JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	走査トンネル顕微鏡発光を用いた単一スピン検出
Author(s)	安，東秀
Citation	科学研究費助成事業研究成果報告書: 1-4
Issue Date	2016-06-06
Type	Research Paper
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/13688
Rights	
Description	挑戦的萌芽研究，研究期間：2014～2015，課題番号：26600106，研究者番号：70500031，研究分野：ナノサイエンス

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２８ 年　 ６ 月　 ６ 日現在

機関番号：１３３０２
研究種目：挑戦的萌芽研究
研究期間：2014～2015
課題番号：２６６００１０６

研究課題名（和文）走査トンネル顕微鏡発光を用いた単一スピン検出

研究課題名（英文）Single spin detection by scanning tunneling microscopy photo emission

研究代表者
ＡＮ　ＴＯＳＨＵ（安東秀）（Toshu, An）

北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・准教授

研究者番号：７０５０００３１

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,000,000円

研究成果の概要（和文）：走査トンネル顕微鏡(STM)発光によるNV中心含有ナノダイヤモンド粒子を用いたスピン検出へ向けて、NV中心を含有したナノダイヤモンド粒子を表面へ分散させナノダイヤモンドからの蛍光と磁気共鳴信号計測を確認し、原子間力顕微鏡（AFM）によりナノダイヤモンド粒子を識別し、その後、AFM探針先端へナノダイヤモンド粒子を取り付ける方法として探針を400度程の高温で加熱する方法によりナノダイヤモンド粒子を深針へ接着可能なことを明らかにした。また、NV中心が高濃度に存在するバルクダイヤモンドからの磁気共鳴信号の観測手法も確立し、トンネル電流注入による磁気共鳴信号検出に依る高分解能化に向けた基礎を構築した。

研究成果の概要（英文）：For realization of spin dependent photoluminescence from a NV center in diamond by injection of tunneling current by using scanning tunneling microscopy setup, NV-hosted nano diamond and a NV-hosted bulk diamond were studied. Electron spin resonance (ESR) of a NV-hoseted nano diamond spread on the surface was observed, and the nano diamond was attached to the atomic force microscopy tip apex with annealing at about 400 degrees. ESR signals from a bulk diamond containing ensemble NV centers were analyzed.

研究分野：ナノサイエンス

キーワード：ダイヤモンドNV中心　STM発光

１．研究開始当初の背景

(1)1997年のGruber等の研究以来(Science, 276, 2012 (1997))、最近の研究の進展により、単一のダイヤモンド中の窒素－空孔複合体中心（NV 中心）を持つダイヤモンド結晶においてレーザー励起(波長 532 ナノメートル)による蛍光をモニターしながら発光の基底状態にある電子スピンをマイクロ波を用いて磁気共鳴励起することにより、発光強度の変化からNV中心の単一電子スピンの磁気共鳴信号を検出できることが判ってきた。これは、一般の電子スピン共鳴装置の検出感度が10^7 スピン程であることから考えるとブレークスルーと呼べる究極の電子スピンの感度である。さらには、このNV中心ダイヤモンド中の単一スピンは周囲の環境の漏洩磁場に応じて磁気共鳴周波数が変化し、スピンの寿命も変化することから周囲に存在するスピンを検出可能なスピンセンサーとして有望であることが示され国内外で急速に注目を集めていた（Staudacher 等, Science, 339, 561 (2013)）。

(2)研究代表者、安はこれまでにスピンのダイナミクスを検出可能な走査磁気共鳴顕微鏡の開発を目指し、前半には走査プローブ顕微鏡探針先端からマイクロ波を印加して局所に磁気共鳴を励起可能な走査磁気共鳴顕微鏡を開発した(安等, IEEE. Mag. Lett. 1, 3500104 (2010))。しかしながら、スピン検出の感度・空間分解能共に、単一スピンとナノメートルスケールを達成するには新奇な手法が必要であり、NV 中心ダイヤモンドセンサーを有望なスピンセンサーと認識し、NV センター付きプローブ顕微鏡の研究に取り組み始めた。その研究過程において、通常NV 中心の研究で用いられる共焦点光学系によるレーザー励起と発光・蛍光検出の手法ではなく、STM 探針からの局所電流を用いたエレクトロルミネッセンスの手法が有用であり、この手法を用いて空間分解能を原子分解能にまで飛躍的に高めることができると着想し本研究を開始した。

