

國家科學及技術委員會補助  
大專學生研究計畫研究成果報告

計 畫 名 稱	: 二維拓撲絕緣體錫稀對於氫化鐵薄膜垂直磁性影響之研究
------------	-----------------------------

報 告 類 別 : 成果報告

執行計畫學生: 陳祈勳

學生計畫編號: NSTC 112-2813-C-018-006-M

研 究 期 間 : 112年07月01日至113年02月29日止, 計8個月

指 導 教 授 : 王柏堯

處 理 方 式 : 本計畫可公開查詢

執 行 單 位 : 國立彰化師範大學物理學系暨研究所

中 華 民 國 113年03月29日

## 摘要

Sn 薄膜在低溫下磊晶成長於 Cu(111)基板上，會形成穩定的二維平面蜂巢狀晶格結構(P(2x2))，並呈現出二維拓撲絕緣體(2D Topological Insulator, 2DTI)的性質，對於具有高與低自旋組態的垂直 Fe/Cu(111)薄膜而言[1]，錫烯的效應仍然未知。在本實驗中，我們以 Fe/Cu(111)作為磁性基底，並透過曝氫的方式將鐵穩定在高自旋態，接著成長錫烯來探討二維拓撲絕緣體對於氫化鐵薄膜結構以及磁性的影響。研究結果顯示 Fe/Cu(111)曝氫後能使 FCC 的鐵轉變成 BCC，以此將鐵穩定在高自旋組態並增強鐵的磁性。然而二維拓撲絕緣體錫烯與氫化鐵薄膜不匹配，在成長錫烯後會使鐵被拉回 FCC，讓原先增強的磁性減弱。

關鍵字：二維平面蜂巢狀晶格結構，二維拓撲絕緣體，自旋軌道耦合效應，Sn/Fe/Cu(111)系統，PMA。

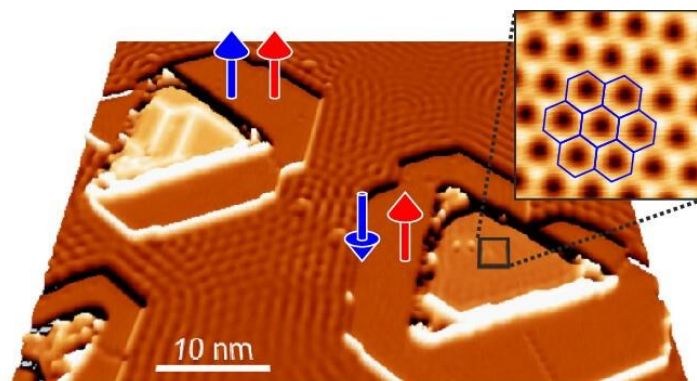
## Abstract

Stanene grown on Cu(111) substrates at low temperatures form a stable two-dimensional honeycomb lattice structure ( $P(2 \times 2)$ ) and exhibit properties of a two-dimensional topology insulator [1]. However, the effects of Stanene on Fe/Cu(111) thin films with high and low spin configurations remain unknown. In this work, we used Fe/Cu(111) as a magnetic substrate and stabilized Fe in a high-spin state by hydrogen adsorption. Subsequently, we grew Stanene to investigate the influence of the two-dimensional topological insulator on the structure and magnetism Fe films with hydrogen adsorption. The results showed that hydrogen exposure on Fe/Cu(111) transformed FCC Fe into BCC, stabilizing Fe in a high-spin configuration and enhancing its magnetism. However, stanene, a two-dimensional topological insulator, does not structurally match the hydrogenated Fe film, and the growth of stanene causes Fe to revert to FCC, thus weakening the enhanced magnetism by hydrogen.

Keywords: two-dimensional planar honeycomb lattice structure, 2D Topological Insulator, spin-orbit coupling effect, Sn/Fe/Cu(111), PMA.

