

論文の内容の要旨

論文題目 Role of Spin-Orbit Interaction and Surface States in Quantum Bismuth films
(ビスマス量子薄膜におけるスピン軌道相互作用と表面状態)

氏名 平原 徹

近年、キャリアの電荷の自由度だけでなくスピンの自由度を駆使して、新たな機能を持つデバイスを開発しようというスピントロニクスが大きな注目を集めている[1]。スピンを制御することがスピントロニクスにおいて重要であるが、従来は新たな強磁性状態を作り出し、磁場や電流でスピンを制御することが試みられていた[2]。一方最近、非磁性体においても電場により非対称な閉じ込めポテンシャルを用いることで半導体界面においてスピン分裂した二次元自由電子ガス状態を作り出せることが明らかになった[3]。これは Rashba 効果と言われ、相対論的効果であるスピン軌道相互作用と空間反転対称性の破れによって生じる[4]。通常の物質においては時間反転対称性($E(k, \uparrow) = E(-k, \downarrow)$)と空間反転対称性($E(k, \uparrow) = E(-k, \uparrow)$)の二つによってバンドが縮退する($E(k, \uparrow) = E(k, \downarrow)$)が、空間反転対称性が破れていると縮退が解けるのである。

同様の効果は結晶表面上においても表面垂直方向の空間反転対称性が破れているので現れ、例えば Au(111)表面に関しては結晶表面最上位層近傍に局在したスピン軌道分裂した表面状態バンドが明確に観測された[5]。本研究で対象として扱ったビスマス(Bi)は原子番号が大きく、重い元素なので相対論的効果も非常に強く、Shubnikov de-Haas 振動などの輸送現象から予想されるバルクの電子状態やフェルミ面を再現するのにスピン軌道相互作用を考慮する必要性が指摘されている[6]。またビスマスはフェルミ波長が非常に長く(20~30nm)量子効果を見るのが容易なので、すでに 1960 年代から次元を下げてナノワイヤーや薄膜において量子サイズ効果の発現検証実験に多く用いられてきた[7]。従来の Bi 薄膜の研究においてはバルクバンドの量子化状態にばかり注目がおかれていたが、本論文では従来よりも薄く高品質のナノメートルスケール厚さの超薄膜を用いてビスマスの表面状態のスピン構造に特に重点を置いて詳細な研究を行った。エピタキシャル超薄膜においては表面における Rashba 効果、そして量子サイズ効果の両方の発現が期待できるが、本研究ではその両者や二つの効果の相互作用について表面状態バンド

のスピンの特性の変化という観点から考察を行った。さらに膜全体の物性に表面状態がどのように現れるかということにも注目した。内容としては大きく二つに分けられる。

最初にシリコン(Si)(111)-7×7 表面上に形成した Bi(001)超薄膜の電子状態・スピン構造に関して詳細な測定を行った。膜厚は 6BL~40BL (1 BL = 3.9 Å, 2.7~16nm)である。手法としては角度分解光電子分光法でバンド分散・フェルミ面測定、そしてスピンの性質を調べるために第一原理計算とスピン角度分解光電子分光法を用いた。まずバルク Bi は半

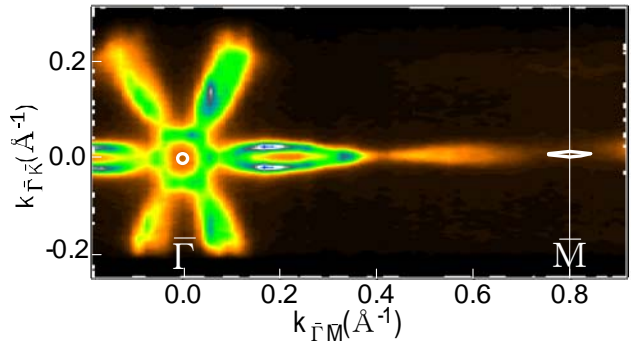


図1: Bi(001)超薄膜のフェルミ面。白線がバルクのフェルミ面の投影を表す。

金属であり、フェルミ面が非常に小さいがこれらの Bi 超薄膜のフェルミ面は非常に大きく大変よい金属的な状態が実現していることが分かった(図1)。また膜厚依存性が見られ

ないことからこれらのフェルミ面がバルクバンドのギャップ中に形成される表面状態によって構成されることが明らかになった(図2)。一方フェルミ準位の下ではバンド分散は非常に大きな膜厚依存性を示し、Bi 超薄膜に対して量子井戸状態を初めて明確に観測した(図2)。スピンの性質を調べるためにこれらの結果を半無限系の Bi スラブの

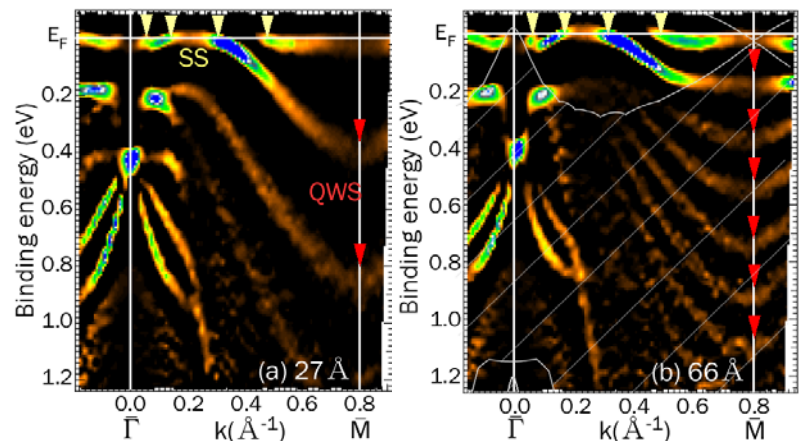


図2: 7BL 及び 17BL の Bi(001)超薄膜のバンド分散図。表面状態(SS)と量子井戸状態(QWS)が観測された。(b)の斜線がバルクバンド射影を表す。

第一原計算のバンド構造と比較したところ、 Γ 点近傍の表面状態バンドに関してはよい一致を示し、Rashba 効果によりスピン軌道分裂した性質を

持つことが示された(図 3(a))。この Rashba 分裂の大きさは先に述べた半導体界面におけるスピン分裂した量子井戸中の二次元自由電子ガスに比べて約 10 倍、Au(111)に比べても 2 倍以上と非常に大きいものである[5,8]。一方 M 点での量子井戸状態はこの計算では特徴が再現できず、むしろ対称 Bi スラブの計算結果とよい一致を示し(図4(b))、スピン分裂していないことが示唆された。さらに表面状態バンドの方もバルクバンド射影と交わ

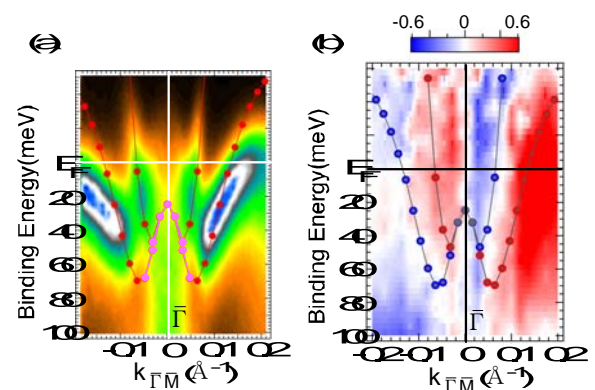


図3: 表面状態バンドの Γ 点近傍のバンド分散(a)及びスピン偏極度マッピング(b)。重ねた丸が半無限 Bi の第一原理計算の結果を表す。

る M 点近傍では膜厚依存性を示し量子井戸状態になるのでスピン分裂の性質が徐々に失われるのではないかという知見が得られた。実際にスピン角度分解光電

子分光測定を行ったところ、バルクバンドギャップ中に完全にある表面状態に関しては明確なスピン偏極が観測され、スピン構造が Γ 点及び M 点に関して反対称的であることから確かに Rashba 分裂であると結論づけた(図3(b)、図4(a))。またバルクバンド射影内で表面状態バンドのスピン偏極度が減少し、M 点でスピン偏極が完全に消失する様子も観測され、第一原理計算と定性的な一致が得られた

(図4)。このようにして Rashba 効果と量子サイズ効果、及び両者の競合・移り変わりを明確に観測することができた。

次に Bi 超薄膜に対して輸送特性を調べるために電気伝導測定を行った。光電子分光によるフェルミ面測定の結果から表面状態は $\sim 10^{13}$ 個/cm² のキャリアが存在し、ナノメートルスケールの厚さの薄膜内部には $\sim 10^{11}$ 個/cm² しかキャリアが存在しないことが明らかになり(図1)、表面状態が電気伝導特性に大きく寄与していることが予想される。まずマイクロ 4 端子プローブ法で薄膜の電気伝導度の膜厚依存性を調べた。表面状態は膜厚依存性がなく(σ_{ss})、膜内部の成分(σ_{film})のみが膜厚依存性を持つというモデルのもとで考察を行った($\sigma(d) = \sigma_{ss} + \sigma_{film}(d)$)。

エピタキシャルな薄膜が形成され始める 6BL から 25BL において、測定値は放物線でフィッティングでき、それ以上の膜厚になると放物線の下にくることが分かった。これは膜内部の散乱メカニズムが界面散乱からフォノン散乱に変わることによるものと結論付け、放物線を膜厚 0 に外挿してまず表面状態の寄与 σ_{ss} を見積もった(図5(a))。次に表面を酸化させて表面状態を破壊し、その前後での電気伝導度の減少からも表面状態電気伝導度を見積もった(図5(b))。上記二つの測定結果は同じ値 $\sigma_{ss} \sim 1.5 \times 10^{-3} \Omega^{-1}/\square$ (室温)を示した。この値をボルツマン方程式を用いてバンド構造から得られるフェルミ速

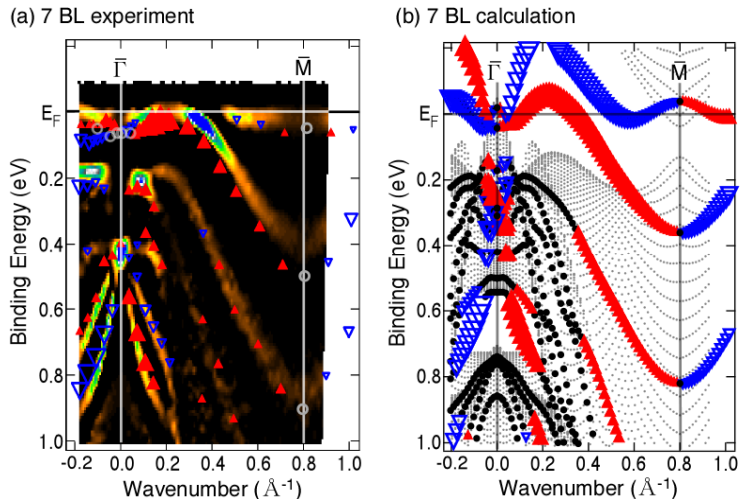


図4:(a) 7BL の Bi(001)超薄膜のバンド分散の上にスピン分解光電子分光測定の結果を重ねたもの。赤(青)が上(下)向きスピンを表し、大きさがスピン偏極度の度合いを表す。グレーの丸が無偏極状態を表す。(b)対称スラブにおける第一原理計算のバンド分散。黒い丸が無偏極状態、グレーの点バルクバンド射影を表す。

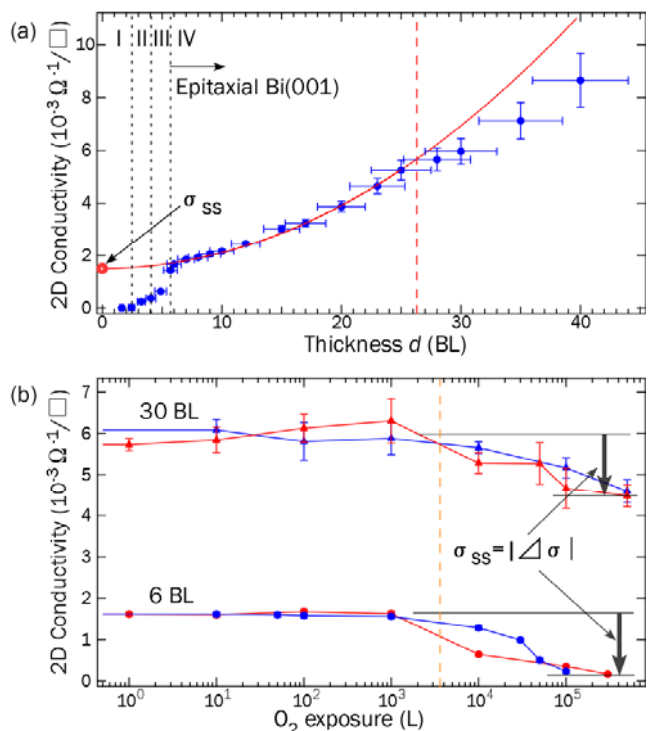


図5:(a) Bi 超薄膜の電気伝導度の膜厚依存性グラフ。(b) 6BL と 30BL の Bi 超薄膜を酸化して表面状態を破壊したときの電気伝導度変化。

度から計算した電気伝導度と比較したところ概ね良い一致を示すことが明らかになった。また一番薄い6BLの超薄膜においては表面状態の寄与が支配的で膜内部の電気伝導度が無視できるほど低いことが分かった(図5(b))。このような超薄膜の電気伝導度の温度依存性を測定したところ室温から15K程度まで金属的な振る舞いを示した。データを直線でフィッティングして傾きから電子格子相互作用定数を導出したところ、 0.85 ± 0.46 であった。光電子分光のピーク幅の温度依存性から見積もられる電子格子相互作用定数の値は0.1~0.5程度であり、誤差の範囲内で一致していると言える。この結果から高分解能光電子分光で得られるバンド分散から表面状態電気伝導を精度良く記述でき、また温度依存測定をすれば散乱メカニズムも同定できるということが明らかになった。

物質の微細化がますます進むにつれて表面状態の寄与が重要になり、その性質を詳細に調べることの意義が謳われてきたが、本研究におけるBi超薄膜上の表面状態に関しては膜全体の特性を決めてしまうほど大きな役割を果たしていることが明らかになった。さらに表面状態バンドのスピントロニクス特性を生かしてこれらのBi超薄膜をスピントロニクスデバイス[9]を始めとしたスピントロニクスデバイスに応用できる可能性もあると思われる。また量子スピンホール状態のエッジ状態としての観点からも今後の研究の発展が興味深い系である[10]。

[1] S. A. Wolf *et al.*, *Science* **294**, 1488(2001).

[2] H. Ohno, *Science* **281**, 951(1998).

[3] T. Koga *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 046801(2002).

[4] E. I. Rashba, *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1109(1960).

[5] M. Hoesch *et al.*, *Phys. Rev. B* **69**, 241401(R)(2004).

[6] X. Gonze *et al.*, *Phys. Rev. B* **41**, 11827(1990).

[7] Y. F. Ogrin *et al.*, *JETP Lett.* **3**, 71(1996); V. B. Sandomirskii, *Sov. Phys. JETP* **25**, 101(1967); T. E. Huber *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1326(2004).

[8] J. Nitta *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1335(1997).

[9] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665(1990).

[10] S. Murakami, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 236805(2006).