

反铁磁轴子绝缘体候选材料 EuIn_2As_2 的表面原子排布和电子结构

李渊 邓翰宾 王翠香 李帅帅 刘立民 朱长江 贾可 孙英开 杜鑫 于鑫 关童 武睿 张书源 石友国 毛寒青

Surface and electronic structure of antiferromagnetic axion insulator candidate EuIn_2As_2

Li Yuan Deng Han-Bin Wang Cui-Xiang Li Shuai-Shuai Liu Li-Min Zhu Chang-Jiang Jia Ke Sun Ying-Kai Du Xin Yu Xin Guan Tong Wu Rui Zhang Shu-Yuan Shi You-Guo Mao Han-Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 186801 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210783

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210783>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维拓扑绝缘体的扫描隧道显微镜研究

Scanning tunneling microscopy study on two-dimensional topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 226801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191631>

强三维拓扑绝缘体与磁性拓扑绝缘体的角分辨光电子能谱学研究进展

Angle resolved photoemission spectroscopy studies on three dimensional strong topological insulators and magnetic topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227901 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191450>

轴子拓扑绝缘体候选材料层状的物性研究

Properties of axion insulator candidate layered $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{In}_2\text{As}_2$

物理学报. 2021, 70(12): 127502 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210042>

铁基超导体的扫描隧道显微镜研究进展

Studies of scanning tunneling spectroscopy on iron-based superconductors

物理学报. 2018, 67(20): 207401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181818>

Bi (110)薄膜在NbSe₂衬底上的扫描隧道显微镜研究

Scanning tunneling microscopy research of Bi(110) thin films grown on NbSe₂

物理学报. 2018, 67(17): 170701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180977>

本征磁性拓扑绝缘体 MnBi_2Te_4 电子结构的压力应变调控

Pressure strain control of electronic structure of intrinsic magnetic topological insulator MnBi_2Te_4

物理学报. 2021, 70(4): 047101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201237>

反铁磁轴子绝缘体候选材料 EuIn_2As_2 的表面原子排布和电子结构*

李渊¹⁾²⁾ 邓翰宾¹⁾²⁾ 王翠香¹⁾²⁾ 李帅帅¹⁾²⁾ 刘立民¹⁾²⁾ 朱长江¹⁾²⁾
 贾可¹⁾²⁾ 孙英开¹⁾²⁾ 杜鑫¹⁾²⁾ 于鑫¹⁾ 关童¹⁾²⁾ 武睿¹⁾³⁾
 张书源⁴⁾ 石友国¹⁾³⁾⁵⁾ 毛寒青^{1)†}

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

4) (康奈尔大学物理系, 伊萨卡 14853)

5) (中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

(2021年4月23日收到; 2021年5月10日收到修改稿)

非平庸的能带拓扑性与磁性结合可以产生丰富的量子现象, 包括量子反常霍尔效应、轴子绝缘体态等. 不同于磁性掺杂和异质结方案, 内禀磁性拓扑绝缘体避免了掺杂带来的无序, 且制备工艺通常比异质结更加简单, 因此对研究和利用磁性拓扑绝缘体都有重要的意义. 最近, EuIn_2As_2 被认为是内禀反铁磁轴子绝缘体, 本文使用低温扫描隧道显微镜研究了它的解理表面的原子排布和电子结构. 结合原子分辨形貌图、晶格对称性分析以及局域态密度等信息, 认为观测到的表面条纹结构来源于 Eu 截止面 50% 覆盖度的 1×2 表面重构. 通过条纹面的局域态密度测量, 发现 4 K 时费米能附近态密度存在非对称的谷-峰特征, 该特征随温度升高逐渐变弱, 在反铁磁相变温度以上完全消失, 表明其与反铁磁序密切相关. 此外, 在某些台阶附近, 伴随有少量迷宫状的结构, 进一步分析认为可能是 Eu 原子形成的翘曲结构导致的. 这些结果为理解 EuIn_2As_2 的表面能带结构和拓扑性质提供了重要信息.

关键词: 扫描隧道显微镜, EuIn_2As_2 , 磁性拓扑绝缘体, 表面重构

PACS: 68.37.Ef, 03.65.Vf, 68.35.B-

DOI: 10.7498/aps.70.20210783

1 引言

磁性与拓扑结合可以产生新奇的量子现象^[1], 比如量子反常霍尔效应^[2]、轴子绝缘体态^[3]、手性马约拉纳费米子^[4]等. 实现这些拓扑相有两种广为人知的途径, 分别是磁性掺杂和构造异质结(拓扑

绝缘体/磁性薄膜)^[5,6]. 然而前者会给材料引入无序; 后者需要复杂的制备流程, 进而影响对材料性质的研究和应用. 规避上述问题的一个直接办法, 是寻找具有确定化学计量比, 且具有内禀磁序的拓扑绝缘体, 即内禀磁性拓扑绝缘体.

过去几年, 理论预言了一些内禀磁性拓扑绝缘体, 包括 MnBi_2Te_4 家族系列^[7-9] 以及 EuIn_2As_2 ,

* 国家重点研发计划(批准号: 2016YFA0300602, 2016YFA0302400, 2017YFA0302903)、国家自然科学基金(批准号: 11227903)、北京市科学技术委员会(批准号: Z181100004218007, Z191100007219011)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2015CB921304)和中国科学院战略优先研究项目(批准号: XDB07000000, XDB28000000, XDB33000000)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: mhq@iphy.ac.cn

