

# 異なるタイプのスピン分裂バンドの共存 Coexistence of Two Types of Spin-split Bands at the Same Wave Number

小森文夫<sup>1,\*</sup>, 矢治光一郎<sup>1</sup>, ビシコフスキー アントン<sup>2</sup>, 田中悟<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京大学物性研究所  
〒277-8581 柏市柏の葉 5-1-5

<sup>2</sup> 九州大学工学研究院  
〒891-0358 福岡市西区元岡 744

Fumio KOMORI<sup>1,\*</sup>, Koichiro YAJI<sup>1</sup>, Anton VISIKOVSKIY<sup>2</sup>, and Satoru TANAKA<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo  
5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan

<sup>2</sup> Kyushu University  
Fukuoka, 891-0358, Japan

## 1 はじめに

非磁性体の表面や界面において強いスピン軌道相互作用によりスピン偏極した電子に関する研究が盛んに行われている。ラシュバ型スピン分裂を示す表面はその代表例としてよく知られている[1]。理想的な二次元自由電子ガスを用いたラシュバモデルでは、スピンの方向は電子の運動量と表面垂直方向の両方に対して直交する。固体単結晶表面でもそのようなスピン方向が観測される場合もある一方で、電子のスピンの方向が結晶構造の対称性に大きく影響を受けることもある[2]。例えば三回対称な表面結晶構造をもつ物質の K 点では、その対称性が鏡映反転を含まない  $C_3$  の場合は、エネルギー方向にスピン縮退が解け、面直方向のスピンをもつゼーマン型のスピン分裂バンド構造になる[3]。一方、K 点の対称性が鏡映反転面を含む  $C_{3v}$  であれば、面内方向スピンが渦状となるラシュバ型スピン分裂バンドになる[4]。これらの系の K 点は時間反転対称性を有していないが、後者においては結晶構造の対称性からラシュバ型のスピンテクスチャをもつ[2, 5]。このことから、電子のスピンテクスチャは結晶対称性によって決まると考えられてきた。最近我々は、三回対称な結晶構造をもつ Sn 単原子層の K 点において、この考えでは説明できないラシュバ型とゼーマン型の両方のスピンテクスチャが共存していることを見出した[6]。

## 2 実験

試料は、スズ (Sn) 原子をグラフェンとシリコンカーバイド (SiC) 基板の界面にインターカレーションすることにより作製した (図 1) [7]。この Sn 単原子膜では、Sn 原子は SiC 基板の T1 サイトに吸着し、三角格子のネットワークで形成される結晶構造をとっている。また、最表面のグラフェンは Sn/SiC(0001)の三回対称な結晶周期に対して 30 度回

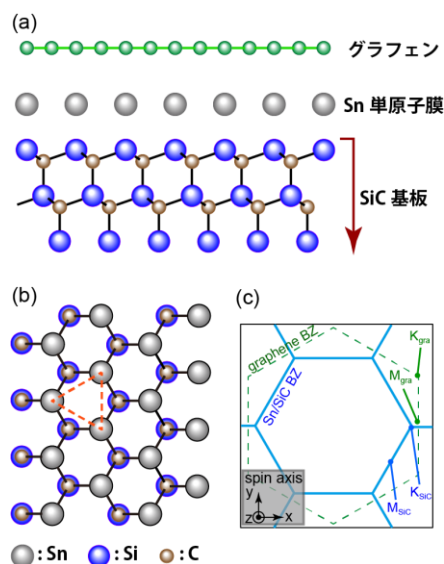


図 1: グラフェン/Sn/SiC(0001)の側面図 (a) と上面図(b), 及びそのブリュアンゾーン(c)。上面図ではグラフェン層を省略している。Sn 原子は SiC 基板上で三角格子 (上面図中の点線) を形成している。(c) 実線は Sn/SiC(0001)-(1×1), 点線は再表面のグラフェンのブリュアンゾーン。

転している。以下、この試料を簡単のため Sn/SiC(0001)とよぶ。

Sn/SiC(0001)の電子状態は、角度分解光電子分光 (ARPES) およびスピン・角度分解光電子分光 (SARPES) を用いて詳細に調べた[6]。実験は、東京大学物性研究所の極限コヒーレント光科学研究センターで開発された三次元 SARPES 装置[8]およびフォトンファクトリー BL13B の ARPES 装置を用いて行なった。

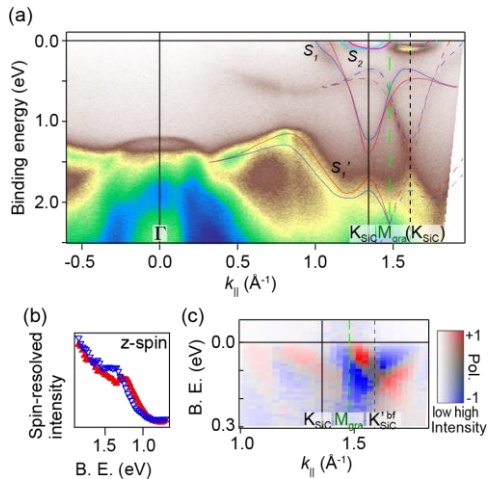


図 2: (a) Sn/SiC(0001)の $\Gamma K_{SiC}$  方向で測定された ARPES 強度図。実曲線はオリジナルバンド，点曲線はグラフェンの周期で折り返されたバンド。(b) ( $K_{SiC}$ )点における折り返された  $S_1$  バンドの  $z$  成分スピン分解光電子スペクトル。(c)  $S_2$  の SARPES 図。

