

課題番号 :2018B-E21
利用課題名 (日本語) :磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造の XMCD 測定
Program Title (English) :XMCD measurements on magnetic topological heterostructures
利用者名(日本語) :平原 徹¹⁾, 日下翔太郎¹⁾, 横山喜一¹⁾, 小林正起²⁾, 竹田幸治³⁾
Username (English) :T. Hirahara¹⁾, S. Kusaka¹⁾, K. Yokoyama¹⁾, M. Kobayashi²⁾, Y. Takeda³⁾
所属名(日本語) :1) 東京工業大学理学院, 2) 東京大学工学系研究科
Affiliation (English) :1) School of Science, Tokyo Institute of Technology, 2) School of Engineering,
University of Tokyo, 3) JAEA

キーワード: トポロジカル絶縁体、時間反転対称性の破れ、強磁性

1. 概要 (Summary)

本研究では 15 K~200K までディラックコーンギャップが観測された Mn,Te/Bi₂Te₃ 試料に対して、そのギャップと系の磁化特性との関係を明らかにするために SPring-8 BL23SU において X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。その結果、この物質では磁性に関係している Mn が 2 種類存在し、一つはキュリー温度 $T_C \sim 25$ K の強磁性的、もう一つは常磁性的であることが分かった。また強磁性成分では負のヒステリシスが観測され、通常の強磁性体ではないことが示唆された。これは反強磁性の性質がある Mn の存在、または Mn スピン間に反強磁性的な交換相互作用があることを示している。そしてこのミクロな相互作用により時間反転対称性が破れており、長距離秩序が生じるキュリー温度よりはるかに高い温度までディラックコーンにギャップが開いていると推定される。

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。2014 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 2 K である [1]。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 Bi₂Se₃ に蒸着すると、Bi₂Se₃ の表面最上位層に Mn と Se が潜り込むことで MnBi₂Se₄/Bi₂Se₃ 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 [2]。しかし Bi₂Se₃ ではフェルミ準位を制御する方法が確立されておらず、実際に輸送測定で QAHE を観測するのが難しいと予想される。そこでフェルミ準位の制御方法が確立されている Bi₂Te₃ に対して同様に Mn と Te の蒸着を行い(この試料を以後 Mn,Te/Bi₂Te₃ と呼ぶ)、Bi₂Se₃ と同じ現象が起きるかを検証した。角度分解光電子分光法でディラックコーンギャップの観測を行ったところ、15 K で 70 meV 程度開いていたギャップが 200 K で閉じることが明らかになった [3]。本研究ではこの Mn,Te/Bi₂Te₃ の磁化特性を明らかにしてディラックコーンギャップとの関係を明らかにすることを目的に XMCD 測定を行った。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

XMCD 実験は SPring-8 BL23SU で行った。液体ヘリウムにより最低 6 K まで試料を冷却して測定を行った。Mn,Te/Bi₂Te₃ 試料は実験室で作成後表面保護のためにキャップしたものを BL23SU の超高真空装置に導入後、200-250 度で加熱してキャップを飛ばすことで清浄表面

