



Tokyo Tech

2020年4月28日

報道機関各位

東京工業大学

## 自然磁気ヘテロ構造を利用した単層磁石へのアプローチ

### 【要点】

- 磁性層と非磁性層からなる磁気ヘテロ構造のバルク物質 $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)_m(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ の発見と合成
- 本結晶を用いた2次元単層磁石の提案
- トポロジカル物性と2次元磁石を研究するためのプラットフォームになるものと期待される

### 【概要】

東京工業大学 元素戦略研究センターの Wu Jiazhen (鄔家臻) 特任助教と細野秀雄 名誉教授らは磁性元素  $\text{Mn}^{2+}$  を含む  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  層と非磁性の  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  層がファンデルワールス力で結合したヘテロ構造  $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$  ( $n$  は整数) をもつ物質を発見し、その単結晶合成に成功したことを昨年 11 月に米科学誌 *Science Advances* に発表している。本研究ではその単結晶を用いて、非磁性層の厚さ ( $n$ ) を調節することで、 $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$  における磁性制御を行った。磁気的特性は交流磁化率を測定し、磁気モーメント緩和挙動を通して評価した。 $n=2,3$  の場合、外部磁場に対する明確な磁化率の緩和が観測された。これは層間距離が短い  $n=0,1$  の時には見られない現象であり、非磁性層を増やすことで層間のスピнкаップリングを減らし、今まで得ることができなかったバルクの 2 次元磁石が実現したことが示唆される結果である。本物質は、エピタキシャル成長による薄膜を必要とせず、簡便なフラックス法により単結晶が合成できるので、トポロジカル物性と 2 次元磁石を研究するためのプラットフォームになるものと期待できる。本成果は独の科学誌 *Advanced Materials* の速報として 4 月 24 日にオンライン公開された。

## ●研究の背景

低次元磁石や**磁氣的基底状態**（用語 1）は L. Onsager（ラルス・オンサーガー）らによる初期の理論的研究以来、物性物理の課題の一つである。1次元物質では長距離秩序の形成は不可能である一方、2次元磁石は基礎的側面だけでなく、デジタルデータメモリや量子コンピューティングなど応用面でも関心を集めている。しかし、単原子層を有する2次元磁石は実験的に実現が難しく、今まで  $\text{CrI}_3$ （三ヨウ化クロム）や  $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ （Ferromagnetic metal/強磁性金属）のような2次元ファンデルワールス結晶をはく離することでしか得られなかった。

以上の観点から、磁性層と非磁性層の2次元磁氣的ヘテロ構造（用語 2）を自然に有する物質は理想的な2次元磁石が得られる舞台として着目されている。また、トンネル磁気抵抗や量子異常ホール効果（用語 3）のようなエキゾチックな物性を示す舞台になることが期待されている。

## ●本研究のアプローチ

Wu Jiazhen 特任教授、細野栄誉教授らは  $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$  という磁性層  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  と非磁性層  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  が交互に積層された化合物が存在することを見出し、その単結晶の合成に成功していた。

バルクの  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  ( $n=0$ ) と  $\text{MnBi}_4\text{Te}_7$  ( $n=1$ ) は反強磁性のトポロジカル絶縁体（用語 4）であり、これらの層間の距離を  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  層の数  $n$  の値を変えることで図1のように制御できれば磁性層間の磁氣的相互作用を系統的に調べることができる。

このようなヘテロ構造は薄膜エピタキシャル法で交互に積層する方法で作製するのが一般的だが、歪みや欠陥が入りやすいという問題があった。バルクの単結晶が熱的に合成できれば、より理想的なヘテロ接合になり得る。