EuSn_2As_2 , EuSn_2P_2 等含 Eu 系列材料^[10–12]. 其中, EuIn_2As_2 具有内禀的反铁磁序, 早先的磁测量结果显示它的磁结构可能是 A 型反铁磁, 即 Eu 原子在层内是铁磁耦合, 相邻 Eu 层之间是反铁磁耦合, 材料的反铁磁转变温度 T_N 约为 18 K^[13–16]. 理论预言在反铁磁相下它是轴子绝缘体, 磁性原子的自旋取向决定了它所处的拓扑态: 当自旋沿着 ab 面内时, 它是具有无能隙表面态的拓扑晶体绝缘体; 当沿着 c 方向时, 它是具有一维棱态 (hinge state) 的高阶拓扑绝缘体^[10]. 最新的中子衍射实验认为, EuIn_2As_2 可能具有更复杂的螺旋形反铁磁序, 具有 $C_2 \times T$ 的对称性, 计算表明它将具有受此对称性保护的无能隙表面态^[17]. 实验上, 霍尔测量显示载流子为空穴^[13,18], 角分辨光电子能谱 (angle resolved photoemission spectroscopy, ARPES) 观测到以布里渊区 Γ 点为中心的空穴型费米口袋^[13,18,19] 以及重空穴掺杂的表面态^[18], 表明 EuIn_2As_2 拓扑表面态位于费米能以上的未占据态. 在变温 ARPES 中, 不同小组在反铁磁相变前后观测到了不同的能带结构^[18,19]. 而表面电子态的测量结果与解理面的结构直接相关, 理论上对表面能带结构的计算和预言也依赖于对表面结构的认识^[20]. 作为研究表面结构和电子结构的重要实验手段, 扫描隧道显微镜 (scanning tunneling microscope, STM) 对 EuIn_2As_2 的研究还未见报道.

本文利用 STM, 研究了 EuIn_2As_2 单晶解理表面的结构. STM 形貌图表明, 材料的解理面以条纹状的有序结构为主, 结合原子分辨的 STM 形貌图、晶格对称性分析以及扫描隧道谱 (scanning tunneling spectroscopy, STS) 信息, 认为条纹面起源于 Eu 截止面 50% 覆盖度形成的表面重构. 通过对条纹面态密度的测量, 发现费米能附近的态密度随温度的演化与反铁磁相变有很强的关联特征. 此外, 在台阶边缘附近偶尔观测到少量迷宫状结构, 通过分析原子像与台阶高度, 认为它可能是 Eu 原子形成的翘曲结构. 作为表面能带计算与实验观测的桥梁, 对表面结构的测定为理解 EuIn_2As_2 的表面电子结构以及拓扑性质提供了重要线索.

2 实验方法

EuIn_2As_2 单晶采用自助熔方法生长, 选择 In 作为助熔剂, 以摩尔比 $\text{Eu}:\text{As}:\text{In} = 1:3:12$ 进行

配比, 将原材料放入氧化铝坩埚, 然后装进石英管中, 此操作在充满氩气的手套箱中进行. 将封装好的石英管经过 12 h 升到 1100 °C, 保持 12 h, 以 1 K/h 的速率降温至 700 °C, 然后迅速离心甩出多余的助熔剂 In, 得到六方片状单晶.

测量所用仪器是一台自主搭建的低温扫描探针显微镜, 兼具扫描隧道显微镜与原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 的功能. 样品在低温超高真空环境下解理, 解理温度约 20 K. 如不加特殊说明, 扫描头的基础温度是 4.2 K. 实验使用电化学腐蚀的 W 针尖, 并在 Au 靶上做场发射处理. STM 形貌图在恒流模式下获取. STS 采用标准的锁相放大技术获取, 调制电压频率为 781.1 Hz. AFM 测量基于 qPlus 传感器, 采用非接触调频模式.

3 结果与讨论

EuIn_2As_2 具有 $P6_3/mmc$ 空间群, Eu^{2+} 阳离子层与 $[\text{In}_2\text{As}_2]^{2-}$ 结构沿着 c 方向交替堆叠, 如图 1(a) 所示. 晶格常数为 $a = 4.2 \text{ \AA}$, $c = 17.9 \text{ \AA}$. 最近邻 Eu 层的间距为 c 方向晶格常数的一半, $c/2 = 8.95 \text{ \AA}$. 在 $[\text{In}_2\text{As}_2]^{2-}$ 结构内部, In–In 和 In–As 为共价结合, Eu^{2+} 与上下层的 As 之间是离子结合^[14]. 这种结构与 $\text{CaKFe}_4\text{As}_4$ 类似, Eu 类似于 Ca 和 K, 可以被看成是插层原子^[21]. 从能量角度看, EuIn_2As_2 存在两个易断键位置: In–In 键, 断裂后形成 In 的六角格子表面; 或者 Eu–As 键, 断裂后形成 Eu 或者 As 的截止面. 图 1(b) 是单晶 X 射线衍射的结果, 可以看到一系列清晰的 (00L) 晶面衍射峰, 说明实验使用的晶体拥有很高的质量.

图 1(c) 是解理后的 EuIn_2As_2 样品表面的 STM 形貌图. 可以看到, 图中存在一个凸台状的台阶, 图 1(c) 中的插图显示了形貌图中沿黄线的高度轮廓, 可以看到台阶的高度约为 $8.95 \text{ \AA} = c/2$. 经过大量观测, 绝大多数相邻台阶的高度差为 $c/2$ 或其整数倍. 台阶表面是亮暗条纹构成的有序结构, 如图 1(d) 所示, 以下称之为条纹面. 极少数情况下, 观测到一种条纹方向多变、形似迷宫的表面, 以下称之为迷宫面. 如图 1(e) 所示, 左下角高亮的区域是上层台阶, 下层台面最右侧是常见的条纹面, 在条纹面与上层台阶之间是迷宫面. 两种表面沿着黄线的高度轮廓如图 1(e) 的插图所示. 可以看到迷宫面起伏较大, 亮暗条纹高度差约 1 \AA , 而条纹面

