

原子層材料における新奇物性の探究とその制御

大阪大学大学院工学研究科
生命先端工学専攻 教授 坂本 一之

1. はじめに

著者は京都で生まれ、幼少期をフランスで過ごし、小学校4年生で帰国した後は京都・高槻での学生生活を経て昭和60年に大阪大学基礎工学部物性物理工学科に入学しました。平成6年の博士課程修了時までの9年間を豊中キャンパスで過ごした後は東北大学で助手、スウェーデンのリンショーピン大学で客員研究員、千葉大学で准教授・教授と場所と職位を変えた後、本年3月より大阪大学に戻る機会をいただきました。戻ってきた、と言っても吹田キャンパスはこれまでセミナーや研究打ち合わせで来たことがあっただけでしたので、新鮮な気分で研究と教育を始めさせていただいております。

研究生活のスタートとなった学部での4年生では、表面物理の理論研究を行っていた(故)吉森昭夫先生の研究室に加えていただきました。(拘束時間が短いという安易な理由で選んだ研究室でしたが)当時吉森先生は科研費の重点領域研究「表面新物質相」の代表者をされておられたことから、研究室に国内の著名な表面科学研究者が訪ねて来られるだけでなく、主催された国際ワークショップでは海外からも多くの研究者が来られました。そのような環境の下での生活は私に研究の面白さを知る非常に良い刺激となり、修士1年を終えるころには博士課程進学を考えるようになりました。ただ、私の修士修了と吉森先生のご退官が重なったことから、博士課程進学後指導教員を変えて理論研究を続けるのか、それとも他の研究室に異動するののかという選択を迫られました。色々悩んだ末、修士2年の時に阪大に来られ、修士までにやってきた表面研究と関連する研究を実験的に行える新しい研究室を立ち上げたばかりの菅滋正先生(現:阪大産研招へい教授)と大門寛先生(現:豊田理化学研究所)にお世話になることにしました。その後、これまで一貫して表面という特殊環境で展開されるサブナノ・ナノ構造体に発現する新奇物性の解明に力を注いできました。この場をお借りして、以下に近年遂行している研究の一部を紹介させていただきます。

2. 原子層物質

2010年にグラフェンがノーベル物理学賞の受賞対象物質となって以来、バルク固体を原子1層の厚さにすることによって発現する新しい物性研究が益々盛んになりました。例えば、炭素と同じ14族に属するシリコンやゲルマニウム、スズといった元素でグラフェンと同様のハニカム構造を有する原子層物質の物性を探索する研究など

が挙げられます。しかし、グラフェンと違い、これら元素で構成されたハニカム構造物質は自然界には存在しません。そこで、これらのハニカム原子層を作製するために用いられているのが、固体表面上への単原子層膜作製の技術です。例えば、シリコンのハニカム原子層であるシリセンは銀の(111)表面上にシリコンを蒸着することによって得ることができます。このように、2010年以降は自然界に存在しない原子層物質創製とそこに発現する新奇物性を探索する場として、それまで固体物理を研究していた多くの方がこの研究分野に参戦し始めました。その結果、基礎科学的な興味だけでなく、次世代デバイス材料として使用可能であるという応用的な興味からも固体表面上の原子層物質研究は飛躍的に伸びるようになりました。

3. ラッシュバ効果

このような研究の流れにおいて、私は固体表面上に創製した単原子層膜において表面垂直方向の空間対称性の破れに起因して現れるスピンと軌道が織りなす複雑なスピン偏極電子バンドを有する物質を中心に研究を行っています。このようなバンドを生じさせるもっとも有名なものにラッシュバ効果が挙げられます。通常、時間反転対称性と空間反転対称性が保たれている系では全ての波数ベクトル(k)でスピンは縮退して1つの電子バンドに反対方向の2つスピンが入ります。しかし、空間反転対称性が破れて時間反転対称性のみが保たれている系ではスピン軌道相互作用(SOC)によりスピンの縮退が解けてバンドが

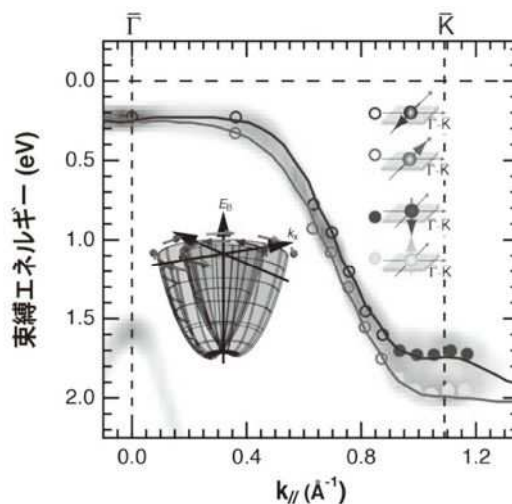


図1 シリコン表面上のタリウム原子層膜のスピン偏極電子バンド (挿入図は理想的な2次元電子ガスでのラッシュバ効果)

k 方向に分裂します。この分裂を引き起こす効果がラシュバ効果で、 $k=0$ であるブリルアンゾーンの $\bar{\Gamma}$ 点の周りだけでなく、時間反転対称性を有するブリルアンゾーンの対称点の周りでも起こります。2次元自由電子バンドでの理想的なラシュバ効果では、図1の挿入図に示すようにスピン偏極ベクトル(P)が2次元面に平行で k に垂直となって等エネルギー面の2つの円で P がそれぞれ反対向きに一周するスピントクスチャとなります。