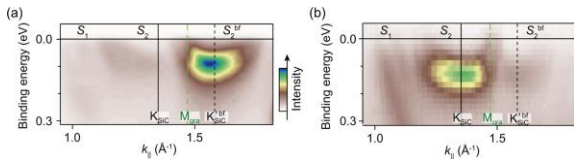


図 3:  $S_2$  バンド近傍の ARPES 強度図。励起光エネルギーは 21 eV(a)および 51 eV(b)である。(a) では，グラフェンの周期で折り返された  $K'_{SiC}$  付近のバンドの ARPES 強度が高く，(b) では， $K_{SiC}$  点付近のオリジナルバンドの強度が高い。

### 3 結果および考察

Sn/SiC(0001)の $\Gamma K_{SiC}$  方向[図 1(c)]の ARPES 測定を行うと， $K_{SiC}$  点近傍において二つの Sn 由来のバンド ( $S_1$ ,  $S_2$ ) が観測された[図 2(a)]。ここで，グラフェンの周期で折り返された  $K'_{SiC}$  ( $K_{SiC}$ )点付近のバンドの ARPES 強度が， $K_{SiC}$  点付近のオリジナルなバンドよりも高いことに気づく。図 3(b)のように，励起光のエネルギーを 51 eV にすると，オリジナルバンドの ARPES 強度の方が高くなる。 $S_1$  は結合エネルギー 1.5 eV 付近でエネルギーギャップをもち  $S_1$  と  $S_1'$  を形成している。また，図 2(b)のように SARPES より  $S_1$ ,  $S_1'$  それぞれは  $K_{SiC}$  点において面直方向のスピンを持っていることがわかった。したがって， $S_1$  は  $K_{SiC}$  においてゼーマン型にスピン分裂したバンドである。一方， $S_2$  はフェルミ準位近傍において運動量方向に分裂しており， $K_{SiC}$  点においてスピン縮退し， $K_{SiC}$  点を挟んでスピン偏極が反転していることがわかっ

た[図 2(c)]。したがって  $S_2$  はラシュバ型にスピン分裂したバンドである。

これまでは結晶の対称性とスピン分裂バンド構造は一對一で対応すると考えられていた[2,5]にもかかわらず，この Sn/SiC(0001)では，一つの  $K_{SiC}$  点においてゼーマン型とラシュバ型両方のスピン分裂バンドが共存している。Sn/SiC(0001)において SiC 基板も含めた結晶構造を考えると， $K_{SiC}$  点は鏡映面を含まないため，その対称性は  $C_3$  である。したがって，ゼーマン型スピン分裂は結晶対称性を考慮することにより矛盾なく説明できる。一方，ラシュバ型のスピン分裂は従来の結晶構造の対称性をういた考え方だけでは説明できない。

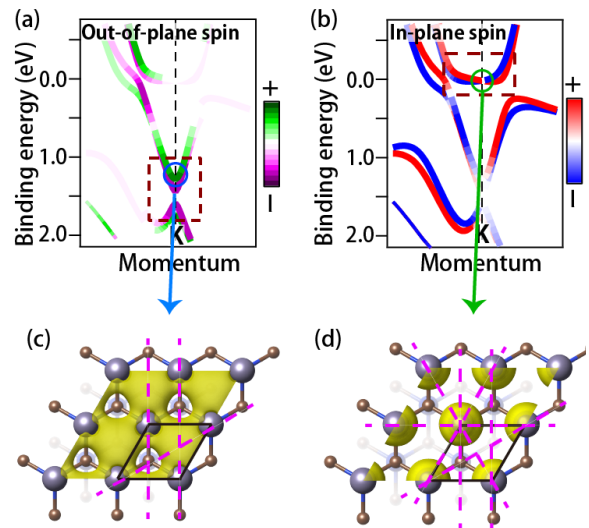


図 4: (a,b) 第一原理計算によって得られた Sn/SiC(0001)のバンド構造。緑-白-紫で面直方向のスピン偏極度，赤-白-青で面内方向のスピン偏極度をあらわす。(a)は面垂直スピン成分，(b)は面内スピン成分をあらわす。(c,d)  $S_1$  および  $S_2$  それぞれの  $K$  点における電荷密度分布。実線は単位格子，点線は電荷密度分布の鏡映面をあらわす。

