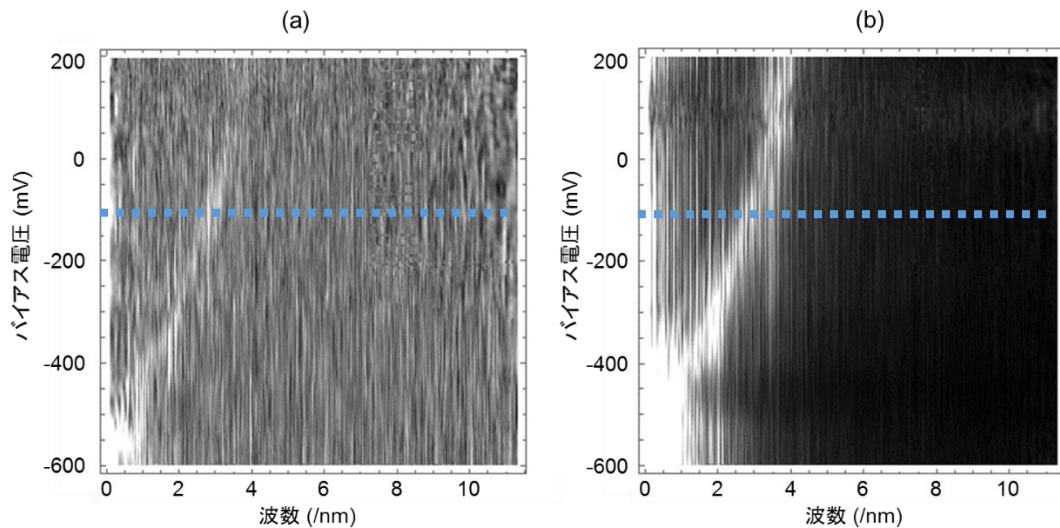


図 7.13. (a) $150\text{ nm} \times 150\text{ nm}$ を 512×512 に区切った点から 16000 点をランダムに選び、 dI/dV スペクトルを測定 (b) $50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$ を 128×128 に区切った全ての点において dI/dV スペクトルを測定

まず、 -101.5 mV で取得した QPI パターンを図 7.14 に示す。図 7.14 (a)はランダムな測定、図 7.14 (b)は周期的な測定である。どちらも円形パターンは見出されている。

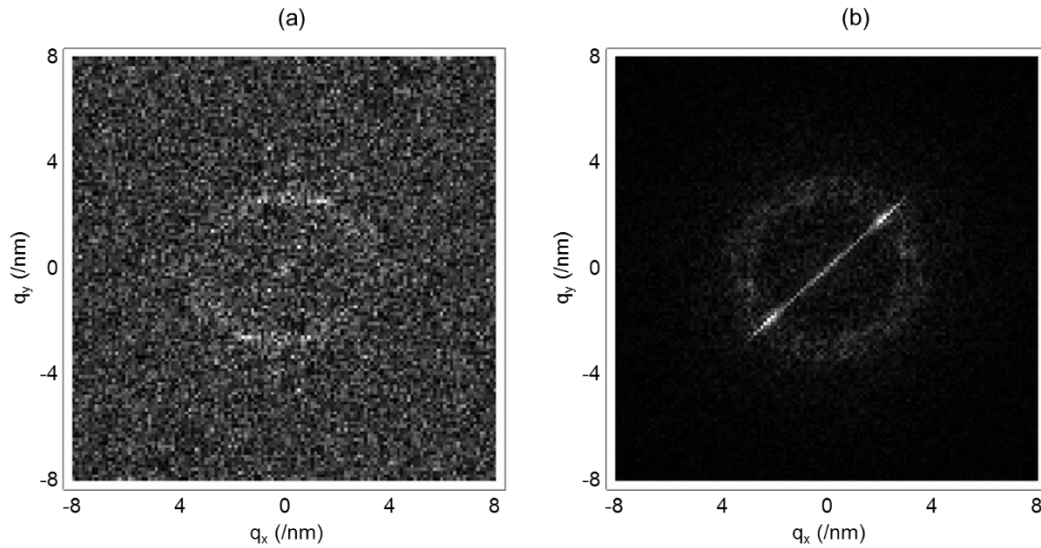


図 7.14. $V_s = -101.5$ mV で取得した QPI パターン

(a) ランダムサンプリング (図 7.13 (a)) (b) 周期的サンプリング (図 7.13 (b))

次に、図 7.14 のデータ点を、原点からの距離を横軸、QPI パターンの強度を縦軸としてプロットしたものを図 7.15 に示す。バックグラウンドのノイズは、図 7.15(b)の方が低いものの、円形パターンのピークの広がりが大きい。一方、図 7.15(a)は、バックグラウンドノイズは大きいがピークが非常に鋭い。そのため、細かい構造を見出すためには、ランダムサンプリングは有効な手法と言える。

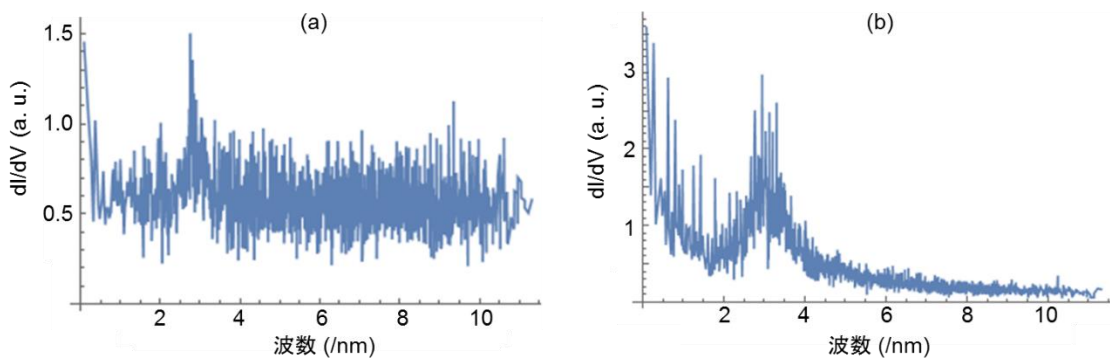


図 7.15. (a) 図 7.14 (a) のヒストグラム (b) 図 7.14 (b) のヒストグラム

7.5. 本章のまとめ

本章では、圧縮センシングを用いた数値解析によって、QPI 計測の高速高精度化の検討を行った。Ag(111)表面における電子定在波の 1 エネルギー面における STS 像の数値的な解析から、ランダム測定と圧縮センシングを適用することにより、測定点数を 1/9 まで減少させ

