

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21340083

研究課題名（和文）結晶表面に作成した低次元金属の物性

研究課題名（英文）Properties of low-dimensional metals fabricated on solid surfaces

研究代表者

有賀 哲也 (ARUGA TETSUYA)

京都大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：70184299

研究成果の概要（和文）：

固体表面上に形成された低次元金属においては、電子と電子の間の相互作用、電子と格子の間相互作用、あるいはラッシュバ型スピン軌道相互作用によって、さまざまな興味深い低次元物性が発現する。本研究では、将来の半導体スピントロニクス（spintronics）の基盤となる半導体表面上低次元金属において、さまざまなタイプのラッシュバ型スピン偏極状態を発見した。また、ケイ素表面上の低次元インジウム単原子層における金属-絶縁体相転移が擬一次相転移であることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Low-dimensional metals fabricated on solid surfaces often exhibit peculiar properties due to electron-electron, electron-lattice, and Rashba-type spin-orbit interaction. In this research work, we have discovered various types of Rashba spin-polarized electronic states on low-dimensional metals on semiconductor surfaces, which will be the basis for coming spintronic technology. We also found that a metal-insulator phase transition in an indium monolayer on silicon surface undergoes via pseudo-first-order transition.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	5,800,000	1,740,000	7,540,000
2010年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2011年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：表面物性化学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：表面・界面物性、スピントロニクス、超薄膜、低次元金属

## 1. 研究開始当初の背景

結晶表面に生成する低次元金属の物性に関しては、電子-格子相互作用による電荷密度

波状態、非フェルミ流体性（朝永-ラッティンジャー液体）などの観点から盛んに研究されてきた。そのなかでも In/Si(111)表面にお

る金属-絶縁体転移については非常に多くの注目が集まっていた。通常の弱結合パイエルズ転移ではないことは明かであったが、強結合型の秩序-無秩序転移なのか、それ以外のタイプの転移なのか論争がつづいていた。

一方、2007年に我々のグループが表面吸着層における巨大 Rashba 効果を発見してからは、半導体スピントロニクスへの応用展開を目指して、半導体表面上での巨大スピントロニクスの探索が大きな焦点になっていた。

## 2. 研究の目的

結晶表面に形成された低次元金属に特有の現象について原子構造、電子状態の精密決定により新たな知見を得ることを目的とした。とりわけ、最近注目されている巨大 Rashba 効果による半導体表面金属層のスピンの偏極状態の探索、金属-半導体転移の転移機構の解明を目指した。

## 3. 研究の方法

表面低次元金属の電子構造については角度分解光電子分光 (ARPES)、スピン偏極についてはスピン分解 ARPES (SARPES) により調べた。さらに、表面原子配列は低速電子回折の動力的解析あるいはシンクロトロン放射光による表面 X 線回折、第一原理全エネルギー計算により決定した。得られた原子配列に基づき、APW-10 法による全電子フルポテンシャル第一原理電子状態計算を行い、得られたスピン偏極電子構造を ARPES、SARPES の結果と比較し、正しく再現されることを確認した。計算結果に基づき、表面状態の部分電荷密度分布、スピン偏極度等を抽出した。

金属-絶縁体転移に関しては、シンクロトロン放射光表面 X 線回折により、超格子反射点プロファイルの温度依存性を精密測定し、臨界付近での挙動を解析した。

## 4. 研究成果

### 4.1. 半導体表面における巨大 Rashba 効果

(i) Pb/Ge(111) 表面におけるスピン偏極金属状態の発見 [4]

Ge(111) 表面上に 4/3 単原子層の Pb が吸

着し  $\beta-\sqrt{3}$  表面に関して、ARPES、SARPES、第一原理計算により、詳細な電子状態の解明を行った。その結果、小さな有効質量 ( $m^*/m=0.4$ ) を有する自由電子的表面状態バンドがあり、これが大きく ( $\Delta=200$  meV) スピン分裂していることを見出した (図 1)。これは、半導体表面において初めて発見されたスピン分裂金属的電子状態である。