このメカニズムを解明するために第一原理電子状態計算を行った[6]。計算においても， $K$  点においてゼーマン型とラシュバ型両方のスピン分裂バンドが現れており，実験結果とよく一致する[図 4(a,b)]。そこで， $K$  点における電荷密度分布の対称性を調べてみた。まず， $S_1$  の  $K$  点における電荷密度分布を図 4(c)に示す。電荷密度分布の鏡映面が単位格子ベクトルに対して垂直になっていることがわかる。したがって， $S_1$  の電荷密度分布は平面群  $p3m1$  に属し， $K$  点の対称性は  $C_3$  である。これは基板も含めた Sn/SiC(0001)の結晶の対称性と同じである。したがって，電荷密度分布も  $S_1$  のゼーマン型のスピン分裂と矛盾しない。次に  $S_2$  の電荷密度分布を図 4(d)に示

す。 $S_2$ の電荷密度分布では、その鏡映面と単位格子ベクトルが平行になっている。よって $S_2$ の電荷密度分布は平面群 $p6m$ に属し、その場合は $K$ 点の対称性は $C_{3v}$ である。この電荷密度分布の対称性は $\text{Sn/SiC}(0001)$ の基板も含めた対称性とは異なり、この対称性からはラシュバ型のスピン分裂バンドが誘起されてよい。

同じ $K$ 点であるにも関わらず電荷密度分布の対称性が異なる原因は、それぞれの電子状態が感じる結晶ポテンシャルの違いに起因する。 $S_1$ の電荷密度分布[図4(c)]には、 $\text{SiC}$ 基板の二層目の $C$ 原子の真上の位置に空孔が存在している。これは $S_1$ 電子が $\text{SiC}$ 基板の結晶ポテンシャルの影響を強く受けていることを意味している。この場合、結晶の対称性と電荷密度分布の対称性が同じになる。一方、 $S_2$ は $\text{Sn}$ 原子と $\text{SiC}$ 基板最上層の $\text{Si}$ 原子との間の結合状態であり、 $\text{SiC}$ 基板の二層目の $C$ 原子より下の結晶ポテンシャルの影響を受けていない。最上層の $\text{Sn-Si}$ 結合の原子配列のみに注目すると、その結晶格子の平面群は $p6m$ になっており、結晶構造と電荷密度分布の対称性は一致している。すなわち、表面電子状態が基板の結晶ポテンシャルの影響を受けるかどうかは、電荷密度分布の対称性だけでなくそのスピン分裂バンド構造にも影響を与えることがわかった。

#### 4 まとめ

本研究では、 $\text{SiC}$ 基板上の $\text{Sn}$ 単原子膜が大きくスピン偏極した電子状態をもつことをみいだした。さらに、 $K$ 点において原子膜面垂直方向のスピンをもちゼーマン型にスピン分裂した電子バンドと面内方向のスピンをもちラシュバ型にスピン分裂した電子バンドが共存していることがわかった。従来の結晶の対称性のみを取り入れた考え方ではこの結果は説明できないが、電荷密度分布の対称性を考慮に入れるとこの結果をよく説明できる。ここで注意しなければならないのは、本結果は従来の結晶対称性からの考察が間違っているという指摘ではないことである。結晶対称性からは、 $K$ 点において原子膜面垂直方向のスピンを持ちゼーマン型のスピン分裂が予想されること自体は正しい。一方、実験では $K$ 点において測定精度以下の小さなエネルギーギャップをもつゼーマン型のスピン分裂の存在を否定できない。ここでは、実験結果を解釈する上で、結晶対称性だけでなく系がもつ電子状態を定量的に考察することの重要性を強調しておきたい。

ここまでは考慮してこなかったことではあるが、この $\text{Sn}$ 単原子膜の表面はグラフェンで覆われている。グラフェンはとても安定な物質であるため、それに保護された $\text{Sn}$ 単原子層も大気中で安定である。このようにグラフェンを保護膜として用いることで、これまで真空中でしか取り扱えなかった固体表面におけるスピン偏極電子状態を大気中で利用することが可能となるだろう。

#### 謝辞

本研究は、東京大学物性研究所の辛埴、飯盛拓嗣、黒田健太、及び九州大学工学院の林真吾、梶原隆司の各氏との共同研究として行われた。フォトンファクトリーBL13BにおいてARPES実験(PF-PAC No. 2017G575)を共同で行った、中辻寛、宮町俊生、間瀬一彦の各氏に感謝する。また、JSPSの科学研究費15K17675, 26287061, 18K01146, 18K03484の研究助成に感謝する。

#### 参考文献

- [1] K. Yaji *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 041404(R) (2018).
- [2] T. Oguchi *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 092001 (2009).
- [3] K. Sakamoto *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 096805 (2009).
- [4] K. Sakamoto *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 156801 (2009).
- [5] K. Nakajin *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 245428 (2015).
- [6] K. Yaji *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 126403 (2019).
- [7] S. Hayashi *et al.*, Appl. Phys. Exp. **11**, 015202 (2018).
- [8] K. Yaji *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **87**, 053111 (2016).

\* komori@issp.u-tokyo.ac.jp