

令和元年6月25日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03872

研究課題名(和文)原子間力/走査型トンネル顕微鏡によるスピndeバイス電極の磁化容易制御条件の解明

研究課題名(英文) Study of atomic level magnetization of spin device electrode by atomic force / scanning tunneling microscopy

研究代表者

阿部 真之 (Abe, Masayuki)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：00362666

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：高性能な超高真空走査型プローブ顕微鏡と分子線ビームエピタキシー装置を組み合わせ、真空を破ることなく薄膜作製と原子分解能測定を行うことで、原子レベルで高性能スピントロニクス材料の磁化容易軸制御という新しい手法を行った。この装置を用いて、SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13xR13)最構成表面上におけるFeの初期成長の様子を走査型トンネル顕微鏡を用いて高分解能観察した。基板の温度によって初期成長の構造が異なることを見出し、走査型トンネル分光によって、表面が金属的になったり半導体的になったりすることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義  
成膜装置と計測装置の複合装置によってデバイス開発を原子レベルで行うことができることに本研究の意義がある。

研究成果の概要(英文)：We have developed a combination system of high-performance ultra-high vacuum scanning probe microscopy and molecular beam epitaxy equipment for the spintronics research with atomic level. The system allows us to perform thin-film preparation and atomic resolution measurement without breaking vacuum, which is expected to control an easy magnetization axis of high-performance spintronics material with high reproducibility. Using this apparatus, the appearance of the initial growth of Fe on the SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13 × R13) uppermost surface was observed with high resolution using a scanning tunneling microscope. We found that the structure of the initial growth was different depending on the temperature of the substrate, and it was confirmed by scanning tunneling spectroscopy.

研究分野：走査型プローブ顕微鏡、スピndeバイス

キーワード：スピndeバイス SrTiO<sub>3</sub> 走査型トンネル顕微鏡 STM 鉄

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

シリコン (Si) よりも移動度が高い半導体ゲルマニウム (Ge) と高性能・高品質な磁性材料を融合し、次世代のスピンデバイス (スピントランジスタなど) を創成しようという研究が盛んになっている。研究分担者である浜屋は、独自の低温分子線エピタキシー法 (MBE) を開発し、高性能なエピタキシャル磁性合金 (Co<sub>2</sub>FeSi など) と Ge(111) の原子層レベルで急峻なヘテロ接合界面を実現することに成功しており、そのスピンデバイスを試作・動作実証している。一方で、磁気抵抗変化 (スピン信号) は未だ小さく、理想的な矩形のスピン信号を十分な信号強度で得られていないという課題があった。これは、スピン注入 / 検出電極に相当するエピタキシャル磁性合金の磁化容易軸を上手く制御できていないためである予想されている。実際、磁化曲線を測定した結果、磁性合金薄膜の磁化方向 (磁化容易軸) が完全に制御できていないことを示すデータが得られている。これらの事実は、スピンデバイスの高性能化のためには、原子層レベルの急峻なヘテロ接合界面の形成を実証するのみならず、半導体表面に形成された磁性薄膜面内方向の物性に関して詳細な検討が必要であることを意味している。つまり、スピンデバイスの性能を飛躍的に向上させるためには、半導体/エピタキシャル磁性金属界面が担う物性を検証する上で、ヘテロ界面の薄膜面内方向に広がる微細構造と電子状態を、原子レベルで詳細にかつ早急に調べなければどうしても突破できないという課題が存在している。

研究代表者である阿部はこれまで、周波数変調方式原子間力顕微鏡 (Frequency Modulation Atomic Force Microscope; FM-AFM) の高性能化を行い、試料表面の個々の原子識別、ケルビンプローブ力顕微鏡 (KPFM) による電荷情報の原子レベル観察、走査型トンネル顕微鏡 (STM) との同時測定 (FM-AFM/STM) による表面構造と電子状態に関する研究を行い、FM-AFM を分析顕微鏡として発展させており、原子レベルでの試料評価に関する実績があった。そこで、研究分担者である浜屋との議論において、高性能な FM-AFM/STM と MBE 装置を組み合わせ、真空を破ることなく薄膜作製と原子分解能測定ができれば、原子レベルで高性能スピントロニクス材料の磁化容易軸制御という新しい手法を提供できるのではないかという結論に至り、本研究課題を提案することになった。