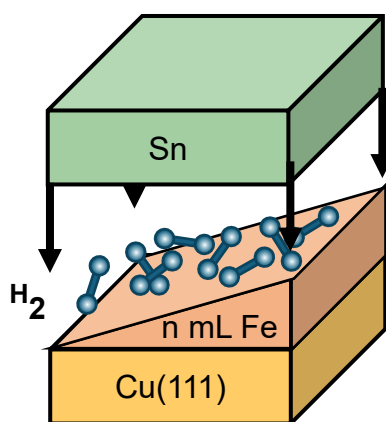
## 一、前言

二維拓樸絕緣體因其特殊的能帶結構以及具有強自旋軌道角動量耦合，可展現出量子自旋霍爾效應，因此被期許可以應用在低耗能元件上。先前我們實驗團隊已於鈷島嶼上量測到具二維拓樸能隙的錫烯(Stanene)可於低溫下穩定成長在Co/Cu(111)上，且可能會透過自旋軌道耦合效應或是二維拓樸絕緣體邊緣態的性質來引發鄰近鈷薄膜產生垂直磁性[2]。



圖一、鈷島嶼上成長具蜂巢狀晶格結構的二維拓樸絕緣體錫烯(Stanene)。

然而對於其他磁性樣品，如具有高與低自旋態組態的垂直 Fe/Cu(111) 薄膜而言，錫烯的拓樸效應仍然未知。因此本實驗研究錫烯對於垂直磁化之 Fe 薄膜之影響。其中將先研究透過曝氫穩定 Fe/ Cu(111) 的高自旋組態與垂直磁性。並在錫烯成長於氫化之 Fe/Cu(111)後，研究探討二維拓樸絕緣體與氫化鐵磁層之間之磁交互作用與介面晶格結構、介面磁結構的關聯性，藉此了解其磁性改變現象背後的物理機制。



圖二、實驗系統示意圖。

## 二、研究方法與步驟

本研究建立在超高真空 (Ultra High Vacuum, UHV) 約  $10^{-10}$  torr 環境之中，並維持在 140K 的低溫下進行量測。實驗當中使用分子束磊晶法 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) 之鍍膜方法成長樣品，由於本系統對於薄膜厚度變化相當敏感，因此利用 MEED 監測樣品的厚度及鍍膜速率，確認樣品的層數並進行校正。此外，本研究使用 MOKE 量測磁滯曲線確認樣品磁性，並透過 LEED 量測其晶格結構，藉以探討本研究之目的。

### 1. 實驗儀器介紹

#### (1) 低能量電子繞射 (Low Energy Electron Diffraction, LEED)

主要用來觀測樣品表面的水平晶格結構的儀器，其原理為透過一電子動能介於 20~200eV 的低能量電子束垂直入射於樣品表面，根據德布羅伊物質波理論，入射至樣品表面之電子經由背向散射射回螢光屏時，便會形成清晰的繞射點。當電子繞射滿足「布拉格繞射條件」時，此時會產生建設性干涉，便會在螢光屏上形成倒晶格繞射點影像(圖四)。

若將樣品旋轉一小角度，使得入射角  $\theta$  不等於零，根據「布拉格繞射定律」：

$$2d \cdot \cos \theta = n\lambda$$

並透過德布羅伊物質波理論，可知  $\lambda = \frac{h}{p}$ ，帶入上式可得：

$$2d \cdot \cos \theta = n\lambda = n \frac{h}{p} = n \frac{h}{\sqrt{2m(E_k - v)}}$$

將上式整理後，即可得到入射電子能量和繞射級數的關係式：

$$E_k = \frac{n^2 h^2}{8m \cdot d^2 \cos^2 \theta} + V$$

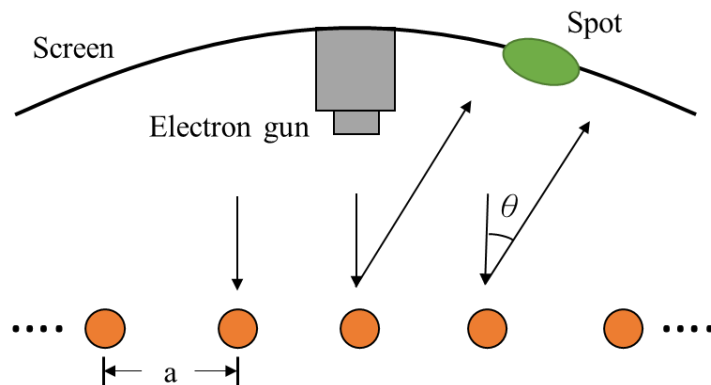
因此透過旋轉樣品以及經由 LEED 便可得到螢光屏上直接反射點的亮度，並藉由調控電子束能量，使電子入射動能由小逐漸增大，其亮度也會隨之化，即可得到繞射點亮度與入射電子動能的關係圖。之後再由其圖中的各峰值得知電子動能  $E_k$  及其所對應的繞射級數  $n$ ，並以  $E_k - n^2$  作圖與上式的關係進行分析，即可得出斜率(S)：

