

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340069

研究課題名(和文)半導体表面、トポロジカル絶縁体表面およびそれらのヘテロ界面におけるスピン輸送

研究課題名(英文) Spin transport on the surfaces and heterointerfaces of semiconductors and topological insulators

研究代表者

有賀 哲也 (Aruga, Tetsuya)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70184299

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,200,000円

研究成果の概要(和文)：5 - 300 Kの温度範囲で金属単原子層の電気伝導度を高精度で測定する手法を開発した。7端子法によるスピン偏極測定により、Silsbeeにより提唱されたRashba電子系におけるスピン偏極電流仮説について精密な検証実験を行い、否定的に解決した。さらに、4端子法により、Ge(111)表面上のPb単原子層のシート伝導度の温度依存性を測定した。従来知られている金属単原子層と比べて1桁以上も大きなシート伝導度、2桁大きいステップ伝導度を有することを見出した。また、Ge(111)表面にBr等の単原子層を吸着させると、Geの表面内部に表面状態が形成され、Rashbaスピン分裂することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have developed an experimental method which enables us to measure the sheet conductivity of metallic monolayers on semiconductor surfaces for a temperature range of 5-300 K at a precision much higher than the previous methods. By using this new method in a 7-probe arrangement, we carried out a precise examination of the spin-polarized current hypothesis proposed by Silsbee for 2D Rashba electron systems. By a careful measurement, we concluded that the hypothesis is invalid. We also studied by a 4-probe method the temperature dependence of the sheet conductivity of a Pb monolayer on Ge(111). We found that the sheet conductivity at 10 K is more than an order of magnitude larger than those of known metallic monolayers, and that the step conductivity is two orders of magnitude larger. We also found subsurface electronic states ubiquitously formed on Ge(111) covered with different elements, which is spin-split by the Rashba effect.

研究分野：表面科学

キーワード：ラシュバ効果 単原子層

1. 研究開始当初の背景

Datta、Dasによるスピン・トランジスターの提案以来、半導体量子井戸におけるRashba型スピン軌道相互作用に関する研究が活発に進められてきた。しかし、通常の半導体量子井戸ではスピン分裂が1 meVオーダーしかないことから、室温での素子応用は困難であった。一方、Au(111)表面におけるRashba効果の研究において、100 meVを超えるRashbaスピン分裂が観測され、新たな研究展開の可能性を示すものとして注目された。

本研究代表者らは、Bi単原子層が吸着したAg表面において1 eVに達するRashbaスピン分裂を発見し、ついで、Si、Ge等の半導体表面においても、Biの単原子層を吸着させることにより、~200 meVのRashbaスピン分裂を生じさせることに成功した。但し、この表面状態バンドは絶縁体的であって、電気伝導には寄与しない。本研究代表者らはさらに物質探索を進め、Pb/Ge(111)表面においてスピン分裂200 meVを有する自由電子的表面状態バンドを発見した。これは、バルクが半導体でかつ表面は金属的バンドを有し、しかも大きくスピン偏極しているという表面スピン伝導の条件を満たす最初の物質であった。さらにBi/Ge(111)系における Γ 点近傍のショックレー型表面状態がGeの原子軌道から構成されるにも関わらず、スピン軌道相互作用による大きなスピン偏極を示すことを明らかにした。このバンドは半導体的であるが、ホールをドーピングすることにより金属化することにも成功した。

一方、2008年以降、バルクのスピン軌道相互作用によりスピン分裂した表面状態を有する3次元トポロジカル絶縁体が発見された。我々の発見した物質と3次元トポロジカル絶縁体は、バルクが絶縁体であり、かつ全体として非磁性体であるが、k空間で非対称なスピン構造を有する表面状態を有するという点で共通している。