ても、元データで見られる QPI パターンを再現できることを示した。複数エネルギー面の QPI パターンに対して同様の解析を行うことで、圧縮センシングは、エネルギー分散関係の解析に対しても有効であることを示した。ランダムに測定点を選び、 dI/dV スペクトルを測定する STS 計測を実際に行い、ランダム測定と圧縮センシングの組み合わせによってより従来と同様の測定時間でも波数分解能を向上できる可能性を示した。

8. 総括

本論文では、第 2 章で Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用について基礎的な事柄と最近の動向について述べた。第 3 章で STM とスピン偏極 STM の基礎的な知識について述べた。第 4 章で「スピン偏極 STM を用いてカイラル磁性薄膜の実空間観察」についての結果を述べた。第 5 章で「スピン偏極探針の評価」について述べた。第 6 章で圧縮センシングと準粒子感想について基礎的な事柄を述べた。第 7 章で「圧縮センシングを用いた準粒子干渉計測の高速高精度化」について述べた。本章では、研究結果について述べた第 4 章、第 5 章、第 7 章に関しての総括を行う。

第 4 章では、カイラル磁性薄膜である W(110) 上の Mn 薄膜の作製を行い、スピン偏極 STM を用いて、そのスピン構造を原子スケールでの実空間観察を行った。W(110) 上の一層及び二層 Mn 薄膜の観察を行い、二層 Mn 薄膜のスピン偏極した電子状態を明らかにした。W(110) 上の一層 Mn 薄膜は、左巻きのサイクロイド型らせん磁性であることを実験的に明らかにした。W(110) 上の二層 Mn 薄膜は、カイラルな右巻きらせん磁性であることを実験的に明らかにした。W(110) 上に形成された他の磁性薄膜との比較から、W(110) 上の磁性薄膜における D ベクトルの向きは共通していることを示し、基板がその決定に重要な役割を担うことが示唆できた。

第 5 章では、種々のスピン偏極探針の評価を行った。Cr、Fe、Ni のバルク探針と W 上の Fe 薄膜探針の 4 種の探針の評価を行い、全ての探針でスピン偏極 STM 測定が可能であることを確認することができた。バルク Cr 探針は、手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化が影響して欲しくないときに適していることを示した。バルク Fe 探針は、手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化を変化させたいとき（面直のみ）に用いるのが良いことを示した。ただし、バルク Fe 探針を用いるときは、探針の漏れ磁場による試料への影響を考慮する必要がある。バルク Ni 探針は、手軽に作製でき、外部磁場によって探針の磁化を変化させたいとき（面直のみ）に用いるのが良いことを示した。探針の漏れ磁場による試料への影響は少なからずあるが、バルク Fe 探針に比べると小さいことが利点であるが、スピン偏極信号はバルク Fe 探針の方が得やすいことがわかった。Fe/W 探針は、作製は面倒だが、面内方向を含めて外部磁場により探針の磁化の向きを精密に制御したいときに用いるのが良いことを示した。また、磁化を飽和させるためには、0.6 T を印加すれば十分であることがわかった。

第 7 章では、圧縮センシングを用いた数値解析によって、QPI 計測の高速高精度化の検討を行った。Ag(111) 表面における電子定在波の 1 エネルギー面における STS 像の数値的な解析から、ランダム測定と圧縮センシングを適用すれば、測定点数を 1/9 まで減少させても、元データで見られる QPI パターンを再現できることを示した。複数エネルギー面の QPI パターンに対して同様の解析を行うことで、圧縮センシングは、エネルギー依存性の解析に対しても有効であることを示した。ランダムに測定点を選ぶ STS 測定を実測定にも適用し、

ランダム測定と圧縮センシングの組み合わせによって、従来より短い測定時間で十分な波数分解能での測定が可能であることを示した。

A. Appendix

A.1. カイ二乗検定

ある確率変数 X が、標準正規分布 $N(0, 1^2)$ に従うとしたときの、 X^2 の分布を考える。この分布は、自由度 1 の χ^2 分布と呼ばれる。 k 個の独立な事象 X_i ($i = 1, 2, \dots, k$) に対しても、それぞれが正規分布に従うのであれば、 $\sum_{i=1}^k X_i^2$ も自由度 k の χ^2 分布となる [98]。

次に、実験結果と基準値の度数（期待値）との差異を見る変数として χ^2 変数を導入する。 χ^2 変数は、表 A.1 のような度数分布が得られたとき、

$$\chi^2 = \frac{(O_1 - E_1)^2}{E_1} + \frac{(O_2 - E_2)^2}{E_2} + \dots + \frac{(O_n - E_n)^2}{E_n}$$

と与えられる。 O は実験ごとに変わる変数であり、分母の E は標準化のためである。もし帰無仮説から導かれる基準値が正しい場合、試行 n が無限大に大きくなれば、 χ^2 変数は χ^2 分布に一致する。言い換えれば、 χ^2 変数の χ^2 分布からのずれによって、帰無仮説が正しいかどうかの検定が可能になる。

