

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能
を有する材料・デバイスの創出」
研究課題「トポロジカル表面状態を用いるスピン軌
道トルク磁気メモリの創製」

研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者：ファム ナム ハイ
(東京工業大学 工学院 准教授)

§ 1 研究実施の概要

(1)実施概要

本研究では、トポロジカル絶縁体のスピン軌道トルクメモリデバイスへの応用を目指して、研究開発を行った。そのために、分子線エピタキシー法(MBE)に加えて、量産性に優れたスパッタリング法による BiSb の製膜技術および垂直磁気異方性を示す磁性体との接合の作製技術を確認し、超高速、超低消費電力のスピン軌道トルクによる磁化反転の実証を行った。また、磁性細線におけるカイラル磁壁・スキルミオンの発生とスピン軌道トルクによる超低電流駆動に適する BiSb/カイラル磁壁・スキルミオン用の BiSb/磁性体接合を開発した。本研究チームは東京工業大学の Pham グループ(東工大グループ)、NHK放送技術研究所の宮本グループ(NHKグループ)および東京大学の小林グループ(東大グループ)からなり、協力しながら研究を進めてきた。本研究チームはトポロジカル絶縁体のスピン機能の開拓のみならず、様々なスピン軌道トルクメモリデバイスの実証まで行い、顕著な成果を挙げた。以下にこれまでの主な研究成果を述べる。

(1)東工大グループは超低消費電力 SOT-MRAM の実現に必要な要素技術の確立を行った。トポロジカル絶縁体 BiSb を用いた超低消費電力 SOT-MRAM の実現に向けて、スパッタリング法を用いた高品質の BiSb の製膜技術を確認した。また、サファイア基板に BiSb/(Pt/Co)_n や CoFeB/MgO の垂直磁化多層膜を作製し、超巨大な有効スピンホール角 ($\theta_{SH} = 6 \sim 10.7$) および超低消費電力磁化反転の実証に成功した。さらに、表面酸化 Si 基板にスパッタリング製膜した BiSb/Pt/Co/Pt 垂直磁化多層膜構造や BiSb/Pt/Fe 面内磁化膜において、巨大な有効スピンホール角と低電流密度スピン軌道トルク磁化反転を実証した。また、BiSb と CoFeB/MgO/CoFeB の面内磁化型磁気トンネル接合を集積し、3 端子 SOT-MRAM 素子の実証に成功した。さらに、微細素子を作製し、超高速のパルス電流(1 ~ 4 ns)を印加し、従来よりも 2 桁少ない絶対零度閾値電流密度で超高速・超低消費電力のスピン軌道トルク磁化反転に成功した。さらに、高温領域(>120°C)でも BiSb が優れたスピンホール性能を維持できることを示した。その他に、巨大な一方向性スピンホール磁気抵抗効果の観測(世界最高値)、室温無磁界における基底状態のスキルミオンの発生、新型スピンホールマイクロ波発新器の提案と動作解析、新しい面内磁化反転の検出技術、スピンホール効果の精密な評価技術、BiSb の逆スピンホール効果を用いた強磁性半導体の室温スピン注入の検出、および BiSb の巨大な逆スピンホール角($\theta_{SH} = 61$)を用いた新しい磁気センサー技術の実証など、当初に予想しなかった新しい研究成果をあげた。

(2)NHK グループは磁壁駆動磁性細線メモリの実現に必要な要素技術の開発のため、BiSb/フェリ磁性細線を試作し、世界最小の電流密度 7×10^4 A/cm² で Co/Tb フェリ磁性体の磁化反転に成功した。また、磁壁駆動磁性細線メモリの基本動作である、磁区の書き込み、磁壁移動、磁区読み出し技術の開発に成功した。磁性細線下部に周期的に設けた段差構造間隔で記録単位となる磁区長(=ビット長)を決定するメモリ構造を開発したほか、単位磁区長の整数倍を基本として磁区を記録・駆動制御する手法を開発し、所望のメモリ動作を実現できることを実証した。さらに、プロセス中の加熱に起因する BiSb の層間拡散が Co/Tb フェリ磁性体の垂直磁気異方性を劣化・消失させる課題に対処すべく、層間拡散抑止層や配向制御用下地層を採用する手法が有効であることを見出した。これらの知見を適用した BiSb 接合磁性細線メモリを試作し、BiSb 接合により従来よりも1桁低い消費電力でメモリ動作が可能であることを示した。

(3)東大の小林グループは BiSb/MnGa の界面におけるバンド構造を明らかにするために、垂直磁化膜である MnGa の電子状態を角度分解光電子分光(ARPES)により評価した。さらに、界面付近の電子状態を明らかにするために、新しい側面 ARPES 分光法を提案し、BiSb の電子状態の測定に成功した。

