

平成 30 年 6 月 5 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03675

研究課題名(和文)半導体表面Rashba電子系の電子・スピン輸送物性

研究課題名(英文)Electron and spin transport properties of Rashba systems on semiconductor surfaces

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) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：層状トポロジカル絶縁体の従来の成膜方法として、チェンバー汚染を伴わない新手法を考案し、結晶性のよいBi₂Te₃を単層成長させることに成功した。得られたBi₂Te₃膜の電子状態、電気伝導度測定を行い、両者の間の対応関係を解明した。

Si表面上の(4x1)-In単原子層について、4x1相の相転移にともなう電気伝導度変化の観測に成功し、相転移の機構を明らかにした。rect-In相の電気伝導度の温度依存性を測定し、金属フタロシアニン分子を吸着させることにより伝導度の温度勾配が変化することを見出した。また、実在が疑問視されていたhex相の合成に成功し、これが単原子層金属であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this work, we developed a new method of the vacuum growth of Bi₂Te₃, which is not associated with the contamination of the chamber, and succeeded in layer-by-layer growth of good-quality Bi₂Te₃. We studied and clarified the correlation between the development of valence electronic structure and the electrical conductivity of the film.

We also studied the electrical conductivity of the (4x1)-In monolayer on Si surface and succeeded in the observation of the precise conductivity change during a phase transition, which enabled us to understand the detailed mechanism of the phase transition which has been under debate for decades. We also measured the temperature dependence of the conductivity of rect-In phase. The adsorption of metal phthalocyanine on the rect-In surface modified greatly the temperature coefficient of the conductivity. We also succeeded in the preparation of the 7 x 3-hex phase and found that this is the single-layer limit of the metallic In phases on Si.

研究分野：表面物性化学

キーワード：表面電気伝導 トポロジカル絶縁体 表面相転移

1. 研究開始当初の背景

従来知られていなかったトポロジカル絶縁体と呼ばれる物質群は、バルク内部は絶縁体であるのに対し、その表面には金属的、かつスピン分裂した表面状態が存在する。この表面状態は、通常の半導体などの表面状態とは異なり、結晶自身のトポロジカルな性質によって保護されている。このため、スピントロニクスなどへの応用可能性もあって多くの関心を集めていた。なかでも Bi₂Te₃ などの層状構造を有するトポロジカル絶縁体は、ヘテロ積層など新物質合成の可能性を秘めている。Bi₂Te₃ の成膜には、高真空チェンバー中を Te 蒸気で満たした状態で、Bi 固体を入れた坩堝を加熱し、その蒸気を基板表面上に照射する方法が行われてきた。この方法では、真空チェンバーの内壁が Te で汚染されるため、光電子分光などの分析器を備えた超高真空チェンバーとは別のチェンバーを用意する必要があり、特に、シンクロトロン放射光を用いた光電子分光実験など、共用装置での実験が困難であった。

一方、半導体表面上の金属超薄膜の研究は多年に渡って積み上げられてきた。本研究者らによる Pb/Ge(111) 巨大 Rashba 系の発見などにより、上記のトポロジカル絶縁体単層などと組み合わせることにより新たな物性を引き出す可能性があることから、近年、注目を集めている。従来の研究では、主に構造、電子状態が注目されてきたが、その電気伝導、スピン伝導を測定することができれば新たな展開の可能性が生まれる。

2. 研究の目的

本研究では、Bi₂Te₃ などの層状トポロジカル絶縁体の新たな単層作製方法を開発し、その電子状態と電気伝導の相関を明らかにすること、半導体表面上の金属原子層の構造、電子状態と電気伝導性の相関、およびその上への分子吸着による電子/スピン輸送特性への影響を明らかにすることを主な目的と

し、これにより金属、化合物の単層構造をベースとした 2 次元物質の科学を開拓することを目指した。

3. 研究の方法

Bi₂Te₃ などの化合物単層の作製は、本申請者らが考案した手法を用いた。作製された単層物質について、角度分解光電子分光と第一原理計算による電子構造決定、独自に開発した温度可変超高真空 4 端子プローブによる電気伝導度測定などを行った。