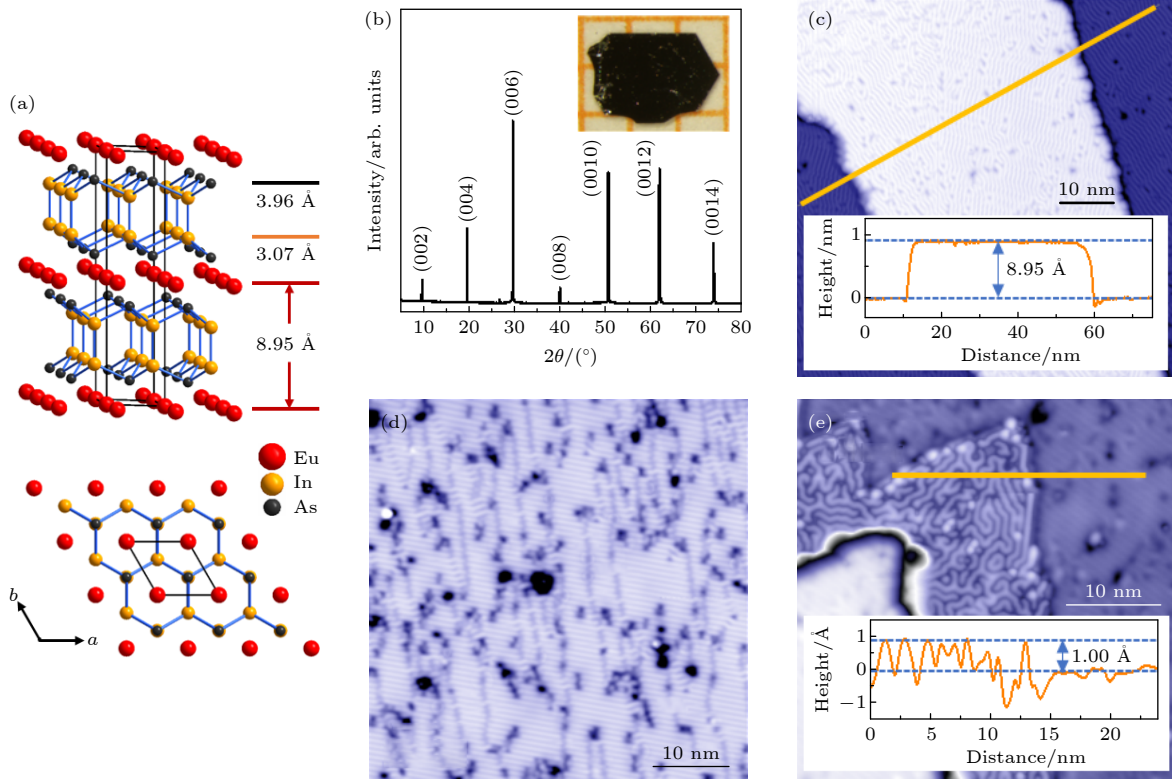


图 1 EuIn_2As_2 的晶格结构和表面形貌 (a) EuIn_2As_2 的晶格结构示意图, 图中所示 Eu-Eu , Eu-In , In-As 原子层间距分别是 8.95, 3.07, 3.96 Å; (b) EuIn_2As_2 的 X 射线衍射图案, 插图是典型 EuIn_2As_2 单晶的照片; (c) 包含台阶的大范围 STM 形貌图 ($V_s = 1 \text{ V}$, $I = 100 \text{ pA}$), 插图是沿着图中黄线所标示位置的高度轮廓, 台阶高度 8.95 Å, 与晶格常数的一半 $c/2 = 8.95 \text{ Å}$ 一致; (d) 典型的条纹面 STM 形貌 ($V_s = 1 \text{ V}$, $I = 1 \text{ nA}$); (e) 包含迷宫状结构的 STM 形貌图 ($V_s = -200 \text{ mV}$, $I = 20 \text{ pA}$), 图中左下角为上层台阶, 右侧为条纹面, 插图是沿着图中黄线所标示位置的高度轮廓, 迷宫面与条纹面高度差约 1 Å

Fig. 1. Crystal structure and surface morphologies of EuIn_2As_2 . (a) Schematic crystal structure of EuIn_2As_2 , where the interlayer distance Eu-Eu , Eu-In , and In-As is 8.95, 3.07, and 3.96 Å, respectively. (b) X-ray diffraction pattern of EuIn_2As_2 crystal. The inset is a picture of typical EuIn_2As_2 single crystal. (c) Large scale STM topography showing step edges ($V_s = 1 \text{ V}$, $I = 100 \text{ pA}$). Inset is the height profile along yellow line, the step height is 8.95 Å, which is consistent with half unit cell $c/2 = 8.95 \text{ Å}$. (d) STM topography of typical stripe surface ($V_s = 1 \text{ V}$, $I = 1 \text{ nA}$). (e) STM topography containing a maze-like structure ($V_s = -200 \text{ mV}$, $I = 20 \text{ pA}$), which is located between a higher step (left bottom) and a stripe surface (right part). The inset is the height profile along yellow line. The step height between maze-like surface and stripe surface is about 1 Å.

起伏小, 亮暗条纹高度差约 0.1 Å. 简洁起见, 以下用迷宫面亮条纹的高度指代迷宫面的高度. 迷宫面比条纹面高约 1 Å, 迷宫面的暗条纹与条纹面表现高度相当.

如果材料解理时, 两种可能断键的位置 (In-In 键和 Eu-As 键) 都发生断裂, 将会出现复杂的台阶高度, 如 In 和 Eu 面的台阶高度 3.07 Å, In 和 As 面的台阶高度 3.96 Å 等, 如图 1(a) 所示, 大量实验中从未观测到这些台阶高度. 因此可推测样品只在 In-In 或 Eu-As 中一处断键. 为了探究解理面的截止情况, 本文对两种表面结构做了详细的研究.