2. 研究の目的

本研究においては、まず、半導体表面金属単原子層の電気伝導度測定を、極低温から室温までの広い温度範囲で、かつ、従来法よりもはるかに高い精度で実現することを目指した。開発した測定手法により、Silsbeeにより提案されたRashba系におけるスピン偏極電流の実験的検証、および、高精度電子伝導度測定による新物性探索を行うことを目的とした。また、1項で述べた新物質探索についても引き続き研究展開を図ることとした。さらに、半導体表面Rashba電子系、トポロジカル絶縁体のエピタキシャル成長などによる新しい物質合成手法の開発と新物質探索を目指した。

3. 研究の方法

(1) 表面電気伝導度プローブ

超高真空下で作製した単原子層試料について、多端子法による電気伝導度測定を行うプローブを開発した。同様のプローブは従来から用いられていたが、温度依存性の測定において、熱ドリフトにより接点が不安定になり、その結果、100 Ω 程度の測定値に対して1-10 Ω ものノイズが重畳してしまい、物理的に意義のある結果を得るのがきわめて困難であった。本研究では、再現性良く安定な接点を作製し、温度変化に対しても影響を受けない機構を実現した。これにより、温度変化にともなう伝導度雑音を $\Delta\sigma/\sigma < 10^{-4}$ に抑えることに成功した。

(2) 表面電子状態

表面電子状態の研究には、角度分解光電子分光法(ARPES)、スピン・角度分解光電子分光(SARPES)、フルポテンシャルLAPW法に基づく第一原理電子状態計算を用いた。構造解析が必要な系については、低速電子回折(LEED)の動力学的解析を行った。

(3) 新しい合成手法の開発

TlBiSe₂、Bi₂Te₃などのトポロジカル絶縁体の多くは層状構造を成しており、気相化学成長(CVD)法による結晶作製が可能であることが知られている。ところが、この場合、セレン、テルル等の気体を真空チェンバー

内に充填させることになることから、真空チャンバーの汚染が大きな問題であった。この点は、とりわけ、シンクロトン放射光施設などの共用装置を利用する場合に大きな障碍となるため、真空チャンバーを汚染せずに単層ごとに合成する手法の開発が求められていた。

4. 研究成果

(1) β -Pb/Ge(111)表面の電気伝導度測定

9–300 Kの温度範囲で、4端子法により β -Pb/Ge(111)の高精度電気伝導度測定を行った(図1)。全ての温度領域で金属的伝導が見られ、パイエルス転移、超伝導転移等は観測されなかった。シート伝導度は 10 Kにおいて 10.2 mS/□に達した。これは、Ag/Si(111)、In/Si(111)などの2次元金属系における伝導度よりも1~2桁も大きな値であり、Si(111)表面上の10層程度のPb薄膜と同程度の伝導度である。このことから、この系が単原子層金属として異常に高い電気伝導度を有することが示された。

マクロな表面電気伝導度は表面欠陥、とりわけステップによる影響を受ける。そこ

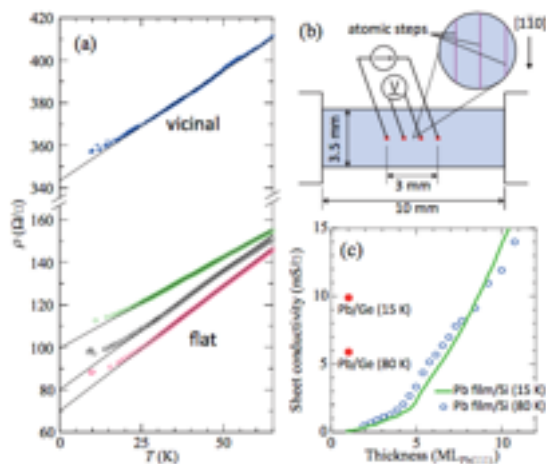


図1. (a) β -Pb/Ge(111)の電気伝導度。平坦(flat)表面と微斜(vicinal)表面。(b) 微斜表面のステップ方向、測定配置。(c) Si(111)上のPb薄膜との比較。(Reprinted with permission from S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, and T. Aruga, Phys. Rev. B **90**, 245407 (2014). Copyright (2014) by the American Physical Society.)