$$S = \frac{h^2}{8m \cdot d^2 \cdot \cos \theta}$$

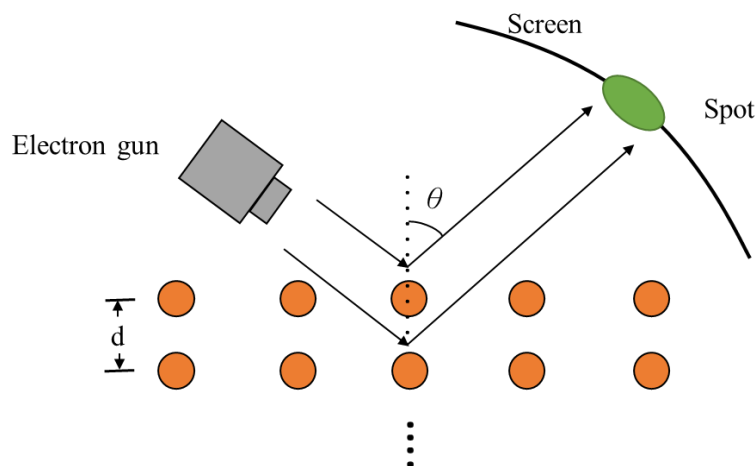
此方法為 LEED I/V 定量分析，若已知斜率 S 為何，透過上式即可得知樣品垂直晶格間距( $d$ )為：

$$d = \frac{h}{\cos \theta \cdot \sqrt{8m \cdot S}}$$

因此樣品的垂直晶格結構可以透過 LEED I/V 作圖分析求得(圖五)。



圖三、LEED 示意圖

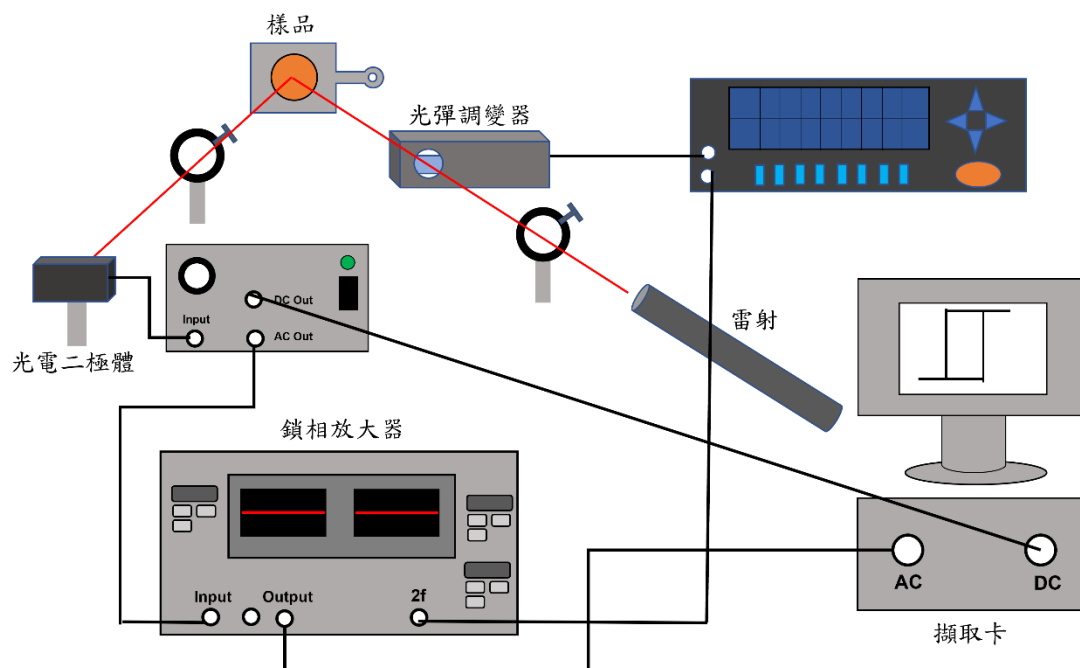


圖四、LEED I/V 分析示意圖

## (2) 磁光柯爾效應(Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE)

想要知道二維拓模絕緣體對於鐵薄膜磁性的影響就必須有能夠量測磁性的儀器，而磁光柯爾效應受到磁性材料表面深度約 10~20nm 範圍內的磁疇影響，這個範圍恰好適合用來研究薄膜的磁性。磁光柯爾效應作用的原理如下：入射一由振幅相同的左旋圓偏振光(LCP)與右旋圓偏振光(RCP)組合而成的線偏振光至樣品中，根據磁圓二色效應，若樣品具有磁性則會使得左旋圓偏振光與右旋圓偏振光反射率不同而產生相位差。由於相位差的關係左旋圓偏振光與右旋圓偏振光重新組合成橢圓偏振光。經樣品反射後的橢圓偏振光的長軸與原先線偏振光軸的夾角稱為「柯爾旋轉角」，反射後的橢圓率稱作「柯爾橢圓率」。旋轉角的大小以及橢圓率會與物質表面的磁化量成正比。透過對樣品施加外場並進行量測的方式稱為「DC-MOKE」。

本實驗的樣品為原子層等級的薄膜，科爾訊號十分微弱，因此需要利用另一項稱作「AC-MOKE」的方法來獲得更精確、雜訊更小的柯爾訊號。「AC-MOKE」的裝置如下所述：先將 He-Ne 雷射通過與 X 軸夾  $45^\circ$  的線偏振片使雷射光極化，再經由光彈調變器以頻率 50kHz 調變光的相位，使雷射光產生線偏振、右旋圓偏振、線偏振、左旋圓偏振的週期變化。接著入射至樣品表面再反射至第二個偏振片及光偵測器來量測其偏振變化。將所量測到的交流訊號經鎖相放大器(Lock-in amplifier)再透過電腦擷取訊號最後對 DC 訊號歸一就能得到樣品的磁滯曲線。



圖五、MOKE 量測示意圖。

## 1. 實驗步驟

### (1) 清理 Cu(111)基板

本實驗使用離子槍將氬氣游離為氬離子( $Ar^+$ )，並加上 2keV 之高壓以及將樣品接地，引導氬離子撞擊 Cu(111)基板，藉由離子濺射(Sputter)的方式清除基板表面吸附的氣體或殘留薄膜，達到清理基板的目的。

### (2) 升降溫處理

樣品經由氬離子( $Ar^+$ )濺射清理後，表面會因轟擊而變得不平整，故將基板做升溫處理至  $500^\circ\text{C}$ ，並維持 5 分鐘，使基板表面恢復平滑，最後再透過液態氮將系統冷卻至本研究的製程溫度與最低溫度(140K)進行實驗操作與量測。

### (3) 鍍膜

確認基板表面平整及溫度降回室溫後，便可開始鍍膜。本實驗利用熱蒸鍍槍將鍍源加熱，並加上 1000V 的高壓以及將樣品接地，以熱蒸鍍的方式使金屬原子鍍上基板，此為「分子束磊晶法」，

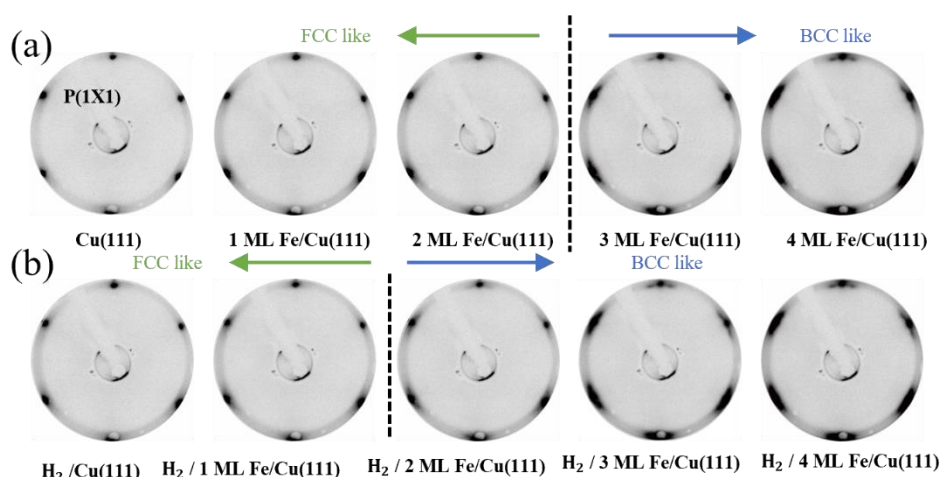
### (4) 量測

- A. 使用 MEED 監控鍍膜速率和 AES 確保薄膜的均勻性。
- B. 使用 LEED 繞射圖和 LEED I/V 分析了解樣品晶格結構與量測晶格常數。
- C. 使用 AC-MOKE 量測樣品垂直磁性(Out-of-Plane, OoP)與平行於膜面的水平磁性(In Plane, IP)，並找出建立起磁性的臨界點以及了解磁性趨勢的原因。