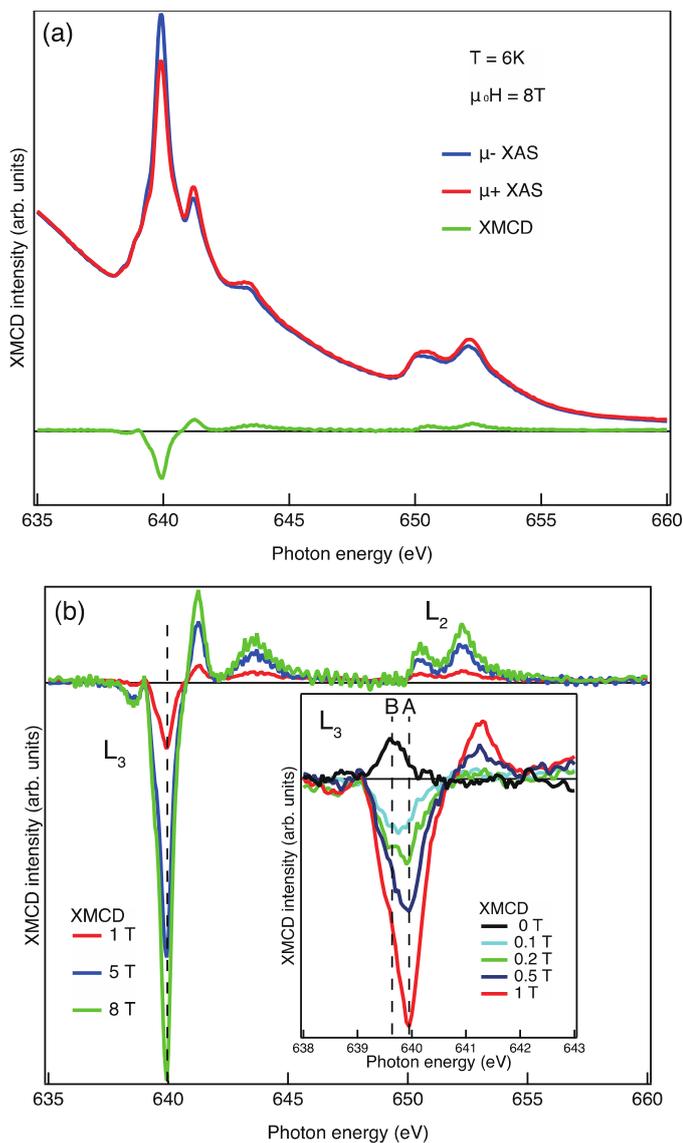


図 1 (a) 6 K において 8 T の面直磁場を印加して得られた Mn,Te/Bi₂Te₃ の XMCD スペクトル。(b) 6 K における XMCD スペクトルの磁場依存性。挿入図が L₃ における 1 T 以下のデータを示している。ピーク A および B の二つの成分があることが分かる。また残留磁化が印加磁場と反対方向になっている。

を回復して行った。

図 1(a) に 6 K で試料面直に 8 T の磁場を印加した際に測定された XMCD スペクトルを示す。L₃、L₂ 吸収端ともに明確なシグナルが出ていることが分かる。図 1(b) に示すように XMCD スペクトルの形状は磁場を 5 T、1 T と下げても変化しなかった。しかし挿入図にあるように磁場を 0.5 T 以下にすると L₃ 吸収端で変化が見られた。1 T では 639.9 eV にピークがあったが(図中の A)、磁場を下げても 0.2 T にすると 639.5

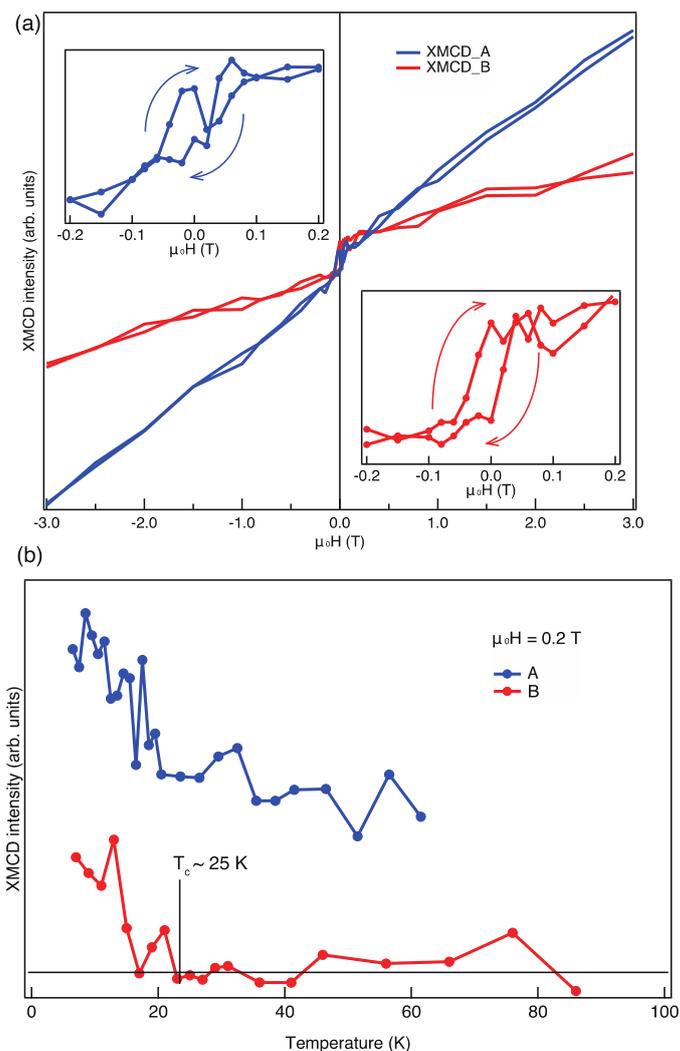


図 2 (a) 6 K における Mn,Te/Bi₂Te₃ のピーク A および B の XMCD 強度を用いた磁化曲線。挿入図がゼロ磁場近傍の様子を表しており、A が常磁性的、B が強磁性的であることが分かる。(b) ピーク A および B の 0.2 T における XMCD 強度の温度依存性。強磁性成分 B のキュリー温度が 25 K 程度であると分かる。

