

課題番号 :2021B-E16
 利用課題名 (日本語) :磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ・サンドイッチ構造の XMCD 測定 II
 Program Title (English) :XMCD measurements on magnetic topological heterostructures and sandwich structures II
 利用者名(日本語) :福嶋隆司朗¹⁾, 角田一樹²⁾, 竹田幸治²⁾, 石原和宜¹⁾, 平原 徹¹⁾
 Username (English) :R. Fukushima¹⁾, K. Sumida²⁾, Y. Takeda²⁾, K. Ishihara, T. Hirahara¹⁾
 所属名(日本語) :1) 東京工業大学理学院, 2) 日本原子力研究開発機構
 Affiliation (English) :1) School of Science, Tokyo Institute of Technology, 2) JAEA

キーワード: 磁性トポロジカル絶縁体、X線磁気円二色性、強磁性

1. 概要 (Summary)

これまで我々は世界に先駆けて開拓した磁性トポロジカルヘテロ構造 $MnBi_2Se_4/Bi_2Se_3$ (MBS/BS) と $MnBi_2Te_4/Bi_2Te_3$ の磁化特性と表面ディラックコーンのギャップの有無に関して研究を行ってきた。その結果、前者では強磁性と表面のディラックコーンのギャップが明確に観測されたのに対し[1]、後者は6Kまで常磁性でディラックコーンにはギャップは存在しなかった[2]。両者が示す真逆の性質に関して、これまでのところミクロスコピックな起源は明らかになっていない。このようにトポロジカル絶縁体ベースの二次元ファンデルワールス(2D v-dW)磁性体については未解明な点が多い。さらに最近、共同研究者が上記の通常のヘテロ構造と、ヘテロ構造を2つ有するサンドイッチ構造のホール効果測定の結果には大きな違いが存在することを明らかにした[3]。これは磁性原子層間の相互作用が磁化特性を考える上で重要なことを示しているが、その詳細は明らかになっていない。2020A、2021A 期に我々は SPring-8 BL23SU において、MBS/BS、MBS/MBS/BS、MBS/BS nQL/MBS/BS 試料(1番目は通常のヘテロ構造、2,3番目はサンドイッチ構造)に対して X線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。その結果、磁性原子層間の磁氣的相互作用が 2D v-dW 磁性体の磁化状態を安定化させていることが明らかになった。本研究ではより系統的な研究を行うため Mn の L エッジでの残留磁化の測定および非磁性 Se の L エッジでの XMCD 測定を行った。その結果、n = 1 ~ 7 のサンドイッチ構造では表面状態の分散と関係なくヘテロ構造及び n = 15 よりも大きな Se の XMCD シグナルが測定されたことから、 Bi_2Se_3 のバルク状態を介して2つの Mn 強磁性層が~10nm に渡って磁氣的にカップルしていることが分かった。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

トポロジカル絶縁体はバルクが絶縁体であるが、表面に金属的なスピン偏極したディラックコーンを有し、時間反転対称性が破れない限りディラック点がトポロジカルに保護されており、ギャップを開けることができない。磁性を導入して時間反転対称性を破ると、ディラック点にギャップが開くと同時に輸送特性では無磁場下での量子ホール効果である、量子異常ホール効果(QAHE)が実現する。2013年にQAHEが初めて実験的に実証されてから多くの研究が行われてきたが、その実現温度は最大でも2Kである[4]。そこで、QAHE由来の無散逸に伝導するエッジ状態をデバイスに応用するには、より高温でQAHEを実現することが求められている。

これまでトポロジカル絶縁体に強磁性を付加する方法として薄膜作製時に磁性不純物を導入する、という方法が行われていた。これに対し我々は最近、MnとSeをトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 に蒸着すると、 Bi_2Se_3 の表面最上位層に Mn と Se が潜り込むことで $MnBi_2Se_4/Bi_2Se_3$ (MBS/BS) という、秩序だった磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ接合を形成できることを明らかに

