

33. イオンゲートによるファンデルワールス磁性体の磁性制御

芝浦工業大学工学部 教授 中野 匡規

概要

本研究では、インターカレート系ファンデルワールス磁性体を対象として、Li イオンの電気化学的インターカレーションによるキャリア制御と磁性制御の実現を目的とした。分子線エピタキシー (MBE) 法により $\text{Cr}_{1+d}\text{Te}_2$ および Cr_xNbSe_2 の高品質エピタキシャル薄膜を作製し、イオンゲートデバイスを構築することで、広範なキャリア密度領域における電子状態と磁性の相関を系統的に調べた。その結果、 Cr_3Te_4 においてトポロジカル磁性相と強磁性相の間のゲート誘起相転移を実現し、トポロジカルホール効果の電氣的スイッチングに成功した。また、 $\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ において反強磁性相と強磁性相の間のゲート誘起相転移を実現するとともに、高ドープ領域で新奇磁性相の出現を示唆する振る舞いを観測した。これらの結果は、インターカレート系ファンデルワールス磁性体の磁性の発現においてはバンド構造が本質的に重要な役割を担っていることを示唆するものであり、電気化学的手法による新たな量子相開拓の指針を与えるものである。

助成金は高品質エピタキシャル薄膜を作製するのに欠かせない反射高速電子線回折用電子銃や、各種超高真空装置の部品、ターゲット・基板類の購入費用などに充当させていただきました。研究室の立ち上げ時期に多大な支援をしていただき心より感謝申し上げます。

背景および目的

固体の電子状態や磁性はキャリア密度に強く依存するため、その精密制御は新奇量子相の開拓および機能性デバイスの創出において極めて重要である。これまで、電気二重層トランジスタ (EDLT) を用いた高密度キャリア制御により、酸化物や層状物質における電子相転移や超伝導の誘起など、多くの重要な成果が報告されてきた。しかしながら、従来の電界効果は主に表面近傍に限られ、バルク的な電子状態の大幅な変調には限界がある。これに対し、電解質を介したイオンの電気化学的インターカレーションは、層状物質のファンデルワールスギャップ中にイオンを挿入することで、試料全体にわたる大きなキャリア変調を実現することが可能である。この手法は、従来の化学置換とは異なり、可逆的かつ連続的にキャリア密度を制御できる点に特徴があり、平衡状態ではアクセスできない『隠れた量子相』の開拓に有効であると期待される。

本研究では、層間に磁性イオンを有するインターカレート系ファンデルワールス磁性体に着目した。この物質系は、層間イオンの種類や配列、キャリア密度に応じて多様な磁気秩序を示すことが知られており、キャリア制御による磁性変調の観点から理想的な研究対象である。本研究の目的は、MBE で作製した高品質薄膜に対して Li イオンのインターカレーションによってキャリア密度を制御し、磁性および電子状態の相関を体系的に解明するとともに、トポロジカル磁性や新奇磁気相を含む多様な量子相の電氣的制御を実現することである。

方法

本研究では、MBE 法を用いて Cr_3Te_4 および $\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ のエピタキシャル薄膜を作製した。MBE 法では超高真空中で原子レベルの成長制御が可能であり、層間構造や組成を精密に制御した高品質試料を得ることができる。

本研究では、蒸着フラックスおよび基板温度を最適化することで、層間イオンの秩序構造を保持した高品質エピタキシャル薄膜の作製に成功した。

作製した薄膜試料は低速電子線回折や X 線回折などにより構造評価を行い、所望の超構造が形成されていることを確認した。続いて、それらの薄膜試料を用いて三端子型のイオンゲートデバイスを作製した。ゲート媒質には LiClO_4 を含むポリマー電解質を用い、ゲート電圧印加により Li イオンの層間インターカレーションを誘起した。その上で、クライオスタット中で試料の温度や外部磁場を制御しながら電気抵抗およびホール効果測定を行い、キャリア密度および磁気輸送特性のゲート電圧依存性を詳細に評価した。また、異常ホール効果や磁気抵抗の解析を通じて、磁気秩序およびトポロジカル磁性のゲート応答を評価した。

