

垂直磁気異方性を示す鉄挿入遷移金属ダイカルコゲナイド  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  の  
X線磁気円二色性による研究 :  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  との比較

X-ray magnetic circular dichroism study of iron-intercalated transition-metal  
dichalcogenide  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  with perpendicular magnetic anisotropy:  
Comparison with  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$

芝田悟朗<sup>1,2,3\*</sup>, Choongjae Won<sup>4,5</sup>, Jaewook Kim<sup>6</sup>, 野中洋亮<sup>3</sup>, 池田啓祐<sup>3</sup>, 万宇軒<sup>3</sup>,  
鈴木雅弘<sup>3</sup>, 小出常晴<sup>7</sup>, 田中新<sup>8</sup>, Sang-Wook Cheong<sup>4,5,6</sup>, 齋藤智彦<sup>2</sup>, 藤森淳<sup>3,9,10</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター, 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町 1-1-1

<sup>2</sup> 東京理科大学 理学部第一部 応用物理学科, 〒125-8585 東京都葛飾区新宿 6-3-1

<sup>3</sup> 東京大学 大学院理学系研究科 物理学専攻, 〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

<sup>4</sup> Max Planck POSTECH/Korea Research Initiative, Pohang University of Science and Technology,  
Pohang 37673, Korea

<sup>5</sup> Laboratory of Pohang Emergent Materials, Pohang Accelerator Laboratory Pohang 37673, Korea

<sup>6</sup> Department of Physics and Astronomy, Rutgers University, Piscataway, New Jersey 08901, USA  
Laboratory of Pohang Emergent

<sup>7</sup> 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所, 〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

<sup>8</sup> 広島大学 大学院先端物質科学研究科, 〒739-8530 東広島市鏡山一丁目 3-1

<sup>9</sup> National Synchrotron Radiation Research Center, Hsinchu 30076, Taiwan

<sup>10</sup> Department of Physics and Center for Quantum Technology, National Tsing Hua University,  
Hsinchu 30013, Taiwan

Goro Shibata<sup>1,2,3\*</sup>, Choongjae Won<sup>4,5</sup>, Jaewook Kim<sup>6</sup>, Yosuke Nonaka<sup>3</sup>, Keisuke Ikeda<sup>3</sup>,  
Yuxuan Wan<sup>3</sup>, Masahiro Suzuki<sup>3</sup>, Tsuneharu Koide<sup>7</sup>, Arata Tanaka<sup>8</sup>, Sang-Wook Cheong<sup>4,5,6</sup>,  
Tomohiko Saitoh<sup>2</sup>, and Atsushi Fujimori<sup>3,9,10</sup>

<sup>1</sup> Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Sayo, Hyogo 679-5148, Japan

<sup>2</sup> Department of Applied Physics, Tokyo University of Science, Katsushika, Tokyo 125-8585, Japan

<sup>3</sup> Department of Physics, University of Tokyo, Bunkyo, Tokyo 113-0033, Japan

<sup>4</sup> Max Planck POSTECH/Korea Research Initiative, Pohang University of Science and Technology,  
Pohang 37673, Korea

<sup>5</sup> Laboratory of Pohang Emergent Materials, Pohang Accelerator Laboratory Pohang 37673, Korea

<sup>6</sup> Department of Physics and Astronomy, Rutgers University, Piscataway, New Jersey 08901, USA

<sup>7</sup> Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, Tsukuba,  
Ibaraki 305-0801, Japan

<sup>8</sup> Department of Quantum Matter, Hiroshima Univ. Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8530, Japan

<sup>9</sup> National Synchrotron Radiation Research Center, Hsinchu 30076, Taiwan

<sup>10</sup> Department of Physics and Center for Quantum Technology, National Tsing Hua University,  
Hsinchu 30013, Taiwan

## 1 はじめに

3d遷移金属元素  $M$  を層間にインターカレートした遷移金属ダイカルコゲナイド  $M_xX_2S_2$  は、遷移金属元素  $M$  および  $X$  の種類、さらにそれらのドーピング量に依存して、多彩な電気伝導および磁性を示す。特に Fe をインターカレートした化合物  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  および  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  は、巨大な保磁力および垂直磁気異方性を示す強磁性体になることが知られている[1,2]。このよ

うな強い磁気異方性は、結晶構造が 2 次元的事であること、すなわち面直方向と面内方向との間で結晶構造に大きな異方性を持つことが原因であると予想される。我々は以前、 $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  についての XMCD 実験の結果から、 $\text{Fe}^{2+}$  の凍結していない軌道磁気モーメント ( $M_{\text{orb}}$ ) が結晶場の 1 次摂動によって直接磁気異方性エネルギーを生むことを明らかにした[3,4]。今回、 $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  よりもさらに強い磁気異方性を示す遷移金属

ダイカルコゲナイド  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  について同様に XMCD 実験を行い、磁気異方性の強さが何によって左右されているかを探ることを試みた。

## 2 実験

Chemical vapor deposition (CVD) 法で作製した単結晶  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  ( $x \sim 0.3$ ) 試料を、真空チャンバー内で劈開することにより測定を行った。XMCD 測定は KEK-PF BL-16A に設置されている 5T 超伝導マグネット XMCD 装置を用いて行い、面直磁場配置および面内磁場配置の両方で測定を行った。面内磁場配置は試料を  $60^\circ$  傾けた状態で測定した。測定温度は  $T = 30$  K, 最大磁場強度は  $\mu_0 H = 5$  T であった。