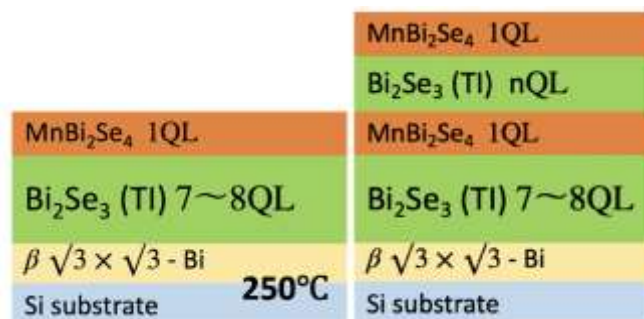


図 1(a)磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造 MBS/BS および(b)磁性トポロジカル絶縁体サンドイッチ構造 MBS/BS (n QL)/MBS/BS の模式図。本研究では n = 0~7 及び 15 の試料を測定した。

した。このヘテロ構造では室温まで約 100 meV という大きなディラックコーンギャップが観測された。さらに SQUID による磁化測定では面直の磁化曲線にヒステリシスが観測され、確かにディラックコーンギャップが磁性由来のものであることが明らかになった [1]。本研究ではこれをベースに、MBS/BS n QL/MBS/BS サンドイッチ構造の試料(図 1 (b))も作製した($n = 0\sim 7, 15$)。これらの試料は実験室で表面保護のための Se キャップを蒸着し、BL23SU の超高真空装置に導入後、200-250°C の加熱でギャップを飛ばし、清浄表面を回復してから測定を行った。液体ヘリウムにより最低 6 K まで試料を冷却した。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

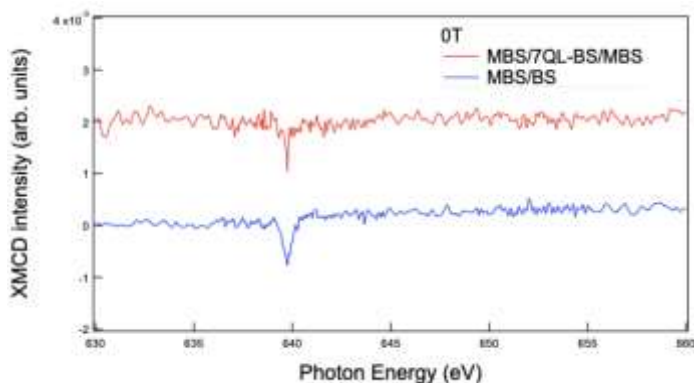


図 2 6K における、MBS/ BS ヘテロ構造及び MBS/ 7QL BS/MBS/BS サンドイッチ構造の Mn L 吸収端における XMCD スペクトル。L₃ ピークのみバックグラウンドと比較して有意なピークが観測され、強磁性体であることが示された。

これまで同様、6 K で各試料に 5 T の面直磁場を印加して Mn の L 吸収端の XMCD スペクトルを測定した。明確な XMCD シグナルが L₃、L₂ 吸収端ともに観測されていることが分かった。次に磁場を 0 T にして、MBS/ BS ヘテロ構造及び MBS/ 7QL BS/MBS/BS サンドイッチ構造の残留磁化の測定を行った。その結果図 2 に示すように L₃ エッジのみにバックグラウンドと比較して有意なピークが観測され、6 K では間違いなく強磁性体であることが示された。残留磁化が小さいのは、今回作製した Mn 磁性層は単原子層であり、ゼロ磁場にすると単一磁区(シングルドメイン)を維持することが難しく、磁化の向きがバラバラな磁区(マルチドメイン)を形成する方がエネルギー的に安定なためであると考えられる。さらに、5K 刻みの L₃ エッジのシグナルの詳細な磁場/温度依存性の測定により

