二次元機能性原子・分子薄膜の創製と利用に資する基盤技術の創出 平成 26 年度採択研究代表者

H27 年度 実績報告書

## 富永 淳二

国立研究開発法人 産業技術総合研究所・ナノエレクトロニクス研究部門 首席研究員

カルコゲン化合物・超格子のトポロジカル相転移を利用した 二次元マルチフェロイック機能デバイスの創製

# § 1. 研究実施体制

- (1)「産業技術総合研究所」グループ
  - ① 研究代表者:富永 淳二 ((国研)産業技術総合研究所・ナノエレクトロニクス研究部門 首席研究員)
  - ② 研究項目: カルコゲン超格子によるトポロジカル機能発現とマルチフェロイック機能 デバイスの創製
    - 1. トポロジカル相転移材料及びデバイスの理論・シミュレーション
    - 2. ナノ構造創製と機能発現
    - 3. 革新的マルチフェロイック機能電子デバイスの創製
    - 4. ヘリカルスピン制御型光デバイスの創製
- (2)「豊田工業大学」グループ
  - ① 主たる共同研究者: 栗野 博之 (豊田工業大学・大学院工学研究科・教授)
  - ② 研究項目: カルコゲン超格子における磁気応答の研究
    - 1. GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>超格子における磁気光学効果の研究
    - 2. GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子における磁気抵抗効果、異常ホール効果、スピン波伝搬の研究
- (3) 「筑波大学」グループ-1
  - ① 主たる共同研究者:長谷 宗明 (大学・数理物質系・物理工学域・准教授)
  - ② 研究項目: カルコゲン化合物・超格子における磁気コヒーレンスの生成と検出

- 1. カルコゲン化合物・超格子における磁気コヒーレンスの生成と検出
- (4) 「筑波大学」グループ-2
  - ① 主たる共同研究者:久保 敦 (大学・数理物質系・物理学域・講師)
  - ② 研究項目: カルコゲン超格子を用いたアクティブプラズモニクス
- (5)「東京工業大学」グループ
  - ① 主たる共同研究者:村上 修一 (東京工業大学・大学院理工学研究科・教授)
  - ② 研究項目
    - ・トポロジカル絶縁体と通常の絶縁体の超格子の有効理論の構築と、その新奇物性の探索
    - ・有効模型の GeTe/ Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子への適用
    - ・他の物質系への適用可能性の検討
    - ・実験グループからの実験結果に即した理論的な解釈
- (6)「名古屋大学」グループ
  - ① 主たる共同研究者:田仲由喜夫 (名古屋大学・大学院工学研究科・教授)
  - ② 研究項目: 超格子構造がもつ低次元電子系物理の解明

# § 2. 研究実施の概要

### (1) 産業技術総合研究所(富永)グループ

GeTeとSb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>薄膜によって構成される超格子構造の組み合わせ積層数を変化させ、垂直電場および磁場印加におけるデバイスの磁気抵抗変化を詳細に解析し、超格子構造に起因する磁気モーメント発生に関する多くの知見を得ることができた。また、超格子作製時に現れる幾つかの異なる相(GeTe の熱力学的な安定配列)について、AFM を用いたナノ抵抗スイッチ測定を行い、そのスイッチング時間遅延変化から少なくとも3つの異なる相があり、一つの相のみが4 桁以上の抵抗変化を安定に繰り返すこと、また、それが熱的な相変化ではなく強誘電体的に振る舞い、電界によって抵抗変化をすることを初めて確認した[1]。この層を用いた三端子デバイスへの展開も進めており、バイポーラ的な相転移をすることも確認された。また、超格子膜のHall素子を試作し、磁場中でのキャリア伝導の温度依存性を測定したところ、異常ホール効果や270K付近で相転移を示唆する変化が観察された。テラヘルツ応用では、超格子型相変化材料を用いたフォトコンダクタ光検出システムを構築し、室温でテラヘルツ波の入射強度を抵抗値変化として検出することに成功した。シミュレーションにおいては、GeおよびTe原子のペトロフ配置が最も抵抗が高く、反ペトロフ配置とフェロ配置との抵抗差は一桁以上あるという、実験結果を再現する計算結果を得た。

