

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2012

課題番号：22656011

研究課題名（和文） ナノスケール伝導用スピンプローブの開発とそれによる表面ラッシュバ系のスピンの研究

研究課題名（英文） Development of a spin-polarized probe for nanoscale transport measurements and its application to spin transport of surface Rashba systems

研究代表者

平原 徹 (Hirahara Toru)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：30451818

研究成果の概要（和文）：本研究ではこれまで研究代表者の所属するグループが培ってきた微小領域電気伝導測定技術をスピン伝導へと発展させるための研究を行った。まず、スピンプローブとして磁性体被覆カーボンナノチューブ(CNT)探針を作成する技術開発を行った。そして作成した CoFe 被覆 CNT 探針を 4 探針走査トンネル顕微鏡(STM)に組み込んで、ビスマス超薄膜の表面状態の電流誘起スピン偏極と思われるシグナルを世界で初めて測定した。

研究成果の概要（英文）：In the present research, we have tried to extend our nanoscale transport measurement technique to spin transport. First, we developed a method to make a magnetic probe by coating CoFe on carbon nanotube (CNT) tips. Using these magnetic probes in our four-tip scanning tunneling microscope, we succeeded in detecting some spin signal, which is likely originated from the current-induced spin-polarization phenomenon in surface states of ultrathin bismuth films.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,300,000	0	1,300,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	540,000	3,640,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：表面

### 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスの発展とともに、磁場を用いないスピン制御法が研究されている。その中で、非磁性物質でもスピン軌道相互作用と反転対称性の破れによって起こる Rashba 効果を利用することでスピンの制御可能であることが分かった。現在ではこの効果を利用して電流を流すとそれに垂直な方向に互いに逆向きのスピンの蓄積するスピンホール効果（ホール効果のスピン版）に代表され

るスピン伝導の実験が半導体ヘテロ界面やバルク系で行われている。

一方結晶表面には表面 1, 2 原子層に局在した究極に薄い低次元電子系である表面状態が存在する。この表面状態も反転対称性が破れており、Rashba 効果でスピン分裂したバンド構造を持つ。これらは結晶構造や構成元素の影響で半導体界面系に比べ分裂幅が巨大で、またスピンの向きも面内・面直など様々である。申請者はこれまでこのような系

に着目し、特にシリコン表面上のビスマス (Bi) 超薄膜のスピンスplitした表面電子状態に関してスピンスplit光電子分光で研究を行ってきた。

しかし表面 Rashba 系において光電子分光では多くの報告例があるが、実際にスピンス伝導現象を測定した例はなかった。それはナノスケールでスピンス伝導を測定する技術開発が進んでいなかったからである。

## 2. 研究の目的

そこで本研究では申請者のグループが世界に先駆けて開発した独立駆動型4探針走査トンネル顕微鏡 (STM) や温度可変固定型マイクロ4端子法にスピンス敏感なプローブを組み込み、表面 Rashba 系で期待されるスピンス伝導現象を測定することを目的にした。

## 3. 研究の方法

本研究ではまず、スピンスプローブとして磁性体被覆のカーボンナノチューブ (CNT) 探針作成技術の開発を行った。通常の STM 探針の先端に CNT をつけ、さらに磁性体 CoFe でコーティングすることで導電性及びスピンス感性を確保した。CoFe は大気中で酸化されるため、作成後窒素雰囲気下で保管した。保管中磁場を印可したが磁場印可に関わらず、後述する実験のシグナルは検出された。つまり、形状磁気異方性によって探針は自発磁化を持っていると考えられる。

実験としては上記の CoFe 被覆 CNT 探針を独立駆動型4探針 STM に組み込んだ。この装置は走査電子顕微鏡 (SEM) 下で4つの探針の位置を制御しながら4端子電気伝導測定が可能である。そして非磁性の Pt 被覆 CNT 探針と通常の W 探針と合わせて、Bi 超薄膜を対象に表面状態の電流誘起スピンス偏極検出実験を行った (図1)。

