

令和 4 年 6 月 22 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H01825

研究課題名(和文) Rashbaスピン、局在スピンおよび伝導電子が織り成す二次元物性

研究課題名(英文) 2D materials with Rashba spin, local spin, and conduction electrons

研究代表者

有賀 哲也 (Aruga, Tetsuya)

京都大学・理学研究科・教授

研究者番号：70184299

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：原子層伝導体は、3次元的な固体とは異なり、数原子厚さの極薄物質であり、電子や正孔の伝導が2次元面内に束縛されることにより興味深い物性が現れる。本研究では、絶縁体や半導体の表面上に金属などを1層から数層の超薄膜として精密成長させ、その電子状態や電気伝導特性を検討した。インジウム少数原子層に関しては、基板としたシリコン表面とインジウム層の間にマグネシウム層を挿入することにより、ほとんど自立した2次元金属を実現することに成功した。層状トポロジカル絶縁体のテルル化ビスマスについては、5原子層からなる単位層ごとの精密成長に成功し、単位層と単位層の間のテルル-テルル界面が電気伝導を担うことを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エレクトロニクス発展は、半導体素子の微細化と素子材料の多様化を通じた高機能化、多機能化によって支えられてきた。本研究は、このようなエレクトロニクス研究の動向と方向を一にしつつ、その先を行く先鋭的な方法論に基づいて、原子層科学に基づく低次元物質の精密科学を開拓し、新たな低次元物性、超薄膜物性の方法論を切り開くものである。とりわけ、テルル化ビスマス超薄膜における原子レベル電子輸送経路が決定されたことにより、この電子輸送経路を化学的、物理的に修飾、制御する可能性が開拓できたことは、学術的にも、社会的にも大きな意義があると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Ultrathin conductive materials with a few atomic-layer thicknesses exhibit fascinating properties due to the confinement of the conduction of electrons and/or holes within two dimensions, and hence are expected to open the door to future electronics. In the present study, we studied electronic structure and electric properties of ultrathin conducting materials. The first example is a few-layer indium film on a silicon surface. By inserting a magnesium monolayer to the Si-In interface, we have succeeded to realize nearly free-standing indium bilayers. Another example is ultrathin films of bismuth telluride (BT), which is a layered topological insulator. We succeeded in precision layer growth of BT on insulator surface, and experimentally established that the electrical conduction in BT is localized within the Te-Te interfaces.

研究分野：表面科学

キーワード：原子層科学 表面科学 電子輸送 極微細伝導体

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、グラフェンをはじめとする原子層物質に対する関心が高まっている。その理由としては、3次元物質とは異なる特異な性質を示すことがまず挙げられるが、加えて、原子層の積層に伴う層間相互作用により、電子状態、物性を制御できる可能性があり、多彩な複合物質の研究が可能であることが多方面からの学術的興味を集めているといえる。

### 2. 研究の目的

本研究では、申請者らが研究してきた層状物質トポロジカル絶縁体の「層状物質」としての特異性を明らかにすることを一つの目標とした。従来の研究では、層状物質トポロジカル絶縁体も、単に一般のトポロジカル絶縁体から大きくは異なるものが見られており、この点を低次元物質科学の観点から探究することに意義があると考えた。

また、従来からシリコンなどの半導体表面において金属少数原子層を作成し、その電子状態、物性を明らかにする研究がなされてきたが、このような系においては基板である半導体表面のダンダリング・ボンドと金属少数原子層との結合性相互作用の影響が強く、金属少数原子層が金属性を失うか、完全には失わないまでも大きく影響を受けることが明らかとなっていた。そのため、半導体表面において、いかにして free-standing な金属少数原子層を実現するかを探究することとした。

