

トポロジカル絶縁体と強磁性の協奏効果

秋山了太^{1,*}・高城拓也¹・黒田眞司²・長谷川修司¹

¹ 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

² 筑波大学数理物質系物質工学域 ☎ 305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1

(2022年9月1日受付；2022年10月13日掲載決定)

Concerted Effects of Topological Insulators and Ferromagnetism

Ryota AKIYAMA^{1,*}, Takuya TAKASHIRO¹, Shinji KURODA² and Shuji HASEGAWA¹

¹The University of Tokyo, 7-3-1, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

²University of Tsukuba, 1-1-1, Tennoudai, Tsukuba, Ibaraki 305-8573

(Received September 1, 2022 ; Accepted October 13, 2022)

It has been reported that the introduction of ferromagnetism by various ways into topological insulators (TIs) can induce concerted effects, resulting in various novel magnetic phenomena such as quantum anomalous Hall effect and skyrmions. In addition, recently, efforts to increase the observation temperature of quantum phenomena by enhancing the crystal quality and improving electronic coherence have been pursued with great enthusiasm. Self-assembled regular alloy crystals such as $\text{Mn}(\text{Bi,Sb})_2\text{Se}(\text{Te})_4$ are called “intrinsic” ferromagnetic TIs that have recently attracted much attention, and we have observed skyrmions in sandwich structures based on these crystals. Furthermore, we have newly observed the ferromagnetic proximity effect even at room temperature at the heterojunction interface between Fe and topological crystalline insulator SnTe by polarized neutron reflectometry. As an extension of these efforts, it is hoped that the unique properties of TIs will be utilized to develop next-generation robust devices for such as spintronics and quantum computing.

KEYWORDS : topological insulator, ferromagnetism, skyrmion, heterostructure, quantum anomalous Hall effect

1. はじめに

トポロジカル絶縁体 (topological insulators, TI) とは、物質内部は絶縁体なのに対し物質表面はディラック錘型の電子バンドを持ち金属的となり、キャリアがスピン偏極して高速に純スピン流として流れると理論的に予測されている新しい物質群である。これらの性質は実験的にも、角度分解光電子分光や電気伝導測定など種々の方法によって報告されており大きな隆盛を見せている。また、従来の TI の表面状態が時間反転対称性を起源とするのに対して、結晶の鏡映対称性を起源とする TI, トポロジカル結晶絶縁体 (topological crystalline insulators, TCI) が存在しうることが 2012 年に理論的に提唱され¹⁾、実際に SnTe において ARPES によっても確認された²⁾。

後に我々は TI とは異なりディラック錘が複数あるために伝導チャンネルがマルチバレーとなることを電気伝導で観測した³⁾。TCI では磁場や電場への応答が TI よりも多彩であると期待され、高い注目を集めている。

これら TI に強磁性を導入すると、ディラック錘にギャップ (ディラックギャップ: Dirac gap, DG) が開き、TI が元来持つヘリカルスピントクスチャからカイラルスピントクスチャへと変化し、DG 中にカイラルエッジバンドが生じ (Fig. 1 (a)), 実空間では試料端にエネルギー無散逸なスピン偏極電流であるカイラルエッジ電流が生じる。これを量子異常ホール効果 (Quantum anomalous Hall effect, QAHE) といい、超省エネ電子デバイスなどの観点からも期待され、盛んに研究されている。一方で、Fig. 1 (a) で E_F が DG 中ではなくカイラルスピントクスチャにかかっている場合、このカイラルスピントクスチャが実空間ではスピンの磁気渦となりスキルミオンとして現れるこ

*E-mail : akiyama@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp

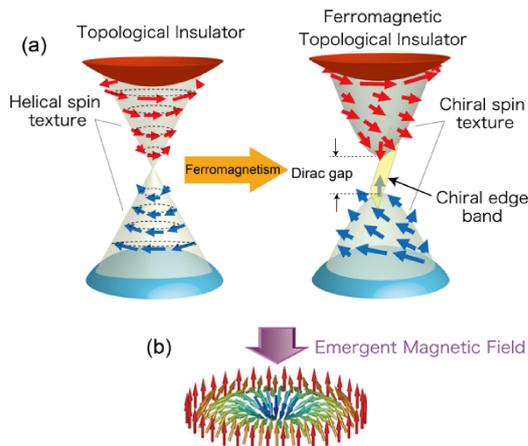


Fig. 1. (color online). (a) Dirac gap (DG) opens and helical spin texture changes to chiral spin texture by introducing ferromagnetism. (b) Exemplified arrangement of the magnetic moment of a skyrmion. Emergent magnetic field is induced by the skyrmion.

