在莫尔磁性异质结构中设计层状二维斯格明子晶格

Bilal Jabakhanji[1] 和 Doried Ghader*[1]

[1] 工程与技术学院，中东美国大学，埃盖拉 54200，科威特

1. 摘要

斯格明子在新一代自旋电子学和磁振子器件领域前景广阔，但其零场稳定性以及通过手性相互作用实现可控成核仍面临挑战。在这项理论研究中，我们探讨莫尔磁性异质结构能否利用二维磁体中堆垛依赖磁性，生成有序的斯格明子晶格。我们研究了由超薄$CrBr_3$薄膜扭转后置于CrI_3衬底上方形成的异质结构，并假设存在中等强度的界面德zyaloshinskii-莫里亚相互作用。在莫尔周期较大且衬底厚度适当时，由于$CrBr_3$中的交换相互作用弱于$CrBr_3$，界面CrI_3层中会涌现莫尔斯格明子晶格。随后，涌现手性层间场会将这一晶格投射到$CrBr_3$薄膜的其余层中。通过改变超薄$CrBr_3$薄膜中的原始堆叠构型，我们实现了层状铁磁和反铁磁斯格明子晶格，无需恒定磁场。研究结果表明，有望在莫尔磁性异质结构中构建多彩斯格明子晶格，从而进一步探索其基本性质和技术应用潜力。

2. 引言

拓扑不断重塑凝聚态物理和材料科学，为基础发现和技术应用带来了广阔机遇。在磁学领域，斯格明子等拓扑自旋纹理（TSTs）因在未来拓扑自旋电子学和磁振子器件方面具有巨大潜力而受到广泛研究[1–6]。拓扑自旋纹理最常见的来源是手性的最近邻（NN）Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用（DMI），它存在于缺乏空间反演对称性的非中心对称磁体中[7–14]。近期，拓扑自旋纹理的研究拓展至新近发现的二维磁体[15,16],，为拓扑

二维极限下的磁学开辟了新天地[17–25]。对二维拓扑自旋纹理的探索推动了人们寻找稳定这些纹理的新机制。特别是，莫尔斯格明子学作为一个新兴研究领域应运而生，旨在通过调控莫尔超晶格中的竞争相互作用来构造拓扑自旋纹理[26]。在二维磁性双层中，晶格失配或扭转会形成莫尔超晶格，并在莫尔超胞内产生空间调制的层间耦合。当莫尔周期较大时，层间相互作用可能超过层内耦合，从而形成具有非共线自旋纹理的奇异磁相[26–33]。

关于莫尔磁体的理论研究[26,28,34–36] 预测，在莫尔层间场的作用下会出现 TST。最近邻 DMI 可忽略时，TST 的涡旋度和螺旋度可作为自由度，从而产生多类型 TST[30,34]。然而，显著的最近邻 DMI 会锁定这些自由度，形成 Néel 型莫尔斯格明子[30,31]。近期实验[29,32,33,37]在莫尔CrI_3 超晶格中观测到了非共线磁态。然而，受实验技术的限制，目前还无法全面探索莫尔自旋纹理可能具有的拓扑性质。

二维三卤化铬磁体CrX_3 （$X = I$、 Br）因其引人注目的堆垛依赖磁性和拓扑自旋激发而备受关注。针对CrI_3 和$CrBr_3$ 的理论与实验研究报告称，其磁振子谱中存在拓扑带隙[38–42]，这表明这些材料中存在较强的最近邻 Kitaev 相互作用或次近邻 Dzyaloshinskii-Moriya相互作用。同时，这些材料中的层间交换相互作用会随堆垛构型而呈现铁磁（FM）或反铁磁（AFM）行为。更具体地说，在单斜堆垛（R 型）中，CrI_3（$CrBr_3$）的层间相互作用为反铁磁，而在菱方堆垛（H 型）中则为铁磁[31,34,43–46]。堆垛依赖磁性推动了对扭转CrI_3 和$CrBr_3$ 同质双层[29–32,34,47]中莫尔 TST 的深入研究。最近，一项理论研究预测了$CrBr_3/CrI_3$ 异质双层[48], 中的堆垛依赖磁性，但其莫尔基态尚未得到研究。

磁性异质双层呈现丰富的堆垛依赖磁性[26,48–50]，但其莫尔磁性相仍鲜有探索。迄今为止，关于莫尔磁性异质结构的理论研究仅限于一种特定构型，即在单层近似下研究铁磁单层置于反铁磁衬底之上（或反之）的情况（假设衬底自旋固定）[26,28,35,51]。与此同时，利用

迅速扩展的二维磁体家族构建莫尔异质结构，能够开辟一个广阔而未曾探索的莫尔工程磁性领域。近期针对本征（未扭转）磁性异质结构的实验报告了令人振奋的磁性观测结果，例如磁近邻效应的出现和界面最近邻 DMI [52,53]。具体而言，Cheng等人研究了本征CrI_3/$CrCl_3$ 异质结构中的磁近邻效应，其中界面铁磁耦合显著影响了靠近CrI_3的$CrCl_3$ 层的磁各向异性。在另一项研究中[53]，，Wu等人研究了本征超薄$Cr_2Ge_2Te_6$/Fe_3GeTe_2 异质结构。范德华界面处反演对称性的破缺诱发了显著的手性DMI，使界面两侧的磁性斯格明子得以稳定。然而，在所研究的CrI_3/$CrCl_3$ 和$Cr_2Ge_2Te_6$/Fe_3GeTe_2 异质结构的本征堆垛中，均未观察到莫尔磁性的相关迹象。

若能控制斯格明子的成核和空间分布，将有助于发挥其在磁振子学和自旋电子学中的潜在应用[54,55]。然而，在磁性薄膜和多层结构中，这仍是一项重大挑战，因为DMI诱导的斯格明子往往随机成核，且需要恒定磁场[54–56]。相比之下，莫尔工程斯格明子无需磁场也能稳定存在[30]，，且在莫尔超胞中具有明确的形状和精确的位置。扭转角可作为调节其位置、尺寸和空间排列的控制参数[25,26,30,31,34]。因此，与自发成核的DMI斯格明子相比，莫尔斯格明子似乎有望实现空间有序的斯格明子排列，且无需恒定磁场。

然而，莫尔斯格明子晶格的出现并非易事，需要研究合适的材料和体系。在磁性莫尔同质双层中，由于顶层和底层具有相同的磁相互作用，斯格明子晶格不太可能形成。考虑完整的自旋动力学时，TSTs 可在任意层中形成[30]，，从而破坏实际样品中的磁性莫尔周期性。由磁性不同的材料组合而成的莫尔磁性异质结构，是将斯格明子限制在特定层中的候选体系。然而，研究其优势需要采用超越单层近似的模型。用于莫尔双层的单层近似忽略了其中一层的自旋动力学和层内相互作用，因此是一种含糊的近似。此外，这种近似无法模拟包含三个或更多磁性层的莫尔架构。在莫尔体系中，随着层数增加，将斯格明子限制在特定层中会愈发困难，因为所有层中耦合的自旋动力学共同作用，塑造出磁基态；这一过程受到相互竞争的层内和层间相互作用的影响。

这些复杂性要求改进建模和模拟方法，以展示可控的逐层斯格明子形成；这是在莫尔磁性异质结构中实现（层状）二维斯格明子晶格的先决条件。本研究提出将莫尔磁性异质结构作为设计层状二维斯格明子晶格的平台，并以扭转的（$CrBr_3$）$_n$/（CrI_3）$_{n'}$ 异质结构为原型，展示我们的研究结果。该（$CrBr_3$）$_n$/（CrI_3）$_{n'}$ 异质结构由超薄的原始$CrBr_3$ 薄膜（n层）构成，该薄膜相对于超薄的原始CrI_3 衬底（n' 层）以角度θ 扭转。通过考察原始薄膜中相邻层之间的铁磁或反铁磁堆垛，进一步拓展了异质结构的类型。采用随机朗道-利夫希茨-吉尔伯特模拟（sLLG）确定磁基态。这些模拟基于理论建模，该建模纳入了完整的自旋动力学[30]，并考虑异质双层中多种相互竞争的层间和层内相互作用。考虑到$CrBr_3$ 与CrI_3之间交换相互作用的差异，我们调整了薄膜厚度，并探索了将斯格明子的形成限制在异质结构特定层中的可能性。

作为初步研究，我们考察莫尔$CrBr_3$/CrI_3 异质双层中的斯格明子成核，并观察到莫尔斯格明子晶格明确形成于$CrBr_3$ 层中，这是由于该层的层内交换作用弱于CrI_3。我们确定了能够稳定$CrBr_3$ 斯格明子晶格的阈值界面最近邻DMI（视为一个参数），其适用于 1.02°至 3.15°之间的公度扭转角。

随后，我们探索了在 $(CrBr_3)_2/(CrI_3)_2$ 和 $(CrBr_3)_3/(CrI_3)_2$ 异质结构中形成$CrBr_3$ 层状斯格明子晶格的情况。在这两种异质结构中，原始衬底均以铁磁构型堆叠，而相邻的$CrBr_3$ 层则以原始铁磁或反铁磁构型堆叠。在这些设置中，莫尔层间相互作用会在界面$CrBr_3$ 层中产生斯格明子晶格。界面层中的自旋纹理与均匀的$CrBr_3$ 层间耦合协同作用，在$CrBr_3$ 薄膜中产生有效手性层间场。最终，$CrBr_3$ 薄膜中形成了层状铁磁和反铁磁斯格明子晶格，其莫尔周期继承自界面层。当层状斯格明子晶格之间的$CrBr_3$ 层间耦合为铁磁（反铁磁）时，相邻晶格呈现相同（相反）的自旋纹理。我们分别在 $(CrBr_3)_2/(CrI_3)_2$ 和 $(CrBr_3)_3/(CrI_3)_2$ 异质结构中生成了由 2 层和 3 层组成的莫尔斯格明子晶格。同时，进一步增加$CrBr_3$ 薄膜的厚度以生成更多$CrBr_3$ 层状斯格明子晶格，经发现并不可行。

最后，我们探讨了在$CrBr_3$薄膜厚度显著大于CrI_3衬底的异质结构中形成CrI_3斯格明子晶格的可能性。我们成功地在$(CrBr_3)_3/CrI_3$异质结构中生成了单个斯格明子晶格。然而，形成层状CrI_3斯格明子晶格则颇具挑战。

3. 结果与讨论

3.1. 理论模型

根据近期的实验工作[41,42]，，我们采用具有本征次近邻DMI（IDMI）的海森堡模型来描述CrI_3和$CrBr_3$中的层内相互作用。在$CrBr_3/CrI_3$异质双层中，CrI_3和$CrBr_3$分别构成底层（$l=1$）和顶层（$l=2$）。顶层相对于底层旋转了一个角度θ。该异质双层的海森堡-IDMI哈密顿量可表示为

$$\mathcal{H}_{BL} = \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_{12} \tag{1}$$