### 3. 研究の方法

層状トポロジカル絶縁体としては代表的な  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を用いた。まず、組成比の Bi, Te を原料として、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を合成した。これを原料として、超高真空分子線エピタキシー法により、ダンダリングボンドを終端した Si (111) 基板上に成膜した。成膜時の基板温度、成膜速度等を制御することにより、単位層である 5 原子層の  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を単位とするレイヤーバイレイヤー成長に成功した。単位層である 5 原子層を 1 QL として、層数の異なる 1~5 QL を作成し、それらの電子状態、電気伝導性を調べた。また、各層数に対応する第一原理電子状態計算を行った。

2次元自由電子的な性質を有する 2 原子厚さの安定構造を有する In 層の電子状態を詳細に検討したところ、この 2 原子厚さの In 層のうち Si 基板に直接結合している下層の In 層は金属性を失っているが、上層の In 単原子層は単独で free-standing な金属的性質を有することを見出した。

この 2 層 In 構造の上にさらに In を蒸着しても層状成長せず、3 次元的な島成長を起こす。そのため、2 原子層厚さの金属超薄膜を得ることはできない。そこで、2 層 In 層と Si 基板の間に別の元素を導入して 2 層 In 層を基板ダンダリングボンドから切り離すことを検討した。

### 4. 研究成果

合成した 1~5 QL の  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜に関して、角度分解光電子分光と超高真空 4 端子法による電気伝導測定を行った。膜厚を 1QL から 2QL にすると電気伝導度が 2.5 倍に増大し、ファンデルワールス力で結合した Te-Te 界面が重要な伝導経路になることが明らかとなった。この性質は膜厚を 3, 4, 5QL と増やしても変わらずに続いた。すなわち、バルクの  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  結晶においては大部分の電気伝導は Te-Te 界面の伝導体が担っている。

スピン軌道相互作用を考慮した全電子第一原理計算により 1~5 QL の  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜の電子状態を計算したところ、1QL においては価電子帯と伝導性表面状態の間に 0.5 eV 近いエネルギーギャップがあるが、2QL ではギャップがほぼゼロになるとともに、1 本の新たな伝導バンドが出現する。この伝導バンドは QL 同士の間 Te-Te 界面に局在する。すなわち、真空側に面した表面状態と Te-Te 界面の伝導バンドが電気伝導に寄与することがわかった。さらに膜厚を増やしてゆくと、1 QL 増えるごとに Te-Te 界面が一つ増え、そこに新たに 1 本の伝導バンドが生じる。

この結果は、化学的には伝導性が生ずるとは考えにくい Te-Te 界面が主要な伝導パスになることを、明確に示している。Te-Te 界面の伝導バンドはトポロジカル表面状態とよく似た波動関数を有しているが、価電子帯との間に 0.2-0.3 eV 程度の小さなギャップを有しており、トポロジカル表面状態ではないことがわかる。真空に面した表面の伝導バンドは、2QL 以上では数 meV 程度の小さなバンドギャップを有するのみであるが、純粋なトポロジカル表面状態になるには少なくとも 5 QL の膜厚が必要であることがわかった。

マクロ結晶のトポロジカル表面状態は常にトポロジカル性を有する。一方、Te-Te 界面にはトポロジカル表面状態によく似た波動関数を有する価電子バンドが生じ、その小さなバンドギャップゆえ、低温においてもよい電気伝導性を示すことを明らかにした。

この Te-Te 界面に別の単原子層物質、たとえばグラフェンなどを挿入すれば、その電子状態と界面伝導バンドの混成による新たな物性が生まれる可能性があることを明らかにした。

Si(111)表面上に 2 層 In 層を作成したのち、その上から 1 層分相当の Mg を蒸着し、適切なアニール処理を行うことにより、Mg 原子が熱拡散により Si/In 界面に達し、In に代わって Si 表面のダングリング結合を終端することを、種々の実験、理論計算から明らかにした。

その結果として、Mg 層の上層に 2 層構造の In 層が生成する。この In 層の電子状態は典型的な free-standing 2 原子金属層の特徴を備えていることを角度分解光電子分光、第一原理計算により明らかにした。