とが報告されており、強磁性 TI のもつ運動量空間でのスピンの配列が実空間で具体的に実現したものとして強い興味を持たれている。またスキルミオンはトポロジカル不変量で定義されるので安定的に存在するとされ、将来の磁気メモリなどへの応用も有望視されている。スキルミオンの電気的な観測法としてはトポロジカルホール効果 (THE) があるが、これはホール抵抗にコブのようなピークとして現れる。磁化が渦を作ると Fig. 1 (b) のように創発磁場が生じ、これによってキャリアが過剰に散乱されるため、ホール抵抗にピークが生じるのである。

これらの QAHE やスキルミオンを観測するには E_F 制御と強磁性付与の二つの技術が重要となってくる。 E_F については、典型的な TI である Bi_2Se_3 , Sb_2Te_3 , Bi_2Te_3 では自然格子欠損やアンチサイトなどによってそれぞれ n , p , n 型になってバルク伝導帯・価電子帯を横切ってしまう。そこで $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ (以下 BST) のように混晶にして Bi と Sb の比率を変化させると、伝導度を n 型から p 型まで変化させ E_F 制御をすることができる⁴⁾。そして、強磁性付与についてはいくつかの方法が提案されており、以下の節で紹介していく。

2. 強磁性の導入方法と誘起される現象

2.1 希薄磁性ドーピング法

まず、希薄磁性半導体と同様の発想で Mn, Cr, V などの磁性元素をドーピングすることで強磁性相互作用を誘起する方法が報告された。清華大学の Chang らは 2013 年に膜厚 5 QL (Quintuple Layer: 1 QL ~ 1 nm) の $\text{Cr}_{0.15}(\text{Bi}_{0.1}\text{Sb}_{0.9})_{1.85}\text{Te}_3$ という、BST に Cr をドーピングした系で初めて QAHE を観測した⁵⁾ (Fig. 2 (a))。また続いて

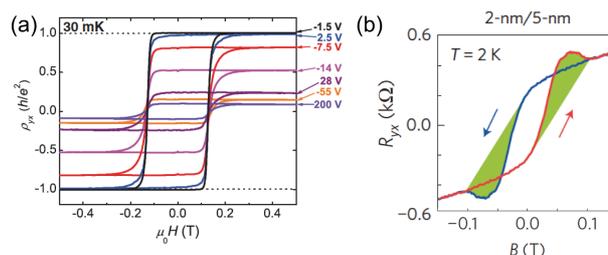


Fig. 2. (color online). (a) Magnetic field dependence of Hall resistivity ρ_{yx} at 30 mK in the sample of $\text{Cr}_{0.15}(\text{Bi}_{0.1}\text{Sb}_{0.9})_{1.85}\text{Te}_3$ with gate bias. Typical QAHE behaviors are shown from [5]. Reprinted with permission from AAAS. (b) Topological Hall effect observed in Cr:BST/BST. Reprinted by permission from Macmillan Publishers Ltd : Nature Physics [7], © 2016.

Chang は MIT に移り V をドーピングした系で、膜厚 4 QL の $(\text{Bi}_{0.29}\text{Sb}_{0.71})_{1.89}\text{V}_{0.11}\text{Te}_3$ において QAHE を観測した⁶⁾。しかし、これらの観測温度はいずれも希釈冷凍機が必要な 30 ~ 120 mK に留まり、電子デバイス応用を考えると、更なる観測温度の上昇が求められる。

一方、スキルミオンについては、2016 年に Cr:BST/BST のヘテロ接合で東大の安田らはトポロジカルホール効果 (Fig. 2 (b)) の観測を通じて確認できたと報告し⁷⁾、その後 2017 年に清華大学の Liu らも $\text{Mn:Bi}_2\text{Te}_3$ において報告した⁸⁾。ただ、希薄磁性ドーピング法では、磁性半導体で長年問題となったように、磁性元素が凝集したり異相を形成したりしやすく、意図しない構造も容易に取りうるため、正確に現象を捉えるには、「well-defined な構造」が好ましいことは言うまでもなく、その意味で本手法には限界がある。

