# 異なるタイプのスピン分裂バンドの共存

極限コヒーレント光科学センター 矢治 光一郎、小森 文夫 九州大学工学院 ビシコフスキー アントン、田中 悟

## 【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 でもこ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 C3 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<sub>3v</sub>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。しかしながら最近我々は、三回対称な結晶構造 をもつスズ(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]。

#### 【実験内容と結果】

試料は、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)の結晶周期に対して30度傾いている。 以下、この試料を簡単のためSn/SiC(0001)と呼ぶ。

本研究では、Sn/SiC(0001)の電子状態を角度分解光電 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



図 1. グラフェン/Sn/SiC(0001)の結晶モデル側面図(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。



図 2. (a) Sn/SiC(0001)のΓK<sub>sic</sub> 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<sub>sic</sub> 点における S<sub>1</sub>の z 成分スピン分解 光電子スペクトル。(c) S<sub>2</sub>の SARPES 図[6]。

れた三次元的にスピンベクトルを解析できる高分解能 SARPES 装置を用いて行われた[8]。

Sn/SiC(0001)の Ksic 方向[図 1(c)]の ARPES 測定を行う と、Ksic 点近傍において二つの Sn 由来のバンド(S1, S2)が 観測された[図 2(a)]。S1 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 S1 と S1'を形成している。また SARPES より S1, S1'それぞれは Ksic 点において面直方向 のスピンをもっていることがわかった[図 2(b)]。したがっ て、S1 は Ksic 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、S2 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、Ksic 点においてスピン縮退し、Ksic 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 S2 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対 ー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<sub>Sic</sub> 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<sub>Sic</sub> 点は鏡映面を含まないため、その対称性は C<sub>3</sub> 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用いた考え方 だけでは説明できない。

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 3(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、S1の K 点にお ける電荷密度分布を図 3(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、S1の電荷密度分布は平面群 p3m1 に属 し、K 点の対称性は C3 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 S1 のゼーマン型のスピン分裂と矛盾しな い。次に S2 の電荷密度分布を図 3(d)に示す。S2 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 S2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 C3v である。この電荷密度分布 の対称性は 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<sub>1</sub>の電荷密度分布[図 3(c)]には、 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<sub>1</sub>電子が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<sub>2</sub>はSn原子とSiC 基板最上層のSi原子との間の結合状 態であり、SiC 基板の二層目のC原子より下(つまりバル ク)の結晶ポテンシャルの影響を受けていない。最上層の 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で、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も変化する ことがわかった。



図 3. (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[6]。

#### 【まとめと展望】

本研究では、SiC 基板上の 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発見した。さらに、K 点に おいて原子膜面直方向のスピンを持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持ちラシュバ型 にスピン分裂した電子バンドが共存していることを発見し 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まで考慮に 入れるとこの結果をよく理解できる。またここまでは考慮 してこなかったが、この 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頑丈で安定な物質で あるため、この試料は大気中でも安定である。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 扱えなかったスピン偏極電子材料を大気中に取り出して利 用することが可能となる。

### 【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 同研究により行われました。本研究は JSPS 科研 費 15K17675, 26287061, 18K01146, 18K03484の助成 を受けて行われました。

## 【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).