

# 戦略的創造研究推進事業 CREST

研究領域「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」

研究課題「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」

## 研究終了報告書

研究期間 2014年10月～2020年3月

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)

## § 1 研究実施の概要

### (1) 実施概要

本研究テーマにおける研究目標は、「カルコゲン化合物がもつ大きなスピン軌道相互作用から端を発するトポロジカル絶縁体特性を応用して、ヘテロ化合物による超格子構造を作製し、低次元のコヒーレント構造相転移を外部電場あるいは磁場により発生させ、革新的なマルチフェロイック機能デバイスの創製を目指す」ことであり、具体的には、「トポロジカル絶縁体がもつ特徴的なギャップレス状態を外部電場を使って構造相転移を発生させ、ギャップ開閉を制御し、テラヘルツ光を制御する新機能デバイス、スピン整流器、および新原理スイッチング素子の創生」を狙ったプロジェクトである。目標を達成するために、理論系および実験系研究者が互いにコラボレーションすることが特に重要で、研究体制として理論系3グループ(産総研、東工大、名古屋大)と実験系4グループ(産総研、筑波大2、豊田工業大学)が強く連携して研究開発を実施した。

東工大は、通常の絶縁体薄膜とトポロジカル絶縁体薄膜が交互に積層した超格子積層膜系において、各薄膜の厚みをパラメータとして制御することで、通常絶縁体から Dirac 半金属を経由して、トポロジカル絶縁体、さらには Weyl 半金属に至る相転移が可能であることを理論的に示した。この理論に基づき、産総研において GeTe(通常絶縁体)と Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>(トポロジカル絶縁体)を2ブロック対1ブロックの原子層厚で従来構成してきた超格子構造の膜厚を変更することで、その Weyl 相が大きなスピン分極性能をもつことを産総研と豊田工業大学が実験によって検証した。精密に膜厚制御させた Weyl 相超格子は、室温においても 100um を超えるスピン伝搬長を有し、スピン蓄積能力とスピン整流作用ももつことが簡単なデバイス作製によって実験的に検証された。なお、本成果のスピン蓄積装置と関連技術については特許出願を行った。

名古屋大学のスピン系の理論からは、GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子薄膜が光学非線形効果により内部に巨大磁化が発生することが予想され、フェムト秒レーザー光を集光するとトポロジカル特性に依存した特有の偏光状態が出現することを筑波大学が実験的に確認した。この手法は Dirac 点をもつことを特徴とするトポロジカル絶縁体を、高価な ARPES 真空装置を用いずとも光で簡便に評価できる装置の開発に繋がることが期待できる。

産総研の理論チームは、実験チームが開発中の GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子薄膜を用いた不揮発性メモリの動作機構について、第一原理シミュレーションを駆使してその抵抗変化モデルを構築した。モデル構造は W 電極を両端に設置した実際のメモリ構造を再現したもので、非線形グリーン関数を用いて電気伝導度を計算した。その結果、実験系がこれまで主張してきた SET 構造と RESET 構造の抵抗変化をきちんと再現することに成功した。

テラヘルツ応用に関しては産総研の光学チームと筑波大が連携して研究を進め、超格子系に電場を印加して能動的にプラズモン光を制御するアクティブ光スイッチング素子の開発を進めた。また、テラヘルツ光の発振と検出が超格子系で可能なことも実験的に確認した。研究の一部は民間企業に認められて共同研究へと移行した。

上記のように、研究目標を達成すべく、理論および実験グループが密接に連携することで、初年度に掲げた計画目標をほぼ達成することができた。

### (2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. K. Yokomizo and S. Murakami, Topological phases in a Weyl semimetal multilayer, *Phys. Rev. B* **95**, 155101 (2017)

概要: 一般的モデルとして、通常絶縁体とトポロジカル絶縁体が交互に積層した超格子系で、系のパラメータとして各膜厚を変化させたときに、ハミルトニアン内の界面間のカップリング状

態が変化することで、系全体として通常絶縁体から Dirac 半金属、トポロジカル絶縁体、そして Weyl 半金属への相転移が生じることを示した。Weyl 転移した系はスピン応答性をもつため非常に興味深い特性が出現する。こうした超格子系はトポロジカル相転移を容易実現できるため、トポロジカル材料の新展開として国際的にインパクトがある。

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).

