

極性層状半導体 BiTeI のサブ表面領域における 2次元電子構造 2-dimensional electronic structure at sub-surface region in polar semiconductor BiTeI

坂野昌人^{1,*}, Mohammad Saeed Bahramy², 片山明彦¹, 村川寛³, 金子良夫²,
小野寛太⁴, 組頭広志⁴, 下志万貴博¹, 有田亮太郎^{1,2}, 永長直人^{1,2}, 十倉好紀^{1,2}, 石坂香子^{1,2}

¹ 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻, 〒113-8656b 文京区本郷 7-3-1

² 理化学研究所 創発物性科学研究センター, 〒351-0198 和光市広沢 2-1

³ 大阪大学大学院理学研究科物理学専攻, 〒560-0043 豊中市待兼山町 1-1

⁴ 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

M. Sakano^{1,*}, M. S. Bahramy², A. Katayama¹, H. Murakawa³, Y. Kaneko²,

T. Shimojima¹, R. Arita^{1,2}, N. Nagaosa^{1,2}, Y. Tokura^{1,2}, and K. Ishizaka^{1,2}

¹ Dept. of Applied Phys., Univ. of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, 113-8656, Japan

² RIKEN CEMS, 2-1 Hirosawa, Wako, 351-0198, Japan

² Dept. of Phys. Osaka Univ., 1-1 Machikaneyamacho, Toyonaka, 560-0043, Japan

⁴ Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK),
1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

1 はじめに

近年、スピントロニクスや新規電気磁気効果の研究の進展にともない、固体中の電子に働くスピン軌道相互作用が注目されている。時間反転対称性と空間反転対称性が守られた系において電子のスピンは 2 重縮退を示す。しかし、空間反転対称性が破れた系では、スピン軌道相互作用を介してスピンの縮退が解けるため、ゼロ磁場下において電子の運動量と結合したスピン分極が生じる。そのような自発的なスピン分極を示す系の代表例として、1960 年代の極性を有するウルツ鉱構造における電子構造の研究に端を発するラシュバ効果があげられる[1, 2]。

本研究で対象とした BiTeI(空間群 $P3m1$)は、Bi, Te および I 原子がそれぞれ三角格子を成し、順番に積層した極性層状構造を有する半導体である[3, 4]。図 1.(a), (b)に、結晶構造とブリルアンゾーンをそれぞれ示した。空間反転対称性の破れた結晶構造と、Bi というスピン軌道相互作用の大きな原子の存在から、BiTeI はバルク結晶において巨大なラシュバ型スピン分裂バンド構造が期待される。

これまで BiTeI において、ヘリウム放電管($h\nu = 21.2$ eV)を用いた角度分解光電子分光・スピン分解角度分解光電子分光によって、巨大なラシュバ型スピン分裂を示す伝導帯が観測された[5]。分裂の大きさを表すラシュバパラメータは $\alpha_R = 3.8$ eVÅ と見積もられ、過去最大規模のスピン分裂が実現していることがわかった。一方、観測された伝導帯の底のエネルギーは、第一原理バンド計算の結果とホール測定から得られるキャリア数から見積もられるエネルギーに比べて~200 meV 深かった。このことから、観測された伝導帯は、サブ表面領域のバンドベンディングによって形成された 2 次元電荷蓄積層における 2 次元バンド構造であると考えられた。実際に、

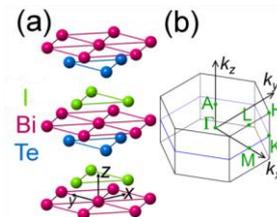


図 1 : 極性層状半導体 BiTeI の結晶構造(a)とブリルアンゾーン(b)

レーザー($h\nu = 6.994$ eV)を用いた高分解能角度分解光電子分光によって、サブ表面に形成された伝導帯が 2 次元量子化構造を有していることがわかっている[5]。本研究では、BiTeI のバルクとサブ表面における 3 次元/2 次元電子構造を分離観測し、定量的な解析を行うため、真空紫外放射光を用いた波長依存角度分解光電子分光を行った。

2 実験

本研究で用いた BiTeI 単結晶はブリッジマン法により作成した。ホール係数から見積もられるキャリア数は $n_H = 4 \times 10^{19}$ cm⁻³であり n 型の縮退半導体である。第一原理バンド計算とキャリア数から、バルクのフェルミ準位は伝導帯の底部から 0.142 eV 直上に位置すると見積もられる。

真空紫外光($h\nu = 60 \sim 82$ eV)を用いた波長依存角度分解光電子分光は、高エネルギー加速器研究機構フオトンファクトリー-BL-28A において行った。光電子分析器には、静電半球型アナライザー-VG-Scienta 社 SES2002 を用いた。エネルギー分解能は 20 ~ 30 meV に設定し、測定は 15 K にて行った。試料は真空槽内で室温において劈開した。

