

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 24 年 5 月 14 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560030

研究課題名（和文） シリコン表面上ビスマス超薄膜の表面・界面物性シミュレーション

研究課題名（英文） Simulation of surfaces and interfaces in Bi ultrathin films on silicon surfaces

研究代表者

斎藤 峯雄 (Saito Mineo)

金沢大学・数物科学系・教授

研究者番号：60377398

研究成果の概要（和文）：スピン軌道相互作用を考慮した第一原理計算を Bi 膜上の Bi ナノリボンに対して行った。エッジに由来する電子状態を発見し、特異な伝導特性を持つことを予言した。また、基板上の 1 バイレーヤーの Bi (001) 膜について、 Γ 、K 点周りで渦を持つなど特異な Rashba 効果を見出した。

研究成果の概要（英文）：We carry out fully-relativistic first-principles calculations of Bi nanoribbons on Bi films. As a result, we find the electronic bands originating from the edge and predict novel transport properties of this system. We also study the Rashba effect on the 1-bilayer Bi film on some substrates and find vortexes around the Γ and K points.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,300,000	690,000	2,990,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：超薄膜、電子状態、スピン軌道相互作用、第一原理計算、ラシュバ効果、ナノリボン

1. 研究開始当初の背景

デバイス作成上、半導体上に平坦な金属膜を成長させることが必要である。しかし、半導体上の金属膜成長は Stranski-Krastanov モードに従う場合がほとんどであり、3 次元島を生じてしまう。Bi 半金属の膜は、Si (111) 7×7 表面で例外的に室温で平坦に成長することが実験的に分かった (T. Nagao et al., Phys. Rev. Lett. 93, 105501 (2004))。さらに、この平坦な膜をテンプレートとして、有機分子であるペンタセンを並べることに成功しており (J. T. Sadowski et al., Appl. Phys. Lett. 86, 73109 (2005))、今後有機デ

バイスへの応用も期待されている。さらに、スピン軌道相互作用によるラシュバ効果が観測され (T. Hirahara et al., Phys. Rev. Lett., 97, 146803 (2006))、ナノデバイスへの応用も期待される。この様に、Bi 薄膜が今後のデバイス材料の候補として有望であることから、膜の原子レベルでの構造やその電子状態を基礎科学の立場から明らかにする事が重要であった。

また、研究開始時期から今日にいたるまで、スピン軌道相互作用に由来する新しい電子物性が注目されてきている。本研究で取り扱う Bi 膜では、Bi が重い元素であるため、ス

ピン軌道相互作用が重要であり、前述したラッシュバ効果の発見の他に、エッジを持つ Bi リボンがトポロジカル絶縁体になるなどの理論的予言がなされていた。したがって、相対論的效果を取り入れた第一原理計算に基づく Bi 膜の研究は、スピントロニクス応用を考えると極めて重要な研究テーマであった。

2. 研究の目的

本研究では、今後のデバイス応用が注目され、その基礎研究が活発となってきた Bi 薄膜に対し、スピン軌道相互作用を取り入れた相対論的第 1 原理計算を実行し、表面の電子構造を明らかとしようというものである。筆者は、すでに、Si (111) 表面上の Bi (001) 膜と Bi {012} 膜について、その構造やエネルギー的安定性について詳しく調べてきた。本研究では、その成果の上に、Bi ナノ構造において、スピン軌道相互作用に基づいて発現する新しい物性を第一原理計算実行により明らかにする。

3. 研究の方法

Bi ナノ薄膜では、相対論的效果が大きく、この事が電子物性に多大な効果を与える。そこで、本研究では、fully-relativistic な計算を行い、スピン軌道相互作用の影響を正確に取り入れた計算を行う。プログラムは、OpenMX コードを用いる。本計算では、スピン軌道相互作用の影響を取り入れた擬ポテンシャルを使用して研究を実行する。

本研究では局所密度近似または、一般化勾配法を用いて、電子の多体効果の影響を取り入れる。スピン軌道相互作用を考慮した擬ポテンシャルと、2成分スピノル型の波動関数を用い、self-consistent な計算を行う。この事により、Bi 系における強いスピン軌道相互作用を高い信頼性を持って調べることができる。