2.2 変調ドーピング法

そんな中提案されたのは変調ドーピング法である。ヘテロ構造において、磁性元素の濃度を層ごとに変えるという、磁性半導体でも用いられてきた歴史の古い手法であるが、それを TI への強磁性の付与に用いたわけである。つまり強磁性層には $\text{Cr}_{0.46}(\text{Bi}_{0.22}\text{Sb}_{0.78})_{1.54}\text{Te}_3$ のように高濃度に Cr をドーピングし、BST 層はノンドーピングとすることで TI 層の結晶性の改善を狙っている⁹⁾。こうして電気伝導は磁性元素を含んでいない、より移動度の高い BST 表面 (界面) が担い、強磁性は上下で BST を挟む層が担うというように分離させている。東大の茂木らは、ゲート電圧印加は必要だが、これにより QAHE 観測温度を最高で 2 K まで上昇させた。このように、薄膜試料ならではの強みとして、積層構造の工夫で観測温度を上昇させるという方針は極めて有効である。

2.3 強磁性近接効果

積層構造を工夫して強磁性を付与する取り組みとして、他にも強磁性近接効果を用いる方法がある。MIT の

Katmis らが 2016 年に $\text{EuS}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$ のヘテロ構造で強磁性体の EuS 側から Bi_2Se_3 側へ磁化を 3 nm 程度染み出させることによって $\text{EuS}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$ 界面を強磁性にできたことを、偏極中性子反射率法で確認したと報告した¹⁰⁾。磁化測定においては昇温するに従い、EuS のバルクのキュリー温度 (~ 17 K) でバルク磁化が消失するが、それより遥かに高温の 200 \sim 300 K 付近で面直磁場下での磁化が現れ、これを界面磁化の発現を捉えたものと主張している。しかし EuS 自身もスピン軌道相互作用が大きく、隣接する磁気モーメント同士をねじる相互作用、DMI (Dzyaloshinskii-Moriya interaction) が働いてもおかしはなく、EuS 単膜の効果なのかヘテロ接合の効果なのかを慎重に切り分けることは必要なものの、新しい強磁性導入の方法として価値のある取り組みである。

上記は TI である Bi_2Se_3 を用いたヘテロ接合の報告であるが、最近我々は Fe と TCI である SnTe とのヘテロ接合で Fe 側からの磁化が SnTe 側へ染み出していることを偏極中性子反射率法で確認した¹¹⁾。TCI への強磁性導入は、表面状態の磁化への応答が磁化の向きや表面、鏡映対称面などに影響されることから非常に興味深いにもかかわらず TI ほど研究がなされていなく、特にトポロジカル表面への強磁性導入という視点では研究は殆どなされていなかった。本試料は $\text{Fe}/\text{SnTe}/\text{CdTe}/\text{ZnTe}/\text{GaAs}(001)\text{sub.}$ というヘテロ構造となっており、CdTe 層

までは下地層¹²⁾である。反射高速電子回折 (RHEED) パターン (Fig. 3 (a), (b)) や X 線回折パターン、及び断面透過型電子顕微鏡 (XTEM) 像 (Fig. 3 (c)) から分かるように、急峻な界面を持つ $\text{Fe}(001)/\text{SnTe}(001)$ 単結晶ヘテロ接合薄膜を作製することに成功した。偏極中性子反射率法では、中性子はスピン 1/2 を持つので、浅い角度で試料表面に入射すると (Fig. 4 (a)), 試料中の原子核との相互作用とスピン間相互作用の両方で反射される。反射強度のモデルフィッティングにより原子核散乱長密度 (NSLD) と磁気散乱長密度 (MSLD) の深さ依存性を得ることで、深さ方向の磁化分布を精密に知ることができる。Fig. 4 (b), (c) にはそれぞれ 2.4 K, 297 K

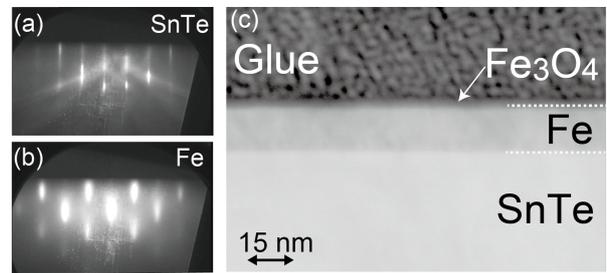


Fig. 3. (color online). (a, b) RHEED patterns with the incident electron from [110] just after the deposition of SnTe and Fe, respectively. (c) Cross-sectional TEM image of the sample.