### 2. 研究の目的

以上をふまえ本研究では、磁気異方性と結晶薄膜の構造の関係を明らかにすることを目的とした。具体的には、研究代表者である阿部が所有する超高真空原子分解能 FM-AFM/STM と、研究分担者である浜屋が所有するスピンデバイス作製用 MBE 装置を組み合わせ、マクロな情報 (磁気抵抗効果および磁化容易軸) と原子サイズの情報 (原子配列状態と局所電子状態) の関係を明らかにすることで、スピンデバイスの性能を左右するスピン信号の検出感度向上に向けた指針を得ることを目的とした。具体的には、以下の項目に関して研究を進めた。

1. FM-AFM/STM/MBE 複合システムの構築
2. 磁性合金薄膜成長過程における FM-AFM/STM 原子分解能測定手法の確立
3. 磁性合金の蒸着方向の違いによる原子配列状態および局所電子状態測定

### 3. 研究の方法

研究代表者・阿部所有の原子分解能・超高真空走査型プローブ顕微鏡と、分担研究者・浜屋所有の MBE 装置を組み合わせ、スピンデバイス用電極材料のマクロな特性を評価できるように、同じ条件で作製できる磁性合金薄膜の表面を原子分解能で観察できる実験環境を整備することとした。スピンデバイス材料の蒸着条件や基板の前処理方法によって、どのような原子配列状態を伴いながらスピンデバイスが形成されるのか、どのような局所電子状態になっているのかを FM-AFM/STM 測定から明らかにすることとした。

### 4. 研究成果

#### (1) FM-AFM/STM/MBE 複合システムの構築

スピンデバイス用電極材料 (Co<sub>2</sub>FeSi) の (マクロな) 特性を評価しながら、同じ条件で作製したスピンデバイス用薄膜の表面を原子分解能で観察し、マクロとナノの関係性を見出す実験環境を整備した。具体的には、研究代表者・阿部が所有する室温超高真空原子分解能 FM-AFM/STM に、分担研究者・浜屋がスピンデバイス用電極材料作製に実際に使用している分子線エピタキシー法 (MBE) 装置と同等のものを組み込んだ。MBE チャンバーを始めとするすべての装置は自身で設計し組み上げた。MBE チャンバーの他に試料を処理しながら交換もできるロードロックチャンバーも組み込んだ。成膜装置と計測装置の複合装置の欠点として、成膜装置の振動が問題となるが、FM-AFM/STM 装置の内部防振機構を工夫することでそれを解決した。

#### (2) 原子レベルでフラットな金属酸化物表面の実現と評価

本研究開始当初は Si および Ge 表面上にスピンデバイス電極を実現する予定であったが、最新の研究において SrTiO<sub>3</sub> のような金属酸化物基板上に作成したスピン電極が非常に高い移動度

を示すことがわかり、本研究の実験用基板として用いることにした。基板加熱温度および加熱時間等を調整することで、従来難しいとされてきた原子レベルで平坦な SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13xR13) 清浄表面を再現性良く作製できることが可能となった。表面構造は低速電子線回折で確認した。走査型トンネル顕微鏡を用いて SrTiO<sub>3</sub> の(R13xR13)構造の画像を得ることに成功した。

### (3) SrTiO<sub>3</sub>(100)上に除着した鉄薄膜の走査型トンネル顕微鏡測定

前年度までに開発をほぼ完了した走査型トンネル顕微鏡/分子線ビームエピタキシー (STM/MBE)複合装置を用いて、SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13xR13)最構成表面上における Fe の初期成長の様子を STM を用いて高分解能観察した。まず、SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13xR13)最構成表面の作製条件を見出すことに注力したが、過去の研究を参考に、酸素分圧下で加熱を行うことで、平坦性のある表面作製が可能になった。この表面上に MBE を用いて Fe を蒸着した。蒸着した表面と 300 で加熱した表面において、STM 画像パターンがどのように変化するかを調べた。その結果、300 で加熱した場合は、(R13xR13)構造ではあるものの、明らかにコントラストの変化があることを確認した。また、Fe 蒸着を行った表面にはクラスタ状の粒子が多く存在し、試料の加熱温度や加熱時間を変化させても、その状態が維持されて、試料表面が平坦化されるという条件を見出すことができなかった。そこで、通常の(R13xR13)構造、Fe 蒸着によってコントラスト変化した(R13xR13)表面、クラスタ状で I-V 特性を測定した。その結果、(R13xR13)構造は非常によく似た半導体の状態を示す特性が得られ、クラスタでは金属の特性が得られた。その結果より、コントラストが変化した(R13xR13)構造は Fe 蒸着によって最表面だけが影響を受けていると考えられる。また、クラスタは鉄と試料表面の酸素原子が混ざりあった状況になっていると考えられる。以上のように、分子線エピタキシー法と走査型プローブ顕微鏡を組み合わせることで、最先端のデバイス研究を原子レベルで行えることを示した。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計17件、すべて査読あり)

