

戦略的国際科学技術協力推進事業
日本－ドイツ研究交流
研究課題「低温多探針STMによる磁性ナノ
構造のスピン依存電子輸送に関する研究」

研究終了報告書

研究交流期間 平成19年12月～平成23年3月

研究代表者：青野 正和
(独立行政法人 物質材料研究機構・
国際ナノアーキテクトニクス研究拠点、
拠点長)

1. 研究・交流の目的

本研究は、スピンエレクトロニクスにとって重要な、スピン伝導に対する構造および磁性の微視的な不均一の影響を正しく理解することを目的とする。

具体的には日本側の多探針 STM/AFM 分野での先駆的な研究開発技術と、ドイツ側の先駆的な SP-STM の成果とを組み合わせ、第1段階として、低温で動作しスピン検出可能な多探針システム装置を共同開発する。第2段階では、新しく開発した装置を、自己組織的に形成された磁気ナノ細線、STM/AFM による原子操作で形成された細線、分子システムに用いて、ナノ構造スケールや分子システムにおけるスピン伝導実験を目指す。10ナノメートル以下の長さ領域におけるスピン伝導特性という全く新しい領域に挑戦し、スピン伝導の新しい領域を拓いていく。

本共同研究で日独が交流を通じて相互的に取り組むことで、磁気および、スピンエレクトロニクスに於ける最前線の実験の礎を築き、当該分野の発展に寄与することが期待される。

2. 研究・交流の方法

本プロジェクトは、物質・材料研究機構の研究代表者グループが保有する多探針 STM 技術および原子・分子操作技術と、ドイツ・ハンブルグ大学の Roland Wiesendanger グループが築き上げてきた極低温 SP-STM 顕微鏡を利用したスピン検出技術との融合による共同研究を推進すべく発足した。日本側では、既存の室温動作 MPSTM の技術を発展させ 4 K で動作する MSPM (LT-MSPM) の開発を進めていたが、多くの極低温関連ノウハウとスピン計測技術の立ち上げが必要であった。また、ドイツ側は、ナノスケール伝導計測技術を必要としており、ナノ構造に直接アクセスできる日本側チームの MSPM 技術に注目していた。

双方の技術を融合させるために、平成19年12月より本プロジェクトにおいて日独双方の技術情報交換と相互訪問による技術移転を基本として実施された。日本側では、ドイツ側のノウハウを生かして、スピン検出低温多探針システムの重要な基礎構成品となる「アクチュエータ」の改良・調整から研究を開始した。また、実験効率に大きく影響を与えるスピン検出用の磁性探針作製技術の獲得にも注力した。ドイツ側では、日本側の情報をベースに、極低温での確実な動作を目指して4本の探針のうち1本だけが走査プローブ顕微鏡として動作する多探針装置の導入準備を開始した。また、日本側では、Si(111)4x1-In 表面上に自己形成される原子細線上へ吸着した磁性原子間の電子的相互作用に関する研究の他、ドイツ側でも研究が始まっていた金属錯体有機分子系の磁性を取り扱うための基礎的な実験を行うなど、双方のチームで共通して取り扱う物質・材料系の探索を行った。

本プロジェクト開始当初には想定していなかったが、本研究交流を通じて、磁性分子を取り扱う技術の重要性を認識するにいたり、日本側チームでは、高感度で分子を検出できる金属酸化物ナノロッドによるラマン散乱のナノスケール増強技術の開発や、分子材料を取り扱う上で重要な機能である原子間力によるマルチ

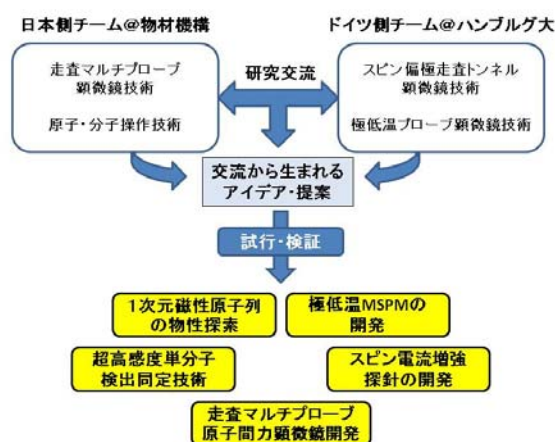


図1. 本プロジェクトにおける研究交流の形態。日本側チームの主な成果を示した。

プローブ制御を実現すべく、多探針装置を4探針STMモード（探針-試料間隔のトンネル電流検出による制御モード）から4探針AFMモード（探針-試料間隔の原子間力検出による制御モード）へと切り替える研究開発も推進し、目覚ましい成果が得られた。

