

令和 3 年 5 月 10 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21850

研究課題名(和文) グラフェンナノリボンを用いた新しいスピンフィルタ機能の創製

研究課題名(英文) Novel spin filter function using graphene nanoribbon

研究代表者

新見 康洋(Niimi, Yasuhiro)

大阪大学・理学研究科・准教授

研究者番号：00574617

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、これまでスピントロニクスになかった「スピンフィルタ機能」を、グラフェン1次元鎖(ナノリボン)で実現することを目的とした。端がジグザグ型の場合、両端でスピン偏極するため、これを利用することでスピンフィルタの機能を付与できる。まず、酸素及び水素プラズマをグラフェンに照射することで、ジグザグ端ナノリボンの作製を目指したが、高分解能原子間力顕微鏡を用いないと、グラフェンの端状態を確かめられないことが分かった。そこで、グラフェン全体に電極を取り付けて磁気輸送測定を行ったところ、プラズマ照射時間の増加とともに、弱局在効果によるゼロ磁場付近の磁気抵抗増大が観測された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

今後は幅100 nm以下のグラフェンナノリボンの作製、さらには電界効果を用いて、スピンフィルタ機能を付与したデバイスの作製に挑戦する。同様の機能は「電界効果スピントランジスタ」としてダッタとダスが提案しているが、未だ実現できてない。グラフェンナノリボンでスピンフィルタを実現できれば、1次元フラットバンド強磁性という未だ実証されていない物性物理の基本問題に答えるだけでなく、スピン抽出という新機能をスピントロニクスデバイスに付与できる。

研究成果の概要(英文)：In this work, we aimed to develop spin filter function using one-dimensional graphene chain, i.e., graphene nanoribbon. If the edges have zigzag shape, spin polarized states are realized at the edges. In such a case, spin filter function can be added by doping holes in graphene and applying a tiny magnetic field. For this purpose, we tried to fabricate graphene nanoribbons in between hexagonal defects which can be formed by irradiating oxygen and hydrogen plasma. However, it turned out that a high-resolution atomic force microscopy was needed to confirm the edge shape. Thus, we performed magnetotransport measurements for the irradiated graphene sample. A clear weak localization peak was observed near zero magnetic field. This peak increases with increasing the irradiation time. In future, we will try to make graphene nanoribbons with a width of less than 100 nm and fabricate spin filter devices where spin states can be selectively tuned by gating.

研究分野：低温スピン物性

キーワード：グラフェン ナノリボン トポロジ ー スピンフィルタ スピントロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

物性物理学において、電子のもつ電荷とスピンの自由度を制御・利用し、さらに新しい機能を創出することは、最も重要な課題である。その代表的な成功例はスピントロニクスと呼ばれる分野で、1980年代後半に巨大磁気抵抗効果が発見されたのを契機に、現在に至るまで多岐に渡る研究が行われ、実際に役に立つ形で利用されている。本研究課題では、スピントロニクスにこれまでなかった新しい「スピンフィルタ」という機能を、グラフェンのトポロジカルな性質を用いて創製する。これにより、スピントロニクス及びトポロジ物理の分野に新潮流をつくり出すことができる。

スピンフィルタの舞台として、本研究ではグラファイトシート（グラフェン）の1次元鎖（ナノリボン）を用いる。グラフェンの端には、ジグザグ型とアームチェア型の2種類の形状が存在する（図1）。このうちジグザグ型の端のみに、局在した電子状態「グラフェン端状態」の存在が理論的に予測されていた[M. Fujita *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1920 (1996).]。この局在状態は、フェルミエネルギー付近にできる2枚のフラットバンドに起因する（図1(a)右）。2005年に筆者らは走査トンネル顕微・分光法を用いて、グラフェン端状態を初めて実験的に証明した[Y. Niimi *et al.*, *Appl. Surf. Sci.* **241**, 43 (2005); Y. Niimi *et al.*, *Phys. Rev. B* **73**, 085421 (2006).]。またジグザグ型の端には、フラットバンドに起因するスピン偏極した状態が存在することも理論的に予測されている[K. Wakabayashi *et al.*, *Phys. Rev. B* **59**, 8271 (1999).]。