## 三、結果與討論

### 1. 水平晶格結構 (Crystalline structure)

本實驗以 Fe/Cu(111)作為磁性基底。透過能量測表面結構的 LEED，我們看到在圖六(a)最左方基板 Cu(111)的 LEED 圖是由 P(1X1)的繞射點組成。在 Cu(111)基板上成長鐵後可以發現隨著鐵的厚度逐漸增加，繞射點周圍出現衛星繞射點，並且逐漸變大。這結果說明起初成長在 Cu(111)基板上的鐵是 FCC 結構，但隨著厚度增加會轉變成 BCC 結構。在經過曝氫處理後圖六(b) 的 Fe/Cu(111) 開始轉變成 BCC 的情況提早發生在更薄的厚度。

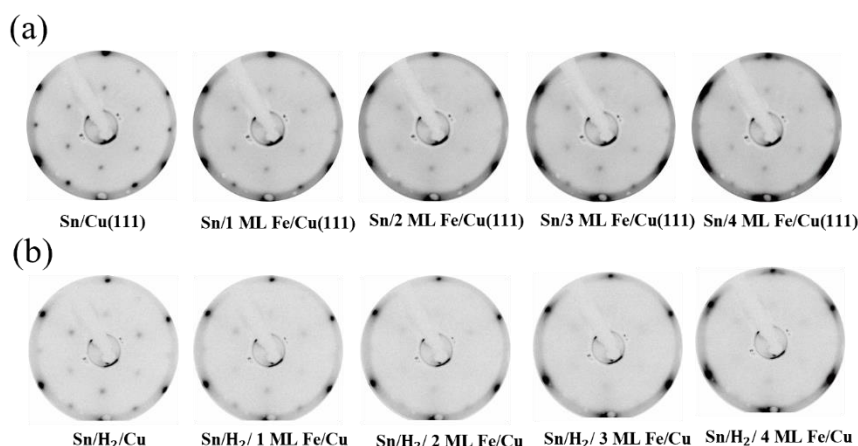


圖六、(a) 不同厚度的 Fe 成長在 Cu(111)上的繞射圖(b)

不同厚度的 Fe/Cu(111) 曝 0.5L H<sub>2</sub> 的繞射圖。



錫烯成長在 Fe/Cu(111)大約會在錫薄膜厚度於 0.08 ML~0.20 ML 間呈現二維平面蜂巢狀結構(P(2x2))。將此厚度的二維拓模絕緣體錫烯分別成長在 Fe/Cu(111) 和 H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111) 上。在圖七(a)最左方可以看到錫成長在 Cu(111)上的繞射圖是 P(2X2)，將此繞射點從倒空間轉換到實空間及為蜂巢狀結構。在 Sn/Fe/Cu(111)系統中隨著鐵的厚度增加，繞射圖型中的 P(2X2)逐漸變的模糊。這表示在下方的鐵由 FCC 轉變到 BCC 的過程中，二維拓模絕緣體錫烯與 Fe/Cu(111)的匹配度也同時下降。而這個現象在圖七(b) Sn/H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)系統中變的更為明顯。



圖七、(a) Sn/Fe/Cu(111)系統的 LEED 繞射圖  
(b) Sn/H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)系統的 LEED 繞射圖。