表 A.1. 度数分布

	項目 1	項目 2	...	項目 n
観測の度数	O_1	O_2	...	O_n
基準値の度数	E_1	E_2	...	E_n

上記のカイ二乗検定を 4.7 節で示した二層 Mn 薄膜カイラリティの測定結果に対して考えてみる。ここで考える帰無仮説は、「右巻きと左巻きが同確率で現れる」である。今回は 7 回の実験中 7 回右巻きが観測されている。そのため、 $O_1=7, O_2=0$ である。帰無仮説が正しい場合、右巻きと左巻きは同確率なので、 $E_1=E_2=3.5$ である（表 A.2）。したがって、

$$\begin{aligned} \chi^2 &= \frac{(O_1 - E_1)^2}{E_1} + \frac{(O_2 - E_2)^2}{E_2} \\ &= \frac{(7 - 3.5)^2}{3.5} + \frac{(0 - 3.5)^2}{3.5} \\ &= 7 \end{aligned}$$

となる。右巻きと左巻きは両方が同時に起こることはなく、どちらか一方に決まるので、自由度は 1 である。表 A.3 に自由度 1 の χ^2 分布表を示す。この表から χ^2 変数値が 7 の場合、1.0 % と 0.5 % の間に上側有意水準があることがわかり、より詳細に調べると、上側有意確率は 0.8 % である（図 A.1）。以上から「右巻きと左巻きが同確率で現れる」という帰無仮説は、0.8 % の有意水準で棄却することができる。

表 A.2. 二層 Mn 薄膜の観測における度数分布

	右巻き	左巻き
観測の度数	$O_1 = 7$	$O_2 = 0$
基準値の度数	$E_1 = 3.5$	$E_2 = 3.5$

表 A.3. 自由度 1 の χ^2 分布表

上側有意確率	0.995	0.975	0.050	0.025	0.010	0.005
χ^2 変数値	0.000039	0.000982	3.84146	5.02389	6.63490	7.87944

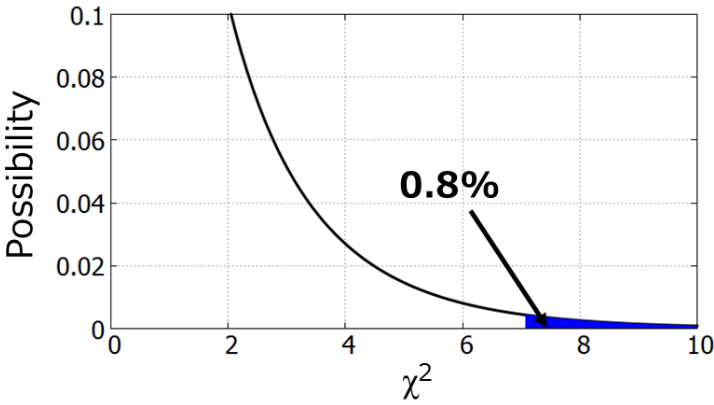


図 A.1. カイ二乗検定結果

A.2. フーリエ変換と逆フーリエ変換の関係

6.5.1 項で説明したように、フーリエ変換と逆フーリエ変換は一般逆行列の関係になっている。一般逆行列とは、行列 \mathbf{A} に対して以下の 4 つの条件を満たす行列 \mathbf{A}^\dagger である [95]。なお、 \mathbf{A}^* とは、 \mathbf{A} の随伴行列（複素共役かつ転置行列）である。

$$\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A} = \mathbf{A} \quad (\text{A.1})$$

$$\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger = \mathbf{A}^\dagger \quad (\text{A.2})$$

$$(\mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger)^* = \mathbf{A}\mathbf{A}^\dagger \quad (\text{A.3})$$

$$(\mathbf{A}^\dagger\mathbf{A})^* = \mathbf{A}^\dagger\mathbf{A} \quad (\text{A.4})$$

なお、 \mathbf{A} が正方行列の場合は、 \mathbf{A}^\dagger は \mathbf{A} の逆行列になる。すなわち、一般逆行列とは、正方行列のみに対して定義される逆行列を長方形行列に対しても一般化したものである。実空間の次元と波数空間の次元が等しいときは、フーリエ変換は正方行列になるので、逆フーリエ変換は通常の逆行列となる。

では、なぜフーリエ変換と逆フーリエ変換が一般逆行列の関係になっているかについて述べる。実空間データを $\mathbf{y} = (y_0, y_1, \dots, y_{N-1})$ とし、それに対応する座標を $\mathbf{r} = (r_0, r_1, \dots, r_{N-1})$ とする。また、波数空間データを $\mathbf{x} = (x_0, x_1, \dots, x_{M-1})$ 、波数を $\mathbf{q} = (q_0, q_1, \dots, q_{M-1})$ とする。簡単のため、 r 及び q は 1 次元とする。また、波数空間は 0 から Q まで等間隔に M 個のメッシュに区切っているとする。すなわち、 $q_m = (2\pi i) \times (mQ/M)$ とする。離散逆フーリエ変換行列を \mathbf{A} とする。（実空間→波数空間を「順」フーリエ変換であると定義している。）

ここで、ランダム測定を仮定しているので、 \mathbf{r} は周期的とは限らないとする。ただし、たとえ周期的でなかったとしても、 \mathbf{r} の長さが有限である限り、必ず

$$r_n = \Delta r \times j \quad (j \text{ は任意の整数}) \quad (\text{A.5})$$

を満たす Δr は存在するはずである。（例えば、 $\mathbf{r} = (0.2, 0.6, 1.2, 1.4)$ としたとき、周期的ではないが、 $\Delta r = 0.2$ とおけば、 $\mathbf{r} = (\Delta r \times 1, \Delta r \times 3, \Delta r \times 6, \Delta r \times 7)$ とかける。）

実空間データ \mathbf{y} と波数空間データ \mathbf{x} の関係は、

$$\mathbf{y} = \mathbf{A}\mathbf{x} \quad (\text{A.6})$$

$$\begin{pmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{N-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times 0} & e^{2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times 1} & \dots & e^{2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times (M-1)} \\ e^{2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times 0} & e^{2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times 1} & \dots & e^{2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times (M-1)} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ e^{2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times 0} & e^{2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times 1} & \dots & e^{2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times (M-1)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{M-1} \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