图 2(a) 是条纹面上获得的 STM 形貌图, 可以看到亮条纹覆盖整个表面. 条纹上存在一些转折和空洞构成的断点, 这导致亮条纹表现为不连续的线

段. 但条纹整体呈现一定的方向性, 这种方向性可以在微米尺度保持. 图 2(b) 是同一区域的原子分辨 STM 形貌图, 亮条纹内原子间距为晶格常数 a , 亮条纹间原子间距约 7.27 Å, 这个数值符合 EuIn_2As_2 面内六角格子的次近邻原子间距 $\sqrt{3}a$, 图 2(b) 中标注了晶格常数为 a 的六角格子点阵, 可以看出条纹面具有 1×2 重构. 图 2(c) 是图 2(a) 的快速傅里叶变换 (fast Fourier transform, FFT), 图中黄色箭头标注的两个锐利的点, 源于形貌图中的平行条纹, 红圈中的 6 个红点是图 2(b) 中标注的六角格子对应的布拉格点. 二者对比, 这两个锐利的点恰好位于 Γ 点到布拉格点的中点位置, 再次表明亮条纹具有固定的间距, 其间距为次近邻原子的间距. FFT 中锐利的点旁边存在较暗的横线, 它源于

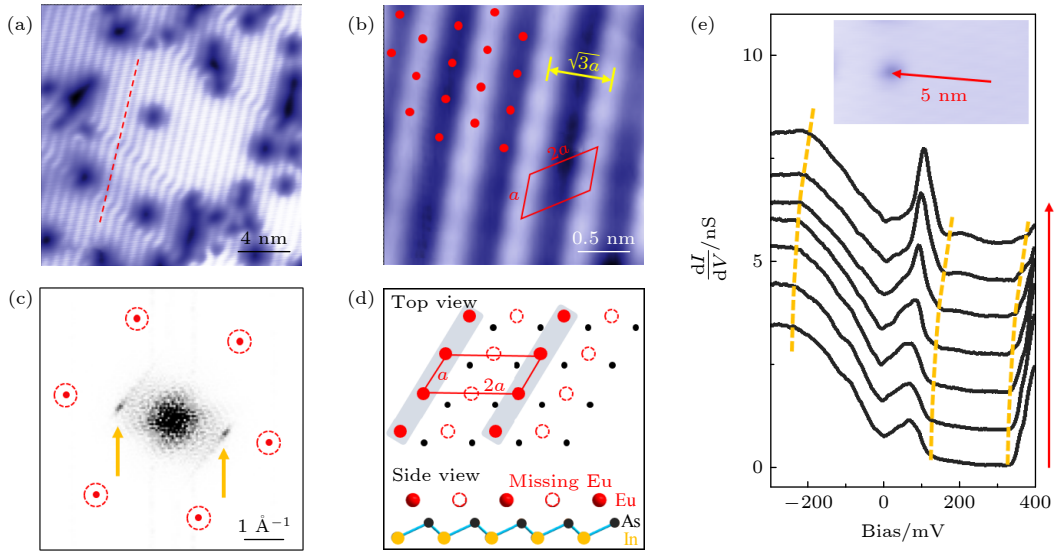


图2 条纹面的结构 (a) 条纹面的STM形貌 ($V_s = 1$ V, $I = 200$ pA), 沿图中红色虚线条纹转折一次错位半个周期, 深蓝色区域为表面缺陷; (b) 条纹面的原子分辨像 ($V_s = -2$ mV, $I = 1$ nA), 红色平行四边形表示重构后的原胞, 红色点阵代表表面内晶格格点; (c) 图(a)的FFT, 黄色箭头所示为条纹的周期, 红色圆圈标注的六个红点代表图(b)所标注六角格子的布拉格点; (d) 条纹面的原子排布示意图, 暗红色球代表观测到的Eu原子, 红色虚线圆圈代表亮条纹之间丢失的Eu原子, 黑色/黄色点代表Eu层以下的As/In原子; (e) 跨条纹上空位缺陷的STS谱, 插图中红线标出了测谱位置, 测谱条件为 $V_s = 400$ mV, $I = 200$ pA, 调制电压幅度5 mV, 图中黄色虚线帮助示意STS曲线中的特征随空间的演变

Fig. 2. Structure of stripe surface. (a) STM topography of stripe surface ($V_s = 1$ V, $I = 200$ pA), the stripe shifts half unit cell along the red dashed line. Dark blue areas are surface defects. (b) Atomic resolved STM image of stripe surface ($V_s = -2$ mV, $I = 1$ nA), the red parallelogram shows the doubled unit cell, the red spots are superposed in-plane lattice structure. (c) FFT image of panel (a). The stripe modulation is marked by yellow arrows. The superposed six red dots marked by dashed red circles are the simulated Bragg points of the inserted hexagonal lattice in panel (b). (d) Schematic drawings of atomic arrangement on the stripe surface. Dark red spheres show the observed Eu atomic chain, dashed red circles show the missing Eu atoms between light stripes, black/yellow dots show the As/In atoms beneath the Eu layer. (e) STS taken across a vacancy in a stripe surface, the position is marked as the red line in the inset topographic image. Spectra are taken at $V_s = 400$ mV, $I = 200$ pA, with modulation 5 mV. The yellow dashed lines are guided for the spatial evolution of STS.