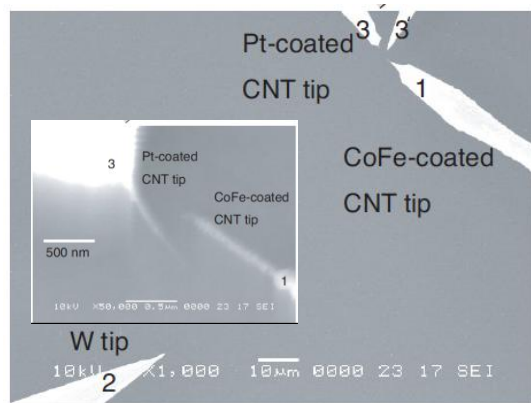


図1：独立駆動型4探針 STM に CoFe 被覆 CNT 探針を組み込み、非磁性の Pt 被覆 CNT 探針、W 探針とともに撮影した、走査電子顕微鏡 (SEM) 像。挿入図は CNT 探針の拡大図を示している。

## 4. 研究成果

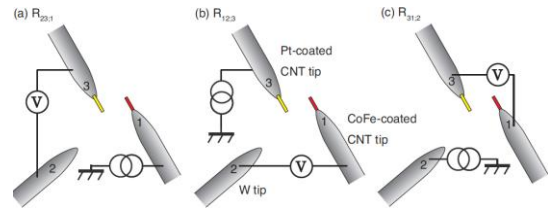


図2：4探針測定における電流注入・電圧測定プローブの組み合わせ。一般には  $\Delta R = R_{23;1} + R_{12;3} + R_{31;2} = 0$  が成り立ち、3つの測定量は独立ではない。

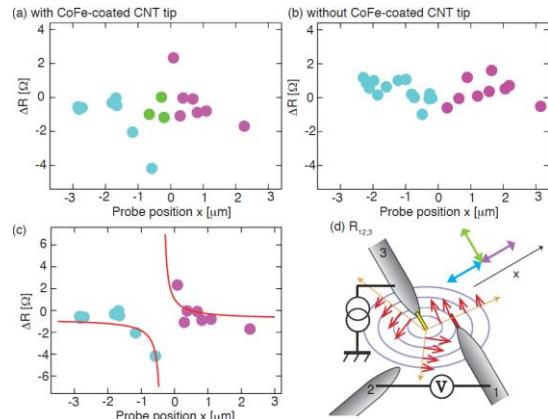


図3：(a)  $\Delta R = R_{23;1} + R_{12;3} + R_{31;2}$  の測定値を Pt 被覆 CNT と CoFe 被覆 CNT 探針の距離の関数としてプロットしたもの。(b) (a) の測定を CoFe 被覆 CNT 探針を用いずに行った結果。(c) (a) の結果を理論式でフィッティングした結果。(d) 実際に検出されたスピンスシグナルの由来。非磁性体探針から注入された電流がスピンスを誘起して、それを磁性体で電位測定するとスピンスの向きによって測定される電圧が異なる。

電流誘起スピンス偏極検出の有無は電流注入端子、電圧測定端子の組み合わせを変えた場合のグリーンの相反定理 ( $\Delta R = R_{23;1} + R_{12;3} + R_{31;2} = 0$ ) が成り立つか否かで判定した (図2)。

図3 (a) に示すように Pt 被覆 CNT 探針 (3) と CoFe 被覆 CNT 探針 (1) の距離が  $1 \mu\text{m}$  以下のときにはグリーンの相反定理が破れているような振る舞いを観測した。これはスピンスプローブを用いないときは観測されなかった [図3 (b)] ので、確かに何らかのスピンス伝導現象を測定したと考えている。磁性体でスピンス偏極した試料を電位測定すると、磁性体とプローブのスピンスの平行・反平行によって測定される電圧値が異なることが知られている。よっておそらく図3 (d) にあるように、プローブ3から電流が注入されたことで誘起されたスピンス偏極を、スピンスプローブ1で検出しているものと想定される。測定シグナルは Bi の表面状態の Rashba splitした表面状態