となる。ここで、 $\alpha = Q\Delta r$ であり、フーリエ変換行列の正規直交性を保つために導入している。 M と N が等しくなければ、 \mathbf{A} は長方形行列になる。次に、逆フーリエ変換の式を考える。フーリエ変換行列は、逆フーリエ変換行列 \mathbf{A} の随伴行列になるので、

$$\mathbf{x} = \mathbf{A}^* \mathbf{y} \quad (\text{A.8})$$

$$\begin{pmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{M-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{-2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times 0} & e^{-2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times 0} & \dots & e^{-2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times 0} \\ e^{-2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times 1} & e^{-2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times 1} & \dots & e^{-2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times 1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ e^{-2\pi i \frac{Qr_0}{\alpha M} \times (M-1)} & e^{-2\pi i \frac{Qr_1}{\alpha M} \times (M-1)} & \dots & e^{-2\pi i \frac{Qr_{N-1}}{\alpha M} \times (M-1)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{N-1} \end{pmatrix} \quad (\text{A.9})$$

となる。ここで考えるべきことは、 \mathbf{A}^* と \mathbf{A} とが一般逆行列の関係になっているかどうかである。まず、(A.3) 式について考える。

$$\mathbf{A}\mathbf{A}^*$$

$$= \begin{pmatrix} \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_0-r_0)}{\alpha M} \times m} & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_0-r_1)}{\alpha M} \times m} & \dots & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_0-r_{N-1})}{\alpha M} \times m} \\ \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_1-r_0)}{\alpha M} \times m} & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_1-r_1)}{\alpha M} \times m} & \dots & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_1-r_{N-1})}{\alpha M} \times m} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_{N-1}-r_0)}{\alpha M} \times m} & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_{N-1}-r_1)}{\alpha M} \times m} & \dots & \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_{N-1}-r_{N-1})}{\alpha M} \times m} \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

となるため、 $\mathbf{A}\mathbf{A}^*$ の随伴行列 $(\mathbf{A}\mathbf{A}^*)^*$ は $\mathbf{A}\mathbf{A}^*$ と一致する。そのため、(A.3) 式を満たす。次に、(A.10) 式の $\mu\nu$ 成分について考える。

$$(\mathbf{A}\mathbf{A}^*)_{\mu\nu} = \sum_{m=0}^{M-1} e^{2\pi i \frac{Q(r_\mu-r_\nu)}{\alpha M} \times m} \quad (\text{A.11})$$

$\mu\nu$ 成分は、 $\mu = \nu$ のとき、

$$(\mathbf{A}\mathbf{A}^*)_{\mu\mu} = M \quad (\text{A.12})$$

であり、 $\mu \neq \nu$ のとき、(A.5) 式と $\alpha = Q\Delta r$ から $Q(r_\mu - r_\nu)/\alpha$ は整数になるので、この和は、三角関数の単位円内を整数周分足し合わせることに相当するため、

$$(\mathbf{A}\mathbf{A}^*)_{\mu\nu} = 0 \quad (\text{A.13})$$

となる。したがって、(A.10) 式は、 $N \times N$ の単位行列の M 倍となる。以上から、 $\mathbf{A}\mathbf{A}^* \mathbf{A} = M \mathbf{A}$ となる。フーリエ変換行列を $(1/\sqrt{M})\mathbf{A}^*$ 、逆フーリエ変換行列を $(\sqrt{M})\mathbf{A}$ と選びなおせば、(A.1) 式を満たすことは明らかである。

この一般化逆行列は l_2 ノルム最小化から導かれる。したがって、従来のフーリエ変換による解析は、 l_2 ノルム最小化に対応している。

A.3. ランダムサンプリング測定結果のデータ処理について

通常の STS 測定では、ランダムにスペクトルを取得することは想定されていないので、データ解析は自作のプログラムを用いて行ったので、その方法をここに掲載しておく。モデルとして用いているデータは、わかりやすいように周期的に取得したデータを用いている。しかし、データ形式は問わないので、ランダムサンプリング測定されたデータにもそのまま適用可能である。多くは **Mathematica** を用いて処理を行っている。

生データ→xyz データ

生データは、各測定点のスペクトルとして得られる。例えば、ある座標 (x_m, y_n) における電圧値 V と dI/dV 値 f のデータ $((V_1, f_{mn,1}), (V_2, f_{mn,2}), \dots, (V_P, f_{mn,P}))$ が座標の数の分だけある。しかし、フーリエ変換を行うに当たっては、バイアス電圧 V 毎のデータに直す必要がある。そこでまずは、各バイアス電圧値 V_p の座標と dI/dV 値からなるデータ $((x_1, y_1, f_{1,p}), \dots, (x_M, y_1, f_{M1,p}), \dots, (x_M, y_N, f_{MN,p}))$ の作成を行った。

Flattening

図 A.2 (a)のように、途中で探針の状態が変化してしまった場合は、**Flattening** という処理を行っている。この処理について説明する。まず、画像全体の dI/dV 値 f の平均値 f_{mean} を計算する。次に、同じ y 座標のデータ $((x_1, y_n, f_{1n}), (x_2, y_n, f_{2n}), \dots, (x_M, y_n, f_{Mn}))$ を集め、それらの dI/dV の平均値 $f_{n,mean}$ を計算する。そして、元のデータ $((x_1, y_n, f_{1n}), (x_2, y_n, f_{2n}), \dots, (x_M, y_n, f_{Mn}))$ を $((x_1, y_n, f_{1n} + (f_{mean} - f_{n,mean})), (x_2, y_n, f_{2n} + (f_{mean} - f_{n,mean})), \dots, (x_M, y_n, f_{Mn} + (f_{mean} - f_{n,mean})))$ に変換する。この作業を全ての y 座標に対して適用する。そうすると、図 A.2 (b)のような画像が作成され、探針の変化を打ち消すことができる。ただし、この処理は、不純物の周辺などでアーティファクトを生み出す可能性があるため、測定中に探針の変化が起きなかった場合以外はこの処理を行わないほうがいい。