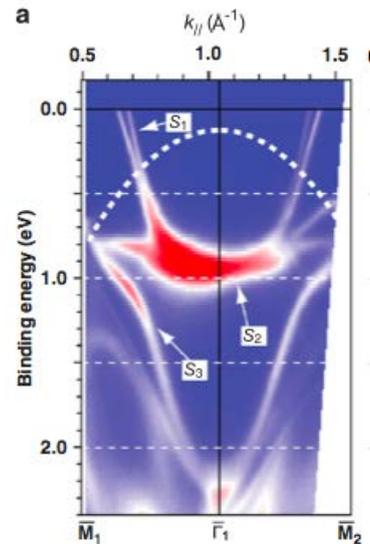


図 1. Pb/Ge(111) 表面の ARPES [4]。S1 バンドが Rashba スピン分裂している。

(ii) 重元素を含まない半導体表面におけるスピン偏極表面状態の発見 [5, 10]

Rashba 型スピン分裂は表面原子の強いスピン軌道相互作用に由来するので、100 meV 程度以上の大きなスピン分裂を生じるには、第 6 周期の重元素が不可欠であると信じられてきた。

我々は、Bi/Ge(111) 表面の電子状態を詳細に検討し、Bi に由来するスピン偏極表面状態 [2] 以外に、下地の Ge バルクバンドから派生した Shockley 型表面状態を見出し、しかもこれが Rashba スピン分裂していることを見出した。さらに、これと同様なスピン偏極表面状態は、重元素を全く含まない Br/Ge(111) などにおいても存在することを明らかにした。

ここで見出された Shockley 型電子状態は

本質的には界面状態であるので、半導体ヘテロ界面においても同様に存在するものと推定される。これは半導体ヘテロ構造を用いたスピントロニクスの可能性を示唆する知見である。

(iii) ヴァレー対称性を有するスピン偏極表面電子状態

Tl/Ge(111)-(1x1)表面において、K点において100%スピン偏極した表面状態を見出し

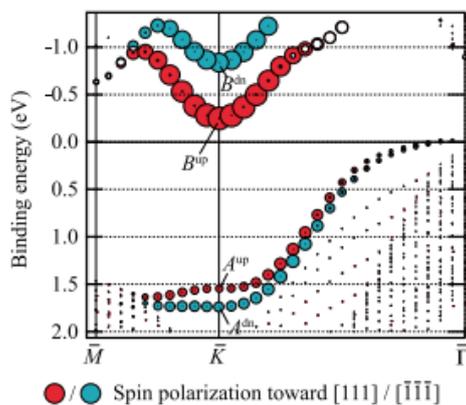


図 2. 第一原理電子状態計算による Tl/Ge(111)-(1x1)のスピン分解電子状態。微量の Tl をドーピングすると、K 点の Bup 状態に電子が注入され、金属的になる[8]。

た(図 2)。

K 点においては、通常の面直 Rashba 効果は消失するが、この表面の 3 回対称性のために、面内電位勾配による Rashba 項のために表面垂直方向にスピン偏極している。1 ML ジャストの表面では、K 点表面状態はフェルミ準位より 200 meV 程度上に位置しているが、微量の Tl をドーピングすると電子ポケットを生成する。このフェルミ面はグラフェンリボンなどと同様のヴァレー対称性を有しており、特異なスピン輸送特性への応用が期待される。

#### 4.2. In/Si(111)における金属-絶縁体転移の機構解明[7]

シンクロトロン放射光表面 X 線回折により、In/Si(111)表面の超格子反射の温度依存性の精密測定を行った。転移点近傍において、

従来想定されていた動的揺らぎ機構で生じるはずの臨界散乱が観測されず、表面は長距離秩序を保ったまま転移が進行することを見出した。一方、連続変位型の転移の可能性は否定できる。これらより、この相転移は、秩序-秩序の相共存を伴う擬 1 次転移であると結論した。