这里，H_1（H_2）表示CrI_3（$CrBr_3$）的单层哈密顿量，而H_{12}描述莫尔层间交换相互作用。其显式形式如下：

$$\mathcal{H}_l = -\sum_{i,j} J_l\, \mathbf{S}_{li}.\mathbf{S}_{lj} - \sum_i \mathcal{A}_l\, (\mathbf{S}_{li}.\hat{\mathbf{z}})^2 + \sum_{m,n} D_l\, \hat{\mathbf{D}}_{mn}.\mathbf{S}_{lm} \times \mathbf{S}_{ln} + d\sum_{i,j} \hat{\mathbf{d}}_{ij}.\mathbf{S}_{li} \times \mathbf{S}_{lj} - \sum_i \mathbf{B}.\mathbf{S}_{li} \tag{2a}$$

$$\mathcal{H}_{12} = -\sum_{i,j} J_\perp(\boldsymbol{r}_{ij})\mathbf{S}_{1i}.\mathbf{S}_{2j} \tag{2b}$$

矢量$\mathbf{S}_{li}$表示层l $(l=1,2)$中格点i处的自旋。H_l中的第一项描述层l内强度为J_l的最近邻层内交换作用。第二项是强度为$\mathcal{A}_l$的单离子单轴各向异性。第三项是强度为D_l的非手性IDMI。第四项描述对称性破缺[53]所诱导的界面手性近邻 DMI。示意图

手性和非手性 DM 相互作用的示意图见参考文献[30]的补充材料。H_l 中的最后一项描述由外磁场引起的塞曼耦合。我们采用参数 J_l、 $\mathcal{A}_l$和D_l 的实验值（表1）。

H_{12} 表示莫尔层间交换哈密顿量，其中$J_\perp$（$\boldsymbol{r}_{ij}$）是自旋$\mathbf{S}_{1i}$ 与$\mathbf{S}_{2j}$之间距离依赖的层间耦合。Reference[48] 采用密度泛函理论计算了（$CrBr_3$/CrI_3）异质双层中依赖堆垛方式的层间交换能，发现莫尔超胞的局部R_{33}、 R_{03}和R_{30} 区域存在反铁磁层间耦合。同时，在莫尔超胞的其他区域，层间耦合则为铁磁。我们利用先前工作[30], 中建立的理论方法，根据密度泛函理论计算结果推导出距离依赖的层间耦合；感兴趣的读者可在该文中找到对这一方法的深入说明。这使我们能够模拟异质双层中的完整自旋动力学。

其余异质结构的哈密顿量也可以用类似方式构建。以四层（4L）异质结构（$CrBr_3$）$_2$/（CrI_3）$_2$为例。其中，$CrBr_3$ 同质双层以均匀的 AB（R 型）构型堆垛，使同质双层内部具有均匀的铁磁（反铁磁）层间耦合[34,46]。R 型和 AB 堆垛的$CrBr_3$ 同质双层的层间交换系数取自文献[34]。将未扭转的$CrBr_3$双层相对于CrI_3 双层衬底旋转角度θ 。衬底以 AB 构型堆垛，从而在CrI_3中产生均匀铁磁层间耦合。相应的交换系数取自文献[43]。从底部至顶部将各层标记为$l = 1$、2、3和4，则四层哈密顿量为:

$$\mathcal{H}_{4L} = \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_3 + \mathcal{H}_4 + \mathcal{H}_{12} + \mathcal{H}_{23} + \mathcal{H}_{34} \tag{3}$$

界面层的哈密顿量 H_2 和 H_3 可直接由方程 2a 推导得到。同样，当最近邻 DMI 设为零（$d = 0$）时，方程 2a 给出哈密顿量 H_1 （底层CrI_3 ）和 H_4 （顶层$CrBr_3$ ）。请注意，这些哈密顿量中不存在最近邻 DMI，因为顶层和底层均保持反演对称性。哈密顿量 H_{23} 描述界面处的莫尔层间交换，其处理方式与双层情形相同。H_{12} 和 H_{34} 分别表示未扰动 CrI_3 和 $CrBr_3$ 双层中的均匀层间耦合。它们可表示为 $\mathrm{H}_{12} = -J_{12}\sum_{ij} \mathbf{S}_{1i} \cdot \mathbf{S}_{2j}$ ，以及 $\mathrm{H}_{34} = -J_{34}\sum_{ij} \mathbf{S}_{3i} \cdot \mathbf{S}_{4j}$ ，

其中，J_{12} 和 J_{34} 分别是 CrI_3 和 $CrBr_3$ 双层内的层间交换系数。

海森堡–DM模型	参数
$\boldsymbol{CrI_3}$	$J_1 = 2.13\ meV, D_1 = 0.19\ meV, \mathcal{A}_1 = 0.22\ meV.$
$\boldsymbol{CrBr_3}$	$J_2 = 1.48\ meV, D_2 = 0.22\ meV, \mathcal{A}_2 = 0.02\ meV.$

表1：CrI_3 [41] 和$CrBr_3$[42]的海森堡–IDMI模型的实验参数。参数J、 D和$\mathcal{A}$ 分别表示最近邻层内交换、次近邻IDMI和单离子单轴各向异性。

3.2. 计算细节

异质结构哈密顿量用于原子尺度sLLG方程，

$$\frac{\partial \mathbf{S}_{li}}{\partial t} = -\frac{\gamma}{1+\lambda^2}\left[\mathbf{S}_{li} \times \mathbf{H}_{li}^{eff} + \lambda \mathbf{S}_{li} \times \left(\mathbf{S}_{li} \times \mathbf{H}_{li}^{eff}\right)\right] \tag{4}$$

其中，γ 和λ 分别为旋磁比和吉尔伯特阻尼。作用于自旋$\mathbf{S}_{li}$ 上的有效场$\mathbf{H}_{li}^{eff}$ 表示为

$$\mathbf{H}_{li}^{eff} = -\frac{1}{\mu_s}\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial \mathbf{S}_{li}} + \mathbf{H}_{li}^{th} \tag{5}$$

在方程5中，H表示异质结构哈密顿量，而$\mathbf{H}_{li}^{th}$ 是有效热场。我们使用Vampire软件[57] 求解系统中所有自旋的sLLG方程，并最终模拟整个异质结构中的自旋动力学。$\mathbf{H}_{li}^{th}$ 通过朗之万动力学方法[58]被纳入Vampire。Vampire软件的输入文件使用作者开发的Mathematica[59] 代码生成。

sLLG 模拟从高温（50 K）下随机的初始自旋构型开始。每次模拟至少采用三种不同的随机自旋构型重复进行，以检验结果对初始态的依赖性。莫尔异质结构逐渐冷却，时间步长为 $1 \times 10^{-16} s$ ，冷却时间为 $1\ ns$ ，总计 3×10^7 个时间步长。sLLG 模拟得出所有层中自旋构型在温度变化过程中的时间演化，直至

温度降至接近 0 K 的基态。为防止形成自旋螺旋，冷却过程中施加外部磁场（$50 \sim 100\ mT$）。冷却结束后撤去该磁场，这不会影响已达到的基态的稳定性。对单个和多个莫尔超胞样品均进行模拟，以验证拓扑基态的空间周期性。

3.3. 莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层中的斯格明子晶格

我们对莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层进行了 sLLG 模拟，其公度扭转角介于 1.02° 和 3.15°之间。由于缺乏关于这些异质双层中层近邻 DMI 强度的实验或理论计算和实验结果，我们将最近邻 DMI 视为一个参数，在 0 到 0.3 meV 之间以 0.01 meV为步长进行变化。假设异质双层中存在较强的最近邻 DMI 是合理的（因为存在界面），且有近期实验结果支持[53]。此外，扭转和外部因素（例如施加电场[illegible]）可能会增强最近邻 DMI 的强度。

扭转 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层的莫尔超胞中，局部 R_{33}、 R_{03} （等价于 R_{63}）和 R_{30} （等价于 R_{36}）堆垛区域的层间相互作用为反铁磁，其他区域则为铁磁 [48]。当扭转角低于某一临界值时，层间相互作用会超过层内交换作用，从而在局部反铁磁区域诱发反铁磁畴，这与莫尔 CrI_3同质双层[30–32]中的情况类似。当手性最近邻 DMI 较弱时，反铁磁畴可能具有拓扑性，也可能不具拓扑性，具体取决于随机初始自旋构型[30,34]。此时，反铁磁-铁磁畴壁的涡旋度和螺旋度作为自由度，可能以不可预测的方式产生平庸自旋纹理或多种 TSTs [30,34]。另一方面，较强的最近邻 DMI（预计存在于异质双层中[61]）会锁定这些自由度，从而确定性地在局部反铁磁区域形成 Néel 型斯格明子。图 1a-d 展示了这一过程，所用体系为小扭转角（$\theta = 1.02°$）且具有较强最近邻 DMI（d =0.3 meV）的莫尔$CrBr_3/CrI_3$ 异质双层。

模拟从 $T = 50\ K$ 开始，假设两层均具有随机初始自旋（图1a），并在冷却过程中施加 50 mT 场。在相对高温下，热涨落主导磁相互作用，阻碍异质双层中磁有序的形成。随着温度降低、热涨落减弱，两层中开始形成磁畴（图1b）。继续冷却后，共存的铁磁和反铁磁畴

出现在 $CrBr_3$ 层中（图1c），而底部的 CrI_3 变为铁磁态。在此阶段，与 CrI_3 相比，$CrBr_3$ 中较弱的层内交换作用使自旋纹理仅在 $CrBr_3$ 层中形成在能量上更为有利。不过，这些温度下的反铁磁畴并未呈现理想的拓扑纹理（图1c、e）。进一步冷却后，最近邻 DMI 对反铁磁畴自旋形态的塑造作用变得显著，并在 0 K 附近形成 $CrBr_3$ 奈尔型斯格明子（图1d、f）。此时可以移除磁场，而不会影响斯格明子的稳定性。

