科学研究費助成事業

平成 2 9 年 5 月 3 1 日現在

研究成果報告書

機関番号: 12608
研究種目: 挑戦的萌芽研究
研究期間: 2015~2016
課題番号: 15K13360
研究課題名(和文)ビスマス原子による2次元ハニカム格子層状物質

研究課題名(英文)Ultra-thin Bi layered films

研究代表者

平山 博之(Hirayama, Hiroyuki)

東京工業大学・理学院・教授

研究者番号:60271582

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文):Si(111) 3x 3-B基板表面にBi原子を室温蒸着することにより、表面にBi(110)超薄 膜島が形成される。これらのBi(110)島は、Si(111) 3x 3-B基板格子に整合する形で6つの特徴的な方向に成 長する。ただしこれらの島がA7構造あるいはBP構造のいずれの結晶構造を持つかは、表面のBi原子配列の走査ト ンネル顕微鏡観察からは決定できない。このためこれらの島の電子状態の、走査トンネル分光、および角度分解 光電子分光による計測を行った。実験の結果、得られたBi(110)島はBP構造を持つ可能性が高いことが明らかに なった。

研究成果の概要(英文):Ultra-thin Bi(110) islands were obtained by the deposition of Bi atoms at the Si(111) Si(111) 3x 3-B substrate at room temperature. The Bi islands had the shape elongated to one of the six specific orientations due to the commensuration of the Bi(110) and Si(111) 3x 3 unit lattices. The atomically-resoled STM images showed that the islands were the Bi(110) islands. However, the Bi(110) islands had the same atomic arrangement at the top surface of the islands in both the trivial A7 and possibly non-trivial, two-dimensional topological BP-like crystal phases. Thus, we characterized the electronic state of the islands using STS and ARPES. In both measurements, the islands were suggested to have the BP-like structure.

研究分野:表面界面物性

キーワード: ビスマス 超薄膜 走査トンネル顕微鏡 角度分解光電子分光



1. 研究開始当初の背景

ハニカム格子構造を持つ2次元系原子層状 物質は、グラフェンの発見以降、その構造に 特有な Dirac 電子状態や高いキャリア移動度 の実現により、新たな電子デバイス材料とし て期待が高まっている。しかし電子デバイス 応用上不可欠なバンドギャップが、グラフェ ンでは開かない。これを解決する手段として Si 原子でできた2次元ハニカム格子物質であ るシリセンなどが注目されているが、理論的 に期待されるギャップは高々数 meV と小さ く、実験的にもギャップ生成は確認されてい ない。



図1のように、2次元ハニカム格子上の Dirac 電子系に大きなバンドギャップを導入 するためには、単位胞中の2つの原子の対称 性を大きく破るか、強いスピン軌道相互作用 を導入することが必要である。本研究で我々 は、この両方を実現する2次元ハニカム格子 新物質として、BP 構造を取った Bi(110)薄膜 に注目し、その可能性を検証する。通常 Bi 結晶はロンボヘドラル構造(A7 構造)を取る が、Bi 薄膜成長の極く初期には BP 構造を持 つ Bi(110)薄膜が現われることが知られてい る(Nagao PRL(2004))。BP 構造 Bi 結晶では、 図2下図のように上側の(110)原子面(黒)と 下側の(110)原子面(灰色)の原子が、上 下で閉じた結合を持つ。このため、BP 構造 Bi は、(110) 面垂直方向に向かってこの2原子 厚さの原子層が繰り返し積層された原子層 状物質と見ることができる。一方この2原子 層厚さの原子膜面内では、図2上図のように 黒、灰色の高さの違う2種類の原子が結合し、 歪んだ2次元ハニカム格子を構成している。 この BP 構造を持つ Bi(110)薄膜が本当に原 子層状物質としての性質を示すか、また BP 構造特有の原子配置によりバンドギャップ を持った Dirac 電子系が実現されるかは、基 礎科学および技術応用の両方の観点から非 常に興味深い問題である。



2. 研究の目的

本研究ではこの BP 構造を持つ Bi(110)薄膜 を、格子整合を利用して Si(111)√3x√3-B 基 板上に安定に形成し、BP 構造を持つ Bi 結晶 が本当に原子層状物質としての性質を示すか、 また BP 構造特有の原子配置によりバンドギ ャップを持った Dirac 電子系が実現されるか を検証する。さらに Bi 原子の強いスピン軌道 相互作用により、この構造が2次元トポロジ カル絶縁体としての性質を獲得し、そのギャ ップ中にヘリカルエッジ状態が現れる可能性 を検証する。

