

令和 5 年 6 月 27 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18590

研究課題名（和文）トポロジカルエキシトニクスの開拓

研究課題名（英文）topological Excitronics

研究代表者

Chen Yong (Chen, Yong)

東北大学・材料科学高等研究所・教授

研究者番号：30806732

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、三次元トポロジカル絶縁体の二次元ディラック電子物性に注目し、トポロジカル表面状態の二層構造において空間的に離れた電子と正孔のクーロン相互作用による二層エキシトン凝縮の実現を目的とした。バルクキャリアを伴わない理想的な二次元ディラックバンドを有するBiSbTeSe<sub>2</sub>トポロジカル絶縁体を利用して、二層のトポロジカル表面状態の距離を制御したナノデバイスを作製した。作製したデバイスにおいて、ゲート電圧により、キャリアを独立に制御することを試みた。また、磁性エキシトンの開拓に向けて、強磁性Cr<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>Te<sub>6</sub>、反強磁性CrI<sub>3</sub>を用いて、積層構造に依存して磁気特性が変化することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Cr<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>Te<sub>6</sub>の磁気特性が積層する酸化物、その積層順により変化することを明らかにした。その物理的要因が、スパッタ成膜した酸化物中の歪みが引き起こしたCr<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>Te<sub>6</sub>中の引っ張り歪みにあることを明らかにした。この結果は、二次元磁性材料を酸化物薄膜などと接合し歪みを導入することにより、磁気特性を変調し、デバイス応用時に求められる磁気特性へ調節できる可能性を示した。また、CrI<sub>3</sub>を用いたヘテロ構造では、反強磁性と強磁性が共存するモアレ磁性を観測し、そのモアレ磁性を電気的に変調できることを実証した。この結果は、新たなメモリやスピロジックデバイスへ応用できる可能性を示した。

研究成果の概要（英文）：This research aimed at the realization of interlayer exciton condensation in closely spaced double layers of three-dimensional topological insulators, where the electrons and holes of two-dimensional topological surface states are separated. We fabricated nano-devices of double layers of BiSbTeSe<sub>2</sub> topological insulators, which possessed an ideal two-dimensional Dirac band in the bulk band gap. And we tried to tune independently electron and hole carriers of the surface Dirac band in the double layers by gate voltage. In addition, towards exploring magnetic excitons, we revealed that magnetic properties of ferromagnetic Cr<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>Te<sub>6</sub> and antiferromagnetic CrI<sub>3</sub> strongly depended on their stacking structures.

研究分野：量子材料・量子デバイス

キーワード：トポロジカル物質 エキシトン 熱電素子

## 1. 研究開始当初の背景

エキシトンのボーズアインシュタイン凝縮温度は冷却原子凝縮温度を大幅に上回る予測から半世紀以上経っており (Blatt Phys. Rev. 1962, Keldysh JETP 1968)、クーロン相互作用が電子バンドの全幅で働くため強磁性並みの高い凝縮温度が期待されている (Min, MacDonald PRB 2008)。しかし室温におけるエキシトン超流動はまだ実現されていない。半導体の二次元量子井戸により電子とホールが空間的に離れた二層系において対消滅を抑制し、二次元の弱いクーロン遮蔽を利用した極低温・高磁場の量子ホール状態のエキシトン凝縮が 21 世紀に入って実現された (MacDonald, Nature 2004, Nat. Phys. 2008)。二次元ディラック電子バンドの純粋二次元性やフェルミ面を電氣的に制御できることから室温のエキシトン凝縮が期待されたグラフェン (Lozovik JETP 2007; Min, MacDonald PRB 2008) でも低温・高磁場の報告しかない (Liu, Nat. Phys. 2017)。一番高い温度は 100 K における二次元遷移金属ダイカルコゲナイドの報告であり (Wang, Nature 2019) 高温における安定なエキシトン超流動は長く期待されながらもまだ実現されていない課題である。

三次元トポロジカル絶縁体はグラフェンと共通するディラック電子物性のすべての利点に加え、シングルディラックコーンのためバレー散乱が無く、更にスピン・運動量ロッキングによって不純物散乱に強く、室温エキシトン凝縮に有望な系である (Seradjeh PRL 2009, Wang New. J. Phys. 2012)。これまでのところ、トポロジカル絶縁体エキシトンの実験報告は単一表面における光学的励起に限られている (Kung PNAS 2019; Hou Nat. Commun. 2019)。

## 2. 研究の目的

近年、トポロジカル絶縁体や二次元材料のヘテロ構造に関する材料・デバイス作製技術や物性研究が著しく発展し、研究代表者自身もこれまでトポロジカル材料の合成・デバイス作製・物性評価に関する研究を積み重ねてきた。そこで、本研究では、二次元ヘリカルディラックフェルミオンに基づいた二層エキシトン凝縮体の実現によって高効率の超流動エキシトン熱電素子や非散逸エキシトン情報素子を創成し、二次元ディラック電子物性を活かした“トポロジカルエキシトニクス”の学理構築を目的とした。