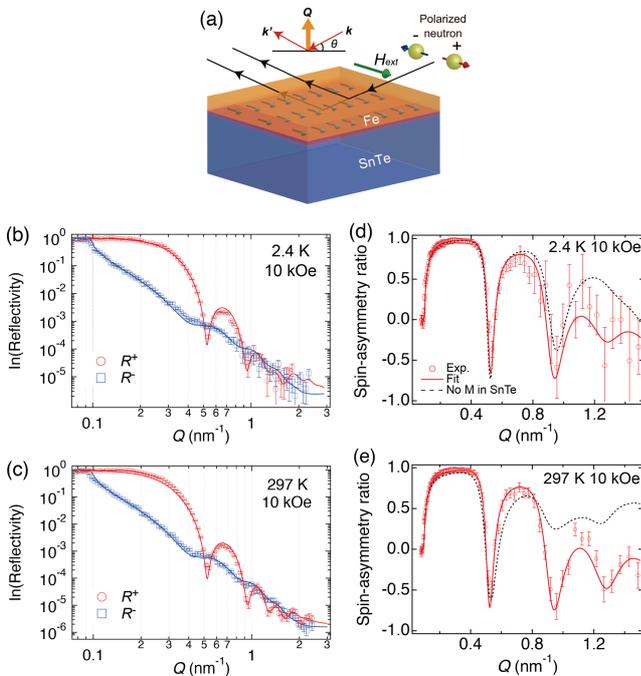


Fig. 4. (color online). (a) Schematic picture of polarized neutron reflectometry. (b, c) Q dependence of reflectivity, (d, e) Spin-asymmetry ratio, and (f, g) MSLD (yellow: solid line), NSLD (green: dotted line), and their difference (black: dashed line) at 2.4 K and 297 K under 10 kOe, respectively. (h) Temperature dependence of magnetization given by subtraction of NSLD from MSLD. Adapted and modified with permission from [11]. © 2022 American Chemical Society.

の反射率の Q (移行波数) 依存性を示す。なお R^+ (R^-) は、印加磁場 (10 kOe) に対して平行 (反平行) のスピンを持つ中性子の反射率を表す。薄膜構造での反射による明瞭な振動がみられている。なお、SnTe が 400 nm 程度の厚みがあるため、反射強度はほぼ SnTe 層よりも上の構造によっていると考えて良い。Fig. 4 (d), (e) はそれぞれの温度での spin asymmetry ratio であり、仮定した構造と測定値がどの程度乖離しているかをみることができる。両温度でモデルフィッティング曲線とほぼエラーバー内での一致を見せている。特にもし SnTe 側への磁化の染み出しを仮定しない場合 (黒点線) は測定値との乖離が大きいことが分かる。Fig. 4 (f), (g) には、それぞれの温度での NSLD (緑: 点線) と MSLD (黄: 実線), そしてそれらの差 (黒: 破線) を示した。差分である黒破線は表面から 16~17 nm の深さ、すなわち SnTe 層内にピークを有し、これは本来磁化を持たない SnTe 層側に ~2 nm ほど強磁性が染み出していることを示している。そしてこの染み出しの大きさは、Fig. 4 (h) に示すように減衰するものの室温 (297 K) でも残存している。これらのことから、強磁性染み出しによる方法で TCI 表面への強磁性導入に成功したといえる。本手法では Fig. 3 (c) の XTEM 像でも分かるように、TCI 結晶へのダメージが少なく強磁性付与が可能であるため、希薄磁性ドーピングよりも高い温度での QAHE 実現に有望であると考えている。