## 3 結果および考察

Figure 1(a), 1(b) に Fe  $L_{2,3}$  端で測定した  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  の XAS および XMCD スペクトルを赤線で示す。これらのスペクトルは面直磁場配置で得られたものである。XAS スペクトルは典型的な  $\text{Fe}^{2+}$  の形状であり、 $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  の場合[3,4]と同様にインターカレートされた Fe 原子からホストの  $\text{TaS}_2$  層へ電子がドープされていることがわかる。一方、XMCD スペクトルのスペクトル形状は  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  のそれ[3,4]とは大きく異なる。具体的には、Fig. 1(b)中の丸印に示すピーク構造は  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  では観測されていない、 $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  に特有の構造である。この結果は、両物質が類似の結晶構造を持っているにもかかわらず、その電子状態には大きな差があることを示唆するものである。

Ti は  $3d$  遷移金属、Ta は  $5d$  遷移金属であることから、両者の間ではスピン軌道相互作用(SOI)が大きく異なることが考えられる。そこで、SOI の大きさを変えた配置間相互作用クラスターモデル計算によって実験結果を再現できるかどうかを試みた。結果を図 2 に示す。配位子に直接 SOI を取り入れることは

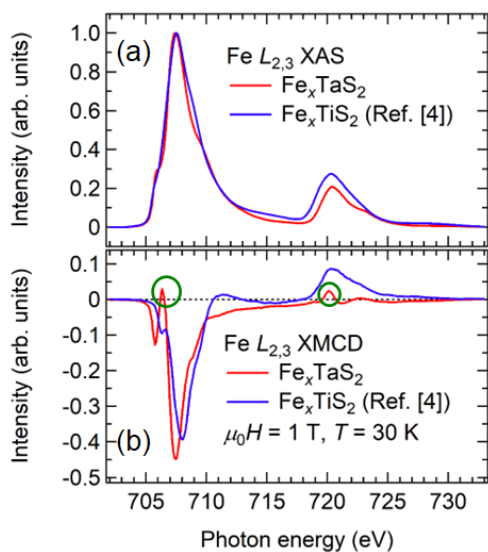


Figure 1: Fe  $L_{2,3}$ -edge (a) XAS and (b) XMCD spectra of  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$ . Circles represent the different spectral features from the XMCD spectra of  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  [4].

困難であるため、この計算では、Fe の SOI を atomic な場合の 1 倍から 10 倍の範囲で変化させている。その他の計算パラメータは文献[4]と同様としている。SOI を増加させていくに従って、Relative energy =  $-4.5$  eV 付近の上向き XMCD ピークが成長していく様子が見て取れる。これは、実験スペクトル (図 1 (b)) の  $h\nu = 706.5$  eV 付近の上向き XMCD ピークに対応していると考えられる。したがって、実験で観測された  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  と  $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  の間の XMCD スペクトル形状の差異は SOI の大きさの違いによって説明できると考えられる。この結果は、ホスト層内原子の SOI の差が軌道混成を通じてインターカレート原子にまで及ぶことを示していると言える。

$\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  について、XMCD 総和則を用いて面直方向の軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比  $|M_{\text{orb}}/M_{\text{spin}}|$  を求めたところ、 $0.61 \pm 0.04$  となった (面内磁場では 5 T の磁場を印加しても磁化が飽和せず、 $|M_{\text{orb}}/M_{\text{spin}}|$  を実験的に求めることは困難であった)。これは  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  の場合の値 ( $0.24 \pm 0.04$ [4]) に比べて有意に大きく、 $\text{Fe}_x\text{TaS}_2$  の非常に強い磁気異方性との関係性が示唆される。

## 参考文献

- [1] H. Negishi *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **67**, 179 (1987).
- [2] M. Eibschütz *et al.*, Appl. Phys. Lett. **27**, 464 (1975).
- [3] G. Shibata *et al.*, Photon Factory Activity Report 2018 #36 (2019).
- [4] G. Shibata *et al.*, J. Phys. Chem. C **125**, 12929 (2021).

\* shibata.goro@jaea.go.jp

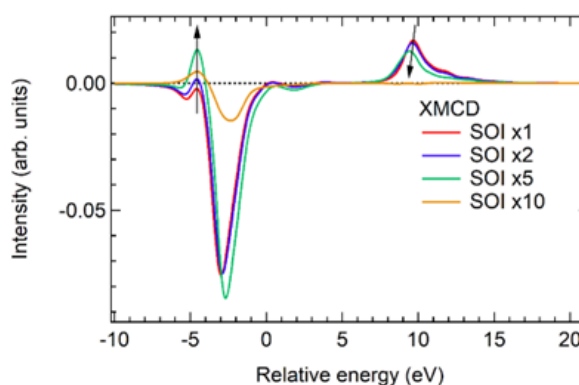


Figure 2: Simulated Fe  $L_{2,3}$ -edge XMCD spectra based on configuration-interaction cluster-model calculation. Fe  $3d$  spin-orbit interaction (SOI) is varied manually in the range of 1–10 times of its atomic value. Other parameters are set the same as those in Ref. [4].