走査トンネル顕微鏡+近藤効果で観えてくるスピン間相互作用

一数値くりこみ群に基づく理論的解析—

大阪大学大学院工学研究科

精密科学・応用物理学専攻 博士後期課程3年 南谷

テクノネット読者の皆様、はじめまして。工学研究 科精密科学・応用物理学専攻の博士後期課程に在籍し ております南谷と申します。昨年8月に、第三回ロレ アルユネスコ女性科学者日本奨励賞をいただいたこと を契機に、このたびテクノネットにて私の研究内容を ご紹介させていただくことになりました。興味を持っ ていただければ幸いです。

1. きっかけ

私の研究内容は、金属の表面に磁性原子のダイマー を吸着させた時にどのようなことが起こるか、またそ れがどのように実験で観察されるかということを、理 論面から探っていこうというものです。磁性原子とい うのは鉄やコバルトに代表される原子です。これらの 原子は原子のまわりに局在したd軌道などに存在す る不対電子をもっており、それらの電子のスピンが原 子に局在したスピンのように振舞うという特徴があり ます。局在スピンが2つ以上あると、局在スピン間に 相互作用が働きます。この相互作用はスピンの振舞い に大きく関係し物質の磁性を左右します。磁性を測定 する方法としては、これまでも磁気円二色性をもちい た方法などが開発されていますが、これらは対象とす る物質における平均値を観察しています。個々のスピ ンについて、その向きなどを測定するという実験方法 はありませんでした。しかし、走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy : STM) + 近藤効 果で局在スピンやその間の相互作用が、金属表面上の 磁性原子では観察できるかもしれないのです。この研 究を始めたきっかけは修士論文が終わって次の課題を 探しているときに、研究室の OB の方に「なんかこれ 面白いよ」と、紹介された Science に載っていた論文 [1] です。この論文の内容が、金属の表面に酸化物の 薄膜を作成し、その上に作った Mn 原子の列を STM で観察したというものでした。STMと言えば、今や 工学でメジャーな実験方法ですが、その論文では

STM を使って、Mn 原子間のスピン-スピン相互作 用を測定できたと書いてありました。しかし、結果の 図を見てもなんだかステップ形状があることはわかる ものの、それがスピン間の相互作用にどういう関係が あるのやら、私にはさっぱり理解できませんでした。 が、修士課程にて磁性に関連した研究をしていたこと もあり、スピン間の相互作用が STM によってピンポ イントで測定できるというところに、興味を持ちまし た。そこで STM による磁性原子の観察例を調べてい るうちに、もう一つの非常に興味深い実験結果に巡り 合いました。それは、2つの Co 原子を Cu (100) 表 面に吸着させ、その Co の原子間距離を変えて微分コ ンダクタンス(dl/dV)を測定したというものでした[2]。

英

美

論文中の図を見ると、dl/dVのスペクトル形状は Coの原子間距離に応じて、その幅を変えています。 考察にはRuderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用が影響することで、近藤効果によってできる ピーク形状が変化したのでは、と説明されていました。 近藤効果、RKKY相互作用はその当時、教科書でさ らりと流し読んだ程度の知識しかなく、垣間見えた数 式の多さから、なんだかやたら難しそうなイメージを 持っていました。しかし、研究室にて単一磁性原子に おける近藤効果のSTM像に関する研究が以前行われ ていたこともあり、これを発展させれば実験結果を説 明できるかもなぁと考えて取り組むことに決めまし た。それが思った以上に大変とは露ほども思わずに…。

2. 近藤効果とは?

このあたりで、一度、先ほどから頻出している近藤 効果[3,4]についてご紹介したいと思います。近藤 効果は当初、金や銀などの非磁性金属に鉄・コバルト といった磁性金属の原子を少量混入した希薄磁性合金 の電気抵抗にある温度で極小値が出る現象として発見 されました。格子振動や不純物散乱による電気抵抗は 温度のべきに比例し、温度が低下すると単調に減少し ます。ある温度を境に抵抗が増加に転じるという現象 は非常に不思議なものであり、長らくその原因は謎で した。これに初めて解決の糸口を与えたのが近藤淳先 生です。近藤先生は伝導電子が磁性原子によって散乱 されるときに、磁性原子がスピンをもつために、伝導 電子と磁性原子のスピンの向きが入れ替わるような過 程が存在することが、電気抵抗極小の由来であること を発見されました。こうして近藤効果には磁性原子の スピンが影響していることは判明したのですが、得ら れた電気抵抗の式には絶対零度で発散してしまうとい う問題が残り、それ以後数多くの研究者がこの問題に トライしてきました。その結果、芳田奎先生により、 極低温では磁性原子の局在スピンと伝導電子が量子的 な束縛状態、近藤・芳田一重項を作り、局在スピンを 遮蔽していることが判明しました。低温側での近藤・ 芳田一重項と、高温側での自由な局在スピンという2 つの状態の間がどのようにつながるのかということ は、後述する「くりこみ群」という素粒子物理学由来 の方法によって明らかになりました。また、希薄磁性 合金系をモデル化した、アンダーソンモデルに対する 厳密解が本学におられた興地先生、川上先生らによっ て得られ、近藤効果の解明に大きな寄与をしたことも 特筆すべき事項でしょう。近藤効果は多数の研究を触 発し、物性物理学の進歩の原動力となりました。そし て近藤効果は金属中の磁性不純物のみならず、グルー オンによるクォークの閉じ込めやX線吸収端の赤外 発散現象にも現れる非常に一般的な現象であることも 判明し、物性物理以外の方面にもインパクトを与えま した。近年では量子ドットの伝導特性に近藤効果の影 響が観測されるなど、ナノテクノロジー分野において も近藤効果の重要性が認識され、発見から50年以上 経った現在も近藤効果は精力的に研究されています。

非磁性金属表面上の磁性原子でもこの近藤効果が起 こると考えられます。しかも、この近藤効果の影響を STMにより原子オーダーで観察することができます。 近藤効果が起こっている場合、十分な低温では、近藤・ 芳田一重項が存在することで金属のフェルミレベル近 傍にて微分コンダクタンス(dl/dV)が増大します。 実験で得られるスペクトルにはこれを反映して、ゼロ バイアス近傍に非対称ピーク形状が現れます。ピーク 形状が非対称になるのは、STM チップから近藤・芳 田一重項を介して表面に流れる電流と、チップから表 面へ直接流れ込む電流の干渉(Fano 効果)の影響を



図1 金属表面上の磁性原子に対する dl/dV の数値計算結果 の例。島田氏の修士論文より引用。ゼロバイアス付近に Fano 効果由来の非対称なスペクトル形状が現れている

表しています [5-8]。

さて、磁性原子が2つあると、磁性原子のスピン間 に働く相互作用も重要となってきます。金属表面上の 磁性原子ダイマーの場合、スピン間に働く相互作用と して考えられるのが、RKKY相互作用です。RKKY 相互作用は伝導電子と局在スピン間の相互作用によっ て生まれるため、近藤効果と起源は一緒です。しかし、 近藤効果が個々の局在スピンを遮蔽する方向に働くの に対し、RKKY相互作用は局在スピン間に磁気的な 秩序をもたせるという、ある意味、逆の働きをします。 2つの磁性原子が伝導電子と相互作用し、近藤効果と RKKY 相互作用が同時に働く、2 不純物近藤問題はこ れまでにも多くの理論的研究がなされていましたが、 STM 観察に即したモデルを用いた解析はありません でした。私はせっかく実験で面白い結果が出ているこ とだし実際の STM 観察に沿った理論的研究を行おう と考えました。

3. 出発と蹉跌

はじめに行ったことが、モデル化です。実験を参考 にして、図2に示した模式図のような金属表面上に磁 性原子1,2が距離aを隔てて存在し、磁性原子1の 真上にSTMチップがあるような系に対応するモデル を考えました。

