

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 25 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560022

研究課題名（和文）結晶表面上における二次元金属の創製と巨大ラシュバ効果

研究課題名（英文）Formation of two-dimensional metals on crystalline metal surfaces

研究代表者

柚原 淳司 (YUHARA JUNJI)

名古屋大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10273294

研究成果の概要（和文）：重金属元素からなる二次元金属および二次元合金を結晶性金属表面上で創製し、その二次元原子配列の被覆率依存性や組成依存性を低速電子回折や走査型トンネル顕微鏡を用いて明らかにした。また、巨大ラシュバ効果に関する知見を得るためにフェルミ準位近傍での電子状態を計算科学的手法により評価した。

研究成果の概要（英文）：The two-dimensional growth of heavy element atoms on crystalline metal surfaces has been investigated and the coverage and compositional dependences of the atomic arrangements have been revealed using low-energy electron diffraction and scanning tunneling microscopy. Electronic structure near Fermi energy has been evaluated by using the first-principle calculations.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2011 年度	800,000	240,000	1,040,000
2012 年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：表面界面制御工学

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：二次元合金、二次元金属、原子配列、走査型トンネル顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

固体物質の構造を三次元から二次元、一次元へと低下させると新奇な物理現象が発現することがある。1960 年に提唱されたラシュバ効果と呼ばれる二次元物質において電子スピンの偏極し、電子バンドが分裂する現象もその 1 つである。偏極した電子スピンは、フラッシュメモリなどの磁気記録媒体や、次世代半導体ス

ピントロニクスデバイスの根源であるが、ラシュバ効果によって発現するスピン分裂は、スピントロニクスデバイスに貢献すると期待されている。

最近、軽元素を基板とした重金属吸着系において、巨大ラシュバ効果が観測されることが C. R. Ast らにより示され、金属や半導体結晶表面上における重金属の吸着系における巨大ラシュバ効果につい

て、精力的に研究されてきた。

ところで、結晶表面上の特定サイトに規則的に原子が吸着することにより形成される表面合金系では、下地基板の影響を強く受けているが、下地基板の結晶性による周期ポテンシャルの影響が少ない二次元物質系とは、原子配列や電子構造が大いに異なることが予想される。我々は、最近、鉛やスズがロジウム表面上において、基板の結晶周期性とは整合しない非整合な原子配列を持つ理想的な二次元物質を形成することを明らかにしている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、基板表面の結晶性と非整合な原子配列を形成する二次元物質系を様々な表面上で作製し、原子配列の被覆率依存性や組成依存性を低速電子回折や走査型トンネル顕微鏡を用いて明らかにする。また、巨大ラッシュバ効果に関する知見を得るためにフェルミ準位近傍での電子状態を計算科学的手法により評価する。

3. 研究の方法

- (1) ビスマス、鉛、スズによる単元素二次元物質の創製と原子配列を明らかにするため、LEED 及び STM 法等により、単原子層薄膜と結晶性表面との整合・非整合周期性や原子配列を調べ、被覆率依存性や基板依存性を明らかにする。
- (2) ビスマス、鉛、スズからなる二次元合金の創製と原子配列を明らかにするため、LEED 及び STM 法等により、単原子層薄膜と結晶性表面との整合・非整合周期性や原子配列を調べ、被覆率依存性や基板依存性を明らかにする。
- (3) 作製した二次元物質の電子状態の評価を計算機シミュレーションにより行う。具体的には、第一原理計算ソフト、VASP (ウィーン第一原理計算パッケージ) を用いて、上述の実験により明らかにされたビスマスの構造データ (原子配列構造) を用いて、ビスマス二次元物質のバンド構造を計算し、バンド構造のスピンスplit度

を評価する。

4. 研究成果

ロジウム単結晶金属表面上において、ビスマス元素による二次元金属を創製し、原子配列の被覆率依存性を明らかにした。ビスマス原子密度の増加に伴い、2回対称構造から6回対称構造へと構造相転移することが判明した。また、ビスマス原子とロジウム表面は吸着位置に依存しない強い引力的相互作用をビスマス原子間は斥力的相互作用があることが判明した。

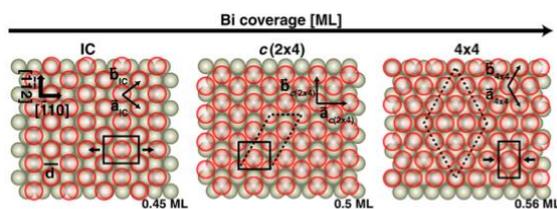


図1 Rh(111)表面上のBi原子の原子配列モデル

ロジウム単結晶金属表面上において、ビスマスと鉛元素による二次元合金を創製し、原子配列の被覆率依存性を調べた。ビスマスと鉛は表面結晶周期性に対して非整合な最密充填構造を形成することがわかった。また、ビスマス鉛の二次元合金は、全率固溶体を形成することが判明した。ビスマス鉛二次元合金の格子定数は、ベガード則に従うことも判明した。二次元物質系においても、バルク同様に、ベガード則に従うことが示されたのは本研究が初めてである。