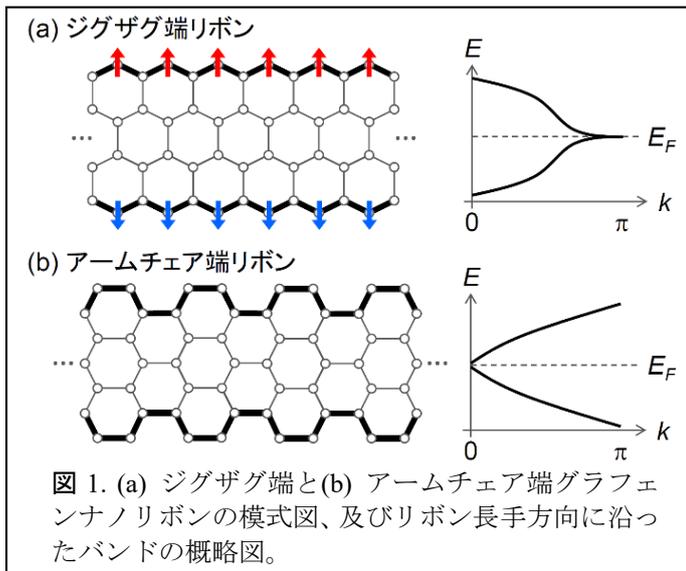


図1. (a) ジグザグ端と(b) アームチェア端グラフェンナノリボンの模式図、及びリボン長手方向に沿ったバンドの概略図。

このようにグラフェンの端では、トポロジに起因した興味深い物性をもつが、これを実際のデバイスに応用した研究はまだ行われていない。最大の理由は、グラフェンの端を制御してリボン状に切り出すことが非常に難しい点にある。しかし最近になって、水素プラズマをグラファイト表面に照射することで、ジグザグ型の端のみをもつリボン（幅は50 nm程度）を作製することが可能になりつつある[T. Matsui *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **123**, 22665 (2019).]。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、ジグザグ端グラフェンナノリボンを用いて、端のスピン状態を電界で制御可能なスピンフィルタを創製することを目的とする。同様の機能は「電界効果スピントランジスタ」としてダッタとダスが提案しているが[S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).]、未だ実現できてない。グラフェンナノリボンでスピンフィルタを実現できれば、1次元フラットバンド強磁性[A. Mielke, *J. Phys. A* **24**, 3311 (1991).]という未だ実証されていない物性物理の基本問題に答えるだけでなく、スピン抽出という新機能をスピントロニクスデバイスに付与できる。

### 3. 研究の方法

ジグザグ端グラフェンナノリボンの作製は、東京大学大学院理学系研究科の福山寛教授（現東京大学名誉教授）、松井朋裕助教（現アンリツ先端研究所）と連携して行った。まず始めに、シリコン基板上に化学気相蒸着（chemical vapor deposition: CVD）法を用いてグラフェンシートを成長させた。その後、水素プラズマ処理を行い、グラフェン表面をエッチングして六角形ナノピットを形成させた。