各試料のキュリー温度は次の表のように決定された。

	MBS/BS	MBS/MBS/BS	MBS/BS/MBS/BS n=1~7	MBS/BS/MBS/BS n=15
T _C [K]	15~20	30~35	20~25	15~20

まず、サンドイッチ構造は全体としてヘテロ構造に比べてキュリー温度が高いことが分かった。これは Mn 強磁性層が 2 層あると磁化が強くなり、ヘテロ構造よりキュリー温度が高くなるということである。特に MBS/MBS/BS($n = 0$) のサンドイッチ構造はキュリー温度が間に Bi₂Se₃ を挟んだサンドイッチ構造より高いことが分かった。これについては、Mn 磁性層同士が層をまたいで直接磁気相互作用(交換相互作用)しているためと推定される。さらに、サンドイッチ構造では $n = 1\sim 7$ の範囲でキュリー温度が一定であり、 n に依存しないことが分かった。光電子分光測定では表面状態のバンド分散は明確に層数依存性が見られたことから、表面状態と磁化特性は相関がないことが明らかとなった。最後に、2 つの MBS 間の BS の膜厚を $n = 15$ と厚くするとヘテロ構造のキュリー温度と一致した。よって、間の BS 膜厚を厚くすることで、上下の Mn 層が相互作用しなくなるので表面の Mn 磁性層のみが磁化特性に寄与し、ヘテロ構造の場合に近づくと考えられる。

前述の通り、Mn の強磁性によってこれまで BS の表面ディラックコーン(DC)にギャップが生じることが明らかになっているが、今回これを別な方法で検証するために非磁性 Se 原子の XMCD スペクトル測定を行った。DC ギャップは Mn との相互作用により本来であれば非磁性のためにシグナルが期待されない Se でも磁気モーメントを有していることを示唆しているが、これまで世界で誰も直接これを元素選択的に検証したことはなか

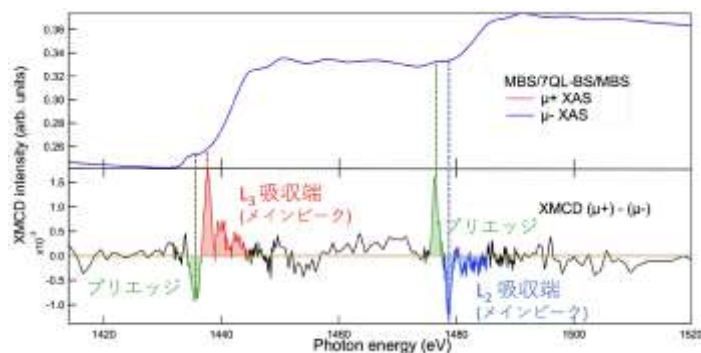


図 3 6K, 10T における、MBS/ 7QL BS/MBS/BS サンドイッチ構造の Se の L 吸収端における XAS と XMCD スペクトル。バックグラウンドと比較して有意なピークが観測され、Se にも磁化が誘起されていることが示された。

った。図3は6K、10TにおけるSeのL吸収端のXASとXMCDスペクトルを示したものであるが、バックグラウンドと比較して有意なXMCDシグナルが観測されている。XASとXMCDスペクトルを注意深く比較すると大きな立ち上がりを示すL₃とL₂吸収端より低エネルギーにもピークが観測されている(プリエッジ)。L₃、L₂吸収端のメインピークの符号がMnの場合と比較して逆向きであることからSeとMnが反平行にカップルしていることが分かる。SeのL吸収端は2p→4d遷移であり、メインピークはこれに対応していると考えられる。一方、プリエッジはおそらく2p→4sの遷移を表している。これはBi₂Se₃のフェルミ準位近傍の電子状態のメインはSeの4pからなる状態であるが、僅かながら4s軌道由来の電子が存在しており、近いエネルギーに存在するMn 3d電子と相互作用をすることでスピン偏極するものと想像できる。ただ、プリエッジがメインピークに対して反対向きになっている理由は明らかではなく、詳細な議論を行うには、今回測定した試料の電子状態および光学遷移を第一原理計算によって明らかにする必要がある。

図4に試料別(n=2, 7, 15のサンドイッチ構造とヘテロ構造)のSeのXMCDスペクトルを示す。n=2とn=7のXMCDスペクトル、及びn=15とヘテロ構造のXMCDスペクトルの大きさはそれぞれ同程度であることが分かる。一方、n=2, 7とn=15/ヘテロ構造では有意な差がある。これは、キュリー温度がn=1~7の範囲では20~25 Kで一定であり、n=15/ヘテロ構造のキュリー温度15~20 Kより高いことと対応すると思われる。Bi₂Se₃の1QLの厚さは約0.9nmであるので、Mn磁性層間の磁氣的相互作用の長さは7 QL