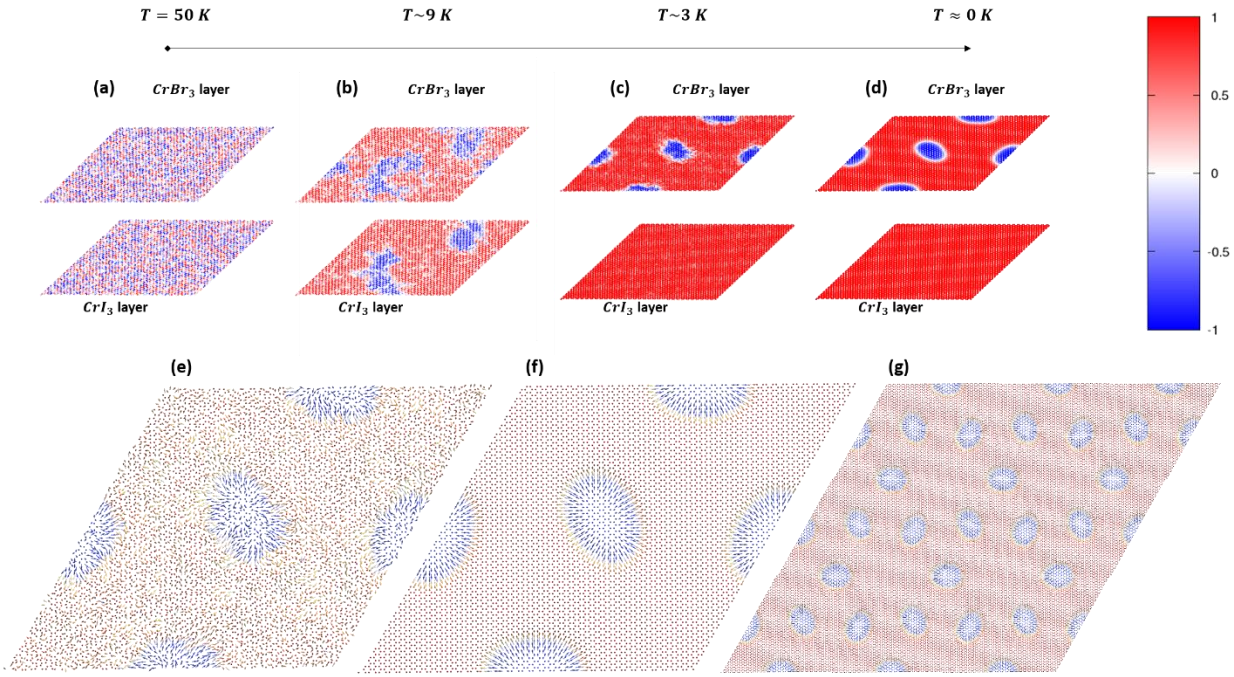

图 1：莫尔$\boldsymbol{CrBr_3/CrI_3}$ 异质双层中奈尔型斯格明子晶格的可控成核。将$CrBr_3/CrI_3$ 异质双层从高温和随机自旋状态冷却后，斯格明子会在$CrBr_3$顶层中成核（a-d）。与CrI_3 相比，$CrBr_3$ 较弱的层内交换作用使顶层中的斯格明子能够可控形成，而CrI_3 则保持铁磁态。冷却过程中，$CrBr_3$ 在莫尔超胞中具有局域反铁磁层间耦合的区域形成反铁磁畴。手性Dzyaloshinskii-Moriya相互作用（DMI）逐渐塑造反铁磁畴的自旋纹理，最终在基态形成奈尔型斯格明子（e、f）。在多莫尔模拟中，可控的$CrBr_3$ 斯格明子成核形成有序的斯格明子晶体（g）。结果展示的是扭转角为 1.02°、最近邻 DMI 为 0.3 meV 的异质双层。颜色标度表示面外自旋分量的大小，范围从 -1（蓝色）到 1（红色）。

莫尔超胞中层间交换的分布[48]决定了$CrBr_3$斯格明子的位置、大小和椭圆形状。由于莫尔斯格明子之间间距较大，它们之间的相互作用很弱，因此能够保持其奈尔型自旋结构。在包含多个超胞的样品中，这种情况会在每个莫尔晶胞中重复，从而形成有序的莫尔斯格明子晶格，如图 1g 所示。这种对二维莫尔斯格明子的精确控制，相较于传统材料中由 DMI 诱导、以无序构型和不一致形貌形成的斯格明子，具有显著优势。

如前所述，即使没有最近邻 DMI，调制的层间相互作用也能在较小扭转角下产生反铁磁

[illegible]

本研究主要关注产生莫尔斯格明子晶格的3斯格明子相。不过，为了完整起见，我们也简要考察了低于临界DMI时的行为。在这种情况下，DMI不足以形成三个奈尔型斯格明子。因此，某些反铁磁畴中的自旋螺旋度和涡旋度会成为活跃的自由度，根据初始随机自旋构型的不同，形成平庸或拓扑自旋纹理[30,34]。因此，预计低于临界DMI时还会出现一些补充3斯格明子相的额外相，具体而言是$n = 2$、1和0斯格明子相。在这些相中，有n个奈尔型斯格明子对初始自旋构型的变化相对稳健，而其余的$3 - n$个反铁磁畴则可能呈平庸或拓扑状态，具体取决于其初始态。我们已在一定程度上成功探测到临界DMI以下的这些相，如图2和补充图1-3所示。不过，需要指出的是，这些相并不会形成周期性斯格明子晶格，也与本研究的主要目标没有直接关系。

不会形成周期性斯格明子晶格，也与本研究的主要目标没有直接关系。

图2进一步展示了形成反铁磁畴所需的临界扭转角。当最近邻 DMI 极小、可以忽略不计

（图2）。与此同时，显著的 DMI 有助于层间耦合压过层内交换作用，使 升至约 2.85˚（在 d 0.3 meV 时；图2）。请注意，由于与 CrI_3相比，$CrBr_3$ 中的层内交换作用较弱，这些 数值低于 CrI_3 同质双层[30–32] 中报道的数值。高于 时，异质双层基本呈铁磁态（见图2中的铁磁相），但高部反铁磁堆垛区域的自旋略有倾斜。

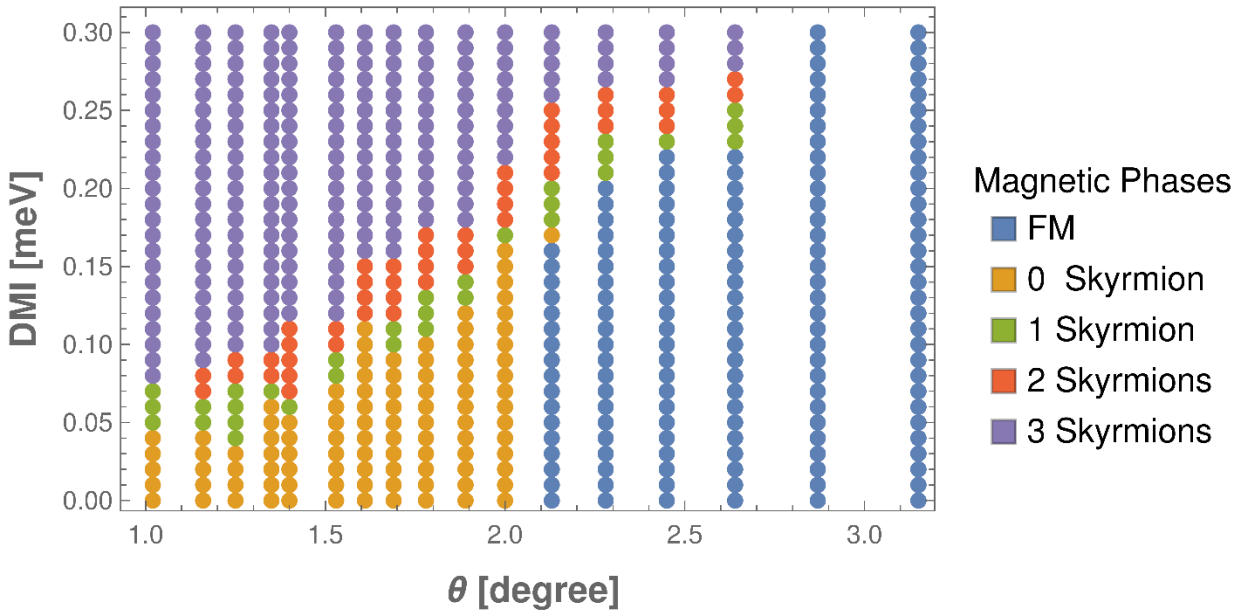

图 2：莫尔 $\boldsymbol{CrBr_3/CrI_3}$ 异质双层中的磁相。该图展示了莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层在 $1.02^\circ \lesssim \theta \lesssim 3.15^\circ$ 范围内的公度扭转角以及 0 至 0.3 meV 的手性Dzyaloshinskii-Moriya相互作用（DMI）条件下的磁相。主要结果是 3斯格明子相，它会形成莫尔斯格明子晶格。扭转角依赖的DMI阈值以上可以实现这一相。图中显示，随着扭转角减小，临界DMI显著降低。在低于阈值的情况下，DMI 不足以在每个莫尔超胞中形成三个奈尔型斯格明子。尽管探测结果有限，我们仍在临界DMI以下检测到了 $n = 2$、1 和 0 斯格明子相，它们与 3斯格明子相互为补充（详情见正文）。

在本段结尾，我们简要讨论垂直磁场 $\boldsymbol{B}$ 在 0 K时对斯格明子晶格的调控。当施加的磁场方向与斯格明子的自旋相反时，斯格明子会收缩并最终消失。反之，若磁场方向与自旋平行，斯格明子会膨胀，并最终诱发异质双层发生整体磁化反转。在磁化反转后，逐渐将磁场减小至 0 T，便会形成一个自旋方向与初始构型相反的斯格明子晶格。补充信息中详细讨论了这种磁滞行为，补充视频1则对此进行了直观演示。

3.4. 莫尔（$\boldsymbol{CrBr_3}$）$_n$/（$\boldsymbol{CrI_3}$）$_{n'}$ 异质结构中的层状斯格明子晶格

在本节中，我们将研究范围从异质双层扩展至层状莫尔斯格明子晶格的形成。具体而言，我们展示了在（$CrBr_3$）$CrBr_3$/（2）CrI_3和（$_2$ ）$CrBr_3$/（3）CrI_3莫尔异质结构中，分别形成 2 层和 3 层的斯格明子晶格。

我们首先考虑 4L（$CrBr_3$）$_2$/（CrI_3）$_2$ 异质结构。该结构由未扭转的$CrBr_3$ 双层构成，其相对于未扭转的CrI_3 双层衬底旋转了角度θ 。衬底采用铁磁（即 AB）堆叠构型，而 $CrBr_3$ 双层则采用铁磁（即 AB）或反铁磁（即R-型）堆叠构型[31,34,45,46]。4L 异质结构的磁基态由多种竞争相互作用决定，包括所有层中的层内相互作用、CrI_3 与$CrBr_3$界面处的莫尔调制层间场，以及超薄$CrBr_3$ 和CrI_3 薄膜中的均匀铁磁或反铁磁层间耦合。然而，CrI_3 衬底中相对较强的交换相互作用确保任何形成的自旋纹理都局限于$CrBr_3$ 超薄膜中。

模拟 4L 异质结构的计算成本很高，因此无法在 $1.02^\circ \lesssim \theta \lesssim 3.15^\circ$ 和 $0 \leq d \leq 0.3$ 的范围内开展全面研究。我们转而集中研究 $\theta = 1.02^\circ$ 这一扭转角，并估算了形成层状斯格明子晶格所需的临界最近邻 DMI。对于分别具有铁磁和反铁磁 $CrBr_3$ 薄膜的 4L 异质结构，这些临界值分别为 0.18 meV 和 0.16 meV 。根据在异质双层情形中观察到的趋势，在实验中进一步减小扭转角，便可在更低的 DMI 值下实现层状