条纹的之字形转折, 沿着图2(a)中的红色虚线方向, 亮条纹转折前后错位半个周期。

原子可以通过形成双聚体以减少悬挂键, 进而形成条纹结构, 比如半导体Si(100) 2×1 的重构^[22,23]. EuIn_2As_2 的原子分辨形貌图表明亮条纹不是双聚体, 而是单原子链. 在亮条纹之间, 没有观测到轮廓清晰位置明确的原子像, 对应丢失的原子链. 可见样品表面形成 1×2 非保守重构 (non-conservative reconstruction), 只有50%覆盖度, 如图2(d)所示. 如果样品在In-In处解理, 断键后In原子将形成100%覆盖度的表面, 与观测结果不符. 因此, 可以推测解理样品在Eu-As处断键, 形成了50%覆盖度且具有 1×2 重构的Eu原子表面. 谱学研究进一步确认了截止面的原子种类. 材料中的缺陷或元素替代可以带来掺杂效应, 比如阳离子的缺位导致空穴型掺杂, STS (dI/dV) 曲线将向高能方向移动. 我们研究了 EuIn_2As_2 条纹面上广

泛存在的空洞, 这些空洞在不同偏压下都表现为凹坑, 因此认为空洞对应原子的缺位. 图2(e)是条纹面上从远离缺陷位置到空洞的STS, 随着向空洞靠近, STS曲线整体向高能方向移动, 大量的实验表明, 空穴型掺杂的结论也适用于条纹面上其他尺寸的空洞, 且空洞尺寸越大能量移动越大. 这与条纹面是Eu面一致.

图3(a)给出了条纹面上大能量范围的STS, 在-1.5 V左右态密度开始明显抬升, 与ARPES实验^[13,18]和理论计算^[10,24]确定的Eu 4f电子构成的平带对应. 此外, 条纹面上的STS在费米能附近会随温度演化. 如图3(b)所示, 4.2 K下材料处于反铁磁相, 费米能附近态密度存在非对称的谷-峰特征, 随着温度升高态密度谷逐渐变平, 在19 K左右达到饱和, 这个温度与反铁磁相变温度 T_N 接近, 表明其与反铁磁序密切相关. 在文献^[18]报道的变温ARPES实验中观测到了类似的现象: 当温度

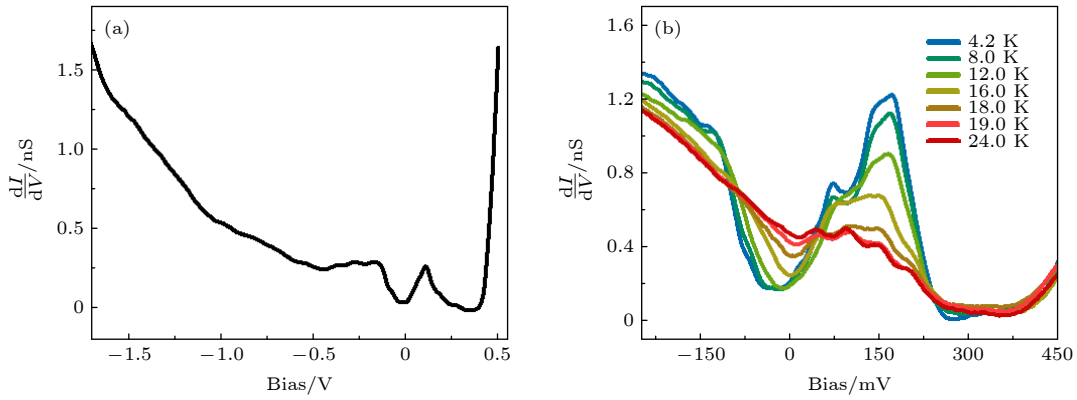


图 3 条纹面上的 STS (a) 大能量范围的 STS, 采谱条件为 $V_s = -1.7$ V, $I = 1$ nA, 调制电压为 10 mV; (b) 不同温度的 STS, 采谱条件为 $V_s = -250$ mV, $I = 200$ pA, 调制电压为 5 mV

Fig. 3. STS on stripe surface: (a) Large energy range STS, where the spectrum is taken at $V_s = -1.7$ V, $I = 1$ nA with modulation 10 mV; (b) STS taken at different temperatures, where the spectra are taken at $V_s = -250$ mV, $I = 200$ pA with modulation 5 mV.

$T = 6$ K 时, 在 Γ 点费米能以下 0.1 eV 附近存在“M”型的能带, 并在费米能附近打开一个能隙; 当 $T = 35$ K 时, “M”能带演化为跨过费米能的大展宽的能带. 通过 STS 谱也观测到正偏压处的态密度峰伴随反铁磁相变而发生演化, 如图 3(b) 所示, 随着温度升高, 态密度峰被压制, 在 18 K 以上达到饱和, 表明其与反铁磁相变有关. 而根据理论预测以及 ARPES 的观测结果, 与拓扑转变相关的能带信息正位于费米能以上, 即正偏压的位置. 但是, 由于表面重构可以导致复杂的表面态, STS 实验很难直接识别出拓扑非平庸的表面态, 需要结合理论计算等做进一步的分析.

在确定条纹面的情况后, 可以进一步讨论迷宫面的结构特征. 在少数台阶内边缘附近 (即靠近相邻更高台阶的区域), 可以观测到如图 1(e) 所示的迷宫结构, 其尺度通常小于 20 nm. 图 4(a) 是迷宫面的原子分辨形貌图. 可以看到迷宫面没有显著的空洞缺陷, 亮条纹由单原子链组成, 原子链在 nm 尺度发生方向的改变, 在每个转折点亮条纹方向改变 120° .

图 4(a) 中左上角的插图是形貌图对应的 FFT, 图中外围 6 个清晰的点与布拉格点一致, 这表明亮条纹中的原子位于六角格子上. 在更高分辨的原子像 (如图 4(b)) 中, 观测到链内原子间距为晶格常数 a , 平直亮条纹的间距为 $\sqrt{3}a$, 在亮条纹间的暗缝中也存在原子, 这些原子位于图中红色矩形的中心位置, 与亮条纹上的原子一道构成完整的六角格子. 从对称性角度分析, 如果暗缝中看到的原子来自晶格的下一原子层, 那么它应该位于矩形的边长上. 所以, 一种更自然的情况是, 所有原子来自

同一原子层, 但是原子发生了 c 方向的上下翘曲, 导致亮暗条纹的出现. 这种程度的上下翘曲在其他材料中也有报道, 如 Si 和 Ge (111) 2×2 表面分别发生了 0.52 和 0.8 Å 的翘曲^[25], 而 BaFe_2As_2 的 As 原子面翘曲高度约 0.1 Å^[26].