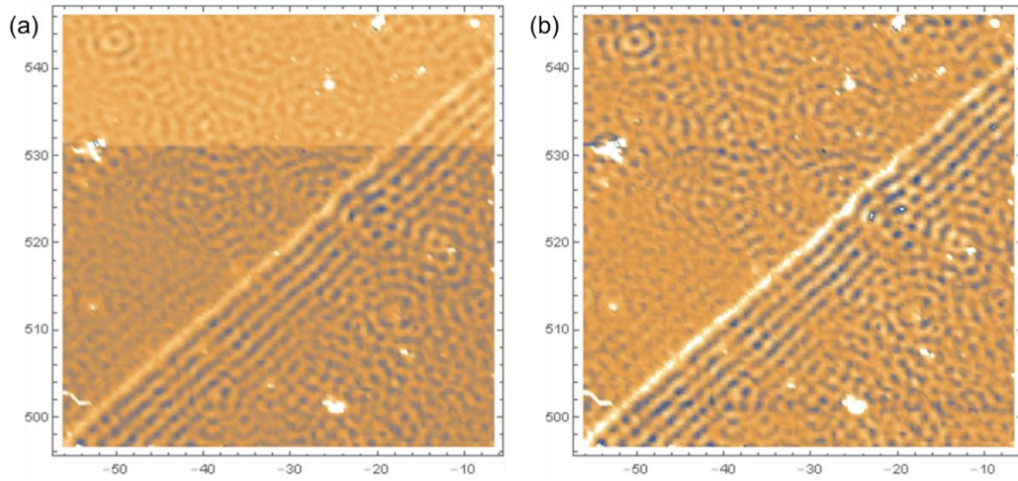


図 A.2. (a) Flattening 処理前 (b) Flattening 処理後

Equalize

ステップ等、 dI/dV 値が局所的に大きい（もしくは小さい）場所があると、その影響でフーリエ変換信号が見えづらくなることがある。また、全平均がゼロでなければ、波数空間像の中心にピーク構造ができる。そこで、その影響を小さくするために、Equalize という処理を行っている。まず z 座標の平均 f_{mean} と標準偏差 f_{STD} を計算する。 (x_m, y_n) における dI/dV の値 f_{mn} を、以下の 3 つのルールに従って変換する。

- ① $f_{mn} - f_{mean} > a \times f_{STD}$ のとき、 $f_{mn} \rightarrow a \times f_{STD}$ と変換する。
- ② $f_{mn} - f_{mean} < -a \times f_{STD}$ のとき、 $f_{mn} \rightarrow -a \times f_{STD}$ と変換する。
- ③ $-a \times f_{STD} < f_{mn} - f_{mean} < a \times f_{STD}$ のとき、 $f_{mn} \rightarrow f_{mn} - f_{mean}$ と変換する。

ここで、 a は小さいほどコントラストが強くなるが、その一方で必要なデータも落としてしまう可能性があるため、注意をする必要がある。図 A.3 (b) は Equalize 処理を行った結果である ($a = 1.5$ とした)。処理前の像である図 A.3 (a) と比べて、定在波が強調されていることがわかる。

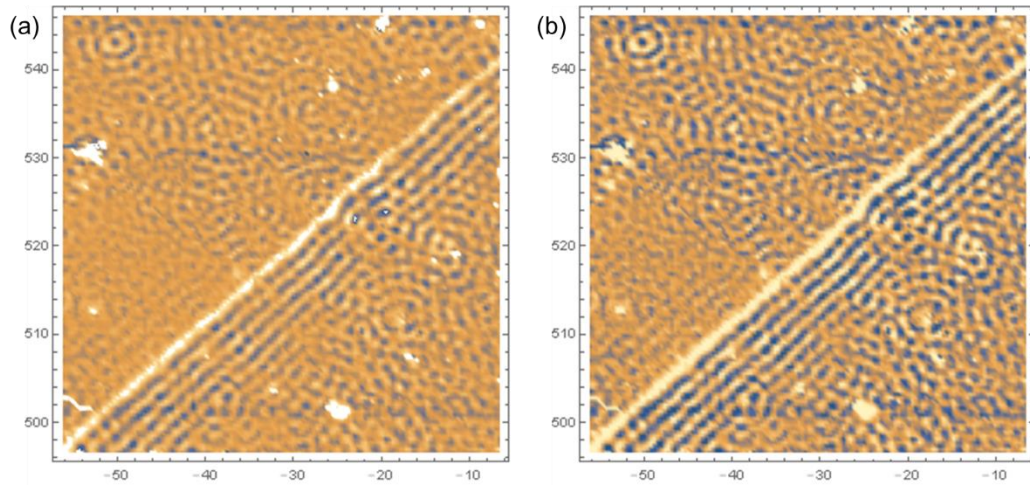


図 A.3. (a) Equalize 処理前 (b) Equalize 処理後 ($a = 1.5$)

フーリエ変換

Mathematica は行列演算が得意ではないので、Matlab を用いて処理している。フーリエ変換の詳細は A.2 を参照してほしい。

一次元化処理

フーリエ変換を行った結果は、波数空間の座標とそのときのデータの大きさのセット $((q_{x1}, q_{y1}, g_{11}), \dots, (q_{x1}, q_{yL}, g_{1L}), \dots, (q_{xK}, q_{yL}, g_{KL}))$ となっている。今回は等方的な定在波の立つ（フーリエ変換パターンが円系である）金属表面を用いているので、原点からの距離が同じ位置のデータに関しては同一とみなしてよい。そこで、 $r_{kl} = \sqrt{(q_{xk}^2 + q_{yk}^2)}$ とし、データセットを $((r_{11}, g_{11}), \dots, (r_{1L}, g_{1L}), \dots, (r_{KL}, g_{KL}))$ と書き直す。そして、 r の値が同じデータを探し（第 1 象限～第 4 象限に r が同じ点は 1 つずつ以上あるはずなので、少なくとも 4 セットはある）、それらの g の値の平均をとる。そうすることで、原点からの距離で定義した 1 次元データを作ることができる。