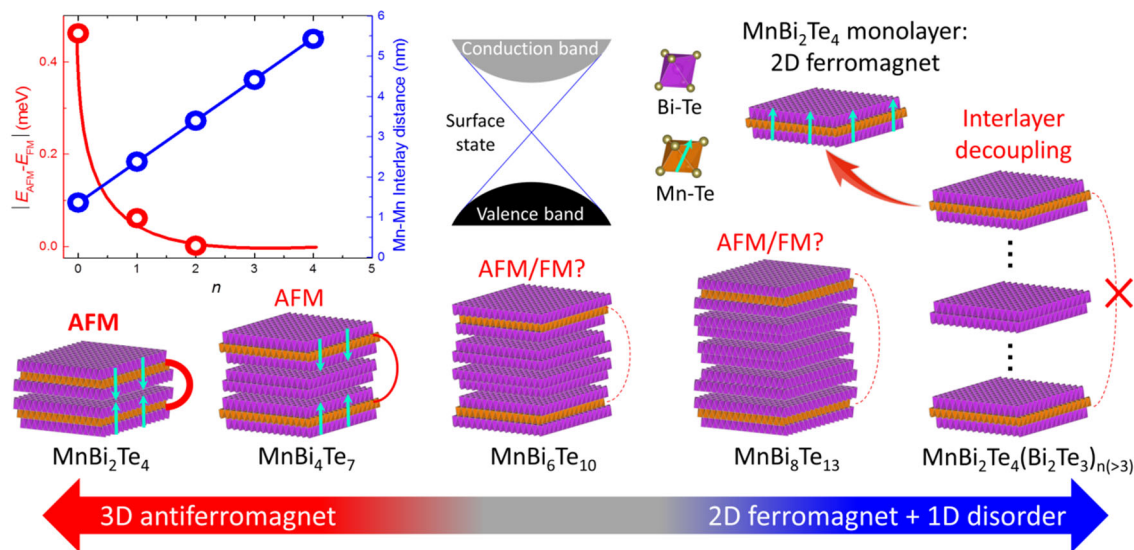


図1 トポロジカル絶縁体  $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$  の磁気構造の発展

## ●結果

### (1) 自然磁気ヘテロ構造の観察

単結晶はフラックス法（用語 5）で合成された。明確なファンデルワールスギャップによって分離されたヘテロ構造の形成が形成されていることは図 2 の原子分解能 STEM（走査型透過電子顕微鏡）像から明らかである。単結晶の育成温度域は非常に狭いが、磁氣的ヘテロ構造が熱力学的に安定化し、単結晶として合成することができた。

### (2) 層間の磁氣的デカップリングの証拠

理論計算と実験的観察から  $n=2$  以上で層間磁性のデカップリングが始まることが示された。デカップリングは交流磁化測定によって調べた。図 3 に示すように 10K 以下ではゆっくりとした磁気緩和が明確に観察された。この緩和は層間のスピンの回転や層内のドメイン壁の運動によるものと考えられ、層間の磁氣的カップリングが十分に弱くなる時のみ生じる。これらの結果から図 4 に示す磁気相図を明らかにできた。

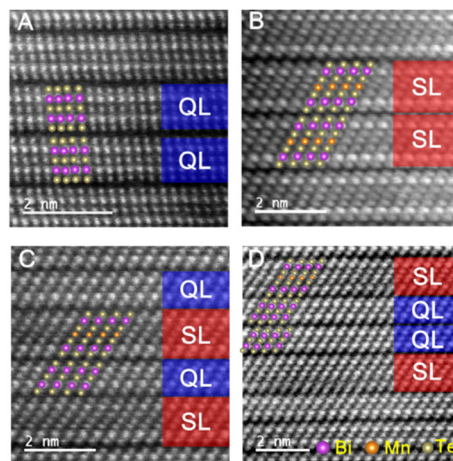


図 2 高分解能電子顕微鏡像（HAADF-STEM 像）

A :  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 、B :  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$ 、C :  $\text{MnBi}_4\text{Te}_7$ 、D :  $\text{MnBi}_6\text{Te}_{10}$

QL : 5 原子層からなる  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 、SL : 7 原子層からなる  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$

