

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 30 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600009

研究課題名(和文)局在スピン検出に向けた走査電気磁気効果複合顕微法(SEMEM)の開発

研究課題名(英文)Development of Scanning Electronic-Magnetic Effect Microscopy (SEMEM) for electric-field-induced localized spin detection

研究代表者

青木 伸之(Aoki, Nobuyuki)

千葉大学・融合科学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60312930

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：電場で誘起される局在スピンの検出に向けて、走査ゲート顕微法(SGM)と磁気力顕微法(MFM)を高度に組み合わせた『走査電気磁気効果複合顕微法(SEMEM)』の開発に向けた研究を行った。原子間力顕微鏡の探針を局所ゲート電極として利用し、試料の伝導度変化を画像化するSGMを進化させ、1点毎に探針電圧やソースドレイン電圧をスイープさせる走査ゲートスペクトロスコピー(SGS)に拡張し、さらに強磁性探針を用いることで局在スピンモーメントに対する磁気応答(MFM)の観測を可能とし、電場誘起のスピン局在現象の検出が期待して研究を進めた。

研究成果の概要(英文)：A new scanning probe technique, Scanning Electronic-Magnetic Effect Microscopy (SEMEM), has been studied by combining both scanning probe techniques such as Scanning Gate Microscopy (SGM) and Magnetic Force Microscopy (MFM) in order to detect a localized spin induced by electric field. By sweeping the probe voltage or the source-drain voltage with fixing the tip position on the sample surface, a new probing technique namely a Scanning Gate Spectroscopy (SGS) has been realized in this study. In addition, using a ferromagnetic tip, the technique can be expected to detect a localized spin moment.

研究分野：半導体物性

キーワード：走査ゲート顕微法(SGM) 磁気力顕微法(MFM) 走査電気磁気効果複合顕微法(SEMEM) 局在スピン  
走査ゲートスペクトロスコピー(SGS)

### 1. 研究開始当初の背景

走査プローブ顕微鏡 (SPM) の発展はめざましく、様々な顕微法が開発されてきた。その中で、研究代表者らは原子間力顕微鏡 (AFM) の導電性探針を局所的な「可動ゲート電極」として利用する走査ゲート顕微法 (SGM) に着目し、これまで量子ポイントコンタクト (QPC) や開放系量子ドットにおける量子伝導現象から、有機半導体やカーボンナノチューブによる電界効果トランジスタに適用し、イメージングを通じたナノスケールでの電気伝導現象の評価を行ってきた (たとえば Aoki et al., Phys. Rev. Lett., **108**, 136804, 2012)。従来の SPM では探針により“力”を検出して画像化するのに対し、SGM では探針からの電場変調に対する試料の伝導度の変化を画像化するため、得られる画像はより複雑となり、一朝一夕に理解することは難しい。しかし、複合して現れる現象を紐解いて識別することで、様々な現象の検証に成功してきた。このような実績を背景に、本研究では 1) 探針に印加するゲート電圧をスイープして伝導度変化を評価する局所ゲートスペクトロスコープと 2) 強磁性探針による磁気応答の検出を複合した、画期的な『走査電気磁気効果複合顕微法 (SEMEM)』を着想し、電場誘起の局在スピンの検出に着手した。

### 2. 研究の目的

電場で誘起される局在スピンの検出に向けて、走査ゲート顕微法 (SGM) と磁気力顕微法 (MFM) を高度に組み合わせた『走査電気磁気効果複合顕微法 (SEMEM)』の開発に挑戦する。原子間力顕微鏡の探針を局所ゲート電極として利用し試料の伝導度変化を画像化する SGM を進化させ、1 点毎に探針電圧をスイープさせる走査ゲートスペクトロスコープ (SGS) に拡張する。さらに強磁性コート探針を用いることで局在スピンモーメントに対する磁気応答 (MFM) のマッピングを可能とし、電場誘起のスピン局在現象の検出にチャレンジする。これにより、量子ポイントコンタクトで観測される非整数段現象 (0.7 構造) や、局在スピン共鳴現象、ウィグナスピン結晶といった、未解明なスピン局在現象の解明へとつなげる。局所電場変調と磁場検出とを複合させた、新しいナノプローブ顕微評価技術を開拓することにある。

### 3. 研究の方法

『走査電気磁気効果複合顕微法 (SEMEM)』の実現に向け、26 年度当初は基礎技術の開発を進める。従来の走査ゲート顕微法 (SGM) のシステムを変更し、探針に印加する電圧をスイープする走査ゲートスペクトロスコープ (SGS) の観察手法を立ち上げる。その際、強磁性探針を導入し、SGM/SGS と磁気力顕微鏡 (MFM)