概要:相変化メモリに用いられる GeSbTe 合金の理想的な結晶モデルを実験的に作製し、フェムト秒レーザーを用いてそのスイッチング特性を解析した。その結果、理論的に予言されていた通り Ge の原子の取りうる状態が二つ存在し、非常に高速で状態間を遷移できることを示した。この結果から熱的に熔融することなしに結晶-結晶間相転移を誘発できる可能性が示された。相変化メモリの熱的スイッチ機構を経ずに、光や電場で相転移を誘起できることを示した点で先導的であり、国際的にインパクトがある。

3. H. Nakamura, I. Rungger, S. Sanvito, N. Inoue, J. Tominaga and Y. Asai, “Resistive switching mechanism of GeTe-Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> interfacial phase change memory and topological properties of embedded two-dimensional states”, *Nanoscale* **9**, 9386-9395 (2017). DOI 10.1039/C7NR03495D

概要: GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子膜から構成される相変化メモリのスイッチング機構を、電極金属を含めた実際のメモリ構成と同等な繰り返し原子配置モデルを構築し、第一原理計算を用いて解析することで二つの相状態における電気伝導度を評価した。この結果、RESET 状態と SET 状態で 1 桁以上の電気抵抗が異なる様子を再現できた。メモリに関する計算物理的な論文ではあるが、将来のトポロジカル絶縁体のデバイス応用に向けて、ある方向性を示した点で先導的な研究であり国際的にインパクトがある。

#### < 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1. 特願 2018-098535 (2018/05/23) 「スピン蓄積装置」、富永淳二、宮田典幸

概要: GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子系が持つ長距離室温スピン伝導現象を用いて、スピン蓄積装置を作製し、スピン蓄積装置の構成について権利化した。実験検証データも十分確保しており、関連する論文も執筆中で今年中には投稿を完了する。本出願特許は、超格子系で実用的なスピンドバイス、スピン制御センサーを作製できることをから、2019 年下半年から大手民間企業との共同研究が決まっている。

2. 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/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> chalcogenide superlattices, *Adv. Func. Mater.* 1702243, 2017, DOI: 10.1002/adfm.201702243

概要: GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 超格子系における電流誘起によるスピン特性が、超格子構造に起因するベリー位相によって誘起させることを実験的に示した。電流誘起によるスピン誘起は、共同研究者の村上らによる “Theory of unconventional spin states in surfaces with non-Rashba spin-orbit interaction”, *Phys. Rev. B* 91, 245428 (2015) によって理論的に示されていたが、実際に実験によって確認された。この成果が基本となり、1.におけるスピン蓄積装置特許が生まれた。

3. 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**, p.3908 (2018).

概要:トポロジカル絶縁体の実験的確認手段として、従来 ARPES と呼ばれる高電子分光法が用いられてきた。これは真空装置系であり非常に高額である。本論文は、フェムト秒レーザーを照射することで生じる非線形カー効果によって、反射偏光角に生じるトポロジカ

ル材料固有の 4 回転成分を測定することでトポロジカル絶縁体であるか否かを容易に判定できることを示している。コスト的は ARPES の 1/100 以下で済むことから、今後、計測メーカーと共同研究が十分期待できるイノベーションである。

< 代表的な論文 >

上記以外に代表的論文として、

1. K. Makino, K. Kato, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, T. Nakano, and M. Nakajima, "Terahertz generation measurements of multilayered GeTe-Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> phase change materials", *Opt. Lett.* vol. **44**, pp.1355, 2019 (超格子系によるテラヘルツ発生に関する論文)
2. N. Inoue and H. Nakamura, "Structural transition pathway and bipolar switching of the GeTe-Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> superlattice as interfacial phase-change memory", *Faraday Discussions*, vol. **213**, pp 303-319, 2019 (超格子メモリの反応経路を解析した)
3. L. Bolotov and J. Tominaga, "Local magnetization of GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> superlattice films using a scanning probe microscope", *AIP Advances*, vol. **8**, No. 12, pp. 125004-1 - 125004-7, 2018 (超格子表面の発生する磁化分布を測定した)が挙げられる。

## § 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

(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/ 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 (筑波大学数理物質系物理工学域 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