斯格明子晶格。图 3 展示了我们关于 $\theta = 1.02^{\circ}$ 的研究结果及相应的临界 DMI 值。

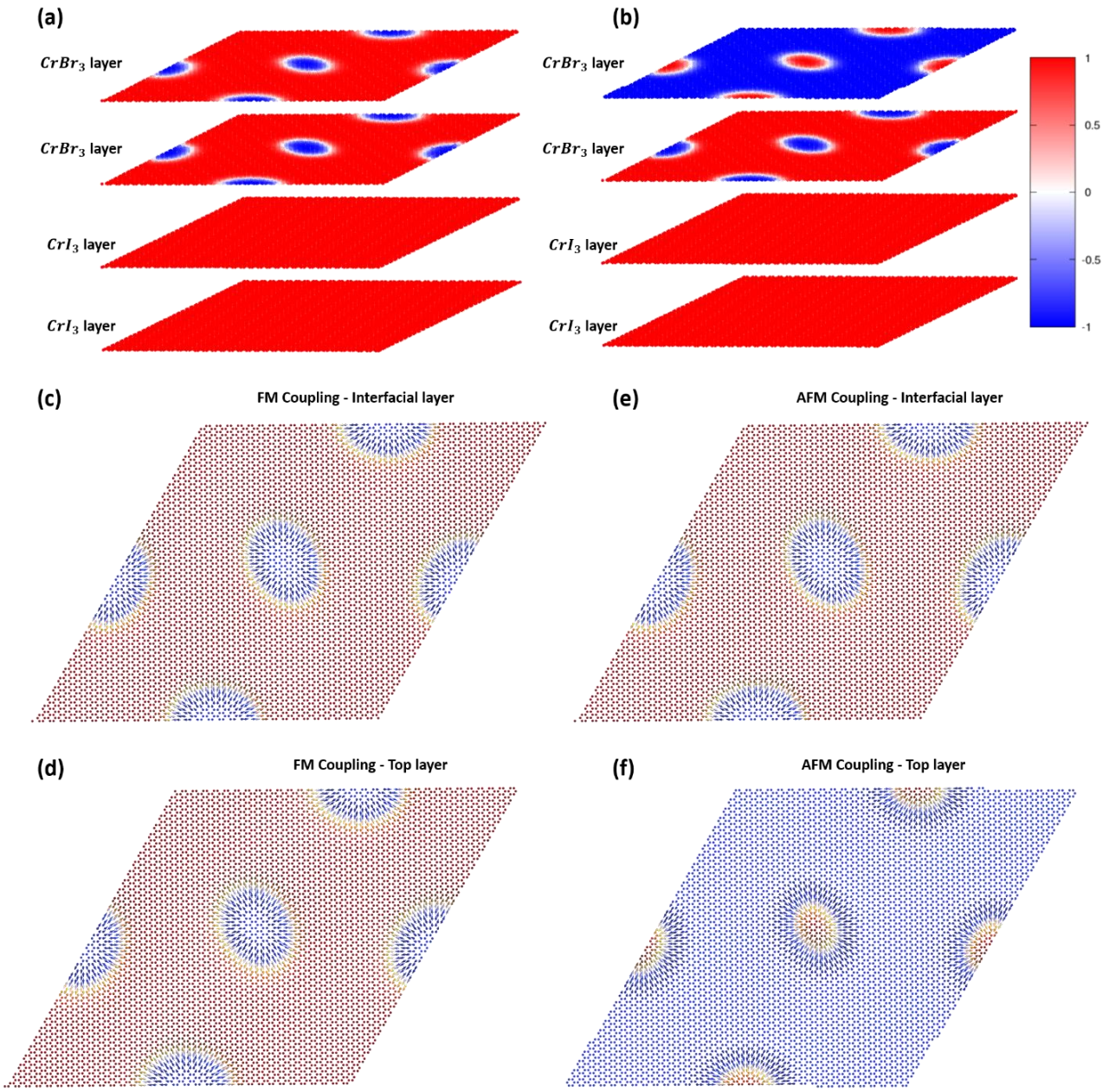

图 3：莫尔四层磁性异质结构中的层状斯格明子晶格。(a) $(CrBr_3)_2/(CrI_3)_2$ 异质

由 AB 堆垛的 $CrBr_3$ 双层构成的结构，相对于 AB 堆垛的 CrI_3衬底扭转了 $\theta = 1.02°$。由于莫尔层间耦合和界面 DMI，界面$CrBr_3$ 层中成核形成 Néel 型莫尔斯格明子（a、c）。均匀铁磁层间耦合和斯格明子自旋织构赋予顶层$CrBr_3$一个有效手性层间场，从而在顶层中印刻出斯格明子（a、d）。因此，顶层中的斯格明子继承了中间层中斯格明子的空间排列和手性（a、c、d）。(b) 中的异质结构与 (a) 中的相似，但 $(CrBr_3)_2$ 双层以 R 型（反铁磁）构型堆垛，导致

顶层中的斯格明子手性与界面$CrBr_3$层中的相反（b、e、f）。(a) 和 (b) 中异质结构的结果采用了生成斯格明子相所需的最小 DMI 值，分别为 0.18 meV 和 0.16 meV。增大样品尺寸会形成层状二维斯格明子晶格。颜色标度表示面外自旋分量，范围从 -1（蓝色）到 1（红色）。

图 3a 展示了铁磁 $CrBr_3$ 情形。在基态中，莫尔层间结构（在最近邻 DMI 的辅助下）稳定了界面 $CrBr_3$ 层中的三个奈尔型斯格明子（图 3a、c）。$CrBr_3$ 中的均匀铁磁层间耦合与界面 $CrBr_3$ 层中的斯格明子自旋织构共同为顶层 $CrBr_3$ 层提供有效手性层间场，从而在这一无 Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用层中稳定了三个奈尔型斯格明子（图 3a、d）。由于铁磁层间耦合，顶层和界面 $CrBr_3$ 层中的斯格明子同心且手性一致（图 3a、c、d）。在多莫尔样品中，莫尔斯格明子的垂直印记会在所有莫尔超胞中重现，从而形成自旋纹理一致的层状二维 $CrBr_3$ 斯格明子晶格。图 3b 对应反铁磁 $CrBr_3$ 情形。与前述情况相同，由于莫尔层间耦合和最近邻 DMI，界面 $CrBr_3$ 层中形成了三斯格明子相（图 3b、e）。在当前情形下，由于反铁磁 $CrBr_3$ 层间耦合，顶层$CrBr_3$ 层所受的有效层间场与界面层斯格明子的手性相反。因此，有效手性场在顶层中产生的斯格明子，其自旋方向与界面层中的斯格明子相反（图 3b、e、f）。扩大样品尺寸以包含多个莫尔超胞后，$CrBr_3$ 双层中会形成自旋排列相反的层状二维 $CrBr_3$ 斯格明子晶格。接下来，我们考察 5L（$CrBr_3$）$_3$/（CrI_3）$_2$ 异质结构，该结构由一个相对于原始 CrI_3 双层衬底旋转角度 θ 的原始 $CrBr_3$ 三层组成。CrI_3 衬底保持铁磁构型，而相邻层之间的层间 $CrBr_3$ 耦合可以是铁磁或反铁磁。

在 5层异质结构中，若采用此前对 θ 和 d设定的取值范围，构造层状斯格明子晶格会变得困难。为避免使用不合理的高强度最近邻 DMI，我们将扭转角降至 1.02° 以下，并考虑由 $\theta = 0.91^{\circ}$ 和 d =0.3 meV构成的异质结构。对 12 次模拟（采用不同的初始随机自旋）所得结果表明，在 CrI_3 双层衬底中形成斯格明子在能量上受到抑制，而在 $CrBr_3$ 三层结构中则出现了稳定的层状斯格明子晶格。与此前的异质结构类似，

莫尔场与最近邻 DMI 协同作用，在界面 $CrBr_3$ 层中生成莫尔斯格明子。随后，手性层间场将它们垂直印刻到其余的 $CrBr_3$ 层中（图 4）。通过在 $CrBr_3$ 三层结构中结合铁磁堆垛和反铁磁堆垛，我们成功设计出 4 种不同的层状斯格明子晶格，如图 4 所示。

在我们的五层模拟中，我们选择了 $d = 0.3\ meV$，以促进层状斯格明子晶格的形成，尽管这一数值可能超过临界DMI。正如前文所强调的，进一步减小扭转角将降低形成这类三层层状斯格明子晶格所需的临界DMI。值得注意的是，由于异质结构中 CrI_3 和 $CrBr_3$ 薄膜的厚度分别为两层和三层，因此可以将扭转角减小到极小值，同时不损害界面的结构稳定性。近期的一项实验研究[29], 证实了这一点：扭转角小于 ~0.5° 的轻微扭转超薄 CrI_3 薄膜之间的莫尔界面具有稳健的结构稳定性。

我们对具有 $n \geq 4$ 的莫尔 $(CrBr_3)_n/(CrI_3)_{n'}$ 异质结构进行了考察，结果表明，对于所选材料，生成 4 个或更多层状斯格明子晶格并不可行。此外，我们还初步探索了在 CrI_3 衬底上生成莫尔斯格明子的可能性，并以 $(CrBr_3)_3/CrI_3$ 异质结构作为初步尝试。该异质结构由一个本征铁磁堆叠的 $CrBr_3$ 三层结构扭转后覆盖在单层 CrI_3 单层结构之上构成。事实上，在莫尔周期较大且最近邻 DMI 较强时，研究发现，在该异质结构中形成单个 CrI_3 斯格明子晶格在能量上更有利（补充图 4）。然而，我们随后尝试在 $(CrBr_3)_4/(CrI_3)_2$ 和 $(CrBr_3)_5/(CrI_3)_2$ 莫尔异质结构中生成层状 CrI_3 斯格明子晶格，但均未成功。具体而言，在 $\theta = 0.91^{\circ}$ 和 $d = 0.3\ meV$ 条件下对这些异质结构进行的模拟，均得到层状铁磁基态。