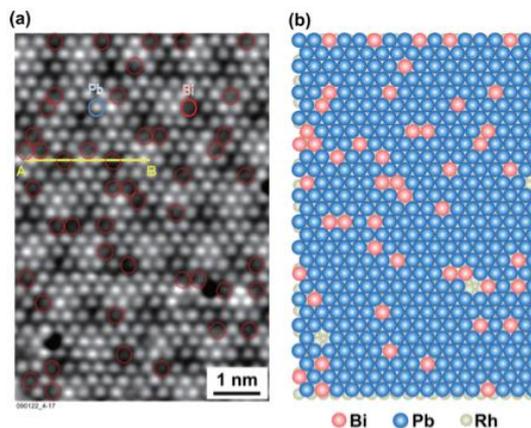


図2 Rh(111)表面上のBi-Pb二次元合金のSTM像と原子配列モデル

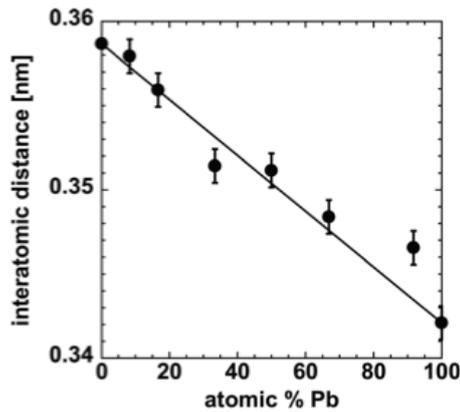


図3 Rh(111)表面上のBi-Pb二次元合金の原子間距離の組成依存性

ロジウム単結晶金属表面上において、ビスマスとスズ元素による二次元合金を創製し、原子配列の被覆率依存性を調べた。ビスマスは6回対称構造、スズは2回対称構造を形成するが、ビスマスとスズの二次元合金は、被覆率により固溶体となる組成と規則合金となる組成があることが判明した。

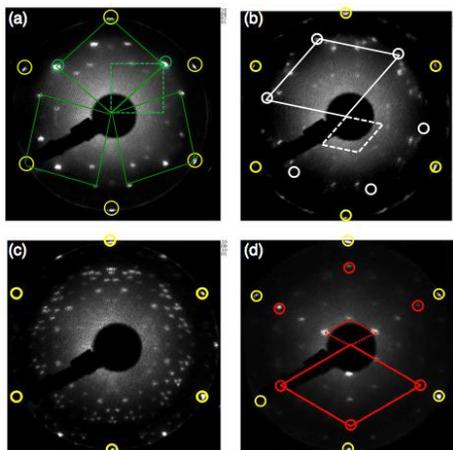


図4 Rh(111)表面上のBi-Sn二次元合金の原子間距離の組成依存性

(a) スズ:0.6 ML、(b) スズ:0.5 ML、
 ビスマス:0.2 ML、(c) スズ:0.3 ML、
 ビスマス : 0.3 ML、(b) ビスマス :
 0.6 ML

アルミニウム単結晶金属表面上において、スズと鉛元素による二次元合金の創製の可能性を調べるため、原子配列の被覆率依存性を調べた。スズと鉛は合金化せず、非固溶2相分離することが判明した。

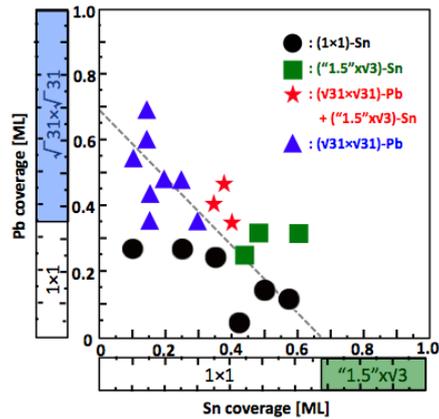


図5 Al(111)表面上のSn-Pb二次元合金の原子間距離の組成依存性

第一原理計算ソフトを用いて、ビスマスの構造データ（原子配列構造）を用いて、ビスマス二次元物質のバンド構造を計算し、バンド構造のスピンスplit度进行评估した。

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7件)

- ① J. Yuhara, M. Yokoyama, T. Matsui, Two-dimensional alloy of immiscible Bi and Sn atoms on Rh(111), Surf. Sci. 606, pp456-460 (2012) 査読有
- ② J. Yuhara, K. Ito, T. Matsui, Effects of impurities on surface morphology of Fe(111), Surf. Sci. 605, pp115-119 (2012) 査読有
- ③ R. Zenkyu, D. Tajima, J. Yuhara, Disordered structure of ultra thin tin oxide film on Rh(100), J. of Appl. Phys. 111, 64907 (4 pages) (2012) 査読有
- ④ H. Fujiyoshi, T. Matsui, J. Yuhara, Segregation and morphology on the surface of ferritic stainless steel (001), Appl. Surf. Sci. 258, pp7664-7667 (2012) 査読有
- ⑤ J. Yuhara, D. Tajima, T. Matsui, K. Tatsumi, S. Muto, M. Schmid, and P. Varga, Growth and structure of ultra thin tin oxide film on Rh(111), J. of Appl. Phys. 109, p24903 (2011) 査読有
- ⑥ M. Yokoyama, W.S. Liang, W. Chen, A.T.S.

Wee, T. Matsui, J. Yuhara, Symmetrical transition of an atomic arrangement for two-dimensional Bi films on Rh(111) in the submonolayer regime, Surf. Sci. 605 pp844-847 (2011) 査読有

- ⑦ J. Yuhara, M. Yokoyama, T. Matsui, Two-dimensional solid solution alloy of Bi-Pb binary films on Rh(111), J. of Appl. Phys. 110, 074314 (4 pages) (2011) 査読有

[学会発表] (計 14 件)

- ① 赤穂達也、陳立航、柚原淳司、「Ag(111) 表面上における Sn 及び Pb による二次元合金の創製と原子配列」、日本物理学会第 67 回年次大会、関西学院大学 (2013 年 3 月 24-27 日)
- ② 加藤大輔、柚原淳司、「Rh(100) 表面上における酸化亜鉛超薄膜の創製と I-V LEED 法と第一原理計算法による複合構造解析」、2012 年度第 3 回 SPM による表面分析研究会、中部大学 (2013 年 2 月 8 日)
- ③ J. Yuhara, M. Yokoyama, T. Matsui, Two-dimensional solid solution alloy of Bi-Pb binary films on Rh(111), 6th International Symposium on Surface Sciences and Nanotechnology, Tokyo, Japan (Dec 11th-15th, 2011) (oral presentation)
- ④ H. Fujiyoshi, T. Matsui, J. Yuhara, The growth and heat resistance of ultra thin aluminum oxide films on Fe (100), 6th International Symposium on Surface Sciences and Nanotechnology, Tokyo, Japan (Dec 11th-15th, 2011) (poster presentation)
- ⑤ 柚原淳司、「固体表面上の二次元合金の創製と原子配列」、2011 年度第 2 回 SPM による表面分析研究会、大同分析リサーチ (2011 年 10 月 28 日)
- ⑥ 善久竜滋、田島大輔、松井恒雄、柚原淳司、「Rh(100) 表面上の酸化スズ超薄膜の第一原理計算」、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学 (2011 年 9 月 21-24 日)
- ⑦ 藤好大貴、松井恒雄、柚原淳司、「Fe(100) 表面上における酸化アルミニウム超薄膜の作

製とその耐熱性評価」、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学 (2011 年 9 月 21-24 日)

- ⑧ J. Yuhara, K. Daisuke, T. Matsui, S. Mizuno, Growth and structure of ultra-thin zinc film on Rh(100), International Conference on Materials for Advanced Technologies 2011, Suntec, Singapore (June 26th - July 1st, 2011) (poster presentation)
- ⑨ J. Yuhara, M. Yokoyama, T. Matsui, Two-dimensional alloy of immiscible metals: Binary monolayer films of Bi, Pb, and Sn on Rh(111), 8th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices 2011, Seoul, South Korea (May 22nd - May 27th, 2011) (oral presentation)
- ⑩ 藤好大貴、柚原淳司、松井恒雄、「フェライト系ステンレス鋼(100) 表面の加熱時の偏析挙動」、日本原子力学会中部支部 第 42 回研究会 (2010 年 12 月 14 日-15 日)
- ⑪ 加藤大輔、柚原淳司、松井恒雄、水野正義、「I-V LEED 法による Rh(100) 表面上の酸化亜鉛超薄膜の構造解析」、日本物理学会 2010 年秋季大会、大阪府立大学 (2010 年 9 月 23-26 日)
- ⑫ 横山 昌、松井恒雄、柚原淳司、「Rh(111) 表面上における Bi-Sn 二次元合金の創製と組成依存性」、日本物理学会 2010 年秋季大会、大阪府立大学 (2010 年 9 月 23-26 日)
- ⑬ 藤好大貴、松井恒雄、柚原淳司、「フェライト系ステンレス鋼単結晶(100) 表面における偏析物の温度依存性」、日本物理学会 2010 年秋季大会、大阪府立大学 (2010 年 9 月 23-26 日)
- ⑭ H. Fujiyoshi, T. Matsui, J. Yuhara, Temperature dependence on segregation behavior at ferritic stainless steel single crystal (100) surface, 27th European Conference on Surface Science, Groningen, Netherland (Aug. 30th - Sep 3rd, 2010) (poster presentation)

[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://yuhara.nucl.nagoya-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

柚原 淳司 (YUHARA JUNJI)
名古屋大学・工学研究科・准教授
研究者番号：10273294

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし