# 科学研究費補助金研究成果報告書

平成21年6月26日現在

研究種目:若手研究(B) 研究期間:2007~2008 課題番号:19740185

研究課題名(和文) 走査トンネル顕微鏡によるスピン分解局所状態密度の可視化

研究課題名 (英文) Toward spin resolved measurement of local density of states by scanning tunneling microscopy

研究代表者

鷺坂 恵介 (SAGISAKA KEISUKE)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノ計測センター・主任研究員

研究者番号: 70421401

### 研究成果の概要:

固体表面の磁性およびスピン特性を原子分解能で検出するスピン偏極走査トンネル顕微鏡技術の確立を目指して、高品質の磁性薄膜試料及び磁性探針を作製するための基礎的な研究を行った。磁性探針の磁化方向を校正するために、タングステン(110)表面に 1.5 モノレイヤーの鉄原子を堆積した試料を作製した。その結果、鉄薄膜の磁化特性は基板タングステン表面の清浄度に強く依存することが判明した。また、単一磁性原子のスピン検出を行う基板にはアルミナ表面を作製するが、その予備実験として銅-アルミニウム合金表面の電子状態を明らかにした。

#### 交付額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合 計
2007年度	2, 100, 000	0	2, 100, 000
2008年度	500, 000	150, 000	650, 000
年度			
年度			
年度			
総計	2, 600, 000	150, 000	2, 750, 000

研究分野:数物系科学

科研費の分科・細目:物理学・物性

キーワード:表面物理、走査トンネル顕微鏡、表面磁性

#### 1. 研究開始当初の背景

近年、走査トンネル顕微鏡(STM)を用いた表面・ナノテクノロジー研究分野においてスピン計測が注目を集めている。これはスピントランジスターの開発、磁気記憶装置の高集積化、量子計算機の研究などのスピントロニクス研究の発展に伴い、ナノスケールの磁性評価技術が必要とされてきた背景による。スピンあるいは磁性に基づく物理量を測定する計

測技術の中で、原子分解能で行うスピン計測の実現に最も近い手法はSTMである。STMは表面電子状態を原子分解能で可視化する能力に加え、低温・強磁場装置と比較的容易に組み合わせやすく、また磁性探針を用いるスピン偏極(SP)STM技術が確立されてきている。スピン偏極計測技術を原子分解能まで高度化すれば、一つ一つの原子のスピン状態の可視化が

近い将来実現されると期待される。しかし、このような強磁場中測定やSP-STMを用いたスピン計測研究は米国やドイツにかなり先行されており、日本におけるSTMスピン計測技術を発展させ、成果を発信していくことは重要な課題である。

### 2. 研究の目的

本研究はSTMを用いたスピン偏極計測技術を確立していくことを目指し、SP-STMよび強磁場STMに関する基礎的な研究を行った。具体的な研究内容を以下に記す。

- (1) SP-STM に必要不可欠な磁性探針の評価試料として、タングステン基板上の鉄薄膜およびクロム表面の作製方法およびその磁気特性を検討する。
- (2)強磁場中の単一磁性原子のスピン特性を 測定するための試料作製方法を検討する。

#### 3. 研究の方法

### (1) SP-STM 測定用評価試料の作製

SP-STMでは磁性探針を用いるが、磁性探針の磁化方向を特定するための評価試料として、表面と垂直な磁気方向を持つ鉄薄膜と、表面と平行な磁気方向を持つクロム表面を作製した。鉄薄膜を作製する基板にはタングステン(110)表面を用いた。タングステン(110)表面を用いた。タングステン(110)表面の清浄化法は、分圧が1×10<sup>-4</sup>Pa程度の酸素雰囲気中において1200℃で20分間加熱を行い、続いて2000℃でフラッシュする。この手順を不純物炭素の表面偏析が顕著でなくなるまで、数十回繰り返した。鉄薄膜は、電子ビーム加熱蒸着によって作製した。クロム表面の清浄化は、単結晶クロム(100)表面を800℃で加熱しながらアルゴンイオンスパッタにより行った。

(2) 強磁場 STM を用いた単一磁性原子の走査 トンネル分光(STS)

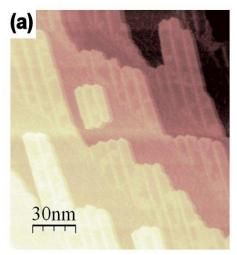
磁性原子と基板表面のカップリングを回

避するために、極めて薄いアルミナ薄膜を用いることとした。銅に数%のアルミニウム原子が不純物として添加された合金表面ではアルミニウム原子が表面偏析して安定化することが知られている。この表面偏析したアルミニウム原子層を熱酸化することでアルミナ薄膜を作製するが、まず銅-アルミニウム合金(Cu-9%A1 (111))表面における偏析をオージェ電子分光と STM を用いて調べた。