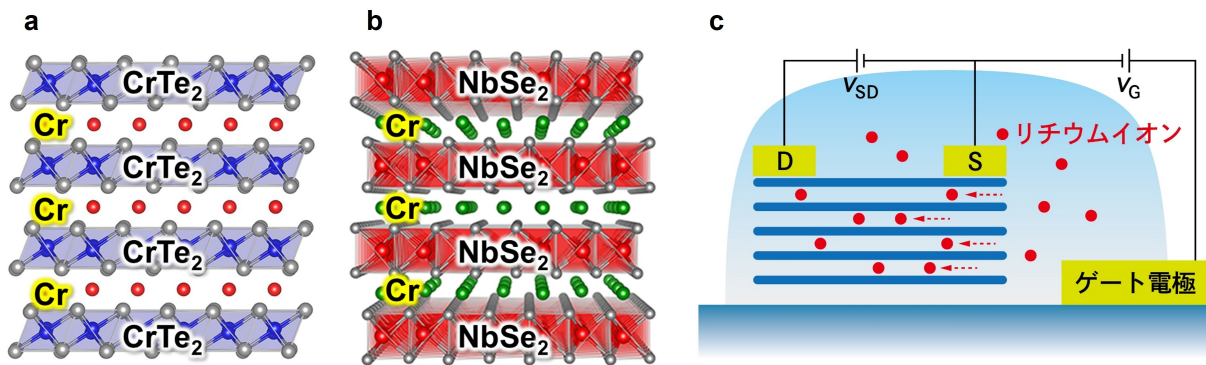


図 1. インターカレート系ファンデルワールス磁性体とイオンゲートデバイスの模式図

(a) Cr_3Te_4 の結晶構造、(b) Cr_xNbSe_2 の結晶構造、(c) イオンゲートデバイスの模式図

結果および考察

(1) Cr_3Te_4 におけるゲート誘起トポロジカル相転移の実現

$\text{Cr}_{1+d}\text{Te}_2$ はフェルミ準位近傍に半金属バンドを有する磁性半金属であり、キャリア密度に応じて多様な磁性相を示す。本研究では、MBE で作製した Cr_3Te_4 薄膜に対してイオンゲートを適用し、 Li イオンのインターカレーションによるキャリア制御を行った。その結果、ゲート電圧の増加に伴い系に電子がドーピングされ、それに対応して磁性相が大きく変化することが明らかとなった。特に、アニール処理により得られるトポロジカル磁性相において、ゲート電圧印加により強磁性相への相転移が誘起されることを見出した。この相転移に伴い、トポロジカルホール効果が完全にスイッチングされることを確認し、トポロジカル磁性相の電氣的制御を実現した。さらに、この相転移において磁気異方性が面内から面直へと変化することが明らかとなり、キャリア密度が磁気異方性にも強い影響を与えることが示された。加えて、未アニール試料との比較により、これらの変化が半金属バンドに基づく統一的な描像で理解できることを示し、 Cr_3Te_4 における磁性の包括的理解に繋がる結果を得た。これらの成果は、トポロジカル磁性を含む複雑な磁気相がキャリア制御によって可逆的に制御可能であることを示すものであり、電場によるトポロジカル量子状態の制御という観点からも重要な意義を持つものである。

(2) $\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ におけるゲート誘起反強磁性-強磁性相転移の実現

$\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ はフェルミ準位近傍にフラットバンドを有する反強磁性金属であり、強い電子相関を反映した特異な電子状態を持つ。本研究では、MBE で作製した $\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ 薄膜に対してイオンゲートを適用し、 Li イオンのインターカレーションによるキャリア制御を行った。その結果、ホール係数がゲート電圧に応じて大きく変化し、電子ドーピングによるキャリア密度の連続的制御が実現された。さらに、一定以上のドーピングにおいて異常

ホール効果が出現し、反強磁性から面内強磁性への相転移が誘起されることを見出した。また、高ドーピング領域では電気抵抗の異常な温度依存性や巨大磁気抵抗効果が観測され、新奇磁性相の存在が示唆された。これらの現象は、フラットバンド近傍における電子状態の再構成や電子相関の強化と密接に関連している可能性があり、強相関電子系における新たな量子相の発現を示唆する重要な結果である。

まとめと意義

本研究で得られた Cr_3Te_4 および $\text{Cr}_{1/4}\text{NbSe}_2$ の結果は、それぞれ半金属バンド系およびフラットバンド系におけるキャリア制御の効果を示しており、いずれの系でもキャリア密度が磁気秩序や電子状態を決定する重要な因子であることを示している。特に、トポロジカル磁性相や反強磁性相といった複雑な磁気秩序が電氣的に制御可能であることを実証した点は、今後の量子物性研究およびスピントロニクス応用において重要な意義を持つ。

(完)

発表論文

- 1) H. Matsuoka, S. Kajihara, K. Endo, Y. Wang, Y. Iwasa, and M. Nakano, "Spontaneous topological Hall effect at room temperature in a van der Waals magnetic semimetal", *Phys. Rev. Materials* **10**, 014003 (2026).
- 2) T. Kawakami, K. Sugawara, H. Oka, K. Yanagizawa, M. Nakano, Y. P. Chen, T. Takahashi, and T. Sato, "Dichotomy of charge density wave and superconductivity in monolayer NbS_2 and NbSe_2 : A view from fermiology", *Phys. Rev. Materials* **9**, L111001 (2025).
- 3) U. Narusaka, N. Yoshikawa, H. Matsuoka, Y. Tanaka, M. Musashi, M. Nakano, Y. Iwasa, and R. Shimano, "Intense terahertz pulse induced nonthermal melting of charge density wave order in a thin film of $3R\text{-Ta}_{1+x}\text{Se}_2$ ", *Phys. Rev. B* **111**, 045146 (2025).