eV(図中の B)でもピークが見られるようになり、それ以下の磁場ではピーク A よりも B が目立つようになった。これは磁性に寄与している Mn 原子が 2 種類存在することを示唆している。さらに残留磁化における XMCD スペクトルは磁場印加時と逆向きであるという特異な振る舞いが観測された。そこでより詳細な知見を得るために、A と B のエネルギーにおける 6 K での XMCD シグナルの磁場依存性(図 2(a))および 0.2 T での温度依存性(図 2(b))を測定した。

図 2(a) に示すように、±3 T の範囲での磁化曲線を測定すると、ピーク A では概ね磁場に対して磁化が比例する常磁性的な傾向が見られ、ピーク B に関してはゼロ磁

場付近でヒステリシスが観測され、強磁性的な振る舞いをするのが分かった。ただ上述の通り、残留磁化における XMCD スペクトルの符号が印加磁場を反対方向であったことを反映して、磁化曲線も負のヒステリシス(プロテリシス)であった(矢印が時計回りに回っているが、本当の強磁性体では反時計回りである) [4]。ピーク A の方もゼロ磁場近傍で何か時計回りのシグナルの兆候が見られており、本来の意味の常磁性とは言えないかもしれない。図 2(b)より、強磁性成分ピーク B のキュリー温度は $T_C \sim 25$ K 程度であると推定できた。一方ピーク A の方は 25 K 以上でも緩やかに強度が下がり続けており、やはり常磁性成分と考えるのが妥当と思われる。

以上の結果をまとめると、Mn,Te/Bi₂Te₃ の系において磁性に関係している Mn が 2 種類存在し、一つは $T_C \sim 25$ K の強磁性的、もう一つは常磁性的であることが分かった。また強磁性成分では負のヒステリシスが観測され、通常の強磁性体ではないことが推定された。そして XMCD 総和則による定量的解析から、8 T、6 K における平均スピン磁気モーメントは $0.6 \mu_B/\text{Mn}$ 、平均軌道磁気モーメントは $0.04 \mu_B/\text{Mn}$ と導出された。これは強磁性や常磁性の Mn だけから想定される値よりも小さく、反強磁性の Mn が存在していることを暗に示している。事実プロテリシスや負の残留磁化は微粒子などにおいて、強磁性成分とそれ以外の成分の反強磁性的な交換相互作用の結果生じると報告されている [4]。今後、反強磁性成分や反強磁性的相互作用が存在するかを実験的に検証する必要がある。

最後に Mn,Te/Bi₂Te₃ の系におけるディラックコーンギャップと磁化特性の関係について議論する。上述の通り、ギャップは 200 K まで存在したが、強磁性は 25 K までしか観測されずこの二つの温度は明らかに

異なっている。もしかすると反強磁性成分が存在しておりそのネール温度が 200 K であるかもしれない。あるいはスピンの長距離秩序がなくても、ミクロな短距離の局在スピン間の相互作用による時間反転対称性の破れにより、ディラックコーンにギャップが開き得ることを示唆していると思われる。例えば強磁性成分の短距離秩序が 200 K まで存在している、あるいは試料内の Mn 同士が反強磁性的に相互作用をしており、そのエネルギースケールが 200 K 程度である可能性がある。今後この Mn,Te/Bi₂Te₃ の構造を明らかにし、理論計算と組み合わせるなどしてギャップの起源に迫っていきたいと考えている。

参考文献

- [1] M. Mogi *et al.*, Applied Physics Letters **107**, 182401 (2015).
- [2] T. Hirahara *et al.*, Nano Letters **17**, 3493 (2017)
- [3] T. Hirahara *et al.*, to be published.
- [4] R. K. Zheng *et al.*, Jour. Applied Physics **96**, 5370 (2004).

4. その他・特記事項 (Others)

謝辞:本研究は村田学術財団の助成を受けて行われました。