具体的には、三次元トポロジカル絶縁体の二次元ディラック電子物性に注目し、トポロジカル表面状態の二層構造において空間的に離れた電子と正孔のクーロン相互作用による二層エキシトン凝縮を実現し、トポロジカルエキシトンの新奇物性に基づいた熱・電気輸送を実装する。二層エキシトン系は従来の pn 接合熱電素子と同じ構造を持ち、キャリア相関やディラック電子物性の協奏によって高効率の熱電能 (ZT 指数 60 以上) が期待されている (Y. P. Chen 特許 US 2012/0138115 A1, Proc. SPIE 2012)。二層エキシトン超流動によって無散逸性の pn 接合が実現され、熱電素子や電子情報デバイスのパラダイムシフトを起こす。また、磁性エキシトンの開拓に向けて、二次元磁性材料のヘテロ構造を作製しその特性評価を行う。

本研究によって、トポロジカルエキシトン物性やトポロジカルエキシトン超流動の学理構築及びエキシトンの操作やエキシトン超流体を利用した高効率の熱電素子並びに低散逸性エキシトン情報素子の開拓に貢献する。

## 3. 研究の方法

本研究では始めに高品質な原子層を用いたヘテロ構造の作製を行った。ヘテロ構造の作製には、へき開面を光学顕微鏡にて観察しながらヘテロ構造を作製可能なトランスファーステージを用いた。二次元材料の特異性を保持するため、二次元材料の剥離・転写によるヘテロ構造作製を大気曝露なくグローブボックス内で行い、清浄表面・界面を有するヘテロ構造を作製した。研究グループが保有する多様な磁性・非磁性を制御した積層材料の単結晶材料データベースを用いることで、原子層の特異性を発現・計測するために必要な高品質な二次元材料を得た。二層のトポロジカル表面状態の距離を制御したナノデバイスの作製には、バルクキャリアを伴わない二次元ディラックバンドを有する良質な BiSbTeSe<sub>2</sub> トポロジカル絶縁体を利用した。さらに、二次元磁性材料ヘテロ構造には、強磁性 Cr<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>Te<sub>6</sub>、反強磁性 CrI<sub>3</sub> を用いた。

## 4. 研究成果

バルクキャリアを伴わない理想的な二次元ディラックバンドを有する BiSbTeSe<sub>2</sub> トポロジカル絶縁体を利用して、二層のトポロジカル表面状態の距離を制御したナノデバイスを作製した。作製したデバイスにおいて、ゲート電圧により、二層トポロジカル表面のキャリアを独立的に制御することを試みた。現在、得られた結果を解析している。また、理論計算から本研究課題にアプローチするため、DFT 用のラック型計算機を購入し、トポロジカル絶縁体/通常絶縁体/真空の三層構造を仮定して上下表面のバンド設計を行った。その結果、界面ではなく上下表面にトポロ

ジカルな異種キャリアの表面状態が形成されることがわかり、異種キャリアのため二層エキシトン形成する可能性があることをつかんだ。

強磁性二次元材料  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  を  $\text{NiO}$  薄膜（膜厚 20nm または 50nm）または  $\text{MgO}$  薄膜（膜厚 5nm）と接合してヘテロ構造を作製し、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  の磁気特性を詳細に調べた。 $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  を  $\text{NiO}$  薄膜（膜厚 20nm または 50nm）でキャップした場合、キュリー温度が 90K（膜厚 20nm）または 105K（膜厚 50nm）に、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  のキュリー温度 66K から上昇することがわかった。さらに、磁気光学カー効果による磁気ヒステリシス測定において保持力の増大が見られたことから、 $\text{NiO}$  薄膜をキャップすることにより、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  の垂直磁気異方性が増大することを明らかにした。一方、ヘテロ構造の積層順を逆にした場合、つまり  $\text{NiO}$  薄膜の上に  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  フレークを積層した試料においては、上述のような磁気特性の変化は見られなかった。また、 $\text{MgO}$  薄膜を用いた場合、積層順によらず、磁気特性の変化はなかった。光学顕微鏡観察から、 $\text{NiO}$  薄膜でキャップした  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  にのみ、 $\text{NiO}$  薄膜を成膜した際に生じた歪みに起因すると思われる『しわ (wrinkle)』が形成されることを発見した。ラマン分光により、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  に生じた歪みを調べたところ、引っ張り歪みが生じていることがわかり、しわに近づくにつれて歪みが大きくなることが明らかになった。引っ張り歪みを考慮した単層  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  において、キュリー温度の上昇が理論的に示唆されていることから (Zhang PRB 2019, Dong PRB 2020)、 $\text{NiO}$  薄膜をキャップした  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  で見られたキュリー温度の上昇と垂直磁気異方性の増大は  $\text{Cr}_2\text{Ge}_6\text{Te}_6$  中に生じた引っ張り歪みによると結論した。本研究結果は、二次元磁性材料を酸化物薄膜などと接合し歪みを導入することにより、磁気特性を変調し、デバイス応用時に求められる磁気特性へ調節できる可能性を示した。(A. E. Llacsahuanga Allica, *et al.*, AIP Advances 13, 015031 (2023))