台阶高度是分析不同原子面的重要参数. 但 STM 所测的表观高度容易受费米能附近的局域态密度影响, 而 AFM 形貌更接近原子实的实际位置^[27]. 图 4(c) 是 STM 和 AFM 在同一台阶区域的形貌图, STM 测得迷宫面高出条纹面的表观高度差 (1.3 Å) 与 AFM 的观测结果 (1.1 Å) 基本一致, 这表明 STM 表观高度差比较真实地反映了原子实的位置. 迷宫面的原子不可能来自比 Eu 更矮的原子层. 若来自 Eu 以上的 As 原子层, 意味着 As-In 共价键发生断裂, 这在能量上不支持, 而且此处断键应产生丰富的台阶高度差, 与实验观测不符. 一种更合理的情形是, 同一层的 Eu 原子发生 c 方向的偏离, 形成迷宫状的翘曲结构.

迷宫面原子这种高低分布的构型并不稳定, 微小的电压脉冲可以改变迷宫面的局部原子排布. 图 4(d) 和图 4(e) 是 400 mV 电压脉冲在红圈位置作用前后, 迷宫面的形貌变化, 红圈处条纹由连通变成断点, 有趣的是, 在距离针尖 2 nm 远的黄圈处, 条纹形状由中断变成连通. 这个过程中, 亮暗原子的个数没有发生变化. 针尖在迷宫面扫图时, 当偏压大于 500 mV, 会持续改变迷宫面的形貌. 对微弱电场的敏感表明迷宫面结构不稳定, 原子容易被针尖操纵. 在 Si (111) 表面沉积金属原子的实验中也观测到了类似的现象^[28]. 需要指出, 现有的观测结果, 并不能完全确定迷宫面的结构起源.

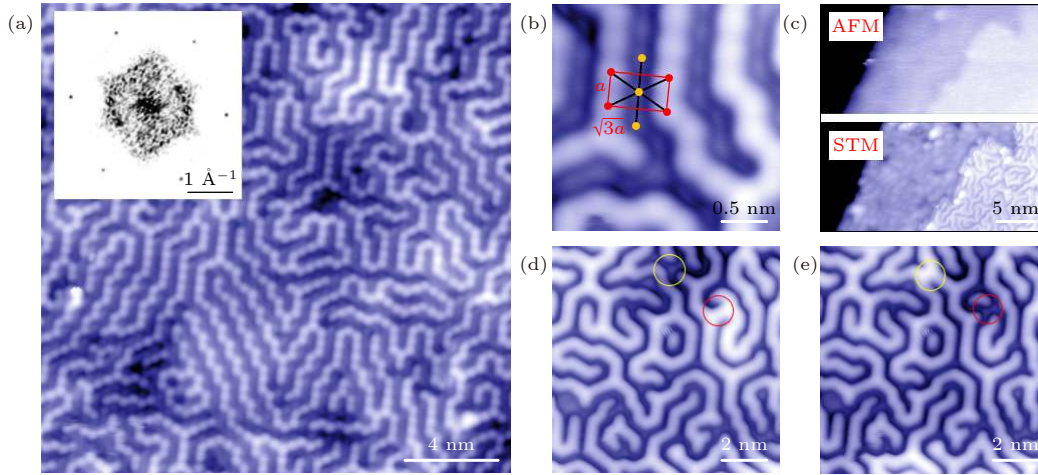


图 4 迷宫面的结构 (a) 迷宫面的原子分辨图 ($V_s = 10$ mV, $I = 100$ pA), 插图是相应的 FFT 图; (b) 小范围的原子分辨 STM 形貌图 ($V_s = 10$ mV, $I = 100$ pA), 暗条纹中可以看到清晰的原子, 原子位置图中用黄球标示; (c) 迷宫面和条纹面台阶的 AFM (上图) 和 STM (下图) 形貌图, 图中左侧暗区为下层台面, 中部为条纹面, 最右侧为迷宫面, AFM/STM 观测的台阶高度为 $1.1 \text{ \AA}/1.3 \text{ \AA}$; (d), (e) 迷宫面在电压脉冲下的不稳定性, 在 (d) 中红色圆圈内施加 400 mV 的电压脉冲, 表面原子排布变为 (e) 图所示, 其中黄圈位置的原子由暗变亮, 红圈位置的原子由亮变暗

Fig. 4. Structure of the maze-like surface. (a) Atomic resolved STM image of maze-like surface ($V_s = 10$ mV, $I = 100$ pA), with corresponding FFT image inserted. (b) Small scale atomic resolved STM topography ($V_s = 10$ mV, $I = 100$ pA), atoms in the dark stripes, which are marked by yellow dots, are clearly visible. (c) AFM (up panel) and STM (down panel) topography of the step coexisting of maze (right) and stripe (middle) surface. Step height from AFM (STM) is 1.1 \AA (1.3 \AA). (d), (e) Surface topography evolution under a voltage pulse showing the metastability of the maze-like pattern. A 400 mV voltage pulse is applied in the red circle of panel (d), leading to a rearrangement of atoms in both red and yellow circles from panel (d) to panel (e).