4. 研究成果

[成果 1] トポロジカル絶縁体 Bi₂Te₃ の新たな成膜方法の開発と、電子状態、電気伝導の総数依存性の研究。

重元素カルコゲナイド系のトポロジカル絶縁体の典型物質である Bi₂Te₃ について、新たな単層単位成膜方法を開発し、これを用いて Si 表面上に 1~5 層の結晶性 Bi₂Te₃ を成長させ、その電子構造、電気伝導について研究した。電子構造では、最初の単層において Bi 層に局在した半導体的バンドが形成されること、第 2 層形成によりバンドギャップが縮小するとともに、Te-Te 界面に局在した伝導体が形成されること、第 3 層形成により初めてトポロジカル絶縁体に転移することなどを観測した。さらに単層~5 層の Bi₂Te₃ の電気伝導度測定に成功し、トポロジカル表面状態だけではなく Te-Te 界面の伝導帯が重要な寄与を及ぼすことを明らかにした。

[成果 2] Si 表面上の In ナノワイヤ層の電気伝導測定とこれによる相転移挙動の解明

Si(111) 表面上の (4x1)-In 相は、In 原子のナノワイヤが規則配列した構造を有する。この相はおよそ 100 K 以下の低温で (8x2) 相に転移することが知られている。ARPES による電子構造観測では、高温では金属的なフェルミ面が存在するが低温ではギャップが生じ、絶縁体的になることが知られていた。相転移

の詳細なメカニズムについては不明であった。

本研究では、電気伝導度の温度依存性を精密測定することにより、上記の相転移機構の解明を試みた。電気伝導度は 100 K 付近の相転移点近傍において、昇温 / 降温過程で異なる経路を通り、明瞭なヒステリシスを示した。これは、この相転移が弱結合パイエルズ転移などの連続的転移ではなく、相共存状態を経由した 1 次相転移であることを明確に示す結果である。さらに、相転移を支配する表面のギブズエネルギーバランスに対する表面ステップの局所的効果について明らかにした。

[成果 3] Si 表面上の 2 原子層 In 層(rect 相)の電気伝導測定と、鉄フタロシアニン(FePc)分子吸着による In 層電気伝導の制御

Si(111)表面に In を吸着させて得られる (7×3)-rect 表面は、2 次元自由電子的な Fermi 面を有している。本研究では 10–300 K の温度範囲で電気伝導度の精密測定を行った。成果 2 で述べた(4x1)-In 相が、金属的電子状態を有するにも関わらずドメイン境界などの影響により半導体的な伝導特性を示すのに対し、この rect-In 層がマクロな金属的伝導を示すことを確認した。

さらに、この rect-In 層のうえに金属フタロシアニン分子を吸着させて、In 層の電気伝導に対する影響を調べた。CuPc、H2Pc の吸着では、残留抵抗のわずかな増大が観測された。FePc の吸着では、残留抵抗が数倍に増大するとともに、伝導度の温度勾配が大きく減少する現象が見られた。In 層の原子配列、電子構造に大きな変化は見られないことから、FePc の吸着により In 層内における伝導電子の振る舞い(例えば電子-格子相互作用など)に質的な影響がもたらされることが分かった。

[成果 4] Si 表面上の単原子層 In 層(hex 相)の作製と電子構造の解明

Si(111)表面上の In 吸着ではいくつかの相が確認されてきたが、そのうち(7×3)-hex と呼ばれる相は作製が困難で、他の相と共存した微小なドメインとして STM により観測されるのみであった。本研究では、試料作製条件を精密に制御することにより、マクロな試料表面全体に(7×3)-hex 相を作製することに成功した。これにより hex 相の Fermi 面測定が実現した。測定された Fermi 面は、1.4 ML の構造モデルに対して計算されたものと良く一致し、Pb/Ge(111)とならば単原子層自由電子金属(世界で最も薄い金属箔)であることが明らかとなった。

[成果 5] Au/Si(001)において Au 原子は 1 次元鎖状構造をとる。この表面で観測される表面状態の状態密度はフェルミエネルギー付近でべき乗則にしたがって減衰する。従来、同様の振る舞いは、類似構造をとる Au/Ge(001)でも観測されており、朝永-Luttinger 液体性の根拠とされてきた。本研究では、Au/Si(001)のべき乗的振る舞いが表面の不規則性により定量的に説明できることを示した。

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 6 件)

[1] “Different types of Rashba spin-split surface states on Ge(111)”, T. Aruga, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 201, 74-80 (2015). 査読有

DOI: 10.1016/j.elspec.2014.10.004

[2] “Experimental Evidence for two-dimensional states localized in subsurface region of Ge(111)”, K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, E. Yukawa, I. Matsuda, P. Le Fevre, F.

