

富永 淳二

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 (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. ナノ構造創製と機能発現
 2. 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
 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/ Sb₂Te₃ 超格子における磁気光学効果の研究
 2. GeTe/ Sb₂Te₃ 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 (筑波大学数理物質系物理学域、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 (筑波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

1. カルコゲン超格子の相転移機構を用いたプラズモニックデバイスの開発
2. カルコゲン超格子におけるスピン偏極プラズモンの励起と観察

(5)「東京工業大学」グループ

- ① 主たる共同研究者:村上 修一 (東京工業大学理学院、教授)
- ② 研究項目
 1. トポロジカル半金属の超格子で現れるさまざまなトポロジカル相の検討
 2. トポロジカル絶縁体積層で現れるトポロジカル相の探索およびカイラリティの秩序化転移の可能性の検討
 3. トポロジカル絶縁体薄膜でのコットンムートン効果の実験データの解析

(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
 1. 3次元トポロジカル絶縁体表面におけるらせん光渦による電気磁気効果の研究
 2. ワイル・ディラック半金属における逆ファラデー効果の理論研究
 3. 単層カルコゲナイド物質における電気磁気効果の研究

§ 2. 研究実施の概要

産業技術総合研究所(富永)グループ: GeTe と Sb_2Te_3 薄膜によって構成される超格子構造の面内スピン特性を豊田工業大学(栗野 G)と共同で測定し、従来のスピン伝導物質とは比較にならないほど大きなスピン伝導を室温で得た。また第一原理計算からスピン伝導について実験結果を裏付ける結果を得た。原理に基づいて超格子を改良することで、更に大きなスピン伝導を発現させることに成功した。本研究成果は、東京工業大学(村上 G)、豊田工業大学(栗野 G)との三グループで論文としてまとめ投稿した。

GeTe/ Sb_2Te_3 超格子膜を組み込んだ微細メモリセル(<100 nm)を試作し、超格子の縦方向抵抗変化とマルチレベルスイッチングの可能性および素子温度上昇の影響について調査した。マルチレベル動作に関しては、パルス電圧・幅を制御することで4つの抵抗状態間でスイッチング可能であることが明らかになった。また、温度の影響については、通常の SET・RESET スwitching が 100°C 程度まで安定して動作することを確認した。

プラズモニクスデバイスでは、超格子を用いた不揮発メモリと同様に電圧印加ができるサンプルデバイスの作製を進めているが、十分な電圧印加特性と光との反応領域を両立させるデバイスの実現難しく、プロセスの再設計を行った。テラヘルツデバイスでは Sb_2Te_3 等の単膜も含めてテラヘルツ波透過特性、フェムト秒レーザー励起によるテラヘルツ波発振特性の測定・評価を行い、各特性とバンド構造やフェルムレベルとの関係性について検討した。

理論においては、スピン軌道相互作用を取り込んだ第一原理電気伝導計算から、超格子型相変化材料において、電界駆動でのバイポーラモードによる抵抗スイッチが実現可能であることを初めて示した。さらにデバイスとしては高抵抗である抵抗層の構造が Dirac 半金属状態でもありうるというパラドックスを理論的に解明できた。トポロジカル物質及び二次元原子層材料の光学応答理論を構築し、二次元原子層材料における異常な電磁応答の起源を明らかにし、ワイル半金属においてトポロジー性に起因する異常な光学応答が出現することを明らかにした。成果の一部を応用した新規光学素子の特許出願を行った。

走査プローブ顕微鏡により超格子膜の面内抵抗の測定を行ったところ、100°Cあたりで半金属から半導体へ電子状態の転移を観測した。転移は、抵抗の温度係数の符号の逆転、バイポーラスイッチング電圧の急激な変化、電荷キャリア活性化エネルギーの出現、フェルミエネルギーのシフトとして現れることを明らかにした。

豊田工業大学(栗野)グループ: GeTe/ Sb_2Te_3 超格子膜の磁気キャパシタンス効果と磁気抵抗効果の関係、磁性電極からのスピン注入効果、超格子層上に磁性膜を積層したときの磁気共鳴測定を行った。その結果、GeTe/ Sb_2Te_3 超格子膜の試料両端に形成した電極に電界を印加して移動するキャリアに対して磁場の力で磁気抵抗が大きく変化し、それと同程度の大きなキャパシタンス変化が観察された。また、超格子膜上に FeNi 電極をいくつか設置し、FeNi からスピン偏極電流を注入した。すると電界のかかっていない FeNi 電極にも電圧が生じた。この信号が別の FeNi 電極の異方性磁気抵抗効果によるものでないことを確認するために、検出電極を非磁性の Pt に変えても変わらずに大きな電圧が生じることを確認した。これは超格子内にスピン流が流れたことを示

唆している。さらに超格子膜上に FeNi 磁性膜を積層し、強磁性共鳴実験を行った。その結果、FeNi 単体に現れる磁気共鳴信号が超格子膜によって大きく影響を受け、FeNi 磁化の歳差運動に大きなダンピング効果が生じることを見出した。一般に、重金属である Pt を FeNi に接合した場合にもこのダンピング定数は大きく増大するが、iPCM 接合の場合にはこれよりも更に大きくダンピング定数が増大する結果が得られた。

筑波大学(長谷)グループ:今年度は、時間分解コヒーレントスピン検出を、特に中心波長 1200～1550 nm の近赤外領域で測定し、波長(つまりエネルギー)に依存した磁気コヒーレンスを観測するとともに、GeTe/Sb₂Te₃ 超格子膜において各層の膜厚に依存したコヒーレントスピン信号の検出にも成功した。各層の膜厚に依存したスピン信号は、超格子型相変化材料のトポロジカル絶縁性の変化を反映していると考えられる。また、GeTe/Sb₂Te₃ 超格子構造とスピンドYNAMICS の関係も調べるため、コヒーレントフォノン分光による折り返し音響フォノンの観測を試み、超格子構造の全光学的解析も行った。その結果、ファンデルワールスギャップの存在を示唆する結果を得た。