参考文献

- [1] L. Gross, Nat. Chem. **3**, 273 (2011).
- [2] R. Guckenberger, M. Heim, G. Cevc, H. F. Knapp, W. Wiegräbe and A. Hillebrand, Science **266**, 1538 (1994).
- [3] R. Wiesendanger, H.-J. Gunthörodt, G. Gunthörodt, R. Gambino and R. Ruf, Phys. Rev. Lett. **65**, 247 (1990).
- [4] F. Meier, K. v. Bergmann, P. Ferriani, J. Wiebe, M. Bode, K. Hashimoto, S. Heinze and R. Wiesendanger, Phys. Rev. B **74**, 1306 (2006).
- [5] M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blügel and R. Wiesendanger, Nature **447**, 190 (2007).
- [6] P. Ferriani, K. v. Bergmann, E. Y. Vedmedenko, S. Heinze, M. Bode, M. Heide, G. Bihlmayer, S. Blügel and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. **101**, 027201 (2008).
- [7] Y. Yoshida, S. Schröder, P. Ferriani, D. Serrate, A. Kubetzka, K. von Bergmann, S. Heinze and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. **108**, 087205 (2012).
- [8] S.-H. Phark, J. A. Fischer, M. Corbetta, D. Sander, K. Nakamura, J. Kirschner, Nat. Commun. **5**, 5183 (2014).
- [9] S. Heinze, K. von Vergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer and S. Blügel, Nature Physics **7**, 713 (2011).
- [10] H. Oka, P. A. Ignatiev, S. Wedekind, G. Rodary, L. Niebergall, V. S. Stepanyuk, D. Sander and J. Kirschner, Science **843**, 327 (2010).
- [11] O. Pietzsch, S. Okatov, A. Kubetzka, M. Bode, S. Heinze, A. Lichtenstein and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. **96**, 237203 (2006).
- [12] S. Krause, L. Berbil-Bautista, G. Herzog, M. Bode and R. Wiesendanger, Science **317**, 1537 (2007).
- [13] T. Miyamachi, T. Schuh, T. Märkl, C. Bresch, T. Balashov, A. Stöhr, C. Karlewski, S. André, M. Marthaler, M. Hoffmann, M. Geilhufe, S. Ostanin, W. Hergert, I. Mertig, G. Schön, A. Ernst and W. Wulfhekel, Nature **503**, 242 (2013).
- [14] http://www.psi-k.org/TMR1/summary_report.htm.
- [15] Y. Hasegawa and P. Avouris, Phys. Rev. Lett. **71**, 1071 (1993).
- [16] M. F. Crommie, C. P. Lutz and D. M. Eigler, Nature **363**, 524 (1993).
- [17] T. Hanaguri, Y. Kohsaka, J. C. Davis, C. Lupien, I. Yamada, M. Azuma, M. Takano, K. Ohishi, M. Ono, H. Takagi, Nat. Phys. **3**, 865 (2007).

- [18] B. B. Zhou, S. Misra, E. H. d. S. Neto, P. Aynajian, R. E. Baumbach, J. D. Thompson, E. D. Bauer, A. Yazdani, *Nat. Phys.* **9**, 474 (2013).
- [19] T. Hanaguri, Y. Kohsaka, M. Ono, M. Maltseva, P. Coleman, I. Yamada, M. Azuma, M. Takano, K. Ohishi, H. Takagi, *Science* **323**, 923 (2009).
- [20] H. Beidenkopf, P. Roushan, J. Seo, L. Gorman, I. Drozdov, Y. S. Hor, R. J. Cava and A. Yazdani, *Nat. Phys.* **7**, 939 (2011).
- [21] T. Zhang, P. Cheng, X. Chen, J.-F. Jia, X. Ma, K. He, L. Wang, H. Zhang, X. Dai, Z. Fang, X. Xie, Q.-K. Xue, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 266803 (2009).
- [22] S. Lounis, A. Bringer and S. Blügel, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 207202 (2012).
- [23] J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, M. Yamanouchi and H. Ohno, *Nat. Commun.* **5**, 4655 (2014).
- [24] G. Chen, T. Ma, A. T. N'Diaye, H. Kwon, C. Won, Y. Wu and A. K. Schmid, *Nat. Commun.* **4**, 2671 (2013).
- [25] V. Kasid, T. Schena, B. Zimmermann, Y. Mokrousov, S. Blügel, V. Shah and H. G. Salunke, *Phys. Rev. B* **90**, 054412 (2014).
- [26] S. Heinze, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, X. Nie, S. Blügel and R. Wiesendanger, *Science* **288**, 1805 (2000).
- [27] T. Gnanavel, Y. Peng, X. Xu, B. J. Inkson, M. R. J. Gibbs and G. Möbus, *J. Phys.: Conf. Ser.* **126**, 012071 (2008).
- [28] M. Cavallini, F. Biscarini, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 4457 (2000).
- [29] H. Chen, W. Xiao, X. Wu, K. Yang and H.-J. Gao, *J. Vac. Sci. Technol. B* **32**, 061801 (2014).
- [30] R. Wiesendanger, D. Bürgler, G. Tarrach, T. Schaub, U. Hartmann, H.-J. Güntherodt, I. V. Shvets and J. M. D. Coey, *Appl. Phys. A* **53**, 349 (1991).
- [31] R. Wiesendanger, I. V. Shvets and J. M. D. Coey, *J. Vac. Sci. Technol. B* **12**, 2118 (1994).
- [32] D. Donoho, *IEEE Trans. Inf. Theory* **52**, 1289 (2006).
- [33] 荒木力, 決定版 MRI 完全解説 第2版, 学研メディカル秀潤社 (2014).
- [34] K. Arai, C. Belthangady, H. Zhang, N. Bar-Gill, S. J. DeVience, P. Cappellaro, A. Yacoby and R. L. Walsworth, *Nat. Nanotechnol.* **10**, 859 (2015).
- [35] I. E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* **5**, 1259 (1957).
- [36] T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- [37] C. W. Searle and G. W. Dean, *Phys. Rev. B* **1**, 4337 (1970).
- [38] H. J. Fink and D. Shaltiel, *Phys. Rev.* **130**, 627 (1963).
- [39] Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch and M. Roth, *Solid State Commun.* **19**, 525 (1976).