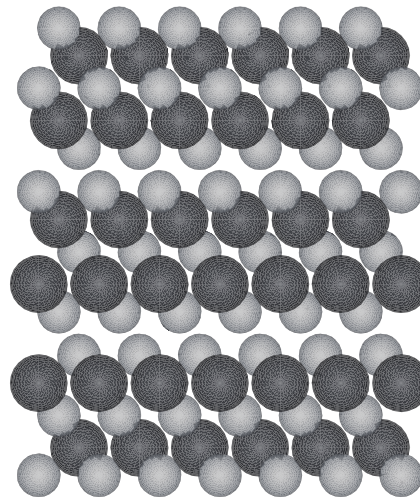


図 1. 3 QL の  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  層層 (DFT 計算により構造最適化したもの)。明色の球が Te イオン、暗色の球が Bi イオンを示す。Te 層-Te 層間がいわゆるファン・デル・ワールス界面である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 S. Hatta, K. Obayashi, H. Okuyama, T. Aruga	4. 巻 11
2. 論文標題 Metallic conduction through van der Waals interfaces in ultrathin Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub> films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-85078-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Hiroyuki Koshida, Hiroshi Okuyama, Shinichiro Hatta, Tetsuya Aruga, Yuji Hamamoto, Ikutaro Hamada, Yoshitada Morikawa	4. 巻 124
2. 論文標題 Identifying Atomic-Level Correlation between Geometric and Electronic Structure at a Metal-Organic Interface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 17696-17701
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.0c04678	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 S Terakawa, S Hatta, H Okuyama, T Aruga	4. 巻 100
2. 論文標題 Structure and phase transition of a uniaxially incommensurate In monolayer on Si (111)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115428-1/7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.115428	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hiroyuki Koshida, Hiroshi Okuyama, Shinichiro Hatta, Tetsuya Aruga, Yuji Hamamoto, Ikutaro Hamada, Yoshitada Morikawa	4. 巻 124
2. 論文標題 Identifying Atomic-Level Correlation between Geometric and Electronic Structure at a Metal-Organic Interface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 17696-17701
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.0c04678	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計13件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

1. 発表者名 檜垣慎平, 松原燦, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 In超薄膜上の金属フタロシアニン単分子層における固気転移
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 八田振一郎, 松原燦, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 In超薄膜と金属フタロシアニン超薄膜の界面電子状態と分子-分子間相互作用
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 寺川成海, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 Mg吸着Pb/Si(111)表面の電子状態
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 越田裕之, 奥山弘, 八田振一郎, 有賀哲也, 南谷英美
2. 発表標題 Au(110)-(1x2)表面におけるNOの近藤共鳴状態
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒石健太, 奥山弘, 八田振一郎, 有賀哲也
2. 発表標題 Cu(100)における一酸化窒素の反応
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 檜垣慎平, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 シングルドメインBi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub> 超薄膜の作製と電気伝導
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Cu(100)表面上の一酸化窒素の反応と電子状態
2. 発表標題 黒石健太, 奥山弘, 八田振一郎, 有賀哲也
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Bi/Si(111)表面上におけるFeBr <sub>2</sub> 原子層超薄膜の成長と電子状態
2. 発表標題 寺川成海, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松原燦, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 In超薄膜と遷移金属フタロシアニンの界面電子状態
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 寺川成海, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 Mg蒸着によるPb/Si(111)表面の構造と電子状態の変化
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 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub> におけるファンデルワールス界面の電子状態と電気伝導
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 松原燦, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 In/Si(111)上金属フタロシアニンの電子状態と基板-分子間相互作用
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 寺川成海, 力丸英史, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也
2. 発表標題 SrTiO <sub>3</sub> (100), (111)表面での2次元物質成長
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019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
研究分担者	奥山 弘  (Hiroshi Okuyama)  (60312253)	京都大学・理学研究科・准教授   (14301)	
研究分担者	八田 振一郎  (Shinichiro Hatta)  (70420396)	京都大学・理学研究科・助教   (14301)	

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
---------	---------