説明するとあまりに長くなるので割愛しますが、ト ンネル電流がチップの電子数の時間微分で与えられる と考え、ハイゼンベルグの運動方程式とKeldysh グ リーン関数法 [9] を用いると、dl/dVの式として磁 性原子の局在軌道の電子の遅延グリーン関数の虚部と 実部に比例する式が得られます。ここでのグリーン関



図2 磁性原子ダイマーに対する STM 観察の模式図

数とは、多体系の量子論において使用される、粒子の 伝搬を表す関数のことです。遅延グリーン関数の虚部 は状態密度に相当する粒子の励起スペクトルを与えま す。STM の dl / dl は表面の状態密度に比例すること は知られており、遅延グリーン関数の虚部が式中に存 在するのはこれに対応しています。遅延グリーン関数 の実部が dl/dl の式に出てくるのは前述した Fano 効 果を表しています。遅延グリーン関数の計算方法は多 数存在するのですが、その中ではじめに用いた方法が 磁性原子内の電子間クーロン相互作用Uの摂動展開 です。Uの二次まで展開した結果を博士後期課程1年 の終わりにやっと得ましたが、指導教官の笠井先生と 相談した結果、摂動展開、しかも二次までとなると、 説得力に乏しいなぁということになりました。このと き、今後の展開として2つの可能性がありました。ひ とつは摂動次数を上げること、もう一つは摂動展開以 外の計算手法に切り替えることです。実は摂動展開は 非常にめんどうくさい計算が多く、しかもそのめんど うくささは次数が上がることで飛躍的に増加します。 2次摂動でさえ2不純物系では腕がだるくなるぐらい 計算しないといけないのに、4次摂動に必要な労力は …と考えるだけで頭が痛かったので思い切って計算手 法を変えることにしました。そして行き着いたのが数 値くりこみ群 [10-14] です。

4. 数値くりこみ群への道

数値くりこみ群というのはおそらくほとんどの人に なじみがない用語だと思います。これを使おうと思っ た当時、私もそれがなんのことやらさっぱり知りませ んでした。ただ、知人から「くりこみって何?」と突 然聞かれて以来"くりこみ"という若干アヤシげな響 きに心ひかれていたのと、不純物問題なら数値くりこ み群が強いと聞いていたので、無謀にも「なんだか面 白そうだし、いっちょやってみよっと」と思い立った のです。いざ始めてみると数値くりこみ群の原著論文 をはじめ参考文献はなじみのない記号のオンパレード で正直最初の一か月は「これ無理ちゃうか…」と涙目 になりました。ただ、参考文献がかなり丁寧なものが 多かったのと、数値くりこみ群を使っていた方の話を 直接聞けたこともあり、数ヶ月後には数値くりこみ群 の概念が大体わかるようになりました。数値くりこみ 群は名前の通りくりこみ群の手続きを数値的に行おう という発想に基づいています。ではそもそもくりこみ 群というのは一体どういうものなのでしょうか。

自然界には様々な"スケール"が存在します。スケー ルは長さであったり、エネルギーであったり時間で あったり色々なものが存在しますが、さまざまな大き さのスケールにおける現象が干渉し合うことがありま す。小さなスケールでの相互作用が大きなスケールで の現象を変えてしまうのです。感覚的には、点描で有 名なフランスの画家、スーラの絵を思い描いていただ くといいでしょう。スーラの絵は非常に近くに寄りそ の一部だけを注視すると、赤や青の点々が見えるだけ です。しかし、少し離れて全体を見渡すとその点々の 集まりは人物や風景の形を取って見えてくるようにな ります。離れて絵を観たときには、点々の存在はほと んどわからなくなっていますが、もし個々の点の色を 変えてしまうと、絵の雰囲気は大きく変わってしまう ことでしょう。この点々をスピンに置き換えると、絵 はちょうど磁性体に対応します。磁性体においても、 ミクロスケールな個々のスピン間の相互作用の大きさ がマクロスケールの磁気的秩序に影響します。そして、 くりこみ群の方法はちょっとずつ離れながら絵を見る ことに相当します。つまり、スケール変化の影響が物 理量にどう影響するかということに注目し、徐々にス ケールを大きくしていくのです。おそらくもっとも明 快な例は"ブロック・スピン"変換[15,16]でしょう。