以上の成果を質の高い論文誌(Nature Communications, Scientific Reports, Applied Physics Letters, IEEE Transactions on Magnetism など)に 26 編のオリジナル論文を出版、国内外の講演96件(うち招待講演 31 件)などを発表、本チーム代表者および研究参加メンバーが 11 件の受賞を受けるなど、国内外で高い評価を得ている。また、多くの知的財産権の修得と、国内外企業 4 社との受託研究・共同研究を行い、社会実証に向けて積極的に産学連携を行った。本研究の成果によって、トポロジカル絶縁体の社会実証(特にスピン軌道トルクデバイス)に大きく前進させた。

(2)顕著な成果

＜優れた基礎研究としての成果＞

1. 巨大な一方向性スピンホール磁気抵抗効果(USMR)の実現と物理的な起源の解明

概要：一方向性スピンホール磁気抵抗効果(USMR)は非磁性体・磁性体の接合において、非磁性体のスピンホール効果によって、接合抵抗が磁性体の 180° 磁化反転に応じて変化する現象である。しかし、従来研究されてきた重金属・磁性金属の接合においては接合の抵抗変化が 0.001% 台と極めて微小である。我々は BiSb トポロジカル絶縁体と GaMnAs 強磁性半導体接合を用いて、1.1% と巨大な USMR を実現した。この値は従来の研究よりも 3 桁大きい。さらに、巨大な USMR の起源が BiSb の巨大なスピンホール効果による純スピン流の注入および強磁性半導体中のマグノン励起・吸収とスピン無秩序散乱によって生じることを明らかにした。

・Nguyen Huynh Duy Khang, Pham Nam Hai, “Giant unidirectional spin Hall magnetoresistance in topological insulator–ferromagnetic semiconductor heterostructures”, J. Appl. Phys. 126, 233903 (2019) [Featured Article]

2. スピンホール効果の精密な測定方法の確立

概要：本研究では、様々な磁気熱電効果を取り入れることでスピン軌道トルクを正確に評価できる方法を開発した。低消費電力なスピン軌道トルクデバイスを開発するためにはスピン軌道トルクを正確に評価することが重要であるが、スピン軌道トルクの評価によく使用されている二次高調波法は測定時に発生した様々な磁気熱電効果の影響を受けるという欠点があり、この事実もあまり知られていなかった。我々は理論的及び実験的にこの欠点を指摘し、正常ネルンスト効果と異常ネルンスト効果などの磁気熱電効果を含むより一般化された角度分解二次高調波法を開発することで、より高精度なスピン軌道トルクの評価を可能にした。

・Takanori Shirokura, Pham Nam Hai, “Angle resolved second harmonic technique for precise evaluation of spin orbit torque in strong perpendicular magnetic anisotropy systems”, Appl. Phys. Lett. 119, 222402 (2021) [Editors’ pick]

3. トポロジカル絶縁体/鉄系室温強磁性半導体接合における室温スピンポンピングによるスピン注入および逆スピンホール効果によるスピン流検出

概要：鉄系強磁性半導体はナローギャップ半導体に鉄を添加することで、室温よりも高いキュリー温度を実現でき、近年に注目されてきた。従って、鉄系室温強磁性半導体によるスピン注入を用いれば、スピンダイオードやスピントランジスタなど、能動的な半導体デバイスを実現できる。しかし、強磁性半導体の磁化が非常に小さいため、室温でのスピン注入の検出が困難であった。そこで、我々は BiSb トポロジカル絶縁体/GaFeSb 強磁性半導体の接合において、室温のスピンポンピングによる GaFeSb から BiSb へのスピン注入、および BiSb の巨大な逆スピンホール効果によるスピン流検出に成功した。

・Shobhit Goel, Nguyen Huynh Duy Khang, Yuki Osada, Le Duc Anh, Pham Nam Hai, Masaaki Tanaka, “Room-temperature spin injection from a ferromagnetic semiconductor”, Sci. Rep. 13, 2181 (2023).

＜科学技術イノベーションに大きく寄与する成果＞

1. 超低消費電力 SOT-MRAM の実現に必要な要素技術の確立

概要：トポロジカル絶縁体 BiSb を用いた超低消費電力 SOT-MRAM の実現に向けて、スパッタリング法を用いた高品質の BiSb の製膜技術を確立した。また、サファイア基板上に BiSb/(Pt/Co)n や CoFeB/MgO 垂直磁化多層膜を作製し、超巨大な有効スピンホール角 (10.7) および超低消費電力磁化反転の実証に成功した。さらに、酸化 Si 基板上にスパッタリング製膜した BiSb/Pt/Co/Pt 垂直磁化多層膜構造や BiSb/Pt/Fe 面内磁化膜において、巨大な有効スピンホール角 (2.4) と低電流密度スピン軌道トルク磁化反転を実証した。また、BiSb と CoFeB/MgO/CoFeB の面内磁化型磁気トンネル接合を集積し、3 端子 SOT-MRAM 素子の実証に成功した。さらに、微細素子を作製し、超高速のパルス電流 (1 ns) を印加し、従来よりも 2 桁少ない絶対零度閾値電流密度で超高速・超低消費電力のスピン軌道トルク磁化反転に成功した。さらに、高温領域 (>120°C) でも BiSb が優れたスピンホール性能を維持できることを示した。

・Tuo Fan, Mustafa Tobah, Takanori Shirokura, Nguyen Huynh Duy Khang, Pham Nam Hai, “Crystal growth and characterization of topological insulator BiSb thin films by sputtering deposition on sapphire substrates”, Jpn. J. Appl. Phys. 59, 063001 (2020).