类似 EuIn_2As_2 中迷宫面的特征, 在很多表面沉积实验中都有报道, 如 $\text{C60}/\text{Cu}(111)$ 的迷宫状图案^[29], $\text{Sn}_{(1-x)}\text{-Si}_x/\text{Si}(111)$ 中的马赛克图案^[30]. 在六角格子的系统中, 自旋阻挫是一个广为人知的现象^[31,32], $\text{C60}/\text{Cu}(111)$, $\text{Sn}_{(1-x)}\text{-Si}_x/\text{Si}(111)$ 体系中所观察到的迷宫/马赛克结构被认为是一种阻挫效应, 利用蒙特卡罗模拟, 二维六角格子上的反铁磁伊辛模型能很好地复现实验结果^[29,30]. 这些结果为分析 EuIn_2As_2 的迷宫面成因提供了线索, EuIn_2As_2 可能是研究二维六角格子上反铁磁伊辛模型的原子级实验平台.

4 结 论

本文用 STM 研究了 EuIn_2As_2 的表面原子与电子结构. 低温解理的样品表面, 以条纹面为主, 通过对表面结构及局域电子态的分析, 认为条纹面是 Eu 原子 50% 覆盖度的 1×2 重构表面. 对条纹面的 STS 测量, 观测到费米能附近态密度随温度演化, 该演化与反铁磁相变有很强的关联. 此外, 解理面伴随少量的迷宫状结构, 根据 STM/AFM 形貌图, 认为它可能是 Eu 原子形成的翘曲结构.

对表面原子排布的准确表征和对局域态密度的测量, 为进一步研究 EuIn_2As_2 的表面电子结构以及可能的拓扑性质提供了重要信息.

感谢中国科学院物理研究所翁红明研究员、德国马克斯-普朗克研究所徐远峰博士对材料拓扑性质的讨论, 感谢中国科学院物理研究所方辰研究员、周毅研究员对迷宫面结构的讨论, 感谢中国科学院大学张余洋副教授关于样品解理位置的讨论.

参考文献

- [1] Tokura Y, Yasuda K, Tsukazaki A 2019 *Nat. Rev. Phys.* **1** 126
- [2] Yu R, Zhang W, Zhang H J, Zhang S C, Dai X, Fang Z 2010 *Science* **329** 61
- [3] Nenno D M, Garcia C A C, Gooth J, Felser C, Narang P 2020 *Nat. Rev. Phys.* **2** 682
- [4] Qi X L, Hughes T L, Zhang S C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 184516
- [5] Liu Q, Liu C X, Xu C, Qi X L, Zhang S C 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 156603
- [6] Katmis F, Lauter V, Nogueira F S, Assaf B A, Jamer M E, Wei P, Satpati B, Freeland J W, Eremin I, Heiman D, Jarillo-Herrero P, Moodera J S 2016 *Nature* **533** 513
- [7] Li J, Li Y, Du S, Wang Z, Gu B L, Zhang S C, He K, Duan W, Xu Y 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw5685
- [8] Deng Y, Yu Y, Shi M Z, Guo Z, Xu Z, Wang J, Chen X H,

- Zhang Y 2020 *Science* **367** 895
- [9] Liang Z, Luo A, Shi M, Zhang Q, Nie S, Ying J J, He J F, Wu T, Wang Z, Xu G, Wang Z, Chen X H 2020 *Phys. Rev. B* **102** 161115
- [10] Xu Y, Song Z, Wang Z, Weng H, Dai X 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 256402
- [11] Li H, Gao S Y, Duan S F, Xu Y F, Zhu K J, Tian S J, Gao J C, Fan W H, Rao Z C, Huang J R, Li J J, Yan D Y, Liu Z T, Liu W L, Huang Y B, Li Y L, Liu Y, Zhang G B, Zhang P, Kondo T, Shin S, Lei H C, Shi Y G, Zhang W T, Weng H M, Qian T, Ding H 2019 *Phys. Rev. X* **9** 041039
- [12] Gui X, Pletikoscic I, Cao H, Tien H J, Xu X, Zhong R, Wang G, Chang T R, Jia S, Valla T, Xie W, Cava R J 2019 *ACS Cent. Sci.* **5** 900
- [13] Zhang Y, Deng K, Zhang X, Wang M, Wang Y, Liu C, Mei J W, Kumar S, Schwier E F, Shimada K, Chen C, Shen B 2020 *Phys. Rev. B* **101** 205126
- [14] Goforth A M, Klavins P, Fettinger J C, Kauzlarich S M 2008 *Inorg. Chem.* **47** 11048
- [15] Yu F H, Mu H M, Zhuo W Z, Wang Z Y, Wang Z F, Ying J J, Chen X H 2020 *Phys. Rev. B* **102** 180404
- [16] Rosa P F S, Adriano C, Garitezi T M, Ribeiro R A, Fisk Z, Pagliuso P G 2012 *Phys. Rev. B* **86** 094408
- [17] Riberolles S X M, Trevisan T V, Kuthanazhi B, Heitmann T W, Ye F, Johnston D C, Bud'ko S L, Ryan D H, Canfield P C, Kreyssig A, Vishwanath A, McQueeney R J, Wang L L, Orth P P, Ueland B G 2021 *Nat. Commun.* **12** 999
- [18] Sato T, Wang Z, Takane D, Souma S, Cui C, Li Y, Nakayama K, Kawakami T, Kubota Y, Cacho C, Kim T K, Arab A, Strocov V N, Yao Y, Takahashi T 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 033342
- [19] Regmi S, Hosen M M, Ghosh B, Singh B, Dhakal G, Sims C, Wang B, Kabir F, Dimitri K, Liu Y, Agarwal A, Lin H, Kaczorowski D, Bansil A, Neupane M 2020 *Phys. Rev. B* **102** 165153
- [20] Lv B Q, Weng H M, Fu B B, Wang X P, Miao H, Ma J, Richard P, Huang X C, Zhao L X, Chen G F, Fang Z, Dai X, Qian T, Ding H 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031013
- [21] Cao L, Song Y, Liu Y B, Zheng Q, Han G, Liu W, Li M, Chen H, Xing Y, Cao G H, Ding H, Lin X, Du S, Zhang Y Y, Li G, Wang Z, Gao H J 2021 *Nano Res.* DOI: 10.1007/s12274-021-3316-0
- [22] Wiesendanger R, Bürgler D, Tarrach G, Güntherodt H J 1990 *Surf. Sci.* **232** 1
- [23] Oura K, Lifshits V, Saranin A, Zotov A, Katayama M 2013 *Surface Science: an Introduction* (Berlin: Springer Science & Business Media) pp181–183
- [24] Singh N, Schwingenschlögl U 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 151906
- [25] Nie S, Feenstra R M, Lee J Y, Kang M H 2004 *J. Vac. Sci. Technol. A* **22** 1671
- [26] Gao M, Ma F, Lu Z Y, Xiang T 2010 *Phys. Rev. B* **81** 193409
- [27] Mao H Q, Li N, Chen X, Xue Q K 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 066802
- [28] Denisov N V, Chukurov E N, Luniakov Y V, Utas O A, Azatyan S G, Yakovlev A A, Zotov A V, Saranin A A 2014 *Surf. Sci.* **623** 17
- [29] Pai W W, Hsu C L, Lin M C, Lin K C, Tang T B 2004 *Phys. Rev. B* **69** 125405
- [30] Ottaviano L, Ressel B, Di Teodoro C, Profeta G, Santucci S, Cháb V, Prince K C 2003 *Phys. Rev. B* **67** 045401
- [31] Kawamura H 1998 *J. Phys. Condens. Matter* **10** 4707
- [32] Zhou Y, Kanoda K, Ng T K 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 025003