ブロック・スピン変換はKadanoffらによって、格 子点の上に上向きもしくは下向きのスピンがあって、 それらの間に一定の相互作用があるという、いわゆる lsing モデルの性質を探るために編み出されました。 図3に二次元格子に対するブロックスピン変換の模式 図を示します。この方法では3つの段階を繰り返しま す。第1段階は、格子を決まった数のスピンを含む区 間へ分割します。以下では図3に示すように3×3の 格子点からなる正方形の区間で分割したとします。第 2段階ではその区間内のスピンの値を何らかの方法で 平均し、その平均値をもとにその区間全体を一つのス ピンとみなし、置き換えます(粗視化)。この時点で 元の格子より間隔が3倍大きな新しい格子ができてい ます。第3段階では格子間隔を1/3に縮めて元の格 子と同じ間隔を持つ状態にします(スケール変換)。 この一連の粗視化とスケール変換を行うくりこみ変換 を繰り返すことによって短いスケールでのゆらぎが消 去され、スピン系の巨視的な磁気的秩序が浮かび上 がってきます。

一般的にはスケール変換を行った時に生じるハミル トニアンの変化の重要な部分をくりこみ変換として抽 出し、それを繰り返し作用させることで、さまざまな スケールにおける現象を順々に拾っていきます。こう した方法は幅広いスケールで起こる現象が等しく重大 な寄与をするような場合、たとえば臨界現象(相転移) に対して非常に有効です。また近藤効果において難し い部分の一つが、局在スピンが相互作用する伝導電子 のエネルギースケールが幅広いことであるがゆえに、 くりこみ群はここでも威力を発揮し、Wilson は近藤 効果の数値くりこみ群による解析によってノーベル賞 を受賞しました。また、くりこみ群の方法はパワフル なだけでなくフラクタルと通じるところもある非常に 美しい理論です。このようなくりこみ群の力強さと美 しさがツボにはまり、それから半年ほどひたすら数値 くりこみ群の勉強とその数値計算コードへの実装に励 みました。実のところ、プログラミングをほとんどし たことがなかった私には、数値計算コードの実装が最 もハードルの高い部分でした。そうこうして得られた dl/dl の数値計算結果が図4です。





- a)磁性原子間距離(a)が3Åから11Åまでのdl/dVの計算 結果。x軸はバイアス電圧を、y軸は磁性原子間距離を、 z軸はdl/dVをそれぞれ表している。
- b)磁性原子間距離が3,5,7,9Åにおけるdl/dVの計算結果。 3Åでは非常に鋭いピーク構造がゼロバイアスにて現れるのに対して、7Åでは幅の広く、高さが低くなったピークが現れる。

ご覧のように、d1/dVスペクトルは磁性原子間距離 (a) が広がるにつれて、徐々にその形を変えていきま す。同時に計算したスピン相関関数の結果を図5に示 します。

スピン相関関数の計算結果とあわせて、反強磁性 RKKY 相互作用が微分コンダクタンスのピークをな

図3 ブロック・スピン変換の模式図 ■は下向きスピンを、□は上向きスピンを表す



図5 磁性原子間距離aの関数としてプロットしたスピン相 関関数。スピン相関関数が正の値をとる場合は強磁性的、 負の値をとる場合には反強磁性的なスピン間の相関が存 在する。

だらかに、強磁性 RKKY 相互作用が鋭くすることが わかりました。これは実験結果とも一致しており、近 藤効果を通じて、表面の RKKY 相互作用を検出でき ることが、理論からも確認することができました。ま た、図 4-a) に示されているように、ゼロバイアス 近傍のピーク形状が鋭い形状からなだらかな形へと磁 性原子間距離に応じて徐々に変化するという点も特徴 的です。反強磁性 RKKY 相互作用が十分に大きけれ ば、2つの磁性原子のスピン同士が1重項を作り、近 藤効果が抑制されると考えられます。近藤効果が起こ る領域と反強磁性 RKKY 相互作用が支配的になる領 域の間がどのようになっているかは、盛んに議論され ており、臨界現象を生じる場合と、クロスオーバー現 象を生じる場合があることが知られています。ピーク の形状が次第に広がっていくというこの結果は後者の クロスオーバー現象の存在を示していると考え、現在 解析を進めています。

