



シリコン基板上ビスマス薄膜のスピンの偏極電子構造の光電子分光による解明

A photoemission spectroscopic study on the spin-polarized electronic structure of ultra-thin Bi films on Si substrates

平山博之¹、中辻寛¹、宍倉一輝¹、日比野浩樹²、前田文彦²
Hiroyuki Hirayama¹, Kan Nakatsuji¹, Kazuki Shishikura¹,
Hiroyuki Hibino², Fumihiko Maeda²

1) 東京工業大学、 2) NTT 物性基礎科学研究所

1) Tokyo Institute of Technology, 2) NTT Basic Research Laboratories

1. 測定実施日

2014 年 3 月 12 日 10 時 - 19 時 (2 シフト) , BL7U

2014 年 3 月 13 日 10 時 - 19 時 (2 シフト) , BL7U

2. 概要

BL7U の超高真空準備室内で試料通電加熱できる機構と、これに対応した試料ホルダーを設計・製作し、高濃度 B ドープ Si(111)基板を 1200°C で通電過熱することにより、シャープな低速電子線回折(LEED)超格子スポットを示す Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面構造の作成に成功した。またこの Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面上に、K セルを用いて Bi 原子を蒸着し、Bi(110)超薄膜をその場成長できることを LEED 観測により確認し、この Bi(110)超薄膜の表面電子状態のバンド分散関係を角度分解光電子分光(ARPES)により観測することに成功した。

3. 背景と研究目的

次世代の電子産業を担う技術の一つとして、近年スピントロニクスが注目を集めており、その基盤材料としてスピン偏極電流の伝搬を担うスピン偏極電子

バンド構造をもつ物質の電子物性を明らかにすることが求められている。本研究で扱うビスマスはスピン軌道相互作用が大きいため、非磁性物質にもかかわらず、バルク状態ではラシュバ型のスピン偏極バンドを有することが知られている。これをシリコン基板上に薄膜で成長するとシリコンデバイスとのマッチングが向上し、またスピン偏極バンドが実現するだけでなく、原子構造ひいては電子構造の異なる薄膜が成長したり、薄膜内にスピン偏極量子井戸状態が実現するといった興味深い電子状態が期待できる。このように、従来のシリコン電子デバイス技術との compatibility、人体に有害な Hg などの元素を含まない、磁性材料を使わないという元素戦略の観点など、多くの産業的な利点から、より産業利用できる道を開く可能性がある。またビスマス 2 原子層の薄膜は 2 次元トポロジカル絶縁体の振る舞いを示すと考えられており、大変興味深い。

以上の観点から、本研究では化学的に不活性な B (ボロン) 吸着 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 構造表面上に Bi 超薄膜を成長し、その原子構造や化学組成の情報を内殻光電子分光測定で、また詳細な電子バンド構造を角度分解光電子分光測定で調べ、Bi 薄膜の基本的な電子物性を明らかにすることにより、基板の影響を受けない Bi 超薄膜でのみ実現される新奇な電子状態を探索することを目的として行った。

4. 実験内容

実験では角度分解光電子分光(ARPES)用の BL7U の超高真空装置を用いて、(a)その超高真空試料準備室内で、高濃度 B ドープした Si(111)基板の 1200°C フラッシュおよび 900°C アニーリングにより基板表面に Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面構造を作成し、(b)さらにこの Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面上に室温で Bi 原子を蒸着することにより Bi(110)超薄膜試料を作成し、(c)得られた Bi(110)超薄膜表面の電子状態の分散関係、フェルミ面形状、コアレベルシフトなどを BL7U の光電子分光装置を用いた測定を行った。Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面の作成、およびこの上の Bi(110)超薄膜の形成は、BL7U 超高真空装置に装備されている低速電子線回折(LEED)をもちた表面回折パターンの観察により確認した。

現状 BL7U の超高真空装置の試料準備室では、実験に必要な 1200°C までの加熱ができない。このため、今回は実験に先立ち東工大にて試料を通電加熱できるサンプルゴニオ機構、およびこの通電加熱機構セット時に LEED 観察が

可能で、かつ光電子分光測定室における ARPES 測定も可能とする試料ホルダーを設計・製作し、BL7U に持ち込んでセットしてその動作を確認しつつ実験を進めた。また Bi 蒸着に関しては、やはり東工大から持ち込んだ K セルを BL7U の超高真空試料準備室にセットし、これを用いて超高真空下で試料を準備することを可能にすることにより、一連の基板作成、超薄膜作成、およびその表面電子状態のその場測定を、超高真空を破ることなく実施した。

5. 結果および考察

通電加熱ゴニオと Bi 蒸着セルをセット後の BL7U の超高真空試料準備室の真空度は $6 \times 10^{-8} \text{Pa}$ だった。この真空内で高濃度 B ドープ Si(111) サンプルを 1200°C フラッシュし、これに引き続き 900°C アニール処理をした結果、Fig. 1 に示すようなシャープな $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ LEED 回折スポットを示す Si(111)

$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -B 基板表面を得ることができた。

この表面の上に 460°C に保った Bi 蒸着用 K セルから Bi 原子を室温蒸着したところ、LEED パターンは Fig. 2 のように変化した。本研究に先立ち、我々

は東工大の超高真空 STM 装置を用いた実験により、Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -B 基板表面には Fig. 3 の STM 像に示すような、 $0.471 \times 0.440 \text{ nm}$ の長方形ユニット



Fig.2 Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -B 基板表面上に形成した Bi(110) 超薄膜表面からの LEED パターン。加速電圧：38eV。

セルの頂点と、セルの中心からややずれた位置に Bi 原子が配置された Bi(110) 超薄膜が成長することを明らかにしている。STM の研究から、この Bi(110) 超格子は、そのユニットセルの対角線が、Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -B 基板表面のユニットセルの (1-10) 軸方向を向いた対角線に対して 7 : 4 ので格子整合することがわかって

いる。ただし Bi(110) 表面のユニットセルは長方形であるため、これを基板表面の (1-10) 軸に乗せる方法には 2 通りあり、さらに基板には (1-10) と等価な軸が、3 回対称方向に 3 本あるため、都合 $2 \times 3 = 6$ 方向に回

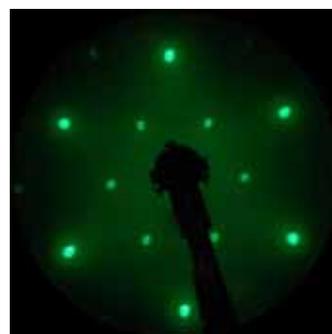


Fig.1 Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -B 基板表面の LEED パターン。加速電圧：52eV。

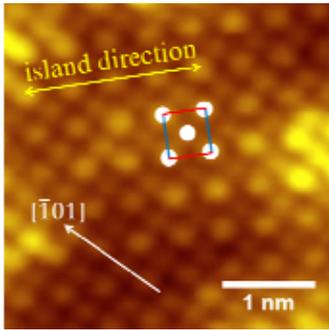


Fig.3 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面上に形成した Bi(110) 超薄膜表面の STM 像。

転した Bi(110) ユニットセルによる 6 つの回転ドメイン構造が共存している [1]。Fig.2 の LEED スポットは、この 6 つのドメインが共存する表面に対して計算した逆格子スポットと良く一致しており、LEED パターンから本実験において Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面に原子レベルで平坦な Bi(110) 超薄膜が成長していることが明らかになった。

本研究では、こうして得られた Bi(110) 超薄膜に対し、Fig. 4 に示すような Bi 5d コアレベルスペクトルの測定を行った。測定されたコアスペクトルには、シャープでケミカルシフトの無い Bi 5d ピークが観測され、成長した表面に外来の不純物や基板由来の B 原子や Si 原子の

混入が起こっていないことが確認された。

さらに本研究では、この Bi(110) 超薄膜の表面電子状態のバンド分散関係を ARPES 測定によって観測した。測定は初めに 120eV の入射光を用いて行い、この入射光においてアナライザの角度を $\pm 15^\circ$ の範囲で変化させ、ブリルアンゾーン内での表面バンド分散とフェルミ面マッピングに関する大まかな様子を知るためのデータを蓄積した。得

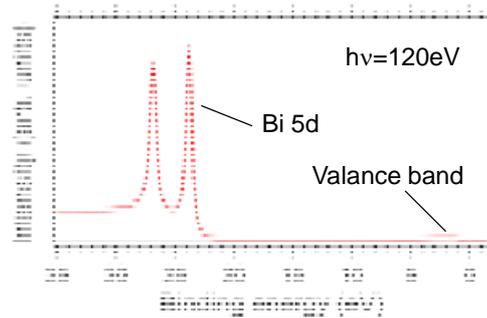


Fig.4 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面上に形成した Bi(110) 超薄膜の Bi 5d コアスペクトル。

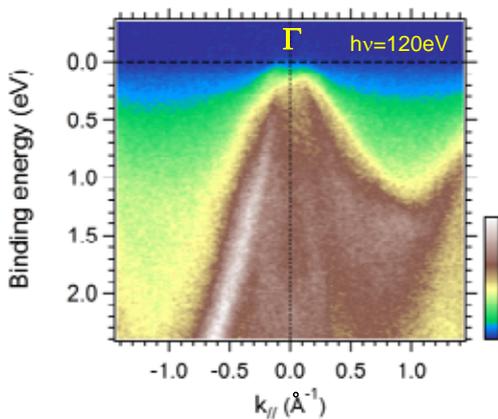


Fig.5 Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面上に形成した Bi(110) 超薄膜表面で観測された ARPES スペクトルの一例。

られた ARPES スペクトルの一例を Fig.5 示す。図に示すように Γ 点に向けて上に凸な分散を持つ表面バンドの存在が、本研究により明らかになった。本研究ではさらに同様の測定をより低いエネルギーの放射光に対して行い、また Γ 点近傍の分散をさらに細かく観測も行った。

6. 今後の課題

今回測定した **Bi(110)**超薄膜試料については走査トンネル顕微鏡(**STM**)により準粒子干渉(**Quasi Particle Interference; QPI**)パターンの観測と、その **FFT**解析に基づく散乱ベクトルの同定、さらにスピン軌道相互作用を考慮した相対論的な第一原理を行い、今回のビームタイムで得られたバンド分散やフェルミ面マッピングの結果と比較検討することによって、そのバンドのスピン偏極状態を明らかにすることが課題として残されている。

これに加えて **Bi(110)**超薄膜では膜厚に依存して、量子閉じ込め準位が変化する。またこの量子閉じ込め準位の変化に伴い、半金属—絶縁体転移が起こる可能性が指摘されている。さらに通常の **Bi** 結晶では取り得ない **2** 原子をペアとした黒燐構造の発生やこの構造変化に伴う **2** 次元トポロジカル絶縁体への電子状態変化など、様々な興味深い電子物性の実現が期待される。今回のビームタイム中には、試料の膜厚を変化させた実験は行えなかったが、この膜厚に依存した電子状態の変化は今後研究を行うべき重要な課題である。

7. 参考文献

- [1] I. Kokubo, Y. Yoshiike, K. Nakatsuji, H. Hirayama, *Phys. Rev. B* **91**, 075429 (2015).