本プロジェクトで推進した研究は、日独双方のチームそれぞれの本拠地で実施され、その間、メールなどを介したミーティングと相互に研究現場を訪問し研究現場における対面での議論を行って交流を推進した。この方法は本プロジェクト終了後にも、本プロジェクトの成果を発展させるための研究基盤を双方のチーム拠点に残すことが出来るので、長期的視点からも有効な方法である。

3. 研究・交流実施体制

3. 1 日本側

氏名	所属	役職	学位	役割
(リーダー) 青野 正和	国際ナノアーキ テクトニクス研 究拠点	拠点長	博士	ナノ科学
(研究者) 桜井 亮	同上	MANA 研究員	博士	ナノ科学
(研究者) 中山 知信	同上	主任研究者	博士	ナノ科学
(研究者) 久保 理	同上	MANA 研究員	博士	多探針STM
(研究者) 新ヶ谷 義隆	同上	MANA 研究員	博士	多探針STM
(研究者) 長岡 克己	同上	MANA 研究員	博士	低温STM
(研究者) 澤村 誠	同上	特別研究員	博士	磁性ナノ構造 物性理論

3. 2 相手国側

氏名	所属	役職	学位	役割
(リーダ) Wiesendanger	ハンブルグ大学 応用物理研究所	教授	博士	スピン偏極 STM/STS
(研究者) von Bergmann	同上		博士	SP-STM ナノ磁性
(研究者) Hoffmann	同上		博士	磁性分子
(研究者) Schwarz	同上		博士	磁気交換力顕 微鏡
(研究者) Ashino	同上		博士	分子のAFM

4. 研究成果

4. 1 研究成果の自己評価

- ☒ 計画以上の成果がでた ☐ 計画通りの成果がでた
☐ 計画とは異なるが有益な成果がでた ☐ 計画ほどの成果はでなかった
☐ いずれでもない

4. 2 研究成果の自己評価の根拠

日本側チーム

- 1) 磁性分子などを取り扱う事ができる多探針原子間力顕微鏡を開発。4本の探針を全て原子間力顕微鏡プローブとして機能させ、必要に応じてナノスケール電気伝導計測用のプローブに切り替えることに世界で初めて成功した。この開発にあたっては、広く用いられているカンチレバー方式の原子間力検出ではなく、より多探針化に適した自己検知型のチューニングフォークセンサーを用い、大気中・新球中のみならず液中においても安定に動作する事を確認した。ドイツ側チームの低温 AFM で利用されているチューニングフォークセンサーに関する情報交換が大変役に立った。
- 2) 構造的不均一性に起因する電気物性変化を多探針 STM によって計測。具体的には、1 nm レベルの微小領域で構造が変化する金属シリサイドナノワイヤーに沿った電気抵抗計測を行い、その電気抵抗率が構造変化点の周辺で変化する様子を直接計測した。多探針 STM の高い空間分解能によって、10 nm 以下の構造的特徴に起因する伝導特性の変調を捉える事が可能となった。
- 3) 導電性原子細線テンプレート上に配列した Co 原子間の伝導電子を介した相互作用を観測。10 nm 以下から数十 nm 離れた Co 原子間に、テンプレートとなる基板の一次元的電子状態を反映した電子波に強く相関する相関を発見した。10 nm 以下での磁性原子間の相互作用が伝導電子に強く束縛されている可能性を示唆しており、磁性原子のスピン状態計測と合わせて再検証する事は興味深い。
- 4) 磁性探針によるスピン偏極電流を増強する方法を発見。ドイツ側チームで開発されていたスピン検出用の磁性探針調整技術を活用して作製した Fe 被覆探針先端への Mn クラスター付着によって、最大 260% のスピンコントラスト増強を確認した。一般にスピン検出感度を確保するために曲率半径の大きな（先端が鋭くない）探針を利用するスピン偏極トンネル顕微鏡技術に新たな高分解能計測手法を提示したものであり、多探針 SP-STM への応用上も重要な成果である。
- 5) タングステン酸化物ナノロッドによる単分子の識別検出技術開発。構造安定性の観点から興味深い研究対象である磁性分子を取り扱うにあたって、分子構造を反映したフィンガープリントとも言えるラマン散乱分光スペクトルを計測することは非常に重要である。しかし、本プロジェクトが目指すナノ構造の磁性研究においては、一つないし数個の分子を同定しなくてはならず、一般にラマン散乱分光法ではそのような高感度検出は非現実的である。我々は、プローブ顕微鏡で用いられる探針形状のタングステン酸化物ナノロッドによって、ラマン散乱強度が増強されて単分子レベルの分子識別と検出が可能であることを見出した。1) の多探針 AFM 技術と組み合わせることによって、幅広い応用が可能な画期的な成果である。
- 6) フラーレン分子による超高密度データストレージ技術の開発。本プロジェクトにおいて当初想定した研究目的ではないが、スピン検出用の探針開発および分子系の実験を想定した議論と予備実験は、単分子レベルでの化学反応制御を達成する実験技術の進展に貢献した。

