

令和 4 年 6 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05242

研究課題名(和文)磁性トポロジカル絶縁体の磁性の発現機構に関する研究

研究課題名(英文)Origin of ferromagnetism in magnetic topological insulators

研究代表者

松倉 文礼 (Matsukura, Fumihiro)

東北大学・国際集積エレクトロニクス研究開発センター・教授

研究者番号：50261574

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：磁性トポロジカル材料の強磁性発現機構に対する知見を得るために、Crをドーブした単結晶Sb₂Te₃薄膜を作製し、その物性を様々な実験的手法(構造解析、磁化測定、輸送測定、バンド構造観測等)により調べた。実験結果は、複数の磁気的機構(キャリア媒介機構、超交換相互作用、トポロジカル材料に特有なバンド反転に伴う機構)が磁気的秩序の発現に寄与することを示し、これによりCrをドーブしたSb₂Te₃において高いキュリー温度が実現していることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トポロジカル磁性体は異常量子ホール効果等の新規物理現象の観測の舞台を提供してきた。また、その特異な磁気的性質と電気的性質の相関は、新動作原理を伴うスピントロニクス素子に利用できる。一方で、その磁気的秩序の発現機構を系統的な実験手法で調べた例は殆どなかった。本研究により、トポロジカル材料の強磁性発現機構が明らかにされた。ここでの手法の様々なトポロジカル材料への適用は、実応用に適した材料の開発に繋がるものと期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to get some insights for the origin of the ferromagnetism of magnetic topological materials, we fabricated Cr doped Sb₂Te₃ epitaxial films, and investigated their properties by various experimental means (structural analysis, magnetization and transport measurements, and the direct observation of the band structures). The results indicate that high Curie temperature of the materials results from the combination of several mechanisms, such as carrier-induced mechanism, super-exchange mechanism, and Van Vleck mechanism.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：磁性トポロジカル材料 キャリア誘起強磁性 RKKY相互作用 Van Vleck機構 超交換相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) (Bi,Sb)₂Te₃等のテトラジマイト構造を持つトポロジカル材料の多くは、3d 遷移金属(V, Cr, Mn 等)をパーセント程度ドーピングすることで、強磁性を発現することが既成事実として知られていた。

(2) 強磁性トポロジカル材料は、量子異常ホール効果等の新規物理現象の観測の場を提供してきた。また、トポロジカル磁気電気効果等を利用したスピントロニクス素子への応用の可能性も期待されていた。

(3) 強磁性発現機構に対するいくつかの理論的考察はあったものの、それに対応する系統的な実験的研究は殆どなく、理解が不十分であった。

2. 研究の目的

(1) 磁性トポロジカル材料の強磁性発現機構の知見を実験結果と理論的考察の比較を通して得る。

(2) Cr をドーピングした Sb₂Te₃ に対して、トポロジカル磁性体として最高のキュリー温度($T_C \sim 250$ K) が報告されている。何故、高 T_C を有するのかを明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 分子線エピタキシ法により、高品質な単結晶の Cr をドーピングしたトポロジカル磁性体を作製する。

(2) X 線回折により、結晶構造・格子定数等を評価する。

(3) 組成分析により、Cr 組成及び Cr イオンの結晶中での置換位置を明らかにする。

(4) 磁化測定により、Cr イオンの価数とキュリー温度を決める。

(5) 磁気輸送測定により、キャリア濃度の決定及び電気的性質とそれと与える磁氣的性質の影響を明らかにする。

(6) 角度分解光電子分光(ARPES)により、電子構造を評価する(他部局の研究者に測定を依頼)。

(7) X 線吸収スペクトル(XAS)と X 線磁気二色性(XMCD)スペクトルより、表面状態の電子構造と磁気秩序の相関を明らかにする(他部局の研究者に測定を依頼)。

(8) 上記の方法で取得した実験結果を整理し、理論モデルとの比較から、トポロジカル磁性体の強磁性の発現機構を議論する。

4. 研究成果

(1) 超高真空中(ベース圧力 $< 8 \times 10^{-8}$ Pa)で、厚さ ~ 60 nm の Cr をドーピングした Sb₂Te₃ を分子線エピタキシ法により、GaAs (111)基板上に 280°C で成長した。結晶成長中の表面状態は反射高エネルギー電子線回折(RHEED)により観測した。ストリークな RHEED パターンは、試料は単結晶であることを示し、RHEED からは第二相の析出は観測されない。