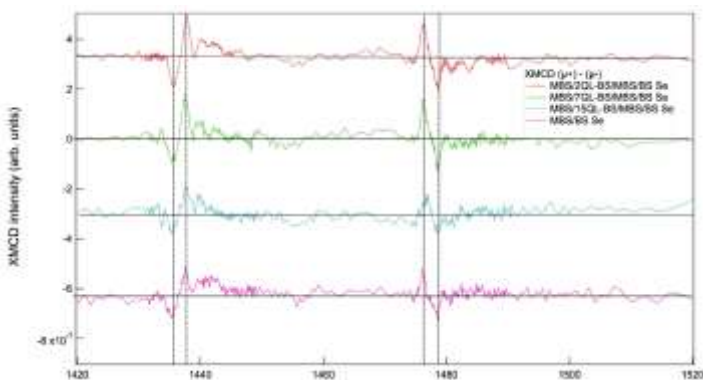


図4 6K, 10TにおけるSeのL吸収端のXMCDスペクトルの試料依存性(n=2, 7, 15のサンドイッチ構造とヘテロ構造)。

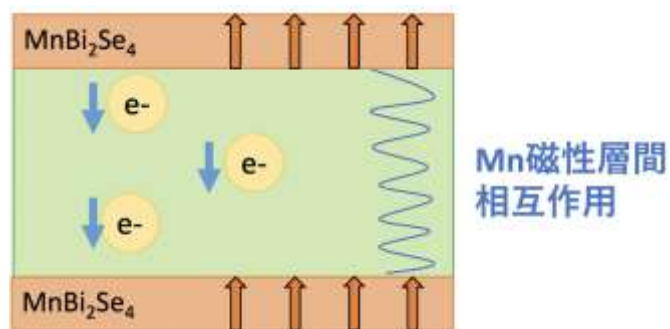


図5 二つのMn磁性層間でBi₂Se₃のバルクの伝導電子を媒介した磁気相互作用が働いていることを表した模式図。

(6.3nm)以上だが、15QL(13.5nm)までは到達しないことが明らかになった。

以上の結果をもとに、二つのMn磁性層間の磁気相互作用を模式的に示したのが図5である。Mn原子層は、Bi₂Se₃の表面状態にディラックコーンのギャップという形で影響を与えるとともに、バルク状態にも磁化を誘起する。そして2つのMn層間はBi₂Se₃のバルクの伝導電子を介してお互いにカップルしていると考えられる。このような相互作用はRKKY的な間接交換相互作用と言

え($H_{RKKY} = 9\pi \frac{J^2}{\epsilon_F} \left(\frac{N_e}{N}\right)^2 \frac{2k_{Fx} \cos 2k_{Fx} - \sin 2k_{Fx}}{2(k_{Fx})^4} S_1 \cdot S_2$)、この式

によるとBi₂Se₃のバルクのフェルミ波数が0.05~0.1Å⁻¹なのでMn層間の距離が1.5~3.5nm程度で相互作用の符号が強磁性から反強磁性へと振動するはずである。しかしこれはキュリー温度やSeのXMCDの結果から6nmまでは符号が変わらないという実験結果と反する。この矛盾はRKKY相互作用が1つの原子の局在スピン間の相互作用を記述しており、今回のような二次元磁性層とは状況が異なっているからと推定される。今後、新しい理論が構築されることを願う。

4. その他・特記事項 (Others)

参考文献

- [1] T. Hirahara *et al.*, Nano Letters **17**, 3493 (2017).
- [2] T. Fukasawa *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 205405 (2021).
- [3] T. Takashiro *et al.*, Nano Letters (2022).

<https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c02952>

- [4] M. Mogi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **107**, 182401 (2015).

謝辞: 本研究は科研費 基盤研究(A)「強磁性二次元ファンデルワールス原子層物質の新奇な磁化特性の解明と制御」の助成を受けて行われました。