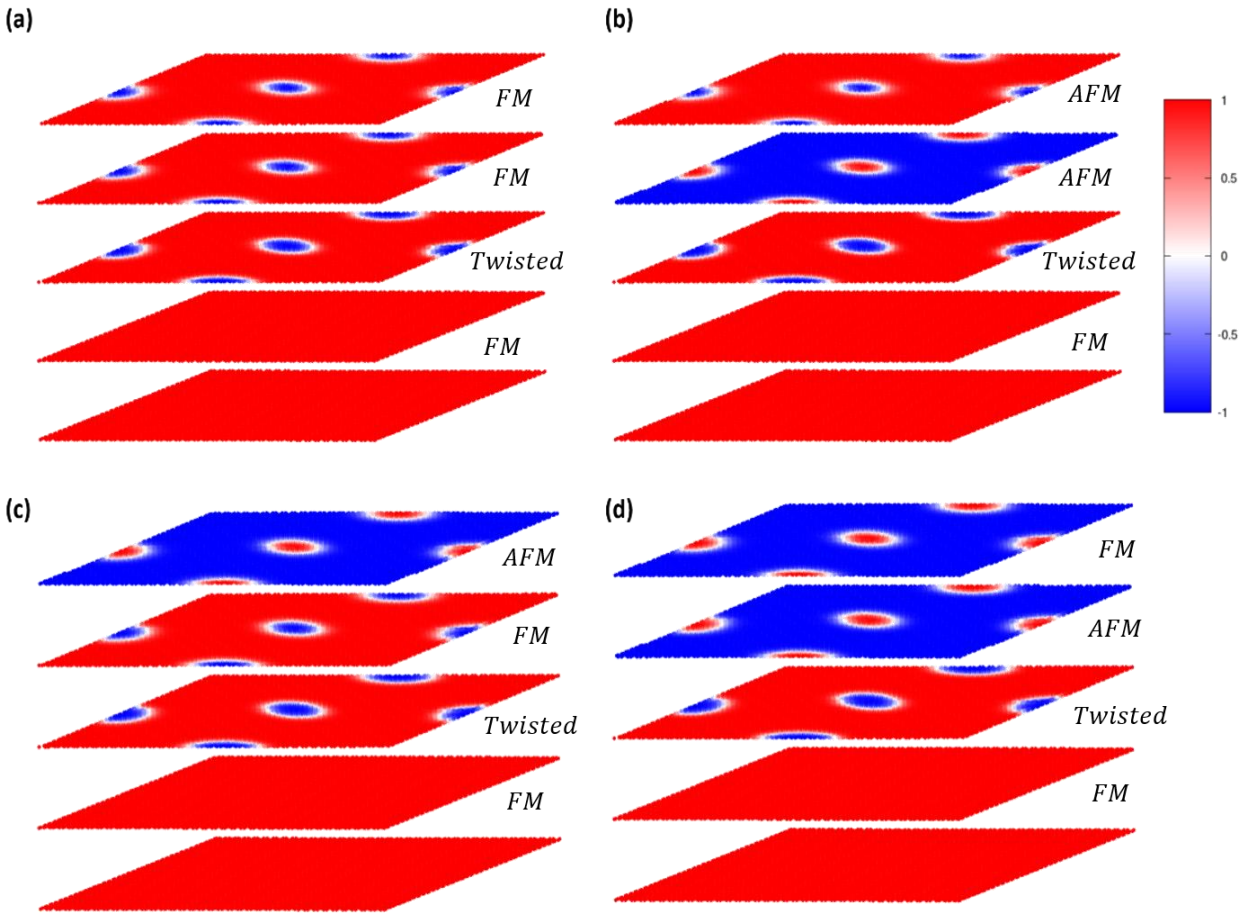

图 4：莫尔五层磁性异质结构中的层状斯格明子晶格。层状斯格明子晶格中的 $(CrBr_3)_3/(CrI_3)_2$ 异质结构由一个 $CrBr_3$ 三层结构（顶部三层）构成，该结构相对于 CrI_3 双层衬底（底部两层）扭转了 $\theta = 0.91^{\circ}$ 角。CrI_3 衬底保持铁磁（FM）构型，而相邻层之间的层间 $CrBr_3$ 耦合可以是铁磁（FM）或反铁磁（AFM），如图 (a)–(c) 所示。界面层中的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用（DMI）设为 $0.3\ meV$ 。莫尔场和最近邻 DMI 在界面 $CrBr_3$ 层中产生 Néel 型莫尔斯格明子。随后，涌现手性层间场将这些斯格明子垂直印刻到其余 $CrBr_3$ 层中。当对应的本征层间耦合为铁磁（FM）时，相邻层中的莫尔斯格明子自旋方向相同；当耦合为反铁磁（AFM）时，自旋方向相反。颜色标度表示面外自旋分量的大小，范围从 -1（蓝色）到 1（红色）。

4. 结论

由于体相或界面 DMI，斯格明子可以在传统磁性薄膜和多层结构中成核[62–64]。然而，要在未来的自旋电子学和磁振子器件中实现 DMI 斯格明子，仍面临其需要外场辅助稳定以及难以控制其空间分布的挑战[54–56]。莫尔斯格明子或许能够应对这些挑战，因为其成核过程从根本上不同于传统的 DMI 斯格明子。

在低于临界扭转角时，莫尔磁体中的自旋纹理会在莫尔超胞内特定位置形成，这些位置的层间耦合局部呈反铁磁。一种较强的最近邻 DMI 将自旋纹理塑造为奈尔型斯格明子，并使临界扭转角的数值适度升高。然而，最近邻 DMI 不会影响斯格明子的空间分布；该分布完全由层间耦合决定。因此，莫尔磁体有望实现斯格明子在预定位置的可控成核。

然而，单材料莫尔磁性结构中的斯格明子可以形成于任意一层，从而阻碍斯格明子周期性二维排列的形成。在这方面，莫尔磁性异质结构相比单材料结构具有显著优势。这些异质结构中的界面会产生较大的最近邻 DMI[61]，，而异质结构中磁性的变化则将斯格明子限制在特定层中。因此，这些异质结构可能是实现二维斯格明子晶格的理想候选体系。

然而，莫尔磁性异质结构仍未得到充分探索，缺少实验研究和能够考虑其竞争相互作用复杂耦合的高级建模。本研究强调了它们构建斯格明子结构的潜力，这种结构或许无法在传统磁性薄膜和多层结构中实现。我们选择了CrI_3和$CrBr_3$来展示我们的结果，主要是因为已有大量关于它们堆叠依赖磁性和层内相互作用的数据。然而，需要指出的是，我们的研究结果并不限于这些特定材料；它们仅作为示例性原型。

我们模拟了莫尔$CrBr_3{}_n/(CrI_3)_{n'}$异质结构中的斯格明子相，纳入了所有自旋自由度、层内相互作用、热效应和层间耦合。所提出的异质结构由本征$CrBr_3$超薄膜（n层）构成，并相对于本征CrI_3超薄膜（n'层）进行扭转。$CrBr_3$和CrI_3中的层内相互作用采用包含自旋轨道耦合（次近邻 DMI）的实验模型。热效应

通过 sLLG方程纳入热效应，层间相互作用则采用现有的 DFT数据建模，这些数据描述了$CrBr_3/CrI_3$、 $CrBr_3/CrBr_3$和CrI_3/CrI_3双层中的堆垛依赖磁性。

当衬底厚度、扭转角和界面最近邻 DMI 取适当值时，所提出的异质结构中可以形成层状$CrBr_3$ 莫尔斯格明子晶格。莫尔斯格明子晶格在$CrBr_3$ 界面层形成，随后投影到薄膜的其余层中。投影所得斯格明子的自旋取向可以与界面莫尔斯格明子的取向相同或相反，具体取决于薄膜中本征层间耦合的符号。

尽管$CrBr_3/CrI_3$中的莫尔层间相互作用较弱，我们仍在（$CrBr_3$）$_3$/（CrI_3）$_2$中构造了三种$CrBr_3$ 层状斯格明子晶格。近期的一项理论研究[65] 指出了几种具有更强且多样化的莫尔层间耦合的磁性异质双层。这些材料有望推动未来研究，并且在生成层状斯格明子晶格方面可能优于（$CrBr_3$）$_n$/（CrI_3）$_{n'}$ 异质结构。

近期，已有研究报道了几种在室温及以上温度下表现出自发磁化的二维磁体[25,66–68]。这项持续开展的工作对于将二维磁体整合到可在室温下运行的商用器件中具有重要意义。尽管本研究所选材料中的层状莫尔斯格明子晶格仅在低温下出现，我们的发现仍凸显了莫尔磁性异质结构在构筑新型拓扑自旋电子和磁振子器件方面的潜力。近年来，在CrI_3中观察到层状铁磁和反铁磁共线相后，已有研究提出了多种低温自旋电子器件。这些器件包括自旋过滤隧穿势垒[69], 、场效应晶体管[70], 、非互易光学器件[71],、光伏器件[72], 、自旋流器件[73], , 以及能够在石墨烯中诱导导体—绝缘体转变的自旋阀[74]。本研究揭示的层状铁磁和反铁磁斯格明子晶格，超越了在本征CrI_3中观察到的标准层状铁磁和反铁磁相。这些拓扑相会产生手性磁场，并可能为此前提出的自旋电子器件带来新的有趣现象和功能。与DMI诱导的斯格明子相比，这些晶格具有显著的周期性，可为莫尔磁振子[75–80] 和基于斯格明子的磁振子学的持续研究提供令人振奋的平台。

5. 方法

所有方法均包含在“结果与讨论”部分中。

6. 数据可用性

当前研究期间生成的数据集可应合理请求向通讯作者索取。

7. 代码可用性

本研究开发的代码可应合理请求向通讯作者索取。

8. 参考文献

[1] A. Fert、V. Cros、J. Sampaio，《自然·纳米技术》2013年，8，152。[2] X. S. Wang、X. R. Wang，载于《应用物理专题》（编者：J. Zang、V. Cros、A. Hoff- mann），施普林格国际出版公司，Cham，2021年，第357–403页。[3] B. Göbel、I. Mertig、O. A. Tretiakov，《物理报告》2021年，895，1。[4] R. Wiesendanger，《自然综述：材料》2016年 1:7 2016，1，1。[5] W. Jiang、G. Chen、K. Liu、J. Zang、S. G. E. te Velthuis、A. Hoffmann，《物理报告》2017年，704，1。[6] A. Fert、N. Reyren、V. Cros，《自然综述：材料》2017年 2:7 2017，2，1。[7] S. Mühlbauer、B. Binz、F. Jonietz、C. Pfleiderer、A. Rosch、A. Neubauer、R. Georgii、P. Böni，《科学》（1979）2009年，323，915。[8] X. Z. Yu、Y. Onose、N. Kanazawa、J. H. Park、J. H. Han、Y. Matsui、N. Nagaosa、Y. To- kura，《自然》2010年，465，901。[9] U. K. Rößler、A. N. Bogdanov、C. Pfleiderer，《自然》2006年，442，797。[10] S. do Yi、S. Onoda、N. Nagaosa、J. H. Han，《物理评论B：凝聚态物质与材料物理》2009年，80，054416。[11] S. Heinze、K. von Bergmann、M. Menzel、J. Brede、A. Kubetzka、R. Wiesendanger、G. Bihlmayer、S. Blügel，《自然物理》2011年，7，713。[12] S. Seki、X. Z. Yu、S. Ishiwata、Y. Tokura，《科学》（1979）2012年，336，198。[13] L. Peng、R. Takagi、W. Koshibae、K. Shibata、K. Nakajima、T. Arima、N. Nagaosa、S. Seki、X. Yu、Y. Tokura，《自然·纳米技术》2020年，15，181。[14] Z. Liu、M. dos Santos Dias、S. Lounis，《物理学杂志：凝聚态物质》2020年，32，425801。[15] B. Huang、G. Clark、E. Navarro-Moratalla、D. R. Klein、R. Cheng、K. L. Seyler、Di. Zhong、E. Schmidgall、M. A. McGuire、D. H. Cobden、W. Yao、D. Xiao、P. Jarillo-Her- rero、X. Xu，《自然》2017年，546，270。[16] C. Gong、L. Li、Z. Li、H. Ji、A. Stern、Y. Xia、T. Cao、W. Bao、C. Wang、Y. Wang、Z. Q. Qiu、R. J. Cava、S. G. Louie、J. Xia、X. Zhang，《自然》2017年，546，265。

