

## 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 21 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008 年度～2012 年度

課題番号：20244045

研究課題名（和文）

反転対称性の破れに起因する表面ナノ構造体の巨大スピン分裂バンド構造

研究課題名（英文）

Giant Rashba splitting originating from the broken symmetry at surfaces

研究代表者

坂本 一之（SAKAMOTO KAZUYUKI）

千葉大学・大学院融合科学研究科・准教授

研究者番号：70261542

研究成果の概要（和文）：

半導体表面上に作製した低次元ナノ構造体での巨大スピン分裂など、特異なラシュバ効果の観測とその起源の解明を目的に実験と理論の両面より研究を遂行した。その結果、固体表面の対称性に起因した、表面垂直方向に 100%偏極したラシュバスピンの向きや、不可欠だと思われていた時間反転対称性がなくてもラシュバ効果が起こることなど、それまでの常識を覆すようなラシュバ効果を報告した。また、ラシュバスピンの向きが原子核近傍の電荷分布の非対称性により決定されることも示した。

研究成果の概要（英文）：

Peculiar Rashba effects, such as giant spin splitting, on low-dimensional nano-structures, which are formed on semiconductor surfaces, have been investigated both experimentally and theoretically. We observed extraordinary Rashba effects like Rashba spin that is 100% spin polarized and points along the surface normal direction, and Rashba splitting at a point without time-reversal symmetry, which was believed to be a necessary condition for this effect. These extraordinary effects are concluded to result from the symmetry of the surface. We also showed that the sign of the Rashba splitting is determined by the particular charge asymmetry near the atomic cores.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	26,200,000	7,860,000	34,060,000
2009 年度	3,300,000	990,000	4,290,000
2010 年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2011 年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2012 年度	3,100,000	930,000	4,030,000
総計	38,500,000	11,550,000	50,050,000

研究分野：数物系科学

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、電子物性、スピン軌道相互作用、光電子分光、  
スピンエレクトロニクス

## 1. 研究開始当初の背景

固体表面は、次元性の低下によってバルクでは明確に現れなかった量子効果が顕著に観測される場である。スピン軌道相互作用と固体表面の空間反転対称性の破れによって非磁

性体でもスピン偏極電子バンドが生じるラシュバ効果はこのような低次元物性の 1 である。理想二次元電子系におけるラシュバ効果では、 $\Gamma$  点で底を持つ自由電子バンドが波数方向にずれたスピン分裂構造を持ち、スピンは表面

平行方向を向くのが特徴である。また、Biを吸着させてAg表面のように、スピン軌道相互作用の小さい金属基板にスピン軌道相互作用の大きな原子を吸着させることによってスピン分裂が大きくなることが報告されている。研究者は軽元素Si上に重元素のBiやTlを吸着させた系でそれまで報告のなかった半導体基板上での巨大ラシュバ効果や、通常のラシュバ効果と異なり、エネルギー方向に分裂した表面電子バンドを観測していたが、その起源に関しては不明であった。

## 2. 研究の目的

スピンの三次元情報を得ることが出来るスピン分解光電子分光装置を立ち上げ、同装置を用いて原子レベルで制御した半導体表面上の低次元ナノ構造体の電子バンド・スピン構造を測定することによって新奇ラシュバ効果を観測する。得られた実験結果を解析するとともに第一原理による理論計算を用いて新奇ラシュバ効果の発現のメカニズムの起源を明らかにし、半導体表面上での空間反転対称性の破れに起因する特異なラシュバ効果に関する詳細な知見を得ることが本研究の目的である。

## 3. 研究の方法

半導体表面上の低次元ナノ構造体の物性研究を遂行してきた研究代表者と、スピン分解光電子分光の経験が豊富な研究分担者および独自のスピン軌道相互作用コードによる第一原理計算による理論的検証が行える研究分担者によって研究を遂行した。この研究チームでそれぞれの専門分野の知識を活かし、緊密に連絡を取り合うことで対称性とスピン軌道相互作用に起因するスピン分裂に関する詳細な知見を得ることが初めて可能となった。