２．研究の目的

ダイヤモンド欠陥中心に存在するスピン(NV 中心スピン)を走査トンネル顕微鏡(STM)の探針に取り付け、トンネル電流の印加による局所エレクトロルミネッセンスを利用してNV中心スピンを磁場センサーとして用い、センサーの周辺に存在する単一スピンからの漏洩磁場検出を目指す。この手法はレーザー励起による蛍光を用いるこれまでの手法に比べて、レーザーの位置合わせが必要なく簡便であり、また、STM 探針として用いて同時に表面の原子分解能イメージングができる利点がある。研究期間内に、このNV 中心スピン付き探針からのエレクトロルミネッセンス検出を達成し、原子レベルでよく規定された表面上に磁性体島構造や究極には単一磁性原子を蒸着して準備し、これらのスピンからの漏洩磁場の検出を目指す。

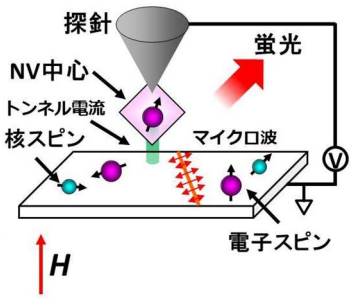

図1，単一NV中心ダイヤモンドプローブ付磁場センサー、STM探針からのトンネル電流によるエレクトロルミネッセンスを利用した蛍光検出、蛍光強度を磁場とマイクロ波により変調してスピン状態を検出する。

３．研究の方法

図１中に示したエレクトロルミネッセンス(EL)を用いた手法に取り組む。水落等は（Nature Photonics, 6, 299 (2013)）バルク中の NV 中心ダイヤモンドに電流を印加し、EL により単一からの蛍光を制御して検出できることを示した。これを STM 探針に応用して単一NV中心ダイヤモンド粒子を付着させた STM 探針に、探針－NV 中心－基板間にトンネル電流を流して EL による蛍光を検出する。これにより、トンネル電流は必ずNV 中心を流れるためレーザーを用いる場合のように位置合わせが必要なくなる。また、NV中心付きSTM探針はそのままSTM探針として用いることができるため表面の原子・分子の原子分解能観察を行った後に EL による蛍光検出を用いてそれぞれの原子や分子中のスピン検出を行うことが可能となる。（NV 中心ナノダイヤモンド粒子の STM 探針への取り付けは静電気力を利用してナノダイヤモンドを探針へ付着できることが判っている。）

４．研究成果

(1)先ず、共焦点レーザー顕微鏡を改良した蛍光検出機構とプローブ顕微鏡機構（水晶振動子型原子間力顕微鏡(AFM)）を複合化し、さらに、AFM プローブ先端に NV 中心を含有するナノダイヤモンドを取付けた走査スピンプローブ装置の開発を行った(図2)。これにより、NV 中心ダイヤモンドスピンプローブからの蛍光をモニターしながら自在に三次元方向に試料を走査することが可能となる。AFM 機構を採用することで、絶縁性表面も走査可能になり観察対象の制限をなくすことができる。特に、圧電効果を利用する水晶振動子型 AFM を採用することで、光てこ法を用いる場合の光の干渉を防ぐことができる。また、ばね定数が大きいことにより振動振幅を 1 ナノメートル以下に低減して高精細な漏洩磁場計測を