[17] M.-G. Han、J. A. Garlow、Y. Liu、H. Zhang、J. Li、D. DiMarzio、M. W. Knight、C. Pe- trovic、D. Jariwala、Y. Zhu，《纳米快报》2019年，19，7859。[18] B. Ding、Z. Li、G. Xu、H. Li、Z. Hou、E. Liu、X. Xi、F. Xu、Y. Yao、W. Wang，《纳米快报》2020年，20，868。[19] M. Yang、Q. Li、R. v. Chopdekar、R. Dhall、J. Turner、J. D. Carlström、C. Ophus、C. Klewe、P. Shafer、A. T. N'Diaye、J. W. Choi、G. Chen、Y. Z. Wu、C. Hwang、F. Wang、Z. Q. Qiu，《科学进展》2020年，6，eabb5157。[20] Y. Wu、S. Zhang、J. Zhang、W. Wang、Y. L. Zhu、J. Hu、G. Yin、K. Wong、C. Fang、C. Wan、X. Han、Q. Shao、T. Taniguchi、K. Watanabe、J. Zang、Z. Mao、X. Zhang、K. L. Wang，《自然通讯》2020年，11，3860。[21] T. E. Park、L. Peng、J. Liang、A. Hallal、F. S. Yasin、X. Zhang、K. M. Song、S. J. Kim、K. Kim、M. Weigand、G. Schütz、S. Finizio、J. Raabe、K. Garcia、J. Xia、Y. Zhou、M. Ezawa、X. Liu、J. Chang、H. C. Koo、Y. D. Kim、M. Chshiev、A. Fert、H. Yang、X. Yu、S. Woo，《物理评论B》2021年，103，104410。[22] C. Xu、J. Feng、S. Prokhorenko、Y. Nahas、H. Xiang、L. Bellaiche，《物理评论B》2020年，101，060404。[23] X. Lu、R. Fei、L. Zhu、L. Yang，《自然通讯》2020年，11，4724。[24] M. Augustin、S. Jenkins、R. F. L. Evans、K. S. Novoselov、E. J. G. Santos，《自然通讯》2021年，12，185。[25] Q. H. Wang、A. Bedoya-Pinto、M. Blei、A. H. Dismukes、A. Hamo、S. Jenkins、M. Ko- perski、Y. Liu、Q. C. Sun、E. J. Telford、H. H. Kim、M. Augustin、U. Vool、J. X. Yin、L. H. Li、A. Falin、C. R. Dean、F. Casanova、R. F. L. Evans、M. Chshiev、A. Mishchenko、C. Petrovic、R. He、L. Zhao、A. W. Tsen、B. D. Gerardot、M. Brotons-Gisbert、Z. Gug- uchia、X. Roy、S. Tongay、Z. Wang、M. Z. Hasan、J. Wrachtrup、A. Yacoby、A. Fert、S. Parkin、K. S. Novoselov、P. Dai、L. Balicas、E. J. G. Santos，ACS Nano 2021年，DOI 10.1021/ACSNANO.1C09150/ASSET/IMAGES/MEDIUM/NN1C09150_M119.GIF。[26] Q. Tong、F. Liu、J. Xiao、W. Yao，《纳米快报》2018年，18，7194。[27] K. Hejazi、Z. X. Luo、L. Balents，美国国家科学院院刊2020年，117，10721。[28] K. Hejazi、Z.-X. Luo、L. Balents，《物理评论B》2021年，104，L100406。[29] T. Song、Q. C. Sun、E. Anderson、C. Wang、J. Qian、T. Taniguchi、K. Watanabe、M. A. McGuire、R. Stöhr、D. Xiao、T. Cao、J. Wrachtrup、X. Xu，《科学》（1979）2021年，374，1140。[30] D. Ghader、B. Jabakhanji、A. Stroppa，《Communications Physics》2022年，5，192。[31] M. Akram、H. Labollita、D. Dey、J. Kapeghian、O. Erten、A. S. Botana，《纳米快报》2021年，21，6633。[32] Y. Xu、A. Ray、Y.-T. Shao、S. Jiang、K. Lee、D. Weber、J. E. Goldberger、K. Watanabe、T. Taniguchi、D. A. Muller、K. F. Mak、J. Shan，《自然·纳米技术》2022年，17，143。[33] H. Xie、X. Luo、G. Ye、Z. Ye、H. Ge、S. H. Sung、E. Rennich、S. Yan、Y. Fu、S. Tian、H. Lei、R. Hovden、K. Sun、R. He、L. Zhao，《自然物理》2021年，1。[34] F. Xiao、K. Chen、Q. Tong，《物理评论研究》2021年，3，013027。[35] M. Akram、O. Erten，《物理评论B》2021年，103，L140406。[36] S. Ray、T. Das，《物理评论B》2021年，104，014410。[37] H. Xie、X. Luo、Z. Ye、Z. Sun、G. Ye、S. H. Sung、H. Ge、S. Yan、Y. Fu、S. Tian、H. Lei、K. Sun、R. Hovden、R. He、L. Zhao，《自然物理》2023年 2023，1。

[38] L. Chen, J. H. Chung, B. Gao, T. Chen, M. B. Stone, A. I. Kolesnikov, Q. Huang, P. Dai, Physical Review X 2018, 8, 041028.[39] I. Lee, F. G. Utermohlen, D. Weber, K. Hwang, C. Zhang, J. van Tol, J. E. Goldberger, N. Trivedi, P. C. Hammel, Physical Review Letters 2020, 124, 017201.[40] C. Xu, J. Feng, H. Xiang, L. Bellaiche, NPJ Comput Mater 2018, 4, 57.[41] L. Chen, J. H. Chung, T. Chen, C. Duan, A. Schneidewind, I. Radelytskyi, D. J. Voneshen, R. A. Ewings, M. B. Stone, A. I. Kolesnikov, B. Winn, S. Chi, R. A. Mole, D. H. Yu, B. Gao, P. Dai, Physical Review B 2020, 101, 134418.[42] Z. Cai, S. Bao, Z. L. Gu, Y. P. Gao, Z. Ma, Y. Shangguan, W. Si, Z. Y. Dong, W. Wang, Y. Wu, D. Lin, J. Wang, K. Ran, S. Li, D. Adroja, X. Xi, S. L. Yu, X. Wu, J. X. Li, J. Wen, Physical Review B 2021, 104, L020402.[43] N. Sivadas, S. Okamoto, X. Xu, C. J. Fennie, D. Xiao, Nano Letters 2018, 18, 7658.[44] P. Jiang, C. Wang, D. Chen, Z. Zhong, Z. Yuan, Z. Y. Lu, W. Ji, Physical Review B 2019, 99, 144401.[45] W. Chen, Z. Sun, Z. Wang, L. Gu, X. Xu, S. Wu, C. Gao, 《科学》 (1979) 2019, 366, 983.[46] J. S. Si, H. Li, B. G. He, Z. P. Cheng, W. B. Zhang, 《物理化学杂志C》 2021, 125, 7314.[47] F. Zheng, F. Zheng, B. Key, Adv Funct Mater 2022, 2206923.[48] D. Ghader, H. Gao, P. G. Radaelli, A. Continenza, A. Stroppa, ACS Appl Nano Mater 2022, 5, 15150.[49] J. Shang, X. Tang, X. Tan, A. Du, T. Liao, S. C. Smith, Y. Gu, C. Li, L. Kou, ACS Appl Nano Mater 2020, 3, 1282.[50] J. Xiao, B. Yan, 《二维材料》 2020, 7, 045010.[51] F. Xiao, Q. Tong, Nano Letters 2022, 22, 3946.[52] G. Cheng, M. M. Rahman, Z. He, A. L. Allcca, A. Rustagi, K. A. Stampe, Y. Zhu, S. Yan, S. Tian, Z. Mao, H. Lei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Upadhyaya, Y. P. Chen, 《自然通讯》 2022 13:1 2022, 13, 1.[53] Y. Wu, B. Francisco, Z. Chen, W. Wang, Y. Zhang, C. Wan, X. Han, H. Chi, Y. Hou, A. Lodesani, G. Yin, K. Liu, Y. tao Cui, K. L. Wang, J. S. Moodera, 《先进材料》 2022, 34, 2110583.[54] Y. Li, Q. Feng, S. Li, K. Huang, M. Ma, W. Gan, H. Zhou, X. Jin, X. Renshaw Wang, Y. Lu, W. S. Lew, Q. Lu, F. Ma, Adv Funct Mater 2020, 30, 1907140.[55] M. Ma, Z. Pan, F. Ma, J Appl Phys 2022, 132, 043906.[56] W. Li, I. Bykova, S. Zhang, G. Yu, R. Tomasello, M. Carpentieri, Y. Liu, Y. Guang, J. Gräfe, M. Weigand, D. M. Burn, G. van der Laan, T. Hesjedal, Z. Yan, J. Feng, C. Wan, J. Wei, X. Wang, X. Zhang, H. Xu, C. Guo, H. Wei, G. Finocchio, X. Han, G. Schütz, W. Li, G. Yu, Y. Liu, Y. Guang, Z. Yan, J. Feng, C. Wan, J. Wei, X. Wang, X. Zhang, H. Xu, C. Guo, H. Wei, X. Han, I. Bykova, J. Gräfe, M. Weigand, G. Schütz, S. Zhang, T. Hesjedal, R. Tomasello, M. Carpentieri, I. D. M Burn, G. van der Laan, G. Finocchio, 《先进材料》 2019, 31, 1807683.[57] R. F. L. Evans, W. J. Fan, P. Chureemart, T. A. Ostler, M. O. A. Ellis, R. W. Chantrell, 《物理学杂志：凝聚态物质》 2014, 26, 103202.[58] J. L. García-Palacios, F. J. Lázaro, Physical Review B 1998, 58, 14937.

[59] “Wolfram Mathematica：现代技术计算”，可见于 https://www.wolfram.com/mathematica/，无日期。[60] R. Jaeschke-Ubiergo, E. Suárez Morell, A. S. Nunez, Physical Review B 2021, 103, 174410.[61] Y. Wu, B. Francisco, Z. Chen, W. Wang, Y. Zhang, C. Wan, X. Han, H. Chi, Y. Hou, A. Lodesani, G. Yin, K. Liu, Y. tao Cui, K. L. Wang, J. S. Moodera, 《先进材料》 2022, 34, 2110583. [62] W. Jiang, P. Upadhyaya, W. Zhang, G. Yu, M. B. Jungfleisch, F. Y. Fradin, J. E. Pear- son, Y. Tserkovnyak, K. L. Wang, O. Heinonen, S. G. E. te Velthuis, A. Hoff mann, 《科学》 (1979) 2015, 349, 283.[63] A. Soumyanarayanan, M. Raju, A. L. Gonzalez Oyarce, A. K. C. Tan, M.-Y. Im, A. P. Petrović, P. Ho, K. H. Khoo, M. Tran, C. K. Gan, F. Ernult, C. Panagopoulos, Nat Ma- ter 2017, 16, 898.[64] C. Moreau-Luchaire, C. Moutafis, N. Reyren, J. Sampaio, C. A. F. Vaz, N. van Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot, P. Warnicke, P. Wohlhüter, J.-M. George, M. Weigand, J. Raabe, V. Cros, A. Fert, 《自然·纳米技术》 2016, 11, 444.[65] J. Xiao, B. Yan, 《二维材料》 2020, 7, 045010.[66] T. Gorkan, E. Vatansever, Ü. Aklncl, G. Gökoglu, E. Aktürk, S. Ciraci, Journal of Phys- ical Chemistry C 2020, 124, 12816.[67] H. Wu, W. Zhang, L. Yang, J. Wang, J. Li, L. Li, Y. Gao, L. Zhang, J. Du, H. Shu, H. Chang, 《自然通讯》 2021 12:1 2021, 12, 1.[68] Y. Wen, S. Liang, Z. Dong, R. Cheng, L. Yin, P. He, H. Wang, B. Zhai, Y. Zhao, W. Li, J. Jiang, Z. Li, C. Liu, K. Dong, J. He, K. Zhang, 《先进材料》 2023, 35, 2209346.[69] T. Song, X. Cai, M. W.-Y. Tu, X. Zhang, B. Huang, N. P. Wilson, K. L. Seyler, L. Zhu, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. A. McGuire, D. H. Cobden, D. Xiao, W. Yao, X. Xu, 《科学》 (1979) 2018, 360, 1214.[70] S. Jiang, L. Li, Z. Wang, J. Shan, K. F. Mak, 《自然·电子学》 2019 2:4 2019, 2, 159.[71] Z. Sun, Y. Yi, T. Song, G. Clark, B. Huang, Y. Shan, S. Wu, D. Huang, C. Gao, Z. Chen, M. McGuire, T. Cao, D. Xiao, W. T. Liu, W. Yao, X. Xu, S. Wu, 《自然》 2019, 572, 497.[72] Y. Zhang, T. Holder, H. Ishizuka, F. de Juan, N. Nagaosa, C. Felser, B. Yan, Nat Com- mun 2019, 10, 3783.[73] R. Xu, X. Zou, 《物理化学快报》 2020, 11, 3152.[74] C. Cardoso, D. Soriano, N. A. García-Martínez, J. Fernández-Rossier, Physical Review Letters 2018, 121, 067701.[75] D. Ghader, 《科学报告》 2020, 10, 15069.[76] Y. H. Li, R. Cheng, Physical Review B 2020, 102, 094404.[77] C. Wang, Y. Gao, H. Lv, X. Xu, D. Xiao, Physical Review Letters 2020, 125, 247201.[78] J. Chen, L. Zeng, H. Wang, M. Madami, G. Gubbiotti, S. Liu, J. Zhang, Z. Wang, W. Jiang, Y. Zhang, D. Yu, J. P. Ansermet, H. Yu, Physical Review B 2022, 105, 094445.[79] A. Barman, G. Gubbiotti, S. Ladak, A. O. Adeyeye, M. Krawczyk, J. Grafe, C. Adelmann, S. Cotofana, A. Naeemi, V. I. Vasyuchka, B. Hillebrands, S. A. Nikitov, H. Yu, D. Grundler, A. v. Sadovnikov, A. A. Grachev, S. E. Sheshukova, J. Y. Duquesne, M. Marangolo, G. Csaba, W. Porod, V. E. Demidov, S. Urazhdin, S. O. Demokritov, E. Albisetti, D. Petti, R. Bertacco, H. Schultheiss, V. v. Kruglyak, V. D. Poimanov, S. Sahoo, J. Sinha, H. Yang, M. Münzenberg, T. Moriyama, S. Mizukami, P. Landeros，