から予想されるスピンの向きと矛盾せず、理論から予想される距離依存性とも合致していた(図3(c))。今後Biの膜厚依存性を測定するなどして、さらに検証を進める必要がある。

一方、独立駆動型4探針STMにおけるスピン伝導測定の限界も明らかになった。SEM下で実験するので磁場印可ができず、スピンプローブの磁化制御が極めて難しい。またCNT探針は測定中簡単に剥がれてしまうために、実験の歩留まりが悪い。

このような点を解決するため、現在新しいコンセプトに基づいた装置を開発中である。これは通常の1探針のSTMに電流導入のためのプローブを二つつけて、電流を流しながら電圧測定(ポテンショメトリ)ができるようになってきている。また超伝導磁石による磁場印可で磁性体探針の磁化方向が用意に制御できる。

また並行して、表面を微細加工して、磁性体を用いない新たなスピン伝導現象検出手法の開発も行った。

今後このような新しい手法を完成させ、これを用いて表面Rashba系のスピン伝導現象を測定していく。

#### 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8件)

1. T. Hirahara, N. Fukui, T. Shirasawa, M. Yamada, M. Aitani, H. Miyazaki, M. Matsunami, S. Kimura, T. Takahashi, S. Hasegawa, and K. Kobayashi, “Atomic and Electronic Structure of Ultrathin Bi(111) Films Grown on Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>(111) Substrates: Evidence for a Strain-Induced Topological Phase Transition”, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 227401 (2012) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.227401
2. N. Fukui, T. Hirahara, T. Shirasawa, T. Takahashi, K. Kobayashi, and S. Hasegawa, “Surface Relaxation of Topological Insulators: Influence on the Electronic Structure”, *Phys. Rev. B* **85**, 115426 (2012) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.85.115426
3. T. Uetake, T. Hirahara, Y. Ueda, N. Nagamura, R. Hobara, and S. Hasegawa, “Anisotropic conductivity of the Si(111)4×1-In surface: Transport mechanism determined by the temperature dependence”, *Phys. Rev. B* **86**, 035325 (2011) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.86.035325

4. T. Hirahara, G. Bihlmayer, Y. Sakamoto, M. Yamada, H. Miyazaki, S. Kimura, S. Blügel, and S. Hasegawa, “Interfacing 2D and 3D topological insulators: Bi(111) bilayer on Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>”, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 166801 (2011) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.166801
5. Y. Saisyu, T. Hirahara, R. Hobara, and S. Hasegawa, “Magnetic anisotropy of Co ultrathin films”, *Journal of Applied Physics* **110**, 053902 (2011) 査読有.  
DOI:10.1063/1.3624662
6. T. Hirahara, Y. Sakamoto, Y. Saisyu, H. Miyazaki, S. Kimura, T. Okuda, I. Matsuda, S. Murakami, and S. Hasegawa, “A topological metal at the surface of an ultrathin Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> alloy film”, *Phys. Rev. B* **81**, 165422 (2010) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.165422
7. Y. Sakamoto, T. Hirahara, H. Miyazaki, S. Kimura, and S. Hasegawa, “Spectroscopic evidence of a topological quantum phase transition in ultrathin Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> films”, *Phys. Rev. B* **81**, 165432 (2010) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.165432
8. T. Hirahara, Y. Sakamoto, Y. Takeichi, H. Miyazaki, S. Kimura, I. Matsuda, A. Kakizaki, S. Hasegawa, “Anomalous transport in an n-type topological insulator ultrathin Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> film”, *Phys. Rev. B* **82**, 155309 (2010) 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.155309

[学会発表] (計33件)