3 結果および考察

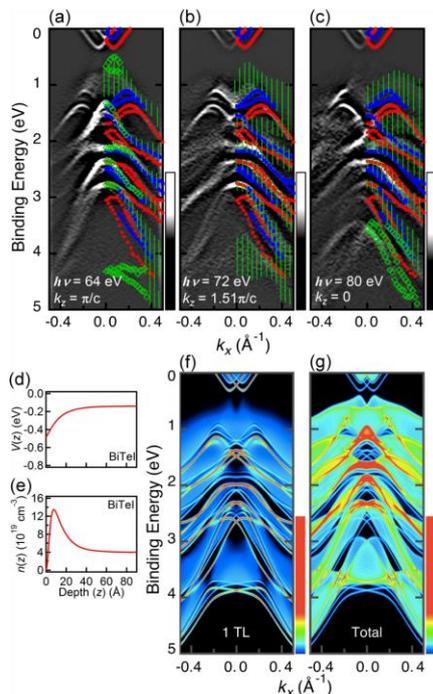


図 2 : (a)-(c) BiTeI における、 $k_z = \pi/c, 1.51\pi/c$, および 0 に対応した、角度分解光電子分光像を 2 階微分したものである。波長依存を示すバルクのバンド構造(波長依存を示さない量子化サブバンド構造 $n = 1, 2$)のピーク位置を、緑(赤、青)を用いて示した。(d)、(e)ポアソン・シュレディンガー方程式から得られた、BiTeI のサブ表面におけるポテンシャルとキャリア密度の深さ依存性。(f)、(g)ポアソン・シュレディンガー方程式によって得られた、最表面 Te-Bi-I 1 トリプルレイヤー (1TL) と 20 TL 合計までにおける電子構造。

図 2 (a) - (c) は、 $h\nu = 64, 72$, および 80 eV で得られた BiTeI の k_y 方向の角度分解光電子分光像を 2 階微分したものである。それぞれ $k_z = \pi/c, 1.51\pi/c$, および 0 に対応している。波長依存すなわち k_z 分散を示す光電子強度(緑で示す)は、3 次元的なバルクの電子構造に由来すると考えられる。これらのバンド分散の形状は、バルク敏感な軟 X 線角度分解光電子分光の観測結果と良い一致を示す[6]。一方、それに加え、図中には結合エネルギー $0 \sim 4$ eV にかけて、波長依存を示さない 2 次元的なバンド構造(赤、青)が見られる。この 2 次元構造の形状は、バルクのバンド計算では再現できないものである。

観測された 2 次元電子構造のうち、フェルミ準位を横切る伝導帯は 2 つに分裂した明瞭な量子化サブバンド (それぞれ赤、青で示す) を形成している。さらに、結合エネルギー $0 \sim 4$ eV の広いエネルギー領域にかけて形成される価電子帯の 2 次元電子構造を解析するため、ポアソン・シュレディンガー方程式を用いた解析を行った[5]。この解析手法は様々な半導体表面で用いられており、表面近傍でのバンドベンディングを仮定することにより、バルクの第一

原理バンド計算を基に、サブ表面の 2 次元バンド構造を計算することができる。実験によって得られた伝導帯の 2 次元サブバンド構造を最も良く再現するバンドベンディングポテンシャルおよび対応する電子密度プロファイルを図 2 (d)、(e) に示す。最表面から ~ 2 nm にかけて、バルクと比べて約 3 倍の密度で電子が蓄積されていることがわかる。この電子蓄積層に閉じ込められた、最表面 Te-Bi-I 1 トリプルレイヤー (1TL) における電子構造の計算結果を図 2 (f)、バルクのバンド構造の射影成分が顕著になる 20 TL までの計算結果を図 2 (g) に示す。これらを見ると、伝導帯のみならず価電子帯においても明瞭な 2 次元量子化サブバンド構造 ($n=1, 2$) が形成されていることがわかる。図 2 (a)-(c) における赤、青のピークプロットはそれぞれサブバンド構造 $n = 1, 2$ に対応し、いずれもポアソン・シュレディンガー方程式を用いた計算結果[図 2 (f)、(g)]により非常によく再現することができる。以上の結果から、BiTeI の表面近傍において、伝導帯、価電子帯を含む幅広いエネルギー領域において閉じ込め効果による 2 次元電子構造が実現することが明らかになった。

4 まとめ

極性層状半導体 BiTeI において真空紫外放射光を用いた波長依存角度分解光電子分光を行い、バルクの 3 次元バンド構造と、サブ表面の 2 次元バンド構造をそれぞれ分離観測した。サブ表面における 2 次元バンド構造は、バンドベンディングによる閉じ込めを考慮したポアソン・シュレディンガー方程式を用いた計算によって良く再現された。最表面から厚さ ~ 2 nm に存在する電荷蓄積層の中に、結合エネルギー $0 \sim 4$ eV にかけて量子化サブバンド構造 ($n = 1, 2$) が形成されていることが明らかとなった。

謝辞

KEK-PF で実験を進めるにあたり、小野寛太氏に多大なる技術支援を受けました。ここに感謝致します。

参考文献

- [1] E. I. Rashba, *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1109-1122 (1960).
- [2] Y. S. Bychkov and E. I. Rashba, *JETP Lett.* **39**, 78-81 (1984).
- [3] A. V. Shevelkov *et al.*, *J. Solid State Chem.* **114**, 379-384 (1995).
- [4] A. Tomokiyo *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **16**, 291-298 (1977).
- [5] K. Ishizaka *et al.*, *Nature Mater.* **10**, 521 (2012).
- [6] M. Sakano *et al.*, *Phys. Rev. B* **86**, 085204 (2012).

成果

- 1 M. Sakano *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 107204 (2013).

* skn.mst.88.66@gmail.com