R. A. Gallardo, G. Carlotti, J. v. Kim, R. L. Stamps, R. E. Camley, B. Rana, Y. Otani, W. Yu, T. Yu, G. E. W. Bauer, C. Back, G. S. Uhrig, O. v. Dobrovolskiy, B. Budinska, H. Qin, S. van Dijken, A. v. Chumak, A. Khitun, D. E. Nikonov, I. A. Young, B. W. Zingsem, M. Winklhofer, 《物理学杂志：凝聚态物质》 **2021年**, *33*, 413001.[80] D. Soriano, 《固体物理（*RRL*）–快速研究通讯 **2022年**, *16*, 2200078.

致谢

部分数值计算是在科威特中东美国大学（AUM）的 Phoenix 高性能计算设施上完成的。

作者贡献

D.G. 与 B.J 共同规划了这项研究，建立了理论模型，并编写了 Mathemat- ica 代码。
B.J. 进行了 Vampire 模拟，与 D.G. 一起分析结果，准备了补充材料，并起草了稿件。
D.G. 修改了稿件，并与 B.J. 一起撰写了最终版本。

补充信息

在莫尔磁性异质结构中设计层状二维斯格明子晶格

Bilal Jabakhanji[1] 和 Doried Ghader*[11] 中东美国大学工程与技术学院，科威特埃盖拉 54200

补充信息 1. 补充图。

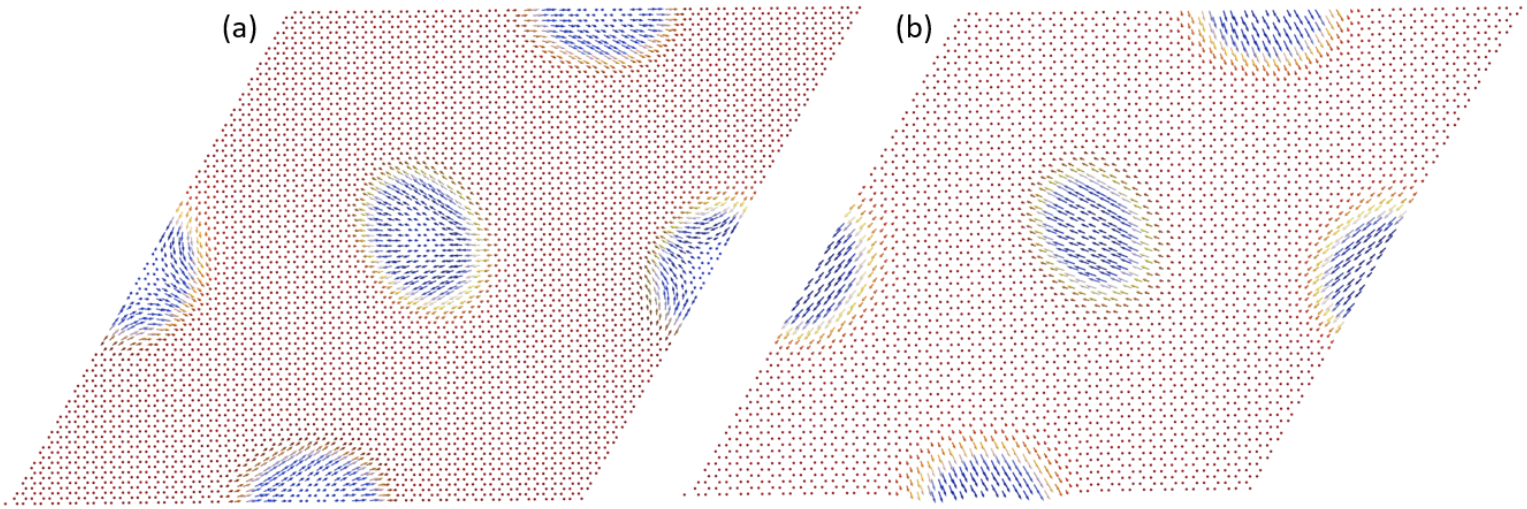

图 S1. $\theta \approx 1.02$、 $d = 0.03\ meV$ (a) 和 $\theta \approx 1.25$、 $d = 0.01\ meV$ (b) 时，莫尔 $CrBr_3$/ CrI_3 异质双层的 $CrBr_3$ 层中“零斯格明子相”的示意图。两幅图中均不存在奈尔型斯格明子，这是零斯格明子相的特征。(a) 中，在莫尔超胞的局部 R_{03} （等价于 R_{63}）堆垛区域观察到一个反斯格明子。其余反铁磁畴在拓扑上均为平庸的。(b) 中，所有反铁磁畴在拓扑上均为平庸的。

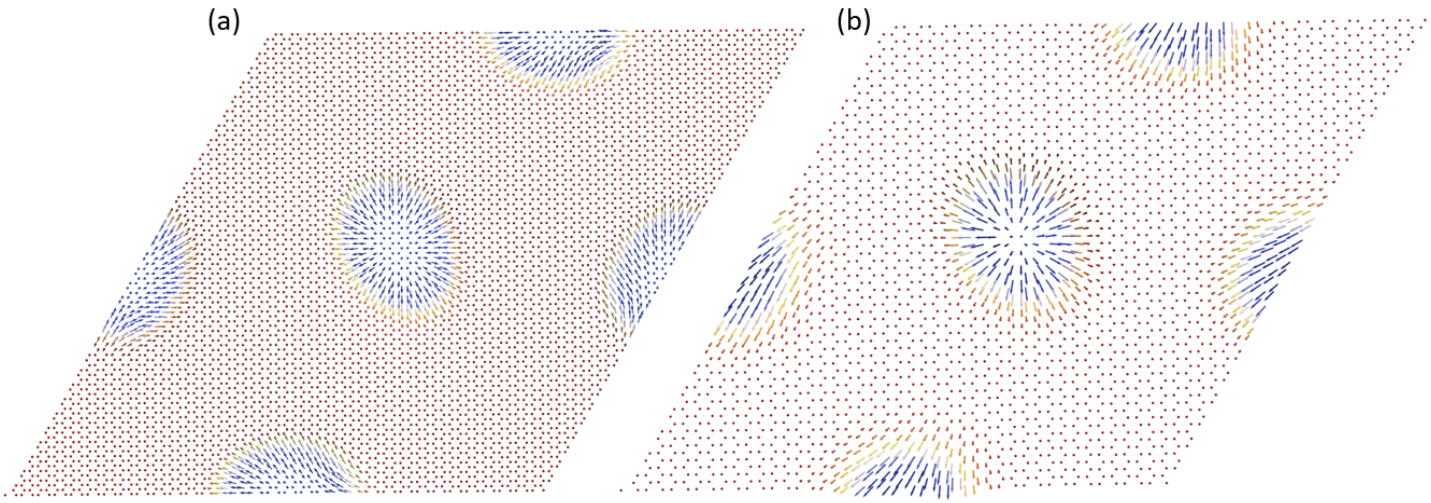

图 S2. 示意了 $\theta \approx 1.02, d = 0.06\, meV$ (a) 和 $\theta \approx 1.53, d = 0.08\, meV$ (b) 时，莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层的 $CrBr_3$ 层中“1 个斯格明子相”。在 (a) 和 (b) 中，莫尔超胞的局部 R_{33} 堆垛区域观察到一个奈尔型斯格明子，其余反铁磁畴在拓扑上是平庸的。

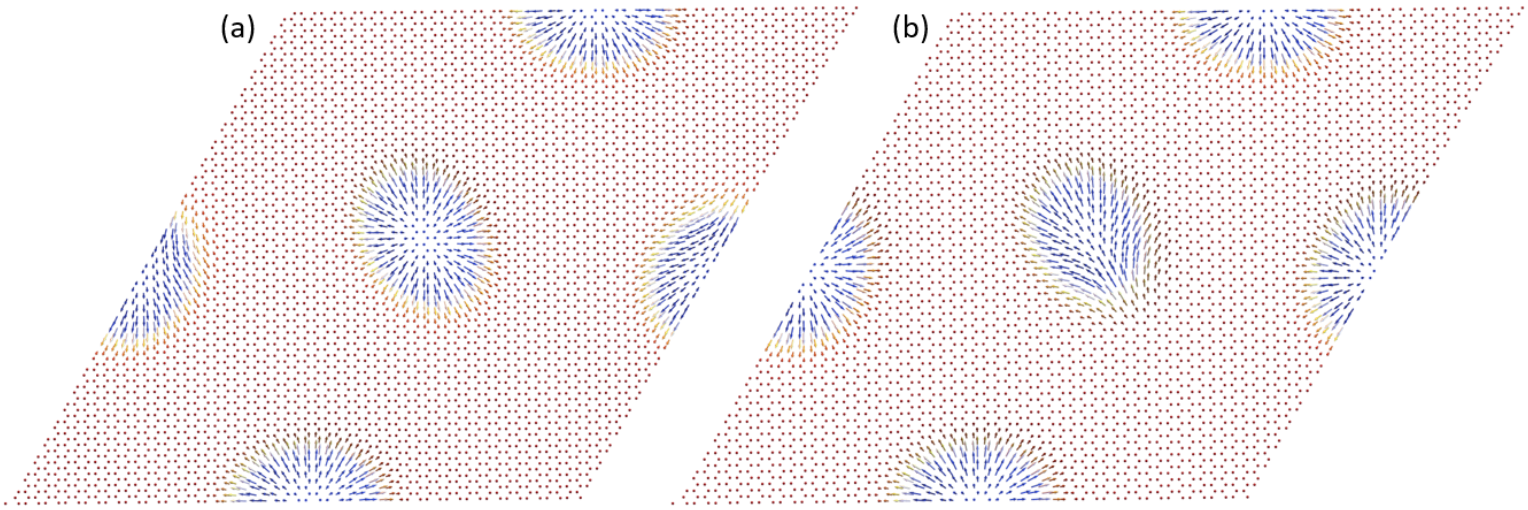

图 S3. 示意了 $\theta \approx 1.16, d = 0.07\, meV$ (a) 和 $\theta \approx 1.25, d = 0.09\, meV$ (b) 时，莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层的 $CrBr_3$ 层中“2 个斯格明子相”。在 (a) 中，莫尔超胞的局部 R_{33} 和 R_{30}（等价于 R_{36}）堆垛区域观察到奈尔型斯格明子，其余反铁磁畴在拓扑上是平庸的。在 (b) 中，局部 R_{30} 和 R_{03} 堆垛区域观察到奈尔型斯格明子，其余反铁磁畴在拓扑上是平庸的。