1. S. Ojima, D. Katsube, H. Yamashita, Y. Miyato, S. Abo, and M. Abe, "Surface structure switching between (1x1) and (1x 2) of rutile TiO<sub>2</sub>(110) with scanning tunneling microscopy and low energy electron diffraction", Jpn. J. Appl. Phys. accepted.
2. Y. Miyato, K. Otani, K. Nagashima, and M. Abe: "Ice surface formed in vapor phase at near freezing-point investigated by AFM", Jpn. J. Appl. Phys accepted.
3. D. Katsube and M. Abe: "'Dual contrast mode" imaging of anatase TiO<sub>2</sub>(001)-(1x4) reconstructed surface using non-contact atomic force microscopy", Jpn. J. Appl. Phys. accepted.
4. D. Katsube and M. Abe: "Imaging patterns of anatase TiO<sub>2</sub>(001) with non-contact atomic force microscopy", Nanotechnology Vol. 30, 215704 (2019), <https://doi.org/10.1088/1361-6528/ab02a7>.
5. M. Abe and H. Toki: "Theoretical Study of Lumped Parameter Circuits and Multiconductor Transmission Lines for Time-Domain Analysis of Electromagnetic Noise", Sci. Rep. Vol.9, Article number 118 (2019), DOI:10.1038/s41598-018-36383-3
6. D. Katsube and M. Abe: "High-resolution imaging of LaAlO<sub>3</sub> (100)-(1x4) reconstructed surface using non-contact atomic force microscopy", Appl. Phys. Lett. Vol.113, p.031601 (2018), <https://doi.org/10.1063/1.5037741>.
7. H. Kashida, Y. Hattori, K. Tazoe, T. Inoue, K. Nishikawa, K. Ishii, S. Uchiyama, , H. Yamashita, M. Abe, Y. Kamiya, H. Asanuma: "Bifacial nucleobases for hexaplex formation in aqueous solution", J. Am. Chem. Soc. Vol.140, pp.8456–8462 (2018), DOI: 10.1021/jacs.8b02807.
8. Masami Hashimoto, Takafumi Ogawa, Satoshi Kitaoka, Shunsuke Muto, Maiko Furuya, Hiroyasu Kanetaka, Masayuki Abe, Hayato Yamashita: "Control of surface potential and hydroxyapatite formation on TiO<sub>2</sub> scales containing nitrogen-related defects", Acta Materialia Vol.155, pp.379-385 (2018), <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.05.072>.
9. D. Katsube, H. Yamashita, S. Abo, and M. Abe: "Combined pulsed laser deposition and non-contact atomic force microscopy system for studies of insulator metal oxide thin films", Beilstein J. Nanotechnol. Vol.9, pp.686-692 (2018), doi:10.3762/bjnano.9.63.
10. E. K. Fodjo, A. Canlier, C. Kong, A. Yurtsever, P. L. A. Guillaume, F. T. Patrice, M. Abe, T. Tohei, A. Sakai: "Facile Synthesis Route of Au-Ag Nanostructures Soaked in PEG", *Advances in Nanoparticles* Vol. 7, pp.37-45 (2018).
11. S. Jinno, H. Toki, and M. Abe: "Mechanism of common-mode noise and heat generation in an electric circuit with grounding using multiconductor transmission-line theory", *Chinese Journal of Physics* Vol.55, pp.904-915 (2017).
12. S. Jinno, H. Toki, and M. Abe: "Configuration of Three Distributed Lines for Reducing Noise Due to the Coupling of the Common and Normal Modes", *Nuclear*

*Instrumentation and Methods in Physics Research A* Vol. 844, pp. 19–23 (2017), <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2016.11.017>.