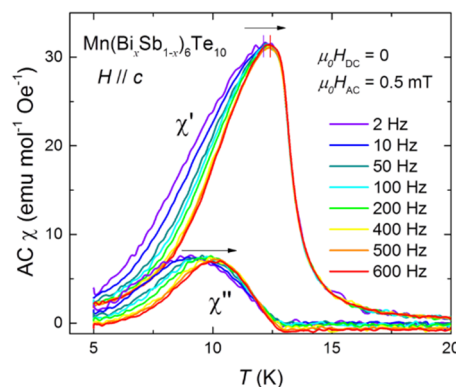


図 3  $\text{Mn}(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_6\text{Te}_{10}$  単結晶の交流磁化率

$\chi'$  と  $\chi''$  における緩和が 13K 以下の温度領域で見られる。

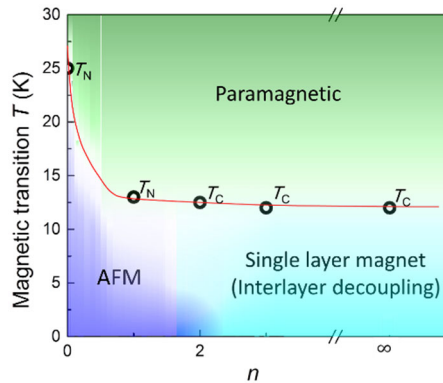


図 4  $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ での磁気相図

### ●今後の展開

本物質はバルクの2次元磁性の研究に適したプラットフォームを提供する。また、 $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)_m(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ はトポロジカル絶縁体でもあるため、2次元磁性とトポロジカル表面状態が協奏するエキゾチックな物性の発現が期待される。

### ●謝辞

本成果は科学研究費補助金 (No. 17H06153)、文部科学省元素戦略プロジェクト<拠点形成型> (No.JPMXP0112101001)の支援を受けたものである。

### 【用語説明】

- (1) **磁氣的基底状態**：磁性体が持つ最も安定な磁気構造のこと。
- (2) **ヘテロ構造**：組成元素が異なる固体を接合することをヘテロ接合といい、この接合体からなる構造。
- (3) **量子異常ホール効果**：電子が磁場中を動くときローレンツ力によってその動きが曲げられる（ホール効果）。異常ホール効果では外部磁場の代わりに強磁性体のスピンモーメントによって生じる同様の効果を生じる。量子異常ホール効果ではホール抵抗値が量子化抵抗値によって関連付けられる。
- (4) **トポロジカル絶縁体**：物質の内部（バルク）は絶縁体で、エッジ（端）や表面では金属状態になっている物質。エッジで電流を担っている電子のスピンは片方だけになっている。
- (5) **フラックス法**：SnやTeなどの融点の低い物質の融体（フラックス）中に適当な元素を入れ、再結晶によって高品質な単結晶を育成する合成技術。

### 【論文情報】

掲載誌： *Science Advances*

論文タイトル： Natural van der Waals Heterostructural Single Crystals with both Magnetic and Topological Properties (磁性とトポロジカル性をあわせもつ自然ファンデルワールスヘテロ構造の単結晶)

著者： Jiazhen Wu, Fucui Liu, Masato Sasase, Koichiro Ienaga, Yukiko Obata, Ryu Yukawa, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, Satoshi Okuma, Takeshi Inoshita, Hideo Hosono

DOI： 10.1126/sciadv.aax9989

掲載誌： *Advance Materials*

論文タイトル： Toward 2D magnets in the  $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$  Bulk Crystal  
( $(\text{MnBi}_2\text{Te}_4)(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ バルク結晶における2次元磁石にむけて)

著者： Jiazhen Wu, Fucui Liu, Can Liu, Yong Wang, Changcun Li, Yangfan Lu, Satoru Matsuishi, and Hideo Hosono

DOI： 10.1002/adma.202001815

### 【問い合わせ先】

東京工業大学 元素戦略研究センター長 細野秀雄

Email: hosono@mces.titech.ac.jp

TEL: 045-924-5009

### 【取材申し込み先】

東京工業大学 総務部 広報・社会連携課

Email: media@jim.titech.ac.jp

TEL: 03-5734-2975 FAX: 03-5734-3661