Bertran, A. Taleb-Ibrahimi, A. Kakizaki, T. Aruga, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 201, 92-97 (2015). 査読有

DOI: 10.1016/j.elspec.2014.09.005

[3] 「ラシュバ効果 — 2次元系のスピン軌道相互作用」, 有賀哲也, 日本物理学会誌 70, 588-589 (2015). 査読有

[4] “Electrical conduction and metal-insulator transition of indium nanowires on Si(111)”, S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama, T. Aruga, Phys. Rev. B 94, 075442 (2017). 査読有

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.195409

[5] “Identification of single-layer metallic phase of In on Si(111)”, S. Terakawa, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga, J. Phys. Condens. Matter, submitted. 査読有

[6] “The origin of the power-law suppression of density of states on Au/Si(001)”, P. Thomas, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga, to be submitted. 査読有

〔学会発表〕(計 33 件)

[1] 八田 振一郎, 坂田 直人, 奥山 弘, 有賀哲也, 「In/Si(111)-(7×3)表面の電気伝導に対する吸着フタロシアニンの効果」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015.9.25-28, 大阪市立大学。

[2] 八田 振一郎, 大林 嵩, 施 安路, 奥山 弘, 有賀哲也, 「Si(111)基板上に成長させた Bi₂Te₃ 薄膜の電子状態と電気伝導」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015.9.25-28, 大阪市立大学。

[3] T. Aruga, S. Hatta, H. Okuyama, “Unusually high electrical conductivity of a Pb monolayer on Ge(111)”, 31st European Conference on Surface Science, 2015.8.31-9.4, Barcelona.

[4] Shinichiro Hatta, Hiroshi Okuyama, Tetsuya Aruga, “Hysteresis behavior of

Electrical Conductivity”, 15th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces, 2015.11.15-20, Hiroshima.

[5] 八田 振一郎, 「温度可変型 4 端子プローブでみる表面低次元金属の電気伝導」, 物性研究所短期研究会(招待講演), 2015.6.24-26, 東京大学物性研究所。

[6] 八田 振一郎, 「特異な電子状態をもつ金属単原子層の電気伝導特性」, 応用物理学会開催支部講演会(招待講演), 2015.9.30, 大阪大学。

[7] 八田 振一郎, 奥山 弘, 有賀哲也, 「In/Si(111)-(4×1)表面の相転移と電気伝導」, 第 35 回表面科学学術講演会, 2015.12.1-3, つくば市。

[8] 大林 嵩, 八田 振一郎, 奥山 弘, 有賀哲也, 「Si(111)基板上に成長させた Bi₂Te₃ 薄膜の電子状態と電気伝導」, 第 35 回表面科学学術講演会, 2015.12.1-3, つくば市。

[9] 坂田 直人, 八田 振一郎, 奥山 弘, 有賀哲也, 「In/Si(111)-(7×3)表面の電気伝導に対する吸着鉄(II)フタロシアニンの効果」, 関西薄膜表面物理セミナー, 2015.11.20-21, 交野市。

[10] P. Thomas, N. Kawai, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga, “Characterization of the 1D metallic band of Au-induced atomic chains on vicinal Si(001)”, 関西薄膜表面物理セミナー, 2015.11.20-21, 交野市。

[11] 八田 振一郎, 大林 嵩, 奥山 弘, 有賀哲也, 「Si(111)基板上における Bi₂Te₃ 超薄膜の成長と電子状態」, 日本物理学会年次大会, 2016.3.19-22, 東北学院大学。

[12] 八田 振一郎, 坂田 直人, 奥山 弘, 有賀哲也, 「FePc 吸着 In/Si(111)表面の電子状態と電気伝導」, 日本物理学会秋季大会, 2016.9.13-16, 金沢市。

[13] S. Hatta and T. Aruga, “A precision surface electrical conductivity study of the

Si(111)-In (4x1)—(8x2) phase transition”, 13th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures”, 2016.10.9-15, Rome.

