

Sb₂Te₃ トポロジカル絶縁体多層膜の作製と光学特性

金田和晃^A、齋藤伸吾^B、溝口幸司^A

^A大阪府立大学 大学院理学系研究科 物理科学専攻

^B情報通信研究機構

Optical properties of fabricated Sb₂Te₃ topological-insulator multilayer films

K. Kaneda^A, S. Saito^B, and K. Mizoguchi^A

^A Department of Physical Science, Osaka Prefecture University

^B National Institute of Information and Communications Technology

The topological-insulator multilayer films which consist of Sb₂Te₃ topological insulator and GeTe narrow-gap semiconductor, [(Sb₂Te₃)_a/(GeTe)_b]_c, have been successfully fabricated on sapphire substrates by a vacuum deposition method, where a and b indicate the thickness of constituent layer, and c shows the period number of multilayer. The fabricated multilayer films have been characterized using the secondary ion mass spectrometry (SIMS) and x-ray diffraction method. The SIMS signals and x-ray diffraction patterns indicate that the fabricated films represent the multilayer structure consisting of Sb₂Te₃ and GeTe, which are preferentially oriented along the c-axis of Sb₂Te₃ and the (111) axis of GeTe. Moreover, the magneto-optical Kerr effect measurements of the multilayer films have been performed using a reflection-type pump-probe method. The obtained Kerr rotation signals due to Dirac electrons hardly depend on the period number of multilayer. We will discuss the dependence of the Kerr rotation signal on the period number of multilayer.

1. はじめに

トポロジカル絶縁体は、バルク部分がバンドギャップを持つ通常の絶縁体の特性を持つ一方で、その表面には、ギャップレスな線形分散(ディラックコーン)を持つディラック電子が存在し、スピンと運動量が常に垂直な関係(スピン-運動量ロッキング)を持つ[1]。このような性質から、外部電場を印加せずに、トポロジカル絶縁体を円偏光の光で励起することでスピン偏極している光電流が生じる[2]。また、励起光の偏光を操作することにより、スピン偏極した光電流の方向を制御できる。さらに、電流方向の制御されたスピン偏極した光電流によるテラヘルツ放射が観測されている[2]。これらの結果から、トポロジカル絶縁体はスピントロニクスデバイスやテラヘルツデバイスへの応用が期待されている。しかし、現状では、トポロジカル絶縁体からのテラヘルツ波の強度は弱いため、テラヘルツデバイスへの応用にはテラヘルツ波の高強度化が必要となっている。高強度化の方法の1つとして、トポロジカル絶縁体と通常の絶縁体(または、

通常の半導体)から構成される多層膜の活用が考えられる。この多層膜において、多層膜の周期数を増やすことで、トポロジカル絶縁体層の界面数が増えることになる。この多層膜の界面数の増加によって、

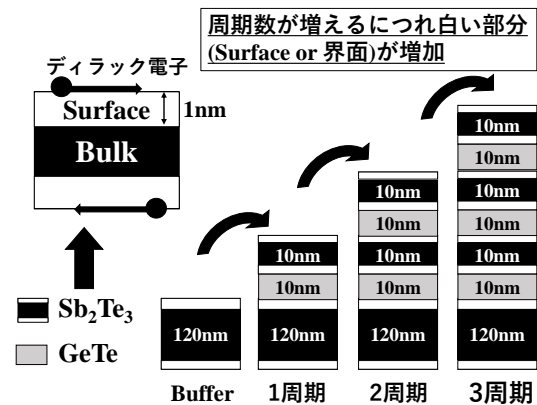


図 1. 作製した[(Sb₂Te₃)_a/(GeTe)_b]_c トポロジカル絶縁体多層膜の模式図。ここで、a および b は、構成層の膜厚を示し、c は多層膜の周期数を示す。本研究では、設計膜厚を Buffer 層で 120nm、n=m=10nm として、多層膜を作製した。