スピン分解・角度分解光電子分光実験は千葉大学で新規に立ち上げたスピン分解光電子分光装置のみでなく、国内外の放射光施設を利用した。

## 4. 研究成果

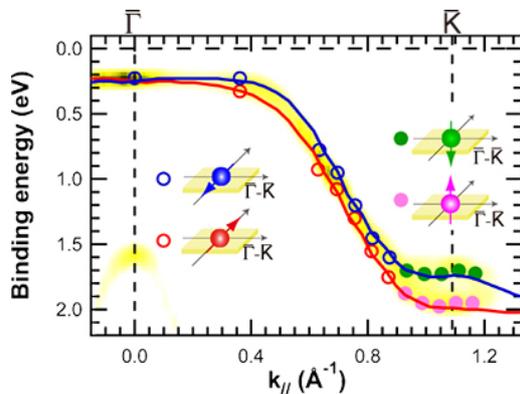


図1: Tl/Si(111)表面のスピン分解電子構造

スピン軌道相互作用の大きい重元素 Tl をスピン軌道相互作用の弱い軽元素 Si 表面に1層吸着させて形成される Tl/Si(111)-(1×1)表面において、固体物理学においてこれまでどのような二・三次元物質でも観測されたことのないエネルギー方向の電子バンド分裂を表面ブリルアンゾーンの  $\bar{K}$  点で観測した (図1)。また、ラシュバスピがこの分裂でのみ表面に垂直な方向を向くことと、垂直方向を向くスピンの偏極度が 100%であることを明らかにした。通常スピン軌道相互作用によって発現する理想的なラシュバスピンの偏極度は根本的に 100%とはなることはないことから、本研究で観測したラシュバ効果は分裂の振る舞いやスピンの向きのみでなく、偏極度も特異であるがわかる。この特異なラシュバスピを理解するために周期的なポテンシャル中での有効スピン軌道相互作用ハミルトニアンを再考した結果、 $H_{\text{soc}} = \vec{\sigma} \cdot [\vec{a}_n(\vec{k}) \times \vec{k}] + \vec{\sigma} \cdot B_n(\vec{k})$  となった。ラシュバ効果に対応する右辺第一項とともに、ゼーマン項が右辺第2項に現れている。このゼーマン項の磁場  $B_n(\vec{k})$  は原子軌道の波動関数に主に起因している。Tl/Si(111)-(1×1)表面の  $\bar{K}$  点はその規約表現が  $p_x - ip_y$  である  $C_3$  対称性を有していることから  $B_n(\vec{k})$  は表面垂直方向となり、スピンの表面垂直方向を向くこと原因が表面の対称性であることを明らかにした。

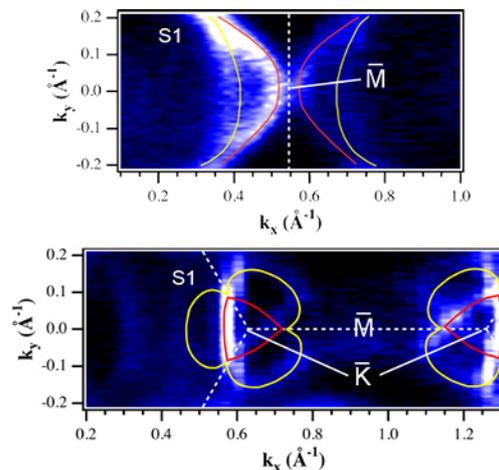


図2: Bi/Si(111)表面での特異なラシュバスピン構造

Si(111)表面に重元素 Bi を吸着させると 1ML と 1/3ML で  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$  構造をとることが知られていたが、低速電子線回折によってそれぞれの吸着量の作製方法を確立し、その見分け方を明らかにした。このうち、1ML の吸着量で形成される Bi/Si(111)- $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$  表面をスピン分解・角度分解光電子分光で測定した結果、ラシュバ効果に必須だと考えられていた時間反転対称性を有していない点 (図2の  $\bar{K}$  点) においてもラシュバ効果が発現することや、時間反転対称性がある点 (図2の  $\bar{M}$