観察の両立を図る。さらに、SGS をグラフェンの観察に適用し、探針からの電場スイープ (SGS) 中に誘起された強磁性エッジの MFM 応答を検出し、SEMEM の動作確認を行う。これらの技術の確立の上で、量子ポイントコンタクトにおける局所ゲートスペクトロスコープを取りながら MFM 観察を行うことで、電場誘起局在スピンの発現に関して検証を行う。この SEMEM 技術の確立により、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などのマルチフェロイックの電場誘起強磁性材料への情報の書込みと読み出しといった技術への応用も可能となり、スピントロニクス応用の可能性を探索する。

### 4. 研究成果

(1) 研究開始当初は基礎技術の開発を進めた。従来の走査ゲート顕微法 (SGM) のシステムを改良し、探針に印加する電圧を固定して、スイープする走査ゲートスペクトロスコープ (SGS) の観察手法の立ち上げを進めた。SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に分散した単層カーボンナノチューブのネットワーク型 FET に対して SGM 観察を行うとリング状の応答が観察される。この応答はカーボンナノチューブ内の欠陥によって局在化した電子によるクーロンブロック現象によるものであると考えられる。このようなリング状の応答は離散的なエネルギーレベルの形成を示唆するものであるが、通常は極低温でより顕著となる現象であるといえる。そのため、室温で観測されることはまれであるが、そのエネルギー準位間隔が室温のエネルギーに比べて十分に大きければ観測の可能性が考えられる。そこで、直流電圧に加えて交流電圧を印加した探針を応答個所の近傍に固定して、ソース・ドレイン電圧を負から正にスイープすることで、探針からの交流電界によって変調されたドレイン電流を観測した。この交流変調電流をバックゲート電圧に対してプロットしていくと、クーロンダイヤモンドに対応する現象の観測に成功した。この結果より、局在化領域の帯電エネルギーを見積もることができ、室温よりも十分に高いことが確認され、また帯電エネルギーの値から、量子ドットの大きさがおよそ 10 nm 程度であることが見積もられた。このように、SGM 観察においてソース・ドレイン電圧をスイープした SGS によって、局所ゲート応答個所の特定のみならず、量子ドットに対する定量的な評価につながることを見出すことができた。

(2) より高い解像度をめざし、SGM 観察用のカンチレバーとして当研究グループでは DFM 型の高分解カンチレバーの導入を進めてきたが、本研究を通してチューニングフォークの利用も開始し、電解研磨エッチングによる W 探針の作製、およびチューニングフォークを使用するための電気回路を整備した。これにより大気中および真空中で動作可能

なチューニングフォーク型の SPM を完成させた。この装置の特徴は、真空チャンバーの上面に光学窓を有しており、光学窓の上面から試料位置までの距離を 20 mm 以内に設計することで、試料位置がずれるため、光学窓を通した真空中での SPM 観察と同時に加えて、顕微ラマン散乱分光測定やフォトルミネッセンス測定が可能となっていることにある。この装置を利用して、MoS<sub>2</sub> 試料の特性評価を進めている。また、SPM 探針と試料に対する配線形状を最適化およびスパッタ法による SPM 探針への強磁性体成膜に関する整備も進めた。SGM 観察に関しては、大気中での MoS<sub>2</sub>-FET の観察を進め、MoS<sub>2</sub> チャンネル内に連続的な SGM 応答を観測し、そこでは大きな電圧降下が生じていることを見いだした。対照実験により、低ドーズの電子線照射によって結晶内に応力が働き、それによってバンドギャップが変化している可能性を示唆する結果が得られた。MoS<sub>2</sub> における新しい特性変調法として現在研究を進めている。

(3) 極低温での局在磁気モーメントの観測実験の準備として、金属で形成したスプリットゲート型量子ポイントコンタクトに関する低温 SGM 観察に関する予備データの収集を行った。今回の試料では伝導度の量子化が明瞭ではなく、ゼロ磁場での十分な成果が得られなかったが、ピンチオフ直前において局所ゲートが存在することによる異常な伝導度上昇が観測されるなど、局在スピンの存在を示唆する結果が得られた。また、高磁場では伝導度の整数値での量子化に加え、非整数値の階段構造が SGM により視覚化することができた。

(4) 磁気的変調効果と電気的変調効果の両方が期待される材料として、グラフェン量子ドットに注目して MFM と EFM の同時観察を進めた。グラフェン量子ドットではエッジ効果によるスーパーパラマグネティックの特性と、炭素ネットワークに特有の反磁性的な特性が現れること期待される。通常の EFM とは異なる応答が観察されてきているが、MFM と EFM の応答を分離することが難しく、これらの現象の解釈には更なる研究が必要である。

## 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 13 件)

S. Xiao, Y. Yoon, Y.-H. Lee, J. P. Bird, Y. Ochiai, N. Aoki, J. L. Reno, and J. Fransson: Detecting weak coupling in mesoscopic systems with a nonequilibrium Fano resonance, *Phys. Rev. B* **93**, 165435-1-13, (2016). (査読有)

Chiashain Chuang, Masahiro Matsunaga, Fan-Hung Liu, Tak-Pong Woo, Li-Hung Lin, Kenichi Oto, Yuichi Ochiai, Chi-Te Liang and Nobuyuki Aoki: Imaging coherent transport in chemical vapor deposition graphene wide constriction by scanning gate microscopy, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 123105-1-4, (2016). (査読有)

Chieh-I Liu, Pengjie Wang, Jian Mi, Hsin-Yen Lee, Chi Zhang, Xi Lin, Chiashain Chuang, Nobuyuki Aoki, Randolph E. Elmquist, and Chi-Te Liang: Charge Trapping in Monolayer and Multilayer Epitaxial Graphene, *Journal of Nanomaterials* **2016**, 7372812-1-4, (2016) (査読有)

C. Chuang, M. Matsunaga, F.-H. Liu, T.-P. Woo, N. Aoki, L.-H. Lin, B.-Y. Wu, Y. Ochiai and C.-T. Liang: Probing weak localization in chemical vapor deposition graphene wide constriction using scanning gate microscopy, *Nanotechnology* **27**, 075601-1-7, (2016). (査読有)

Akram M. Mahjoub, Shinichi Suzuki, Takahiro Ouchi, Nobuyuki Aoki, Katsuhiko Miyamoto, Tomohiro Yamaguchi, Takashige Omatsu, Koji Ishibashi and Yuichi Ochiai: Terahertz bolometric detection by thermal noise in graphene field effect transistor, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 083506-1-4, (2015). (査読有)

Lijun Li, Inyeal Lee, Dongsuk Lim, Moonshik Kang, Gil-Ho Kim, Nobuyuki Aoki, Yuichi Ochiai, Kenji Watanabe and Takashi Taniguchi: Raman shift and electrical properties of MoS<sub>2</sub> bilayer on boron nitride substrate, *Nanotechnology* **26**, 295702-1-6 (2015). (査読有)

G. He, K. Ghosh, U. Singiseti, H. Ramamoorthy, R. Somphonsane, G. Bohra, M. Matsunaga, A. Higuchi, N. Aoki, S. Najmaei, Y. Gong, X. Zhang, R. Vajtai, P. M. Ajayan, and J. P. Bird: Conduction Mechanisms in CVD-Grown Monolayer MoS<sub>2</sub> Transistors: From Variable-Range Hopping to Velocity Saturation, *Nano Lett.* **15**, 5052-5058 (2015). (査読有)

Servin Rathi, Inyeal Lee, Dongsuk Lim, Jianwei Wang, Yuichi Ochiai, Nobuyuki Aoki, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gwan-Hyoung Lee, Young-Jun Yu, Philip Kim, and Gil-Ho Kim: Tunable Electrical and Optical Characteristics in Monolayer Graphene and Few-Layer MoS<sub>2</sub> Heterostructure Devices, *Nano Lett.* **15**, 5017-5024 (2015). (査読有)

Shaohua Xiang, Kazuhiro Fuji, Shun Sato, Shiran Xiao, Jonathan P. Bird, Nobuyuki Aoki and Yuichi Ochiai: Metal-Insulator Transition in the

Quasi-One-Dimensional Transport of Fractional Quantum Hall States, *J. Phys.: Condens. Matter* **27**, 202201-1-6 (2015). (査読有)

Chiashain Chuang, Tak-Pong Woo, Akram M. Mahjoub, Takahiro Ouchi, Chang-Shun Hsu, Chia-Pei Chin, Nobuyuki Aoki, Li-Hung Lin, Yuichi Ochiai, and Chi-Te Liang: Current scaling and Dirac fermion heating in multi-layer grapheme, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology* **15**, 1195-1198 (2015). (査読有)