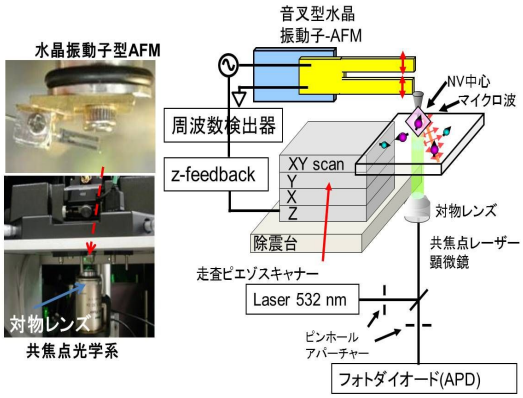

図2，**共焦点レーザー蛍光顕微鏡、水晶振動子型AFM、NV中心プローブの複合装置**

実現できる。以上の複合装置は、先ず、室温・大気中で整備された。

(2) **複数の NV 中心を含有するバルクダイヤモンドからの磁気共鳴信号を計測して装置の性能評価を行った。図３に、バルク中に高密度に NV 中心が生成されたダイヤモンド（001）面のバルク試料から得られた NV 中心の磁気共鳴信号を示す。2.87GHz のマイクロ波印加において磁気共鳴が観測される（図３(a)）。続いて試料に意図的に外部磁場を印加した際には、ゼーマン分裂信号が観測される（図３(b)）。複数のゼーマン分裂信号が観測されるのは NV 中心のスピン状態が[111]方向とその他の等価な４方向を向いていることによる。**

(3)**続いて** NV 中心を含有した走査プローブ作成法として NV 中心を含有するナノダイヤモンドを AFM 探針先端へ取り付ける方法に取り組んだ。その際に、先ず、ナノダイヤモンドからの磁気共鳴信号の計測を試みた。図4には少数の NV 中心を含有するナノダイヤモンド粒子（粒形約 50nm、ガラス基板上に分散）より得られた磁気共鳴信号である。このナノダイヤモンドを AFM プローブ先端へ取付け、走査することで走査 NV 中心プローブを作成することができる。共同研究を行ったニューヨーク市立大学、Meriles 研では、この単一 NV 中心含有ナノダイヤモンドを高温（約４００度）で加熱することで、通常の AFM カンチレバー先端へ再現性良く取付けることに成功し(Laraoui 等、Nature Commun. 6, 8954 (2015)、本研究でもその手法を試みる準備を進めた。

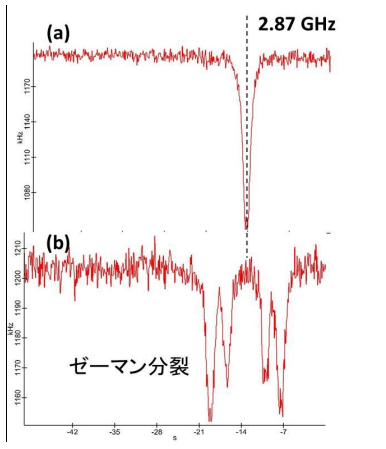

図3，バルクダイヤモンド中の複数の NV 中心より計測された NV 中心中のスピン状態(a)とゼーマン分裂信号(b)

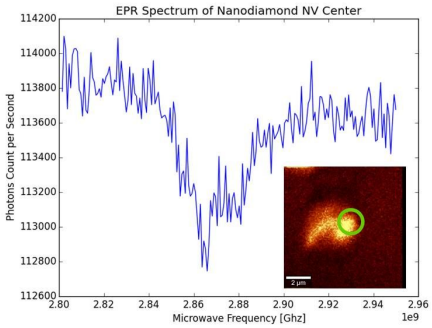

図4、ナノダイヤモンド粒子中の少数 NV 中心から得られた磁気共鳴信号

(4)p タイプのボロンドープダイヤモンド深針と、n タイプのリンドープダイヤモンド薄膜基板の入手と予備実験の準備を進め、上記のシステムにおいて STM **探針からの局所電流を用いたエレクトロルミネッセンスの手法の実現に向けた装置準備を進めた。**

５．主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計０件）

〔学会発表〕（計１件）

1. T. An, A. Laraoui, C. A. Meriles、Development of Scanning NV-center Spin Sensing probe、Diamond QuantumSensing Workshop、２０１５年５月８日、Kagawa International Conference Hall(香川県高松市)

〔図書〕（計０件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計１件）

名称：近接場プローブ構造および走査プローブ顕微鏡
発明者：安　東秀
権利者：国立大学法人　北陸先端科学技術大学院大学
種類：特許
番号：特願 2015-194551
出願年月日：平成２７年９月３０日

国内外の別： 日本

○取得状況（計０件）

〔その他〕
ホ　ー　ム　ペ　ー　ジ　：
http://www.jaist.ac.jp/ms/labs/toshuan-www/

６．研究組織

(1)研究代表者
安　東秀 (AN TOSHU)
北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・准教授
研究者番号：７０５０００３１

(2)研究分担者

(3)連携研究者
金　有珠 (KIM YOUSOO)
独立行政法人理化学研究所・主任研究員
研究者番号：５０３７３２９６