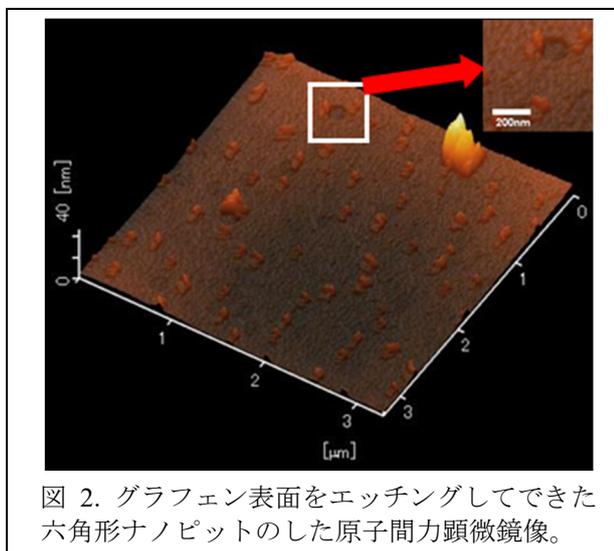


図2. グラフェン表面をエッチングしてできた六角形ナノピットのした原子間力顕微鏡像。

CVD)した単層グラフェンに対して、酸素プラズマ及び水素プラズマを照射することで、先行研究と同様に[T. Matsui *et al.*, J. Phys. Chem. C **123**, 22665 (2019).], ジグザグ端をもつ六角形ナノピットの作製を目指した。CVD グラフェンの利点は、基板全体に一樣に、ジグザグ端六角形ナノピットが複数形成される点である。これにより、六角形ナノピット間に挟まれたジグザグ端グラフェンナノリボンを探しやすくなる。プラズマ照射時間や酸素及び水素の圧力の条件をいくつか試したが、バルクグラファイト表面で作製されるような六角形ナノピットを作製することができなかった。これは、下面にあるグラファイト層の有無に起因していると考えられる。

そこで今度は、シリコン基板上に機械的剥離法で作製した3層グラフェンに対して、プラズマ照射で六角形ナノピットを作製した。図2にグラフェン表面の典型的な原子間力顕微鏡像を示す。六角形サイズとしては、100 nm程度に留まり、想定していたサイズの1/100程度となっていたが、六角形のナノピットを得ることに成功した。

上述したように、本来は六角形ナノピットに挟まれたジグザグ端グラフェンナノリボンを用いてスピンバルブ素子を作製する予定であったが、想定していたサイズよりも小さな六角形ナノピットしか形成できなかった。また、現在保有している原子間力顕微鏡では、分解能の問題で端の形状まで特製することはできないことも分かった。これらに関しては、今後の課題である。しかしこのような欠陥が、グラフェンの電子輸送に大きな影響を及ぼすことが予想される。そこで以下では、3層グラフェン全体に電流が流れるように、TiとAuで電極付けを行い、磁気抵抗に現れる弱局在効果から、欠陥の導入量を間接的に見積もることとした。

#### 4. 研究成果

酸素プラズマを照射しない試料、1分、5分照射した3種類のグラフェン試料を用いて、磁気抵抗を測定した。グラフェン試料内では、欠陥に散乱されることで、弱局在効果が発現するが、そこに磁場を印加すると、干渉効果が解消され、磁気抵抗の減少が観測される。磁気抵抗の幅から、グラフェン試料内の位相緩和長を求めることができる。位相緩和長は、電子が量子性を保持できる典型的な距離を表し、温度に大きく依存する。一方、通常の弱局在効果と異なり、グラフェンではKとK'という2つの谷自由度が存在する。谷間散乱と谷内散乱の情報も磁気抵抗に反映されるため、その欠陥濃度依存性、温度依存性も調べた。

図3に、3種類のグラフェン試料の磁気抵抗の結果を示す。エッチングを施していないグラフェンでは、0 T付近に小さな負の磁気抵抗が生じ、高磁場ではグラフェンの線形バンドを反映した正の磁気抵抗が観測されている。酸素プラズマエッチングする時間を増やすことで、弱局在効果による負の磁気抵抗の増大が観測された。得られた磁気抵抗を、MacCannが2007年に提唱した、谷間及び谷内散乱を反映させた弱局在効果の式[E. McCann *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 146805 (2006).]でフィッティングすることで、位相緩和長 $L_\phi$ 、谷間散乱長 $L_i$ 、谷内散乱長 $L_*$ の温度依存性を算出した。図4に3種類のグラフェン試料で得られた $L_\phi$ 、 $L_i$ 、 $L_*$ の温度( $T$ )依存性の結果を示す。 $L_\phi$ は温度の上昇とともに $T^{1/2}$ に反比例する形で減少し、これは典型的な2次元電子系で期待される効果である[Y. Niimi *et al.*, Phys. Rev.