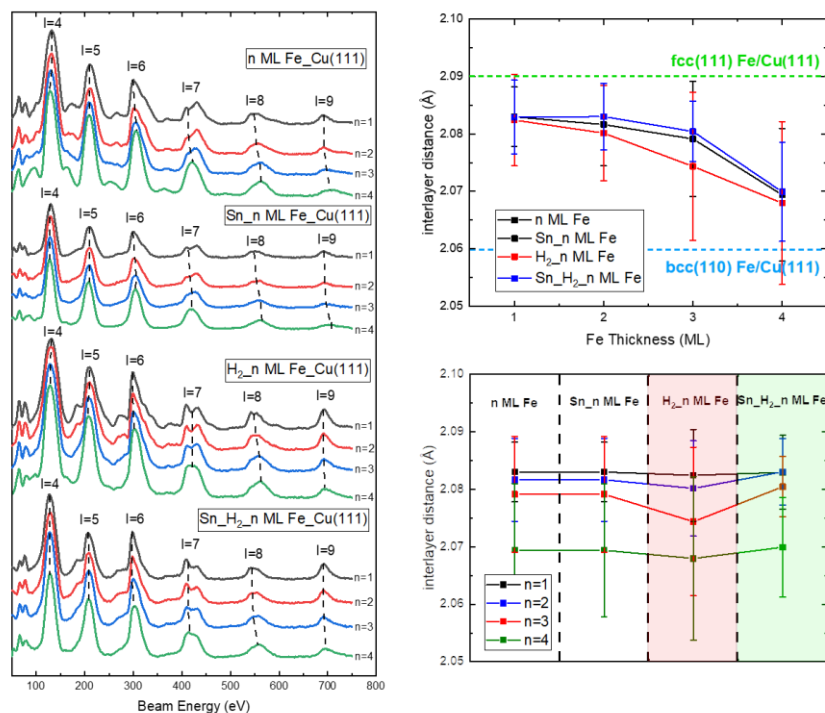
## 2. 垂直晶格結構

圖八(a)為 LEED IV 所量出的 Fe/Cu(111)、H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)、Sn/Fe/Cu(111)、Sn/H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)繞射強度隨能量變化的原始數據。圖中不同顏色的線帶表下方鐵薄膜的厚度，從一層鐵到四層鐵。

透過布拉格公式的延伸可以從原始數據得到入射電子能量和繞射級數的關係式並藉此算出垂直晶格間距。圖八(b)為 Fe/Cu(111)、H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)、Sn/Fe/Cu(111)、Sn/H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)隨著下方鐵薄膜厚度的晶格間距變化。圖中綠色與藍色的虛線表示 FCC Fe 與 BCC Fe 的理論晶格間距。可以看到在這四種樣品中，隨著鐵厚度增加晶格間距都逐漸變小，並在 2~3 層鐵時有較明顯的下降。也就是說當鐵的厚度增加時會趨向 BCC。

圖八(c)為同一種鐵厚度的鐵分別在 Fe/Cu(111)、H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)、Sn/Fe/Cu(111)、Sn/H<sub>2</sub>/Fe/Cu(111)四種樣品中的晶格間距。最左方為 Fe/Cu(111)，在成長二維拓模絕緣體錫烯後晶格間距並沒有變化。紅色區域為 Fe/Cu(111)經過曝氬處理，在曝氬處理後的晶格間距減小，並在兩層鐵與三層鐵下降的最明顯。

綠色區域為  $H_2/Fe/Cu(111)$  上成長二維拓樸絕緣體錫烯後的晶格間距，原先因為曝氫而下降的垂直間距在成長了二維拓樸絕緣體錫烯後上升了。依據在圖八(b)得到的結論，曝氫能夠使樣品驅向 BCC。而在  $H_2/Fe/Cu(111)$  上成長二維拓樸絕緣體錫烯則會使樣品被拉回 FCC。