試料全体を流れるキャリア数が増加し、テラヘルツ波が強くなると予想される。そこで、我々は、トポロジカル絶縁体と半導体との格子不整合が小さい Sb_2Te_3 トポロジカル絶縁体と GeTe 半導体から構成されるトポロジカル絶縁体多層膜に着目した[3]。

本研究では、 $[(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_a/(\text{GeTe})_b]_c$ のトポロジカル絶縁体多層膜を作製し、作製した多層膜の結晶性の評価を行った。ここで、 a および b は、構成層の膜厚を示し、 c は多層膜の周期数を示す。また、様々な周期数を有する多層膜の磁気光学 Kerr 効果測定を行い、得られた Kerr 回転信号の周期数依存性について調べた。

2. 多層膜作製

本研究では、(0001)- Al_2O_3 基板上に Sb_2Te_3 トポロジカル絶縁体[4]と GeTe を用いて、トポロジカル絶縁体多層膜を真空蒸着法で作製した(図1)。基板と蒸着膜との間の格子不整合を緩和させるために、 Al_2O_3 基板上に Sb_2Te_3 をバッファ層(膜厚:120 nm)として作製した。また、トポロジカル層の界面にディラック電子を形成するためには、トポロジカル層に約 5 QL (Quintuple Layer: 約 1 nm) 以上の膜厚が必要であるため[5]、本研究では、 Sb_2Te_3 と GeTe の設計膜厚をそれぞれ 10 nm とし、多層膜の周期数は 3 周期まで作製した。

3. 試料評価

作製したトポロジカル絶縁体多層膜試料を、Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS) 測定と X 線回折測定を用いて評価した。3 周期の多層膜について、SIMS 測定の結果を図2に示す。Sb および Ge による SIMS 信号の深さ依存性から、 Sb_2Te_3 と GeTe から構成された 3 周期の多層膜が形成されていることがわかる。約 40 nm 以降の深さでは、Sb による SIMS 信号が観測されているが、これはバッファ層による信号である。また、周期的ブロック関数とガウス関数の畳み込み積分でフィッティングした結果、1 周期の平均膜厚は約 11 nm であり、 Sb_2Te_3 層と GeTe 層の平均膜厚はそれぞれ約 6.6 nm と約 4.4 nm であることがわかった。

次に、種々の周期数を持つ多層膜の X 線回折測定の結果を図3に示す。すべての試料において、 Sb_2Te_3 のミラー指数(0 0 3n)に対応するピーク、および、 GeTe のミラー指数(1 1 1)n に対応するピークを

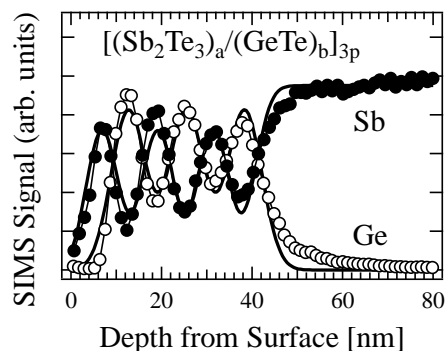


図2. $[(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_a/(\text{GeTe})_b]_{3p}$ 多層膜(3 周期)の SIMS 測定結果。黒丸および白丸は、それぞれ、多層膜中の Sb および Ge による SIMS 信号の深さ依存性を示す。ただし、 n および m は、構成層の膜厚を示し、 p は多層膜の周期数を示す。実線は、周期的ブロック関数とガウス関数の畳み込み積分でフィッティングした結果である。

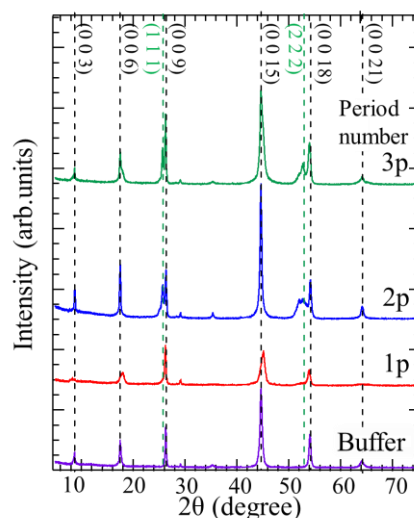


図3. $[(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_a/(\text{GeTe})_b]_c$ 多層膜の X 線回折測定の結果。縦破線は、 Sb_2Te_3 の(0 0 3n)面指数および、 GeTe の(1 1 1)n の面指数を示す。