### (2) 豊田工業大学(粟野)グループ

超格子膜の磁気光学効果波長依存性では、白色光を分光した波長範囲 300nm~800nm までの磁気光学 Kerr 効果測定器を立ち上げた。非直線4電極配置による磁気抵抗効果測定では、超格子試料に非直線4電極を配置し、磁気ドメイン検出を試みた結果、数か所の印加磁界でピーク信号を見出した。磁性膜の場合、磁壁があるときだけこの信号が現れることから、GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子膜においても磁壁の存在を表す信号であると考えることができる。スピン波観測設備立ち上げでは、超格子膜のスピン波存在を確認する新たな測定系として、スピン状態を強制的に連成運動させるマイクロ波共鳴測定系を立ち上げた。

#### (3) 筑波大学(長谷)グループ

立ち上げたフェムト秒パルスレーザーを光源としたポンプープローブ型時間分解ファラデー・カー回転検出装置を用いて、研究代表者グループらが作製したカルコゲン化合物および超格子型相変化メモリ材料の薄膜試料において、円偏光の励起光によって生成される過渡的なスピン偏極(磁化)信号を室温~500 K において取得することに成功した。また、超格子薄膜試料においてコヒーレントフォノン解析を行い、相変化光メモリの動作を超高速化するメカニズムを解明することに成功した [2]。

### (4) 筑波大学(久保)グループ

GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子膜(以下 GST 超格子)を絶縁体/金属層構造と共に積層化した、金属-絶縁体-相転移物質(Metal-Insulator-Phase transition material; MIP)積層型のプラズ モニック信号変調素子の開発を目指し、FDTD 法による素子形状のシミュレーションならびに通信帯近赤外光の変調実験を行った。Au/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/GST 超格子積層膜に集東イオンビームエッチングによるナノ加工を施して作製した、光と GST 超格子層の相互作用長がわずか 40nm の試料で、波長 1.55µm 光の透過強度に最大 20%の変調度を得た。相転移に伴う GST 超格子膜の複素屈折率変化は、同組成の GeSbTe 合金に比べて数倍程度も大きい。光学定数の変化は光の減衰や閉じ込めを複合的に変化させ光変調機能を発現することが、電磁場シミュレーションから示唆された。

# (5) 東京工業大学(村上)グループ

GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子を、トポロジカル絶縁体と通常の絶縁体の交互積層としてとらえ性質を理論的に調べている。これまでに、この系は絶縁体同士の積層であるにもかかわらずギャップが閉じることはまさに Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>のトポロジカル絶縁体としての性質に起因することを、モデル計算などを用いて提案してきた。H27年度では、こうした交互積層でのバンド構造には、トポロジカル絶縁体表面のディラックコーンのカイラリティ(+、一)が鍵を握っていることに着目し、積層方向のカイラリティの積み方を変えたトポロジカル絶縁体超格子系を作り、そのバンド構造を調べた。その結果、普通に積む(+ - + - + - の順)ような場合 (counterhelicity) および、+ - - + + - +のように積む場合 (cohelicity) を比べると、後者の場合に様々なトポロジカル半金属が現れることが分かった。先行研究では超格子の層数の組み合わせを変えると、これら2つの場合の間を転移するという理論が出されているが、本研究からは、そのような転移は起こらずcounterhelicity のみ起こるという結論となった。バルクの Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> から決まる積層順はcounterhelicity であり、電子論的にも cohelicity はトポロジカル半金属になりやすく、エネルギーの利得はむしろ少ないためである[3]。

# (6) 名古屋大学(田仲)グループ

超格子構造がもつ低次元電子系物理の解明を推進した。

## H27 年度の代表的な論文

- [1] L. Bolotov, Y. Saito, T. Tada, and J. Tominaga, "Conductance switching behavior of GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> superlattice upon hot-electron injection: a scanning probe microscopy study", MRS Advances 1 (5), 375-380 (2016), DOI:10.1557/adv.2016.137.
- [2] M. Hase, P. Fons, K. Mitrofanov, A. Kolobov and J. Tominaga, "Femtosecond structure transformation of phase change materials far from equilibrium monitored by coherent phonons", Nature Communications, 6, 8367/DOI:10.1038/ncomms9367 (2015).
- [3] K. Nakajin and S. Murakami, "Theory of unconventional spin states in surfaces with non-Rashba spin-orbit interaction", Phys. Rev. B 91, 245428 (2015).