点)では通常渦構造をとると考えられていたラシュバスピ構造が、渦状となっていない初めての報告をした。この原因を探るため  $k \cdot p$  摂動法による理論から、Bi/Si(111)の特異なラシュバ効果も表面の対称性(図5の $\bar{K}$ 点は $C_{3v}$ 、 $\bar{M}$ 点は $C_{1h}$ )に起因することを明らかにし、スピン軌道相互作用と対称性の相関の重要性を改めて示した。

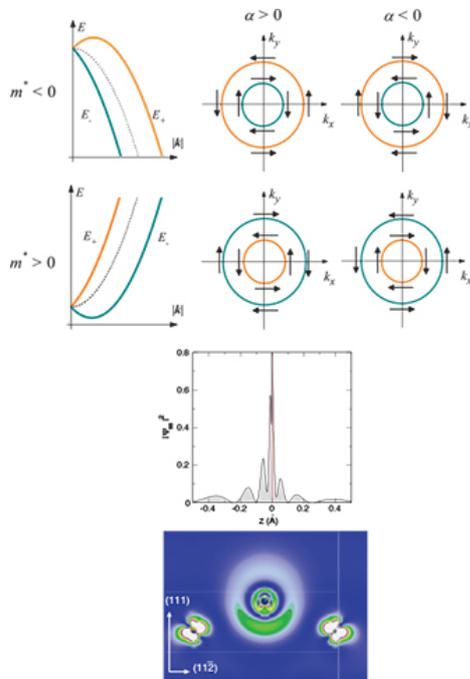


図3: ラシュバスピンの向きと起源となる電子有効質量と波動関数の非対称性

Bi/Cu(111)表面を用いた研究では、ラシュバスピンの向きが波動関数の表面垂直方向の非対称性による電荷分布の偏りと電子の有効質量によって一意的に決定することを明らかにした(図3)。ラシュバスピンの向きと強磁性体端子の磁化方向とが密接に関連することから、この結果はスピン流を用いた半導体スピントロニクスデバイス設計に不可欠なものである。

また、ラシュバ効果と同様に強いスピン軌道相互作用に起因して表面にのみスピン偏極電子バンドを有するトポロジカル絶縁体の1つであるSb2Te3(0001)の電子構造を角度分解光電子分光で測定した。Sb2Te3(0001)は清浄表面でも欠陥などによりホールドーピング状態にあり、ディラック点がフェルミ準位より上の非占有状態に位置する。この試料にアルカリ金属をドーピングすることによる電子構造の変化を調べた結果、吸着アルカリ金属量の増加とともに電子がドーピングされてディラックポイントがフェルミ準位に近づくものの、飽和状態においてもフェルミ準位に到達しないことがわかった。これはアルカリ金属の吸着によってバンドがリジットシフトす

るのではなく、ディラックポイントのシフトに対してバンドベンディングによる効果が支配的であることを意味している。

本課題で得られたこれらの結果は、対称性を用いて固体表面におけるスピン状態・散乱を議論する転機となり、実際、近年盛んに研究されているトポロジカル絶縁体表面の電子スピン偏極ベクトルの表面垂直方向成分の起源解明に寄与した。また、これらの結果は基礎科学的な重要性のみでなく、高性能スピントロニクスデバイスの作成に大きな指針を与えることから応用科学的にも重要なものである。