#### 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 10 件)

[1], Y. Ohtsubo, S Hatta, N Kawai, A Mori, Y Takeichi, K Yaji, H Okuyama, T. Aruga "Spin-polarized surface states on Br/Ge(111)-(1x1): Surface spin polarization without heavy elements" Phys. Rev B 86, 165325 (6 pp) (2012). DOI : 10.1103/PhysRevB. 86. 165325 (査読有)

[2] K. Yaji, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga "Structural and electronic properties of the Pb/Ge(111)- $\beta$  ( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ )R30° surface studied by photoelectron spectroscopy and first-principles calculations" Phys. Rev. B 86, 235317 (6 pp) (2012). DOI : 10.1103/PhysRevB. 86. 235317 (査読有)

[3] Y Ohtsubo, S Hatta, H Okuyama, T Aruga "A metallic surface state with uniaxial spin polarization on Tl/Ge(111)-(1x1)" J. Phys. : Condens. Matter 24, 092001 (5 pp) (2012) DOI:10.1088/0953-8984/24/9/092001 (査読有)

[4] S. Hatta, Y. Ohtsubo, T. Aruga, S. Miyamoto, H. Okuyama, H. Tajiri, O. Sakata

"Dynamical fluctuations in In nanowires on Si (111)"

Phys. Rev. B 84, 245321 (8 pp) (2011).

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.245321

(査読有)

[5] Y. Ohtsubo, H. Muto, K. Yaji, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga

"Structure determination of Pb/Ge(111)  $\beta$ - $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  by dynamical low-energy electron diffraction analysis and first-principles calculation"

Journal of Physics. Condens. Matter 23, 435001 (6 pp.) (2011).

doi: 10.1088/0953-8984/23/43/435001

(査読有)

[6] Spin-polarized semiconductor surface states localized in subsurface layers

Y Ohtsubo, S Hatta, K Yaji, H Okuyama, K Miyamoto, T Okuda, A Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, T. Aruga

Physical Review B 82, 201307 (4pp) (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.201307

(査読有)

[7] K Yaji, Y Ohtsubo, S Hatta, H Okuyama, K Miyamoto, T Okuda, A Kimura, H, Namatame, M. Taniguchi, T. Aruga

"Large Rashba spin splitting of a metallic surface-state band on a semiconductor surface"

Nature commun. 1, 17 (5 pp) (2010).

doi:10.1038/ncomms1016

(査読有)

[8] S. Hatta, Y. Ohtsubo, S. Miyamoto, H. Okuyama, T. Aruga

"Epitaxial growth of Bi films on Ge(111)" Appl. Surf. Sci. 256 1252-1256 (2009).

DOI: 10.1016/j.apsusc.2009.05.079

(査読有)

[9] S. Hatta, T. Aruga, Y. Ohtsubo and H. Okuyama,

"Large Rashba spin splitting of surface resonance bands on semiconductor surface" Phys. Rev. B 80, 11309 (4 pp) (2009).

DOI: 10.1103/PhysRevB.80.113309

(査読有)

[10] Y. Ohtsubo, S. Hatta, K. Yaji, H. Okuyama and T. Aruga.

"Structure determination of Bi/Ge(111)- $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  by dynamical low-energy electron diffraction analysis and scanning tunneling microscopy."

J. Phys. : Condens. Matter 21, 405001 (6 pp) (2009).

DOI: 10.1088/0953-8984/21/40/405001

(査読有)

[学会発表] (計 16 件)

[16] T. Aruga

"Spin-polarized electronic states at surfaces and interfaces of Ge"

The 10th Japan-Russia Seminar on Semiconductor Surfaces (2012. 9. 16, 東京)

[15] Y. Ohtsubo, S. Hatta, K. Yaji, H. Okuyama, and T. Aruga

"Spin-polarized metallic surface states induced by spin-orbit interaction on semiconductors without heavy elements"

29th European Conference on Surface Science, Edinburgh, 3-7 Sep. 2012.