本計算コードでは数値局在基底が用いられている。Bi 系に対する、本計算コードの妥当性を調べるために、他の第一原理計算コード PHASE で計算された相対論的バンド構造と、OpenMX コードで計算されたバンド構造を比較した。また、最適化された幾何学的構造についても二つのコードで計算された結果を比較した。この二つのコードがほぼ、同じ結果を示したことから、OpenMX コードの妥当性を確かめることができた。

本研究における計算の特徴として、電界効果を考慮した。第一原理計算が挙げられる。Rashba 効果など、スピン軌道相互作用に基づく、電子物性は、反転対称性の破れから生じる。フリースタANDINGな Bi 膜は、反転対称性を持つが、基板上的 Bi 膜では、膜の上下が非等価となるため、反転対称性が破れ、その事が、Rashba 効果の起源となる。Si (111) 表面では、濡層が形成され、その上

に Bi 膜が作られる。したがって、濡層の影響を取り入れる事が重要であるが、そのような第一原理計算はあまり行われてこなかった。本研究では、電界を印加すると、基板の効果と同様の影響が、Bi 膜の電子物性に影響を与えることに注目した。すなわち、基板を考慮するかわりに、フリースタANDINGな Bi 膜垂直方向に電界を印加する計算により、反転対称性の破れた系のバンド構造が計算できることに注目する。この、電界を印加する手法により、反転対称性の破れた系を簡便に計算することが可能となった。

4. 研究成果

はじめに、ジグザグ端を持つグラフェンナノリボンと同様に、エッジに由来した二つのバンドが、フェルミエネルギー近傍に存在する事が分かった (図 1)。

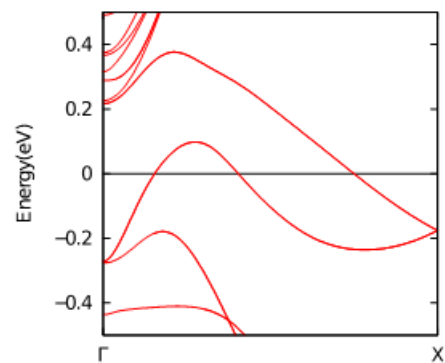


図 1 フリースタANDINGなBiナノリボン

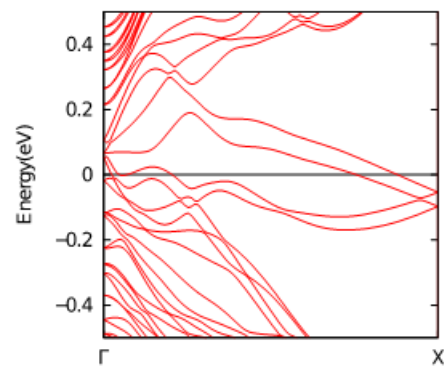


図 2 Bi基板上的Biナノリボン

このバンドは、スピン軌道相互作用により、分散が大きくなり、スピン軌道相互作用を取り入れない場合と比べるとフェルミエネルギー近傍の状態密度が減少する事が分かった。さらに、Bi 基板上での Bi ナノリボンの電子状態計算を行った (図 2)。この系では、反転対称性が破れるため、 Γ 点などを除き、バンドが分裂する事がわかった (図 2)。そ

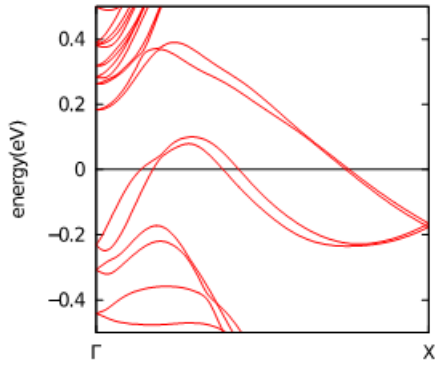


図3 電界印加した場合のBiナノリボン

の結果、フェルミエネルギー近傍の状態密度がさらに減少し、系が安定化することが分かった。以上述べた様に、本研究から、スピン軌道相互作用に由来するこの系の特異な電子構造が明らかとなった。

上記の様にフリースタンディングな Bi ナノリボンと Bi 薄膜上の Bi ナノリボンでは、バンド構造に大きな違いのあることを見いだした。この違いは、後者の系において、Bi 基板の影響により、反転対称性が破れた事によるものである。そのことを確かめるために、フリースタンディングな Bi ナノリボンに電場を印加する計算を行った (図3)。電場の印加のため、系の反転対称性が破れ、電場を印加していない場合 (図1) スピン縮退していたバンドが二つに分裂し、バンド構造は、Bi 基板上の Bi ナノリボンのもの (図2) に類似したものとなることを見いだした (図