## 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 11 件)

1. Highly Ordered Cobalt-Phthalocyanine Chains on Fractional Atomic Steps: One-Dimensionality and Electron Hybridization  
Yusuke Tanaka, Puneet Mishra, Ryusei Tateishi, Nguyen Thanh Cuong, Hideo Orita, Minoru Otani, Tomonobu Nakayama, Takashi Uchihashi, and Kazuyuki Sakamoto  
ACS Nano 7, 1317-1323, (2013). 査読有  
DOI: 10.1021/nm304898c
2. Single Dirac cone on the Cs-covered topological insulator surface Sb2Te3(0001)  
Christoph Seibel, Henriette Maaß, Minoru Ohtaka, Sebastian Fiedler, Christian Jünger, Chul-Hee Min, Hendrik Bentmann, Kazuyuki Sakamoto, and Friedrich Reinert,  
Physical Review B 86, 161105(R)-1-5, (2012). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.86.161105
3. Spin orientation and sign of the Rashba splitting in Bi/Cu(111),  
Hendrik Bentmann, Takuya Kuzumaki, Gustav Bihlmayer, Stefan Blügel, Eugene V. Chulkov, Friedrich Reinert, and Kazuyuki Sakamoto  
Physical Review B 84, 115426 (2011). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.115426
4. Re-investigation of the Bi-Induced Si(111)-( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ) surface by low-energy electron diffraction,  
Takuya Kuzumaki, Tetsuroh Shirasawa, Seigi Mizuno, Nobuo Ueno, Hiroshi

- Tochihara, and Kazuyuki Sakamoto, Surf. Sci. 604, 1044–1048, (2010). 査読有  
DOI: 10.1016/j.susc.2010.03.022
5. Electronic structure of the thallium induced  $2 \times 1$  reconstruction on Si(001)  
P.E.J. Eriksson, Kazuyuki Sakamoto, and R.I.G. Uhrberg, Physical Review B, 81, 205422–1–5, (2010). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.205422
  6. Atomic and electronic structures of the ordered  $2\sqrt{3} \times 2\sqrt{3}$  and molten  $1 \times 1$  phase on the Si(111):Sn surface  
P.E.J. Eriksson, J.R. Osiecki, Kazuyuki Sakamoto, and R.I.G. Uhrberg, Physical Review B 81, 235410–1–9, (2010). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.235410
  7. Intermolecular band dispersion in a self-assembled phthalocyanine derivative film: The case of tetrakis(thiadiazole)porphyrine  
Yusuke Tanaka, Kouji Takahashi, Takuya Kuzumaki, Yuta Yamamoto, Kunihiro Hotta, Ayumi Harasawa, Yasuhito Miyoshi, Hirofumi Yoshikawa, Yukio Ouchi, Nobuo Ueno, Kazuhiko Seki, Kunio Awaga, Kazuyuki Sakamoto, Phys. Rev. B 82, 073408, (2010). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.073408
  8. Peculiar Rashba splitting originating from the two-dimensional symmetry of the surface  
Kazuyuki Sakamoto, Haruya Kakuta, Katsuaki Sugawara, Koji Miyamoto, Akio Kimura, Takuya Kuzumaki, Nobuo Ueno, Emilia Annese, Jun Fujii, Ayaka Kodama, Tatsuya Shishidou, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, Takafumi Sato, Takashi Takahashi, and Tamio Oguchi, Phys. Rev. Lett. 103, 156801, (2009). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.156801
  9. Abrupt Rotation of the Rashba Spin to the Direction Perpendicular to the Surface  
Kazuyuki Sakamoto, Tatsuki Oda, Akio Kimura, Koji Miyamoto, Masahito Tsujikawa, Ayako Imai, Nobuo Ueno, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, P.E.J. Eriksson, and R.I.G. Uhrberg, Phys. Rev. Lett. 102, 096805, (2009). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.096805
  10. Electronic structure of the Si(110)-(16 $\times$ 2) surface: High-resolution ARPES and STM investigation  
Kazuyuki Sakamoto, Martin Setvin, Kenji Mawatari, P.E.J. Eriksson, Kazushi Miki, and R.I.G. Uhrberg, Phys. Rev. B 79, 045304, (2009). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.79.045304
  11. High-temperature annealing and surface photovoltage shifts on Si(111)7 $\times$ 7  
Hanmin Zhang, Kazuyuki Sakamoto, G.V. Hansson, and R.I.G. Uhrberg, Phys. Rev. B 78, 035318, (2008). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.78.035318
- [学会発表] (計 23 件)
1. Rashba spins with peculiar scattering processes,  
Kazuyuki Sakamoto,  
International Workshop on "Correlated Electrons at Surfaces and Interfaces"  
2012年10月2日,  
Residence Würzburg, Germany
  2. Rashba spins with peculiar scattering processes,  
Kazuyuki Sakamoto,  
MAX-lab 25th Annual User Meeting,  
2012年9月24日,  
Medicon Village, Lund, Sweden (招待講演)
  3. Rashba spins with peculiar scattering processes,  
Kazuyuki Sakamoto,  
29<sup>th</sup> European Conference on Surface Science,  
2012年9月3日,  
Edinburgh International Conference Centre, England
  4. Nontrivial Rashba spins on semiconductor surfaces,  
Kazuyuki Sakamoto,  
Symposium on Surface and Nano Science 2012,