13. Yurtsever, M. Abe, S. Morita, and Y. Sugimoto: "An atom manipulation method to substitute individual adsorbate atoms into Si(111)-(7x7) substrate at room temperature", *Appl. Phys. Lett.* Vol.111, 233102 (2017).
14. Yurtsever, M. Abe, S. Morita, and Y. Sugimoto: "Role of lateral forces on atom manipulation process on Si(111)-(7x7) surface in dynamic force microscopy", *Physical Review B* Vol.96, pp.155412/1-(2017), DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.155412>.
15. Ayhan Yurtsever, Delia Fernández-Torre, Jo Onoda, Masayuki Abe, Seizo Morita, Yoshiaki Sugimoto and Ruben Perez: "Local electronic properties of individual Pt atoms adsorbed on TiO<sub>2</sub>(110) studied with Kelvin probe force microscopy and first-principles simulations", *Nanoscale* Vol.9, pp.5812–5821 (2017).
16. Ayhan Yurtsever, Jo Onoda, Takushi Iimori, Kohei Niki, Toshio Miyamachi, Masayuki Abe, Seigi Mizuno, Satoru Tanaka, Fumio Komori, Yoshiaki Sugimoto: "Effects of Pb Intercalation on the Structural and Electronic Properties of Epitaxial Graphene on SiC", *Small* Vol.12, pp.3956-3966 (2016) DOI: 10.1002/sml.201600666
17. Ayhan Yurtsever, Jo Onoda, Masayuki Abe, Chi Lun Pang, Yoshiaki Sugimoto: "Imaging the TiO<sub>2</sub> (011)-(2x1) Surface using Noncontact Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy", *The Journal of Physical Chemistry C* Vol.120, pp 3390–3395 (2016).

[学会発表](計77件、一部抜粋)

1. 勝部大樹、大野真也、高柳周平、尾島章輝、前田元康、吉田光、西静佳、吉越章隆、阿部真之、「水吸着したアナターゼ型 TiO<sub>2</sub>(001) (1x4)再構成表面の非接触原子間力顕微鏡測定」、応用物理学会春季学術講演会、3月9日～12日、東京工業大学大岡山キャンパス、10a-W933-4.
2. 高柳周平、大野真也、勝部大樹、尾島章輝、前田元康、吉田光、西静佳、阿部真之、「リアルタイム光電子分光による水吸着二酸化チタン表面の評価」、応用物理学会春季学術講演会、3月9日～12日、東京工業大学大岡山キャンパス、12a-W933-9.
3. 大谷勝樹、宮戸祐治、長嶋剣、阿部真之、「氷点下近傍における気相成長氷のFM-AFMによる表面構造観察」、応用物理学会春季学術講演会、3月9日～12日、東京工業大学大岡山キャンパス、12a-W933-9.
4. 勝部大樹、阿部真之、「非接触原子間力顕微鏡による SrTiO<sub>3</sub> (100) ( 13x 13)-R33.7°再構成表面の観察」、2018年日本表面真空学会学術講演会、11月19日～21日、神戸国際会議場 (3Bp07S) .
5. Diao Zhuo, 杉本宜昭、勝部大樹、阿部真之、「機械学習を用いた周波数シフトカーブの自動解析」、2018年日本表面真空学会学術講演会、11月19日～21日、神戸国際会議場 (3Ba04) .
6. 山下隼人、勝部大樹、阿部真之、「TiO<sub>2</sub> 表面における脂質膜の光触媒分解過程の高速原子間力顕微鏡観察」、2018年日本表面真空学会学術講演会、11月19日～21日、神戸国際会議場 (2Ip14) .
7. D. Katsube and M. Abe, "Imaging of LaAlO<sub>3</sub>(100) (1x4) Reconstructed Surface by Non-Contact Atomic Force Microscopy", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (23D18).
8. D. Katsube and M. Abe, "Investigation of Anatase-TiO<sub>2</sub>(001) (1x4) Reconstructed Surface by Non-Contact Atomic Force Microscopy", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (23P055).
9. D. Katsube and M. Abe, "Non-Contact Atomic Force Microscopy Observation of SrTiO<sub>3</sub>(100) ( 13x 13)-R33.7° Reconstructed Surface", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (23P054).
10. D. Zhuo, Y. Sugimoto, D. Katsube and M. Abe, "Machine-learning Extraction of Short-Range Force Part with Non-contact Atomic Force Microscopy", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (22P026).
11. M. Maeda, D. Katsube, S. Abo, Y. Miyato, H. Yamashita, S. Yamada, K. Hamaya and M. Abe, "Cleaning SrTiO<sub>3</sub>(100) surface for spin device processes", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (22P024).
12. S. Ojima, D. Katsube, H. Yamashita, Y. Miyato, S. Abo and M. Abe, "Transition of Surface Structure from (1x1) to (1x2) of Rutile TiO<sub>2</sub>(110)", ACSIN-14 & ICSPM26 October 21 - 25, 2018, Sendai International Center, Sendai, Japan (22P020).
13. Masami Hashimoto, Takafumi Ogawa, Satoshi Kitaoka, Shunsuke Muto, Maiko Furuya, Hiroyasu Kanetaka, Masayuki Abe, Hayato Yamashita, "MC3T3-E1 Cellular Response and Protein Detection on Surface Potential-Controlled TiO<sub>2</sub> Scale in Serum-Containing