Surface and electronic structure of antiferromagnetic axion insulator candidate EuIn_2As_2 *

Li Yuan¹⁾²⁾ Deng Han-Bin¹⁾²⁾ Wang Cui-Xiang¹⁾²⁾ Li Shuai-Shuai¹⁾²⁾
 Liu Li-Min¹⁾²⁾ Zhu Chang-Jiang¹⁾²⁾ Jia Ke¹⁾²⁾ Sun Ying-Kai¹⁾²⁾
 Du Xin¹⁾²⁾ Yu Xin¹⁾ Guan Tong¹⁾²⁾ Wu Rui¹⁾³⁾ Zhang Shu-Yuan⁴⁾
 Shi You-Guo¹⁾³⁾⁵⁾ Mao Han-Qing^{1)†}

1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

4) (*Department of Physics, Cornell University, Ithaca 14853, USA*)

5) (*Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 23 April 2021; revised manuscript received 10 May 2021)

Abstract

The interplay between non-trivial band topology and magnetic order can induce exotic quantum phenomena, such as the quantum anomalous Hall effect and axion insulator state. A prevalent approach to realizing such topological states is either by magnetic doping or through heterostructure engineering, while the former will bring in inhomogeneity and the latter requires complex procedures. Intrinsic magnetic topological insulators are expected to avoid the aforementioned disadvantages, which is of great significance in both studying and practically using these exotic quantum phenomena. Recently, a Zintl compound EuIn_2As_2 is predicted to be an intrinsic antiferromagnetic axion insulator. The bulk magnetic order of EuIn_2As_2 has been reported in a lot of experiments, while the topological nature has not yet been confirmed. The surface properties of intrinsic magnetic topological insulators play an important role in the interplay between magnetic order and non-trivial surface state. Here in this work, we study the surface structure and electronic property of EuIn_2As_2 single crystal by using scanning tunneling microscopy/spectroscopy (STM/S) and non-contact atomic force microscopy (NC-AFM). Considering the strength of bonds, the easy cleavage plane of the crystals possibly lies between In-In layers or between Eu-As layers. The STM topographies show that the cleaved surface is dominated by a striped pattern. And the dominated step height is an integer multiple of $c/2$, which implies that only one kind of cleavage plane is preferred. Atomic-resolved surface topographies show that the striped pattern is the 1×2 surface reconstruction with 50% coverage. Hence an In-terminated surface which will be 100% coverage is ruled out. The spatial evolution of STS near vacancies on the striped pattern shows a hole-doping feature. All of these results reveal that the striped pattern is the 1×2 surface reconstruction of the Eu terminated surface with 50% coverage. Using the STS, we measure the local densities of states on the striped surface at various temperatures. We find that there is an asymmetric valley-peak feature in the density of states

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2016YFA0300602, 2016YFA0302400, 2017YFA0302903), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11227903), the Beijing Municipal Science and Technology Commission, China (Grant Nos. Z181100004218007, Z191100007219011), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB921304), and the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. XDB07000000, XDB28000000, XDB33000000).

† Corresponding author. E-mail: mhq@iphy.ac.cn

near the Fermi energy at 4 K, which is gradually weakened with increasing temperature, and disappears above the antiferromagnetic Néel temperature, indicating that the asymmetric valley-peak feature is closely related to the antiferromagnetic order. Besides, a maze-like pattern is observed occasionally near some step edges. The STM topographies show atoms both on bright and dark stripes of the maze-like pattern, which form a whole hexagonal lattice. And the NC-AFM images show that the maze-like pattern is about 1 Å higher than the Eu terminated striped pattern. Based on these results, the maze-like pattern can be explained as the buckled Eu surface with 100% coverage. These results provide important information for understanding the surface electronic band structure and topological nature of EuIn_2As_2 .

Keywords: scanning tunneling microscopy, EuIn_2As_2 , magnetic topological insulator, surface reconstruction

PACS: 68.37.Ef, 03.65.Vf, 68.35.B-

DOI: [10.7498/aps.70.20210783](https://doi.org/10.7498/aps.70.20210783)