- 2012年1月11日,  
雫石プリンスホテル(岩手県) (招待講演)
5. Quantum well states induced by cobalt-phthalocyanine adsorption on a quasi-one dimensional Ag surface, Kazuyuki Sakamoto, 11<sup>th</sup> International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, 2011年10月6日, Sokos Hotel, St. Petersburg, Russia
  6. Quantum Well States Induced by Cobalt-Phthalocyanine Adsorption on a Quasi-One Dimensional Surface, Kazuyuki Sakamoto, 28<sup>th</sup> European Conference on Surface Science, 2011年8月30日, University of Wroclaw, Poland
  7. Quantum Well States Induced by Cobalt-Phthalocyanine Adsorption on a Quasi-One Dimensional Surface, Kazuyuki Sakamoto, 13<sup>th</sup> International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces, 2011年7月7日, Faculty of Civil Engineering, the Czech Republic
  8. Intra- and Inter-Molecular Electronic States of Organic Thin films, Kazuyuki Sakamoto, the International Conference on Materials for Advanced Technologies 2011, 2011年6月28日, Suntec, Singapore (招待講演)
  9. Electronic states of self-assembled p-conjugated organic ultra-thin films, Kazuyuki Sakamoto, The 29<sup>th</sup> International Brand Ritchie Workshop, 2011年5月13日, くにびきメッセ(松江市) (招待講演)
  10. 対称性に起因する特異な Rashba 効果, 坂本一之, 平成22年度放射光表面科学部会・顕微ナノ材料科学研究会合同シンポジウム, 2010年12月10日, 東京工業大学(東京都) (招待講演)
  11. Peculiar Rashba spins caused by the two-dimensional symmetry of the surface  
Kazuyuki Sakamoto, The 15<sup>th</sup> International Conference on Solid Films and Surfaces, 2010年10月9日, Beijing, China (招待講演)
  12. Peculiar Rashba spins on heavy elements adsorbed silicon surfaces  
Kazuyuki Sakamoto, Akio Kimura, Tatsuki Oda, Koji Miyamoto, Takuya Kuzumaki, Takashi Takahashi, Jun Fujii, Tamio Oguchi, and R.I.G. Uhrberg, 18<sup>th</sup> International Vacuum Congress, 2010年8月25日, Beijing, China
  13. Intermolecular band dispersion of a self-assembled tetrakis(thiadiazole)porphyrine film  
Yusuke Tanaka, Kouji Takahashi, Takuya Kuzumaki, Yuta Yamamoto, Kuniharu Hotta, Ayumi Harasawa, Hirofumi Yoshikawa, Yuichi Ouchi, Nobuo Ueno, Kazuhiko Seki, Kunio Awaga, and Kazuyuki Sakamoto, 18<sup>th</sup> International Vacuum Congress, 2010年8月24日, Beijing, China
  14. Rashba spins on heavy elements adsorbed silicon surfaces  
Kazuyuki Sakamoto, Akio Kimura, Tatsuki Oda, Koji Miyamoto, Takuya Kuzumaki, Takashi Takahashi, Jun Fujii, Tamio Oguchi, and R.I.G. Uhrberg, 37<sup>th</sup> International Conference on Vacuum UltraViolet and X-ray Physics, 2010年7月12日, Vancouver, Canada
  15. Peculiar Rashba spins caused by the two-dimensional symmetry of the surface,  
Kazuyuki Sakamoto, The 14<sup>th</sup> Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, 2010年3月5日, 広島大学(広島県) (招待講演)
  16. Peculiar Rashba spins originating from the two-dimensional symmetry of

