

課題番号 : 2019B-E15
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 II
Program Title (English) : XMCD measurements on magnetic topological heterostructures II
利用者名 (日本語) : 平原 徹¹⁾, 角田一樹¹⁾, 橋爪瑞葵¹⁾, 竹田幸治²⁾
Username (English) : T. Hirahara¹⁾, K. Sumida¹⁾, M. Hashizume¹⁾, Y. Takeda²⁾
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 : 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)

以前、我々は 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 20 K の強磁性体、もう一つは 6 K まで常磁性的であることが分かった。そして構造解析により、この試料では MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ と Mn₄Bi₂Te₇/Bi₂Te₃ の 2 つのヘテロ構造が共存していることが分かった。そこで本研究ではこの 2 つのどちらが強磁性体であるかを同定することを目的にした。そのために Mn と Te の蒸着量を変え、MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃、Mn₄Bi₂Te₇/Bi₂Te₃ それぞれが単相で存在する試料を作製した。XMCD 測定により磁化特性を検証した結果、前者が常磁性体、後者が強磁性体であることが明らかになった。

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。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]。以前 2018B 期では、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。その結果この試料では強磁性と 6 K まで常磁性の Mn が 2 成分存在することが明らかになった。そして構造解析をすると、試料内部に MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ と Mn₄Bi₂Te₇/Bi₂Te₃ の 2 つのヘテロ構造が共存していることが分かった。前者は Bi₂Te₃ の内部に MnTe が 1 層入り込んでおり、後者は 4 層入り込んでいる。しかしこの 2 つのどちらが強磁性体であるか判断できなかった。そこで本研究では Mn と Te の蒸着量を変え、MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃、Mn₄Bi₂Te₇/Bi₂Te₃ それぞれが単相で存在する試料を作製し、XMCD 測定により磁化特性の評価を行った。

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。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を回復して行った。

まず、MnTe が Bi₂Te₃ 内に 1 層潜った MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ の測定結果を示す。図 1(a) は 5.6 K で試料面直に 10 T の磁場を印加した際に測定された XMCD スペクトルである。明確な XMCD 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 8 T、5 T、1 T と下げても変化しなかった。さらに磁場を 0.2 T まで下げても、639.9 eV では明確なピークが確認された。しかし 0 T

留磁化が無いことが分かった。このことはこの MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ ヘテロ構造が常磁性であることを示している。この事実に対してより確固たる証拠を得るため、639.9 eV での XMCD 強度の磁場依存性 M-H カーブを測定したのが図 1(c) であり、±3 T の範囲で直線である。さらに 2 T の磁場を印加して 639.9 eV での XMCD 強度の温度依存性 M-T カーブを測定したのが図 1(d) である。実験データ(青い丸)はキュリー則(赤い直線)でよくフィッティングされた。よって M-H、M-T いずれの測定においても MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ が常磁性であることが示された。

次に、MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ の測定結果を示す。図 2(a) は 5.6 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 スペクトルである。こちらも明確な XMCD シグナルが出ていることが分かる。図 2(b) に示すように