3. 自己形成型強磁性トポロジカル絶縁体

3.1 MnBi_2Se_4

最後に、自己形成型の強磁性トポロジカル絶縁体 (Ferromagnetic topological insulator, FMTI) について紹介する。我々は 2017 年に、 Bi_2Se_3 の上に MnSe を蒸着してアニールすると、ユニット層構造が自己形成的に再構成して MnBi_2Se_4 という FMTI が生じることを明らかにした¹³⁾。 Bi_2Se_3 や Bi_2Te_3 は QL という 5 原子層が 1 ユニットで積層しているが、この結晶は Fig. 5 (a) のように、新たに Mn の 1 原子層の部分が QL に埋め込まれて 7 原子層で 1 ユニットとなる SL (Septuple Layer) という部分を含んでいることを Low Energy Electron Diffraction (LEED) の I - V 測定によって明らかにした。この Mn の 1 原子層が強磁性をもたらすため、二次元強磁性体となる。DFT 計算からは、本構造では、前節に述べた強磁性の染み出しによる DG 形成ではなく、強磁性とトポロジカル表面状態の波動関数が、同じ程度の試料深さに存在してうまくオーバーラップし、磁気由来の大きな DG を持つことが予想される。実際、実験的には SQUID 磁化測定では室温でも強磁性となっており、さ

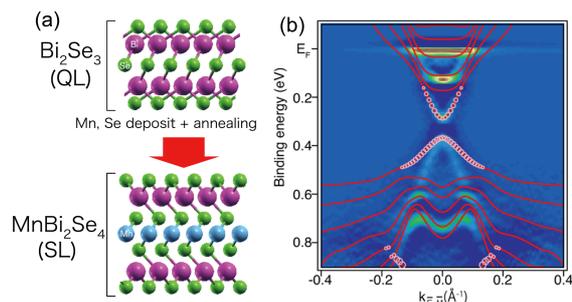


Fig. 5. (color online). (a) Cross-sectional structures of unit layers of Bi_2Se_3 and MnBi_2Se_4 . (b) ARPES image of MnBi_2Se_4 at room temperature. The red solid lines represent DFT calculations. Adapted with permission from [13]. © 2017 American Chemical Society.

らに Fig. 5 (b) のように ARPES 像からは室温で ~100 meV に及ぶ大きなギャップが観測された。これが磁気由来 DG だとすると QAHE の高温での実現に有望であり、自己形成により安定的で再現性の高い試料が作製できるので、FMTI の新たなアプローチとして高く注目を集めた。

3.2 MnBi_2Te_4

それに続いて、今度は Bi_2Te_3 をベースとした MnBi_2Te_4 という自己形成型 FMTI が 2019 年に世界中のグループから時期を同じくして報告され^{14~16)}、 MnBi_2Se_4 と同じく強磁性とトポロジカル表面状態を生来的に含有していることから intrinsic な FMTI として俄に研究が盛り上がった。基本的構造はやはり自己形成的に強磁性の SL が生成することが肝である。しかし、 MnBi_2Te_4 の多重積層膜やバルク試料の場合には、Mn 原子層間が反強磁性的な面間相互作用を示すという報告がなされた。その中、5 SL のフレーク試料でバックゲート電圧の印加によって E_F を動かし、1.4 K において QAHE 観測が報告された¹⁷⁾。しかし、200 V 程度の大きなゲート電圧が必要なことや、試料の質によって反強磁性が強くなることなどが課題として残った。

3.3 $\text{Mn}(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_4$

上記の MnBi_2Se_4 や MnBi_2Te_4 は、QAHE やスキルミオンを観測するには、 E_F がバルクバンドを横切るために適していない。そのため、 E_F を DG 中に制御すること、面間反強磁性を抑制することを 2 大目標とし、我々は $\text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3/\text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$ ($\text{MnBST}/\text{BST}/\text{MnBST}$) の FMTI/TI/FMTI サンドイッチ構造を考案した (なお本節の内容は文献 18, 19 に詳細があるので参照されたい)。まず BST は Bi/Sb の組成比により E_F が制御可能なので、 Bi_2Te_3 ではなく BST をベースにして同様に自己形成的に $\text{Mn}(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_4$ を作製すれば E_F 制御可