4. 電子スピンの後方散乱を抑制する特異なラシュバ効果

しかし実際の単原子層膜では、例えば周期的に配列した原子構造によって P が前述の理想的な系と異なる振る舞いをする可能性があることに注目し、私は原子構造に起因した対称性がもたらす特異なラシュバスピントクスチャを研究しています。例えば、鏡映面を有する3回対称性の2次元格子には、単位胞の辺が鏡映面と平行な $p31m$ 平面群に属するものと辺と鏡映面の間の角度が30度である $p3m1$ 平面群に属するものがあり、この違いによってブリルアンゾーンの \bar{K} 点での対称性が異なってきます。ここでは $p3m1$ 平面群でのラシュバ効果について述べたいと思います。 $p3m1$ 平面群での \bar{K} 点の対称性は C_3 となります。 C_3 対称性を有する \bar{K} 点を研究する物質として、シリコン(111)表面上に創製したタリウム原子層を用いました。図1に角度分解光電子分光(ARPES)より得られた電子バンドと、スピンARPES(SARPES)と理論計算から得られた P を示しています(それぞれ○●印と実線)。 $\bar{\Gamma}$ 点付近では分裂は小さいながらも挿入図に示している理想的なラシュバ効果によるスピンと同様の P ですが、波数が \bar{K} 点付近まで大きくなると P が急激に表面垂直方向を向いています。この点で観測されたスピンはその向きだけでなく、スピン偏極度が100%であることも理想的なラシュバスピンとは大きく違っています(通常ラシュバスピンは良い量子数ではないため偏極度が100%になることはありません)。そこで、実2次元系としてブロッホ関数をもちいて有効SOCハミルトニアンを再考した結果、理想的なラシュバ効果のハミルトニアンにはないゼーマン項が現れることがわかりました。また、 \bar{K} 点の C_3 対称性と、 $p_x \pm ip_y$ が C_3 群の既約表現であることから、この対称性を有するブリルアンゾーンの対称点では電子が xy 面内を円運動して z 方向の有効磁場が得られることがわかります。(詳細は省きますが) C_3 対称性を有する \bar{K} 点ではゼーマン項だけが効いてくるため、スピンは100%の偏極度で表面垂直方向を向くこととなります。これは、この現象がタリウム原子層膜だけでなく、 \bar{K} 点が C_3 対称性の物質であればどのような物質でも起こることと、固体表面でのラシュバ効果に「対称性」が大きく寄与することをも意味しています。実際、 \bar{K} 点が C_3 対称性を有する層状物質の MoS_2 でも同様のゼーマン型のスピン分裂が観測されています。

また、このような特異なラシュバ効果によるスピンは、原子層物質のスピン트로ニクスデバイス応用への可能性を広げます。図1の挿入図からわかるように通常のラシュバ効果では時計回りと反時計回りの両方向のスピンテ

クスチャが存在するために不純物などで電子スピンの簡単に後方散乱されます。それに対し、 C_3 対称性の \bar{K} 点では表面垂直方向に100%偏極したスピンが存在し、 \bar{K} 点と \bar{K}' 点ではその向きが反対になることから後方散乱の問題を解決できます。さらに、 $\bar{\Gamma}$ 点付近の表面平行方向の存在から、特定の波長の電子を検出する機能が2倍となる半導体スピントロニクスデバイスの創製が可能となります。

強いスピン軌道相互作用によるバンド反転でバルクは絶縁体だが表面のみがスピン偏極した金属状態となっているトポロジカル絶縁体も半導体スピントロニクスデバイス材料の有力候補であり、それを用いた新奇デバイス探索も行っていますが、紙面の都合上、次の機会にでも紹介させていただければと思います。

5. 原子層超伝導体

超伝導体も原子層の厚さになるとバルク固体と異なる物性を示すことが知られています。例えば近年精力的に研究されている鉄系超伝導体の1つであるFeSeでは、バルクでの超伝導転移温度は約10 Kですが、原子層FeSeの転移温度は約100 Kと10倍ほど高くなります。この他、原子層超伝導体には前章のラシュバ効果が発現することから電荷ドーピングによるフェルミ準位の調整と外部磁場によるゼーマン分裂によりトポロジカル超伝導体となる可能性を秘めています。トポロジカル超伝導体はそのエッジに量子情報を環境ノイズに対して強く安定に保持できるマヨラナ粒子が存在することから、量子コンピュータ材料として非常に有力な物質です。私は固体表面にInやTl、TlBi合金などの原子層薄膜を作製し、その原子構造、スピン偏極電子バンドおよび温度に依存した電気伝導と、それら原子層薄膜への有機分子蒸着による電荷ドーピングと外部磁場印加することでトポロジカル超伝導体の作製を目指しています。現在は原子層超伝導体の創製とその原子構造の決定、スピン偏極電子バンドの測定と電荷移動によるフェルミ準位の移動に成功しています。トポロジカル超伝導体の創出まで道のりはまだまだ遠いですが、基礎科学的にも応用的にも非常に魅力のあるテーマですので、これからさらなる結果を求めて研究を続けて行きたいと思っています。

6. 謝辞

最後になりましたが、ここで述べた研究は私のグループに所属している学生、所属していた卒業生と研究員・スタッフを始め、東大、東北大、広島大、金沢大、佐賀大、ミュンスター大学(ドイツ)、ビュルツブルク大学(ドイツ)、リンショーペン大学(スウェーデン)、ポハン工科大学(韓国)などの国内外の大学との共同研究、KEK-PF、HiSOR、Saga Light Source、MAX-IV(スウェーデン)、ELETTRA(イタリア)、SOLEIL(フランス)、BESSY-II(ドイツ)などの国内外の放射光施設を利用して行われました。ここで関係者の皆様に御礼申し上げます。

(基礎工 平成元年卒 3年修士 6年博士)