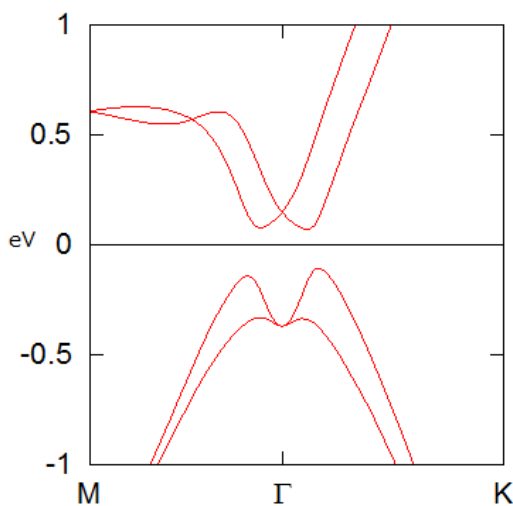


図4 Bi(001) 1パイレーヤー膜の電子構造

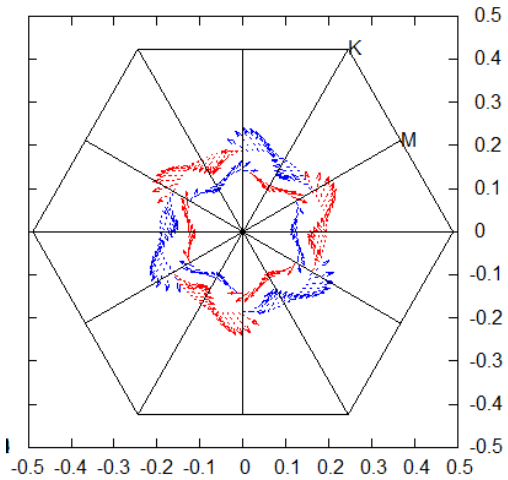


図5 1-パイレーヤー-Bi膜のスピンテクスチャ (面内)

3)。さらに、スピン偏極した二つのバンドの波動関数は、リボンの二つの端の内それぞれ違う端に局在することが分かった。これは、電場印加により、二つの端が非等価となるためである。この研究から、反転対称性の破れとバンドの分裂の間の関係を明らかにする事ができた。

さらに、Bi (001)膜のRashba 効果について調べた。Bi薄膜は、Si (111)表面上に生じた濡層の上に成長する。この濡層の影響を考慮するため、濡層を直接シミュレートするのではなく、電場を膜成長方向に印加する計算を行った。電場の印加のため、反転対称性が破れ、電場が濡層と同様の効果をBi膜の電子状態に影響を与えるものと見なす事ができる。実際、図4に示すように、電場印加により、スピン縮退したバンドが二つに分裂する。本研究では、さらに、スピントクスチャを表示するソフトウェアを開発した (図5)。また、面直方向を向いたスピン成分のあることを発見した。

本研究では、スピンの渦がGamma点のまわりだけではなく、K点のまわりにも生じる事を明らかにした。また、M点の周りには生じないことが分かった。K点のまわりになぜ渦ができるのかについては、従来提案されていた理論では説明ができない。この説明を行うことは、Rashba 効果を理解する上で極めて重要であり、今後、そのような解析を行うことが課題である。

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6 件)

① H. Kotaka, F. Ishii, M. Saito, T. Nagao, and S. Yaginuma, Edge States of Bi

- Nanoribbons on Bi Substrates: First-Principles Density Functional Study, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 51, 2012, 024201(1)-(4). DOI: 10.1143/JJAP.51.025201
- ② M. S. Alam, J. Lin, and M. Saito, First-Principles Calculation of the Interlayer Distance of the Two-Layer Graphene, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 50, 0802133(1)-(3), 2011. DOI: 10.1143/JJAP.50.080213
- ③ K. Sawada, F. Ishii, and M. Saito, Magnetism in Dehydrogenated Armchair Graphene Nanoribbon, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 80, 044712(1)-(5), 2011. DOI: 10.1143/JPSJ.80.044712
- ④ K. Sawada, F. Ishii, and M. Saito, Magnetism in Graphene Nanoribbons on Ni(111): First-Principles Density Functional Study, Phys. Rev. B82, 査読有, 245426(1)-245426(5), 2010. DOI: 10.1103/PhysRevB.82.245426
- ⑤ Y. Uramoto, and M. Saito, Stability and Dynamical Process of Graphene Adatom and its Dimer, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 79, 074605(1)-074605(4), 2010. DOI: 10.1143/JPSJ.79.074605