- Medium”, 30th Symposium and Annual Meeting of the International Society for Ceramics in Medicine, Nagoya, Japan October 26-29, 2018 (P-54)
14. 尾島 章輝、勝部 大樹、宮戸 祐治、山下 隼人、阿保 智、阿部 真之、”ルチル型 TiO<sub>2</sub>(110) 表面における (1×1) 構造から (1×2) 構造への構造遷移観察”、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018/9/18-21、名古屋国際会議場、18p-143-12.
  15. 勝部 大樹、阿部 真之、”非接触原子間力顕微鏡による SrTiO<sub>3</sub>(100) ( 13× 13) R33.7 ° の観察”、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018/9/18-21、名古屋国際会議場、18p-143-11.
  16. ちょう たく、勝部 大樹、阿部 真之、”機械学習を用いた周波数シフトカーブの自動処理法”、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018/9/18-21、名古屋国際会議場、18p-143-3.
  17. (INVITED) M. Abe: “Imaging Contrast of Anatase TiO<sub>2</sub>(001) with Non-Contact Atomic Force Microscopy”, The 3rd International Symposium on “Recent Trend in the Elucidation and Function Discovery of Next Generation Function Materials of Surface/Interface Properties”, 18th June 2018, Osaka University, Japan.
  18. M. Hashimoto, T. Ogawa, S. Kitaoka, S. Muto, M. Furuya, H. Kanetaka, M. Abe, and H. Yamashita, “MC3T3-E1 cellular response and protein detection on surface potential-controlled TiO<sub>2</sub> scale in serum-containing medium”, Bioceramics30, Nagoya University.
  19. 勝部 大樹、ユルトセベル アイハン、阿部 真之、”非接触原子間力顕微鏡によるアナターゼ型 TiO<sub>2</sub>(001) (1×4)再構成表面の原子分解能観察”、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018/3/17-20、早稲田大学西早稲田キャンパス、17p-P5-1.
  20. 尾島 章輝、勝部 大樹、宮戸 祐治、山下 隼人、阿保 智、阿部 真之、”非接触原子間力顕微鏡を用いたルチル型 TiO<sub>2</sub>(110) (1×2)再構成表面の原子分解能観察”、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018/3/17-20、早稲田大学西早稲田キャンパス、8a-F210-7.

〔図書〕(計3件)

1. M. Abe: Compendium of Surface and Interface Analysis (Eds. The Surface Science Society of Japan), Chapter 34 " Frequency Modulation Atomic Force Microscopy", pp.201-204, Springer, ISBN-10: 9811061556, ISBN-13: 978-9811061554 (2018).
2. 阿部真之、土岐博：電気回路と伝送線路の基礎，丸善，ISBN-10: 978-4-621-30206-4 (2017).
3. 阿部真之：ナノ材料解析の実際（編著：米澤徹，朝倉清高，幾原雄），第14章 “原子間力顕微鏡（AFM）”，講談社，ISBN：978-4-06-154392-8 (2016).

〔産業財産権〕

出願状況（計4件）

名称：電気回路のシミュレーション方法、及びプログラム

発明者：阿部真之，土岐博，神野崇馬，木虎秀二

権利者：国立大学法人大阪大学

種類：特許

番号：特願 2018-057186

出願年：2018

国内外の別：国内

名称：バンドパスフィルタ

発明者：阿部真之，土岐博，宮内清孝

権利者：国立大学法人大阪大学

種類：特許

番号：特願 2018-039408

出願年：2018

国内外の別：国内

名称：ナノ微粒子、及びナノ微粒子の製造方法

発明者：一柳優子，橋本達哉，千本松孝明，田中秀吉，阿部真之

権利者：国立大学法人横浜国立大，学学校法人埼玉医科大学，国立研究開発法人情報通信研究機構，国立大学法人大阪大学

種類：特許

番号：特願 2018-038989

出願年：2018

国内外の別：国内

名称：スキャナ及び走査型プローブ顕微鏡

発明者：山下隼人，阿部真之

権利者：国立大学法人大阪大学  
種類：特許  
番号：特願 2017-002183  
出願年：2017  
国内外の別：国内

取得状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等 <http://www.ae.stec.es.osaka-u.ac.jp/wp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：浜屋宏平

ローマ字氏名：HAMAYA, Kohei

所属研究機関名：大阪大学

部局名：大学院基礎工学研究科

職名：教授

研究者番号（8桁）：90401281

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。