- the surface,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 Symposium on Surface and Nano Science 2010,  
 2010年1月17日  
 雫石プリンスホテル (岩手県) (招待講演)
17. Peculiar Rashba spins originating from the two-dimensional symmetry of the surface,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 449. Wilhelm and Else Heraeus Seminar: "Rashba and related spin-orbit effects in metals",  
 2010年1月7日,  
 Bad Honnef, Germany
18. Abrupt change in the direction of the Rashba spin,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 IUPAC 5<sup>th</sup> International Symposium on Novel Materials and Synthesis (NMS-V)  
 2009年10月21日  
 Shanghai, China
19. Abrupt Rotation of the Rashba Spin to the Direction Perpendicular to the Surface,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 11<sup>th</sup> International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICESS-11),  
 2009年10月10日  
 奈良県新公会堂 (奈良県)
20. High-resolution Photoemission study of organic monolayer films Surface,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 The 5<sup>th</sup> Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (ASOMEA V),  
 2009年9月30日  
 Uppsala, Sweden
21. Abrupt rotation of the Rashba spin,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 The 26<sup>th</sup> European Conference on Surface Science (ECOSS26)  
 2009年9月3日  
 Parma, Italy
22. Abrupt upstanding of the Rashba spin,  
Kazuyuki Sakamoto,  
 International Workshop on Strong Correlations and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy  
 (CORPES09),  
 2009年7月21日  
 Zurich, Switzerland
23. Si(110)-(16×2)表面の電子状態  
坂本一之, M. Setvin, 馬渡健児, P. E. J. Eriksson, 三木一司, R. I. G. Uhrberg  
 日本物理学会第64回年次大会,  
 2009年3月30日  
 立教大学 (東京都)
24. Tl/Si(111)-1×1表面電子構造とC3対称性スピン分裂  
小田竜樹,  
 日本物理学会第64回年次大会,  
 2009年3月30日  
 立教大学 (東京都)
25. 重元素吸着半導体表面のRashba効果  
坂本一之,  
 PF研究会 “高分解能角度分解光電子分光研究と将来展望”,  
 2008年12月18日  
 高エネルギー加速器研究機構 (茨城県)
6. 研究組織  
 (1) 研究代表者  
 坂本 一之 (SAKAMOTO KAZUYUKI)  
 千葉大学大学院融合科学研究科・准教授  
 研究者番号: 70261542
- (2) 研究分担者  
 小田 竜樹 (ODA TATSUKI)  
 金沢大学大学院数物科学系・教授  
 研究者番号: 30272941
- 木村 昭夫 (KIMURA AKIO)  
 広島大学大学院理学研究科・准教授  
 研究者番号: 30272941  
 (平成20年度~22年度)
- (3) 連携研究者  
 木村 昭夫 (KIMURA AKIO)  
 広島大学大学院理学研究科・准教授  
 研究者番号: 30272941  
 (平成23年度~24年度)
- (4) 研究協力者  
 R. I. G. Uhrberg  
 Linkoping 大学物理学科・教授
- M. Donath  
 Munster 大学物理学科・教授