[学会発表] (計 71 件)

- ① 林建波, 西田和永, 斎藤峯雄, Electronic Structures of Adatom-vacancy Pair Defects in Nano-carbon Materials, 日本物理学会第 67 回年次総会, 2012. 3. 26, 関西学院大学 (兵庫県).
- ② 小鷹浩毅, 石井史之, 斎藤峯雄, 第一原理計算による Bi 薄膜の Rashba 効果の解析, 日本物理学会第 67 回年次総会, 2012. 3. 24, 関西学院大学 (兵庫県).
- ③ 石井史之, 小鷹浩毅, 澤田啓介, 大西峰志, 斎藤峯雄, 多層グラフェン/Ni(111) の Rashba 効果と電気伝導の第一原理計算, 日本物理学会第 67 回年次総会, 2012. 3. 24, 関西学院大学 (兵庫県).
- ④ 西田和永, 林建波, 斎藤峯雄, グラフェン・ナノチューブにおけるアトム関連欠陥の第一原理計算, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 24, 富山大宇 (富山県).
- ⑤ 林建波, 斎藤峯雄, First-principles study of healing of adatom-vacancy pair in carbon nanotubes, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 23, 富山大宇 (富山県).
- ⑥ 小鷹浩毅, 斎藤峯雄, 石井史之, 長尾忠昭, 柳沼晋, Bi ナノリボンの電子状態に及ぼす基板の影響, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 23, 富山大宇 (富山県).
- ⑦ 斎藤峯雄, 居波哲, 石井史之, 山崎隆浩, 山本武範, 大野隆央, 内田和之, 押山淳, シリコン中 10 原子空孔の特異な電子構造, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 22, 富山大宇 (富山県).
- ⑧ 澤田啓介, 石井史之, 斎藤峯雄, 尾崎泰助, 磁性電極を用いたグラフェンにおける伝導特性の第一原理計算, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 21, 富山大宇 (富山県).
- ⑨ 石井史之, 川崎智代, 澤田啓介, 斎藤峯雄, カーボンナノチューブの電気伝導の第一原理計算: 水素不純物と磁性電極の影響, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 21, 富山大宇 (富山県).
- ⑩ 西田美穂, 石井史之, 斎藤峯雄, $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$ の三角格子における磁気秩序と電気分極の第一原理計算, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 21, 富山大宇 (富山県).
- ⑪ 斎藤峯雄, ナノカーボン材料のナノシミュレーション, 第 21 回格子欠陥フォーラム, 2011. 9. 20, 立山国際ホテル (富山県) [招待講演]
- ⑫ Mineo Saito, First-Principles Calculations of Defect XVIth International Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics in Graphenes and Carbon Nanotubes, 2011. 9. 13, 石川県立美術館 (石川県) [招待講演].
- ⑬ 斎藤峯雄, スピントロニクス/マルチフェロイックスの応用へ指向した材料探索, 物性研・CMSI・次世代ナノ情報 合同研究会 「計算物質科学の課題と展望」, 2011. 1. 6, 東京大学 (千葉県) [招待講演]
- ⑭ 斎藤峯雄, 浦本勇輝, グラフェンにおけるアトム関連欠陥の第 1 原理計算, 日本物理学会 第 65 回年次大会, 2010. 3. 21, 岡山大学 (岡山県).
- ⑮ 斎藤峯雄, 居波哲, 山崎隆浩, 山本武範, 大野隆央 シリコン中原子空孔の大規模第一原理計算, 日本物理学会秋季大会, 2009. 9. 25, 熊本大学 (熊本県).
- ⑯ 斎藤峯雄, シリコン及びグラフェンにおける固有欠陥の第 1 原理計算, 第 19 回格子欠陥フォーラム, 2009. 9. 24, 九州大学 (福岡県) [招待講演]

[その他]

ホームページ

<http://cphys.s.kanazawa-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

斎藤 峯雄 (SAITO MINEO)
金沢大学・数物科学系・教授
研究者番号：60377398