名古屋大学(田仲)グループ:超格子 GeTe/Sb₂Te₃ を用いた相変化メモリ(iPCM)は、従来の半導体メモリと比べて低電力かつ高速動作することが確認されており、素子構造が単純であるため集積化に適し、大容量化が可能である。電気抵抗の違いは GeTe 層の Ge 原子の配置の違いであると報告されており、いくつかの理論モデルが提唱されている。iPCM は、基本的にはユニポーラ型のスイッチング特性を示すが、DC スイープによるバイポーラ型のスイッチングも最近観測されている。電流パルスおよびバイポーラの電圧下における Ge 原子の短距離移動の振る舞いは未だに解明されておらず、動作原理は明らかになっていない。iPCM の高性能・高信頼化のためには、それぞれのスイッチングにおける動作原理を明らかにすることが必要不可欠である。本研究では、高集積化に適したユニポーラ動作時の iPCM の動作原理を解明することを目指し、第一原理分子動力学(MD)計算と非平衡グリーン関数法計算を行った。その結果、ユニポーラ型 iPCM の抵抗変化メカニズムは、高抵抗状態(HRS)から低抵抗状態(LRS)の場合はジュール熱のみ、LRS から HRS の場合はジュール熱とホール注入に依る、ことを明らかとした。さらに第一原理伝導計算を実施することで両者の電気抵抗を計算したところ、これらの構造間におおよそ実際に 10 倍の抵抗比が存在することを確認した。また、トポロジカル絶縁体と磁性絶縁体の超格子において磁場を積層方向に印加することで、非自明な電気磁気効果(磁場による電流駆動/電流による磁場誘起)の存在を理論的に予言した。この電気磁気効果は”物質中におけるアクシオン”の時間変化に起因することを示した。さらに昨年度に引き続き、遷移金属カルコゲナイド(TMD)という物質におけるスピントロニクス(電子が持つスピンの自由度を積極的に活用したエレクトロニクス)研究も行った。この物質の電子はスピンと電荷だけでなくバレーと呼ばれる自由度も持つ。昨年度は新しいタイプのバレー依存現象(バレーに依存した電場によるスピン偏極誘起現象[現在投稿中])を予言したが、H29 年度はその研究を発展させて香港科学技術大学の K.T.Law 教授のグループと研究を行った。その研究の結果、TMD にゲート電圧を印加することによって、スピンとバレーが結合したホール効果--スピンバレーホール効果--が現れることを理論的に予言した。

筑波大(久保)グループ: $(\text{GeTe})_2/(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_1$ 超格子 (GST-SL) を変調部に用いた、ハイブリッド・プラズモン導波路型のプラズモニック変調素子を考案した。この変調素子は光通信帯波長 (1.55 μm) で機能し、外部からの電圧信号により ON/OFF の駆動ができ、信号強度比は約 30 に達する。素子の長さは 50 μm 以下に抑えられ、コンパクトな変調素子の構築が可能である。

東京工業大(村上)グループ: H28 年度は時間反転対称性の破れたワイル半金属と通常の絶縁体との超格子を考えたが、H29 年度はそれを踏まえて、空間反転対称性の破れたワイル半金属と通常の絶縁体との超格子を考察した。この系は相変化メモリ超格子とも関連している。その結果、層の厚さを変化させることで、通常の絶縁体や弱いトポロジカル絶縁体のみならず、強いトポロジカル絶縁体も実現されることが分かった。またこのさまざまな相のトポロジカルナンバーと、ワイル点の軌跡との関係を解明した。さらにこの超格子の物理を深めるため、スピン軌道相互作用の役割を考察した。スピン軌道相互作用をゼロとするとこのワイル半金属はノーダルライン半金属となる。ノーダルライン半金属と通常の絶縁体との超格子を前と同様に考察し、波数空間でのノーダルラインの大きさと超格子の周期の兼ね合いによって、ノーダルラインのトポロジーが変化したさまざまな相が現れることを見いだした。なおこのさまざまな相は、磁化を導入して時間反転対称性を破った場合に現れる相の種類 (量子異常ホール相、通常の絶縁体相など) と関連している。

また、産総研グループの非局所伝導の実験に対して議論を重ね、実験結果に対して理論面からスピン信号としての解釈を行った。特に古典的な電流分布による非局所伝導の信号とスピンホール効果の信号との区別の方法、時間反転対称性からの要請による電流電圧特性の特徴などについて実験結果に対する解釈を行った。

H29 年度の代表的論文 (3 報)

1. H. Nakamura, I. Rungger, S. Sanvito, N. Inoue, J. Tominaga and Y. Asai, "Resistive switching mechanism of GeTe–Sb₂Te₃ interfacial phase change memory and topological properties of embedded two-dimensional states", *Nanoscale* **9**, 9386-9395 (2017). DOI 10.1039/C7NR03495D
2. R. Mondal, Y. Saito, Y. Aihara, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, S. Murakami, and M. Hase, "A cascading nonlinear magneto-optical effect in topological insulators", *Sci. Rep.* **8**, 3908 (2018).
3. J. Tominaga, Y. Saito, K. Mitrofanov, N. Inoue, P. Fons, A. V. Kolobov, H. Nakamura and N. Miyata, A Magnetoresistance induced by a nonzero Berry phase in GeTe/Sb₂Te₃ chalcogenide superlattices, *Adv. Func. Mater.* 1702243, 2017, DOI: 10.1002/adfm.201702243