[14] 八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111)_{4x1} 表面の相転移とヒステリシス」、関西薄膜表面物理セミナー、2016.11.18-19、神戸市。

[15] 八田 振一郎、大林 嵩、奥山 弘、有賀 哲也、「Bi₂Te₃ 超薄膜の電子状態と電気伝導」、2016 真空・表面科学合同講演会、2016.11.29-12.01、名古屋市。

[16] S. Hatta, K. Obayashi, H. Okuyama, T. Aruga, “Electronic structure and electrical conduction of ultrathin Bi₂Te₃ films”, Symposium on Surface Science and Nanotechnology, 2017.1.24-25, Kyoto.

[17] S. Terakawa, S. Hatta, H. Okuyama, T. Aruga, “Electronic structure of In/Si(111) 7 × 3-hex surface”, Symposium on Surface Science and Nanotechnology, 2017.1.24-25, Kyoto.

[18] 八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「InSi(111)_{4x1} 表面の相転移：ヒステリシスの非対称とステップの効果」、日本物理学会年次大会、2017.3.17-20、豊中市。

[19] 寺川 成海、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111) 7 × 3-hex 表面の電子構造、日本物理学会年次大会、2017.3.17-20、豊中市。

[20] 八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「4 端子伝導度測定を用いた鉄フタロシアニン超薄膜の成長の観察」、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017.3.14-17、横浜市。

[21] 有賀 哲也、「角度分解光電子分光と電気伝導度測定で探る表面低次元物質」、応用物理学会第 12 回励起ナノプロセス研究会（招待講演）、2017.3.29-30、淡路市。

[22] 有賀 哲也、「超高真空下における単原子層物質の物性研究（招待講演）」、2017 年真

空・表面科学合同講演会、2017.8.17-19、横浜市。

[23] 寺川 成海、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111) 7 × 3-hex 表面の電子構造」、2017 年真空・表面科学合同講演会、2017.8.17-19、横浜市。

[24] 寺川 成海、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111) 7 × 3-hex 表面の電子構造と相転移」、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017.9.21-24、岩手市。

[25] 八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「フタロシアニン分子に覆われた金属超薄膜の電子状態と電気伝導」、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017.9.21-24、岩手市。

[26] Petros Thomas、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、“The role of disorder on the density of states of Au-induced chains on Si(001)”, 日本物理学会 2017 年秋季大会、2017.9.21-24、岩手市。

[27] 寺川 成海、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、“Electronic structure and phase transition of In/Si(111) 7 × 3-hex surface”、第 5 回伊藤国際学術研究センター会議(IIRC5)、2017.11.20-23、東京。

[28] 金 伸謙、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「CaF₂/Si(111)上における FeBr₂ 薄膜成長の研究」、関西薄膜表面物理セミナー、2017.12.1-2、神戸市。

[29] 綾 逢奈、八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111)表面上フタロシアニン分子の吸着状態の研究」、第 16 回物性科学研究センター講演会・研究交流会、2018.2.19、京都市。

[30] Petros Thomas, Shinichiro Hatta, Hiroshi Okuyama, Tetsuya Aruga, “The power law suppression of the density of states of Au/Si(001) is not a unique characteristic of the quasi-one-dimensional superstructure”, APS March Meeting, 2018.3.5-9, Los Angeles.

[31] 八田 振一郎、奥山 弘、有賀 哲也、「低速電子回折による In/Si(111)表面上のフタロシアニン分子の吸着状態の研究」、応用物理学会春季学術講演会、2018.3.17-20、東京。

[32] 八田 振一郎、綾 遙奈、奥山 弘、有賀 哲也、「In/Si(111)表面上の銅フタロシアニン分子の吸着状態」、日本物理学会第 73 回年次大会、2018.3.22-25、野田市。

[33] 有賀 哲也、「半導体表面で生成する原子層物質（招待講演）」、第 1 回ポストグラフェン材料のデバイス開発研究会、2018.6.11、名古屋市。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

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

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: 7 0 1 8 4 2 9 9

(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: 7 0 4 2 0 3 9 6