3. 研究の方法

(1) BP 構造の 2 原子層積層平面である Bi(110)面が格子整合によって安定化される Si(111) $\sqrt{3x}\sqrt{3-B}$ 基板上に Bi 原子を蒸着す る。これにより Bi 本来の A7 構造を抑えて、 BP 構造を持った Bi(110)原子層薄膜が、基 板の影響を受けずにその独自の電子状態を 発現できる、数 bilayer 以上の厚さで、安定 に形成できることを、走査トンネル顕微鏡 (STM) により検証する。

(2) (1)で得られた Bi(110)テラス面を 持つ Bi 超薄膜が、確かに BP 構造に対して 期待される2原子層厚さの2次元ハニカム格 子をユニットとした積層構造としての性質 を持つことを、走査トンネル分光(STS)と角 度分解光電子分光(ARPES)による超薄膜内 量子閉じ込め準位の消失の観測によって検 証する。

BP 構造を持った Bi2原子層が、ギャッ プを持った Dirac 電子系としての電子状態 を持つこと、および2次元トポロジカル絶 縁体について期待されるエッジ状態を持つ ことを、STS、ARPESを用いた電子状態測 定とその空間分布観察により確認する。



Si(111)√3x√3-B 基板上に Bi 原子を室温 で蒸着した場合、表面には図3(a)に示した STM 像に見られるように、長方形の島が発生 する。この島上で Bi 原子は、図3(b)に示す ような centered の長方形基本格子状に配列 している。この基本格子の形状とサイズから、 これらの島は全て Bi(110)島であることが明 らかになった。Bi(110)島は図3(a)に示すよ うに、幾つかの特定の方向に向かって伸びて いる。STM 像の解析から、これらの島は図3 (c)のように Si(111) 基板の 3 回対称 {110} 結 晶軸方向に対し、±の両方向にわずかに傾い た方向に向かって伸びていること、またこれ は Si(111))√3x√3-B 基板表面の基本格子 が、その上に成長した Bi(110)島の長方形の 基本格子と格子整合する特定の方向である ことが明らかになった。

ただし、A7 構造、BP 構造のいずれも場合 においても、Bi (110) 薄膜は図3(b)に示 されたような原子配列をその最上層表面で は取ることが予想される。このため、以上の STM 観察だけからでは、Si (111) $\sqrt{3x}\sqrt{3-B}$ 基 板上に得られたBi (110)超薄膜がA7構造ある いは BP 構造のいずれを取っているのかは明 らかでない。しかし、A7 構造 Bi (110)表面の 場合には、その表面電子状態にはM点におい て Dirac コーン状の分散関係が現われるのに 対し、BP 構造 Bi (110)表面ではM点にはギャ ップが開くことが理論的に予想される。この



ため、今回 得られた Bi(110) 超 薄膜島が A7, BP いず れの構造を とるかにつ いては、そ の電子状態 を観察する ことが重要 である。 以上の観 点から、本 研 究 で は Si(111) √ 3x√3-B 基 板上に成長させた Bi (110) 超薄膜の電子状態 を、STS および ARPES 観察により検証した。 得られた STS スペクトルを図4に示す。図か ら明らかなように、Bi (110) 島は非占有準位 に幾つかの特徴的な電子状態密度のピーク を持っている。この特徴は、第一原理計算で 報告されている偶数層膜厚保を持った BP 構造 Bi (110) 島の電子状態密度分布に良く似て おり、得られた島が少なくとも偶数層膜厚保 では BP 構造を持つことを示唆している。た だし同じ膜厚に対する A7, BP の両方の Bi (110) 超薄膜構造に対する信頼できる計算 が無いため、奇数層膜厚において A7 構造を Bi (110) 島が取る可能性は、今回の研究から は完全には否定できない。



一方 ARPES においては、典型的なバンドマ ッピングとしては、図4のような結果が得ら れた。図3からも分かるように、Si(111)√ 3x√3-B 基板上では Bi(110)島は等価な6方 向に配向したものが混在している。このため、 ARPES 測定にかかる光電子強度には、6つの ドメインに固有なブリルアンゾーンンの情 報が全て重なって現われてしまう。しかも Si(111)√3x√3-B 基板上に発生する島の高 さは均一ではないため、マクロな領域をプロ ーブする ARPES では、STM, STS と違い、プロ ーブされる広い領域内の様々な高さの島の 電子状態が重なってきてしまう。こうした困 難は避けられないが、平均膜厚を複数振った 試料に対し、光電子励起エネルギーもシンク ロトロン放射光施設を利用して変化させて データを取得することにより、確定的ではな いが、これらの島には M 点における Dirac 分 散は現われていない可能性、すなわち島は BP 構造を持つ可能性が高いことを示唆するデ ータが蓄積できた。

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0件)

〔学会発表〕(計 14 件)