- [40] T. Arima, A. Tokunaga, T. Goto, H. Kimura, Y. Noda and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 097202 (2006).
- [41] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov and J. Kishine, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- [42] Y. Nakatani, A. Thiaville and J. Miltat, *Nat. Mater.* **2**, 521 (2003).
- [43] H. Awano, *J. Magn. Magn. Mater.* **383**, 50 (2015).
- [44] C. Pfleiderer, D. Reznik, L. Pintschovius, H. v. Löhneysen, M. Garst and A. Rosch, *Nature* **427**, 227 (2004).
- [45] N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nat. Nanotech.* **8**, 899 (2013).
- [46] S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii and P. Böni, *Science* **323**, 915 (2009).
- [47] I. Kézsmárki, S. Bordács, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Rønnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan and A. Loidl, *Nat. Mater.* **14**, 1116 (2015).
- [48] M. N. Wilson, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov and T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **89**, 094411 (2014).
- [49] S. Emori, U. Bauer, S. M. Ahn, E. Martinez and G. S. D. Beach, *Nat. Nanotech.* **12**, 611 (2013).
- [50] P. M. Levy and A. Fert, *Phys. Rev. B* **23**, 4667 (1981).
- [51] A. Fert, *Mater. Sci. Forum* **59-60**, 439 (1990).
- [52] A. Crépieux and C. Lacroix, *J. Magn. Magn. Mater.* **182**, 341 (1998).
- [53] T. Jungwirth, J. Wunderlich and K. Olejník, *Nat. Mater.* **11**, 382 (2012).
- [54] 林将光, *応用物理* **83**, 547 (2014).
- [55] S. S. P. Parkin, *Science* **320**, 190 (2008).
- [56] R. Tomasello, E. Martinez, R. Zivieri, L. Torres, M. Carpentieri and G. Finocchio, *Scientific Report* **4**, 6784 (2014).
- [57] X. Z. Yu, N. Kanazawa, W. Z. Zhang, T. Nagai, T. Hara, K. Kimoto, Y. Matsui, Y. Onose and Y. Tokura, *Nat. Commun.* **3**, 988 (2012).
- [58] W. Jiang, P. Upadhyaya, W. Zhang, G. Yu, M. B. Jungfleisch, F. Y. Fradin, J. E. Pearson, Y. Tserkovnyak, K. L. Wang, O. Heinonen, S. G. E. t. Velthuis and A. Hoffmann, *Science* **349**, 283 (2015).
- [59] G. Shirane, R. Cowley, C. Majkrzak, J. B. Sokoloff, B. Pagonis, C. H. Perry and Y. Ishikawa, *Phys. Rev. B* **28**, 6251 (1983).

- [60] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nature* **465**, 901 (2010).
- [61] H. T. Nembach, J. M. Shaw, M. Weiler, E. Jué and T. J. Silva, *Nat. Phys.* **11**, 825 (2015).
- [62] S. Meckler, N. Mikuszeit, A. Preßler, E. Y. Vedmedenko, O. Pietzsch and R. Wiesendanger, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 157201 (2009).
- [63] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 57 (1982).
- [64] J. Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 57 (1961).
- [65] J. Tersoff and D. R. Hamann, *Phys. Rev. B* **31**, 805 (1985).
- [66] D. Wortmann, S. Heinze, P. Kurz, G. Bihlmayer and S. Blügel, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4132 (2001).
- [67] 日本物理学会, 物理データ事典, 朝倉書店 (2006).
- [68] P. Sessi, N. P. Guisinger, J. R. Guest and M. Bode, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 167201 (2009).
- [69] M. Bode, S. Krause, L. Berbil-Bautista, S. Heinze and R. Wiesendanger, *Surf. Sci.* **601**, 3308 (2007).
- [70] M. Bode, R. Pascal and R. Wiesendanger, *Surf. Sci.* **344**, 185 (1995).
- [71] K. J. Rawlings, S. D. Foulis and B. J. Hopkins, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **14**, 5411 (1981).
- [72] M. Bode, S. Heinze, A. Kubetzka, O. Pietzsch, M. Hennefarth, M. Getzlaff, R. Wiesendanger, X. Nie, G. Bihlmayer and S. Blügel, *Phys. Rev. B* **66**, 014425 (2002).
- [73] 土師将裕, 吉田靖雄, 長谷川幸雄, *表面科学* **36**, 403 (2015).
- [74] A. B. Shick, S. Khmelevskiy, O. N. Mryasov, J. Wunderlich and T. Jungwirth, *Phys. Rev. B* **81**, 212409 (2010).
- [75] M. Bode, S. Heinze, A. Kubetzka, O. Pietzsch, X. Nie, G. Bihlmayer, S. Blügel and R. Wiesendanger, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 237205 (2002).
- [76] M. Heide, G. Bihlmayer and S. Blügel, *Phys. Rev. B* **78**, 140403(R) (2008).
- [77] A. Kubetzka, P. Ferriani, M. Mode, S. Heinze, G. Bihlmayer, K. von Bergmann, O. Pietzsch, S. Blügel and R. Wiesendanger, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 087204 (2005).
- [78] K. von Bergmann, M. Menzel, D. Serrate, Y. Yoshida, S. Schröder, P. Ferriani, A. Kubetzka, R. Wiesendanger and S. Heinze, *Phys. Rev. B* **86**, 134422 (2012).
- [79] B. Santos, J. M. Puerta, J. I. Cerda, R. Stumpf, K. von Bergmann, R. Wiesendanger, M. Bode, K. F. McCarty and J. d. I. Figuera, *New J. Phys.* **10**, 013005 (2008).
- [80] B. Zimmermann, M. Heide, G. Bihlmayer and S. Blügel, *Phys. Rev. B* **90**, 115427 (2014).
- [81] E. J. Little, Jr and M. M. Jones, *J. Chem. Edu.* **37**, 231 (1960).