#### 4. 研究成果

# (1) 1.5ML Fe/W(110)表面の作製

SP-STM では、タングステン探針を鉄、コバ ルト、クロムなどの磁性薄膜で被覆した磁性 探針を用いる。これらの磁性探針の磁化方向 は、これまでの研究から、元素の種類と膜厚 に依存することが知られているが、実際に測 定で使用する前に磁化方向を決定しておく 必要がある。そのためには、磁化方向が既知 な標準試料表面で特定すればよい。この評価 試料として、タングステン(110)表面に 1.5 モノレイヤーの鉄を堆積させた薄膜(以下 Fe/W(110))を選択した。Fe/W(110)は、ハン ブルク大学の Wiesendanger 教授グループに よってよく研究されており、1層目のFe は表 面と平行に、2層目のFe は表面と垂直に磁化 することがわかっている。図1はFe/W(110) 表面の STM 像と dI/dV 像である。 図 1(a) にお いてステップと斜めに走る複数の線状構造 は転位である。STM 像では、この転位が存在 する領域の第2層 Fe と、転位の無い滑らか な領域の第1層 Fe とに区別することができ る。一方、図 1(b)の dI/dV 像では、第 2 層 Fe 領域に明暗のコントラストが確認できる。 通常、第 2 層 Fe 薄膜に現れる微分コンダク タンスのコントラストはスピン偏極に依存 したものであるが、図1(b)のものはそれと様 子が異なる。また、この表面で走査トンネル



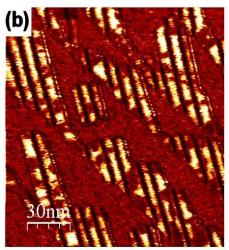
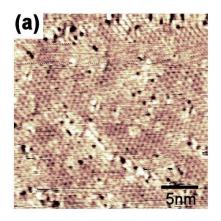


図 1 1.5ML Fe/W(110)表面の STM 像(a)と dI/dV 像(b). V=+0.09V, I=0.5nA, T=79K.

分光(STS)を行った結果、スピン偏極した非占有状態(0.7V)が観測されなかったことから、図1のFe薄膜は磁化してないと結論した。この原因として、基板のW(110)が十分清浄でない可能性が考えられる。図2は「研究の方法」で示した手順で清浄化を試みたW(110)表面である。バルク中の残存炭素が表面に析出するために、60回以上の加熱処理とフラッシュの繰り返しを行ったが、表面が十分に清浄化されていないことがわかる。酸素雰囲気中で加熱時に真空チャンバー中のガス種を調べると、水素ガスが大量に発生していることが判明した。加熱処理後も水分子と思われる輝点がSTMで観察されていることか



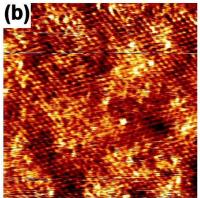
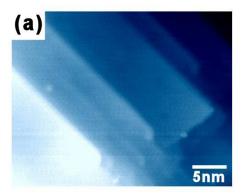


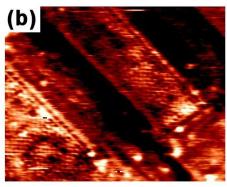
図 2 W(110)表面の原子分解 STM 像(a)とdI/dV像(b). V=+0.03V, I=10nA, T=79K.

ら、試料表面において酸素ガスと水素ガスとの反応による水分子の生成が表面の清浄化を妨げている可能性がある。ナノスケールの薄膜の磁性は基板表面の清浄度に非常に敏感であることが判明し、このことから微細なスピンデバイスを構築する際に基板の清浄度に十分注意を払う必要があることがわかる。W(110)表面の清浄化を妨げた水素ガスの発生を抑制するために電子ビーム加熱装置の改良が必要となるが、今後の課題とする。

# (2)Cr(100)表面の SP-STM 測定

反磁性構造をもつ Cr(100)の表面では、ステップごとに面内方向に 180° ずつ回転しながら磁化方向が変化する。この表面も探針の磁化方向を決定するために良い評価試料となるはずである。表面磁性が発現するか否かは、Fe/W(110)と同様、表面の清浄度に依存





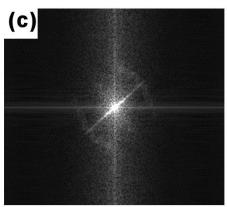


図 3(a) Cr(100) 表面の STM 像, (b) Cr(100) 表面のスピン偏極状態密度 像, (c) 図 (b) のフーリエ変換像. V=-0.1V, I=0.5nA, T=79K.