で、微視的な電気伝導機構を明らかにするために、意図的に高密度のステップを導入した微斜表面を用いて、ステップ伝導度の測定を行った。 β -Pb/Ge(111)のステップ伝導度は 8×10^5 S/mであり、In/Si(111)の 3×10^3 S/m、Ag/Si(111)の 5×10^3 S/mに比べて、2桁以上も大きいことがわかった。平坦表面のステップ密度を見積もった結果、大きなステップ伝導度が、 β -Pb/Ge(111)の大きな2次元シート伝導度の一因となっていることがわかった。

さらに、この表面における伝導電子のフォノンによる散乱について調べるため、伝導度の温度依存性から電子フォノン結合定数を求めたところ、 0.16 ± 0.03 であり、バルクのPbの値(1.1–1.5)に比べてきわめて小さく、この系の超伝導転移温度はバルクPbに比べて著しく低いことが予想された。さらに、電子フォノン散乱の異方性について検討するために、表面状態の光電子スペクトル幅から電子フォノン結合定数を見積もったところ、バンドによる異方性が見られたが、絶対値としてはバルクPbの値よりは相当に小さく、伝導度から求めた値とおおよそ一致した。このことは、電子フォノン散乱においてスピンによる異方性が見られないことを示している。これは、Rashba系特有のスピン分裂フェルミ面の性質を反映しているものと考えられる。

(2) スピン偏極電流仮説の検証

大きくRashbaスピン分裂した2次元電子系を有する β -Pb/Ge(111)表面を用いて、Silsbeeにより提唱された、Rashba電子系におけるスピン偏極電流仮説についての実験的検証を行った。表面平行方向に磁化可能な磁性端子1端子を含む対称7端子法によりマクロな表面電流のスピン偏極度測定を行った。測定中の温度揺らぎ、幾何因子の非対称性、磁場印加時の強磁性端子の変位などの非対象因子を全て除いた結果、表面電流のスピン偏極度の上限は77 Kにおいて 1×10^{-4} であった。 β -Pb/Ge(111)は高い電気伝導性を有する2次元金属であることから、強

磁性金属-半導体界面におけるようなスピン注入時の偏極の完全消失が起これないと考えられ、Rashba系におけるスピン偏極電流仮説をほぼ完全に否定する結果が得られた。

(3) Ge(111)のsubsurface表面状態のスピン偏極

Ge(111)表面にBi、Pb、Tl等の重元素単原子層を吸着させると、吸着重元素に由来する表面状態の他に、Geの表面内部数層から数十層におよぶサブサーフェス表面状態が形成されることを見出した。さらに、これらのサブサーフェス表面状態はRashbaスピン分裂していることを、スピン分解光電子分光、第一原理計算により明らかにした。また、Geとほぼ同じ原子番号を有するBr原子で表面を覆った場合も、同様のサブサーフェス表面状態が観測された。これは、スピン分裂の起因が表面重原子層によるバルク電子波の散乱によるものではなく、Ge原子の核ポテンシャルによるスピン軌道相互作用によって引き起こされていることを示している。

(4) 真空チェンバーの汚染を伴わない層状トポロジカル絶縁体単層成長法

従来、Bi₂Se₃、Bi₂Te₃等のCVD成長では、真空チェンバー内でセレンあるいはテルルとビスマスを同時に蒸発させ、基板表面に一定のフラックスで同時照射することにより、エピタキシャル成長を実現していた。この場合、付着係数の小さいセレン、テルル等が真空チェンバー内に充満し、チェンバー全体を汚染してしまうことが問題であった。

本研究では、化合物の蒸気を適当な温度に保った基板上に直接照射してBi₂Te₃等を単層成長させる方法を開発した。これにより、ラッシュバ系物質、層状トポロジカル絶縁体などを含む複合超格子物質合成を実現する道を拓いた。

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15件)