- [82] 林将光, まぐね **10**, 186 (2015).
- [83] A. Wachowiak, J. Wiebe, M. Bode, O. Pietzsch, M. Morgenstern and R. Wiesendanger, *Science* **577**, 298 (2002).
- [84] M. Bode, R. Pascal and R. Wiesendanger, *J. Vac. Sci. Technol. A* **15**, 1285 (1997).
- [85] A. L. Bassi, C. S. Casari, D. Cattaneo, F. Donati, F. Foglio, M. Passoni, C. E. Bottani, P. Biagioni, A. Brambilla, M. Finazzi, F. Ciccacci and L. Duò, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 173120 (2007).
- [86] A. Schlenhoff, S. Krause, G. Herzog and R. Wiesendanger, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 083104 (2010).
- [87] F. Donati, G. Fratesi, L. Ning, A. Brambilla, M. I. Trioni, A. L. Bassi, C. S. Casari and M. Passoni, *Phys. Rev. B* **87**, 235431 (2013).
- [88] K. Doi, E. Minamitani, S. Yamamoto, R. Arafune, Y. Yoshida, S. Watanabe and Y. Hasegawa, *Phys. Rev. B* **92**, 064421 (2015).
- [89] T. Ślęzak, M. Zając, M. Ślęzak, K. Matlak, A. Koziół-Rachwał, D. Wilgocka-Ślęzak, A. I. Chumakov, R. Rüffer and J. Korecki, *Phys. Rev. B* **87**, 094423 (2013).
- [90] M. Kleiber, M. Bode, R. Ravlic and R. Wiesendanger, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4606 (2000).
- [91] “新学術領域研究「疎性モデリング」”, <http://sparse-modeling.jp/>.
- [92] M. Honma, K. Akiyama, M. Uemura and S. Ikeda, *Publ. Astron. Soc. Japan* **66**, 95 (2014).
- [93] 田中利幸, *IEICE Fundamentals Review* **4**, 39 (2010).
- [94] 三村和史, 数理解析研究所議事録 **1803**, 26 (2012).
- [95] 木村英紀, 線形代数 数理科学の基礎, 東京大学出版会 (2003).
- [96] R. Tibshirani, *J. R. Statist. Soc. B* **58**, 267 (1996).
- [97] Y. Nakanishi-Ohno, M. Haze, Y. Yoshida, K. Hukushima, Y. Hasegawa and M. Okada, *J. Phys. Soc. Jpn.* (in press).
- [98] 大橋常道, 谷口哲也, 山下登茂紀, 初学者にやさしい統計学, コロナ社 (2010).

謝辞

本研究は、東京大学工学系研究科物理工学専攻博士課程において、東京大学物性研究所ナノスケール物性研究部門長谷川研究室で行われた研究をまとめたものである。研究を行うにあたり、ご多忙の中、様々な方にご協力いただきましたことをこの場を借りて深く感謝申し上げます。

指導教員である長谷川幸雄准教授には、基礎的な知識から実験技術、結果の考察、研究発表や論文作成に至るまで、研究全般に関するアドバイスを頂きました。厚く御礼申し上げます。吉田靖雄助教には、研究の方向性、アイデア、スピン偏極 STM 測定手法のノウハウ、背景にある物理的知識、論文作成に至るまで、数多くの助言を頂きました。圧縮センシングに関しても、研究アイデアを教えていただき、計算手法を学ぶ手助けをして頂きました。さらに、研究に関することだけでなく、日常生活においても数多くのサポートをしていただきました。ここに深く感謝申し上げます。

本研究を論文としてまとめるにあたり、内容について審査と御助言をして頂きました、東京大学工学系研究科の福谷克之教授（東京大学生産技術研究所所属）、千葉大地准教授、東京大学理学系研究科の長谷川修司教授、東京大学総合文化研究科の福島孝治准教授に深く感謝申し上げます。

東京大学新領域創成研究科の有馬孝尚教授、三重大学工学研究科の中村浩司准教授には、カイラル磁性に関する結果を考察するにあたり、数多くのご助言を頂きました。ここに感謝申し上げます。

東京大学新領域創成研究科の岡田真人教授、中西（大野）義典博士（現 東京大学総合文化研究科助教）には、圧縮センシングやプログラミングに関して基礎的な事柄から丁寧にご教授いただき、数多くのご助言を頂きました。ここに深く感謝申し上げます。

株式会社東陽テクニカの大藪範昭博士には、実際にランダムに点数を選んだ STS 測定を行う際に、測定プログラム作成に関してご協力を頂きました。深くお礼申し上げます。

大研医器株式会社の宮村幸春氏には、機械工作の専門家として、特に試料ホルダーに関するアドバイスを頂きました。ここに感謝申し上げます。

長谷川研究室の Howon Kim 博士（現 ハンブルグ大学）、浜田雅之氏には実験技術や論文作成において多大なご助言を頂きました。ここに深く感謝申し上げます。

長谷川研究室の山本駿玄氏には、 ^4He 冷却型極低温超高真空 STM 装置の使用に関するアドバイスや、メンテナンスの面で大きく協力していただきました。深くお礼申し上げます。

小山星児氏、渡辺延幸氏、山本涼輔氏には、探針作製の面でご協力いただきました。深く感謝申し上げます。

物性研究所ナノスケール物性研究部門の皆様、特に客員所員としていらした九州大学工学研究院の河江達也准教授、北陸先端科学技術大学院大学の安東秀准教授、長谷川研究室のメンバーである宮田佳典氏、蛭沢貴氏、大原健悟氏、C. Hasegawa 氏には、本課程を行う上

で議論や助言を頂いただけでなく、日常生活の楽しいひとときを共に過ごしていただいたことに深く感謝申し上げます。

石橋夏水秘書と駒木美千子秘書には研究生生活を行う上で温かく励ましていただきましたことをここにお礼申し上げます。

最後になりましたが、長期にわたる学生生活を支えて下さいました両親に深く感謝いたします。

2016 年 7 月 土師将裕