(2) X 線回折の結果は、試料はテトラジマイト構造を持つ単結晶であり、その c 軸は試料の面垂直方向に沿うことを示す。 c 面の面間隔は Cr 組成の増加につれて減少する。

(3) エネルギー分散型 X 線分光法により、Cr, Sb, Te の組成分析を行った。([Cr]+[Sb]):[Te] $\approx 2:3$ の組成比で、Cr は Sb 位置を置換していることを示す。従って、試料は Cr 組成を x として、(Cr _{x} Sb _{$1-x$})₂Te₃ の化学式で表記できる。

(4) 振動型磁化測定器による磁化測定を行った。強磁性状態での磁化容易軸は試料面直方向である。キュリー温度は x の増加につれて増加する。磁化の大きさから Cr は 3 価[Cr³⁺ (3d³)]を持つものと推察される。

(5) 磁気輸送測定から、試料は金属的伝導を持つ。伝導型は p 型であり、正孔濃度は x の増加に伴い増加する。従って、電気抵抗は x の増加に伴い減少する。電気抵抗の温度依存性は、 T_C 近傍

でハンプを示し、スピン依存散乱が電気抵抗に寄与している。磁気的特性を反映する異常ホール効果の振る舞いは、磁化測定の結果と一致し、磁気的第二相の析出は無いことを示す。

(6) 紫外領域の光子エネルギーでの ARPES の結果から、フェルミ準位はバルク状態の価電子帯中に位置する。これは、磁気輸送測定での p 型伝導と一致する。また、表面状態の存在を示す線形なディラック・バンドが観測され、バンド反転を持つトポロジカル材料であることが確認された。

(7) XAS と XMCD の測定は $x = 0.35$ ($T_C \sim 185$ K、正孔濃度 $p \sim 4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) の試料に対して行った。Cr L 端 ($2p \rightarrow 3d$ 遷移) での観測された XAS は Cr^{3+} を仮定したクラスター・モデル計算で再現される。モデル計算によると、多数スピンの d_{xy} 軌道状態及び少数スピン状態はフェルミ準位にかからない。また、磁気秩序の形成に伴う Te M 端 ($3d \rightarrow 5p$ 遷移) のシフトから、Cr $3d$ 電子と Te $5p$ 電子間のカイネティックな交換相互作用 (p - d 交換相互作用) の存在が示される。

(8) 以上の結果を整理して、強磁性発現機構との関連を議論する。試料が 10^{20} cm^{-3} 半ばの正孔濃度を持ち、フェルミ準位が Te $5p$ 軌道により形成される価電子帯中に位置すること、 p - d 交換相互作用があることは、Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用が磁気秩序の発現に寄与していることを示している。一方で、磁性半導体に対して定量的に T_C を記述する RKKY 機構に基づく理論モデルを用いた計算からの T_C は実験値より数倍低く、その他の機構も同時に働いていることを示唆する。表面ディラック・バンドの存在は、伝導帯 (Sb $5s$ 軌道) と価電子帯 (Te $5p$ 軌道) がバンド端近傍で反転することを示している。そのため、伝導帯底付近の電子状態と Cr $3d$ 電子の混成が可能となり、カイネティックな強磁性的交換相互作用が生じる。この機構は Bloembergen-Rowland (B-R) 機構もしくは Van Vleck 機構と呼ばれる。更に、Cr イオン ($3d^3$) はテトラジマイト構造中で八面体配位を取るため、Goodenough-Kanamori 則から Cr-Cr 間の超交換相互作用は強磁性的であり、磁気秩序の形成に大きく寄与するものと考えられる。本系に対する実験結果からは、Cr $3d$ バンドはフェルミ準位に存在しないので、Cr $3d$ 電子のホッピング伝導に起因する二重交換相互作用の寄与は無視できる (他材料系での寄与を否定するものではない)。本研究により、高 T_C を持つトポロジカル磁性体の強磁性の発現は複数の機構に起因することが明らかになった。どの機構がどの程度の割合で効いているかの定量的評価は、現時点では難しい。定量的に実験結果を記述する理論モデルの構築が待たれる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Gupta, F. Matsukura, and H. Ohno	4. 巻 52
2. 論文標題 Properties of sputtered full Heusler alloy Cr ₂ MnSb and its application in a magnetic tunnel junction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. D: Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 495002 (1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6463/ab3fc6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------