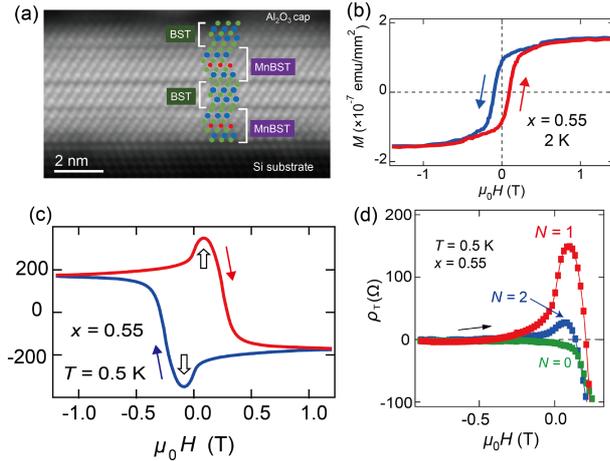


Fig. 6. (color online). (a) Cross-sectional scanning TEM image of a sandwich structure of $\text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4 / (\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3 / \text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$. (b) M - H curve measured by SQUID. (c) ρ_{xy} - H curve of THE+AHE at 0.5 K with $x=0.55$. (d) THE component in ρ_{xy} with different numbers N of the spacer BST at 0.5 K with $x=0.55$. Adapted with permission from [18]. © 2022 American Chemical Society.

能な FMTI ができると考えた。そして、上述のサンドイッチ構造とすることで BST の上下両方の表面状態に強磁性が導入され、電気伝導でカイラルバンド由来のものが観測でき、さらに BST が強磁性層のスペーサーとして働くことで、Mn 原子層同士がごく近い距離の場合に働く面間反強磁性秩序も生じにくいのではないかと考えた。本構造の断面格子走査型 TEM 像を Fig. 6 (a) に示す。原子層で制御された高品質な単結晶ユニット層で MnBST/BST/MnBST サンドイッチ構造が形成されていることが分かる。そして E_F は $x=0.55$ 付近で電荷中性点となり DG 近傍にあることを突き止めた。また Fig. 6 (b) の SQUID による磁化測定では強磁性的な M - H 曲線が得られており、多層 MnBi_2Te_4 で報告された反強磁性的振る舞いは見られず、面間反強磁性は抑制されたと考えられる。そして Fig. 6 (c) のように $x=0.55$ の試料では ~ 8 K 以下の低温で異常ホール効果 (AHE) の強磁性的なヒステリシス曲線に加えて白矢印のコブが観測された。これは第 1 節で述べた THE によるものである。そして興味深いことにスペーサー BST の層数 N を変化させると、Fig. 6 (d) のように $N=1$ のときに最大の THE を示した。本構造では、DMI の符号が上下の MnBST の表面状態のスピнкаイラリティに依っているので、上下表面状態の混成度合が重要になる。つまり $N=2$ では上下の MnBST 層が遠く表面状態の混成がほぼ無く、スピнкаイラリティが互いに逆符号となり、系全体で DMI がキャンセルしスキルミオンが不安定になる。 $N=0$ だと表面状態の混成ギャップがゼーマンギャップよりも大きくなり、トポロジカル的に自明な状

態となりスキルミオンが不安定になる。しかし、 $N=1$ の場合は混成ギャップが適当な大きさを持ち上下の MnBST 表面状態が混成し、スピнкаイラリティが同符号となりスキルミオンが安定化する。これより、上下 MnBST 層の表面状態の適切な強さの混成がスキルミオン誘起に不可欠であることがわかる。

なお、文献 20 などで提起・検証されているように、このコブを持つ THE+AHE の形状は、お互い異なる符号を持つ AHE の足し算で良く似た形状が再現されることがある (mimic THE)。つまり試料中に逆符号の二種類の AHE を示す部分が存在する場合は、それらが足し合わされてあたかも THE+AHE に見えてしまう恐れがある。しかし本サンドイッチ構造では、THE のスペーサー厚依存性があること、そして THE+AHE 曲線が仮に「二つの符号の異なる AHE の足し算」と仮定したときの二つの AHE 曲線を、同符号で足し合わせたときに観測された M - H 曲線とは一致しないことなどから、この可能性は否定される (詳細は文献 18 の Supporting Information を参照)。