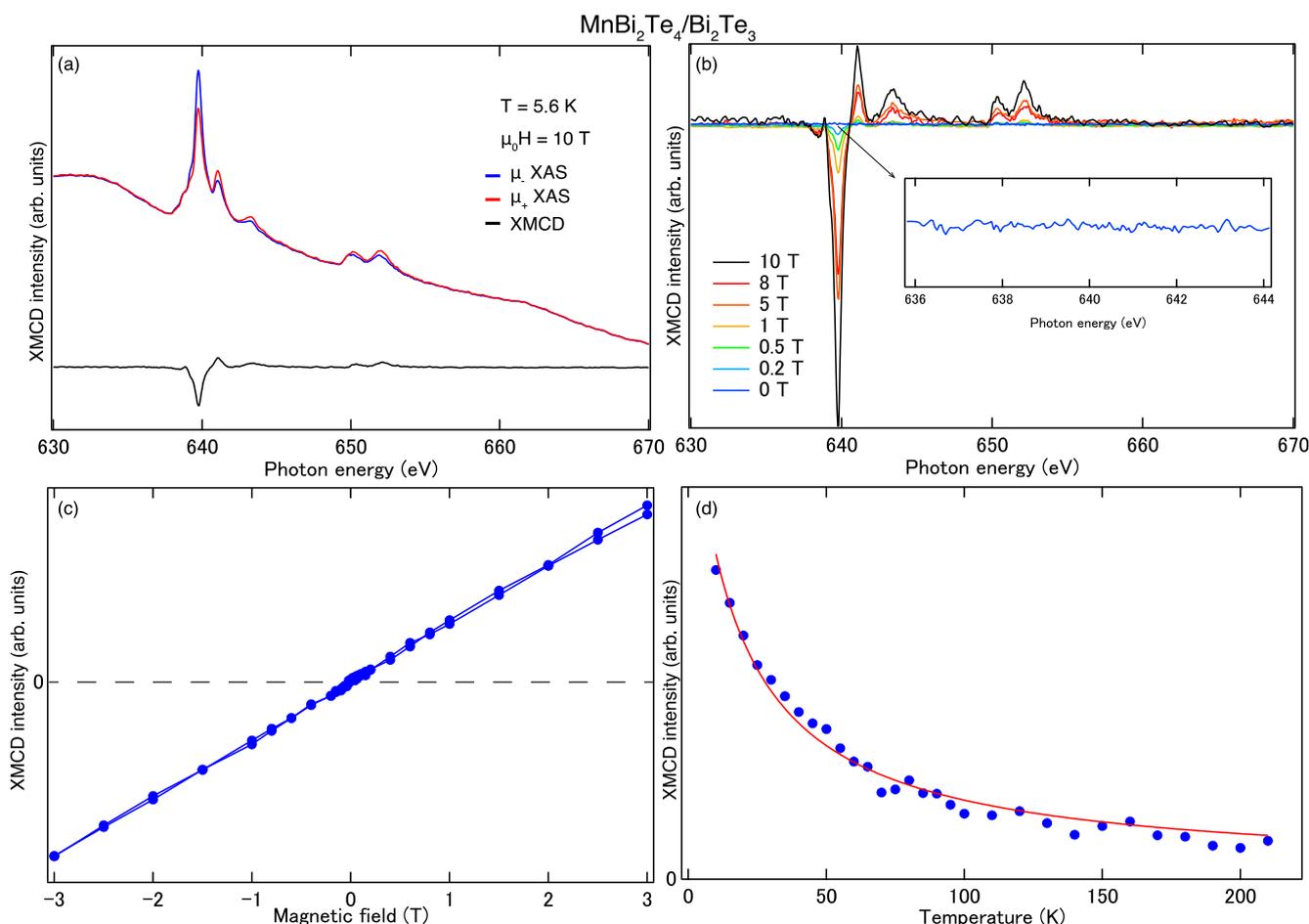


図 1 (a) 5.6 K において 10 T の面直磁場を印加して得られた MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ の XMCD スペクトル。(b) 5.6 K における XMCD スペクトルの磁場依存性。挿入図が 0 T での 640 eV 近傍の拡大図を示している。(c) 5.6 K での XMCD 強度の磁場依存性によって得られた M-H カーブ。(d) 2 T での XMCD 強度の温度依存性によって得られた M-T カーブ。