①<u>平山博之</u>, <u>中辻寛</u>, 宍倉一輝, 日比野浩樹, 前田文彦

「シリコン基板上ビスマス薄膜のスピン偏 極電子構造の光電子分光による解明」

第3回あいちシンクロトロン光センター成 果報告会 2015年6月8日、 あいち産業科学技術総合センター ②宗倉一輝, 吉池雄作, 鈴木順也, 渡辺義夫, 伊藤孝寛, 中辻寛, 平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に成長した Bi(110) 超薄膜の電子状態 日本物理学会 2015 年秋季大会 2015年9月16日-9月19日、関西大学 ③I. Kokubo, Y. Yoshiike, K. Shishikura, K. Nakatsuji , H. Hirayama "Ultra-thin Bi(110) films on Si(111) $\sqrt{3x}\sqrt{3}$ -B substrates" AVS 62nd International Symposium (AVS62), Oct. 18-23 (2015), San Jose, U.S.A. ④宍倉一輝、吉池雄作、鈴木順也、渡辺義夫、 伊藤孝寛、中辻寛、平山博之 「Si(111)√3x√3-B 表面上に成長した Bi(110) 薄膜の電子状態| 第29回日本放射光学会年会 2016年1月9日~1月11日、 柏の葉カンファレンスセンター ⑤平山博之,中辻寛,宍倉一輝,日比野浩樹, 前田文彦、鈴木哲 「シリコン基板上ビスマス薄膜のスピン偏 極電子構造の光電子分光による解明」 第4回あいちシンクロトロン光センター成 果報告会 2016年3月9日、 ミッドランドホール (名古屋) ⑥<u>平山博之</u>、中辻寛 「STM, ARPES による Bi 薄膜の構造と電子 状態の研究」 第11回 放射光表面科学研究部会 顕微ナノ 材料科学研究会 合同シンポジウム 2016年 3月14日-3月15日、 Spring8 (兵庫) ⑦中辻寬、宍倉一輝、吉池雄作、鈴木順也、 山崎詩郎、渡辺義夫、仲武昌史、伊藤孝寛、 間瀬一彦、平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に成長した Bi(110) 薄膜の電子状態 第 11 回 放射光表面科学研究部会 顕微ナノ 材料科学研究会 合同シンポジウム 2016年 3月14日-3月15日、 Spring8 (兵庫) ⑧長瀬謙太郎,藤原翼,鈴木順也,山崎詩郎, 中辻寛, 平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に形成される Bi(110)超薄膜の偶奇性」 日本物理学会第71回年次大会 2016年3月19日-3月22日、 東北学院大学 ⑨ 宗倉一輝, 吉池雄作, 鈴木順也, 山崎詩郎, 間瀬一彦, 渡辺義夫, 仲武昌史, 伊藤孝寛, 中辻寛, 平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に成長した Bi(110) 超薄膜の電子状態 II」 日本物理学会第71回年次大会 2016年3月19日-3月22日、

東北学院大学 ⑩長瀬謙太郎, 山崎詩郎, 中辻寛, 平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に形成される Bi(110)超薄膜の電子状態| 日本物理学会 2016 年秋季大会 2016年9月13日-9月16日 金沢大学 ⑪<u>中辻寛, 平山博之</u> 「シリコン基板に成長したビスマス超薄膜 の構造と電子状態」 合金状態図第 172 委員会 第 31 回委員会・ 研究会 2016年10月22日、 物質•材料研究機構 12藤原翼,長瀬謙太郎,鈴木順也,山崎詩郎, 間瀬一彦, <u>平山博之</u>, <u>中辻寛</u> 「Si(111)√3×√3・B 表面上の Bi(110)超薄膜 の成長と電子状態」 2016年真空·表面科学合同講演会 2016年11月29日-12月1日、 名古屋国際会議場 (3)藤原翼,下川裕理,長瀬謙太郎,山崎詩郎, 間瀬一彦,渡辺義夫,仲武昌史,中辻寛,平 山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上の Bi(110)超薄膜 の成長と電子状態 日本物理学会第72回年次大会 2017年3月17日-3月20日、大阪大学 ⑭長瀬謙太郎, 渡辺成栄, 山崎詩郎, 合田義 弘,中辻寛,平山博之 「Si(111)√3×√3-B 表面上に形成される Bi(110)超薄膜の電子状態(II)」 日本物理学会第72回年次大会 2017年3月17日3月20日、大阪大学 〔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.materia.titech.ac.jp/~hiraya ma/2009hirayamalabHP/ 6. 研究組織

(1)研究代表者
平山 博之(HIRAYAMA HIROYUKI)
東京工業大学・理学院・教授
研究者番号:60271582
(2)研究分担者
中辻 寛(NAKATSUJI KAN)
東京工業大学・物質理工学院・准教授
研究者番号:80311629