[14] 八田振一郎、有賀哲也

"重元素吸着 Ge(111)表面のスピン偏極状態と電気伝導"

第4回放射光若手研究会 (2012. 8. 29, 東京)

[13] 有賀哲也  
“Spin-polarized surface states induced by spin-orbit interaction on semiconductor surfaces”  
村田セミナー (2012. 7. 29, 東京)

[12] T. Aruga  
“Large Rashba spin splitting on semiconductor surfaces”  
Collaborative Conference on Materials Research (2012. 6. 25, Seoul).

[11] T. Aruga  
“Large Rashba Spin Splitting on Semiconductor Surfaces”  
29th International Brandt Ritchie Workshop on Particle Penetration Phenomena and Excitations of Solids, (May 12-15, 2011, Matsue).

[10] S. Hatta, S. Miyamoto, Y. Ohtsubo, H. Tajiri, O. Sakata, H. Okuyama, T. Aruga  
“First-order transition following precursory relaxation of Peierls distortion on In/Si(111)”  
18th International Vacuum Congress, (Beijing, Aug. 23-27, 2010).

[9] K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga  
“Rashba spin-orbit interaction in metallic semiconductor surface states”  
18th International Vacuum Congress, (Beijing, Aug. 23-27, 2010).

[8] Y. Ohtsubo, K. Yaji, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, T. Aruga,  
“Spin polarization of Shockley-type semiconductor surface state”  
37th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics, (Vancouver, July 11-16, 2010).

[7] K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, T. Aruga,  
“Rashba spin splitting of a monolayer Pb-covered Ge(111) surface”  
37th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics, (Vancouver, July 11-16, 2010).

[6] T. Aruga  
“Rashba spin splitting at semiconductor surfaces”  
SSSJ-A3 Foresight Joint Symposium on Nanomaterials and Nanostructures, (5-7 July 2010, Tokyo).

[5] T. Aruga  
“Rashba Effect at Surfaces”  
The 4th International Workshop on Spin Currents & 2nd International Workshop on Spin caloritronics (2010. 2. 8-10, 東北大学)

[4] Y. Ohtsubo, K. Yaji, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, T. Aruga  
“Large Rashba spin splitting on Bi/Ge(111)-( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ )R30° ”  
11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICESS-11), (2009/10/6-11, Nara).

[3] K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, and T. Aruga  
“Rashba spin splitting of metallic surface state for 4/3-monolayer Pb/Ge(111)”  
11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICESS-11), (2009.10.6-10, Nara).

[2] S. Hatta, Y. Ohtsubo, H. Okuyama, T.

Aruga

"Giant Rashba spin splitting of surface-resonance bands on Bi/Ge(111)-( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ )"

26th European Conference on Surface Science, (2009/8/30-9/4, Parma, Italy).

[1] T. Aruga

有賀哲也(京大理)

「表面における Rashba 効果」

第 1 回岩澤コンファレンス (2009.5.30, 東京).

[図書] (計 1 件)

[1] 有賀哲也

「現代表面科学 3 表面物性」(分担執筆), 共立出版 (2012).

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 超薄膜の電気伝導の測定における多端子プローブ、測定装置及び測定方法

発明者: 八田振一郎、有賀哲也

権利者: 京都大学

種類: 特願 2013-11133

番号: 特許第 3784444 号

出願年月日: 2013 年 1 月 24 日

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<http://kuchem.kyoto-u.ac.jp/hyoumen/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

有賀 哲也 (ARUGA TETSUYA)

京都大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号: 70184299

### (2) 研究分担者

奥山 弘 (OKUYAMA HIROSHI)

京都大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号: 60312253

### (3) 連携研究者

なし