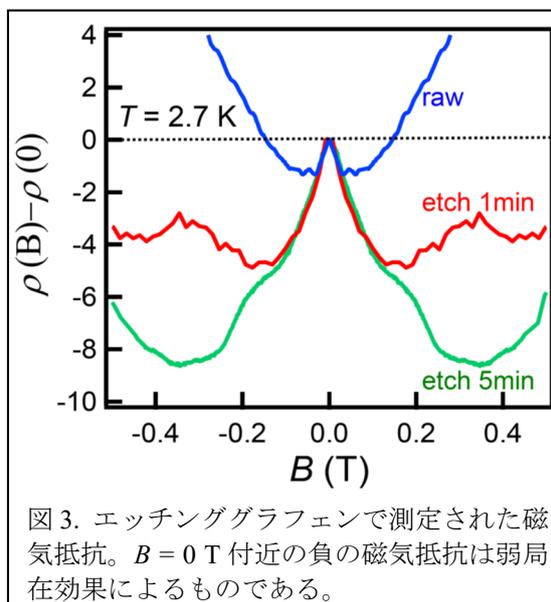


図3. エッチンググラフェンで測定された磁気抵抗。 $B = 0$  T付近の負の磁気抵抗は弱局在効果によるものである。

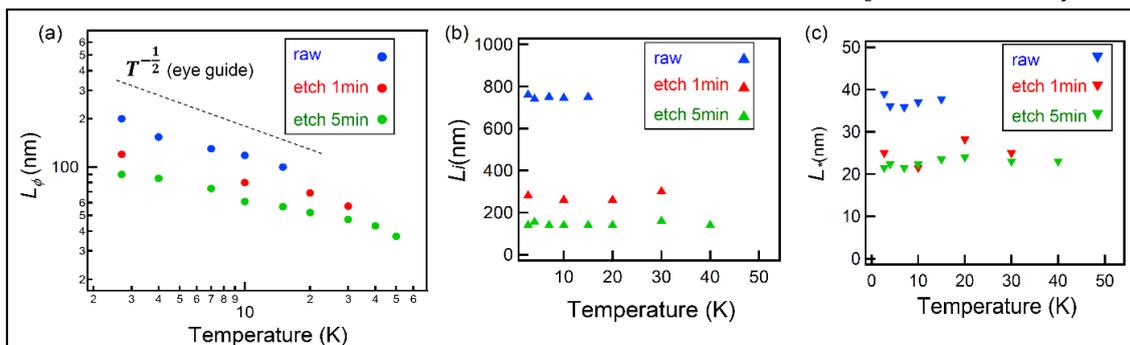


図4. 3種類のグラフェン試料 (raw, etch 1min, etch 5min) の(a) 位相緩和長 $L_\phi$ 、(b) 谷間散乱長 $L_i$ 、(c) 谷内散乱長 $L_*$ の温度依存性。

B 81, 245306 (2010).]. 一方、 $L_i$ 、 $L^*$ は温度には大きく依存しない。 $L_i$ は試料内の欠陥に依存する量で、予想通りエッチング時間を増やしてナノピットの数を増やすと減少するのに対して、 $L^*$ は欠陥量にほとんど依存しなかった。現在上述の結果を、投稿準備中である。

本研究では、六角形ナノピットの大きさが想定したサイズの1/100程度に留まったため、ジグザグ端ナノリボンの作製には至らなかった。今後は、酸素及び水素プラズマの照射時間やパワー、ガス圧などを詳細に調整することで、1  $\mu\text{m}$ 程度の大きさのナノピットを作製することを目指す。これにより、グラフェン上に六角形ナノピットに挟まれたジグザグ端ナノリボンを歩留まりよく作製できるようになる。

ジグザグ端ナノリボンが作製できるようになれば、図5(a)に示すようなスピンバルブ素子を作製する。ジグザグ端ナノリボンであればグラフェン端状態が存在するため、スピン蓄積がほとんど減衰しない。次にグラフェンナノリボンにスピントラップ機能を付与する。グラフェンにゲート電圧を印加して、ホールをドーピングすると、ジグザグ端の両端で実現していた反強磁性体的な秩序が小さくなり、ナノリボン全体の磁性を容易に揃えることができる。ゲート電圧を印加しなければ(図5(b)参照)、アップ・ダウン両方のスピンをもつ電子が通過するのに対し、図5(c)に示すように、ホールをドーピングして、ジグザグ端グラフェンナノリボンに電流を流すと、ダウンスピンは通過できないため、100%アップスピンに偏極した状態、つまりスピントラップ機能を創製できる。このようにスピントラップ機能のONとOFFを簡単に電界で制御できることが、グラフェンナノリボンを用いた回路の最大の特徴である。

この研究課題が達成されれば、超低損失スピン流素子を実現するために、ジグザグ端グラフェンリボンを用いて、スピン選択という機能創製への道が拓かれる。この機能は現存するスピン流の生成、検出機能と簡単に組み合わせることが可能である。さらに、今後スピン流の増幅機能など未開拓機能が開発されれば、スピン流を基とした超低消費電力デバイス実現がより一層現実のものとなる。

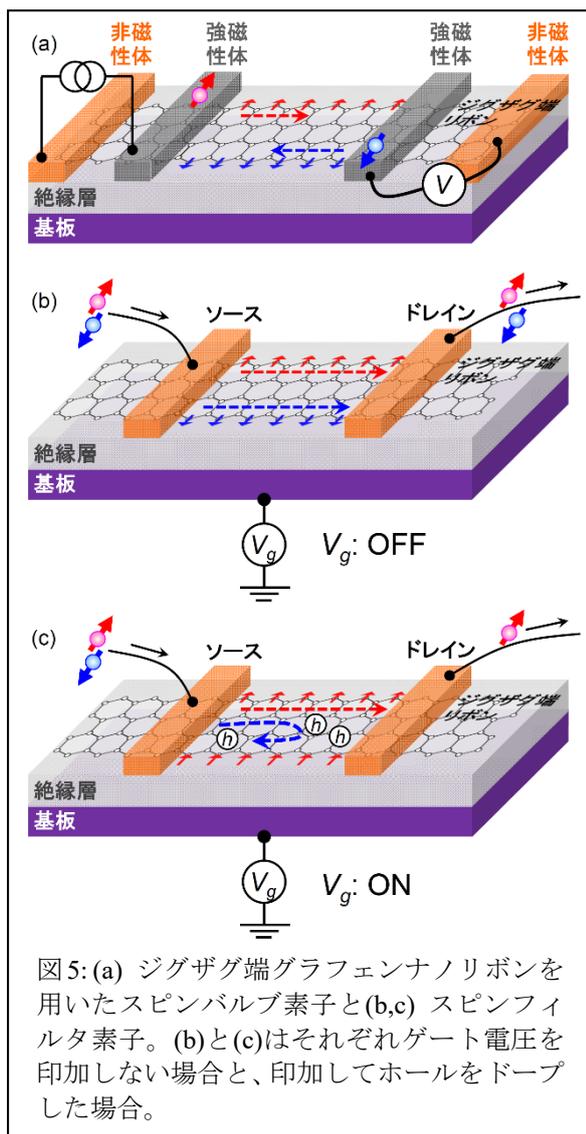


図5: (a) ジグザグ端グラフェンナノリボンを用いたスピンバルブ素子と(b,c) スピントラップ素子。(b)と(c)はそれぞれゲート電圧を印加しない場合と、印加してホールをドーピングした場合。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 花田尚輝, 松井朋裕, 鈴木将太, 井邊昂志, 谷口祐紀, 福山寛, 小林研介, 新見康洋
2. 発表標題 グラフェンナノリボンを用いたスピン輸送測定を試み
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 花田尚輝, 浅野拓也, 鈴木将太, 松井朋裕, 福山寛, 小林研介, 新見康洋
2. 発表標題 ジグザグ端グラフェンの作製及び輸送測定を試み
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花田尚輝, 岩切秀一, 浅野拓也, 松井朋裕, 福山寛, 小林研介, 新見康洋
2. 発表標題 エッチンググラフェンにおける弱局在効果の増幅
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------