層数が増えると磁性が劇的に変化する  $\text{CrI}_3$  を用いてヘテロ構造を作製し、積層角度（ツイスト角）による界面強磁性の変化について調べた。二層  $\text{CrI}_3$  を二組用意し、トランスファーステージを利用してツイスト角を制御し、ヘテロ構造を作製した。ツイスト角は、電子顕微鏡像から約 1.42 度と思われたが、実際は電子回折パターンから約 1.9 度と見積もられた。このヘテロ構造は、ツイスト角に起因する原子構造の周期とは異なる長周期を伴うモアレ超格子構造をとっていた。磁気光学カー効果顕微鏡により、反強磁性と強磁性が共存していることを明らかにした。これは、Cr 原子間距離がモアレ超格子により空間的に変調し、Cr 原子間に働く交換相互作用が変化することに起因すると考察し、理論的に提案されているモアレ磁性 (Akram NanoLett 2021) の観測に成功した。さらに、下側の  $\text{CrI}_3$  に数層のグラフェンをコンタクト電極として接触させ基板側から電圧を印加すると、そのモアレ磁性が電氣的に調整可能であることを実証した。この特異的な磁気相は、トポロジカル・スキルミオン格子やマグノンネットワークを形成している可能性があり、今後空間分解測定でその実証を検討していく予定である。また、電圧による制御が磁気スイッチングや電気磁気効果を伴う磁気秩序を律する有効な手段であることが分かったことから、メモリやスピロロジックデバイスの実現につながることも示唆された。(G. Cheng, *et al.*, Nature Commun. 13, 7348 (2022))

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Llacsahuanga Allicca A. E., Idzuchi H., Pan X. C., Tanigaki K., Chen Y. P.	4. 巻 13
2. 論文標題 Modified magnetism in heterostructures of Cr <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> Te <sub>6</sub> and oxides	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 015031 ~ 015031
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/9.0000413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Cheng Guanghui, Rahman Mohammad Mushfiqur, He Zhiping, Allicca Andres Llacsahuanga, Rustagi Avinash, Stampe Kirstine Aggerbeck, Zhu Yanglin, Yan Shaohua, Tian Shangjie, Mao Zhiqiang, Lei Hechang, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Upadhyaya Pramey, Chen Yong P.	4. 巻 13
2. 論文標題 Emergence of electric-field-tunable interfacial ferromagnetism in 2D antiferromagnet heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 7348
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-34812-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 5件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Jana Lustikova
2. 発表標題 Spin injection into high temperature superconductors
3. 学会等名 International Workshop of Spin/Quantum Materials and Devices (IWSQMD)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 J. Lustikova, Yong P. Chen
2. 発表標題 高温超伝導体へのスピン注入
3. 学会等名 スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク（Spin-RNJ）シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 熊谷明哉
2. 発表標題 SECCMを用いたリチウムイオン電池材料の評価
3. 学会等名 ナノプローブテクノロジー第 167 委員会 第 104 回 研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 熊谷明哉
2. 発表標題 エネルギー材料におけるナノ電気化学反応の可視化
3. 学会等名 MBA第4回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Kamatani
2. 発表標題 Nanoscale electrochemical imaging for visualization of lithium-ion intercalation process on graphite/graphene structures
3. 学会等名 Joint Workshop between Tsinghua, SUSTech & AIMR (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Sato, T. Matsue, W. Norimatsu, M. Motoyama, Y. Iriyama
2. 発表標題 Spatially Resolved Lithium-ion Insertion Process on Graphene and Thin Graphite Films
3. 学会等名 2022 E-MRS Spring Meeting (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	熊谷 明哉  (Kumatani Akichika)  (50568433)	東北大学・材料科学高等研究所・准教授   (11301)	
研究分担者	LUSTIKOVA JANA  (Lustikova Jana)  (90847964)	東北大学・先端スピントロニクス研究開発センター・助教   (11301)	
研究分担者	千葉 貴裕  (Chiba Takahiro)  (90803297)	福島工業高等専門学校・一般教科・講師   (51601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------