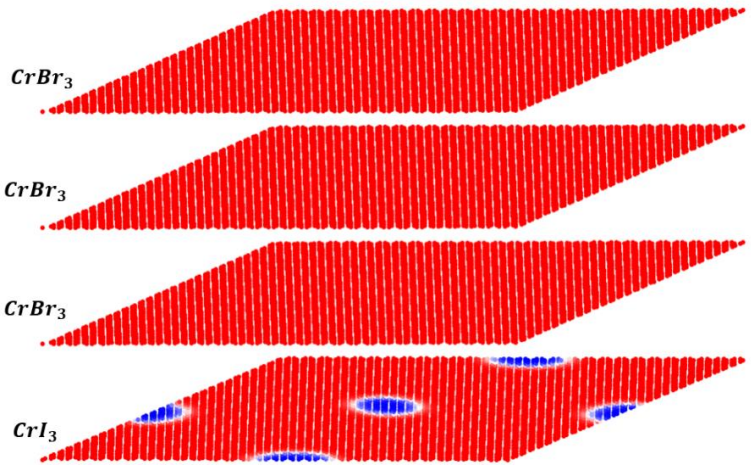

图 S4. 该图展示了在具有 $\theta = 1.16°$ 和 $d = 0.3\ meV$ 的 $(CrBr_3)_3/CrI_3$ 异质结构中形成 CrI_3 莫尔斯格明子的过程。

补充信息 2. 莫尔 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层的磁滞行为

在正文中，我们简要讨论了如何通过磁场操控 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层在 0 K 下的莫尔斯格明子晶格。此处，我们详细描述了斯格明子晶格相（θ =1.02° 和 $d = 0.3\ meV$）及铁磁相（$\theta = 6°$ 和 $d = 0.3\ meV$）中，异质双层在 0 K 附近的磁滞行为。为便于后文引用，我们将这些异质双层分别称为“3 Skyr 异质双层”和“铁磁异质双层”。请注意，补充视频 1 展示了 3 Skyr 异质双层情形。

我们首先进行 sLLG 模拟，以确定异质双层的基态。确定基态后，我们施加外磁场，在 $\pm 3\ \hat{\mathbf{z}}\ T$ 至 1 mT 的范围内变化，并记录磁滞行为。由于这些磁滞模拟是在 0 K 附近进行的，随机朗道-利夫希茨-吉尔伯特方程可简化为其朗道-利夫希茨-吉尔伯特形式，从而得到每个磁场值对应的自旋构型和平均磁化强度。

补充图 S5a 展示了一个具有 $\theta = 6°$ 和 $d = 0.3\ meV$ 的铁磁异质双层的磁滞回线。我们观察到一个方形磁滞回线，并伴有突发的磁化

反转和较大的矫顽场（$\sim \pm 2.2\,\hat{\mathbf{z}}\,T$）。持续的磁饱和随后出现突然的磁化反转，这表明在异质双层的磁滞操控过程中没有形成稳定的磁畴。

3 Skyr 异质双层呈现出根本不同的磁滞行为，如补充图 S5b 中 $\theta = 1.02°$ 和 $d = 0.3\,meV$ 所示。标签 I-VII 标出了磁滞操控过程中的主要事件。从 I ($\boldsymbol{B} = 3\,\hat{\mathbf{z}}\,T$) 到 II ($\boldsymbol{B} \approx 1.6\,\hat{\mathbf{z}}\,T$)，异质双层几乎始终保持铁磁态（补充图 S5c-I 和 II），且平均磁化强度达到饱和值 ($M \approx 1$)。从 II ($\boldsymbol{B} \approx 1.6\,\hat{\mathbf{z}}\,T$) 到 III ($\boldsymbol{B} \approx 1.4\,\hat{\mathbf{z}}\,T$)，反铁磁畴开始在莫尔超胞的局部反铁磁区域内形成于 $CrBr_3$ 层中（补充图 S5c-III 和补充视频 1），而 CrI_3 层仍保持铁磁态。反铁磁畴使平均磁化强度降至饱和值以下，并在磁滞回线上产生一个拐点。

从 III ($\boldsymbol{B} \approx 1.4\,\hat{\mathbf{z}}\,T$) 到 IV ($\boldsymbol{B} = 0\,\hat{\mathbf{z}}\,T$)，反铁磁畴持续扩张，最终在 $B = 0\,T$ (IV) 的局部反铁磁区域内形成三个成熟的奈尔型斯格明子 $CrBr_3$（补充图 S5c-IV 和补充视频 1）。由于 CrI_3 衬底仍保持铁磁性，磁化强度在 $B = 0\,T$ (~90 %) 处仍具有较高的剩磁，而 $CrBr_3$ 斯格明子则占据莫尔超胞中的特定区域。在磁滞操控过程中，$B = 0\,T$ 处斯格明子的重构证实了斯格明子晶格的稳健性，以及其在无恒定磁场时的稳定性。

沿磁滞回线的 IV-V 区段，外磁场指向负 z 方向，使磁性斯格明子膨胀，并降低平均磁化强度。从 V 到 VI，磁性斯格明子迅速扩张并失去其拓扑荷，导致整个异质双层在较大的矫顽场 $B \approx -1.865\,T$ 下发生快速磁化反转（补充视频 1）。磁化反转过程完成后，平均磁化强度迅速沿 $-\hat{\mathbf{z}}$ 饱和。

当磁场从 $-3\,\hat{\mathbf{z}}\,T$ 扫至 $3\,\hat{\mathbf{z}}\,T$时，也观察到类似的磁滞行为。具体而言，在事件 VII ($B = 0\,T$) 中，局部反铁磁区域出现了三个 $CrBr_3$ 奈尔型斯格明子（补充图 S5c-VII）。VII 和 IV 时的斯格明子自旋纹理方向相反（补充图 S5c-IV 和 VII）。

重要的是，除矫顽场附近外，CrI_3 衬底在整个磁滞过程中始终保持铁磁状态（补充视频 1），这表明斯格明子被牢固地限制在 $CrBr_3$ 层中。

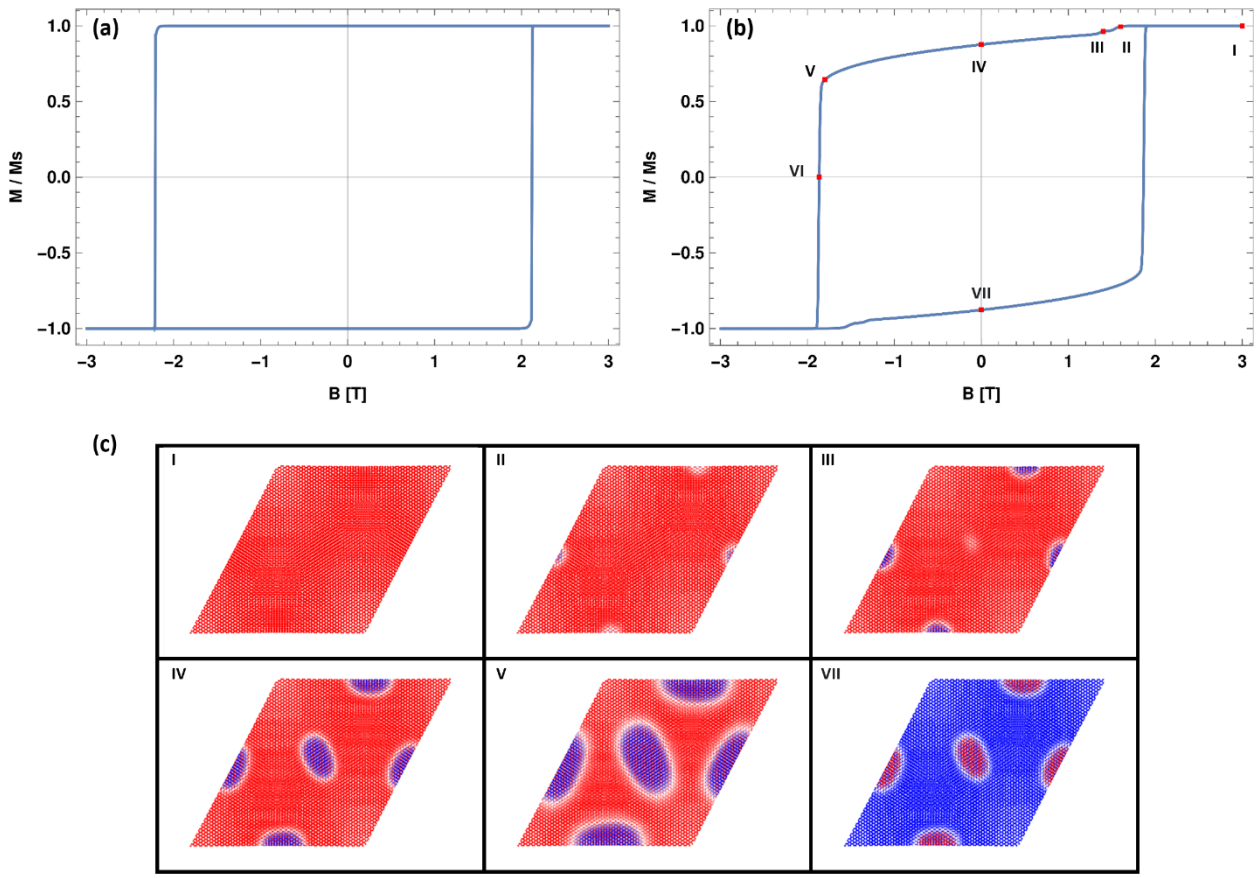

图 S5. 铁磁（FM）相（a）和 3斯格明子相（b）下 $CrBr_3/CrI_3$ 异质双层的磁滞回线。通过在 $\pm 3\,\hat{z}\,T$ 范围内以 $1\,mT$ 为步长改变外磁场生成这些回线。（a）和（b）中的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用（DMI）均为 $0.3\,meV$，而对应的扭转角分别为 6° 和 1.02°。铁磁异质双层呈现方形回线（a），表明其无法形成稳定的磁畴。相比之下，3斯格明子相异质双层表现出截然不同的行为（b），斯格明子成核介导了磁滞操控（c）。（c）中的子图展示了图（b）所示磁滞回线中特定位置的 $CrBr_3$ 自旋纹理（另见补充视频 1）。