確認できる。このことから作製したすべての多層膜において、 Sb_2Te_3 は c 軸配向した結晶構造を取っていることがわかる。また、周期数が増加しても各ピークの半値幅はほとんど変化していないことから、結晶性に大きな変化はないと考えられる。

4. 磁気光学 Kerr 効果測定

磁気光学 Kerr 効果とは、磁化した物質に直線偏光の光を照射すると、反射光が楕円偏光となり、その楕円偏光の主軸が回転する現象である。このとき、観測される楕円偏光の楕円率 η_K と Kerr 回転角 θ_K は磁化 M の大きさに比例する。また、物質中の磁化 M

はスピン偏極した電子のキャリア密度 N_S に比例しており、Kerr 回転角 θ_K は

$$\theta_K \propto M \propto N_S \quad (1)$$

と表される。すなわち、Kerr 回転角 θ_K を測定することで、スピン偏極した電子のキャリア密度を得ることができる。本研究では、磁気光学 Kerr 効果測定を用いて、トポジカル絶縁体多層膜におけるディラック電子のキャリア密度の周期数依存性を調べた。

磁気光学 Kerr 効果測定には、反射型の Pump-Probe 法を用いた(図4)。Pump パルス(波長:800 nm、パルス幅:80 fs、繰り返し周波数:80 MHz) の偏光を、 $\lambda/4$ 板(QWP)を用いて、直線偏光、右回り円偏光、左回り円偏光などに変え、入射角 45° で試料に照射した。また、時間遅延を与えた s 偏光の Probe パルスを入射角 36° で試料に入射した。試料から反射してきた Probe パルスを、 $\lambda/2$ 板(HWP)と偏光ビームスプリッター(PBS)を通過させた後、2つの検出器を用いたバランス検出によって差分信号 ξ_K を測定した。ここで、得られた差分信号 ξ_K は

$$\xi_K = \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} \propto \sin 2\theta_K \approx 2\theta_K \quad (2)$$

と表され、Kerr 回転角 θ_K に比例する。また、実験はすべて常温、大気中で行った。

5. 磁気光学 Kerr 効果測定の結果と考察

$\lambda/4$ 板を用いて Pump パルスの偏光を変えることで得られた $[(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_a/(\text{GeTe})_b]_{1p}$ 多層膜(1周期)の磁気光学 Kerr 効果測定の結果を示す(図5)。ここで、 $\lambda/4$ 板を回転させることで、Pump パルスの偏光を p 偏光から、左回り円(L)偏光、p 偏光、右回り円(R)偏光へと変えて測定を行った。図から $\lambda/4$ 板の回転角 θ を変えることで、Kerr 回転信号が大きく変化していることがわかる。Kerr 回転信号の $\lambda/4$ 板の回転角依存性、および、 Bi_2Te_3 薄膜における磁気光学 Kerr 効果測定の研究結果[2, 6]から、約 0.08 ps に見える信号がバルク結晶中の電子励起(バルク成分の電子励起)による Kerr 回転信号であり、その直後の約 0.16 ps に見える信号がディラック電子による Kerr 回転信号と考えられる。また、L 偏光励起および R 偏光励起においては、バルク成分の電子による