Chiashain Chuang, Tak-Pong Woo, Akram. Mahjoub, Takahiro Ouchi, Chang-Shun Hsu, Chia-Pei Chin, Nobuyuki Aoki, Li-Hung Lin, Yuichi Ochiai, and Chi-Te Liang: Weak localization and universal conductance fluctuations in multi-layer graphene, *Current Applied Physics* **14**, 108-111 (2014). (査読有)

H. Ramamoorthy, R. Somphonsane, G. He, N. Aoki, Y. Ochiai, D. K. Ferry, and J. P. Bird: Reversing hot-carrier energy relaxation in graphene with a magnetic field, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 193115 (2014). (査読有)

N. Aoki, C. R. da Cunha, R. Akis, D. K. Ferry and Y. Ochiai: Scanning gate imaging of a disordered quantum point contact, *J. Phys.: Condens. Matter* **26**, 193202-1-13 (2014). (査読有)

[学会発表](計20件)

松永正広, 樋口絢香, Guanchen He, Jonathan P. Bird, 落合勇一, 青木伸之: 走査ゲート顕微法によるMoS<sub>2</sub>トランジスタの動作機構の解析2, 日本物理学会第71回年次大会, 20pBE-5, p.1871, 東北学院大学, 宮城県, 3月19日~3月22日, 2016.

Chianshain Chung, Masahiro Matsunaga, Fan-Hung Liu, Tak-Pong Woo, Li-Hung Lin, Bi-Yi Wu, Yuichi Ochiai, Chi-Te Liang, Nobuyuki Aoki: Imaging coherent transport in chemical vapor deposition grapheme wide constriction by scanning gate microscopy, 日本物理学会第71回年次大会, 19aBA-8, p.1299, 東北学院大学, 宮城県, 3月19日~3月22日, 2016.

峰晴正彰, 松永正広, 青木伸之, 落合勇一, D.K. Ferry, J.P.Bird, 渡邊賢司, 谷口尚, I. Lee, G-H. Kim, BN/graphene/BN試料における量子伝道現象の観測, 日本物理学会第71回年次大会, 19aBA-6, p.1297, 東北学院大学, 宮城県, 3月19日~3月22日, 2016.

樋口 絢香, 松永 正広, He Guanchen, Bird Jonathan, 落合 勇一, 青木 伸之: 走査ゲートによるMoS<sub>2</sub>トランジスタの視覚化, 第50回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合

シンポジウム, IP-38, p.78, 東京大学, 東京都, 2月19日~22日, 2016.

Masaaki Mineharu, Masahiro Matsunaga, Yuichi Ochiai, Inyeal Lee, Gil- Ho Kim, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, David K. Ferry, Jonathan Bird and Nobuyuki Aoki: Conductance Fluctuations in High-Mobility Bilayer-Graphene/h-BN Heterostructures, ISANN2015, p.108, Hawaii, U.S.A., Nov.30-Dec.4, 2015.

Masahiro Matsunaga, Ayaka Higuchi, Guanchen He, Yuichi Ochiai, Jonathan Bird and Nobuyuki Aoki: Scanning gate imaging of MoS<sub>2</sub> transistors, International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology 2015 (ISANN2015), p.6, Hawaii, U.S.A., Nov.30-Dec.4, 2015.

松永正広, 樋口絢香, G. He, J. P. Bird, 落合勇一, 青木伸之: 走査ゲート顕微法によるMoS<sub>2</sub>トランジスタの動作機構の解析, 日本物理学会2015年秋季大会, 17aAH-7, p.91, 関西大学, 吹田市, 9月16日~19日, 2015.

鈴木敦士, 佐藤駿, グエン・タン・ルーン, 松永正広, 向笠直紀, 鬘谷俊介, J. P. Bird, 落合勇一, 青木伸之: 走査ゲート顕微法による結合量子ドットにおける伝導の観察, 日本物理学会2015年秋季大会, 17aAG-1, p.87, 関西大学, 吹田市, 9月16日~19日, 2015.

峰晴正彰, 松永正広, 青木伸之, 落合勇一, D. K. Ferry, J. P. Bird, 渡邊賢司, 谷口尚, I. Lee, G-H. Kim: BN/グラフェン/BN試料における伝導度ゆらぎ, 日本物理学会2015年秋季大会, 16aAG-6, p.73, 関西大学, 吹田市, 9月16日~19日, 2015.