- [1] Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, and T. Aruga, "A metallic surface state with uniaxial spin polarization on Tl/Ge(111)-(1x1)", J. Phys.: Condens. Matter, 査読有, 24, 092001 (5 pp.) (2012).
DOI: 10.1088/0953-8984/24/9/092001
- [2] Y. Ohtsubo, S. Hatta, N. Kawai, A. Mori, Y. Takeuchi, K. Yaji, H. Okuyama, and 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
- [3] 八田振一郎、有賀哲也、「結晶表面における電荷密度波相転移」、表面科学、33(9), 513-518 (2012).
https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsssj/33/9/33_513/_pdf
- [4] K. Yaji, S. Hatta, T. Aruga, and H. Okuyama, "Structural and electronic properties of the Pb/Ge(111)- β ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° surface studied by photoelectron spectroscopy and first-principles calculations", Phys. Rev. B 86, 235317 (6 pp.) (2012).
DOI: 10.1103/PhysRevB.86.235317
- [5] Y. Ohtsubo, K. Yaji, S. Hatta, H. Okuyama, and T. Aruga, "Two-dimensional states localized in subsurface layers of Ge(111)", Phys. Rev. B 88, 245310 (7 pp.) (2013).
DOI: 10.1103/PhysRevB.88.245310
- [6] S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, T. Aruga, "Anomalous electrical conduction in a monatomic Pb layer on Ge(111)", Phys. Rev. B 90, 245407 (6 pp.) (2014).
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.245407
- [7] K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, R. Yukawa, I. Matsuda, P. Le Fevre, F. Bertran, A. Taleb-Ibrahimi, A. Kakizaki, T. Aruga, "Experimental evidence for two-

dimensional states localized in subsurface region of Ge(111)", J. Electron Spectros. Relat. Phenom. 201, 92-97 (6 pp.) (2014).

DOI: 10.1016/j.elspec.2014.09.005

[8] T. Aruga, "Different types of Rashba spin-split surface states on Ge(111)", J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 201, 74-80 (7 pp.) (2014).

DOI: 10.1016/j.elspec.2014.10.004

[学会発表] (計34件)

[1] Y. Ohtsubo, S. Hatta, K. Yaji, H. Okuyama, T. Aruga, "Spin-polarized metallic surface states induced by spin-orbit interaction on semiconductors without heavy elements", The 29th European Conference on Surface Science, Sept. 2-7, 2012, Edinburgh, UK.

[2] Y. Ohtsubo, S. Hatta, and T. Aruga, "Spin-Polarized Electronic States at Surfaces and Interfaces of Ge", The 10th Japan-Russia Seminar on Semiconductor Surfaces, Hongo, Tokyo, Sept. 26-28, 2012.

[3] T. Aruga, "Spin-polarized surface states induced by spin-orbit interaction on semiconductor surfaces", Collaborative Conference on Materials Research 2012, Seoul, June 25-29, 2012.

[4] 八田振一郎, 「重元素吸着Ge(111)表面のスピンの偏極状態と電気伝導」、第4回放射光若手研究会「表面電子のスピンの生み出す物理の最前線: ラッシュバ効果、トポロジカル絶縁体」、東京大学、2012.8.28-29。

[5] 八田振一郎, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「TI吸着Ge(111)表面の電気伝導度測定」、日本物理学会2012年秋季大会、9.18-21、横浜国立大学。

[6] 八田振一郎, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「金属吸着Ge(111)表面の電気伝導測定II」、日本物理学会2012年秋季大会、2012.9.18-21、横浜国立大学。

[7] 林幸広, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也, 「Pb/Ge/Si(111)(1×1)表面の構造と電子

状態」、日本物理学会2012年秋季大会、2012.9.18-21、横浜国立大学。

[8] 八田振一郎, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「ラッシュバ分裂した表面電子系におけるスピン偏極電流の検証」、日本物理学会第68回年次大会、2013.3.26-29、広島大学。

[9] 河合宣彦, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也, 「Au/Si(001)-c(8×2)表面の構造と電子状態」、日本物理学会第68回年次大会、2013.3.26-29、広島大学。

[10] 野間俊, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也, 「Pb/Ge(111)-($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)- β 表面における伝導度の温度依存性」、日本物理学会第68回年次大会、2013.3.26-29、広島大学。

[11] S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, T. Aruga, "Electrical conductance through surface states with large Rashba-type spin splitting", The 19th International Vacuum Congress and the 15th International Conference on Surface Science, Sept. 9-13, 2013, Paris.