する。そのため、100 時間以上のスパッタと加熱処理の繰り返しを行った。図 3(a)は Cr(100)表面の STM 像である。探針には鉄被 覆したタングステン探針を用いた。5~10nm 拡がるテラスがステップによって隔てられていることがわかる。これと同じ領域において dI/dV 測定を行った結果が図 3(b)である。テラスごとに微分コンダクタンスのコントラストが異なることがわかる。これは面内で

テラスごとに磁化方向が異なるためであり、このことから用いた探針は試料表面と平行な磁化特性を持つことがわかる。さらに、テラス表面に観察された微細な波状の構造は表面電子の定在波である。図3(b)をフーリエ変換した図3(c)を見ると、原点を中心に電子定在波に起因する円形状の構造が現れていることからわかる。スピン偏極した電子定在波を捉えた実験例は世界でこれが初めてだと思われる。以上から、Cr(100)表面も磁性探針評価用の評価試料として適切な材料であることが確認できた。

## (3) CuAl (111)表面の電子状態測定

単一原子のスピン計測を実現するために、 表面に分散した磁性原子の STS 計測を行う。 このとき、基板表面と磁性原子のカップリン グを抑制するために、基板と磁性原子の間に 絶縁層を設ける必要がある。そこで、銅-ア ルミニウム(以下 CuAl)合金表面に偏析する アルミニウム原子層を熱酸化することによ って得られる極薄アルミナ膜を採用するこ ととした。アルミナ薄膜を成長させるために 表面のアルミニウム原子の量を知ることは 重要であるが、そのために CuAl 表面におけ るアルミニウム原子の偏析量についてオー ジェ電子分光(AES)を用いて詳しく調べた。 図 4 は AES データの定量解析から得られた Cu-9%A1 合金表面のアルミニウム原子濃度と アニール温度の関係である。アニールの時間 によらずこの表面のアルミニウム原子濃度 は 36%で安定化することが判明した。アルミ ニウムの偏析量が増加するに従い、アルミニ ウム原子は表面で√3×√3 構造を形成すること が、低速電子線回折で確認された。この構造 の表面組成が 33%アルミニウムであることを 考慮すると、√3×√3 構造を形成し、さらにわ ずかに過剰なアルミニウム原子が析出して

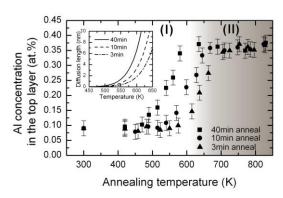
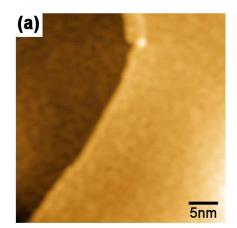
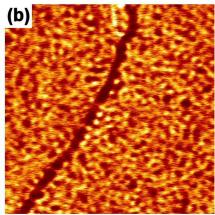


図 4 Cu-9%A1(111)表面における A1 原子の 濃度とアニール温度の関係.

飽和することがわかった。また、アルミニウム原子濃度とアニール温度および時間の関係は銅中のアルミニウム原子の拡散長によって説明することができた。

さらに、アルミニウム原子が飽和した √3×√3 表面の電子状態を STM で調べると、 Cu(111)表面で観察されるような電子定在波 が確認された(図5(b))。電子定在波の存在は、 CuAl 合金表面でも、表面に局在したショック レー状態が存在することを示唆している。し かし、ステップ近傍でステップに平行な定在 波模様が観察されないことは、表面に非常に 多くの散乱体が存在することを意味してい る。図 5(c)のエネルギー分散関係を見ると、 アルミニウム原子の偏析量が増加するに従 って、表面状態のエネルギーが減少していく ことがわかる。これは、銅と比較してアルミ ニウムは2個余分に価電子を有するため、表 面に析出したアルミニウム原子による過剰 な電子を収容するために表面状態がシフト したと考えられる。図4の結果から、表面の アルミニウム原子量を正確に制御すること ができるので、酸素雰囲気中で加熱すること によって得られる極薄アルミナ膜の成長を 行うこと、またその上に磁性原子を分散させ て強磁場STM測定を行うことを今後計画して いる。





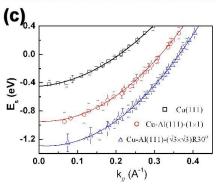


図 5 CuAl 合金表面の STM 像(a)と dI/dV 像(b) V=-0.4V, I=2.5nA, T=78K. (c)同表面 のエネルギー分散関係.

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計2件)

① Yinghui Yu, <u>Keisuke Sagisaka</u>, and Daisuke Fujita, "Surface segregation of aluminum atoms on Cu-9 at.% Al(1 1 1) studied by Auger electron spectroscopy and low energy electron diffraction", Surface Science 603 723-726 (2009) 査読

② Yinghui Yu, <u>Keisuke Sagisaka</u>, and Daisuke Fujita, "Modification of surface electronic properties on alloy surfaces: Standing waves on a Cu-9at.% Al(111)

surface observed by STM", Physical Review B 掲載確定 査読有

# 〔学会発表〕(計1件)

①Yinghui Yu, <u>Keisuke Sagisaka</u>, Daisuke Fujita, "Surface standing waves on Cu-9%Al(111)", IVC17/ICSS13 and ICN+T 2007, Stockholm International Fairs, Stockholm, Sweden, July 01-07 (2007).

[その他]

ホームページ等

http://www.nims.go.jp/nanophys6/index.html

# 6. 研究組織

(1)研究代表者

鷺坂 恵介 (SAGISAKA KEISUKE) 独立行政法人物質・材料研究機構・ナノ計 測センター・主任研究員

研究者番号:70421401

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし