



## 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<sup>1</sup>、中辻寛<sup>1</sup>、宍倉一輝<sup>1</sup>、日比野浩樹<sup>2</sup>、前田文彦<sup>2</sup>、鈴木哲<sup>2</sup>  
Hiroyuki Hirayama<sup>1</sup>, Kan Nakatsuji<sup>1</sup>, Kazuki Shishikura<sup>1</sup>,  
Hiroki Hibino<sup>2</sup>, Fumihiko Maeda<sup>2</sup>, Satoru Suzuki<sup>2</sup>

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

2015 年 6 月 2 日 10 時 – 19 時 (2 シフト) , BL7U

2015 年 6 月 3 日 10 時 – 19 時 (2 シフト) , BL7U

2015 年 6 月 4 日 10 時 – 19 時 (2 シフト) , BL7U

2015 年 6 月 5 日 10 時 – 19 時 (2 シフト) , BL7U

### 2. 概要

BL7U 用に設計・試作した試料通電加熱機構と試料ホルダーに改良を加え。これらを用いて 1200°C で高濃度 B ドープ Si(111) 基板を通電過熱することにより作成した Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面上に、Bi 蒸着用の K セルを用いて 5 原子層(5ML)程度の厚さの Bi(110)超薄膜を形成した。Bi(110)島の形成は BL7U 備え付けの LEED により確認し、その Bi(110)超薄膜のコアレベル測定、およびその表面電子状態バンド分散関係の ARPES 測定を行った。

### 3. 背景と研究目的

電子の持つスピン自由度を利用したスピントロニクス技術を確立するためには、ヘリカルにスピン偏極した電流の伝搬を可能とするスピン偏極バンド構造をもつ 2 次元トポロジカル絶縁体物質の開拓が必須である。具体的に、この

物質には、大きなスピン軌道相互作用とバンドギャップの存在が要求される。ビスマスはスピン軌道相互作用が大きく有望な物質であるが、残念なことに半金属であるためバンドギャップが開かない。このため近年は、ビスマスに異種元素を加えた合金相によりギャップを開かせる試みが盛んに行われている。しかしこの方法では、ギャップが開くための合金組成のマージンは非常に狭いため試料作成が難しく、かつ得られた試料を電子デバイス応用に重要なシリコン基板上に展開することが困難である。

これに対し、近年理論的にバルクで安定な構造とは異なる異性体である黒燐構造を持つ Bi(110) 超薄膜が 2 次元トポロジカル絶縁体となる可能性が指摘されている。ビスマス薄膜はシリコン基板上に形成可能である。また、これまでの我々の研究から、Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上には黒燐構造を持つ Bi(110) 超薄膜が安定化されることがわかっている。そこで本研究ではあいちシンクロトロン光センターBL7U の超高真空チャンバー内で、その場で清浄な Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面を準備し、さらにその上に Bi(110) 超薄膜をその場成長し、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、この Bi(110) 超薄膜の電子物性を明らかにすることを目的として実験を行った。

#### 4. 実験内容

実験は角度分解光電子分光用の 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て測定を行った。また reference として、Bi 蒸着を行わない清浄な Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面の電子状態の光電子分光測定も実施した。

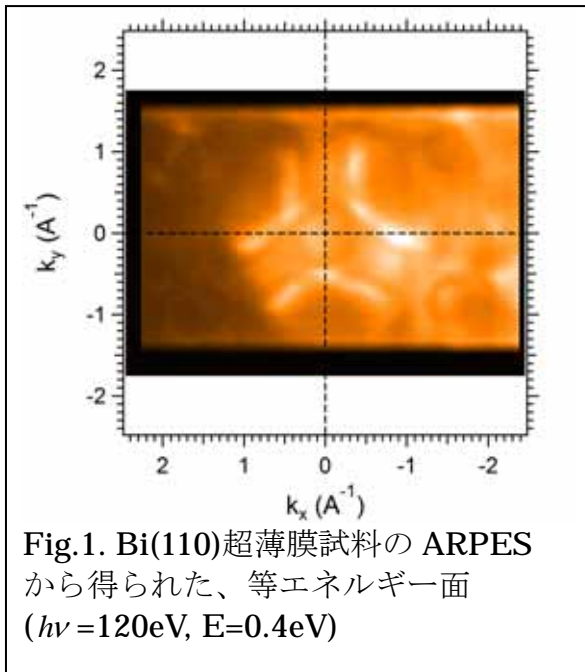
現状 BL7U の超高真空装置の試料準備室では、実験に必要な 1200°C までの加熱ができない。このため、今回は実験に先立ち試料を通電加熱できるサンプルゴニオ機構、およびこの通電加熱機構にセットした時に装置備え付けの LEED による表面構造周期性観察が可能で、かつ光電子分光測定室における

ARPES測定をも可能とする試料ホルダーを設計・製作し、BL7Uに持ち込み、その動作を確認しつつ実験を進めた。特に今回の実験では、前回の経験を踏まえ、ゴニオ部分がサンプルトランスファー時にずれないようにする工夫、およびサンプルホルダーが光電子分光チャンバー内の受け手にスムーズにセットできるような改良を加えたものを使用した。また Bi 蒸着に関しては、やはり持ち込んだ 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した。前回の実験では、Bi 蒸着量についての見積りや LEED でどのような回折パターンがどの程度の強さで観測されるかが未経験で全く判らず、事後の AFM による評価で 50ML 以上の膜厚の試料が出来てしまっていたことが明らかになった。そこで今回はこの経験を踏まえ、蒸着レートの見積りを BL7U にセルを持ち込む前に繰り返し、また BL7U における LEED 像の変化やその強度についても経験を踏まえた正確な判断を行うことにより、当初の予定通り 5ML 程度の膜厚の試料を作成し、その角度分解光電子分光測定を行うことに成功した。

## 5. 結果および考察

実験では、まずはじめに BL7U の超高真空チャンバー内での通電加熱により清浄な  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面を準備した。この表面が正しく出来ていることは、装置に備え付けの LEED において、基板表面の  $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$  長周期構造に由来するシャープな電子線回折スポットを観測することにより確認した。

これに引き続き、清浄な  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板表面に、東工大から持ち込んだ Bi 蒸着用セルを用いて Bi 原子を蒸着し、Bi(110)超薄膜をその場で作成した。この時、LEED 像には  $\text{Si}(111)1\times 1$  スポットの間 Bi(110)薄膜表面の原子配列を反映した回折スポットが観測されており、作成した Bi 薄膜は(110)表面を持つものであることが確認できた。ただし  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上では、Bi(110)超薄膜はその長方形のユニットセルの対角線を、 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$  基板格子の対角線に重ねるような形で成長するため、 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$  格子の 3 回対称性を反映して、6つの回転ドメインが現われることが、我々の STM の研究により明らかになっている [1]。実際、今回の実験で BL7U 内で作成した試料から得られた LEED 像でも、この6つの回転ドメインに起因する回折点が全て観測されていた。



以上により  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上に準備した  $\text{Bi}(110)$  超薄膜の電子状態は、BL7U の角度分解光電子分光装置を用いて調べた。角度分解光電子分光測定チャンバーには LEED がいないため、光電子分光測定の際にはこのチャンバーにセットした試料の面内方位を回折パターンから決定することができない。この点を克服するため、今回は高次のブリルアンゾーンまでも含むように広い範囲で細かく角度を振りながら、エネルギー分散関係を測定し、これを等エネルギー

面形の形に焼き直しながら実験を進めた。フォトンエネルギー  $120\text{eV}$  で得られた、 $\text{Bi}(110)$  超薄膜試料からの光電子スペクトルにより構築した  $E=0.4\text{eV}$  での等エネルギー面の結果を Fig.1 に示す。今回の測定で得られたデータから、図のような試料の対称性を反映した等エネルギー面のパターンが、Binding energy とともに変化していく様子が明瞭に観察された。

## 6. 今後の課題

BL7Uにおいてその場で清浄な  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上の  $\text{Bi}(110)$  超薄膜を成長し、その等エネルギー面の Binding energy に伴う変化の様子を観測することに成功した。

ただし BL7U の実験後に行った *ex situ* AFM 観察などから、今回の試料では基板の一部が Bi 薄膜に覆われていないため、得られた情報に基板由来の電子状態も強く反映されている可能性が明らかになった。また、 $\text{Bi}(110)$  超薄膜は  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上で6つの異なる回転ドメインを持つため、得られたデータから異なる回転ドメインからの情報を分離した、シングルドメインとしての  $\text{Bi}(110)$  超薄膜の電子状態を同定するのが極めて難しい。このため今後は、1)  $\text{Bi}(110)$  超薄膜が単一ドメインで基板を完全に覆うように成長する  $\text{Bi}(110)$  超薄膜/Si 基板系を開発し、2) この系に対し、Si 基板の電子状態に鈍

感で、かつ Bi 超薄膜の電子状態には大きなクロスセクションを持つ、40eV 程度以下の低いフォトンエネルギーを用いて、再度、BL7U で角度分解光電子分光測定を行うことが必要である。

## 7. 参考文献

- [1] I. Kokubo, Y. Yoshiike, K. Nakatsuji, H. Hirayama,  
Phys. Rev. B91, 075429 (2015).