M. Matsunaga, H. Guanchen, J. P. Bird, Y. Ochiai, and N. Aoki: Visualization of the Schottky Barrier in MoS<sub>2</sub> Field Effect Transistor Using Scanning Gate Microscopy, 21<sup>st</sup> International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-21), Th-PE-86, p.491, Sendai, JAPAN, July 26-31, 2015.

M. Mineharu, M. Matsunaga, A. Takeda, I. Lee, G-H. Kim, J. P. Bird, D. K. Ferry, Y. Ochiai, and N. Aoki: Conductance Fluctuations in Bilayer Graphene Encapsulated in h-BN, 21<sup>st</sup> International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-21), Th-PE-59, p.465, Sendai, JAPAN, July 26-31, 2015.

Chiashain Chuang, M. Matsunaga, Fan-Hung Liu, Tak-Pong Woo, Nobuyuki Aoki, Y. Ochiai and Chi-Te Liang: Probing weak localization in chemical vapor deposition graphene with wide constriction by scanning gate microscopy, The American physical Society (APS), H1.00274, San Antonio, Texas, U.S.A. March 2-6, 2015.

頂少華, 佐藤駿, グエン・タン・ルーン, 松永正広, 向笠直紀, 鈴木敦士, 青木伸之, J.P.バード, 落合勇一: 走査ゲート顕微鏡観察

による量子細線における分数プラトーの観測，日本物理学会第70回年次大会，21aBK-4，p.44，早稲田大学，東京都，3月21日～24日，2015年。

S. Xiang, S. Sato, T. Luan Nguyen, N. Mukasa, N. Aoki, S. Xiao, J.P.Bird and Y. Ochiai: Quantum phase transition in fractional quantum Hall regime in the quasi-one dimension structure, Chiba University-Ajou University symposium 2014, P-35, p.23, Chiba University, JAPAN, December 11-12, 2014.

Nobuyuki Aoki: Scanning gate imaging of conductance fluctuations in CVD grown monolayer grapheme, Chiba University-Ajou University symposium 2014, 12P-6, p.14, Chiba University, JAPAN, December 11-12, 2014.

Masahiro Matsunaga, Chiashain Chuang, Li-Hung Lin, Chi-Te Liang, Yuichi Ochiai and Nobuyuki Aoki: Scanning gate imaging of quantum fluctuations in CVD graphene, The 17<sup>th</sup> International Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications (ISPSA2014), T-p-035, p62, Jeju, KOREA, December 7-11, 2014.

項少華，佐藤駿，グエン・タン・ルーン，向笠直紀，S.Xiao，青木伸之，J.P.Bird，落合勇一：量子細線における電子強相関現象の観測と解析，日本物理学会第69回年次大会，8aAV-3，p.474，中部大学，春日井市，9月7日～10日，2014。

松永正広，莊家翔，林立弘，梁啓徳，落合勇一，青木伸之：走査ゲート顕微法によるCVDグラフェンにおける量子ゆらぎの観察，日本物理学会第69回年次大会，8Aah-8，p.602，中部大学，春日井市，9月7日～10日，2014。

Shaohua Xiang, Yuichi Ochiai, Nobuyuki Aoki, Jonathan Bird : Discussion on the Role of Kondo Physics in Quantum Point Contacts Near Pinch-Off, International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2014), Austin, Texas, U.S.A. August 10-15, 2014.

M. Matsunaga, C.Chuang, L.-H. LIN, C.-T.Liang, Y. Ochiai and N. Aoki : Imaging Quantum Fluctuations of CVD Graphene Constriction via Scanning Gate Microscopy, International Conference on Nanoscience + Technology( ICN+T2014 ), NM-MoP18, p.90, Denver, Colorado, U.S.A., July 20-25, 2014.

〔図書〕(計 1件)

David K. Ferry 著，落合勇一，関根智幸，青木伸之 共訳，コロナ社，詳説 半導体物性，2016，229，ISBN978-4-339-00879-1

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：

種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 1件)

名称：フラーレン重合体の製造方法及び導体膜の製造方法

発明者：落合勇一，青木伸之，尾松孝茂，宮本克彦

権利者：落合勇一，青木伸之，尾松孝茂，宮本克彦，千葉大学

種類：特許

番号：5688698

取得年月日：2015.2.6

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://adv.chiba-u.jp/nano/qnd/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

青木 伸之 (AOKI, Nobuyuki)

千葉大学・大学院融合科学研究科・准教授  
研究者番号：60312930

(2)研究分担者

落合 勇一 (OCHIAI, Yuichi)

千葉大学・大学院融合科学研究科・名誉教授

研究者番号：60111366

(3)連携研究者

( )

研究者番号：