最後に、本系のスキルミオンの特徴を述べる。過去に Mn を $\sim 10\%$ の濃度で Bi_2Te_3 にランダムドープしてスキルミオンを観測した先行例がある⁸⁾。これと比較すると、本系はスキルミオンの生成磁場 (コブのできる磁場) がおよそ $1/10$ 程度で「軟磁性的」と言え、また創発磁場の向き (コブの正負) も逆である。この原因は、本系が Mn が密に並んだ規則構造を取ることにあると考えられる。つまり隣接 Mn 原子の距離が、本系のほうがドープ系よりも $1/3$ 以下程度であるため強磁性相互作用の強さ J は大きくなり、スキルミオンコアの磁化が外部磁場の方向に安定しやすくなる。そのためコア磁化の方が先にマトリクスの磁化よりも外部磁場の向きに揃いやすくなる²¹⁾。一方、先行例では逆にマトリクス磁化の方が先に外部磁場の向きに揃うので、お互い創発磁場の向きが逆になる。また、大きな J によってスキルミオンの生成磁場も本系のほうが小さくなったと説明できる。この“軟磁性スキルミオン”は書き換え容易なことから擾乱に強い磁気メモリなどへの応用が期待される。

4. ま と め

本稿で紹介した研究はいずれも、トポロジカル (結晶) 絶縁体だからこそ現れる、特異な強磁性との協奏効果を求めて行われたものである。QAHE はそれこそ特有の、エネルギー無散逸という決定的に優れた特性を持つ現象であるが、実用デバイスのためには更に発現温度を上げる必要がある。またスキルミオンについてはカイラル結晶構造を持つ磁性体²²⁾や重金属元素のヘテロ接合系²³⁾など、非トポロジカル絶縁体系でも多く報告されて

きた。その中で、いかにトポロジカル絶縁体系ならではの
 特長、例えば摂動への頑健性や、ギャップやキャリア密度
 の変調によるスキルミオンの制御性などを打ち出し、
 それらを生かしたデバイス化ができるかが重要となっ
 てくる。この周辺は現象それ自身未だ不明なことも多く興
 味深いため、基礎学理の構築も大切に、デバイス化と
 両輪で研究が一段と進展することが望まれている。