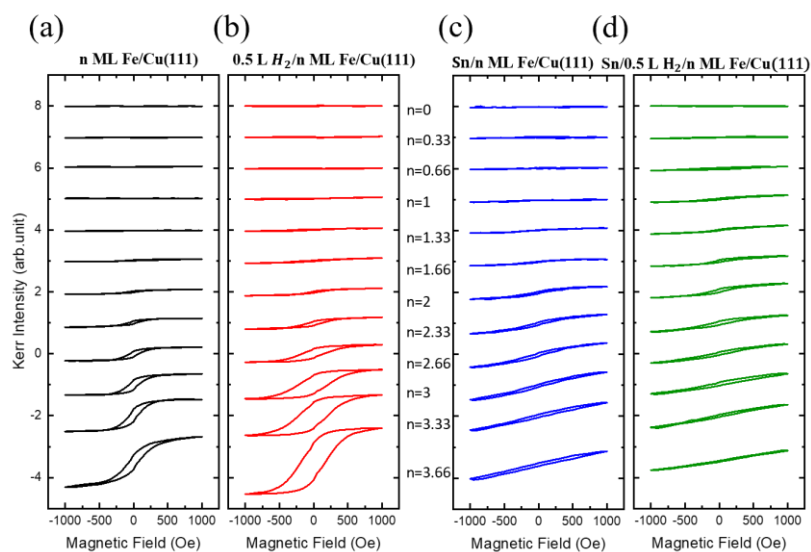


圖八、(a) LEED IV 原始數據(b) 晶格間距隨鐵厚度變化(c) 同一種厚度的鐵在不同階段的晶格間距

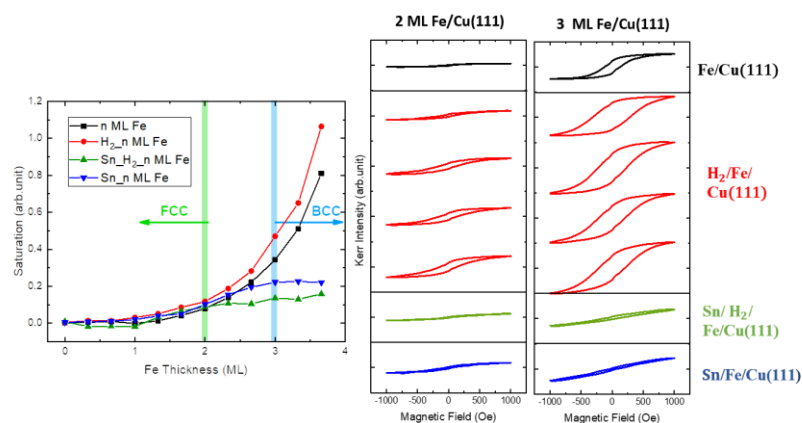
### 3. 磁性量測

本實驗選用  $Fe/Cu(111)$  作為磁性基底。在磁性方面  $Fe/Cu(111)$  的磁性會隨著鐵厚度增加而增強如圖九(a)。並且在 2 ML 之後磁性會急遽的增強，此時的鐵正經歷 FCC 到 BCC 的轉變如圖十(a)。在成長了二維拓樸絕緣體錫烯後磁性減弱，尤其在 3 ML Fe 之後磁性急遽下降如圖九(c)、圖十(a)。造成磁性急遽下降的原因可能源自於下方鐵結構由 FCC 到 BCC 的轉變，二維拓樸絕緣體錫烯與 BCC 的結構的匹配性相較於 FCC 大為下降。而在 2~3 ML Fe 的地方磁性減弱不明顯，不過本身的磁矩就不夠大了所以在成長錫後磁矩依然很小。為了解決此問題，我們引入了曝氫的方式，透過曝氫增強  $Fe/Cu(111)$  的磁性，如圖九(b)。希望能夠以此方法增加 2~3 ML Fe 區段的磁性，使其在成長二維拓樸絕緣體錫烯後仍有足夠的磁矩。

而嘗試後的結果顯示  $H_2/Fe/Cu(111)$  在成長二維拓樸絕緣體錫烯後，在 2~3 ML Fe 的地方磁性減弱的趨勢變大如圖九(d)，並且隨著曝氫量的增加減弱的趨勢也隨之增加。儘管將曝氫量降至 0.5 L 依然沒能有足夠大的磁矩。



圖九、(a) Fe/Cu(111) (b)  $H_2$ /Fe/Cu(111)  
(c) Sn/Fe/Cu(111) (d) Sn/ $H_2$ /Fe/Cu(111) 的磁滯曲線



圖十、(a) 四種樣品得飽和磁化量隨鐵厚度變化量  
(b) 2、3 ML Fe 在不同階段磁滯曲線

## 四、結論

透過改變鐵薄膜厚度並觀察其結構及磁性的變化我們發現，曝氫能夠增強 FCC Fe 的磁性使其穩定在高自旋態，原因是曝氫會使 FCC Fe 趨向 BCC。而透過此種方式增強磁性的氫化鐵薄膜並不適合做為具有蜂巢狀結構的二維拓撲絕緣體的磁性基底。

## 五、參考文獻

- [1] J. Shen J. P. Pierce, E. W. Plummer, and J. Kirschner, J Shen et al J. Phys.: Condens. Matter 15 R1 (2002)
- [2] C.J. Chen, Y.C. Chao, Y.H. Lin, Y.H. Zhuang, Y.M. Lai, S.T. Huang, A.H. MacDonald, C.K. Shih, B.Y. Wang, J.J. Su, P.J. Hsu, ACS Nano, 17, 8, 7456–7465 (2023)