[12] 八田振一郎, 中辻一貴, 大坪嘉之, 奥山弘, 有賀哲也, 「TlBiSe₂(111)表面の原子構造」、日本物理学会2013年秋季大会、2013.9-25-28、徳島大学。

[13] 野間俊, 八田振一郎, 奥山弘, 有賀哲也, 「金属単原子層の電気伝導度に対する吸着原子の効果」、日本物理学会2013年秋季大会、2013.9-25-28、徳島大学。

[14] 八田振一郎, 林幸広, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「PbまたはBi吸着Ge/Si(111)表面の電子構造」、日本物理学会2013年秋季大会、2013.9-25-28、徳島大学。

[15] 有賀哲也, 「表面の低次元物性と動的過程の研究」, The Joint Annual Symposium of the Vacuum Society of Japan and the Surface Science Society of Japan, Tsukuba, Nov. 26-28, 2013.

[16] T. Aruga, S. Hatta, K. Yaji, Y. Ohtsubo, "Exploring Rashba spin-split surface states on semiconductors", The 12th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and

- Nanostructures, Nov. 4-8, 2013, Tsukuba, Japan.
- [17] S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, T. Aruga, "Electrical Conductance through Spin-split Surface States on Pb/Ge(111)", The 12th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Nov. 4-8, 2013, Tsukuba, Japan.
- [18] T. Aruga, S. Hatta, K. Yaji, H. Okuyama, "Ge(111)- $\beta(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Pb: An intriguing 2D metal", The First Asia-Pacific Symposium on Surface Science, Vladivostok, Sept. 29 - Oct. 1, 2014.
- [19] 八田振一郎, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「In/Si(111)-(4×1)表面の相転移と電気伝導度」、日本物理学会第69回年次大会、2014. 3.27-30、東海大学。
- [20] 有賀哲也, 「表面ラシュバ効果」, シンポジウム「金属吸着半導体表面の物理 — この 30年を振り返り、次の10年を展望する」, 日本物理学会2014秋季大会, 2014. 9. 9. 中部大学。
- [21] 八田振一郎, 野間俊, 奥山弘, 有賀哲也, 「In/Si(111)-(4×1)表面における相転移のヒステリシス」、日本物理学会2014秋季大会, 2014. 9. 9. 中部大学。
- [22] 八田振一郎, 坂田直人, 奥山弘, 有賀哲也, 「XMCDによる金属吸着半導体表面上に吸着したFeおよびCo原子の研究」、日本物理学会2014秋季大会, 2014. 9. 9. 中部大学。
- [23] S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, T. Aruga, "Electrical conductance through Rashba-type spin-split states on Pb/Ge(111)", The 7th International Symposium on Surface Science, Nov. 2-6, 2014, Tokyo.
- [24] 飯田 龍、八田 振一郎、奥山 弘、有賀哲也, 「In/Si(111) $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ -hex表面の作製と電子状態」, 第34回表面科学学術講演会, 2014.11.6-8, 早稲田大学。
- [25] 八田振一郎, 「(若手奨励賞受賞講演) 結晶表面における低次元電子系の物性研究: 電荷密度波相転移とラシュバ効果」、日本物理学会第70回年次大会、2015.3.21-24, 早稲田大学。
- [26] 八田振一郎, 飯田龍, 奥山弘, 有賀哲也, 「LEEDによる二種類のIn/Si(111)- $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ 構造の同定」、日本物理学会第70回年次大会、2015.3.21-24, 早稲田大学。

〔図書〕 (計0件)

〔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：同上

種類：特許

番号：特願2013-11133

出願日：平成25年1月24日

○取得状況 (計0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.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

八田 振一郎 (HATTA, Shinichiro)

京都大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：70420396