5. おわりに

ひょんなことから始まった磁性原子ダイマーに対す る STM 観察についての研究は、ようやく実験結果を 理論的に説明できる段階にこぎつけました。固体表面 上の磁性原子ダイマーをはじめとする磁性ナノ構造 は、スピン自由度を情報の担い手として活用しようと いうスピントロニクスのデバイス材料として期待でき ます。スピントロニクスは97年の GMR ヘッドの発 明をはじめとして、日本の人工衛星にも搭載された MRAM (magnetoresistive random access memory) や新しいところでは先日 IBM が発表した"racetrack" など、研究が着々と進んでおり、実際のストレージデ バイスにも応用されている非常にホットな分野です。 またスピンの取りうる2つの状態(↑と↓)を2進数 の0と1に対応させ、スピンの量子力学的な状態を利 用して既存のコンピュータでは不可能な超並列処理を 行う量子コンピュータの実現につながるとして期待さ れています。原子オーダーでのスピンの振る舞いを探 る我々の研究は、こうしたスピントロニクスに寄与で きるでしょう。今後はさらに研究をすすめ、磁場など によってこうしたナノ構造のスピンがどのような影響 を受けるか、どうすればスピンを制御できるかなど、 次世代デバイスや量子コンピューティングの実現に貢 献できるような知見を得たいと考えています。

原稿を書きながらこれまでの研究生活を振り返って みると、研究を進める途中、行き詰ったときや、方向 を迷った時に周囲の人の助言が大きな助けとなりまし た。最後に、コメントや議論をしてくださった笠井先 生、中西先生、Wilson Agerico Diño 先生、数値くり こみ群について教えていただいた基礎工学研究科の松 浦弘泰氏をはじめ皆様に感謝申し上げます。

<参考文献>

- [1] C. F. Hirjibehedin, C. P. Lutz, and A. J. Heinrich: Science, 312, 1021 (2006).
- [2]P. Wahl, P. Simon, L. Diekh öner, V. S. Stepanyuk, P. Bruno, M. A. Schneiderand, and K. Kern: Phys. Rev. Lett. 98, 056601 (2007).
- [3] 山田 耕作「電子相関」岩波書店, (2000).
- [4] 斯波 弘行 「電子相関の物理」 岩波書店, (2001).
- [5] V. Madhavan, W. Chen, T. Jamneala, M. F. Crommie, and N. S. Wingreen: Science 280, 567 (1998).
- [6] A. J. Heinrich, J. A. Gupta, C. P. Lutz, and D. M. Eigler: Science 306, 466 (2004) .
- [7] H. Kasai, W. A. Diño, and A. Okiji: J. Elec. Spec. Rel. Phenom. 109, 63 (2000).
- [8] 笠井秀明 日本物理学会誌 54, p. 702, (1999)
- [9] A. M. ザゴスキン,「多体系の量子論」シュプリンガー・ フェラーク東京,(1999).
- [10] K. G. Wilson: Rev. Mod. Phys. 47, 773 1975.
- [11] H. R. Krishna-murthy, J. W. Wilkins, and K. G. Wilson: Phy. Rev. B 21, 1044 (1980)
- [12] H. R. Krishna-murthy, J. W. Wilkins, and K. G. Wilson: Phys. Rev. B 21, 1044 (1980)
- [13] A. C. Hewson, "The Kondo Problem to Heavy Fermions" Cambridge University Press, Cambridge, U. K., (1993).
- [14] R. Bulla, T. A. Costi, and T. Pruschke: Rev. Mod. Phys. 80, 395 (2008)
- [15] K. G. ウィルソン 別冊日経サイエンス 121 p158
- [16] 西森秀稔著 「相転移・臨界現象の統計物理学」 培風館 (2006)

(応物 平成 17 年卒 19 年前期 後期在学中)