にして残留磁化を測定したところ、挿入図に示すようにバックグラウンドと区別できるシグナルはなく、残

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。そして 0 T にして残留磁化を測定した

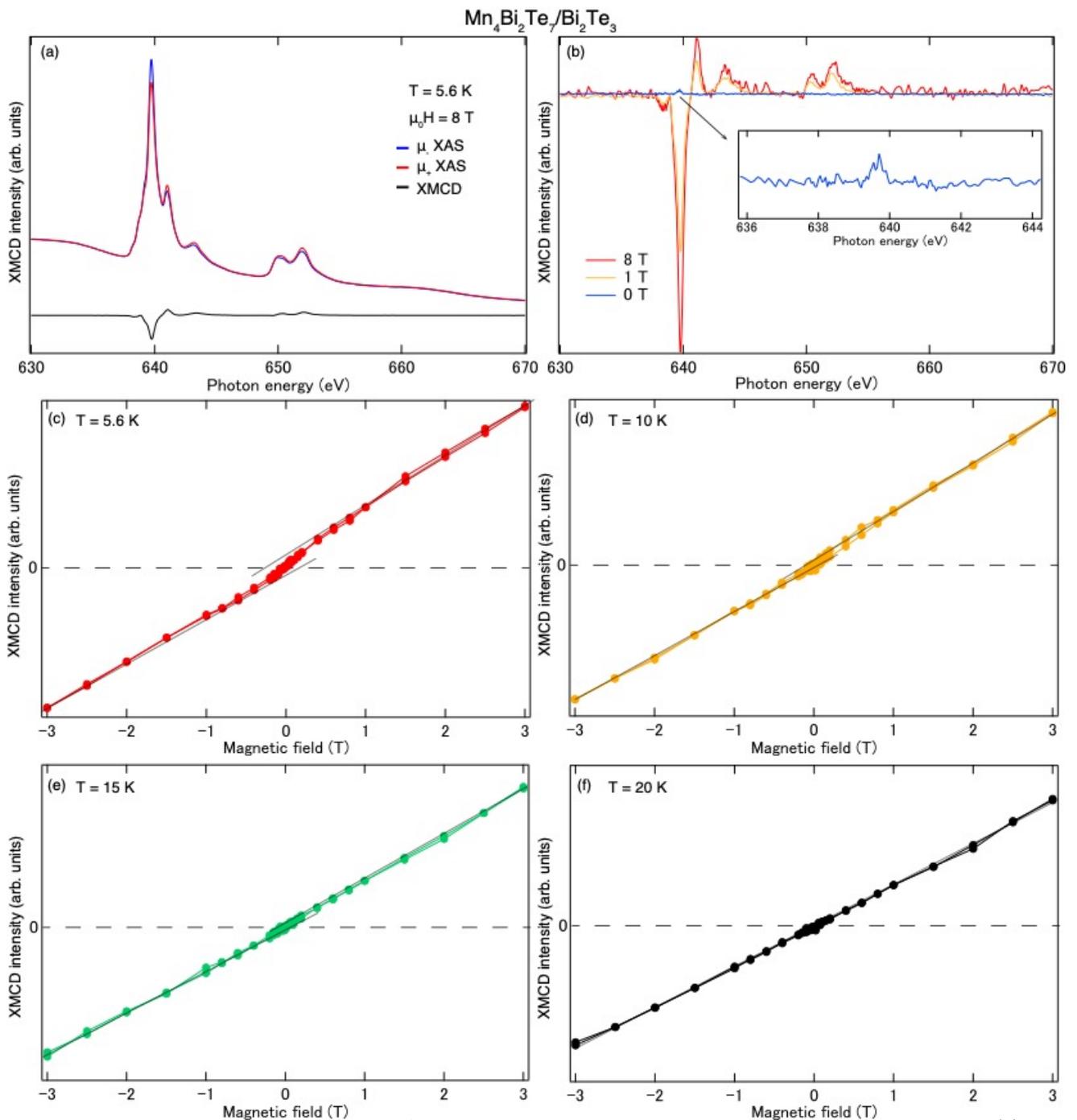


図 2(a) 5.6 K において 8 T の面直磁場を印加して得られた $\text{Mn}_4\text{Bi}_2\text{Te}_7/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の XMCD スペクトル。(b) 5.6 K における XMCD スペクトルの磁場依存性。挿入図が 0 T での 640 eV 近傍の拡大図を示している。(c-f) 5.6 K(c), 10 K(d), 15 K(e), 20 K(f)での XMCD 強度の磁場依存性によって得られた M-H カーブ。

ところ、挿入図のように弱いながらもバックグラウンドと比べて有意なシグナルが観測され、残留磁化が検出された。この試料が強磁性であることを示しているが、磁場中では負のシグナルであったのに対し、残留磁化は正の向きであった。この理由は不明で、現在考察中である。引き続き、XMCD スペクトルのピーク 639.9 eV での XMCD 強度の磁場依存性 M-H カーブを測定したのが図 2(c)であり、 $\pm 3 \text{ T}$ の範囲で概ね直線であるが、0 T 近傍で傾きが少し急になっているこ

とが分かる。明確なヒステリシスループは観測されていないが、常磁性体のような完全な直線の M-H カーブにはなっていないので、やはり強磁性である。図 2(d)-(f)に試料の温度を上げて測定した M-H カーブを示している。10 K(d)、15 K(e)ではやはり 0 T 近傍で傾きが急になっており、依然として強磁性の性質を保っていると思われる。一方 20 K(f)では原点付近も含めて完全に直線になっており、常磁性体になったと言える。よって $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ はキュリー温度が 15-20 K の強磁性体

であることが明らかになった。

この2つの試料の測定により、以前我々が測定した $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ と $\text{Mn}_4\text{Bi}_2\text{Te}_7/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の2つのヘテロ構造が共存している試料で観測された常磁性成分は前者、強磁性成分は後者に対応することが明らかになった。今後、 $\text{Mn}_4\text{Bi}_2\text{Te}_7/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ で測定された負の残留磁化の起源について明らかにする必要がある。

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.*, submitted.
- [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」の助成を受けて行われました。