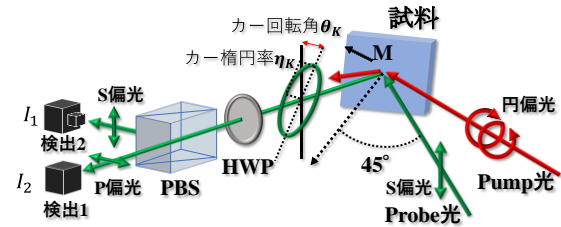


図4. 磁気光学 Kerr 効果測定法の模式図

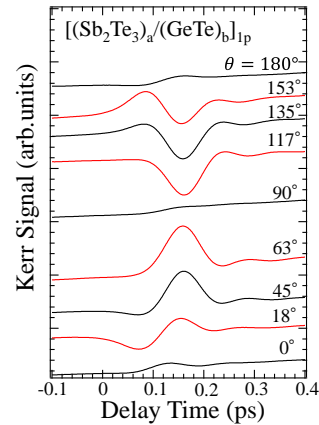


図5. $[(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_a/(\text{GeTe})_b]_{1p}$ 多層膜(1周期)における、様々な偏光で励起した磁気光学 Kerr 効果測定結果。 θ は $\lambda/4$ 板の回転角を示し、 0° 、 90° 、 180° のとき、Pump パルスの偏光は p 偏光、 45° のとき左回り円偏光(L 偏光)、 135° のとき右回り円偏光(R 偏光)を示す。

Kerr 回転信号はディラック電子による Kerr 回転信号と比べて弱いことがわかる。

図6に種々の周期数を有する多層膜における磁気光学 Kerr 効果測定の結果を示す。0.1 ps 付近に見えるピークがディラック電子の緩和に対応する信号である。また、L 偏光励起の場合と R 偏光励起の場合では、Kerr 回転信号が反転していることがわかる。Kerr 回転信号の $\lambda/4$ 板の回転角依存性の結果でも示したように、すべての試料において、バルク成分の電子による Kerr 回転信号はディラック電子による Kerr 回転信号と比べて弱いことがわかる。ここでは、ディラック電子による Kerr 回転信号の周期数依存性を明らかにするため、得られた Kerr 回転信号 ξ_K が、下式のように、バルク成分の電子励起による Kerr 回転信号とディラック電子による Kerr 回転信号の重ね合わせで表されるとし、解析を行った。

$$\xi_K(t) = N_B \exp\left(-\frac{t^2}{\sigma^2}\right) + N_S \exp\left(-\frac{t}{\tau_S} + \frac{\sigma^2}{4\tau_S^2}\right) \times \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{t}{\sigma} - \frac{\sigma}{2\tau_S}\right)\right] \quad (3)$$

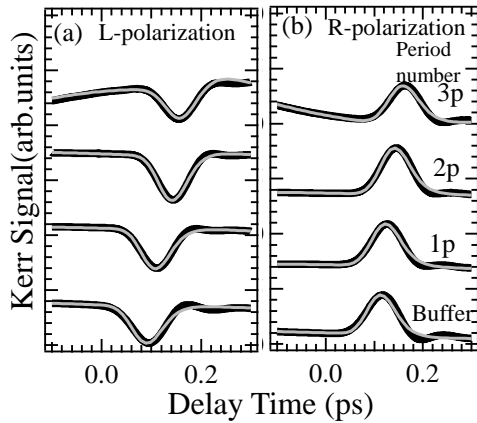


図6. 種々の周期数を有する[(Sb₂Te₃)_a/(GeTe)_b]_c 多層膜の磁気光学 Kerr 効果測定の結果。(a)ポンプ光の偏光を左回り円偏光(L 偏光)、(b)右回り円偏光(R 偏光)で励起した場合の測定結果を示す。また、黒線は実験値、灰色実線はフィッティング結果を示す。

ここで、 N_B は、バルク結晶中に励起されたキャリア密度に依存する Kerr 回転信号、 N_S は界面に励起されたディラック電子密度に依存する Kerr 回転信号、 σ はパルス幅、 τ_S はディラック電子の緩和時間、 erf は誤差関数を表す。図中の灰線がフィッティング結果を示す。得られたフィッティング結果は、測定結果を再現していることがわかる。フィッティングによって、ディラック電子の緩和時間は約 12 fs と得られた。このディラック電子の緩和時間は先行研究の報告[2]とほぼ一致していた。