1. 相谷昌紀, 平原徹, 長谷川修司: ビスマス超薄膜の超高真空・低温・強磁場中における電気伝導測定, 日本物理学会第68回年次大会, 2013年3月26日(広島大学, 東広島).
2. 平原徹, 「放射光で拓く表面物質科学の新展開」、所長招聘研究会「2020年の光分子科学を語る」、2013年1月23日(分子科学研究所)、招待講演.
3. T. Hirahara, “Comprehensive study of topological phase transitions using ultrathin films”, Energy Materials Nanotechnology (EMN) West Meeting, 2013年1月7日(Houston, USA), 招待講演.
4. 相谷昌紀, 平原徹, 長谷川修司: Bi超薄膜の低温・磁場中での表面電気伝導測定, 第32回表面科学学術講演会, 2012

- 年 11 月 21 日 (東北大学).
5. 福居直哉、平原徹、長谷川修司: 集束イオンビームによるその場表面微細加工と電気伝導測定, 第 32 回表面科学学術講演会, 2012 年 11 月 20 日 (東北大学).
  6. 福居直哉、平原徹、長谷川修司: 集束イオンビームによる in situ 微細加工を施した表面の電位伝導特性, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日 (横浜国立大学).
  7. 平原徹、「ビスマスおよびビスマス系化合物超薄膜の実験的研究」、科研費基盤研究 A「固体中のディラック電子」第 1 回研究会、2012 年 7 月 25 日 (東京大本郷)、招待講演.
  8. T. Hirahara, “Charge and Spin Transport at Nonmagnetic Surfaces”, International Conference of Young Researchers on Advanced Materials (ICYRAM), 2012 年 7 月 3 日 (Singapore, Singapore), 招待講演.
  9. 平原徹、「非磁性体超薄膜のスピン偏極表面電子状態」、UVSORIII における低エネルギー光電子分光の新展開、2012 年 6 月 21 日 (分子科学研究所)、招待講演.
  10. 平原徹、福居直哉、白澤徹郎、山田学、相谷昌紀、宮崎秀俊、松波雅治、木村真一、高橋敏男、小林功佳、長谷川修司: 「 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  上の Bi 超薄膜の電子状態と表面構造解析」日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24-27 日 (関西学院大学).
  11. 相谷昌紀, 平原徹, 坂本裕介, 山田学, 宮崎秀俊, 松波雅治, 木村真一, 長谷川修司: 「Pb ドープによるトポロジカル絶縁体  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  超薄膜の電子状態制御と電気伝導度」日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24-27 日 (関西学院大学).
  12. 福居直哉, 平原徹, 白澤徹郎, 高橋敏男, 小林功佳, 長谷川修司: 「 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  超薄膜および 1 BL Bi の LEED-IV 構造解析」日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24-27 日 (関西学院大学).
  13. T. Hirahara, G. Bihlmayer, Y. Sakamoto, M. Yamada, H. Miyazaki, S. Kimura, S. Bluegel, and S. Hasegawa: Interfacing 2D and 3D topological insulators: Bi(111) bilayer on  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ , APS March meeting, 2012 年 2 月 28 日 (Boston, USA).
  14. 平原徹: トポロジカル絶縁体超薄膜の電子状態と輸送特性, 東京大学物性研究所短期研究会「トポロジカル絶縁体の表面電子状態」、2012 年 2 月 24 日 (東大物性研).
  15. T. Hirahara, “Ultrathin films of topological insulators”, The first SRC Winter Workshop on Topological Matter, 2012 年 1 月 30 日 (Phoenix Park, Korea)、招待講演.
  16. T. Hirahara: Ultrathin films of topological insulators, Symposium on Surface and Nano Science (SSNS) 2012, 2012 年 1 月 11 日 (Shizukuishi, Japan).
  17. 平原徹: トポロジカル絶縁体超薄膜の電子状態と輸送特性, 第 31 回表面科学学術講演会, 2011 年 12 月 16 日 (船堀, 東京)、招待講演.
  18. T. Tono, T. Hirahara, and S. Hasegawa: “In situ measurements of current induced spin polarization in ultrathin bismuth films” The 6th International Symposium on Surface Science (ISSS-6), 2011 年 12 月 11-15 日 (Funaobori, Tokyo).
  19. 平原徹: トポロジカル絶縁体超薄膜の電子状態と輸送特性, UVSOR ユーザーミーティング, 2011 年 11 月 18 日 (岡崎コンファレンスセンター)、招待講演.
  20. T. Hirahara, “Ultrathin films of topological insulators”, The 15th International Conference on Thin Films, 2011 年 10 月 8 日 (Kyoto, Japan)、招待講演.
  21. 平原徹: ラッシュバ・トポロジカル表面系の輸送特性, 日本物理学会 2011 年秋季大会シンポジウム「多彩な表面系における電子輸送現象」、2011 年 9 月 24 日 (富山大学)、招待講演.
  22. 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司: 「ビスマス超薄膜の表面状態における電流誘起スピン偏極の測定」、日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 23-26 日 (富山大学).
  23. 平原徹, G. Bihlmayer, 坂本裕介, 山田学, 宮崎秀俊, 木村真一, S. Bluegel, 長谷川修司: 「三次元トポロジカル絶縁体上への二次元量子スピンホール相単一 Bi パイレイヤーの成長」、日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 23-26 日 (富山大学).
  24. 平原徹: 非磁性体表面の磁性現象, 物性若手夏の学校分科会 2011 年 8 月 3 日 (ホテルエバー富士)、招待講演.
  25. T. Tono, T. Hirahara, and S. Hasegawa: In situ measurements of current induced spin polarization in ultrathin bismuth films, The 13th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces

- (ICFSI-13), 2011 年 7 月 4 日 (Prague, Czech Republic).
26. T. Hirahara, Y. Sakamoto, M. Yamada, H. Miyazaki, Y. Takeichi, S. Kimura, I. Matsuda, A. Kakaizaki, S. Hasegawa: Ultrathin Films of Topological Insulators, The 13th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces (ICFSI13), 2011 年 7 月 4 日 (Prague, Czech Republic).
  27. 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司: ビスマス超薄膜の表面状態における電流誘起スピン偏極の測定, 表面科学学術講演会、2010 年 12 月 16 日(船堀, 東京).
  28. 東野剛之, 坂本裕介, 平原徹, 長谷川修司: Bi 表面上でのスピン偏極電流の検出, 平成 22 年度東北大学電気通信研究所プロジェクト研究会 2010 年 11 月 17 日(仙台).
  29. 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司: ビスマス超薄膜におけるスピンホール効果の測定、物性科学領域横断研究会、2010 年 11 月 13 日(東京).
  30. 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司: ビスマス超薄膜におけるスピンホール効果の測定、物性科学領域横断研究会、2010 年 11 月 13 日(東京).
  31. 平原徹: ビスマス量子薄膜における表面状態による電気伝導、第 30 回表面科学学術講演会奨励賞受賞記念講演、2010 年 11 月 5 日 (大阪大学) 招待講演.
  32. 東野剛之, 平原徹, 長谷川修司: ビスマス超薄膜におけるスピンホール効果の in situ 測定. 日本物理学会 2010 秋季大会, 2010 年 9 月 23-26 日(大阪府立大学).
  33. T. Tono, T. Hirahara, S. Hasegawa : In situ detection of the spin Hall effect in ultrathin bismuth films International vacuum congress (IVC-18), 2010 年 7 月 23-27 日(北京).
  34. T. Tono, T. Hirahara, S. Hasegawa: In situ detection of the spin Hall effect in ultrathin bismuth films, SSSJ-A3 Foresight Joint Symposium on Nanomaterials and Nanostructures, 2010 年 7 月 5-7 日(東京大).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

平原 徹 (Hirahara Toru)  
東京大学・大学院理学系研究科・助教  
研究者番号 : 30451818

### (2) 研究分担者 ( )

研究者番号 :

### (3) 連携研究者

長谷川 修司 (Hasegawa Shuji)  
東京大学・大学院理学系研究科・教授  
研究者番号 : 00228446