4. 3 研究成果の補足

ドイツ側チームにおいては、室温動作の3探針 STM 装置が構築されている他、極低温のナノプローバースステムの1探針に高分解能 STM 機能を付与した装置の整備が進んでいるが、いずれの装置においても一つの探針の高分解能 STM 動作を確認し、他の探針については走査型電子顕微鏡による位置決めを実施している段階である。これらの装置については、日本側チームで実現している探針間距離の精密計測機能など、今後のナノスケール伝導計測において必須となる要素機能を付加する途上にあるが、有意義な情報交換を続けていきたいと考えている。

5. 交流成果

5. 1 交流成果の自己評価

- ☐ 計画以上の交流成果がでた ☒ 計画通りの交流成果がでた
- ☐ 計画ほどの交流が行われなかったが成果はでた
- ☐ 計画ほど交流成果がでなかった
- ☐ いずれでもない

5. 2 交流成果の自己評価の根拠

日本側からは、研究代表者のみならず若い研究員がそれぞれ時期を分けて述べ33日間に渡って、ドイツ側チームの研究現場に滞在、あるいは国際会議での対面議論を実施した。ドイツ側からは、研究代表者である Roland Wiesendanger 教授が、つくば市の国際ナノアーキテクトニクス研究拠点を訪問するなど、相互に活発な研究交流が行われた。この研究交流の中から、具体的な研究対象の絞り込みが行われ、日本側チームでは分子系を取り扱うための技術開発、例えば金属酸化物ナノロッドの開発や日本側チームが保有する多探針 STM の AFM 化など、重要な発展があった。また、ドイツ側チームの多探針 STM 装置の構築に関して、探針の安定性を確保するための設計上の重要事項などに関する情報提供も、現場の研究者レベルで行われ、人材育成にも貢献できた。

それぞれの訪問に1週間程度の十分な期間を充てることによって、双方の研究者間にも個人的な交流が実現し、本プロジェクト期間中に渡って電子メールなどによって、様々なノウハウのやりとりが行われ、これを生かして日本側では短期間で高感度のスピン検出用探針作製に成功するなど、人的交流の成果は十分に出たものと考えている。

今後、ドイツ側チームでの多探針 STM 装置の立ち上げが進むにつれて、本プロジェクトで構築された研究交流の枠組みが、新たな成果を生む可能性がある。

5. 3 交流成果の補足

6. 主な論文発表・特許出願

論文 or 特許	・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年 ・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、 出願番号、出願人、発明者等	特記 事項
論文	S. Higuchi, H.Kuramochi, O. Kubo, S. Masuda, Y. Shingaya, M. Aono and T. Nakayama, "Angled long-tip to tuning fork probes for atomic force microscopy in various environments", Rev. Sci. Instrum. 82, 043701-1-6 (2011)	
論文	M. Nakaya, S. Tsukamoto, Y. Kuwahara, M.Aono and T. Nakayama, "Molecular Scale Control of Unbound and Bound C60 for Topochemical Ultradense Data Storage in an Ultrathin C60 Film", Advanced Materials 22, 1622-1625.(2010)	
論文	C. Liu, T. Uchihashi and T. Nakayama, "Self-Alignment of Co Adatoms on In Atomic Wires by Quasi-One-Dimensional Electron-Gas-Mediated Interactions", Phys. Rev. Lett. 101, 146104-1-4 (2008)	