次に、フィッティングによって得られた N_B と N_S の周期数依存性を図7に示す。一般に、周期数が増加するにつれて、界面成分であるディラック電子密度 N_S とバルク成分のキャリア密度 N_B はそれぞれ増加するものと予想される。しかし、今回の測定結果では、周期数が増加しても、 N_B と N_S ともにほぼ一定の値を取っていることがわかる。

得られた N_B と N_S の周期数依存性を議論するために、Sb₂Te₃ 薄膜と GeTe 薄膜の吸収率を測定し、侵入長を見積もった。その結果、波長 800 nm、入射角 45°における侵入長は、Sb₂Te₃ では $\alpha^{-1} = 14.2 \text{ nm}$ 、GeTe では $\alpha^{-1} = 3.1 \text{ nm}$ であった。本研究で作製した試料において、1 番上の層である Sb₂Te₃ 層と GeTe 層から構成される 1 周期の平均膜厚と比べると、侵入長は非常に短いことがわかる。そのため、今回の磁気光学 Kerr 効果測定では、1 周期目の Sb₂Te₃ 層のみが励起していると考えられる。このことから、界面成分であるディラック電子密度 N_S とバルク成分の

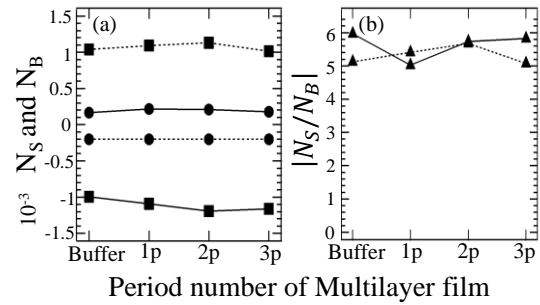


図7. [(Sb₂Te₃)_a/(GeTe)_b]_c 多層膜の磁気光学 Kerr 効果測定から得られた Kerr 回転信号の周期数依存性。(a)●は N_B (バルクの電子による Kerr 回転信号)を示し、■は N_S (ディラック電子による Kerr 回転信号)を示す。(b)▲は $|N_S/N_B|$ を示す。また、点線は R 偏光、実線は L 偏光のフィッティング結果である。

キャリア密度 N_B は周期数に依存せず、一定の値を示したと考えられる。今後は、半導体層の構成要素である GeTe を他の半導体に変えたトポロジカル絶縁体多層膜を検討する予定である。

6. まとめ

[(Sb₂Te₃)_a/(GeTe)_b]_c トポロジカル絶縁体多層膜の作製に成功した。作製した多層膜の結晶性の評価を SIMS 測定と X 線回折測定を用いて行った。SIMS 測定から作製した試料が多層膜構造であることを確認し、各層の平均膜厚を見積もった。X 線回折測定から、Sb₂Te₃ のミラー指数(0 0 3n) に対応するピークを確認し、作製した多層膜において大きな結晶性の変化はないことを確認した。また、種々の周期数を有するトポロジカル絶縁体多層膜の磁気光学 Kerr 効果の測定結果から、ディラック電子密度とバルク成分のキャリア密度は周期数に対して一定であることがわかった。これは、作製した試料に対して GeTe の侵入長が短く、表面側の一層のみを観測しているためと考えられる。

参考文献

- [1] M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
- [2] H. Takeno, S. Saito, and K. Mizoguchi, Sci. Rep. **8**, 15392 (2018).
- [3] O. Madelung, in Semiconductors: Basic Data (Springer-Verlag, Berlin, 1996).
- [4] W.-S. Kim, J. Alloys Compd. **252**, 166 (1997).
- [5] G. Wang, et al. Nano Res. **3**, 874 (2010).
- [6] J. W. McIver et al., Nat. Nanotechnol. **7**, 96 (2012).