文 献

- 1) T.H. Hsieh, H. Lin, J. Liu, W. Duan, A. Bansil and L. Fu : *Nat. Commun.* **3**, 982 (2012).
- 2) Y. Tanaka, Z. Ren, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, K. Segawa and Y. Ando : *Nat. Phys.* **8**, 800 (2012).
- 3) R. Akiyama, K. Fujisawa, T. Yamaguchi, R. Ishikawa and S. Kuroda : *Nano Res.* **9**, 490 (2016).
- 4) D. Kong, Y. Chen, J.J. Cha, Q. Zhang, J.G. Analytis, K. Lai, Z. Liu, S.S. Hong, K.J. Koski, S.K. Mo, Z. Hussain, I.R. Fisher, Z.X. Shen and Y. Cui : *Nat. Nanotechnol.* **6**, 705 (2011).
- 5) C.Z. Chang, J. Zhang, X. Feng, J. Shen, Z. Zhang, M. Guo, K. Li, Y. Ou, P. Wei, L.L. Wang, Z.Q. Ji, Y. Feng, S. Ji, X. Chen, J. Jia, X. Dai, Z. Fang, S.C. Zhang, K. He, Y. Wang, L. Lu, X.C. Ma and Q.K. Xue : *Science* **340**, 167 (2013).
- 6) C.Z. Chang, W. Zhao, D.Y. Kim, H. Zhang, B.A. Assaf, D. Heiman, S.-C. Zhang, C. Liu, M.H.W. Chan and J.S. Moodera : *Nat. Mater.* **14**, 473 (2015).
- 7) K. Yasuda, R. Wakatsuki, T. Morimoto, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K.S. Takahashi, M. Ezawa, M. Kawasaki, N. Nagaosa and Y. Tokura : *Nat. Phys.* **12**, 555 (2016).
- 8) C. Liu, Y. Zang, W. Ruan, Y. Gong, K. He, X. Ma, Q.-K. Xue and Y. Wang : *Phys. Rev. Lett.* **119**, 176809 (2017).
- 9) M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. Yasuda, Y. Kozuka, K.S. Takahashi, M. Kawasaki and Y. Tokura : *Appl. Phys. Lett.* **107**, 182401 (2015).
- 10) F. Katmis, V. Lauter, F.S. Nogueira, B.A. Assaf, M.E. Jamer, P. Wei, B. Satpati, J.W. Freeland, I. Eremin, D. Heiman, P. Jarillo-Herrero and J.S. Moodera : *Nature* **533**, 513 (2016).
- 11) R. Akiyama, R. Ishikawa, K. Akutsu-Suyama, R. Nakanishi, Y. Tomohiro, K. Watanabe, K. Iida, M. Mitome, S. Hasegawa and S. Kuroda : *J. Phys. Chem. Lett.* **13**, 8228 (2022).
- 12) R. Ishikawa, T. Yamaguchi, Y. Ohtaki, R. Akiyama and S. Kuroda : *J. Cryst. Growth* **453**, 124 (2016).
- 13) T. Hirahara, S.V. Eremeev, T. Shirasawa, Y. Okuyama, T. Kubo, R. Nakanishi, R. Akiyama, A. Takayama, T. Hajiri, S. Ideta, M. Matsunami, K. Sumida, K. Miyamoto, Y. Takagi, K. Tanaka, T. Okuda, T. Yokoyama, S. Kimura, S. Hasegawa and E.V. Chulkov : *Nano Lett.* **17**, 3493 (2017).
- 14) M.M. Otrokov, I.I. Klimovskikh, H. Bentmann, D. Estyunin, A. Zeugner, Z.S. Aliev, S. Gaß, A.U.B. Wolter, A.V. Koroleva, A.M. Shikin, M. Blanco-Rey, M. Hoffmann, I.P. Rusinov, A.Yu. Vyazovskaya, S.V. Eremeev, Yu.M. Koroteev, V.M. Kuznetsov, F. Freyse, J. Sánchez-Barriga, I.R. Amiraslanov, M.B. Babanly, N.T. Mamedov, N.A. Abdullayev, V.N. Zverev, A. Alfonsov, V. Kataev, B. Büchner, E.F. Schwier, S. Kumar, A. Kimura, L. Petaccia, G. Di Santo, R.C. Vidal, S. Schatz, K. Kißner, M. Ünzelmann, C.H. Min, S. Moser, T.R.F. Peixoto, F. Reinert, A. Ernst, P.M. Echenique, A. Isaeva and E.V. Chulkov : *Nature* **576**, 416 (2019).
- 15) J. Wu, F. Liu, M. Sasase, K. Ienaga, Y. Obata, R. Yukawa, K. Horiba, H. Kumigashira, S. Okuma, T. Inoshita and H. Hosono : *Sci. Adv.* **5**, eaax9989 (2019).
- 16) T. Hirahara, M.M. Otrokov, T.T. Sasaki, K. Sumida, Y. Tomohiro, S. Kusaka, Y. Okuyama, S. Ichinokura, M. Kobayashi, Y. Takeda, K. Amemiya, T. Shirasawa, S. Ideta, K. Miyamoto, K. Tanaka, S. Kuroda, T. Okuda, K. Hono, S.V. Eremeev and E.V. Chulkov : *Nat. Commun.* **11**, 4821 (2020).
- 17) Y. Deng, Y. Yu, M.Z. Shi, Z. Guo, Z. Xu, J. Wang, X.H. Chen and Y. Zhang : *Science* **367**, 895 (2020).
- 18) T. Takashiro, R. Akiyama, I.A. Kibirev, A.V. Matetskiy, R. Nakanishi, S. Sato, T. Fukasawa, T. Sasaki, H. Toyama, K.L. Hiwatari, A.V. Zotov, A.A. Saranin, T. Hirahara and S. Hasegawa : *Nano Lett.* **22**, 881 (2022).
- 19) 高城拓也, 秋山了太, I.A. Kibirev, A.V. Matetskiy, 中西亮介, 佐藤瞬亮, 深澤拓朗, 佐々木泰祐, 遠山晴子, 樋渡功太, A.V. Zotov, A.A. Saranin, 平原 徹, 長谷川修司 : *表面と真空* **65**, 405 (2022).
- 20) K.M. Fijalkowski, M. Hartl, M. Winnerlein, P. Mandal, S. Schreyeck, K. Brunner, C. Gould and L.W. Molenkamp : *Phys. Rev. X* **10**, 011012 (2020).
- 21) M. Mochizuki : *Appl. Phys. Lett.* **111**, 092403 (2017).
- 22) A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P.G. Niklowitz and P. Böni : *Phys. Rev. Lett.* **102**, 186602 (2009).
- 23) J. Matsuno, N. Ogawa, K. Yasuda, F. Kagawa, W. Koshibae, N. Nagaosa, Y. Tokura and M. Kawasaki : *Sci. Adv.* **2**, e1600304 (2016).