・Tuo Fan, Nguyen Huynh Duy Khang, Takanori Shirokura, Ho Hoang Huy, Pham Nam Hai, “Low power spin-orbit torque switching in sputtered BiSb topological insulator/perpendicularly magnetized CoPt/MgO multilayers on oxidized Si substrate”, Appl. Phys. Lett. 119, 082403 (2021).

• Hao Wu, Aitian Chen, Peng Zhang, Haoran He, John Nance, Chenyang Guo, Julian Sasaki, Takanori Shirokura, Pham Nam Hai *et al.*, “Magnetic memory driven by topological insulators”, *Nature Commun.* 12, 6251 (2021) [**Nature Commun. 2021 Top 25 Physics Articles**].

• Nguyen Huynh Duy Khang, Takanori Shirokura, Tuo Fan, Mao Takahashi, Naoki Nakatani, Daisuke Kato, Yasuyoshi Miyamoto, Pham Nam Hai, “Nanosecond ultralow power spin orbit torque magnetization switching driven by BiSb topological insulator”, *Appl. Phys. Lett.* 120, 152401 (2022) [**Editors’ pick**].

• Tuo Fan, Nguyen Huynh Duy Khang, Soichiro Nakano, Pham Nam Hai, “Ultrahigh efficient spin orbit torque magnetization switching in fully sputtered topological insulator and ferromagnet multilayers”, *Sci. Rep.* 12, 2998 (2022) [**Sci. Rep. Top 100 in physics – 2022**].

• Takanori Shirokura, Pham Nam Hai, “High temperature spin Hall effect in topological insulator”, *Appl. Phys. Lett.* 122, 232404 (2023).

• Zhang Ruixian, Ho Hoang Huy, Takanori Shirokura, Pham Nam Hai, Quang Le, Brian York, Cheryngye Hwang, Xiaoyong Liu, Michael Gribelyuk, Xiaoyu Xu, Son Le, Maki Maeda, Tuo Fan, Yu Tao, and Hisashi Takano, “High spin Hall angle in BiSb topological insulator and perpendicularly magnetized CoFeB/MgO multilayers with metallic interfacial layers”, *Appl. Phys. Lett.* 124, 072402 (2024).

2. カイラル磁壁・スキルミオン駆動磁性細線メモリの実現に必要な要素技術の確立

概要：将来、BiSb を積層した磁性細線メモリの試作および動作検証に必要な要素技術の開発のため、BiSb/(Co/Tb)_n フェリ多層膜を試作し、世界最小の電流密度 7×10^4 A/cm² で磁化反転に成功した。また、BiSb/MnGa の接合において、ゼロ磁場中でも安定的なスキルミオンの形成に成功した。また、カイラル磁壁磁性細線メモリの動作に必要な、磁区の書き込み、磁壁移動、磁区の読み出し技術の開発に成功した。

• Nguyen Huynh Duy Khang, Tuo Fan, Pham Nam Hai, “Zero-field topological Hall effect as evidence of ground-state skyrmions at room temperature in BiSb/MnGa bilayers”, *AIP Adv.* 9, 125309, (2019).

• Nguyen Huynh Duy Khang, Soichiro Nakano, Takanori Shirokura, Yasuyoshi Miyamoto, Pham Nam Hai, “Ultralow power spin-orbit torque magnetization switching induced by a non-epitaxial topological insulator on Si substrates”, *Sci. Rep.* 10, 12185 (2020).

• Mao Takahashi, Naoki Nakatani, Kei Ogura, Norihiko Ishii, Yasuyoshi Miyamoto, “Magnetic Domain Formation and Shift in Magnetic Nanowire Memory Consisting of Co/Tb Nanowires and U-Shaped Writer”, *IEEE Trans. Magn.* 58, 3100905 (2022).

3. トポロジカル絶縁体の巨大な逆スピンホール効果を用いた次世代磁気記録の磁気センサー技術の開発

概要：東工大グループと米ウェスタン・デジタル社は、BiSb トポロジカル絶縁体の逆スピンホール効果を用いた次世代磁気記録の磁気センサー技術を開発した。下部電極/CoFe/MgO/BiSb/上部電極のヘテロ接合を作製し、面直方向に電流を印加すると、CoFe から BiSb ヘスピン偏極電流が注入される。この時、BiSb の逆スピンホール効果によって、BiSb の面内方向に起電力が生じる。この起電力を測定することで、CoFe の磁化方向の検出ができるため、磁気センサーとして動作できる。BiSb の逆スピンホール効果を評価したところ、巨大なスピンホール角 ~ 61 を確認した。この値は分子線エピタキシャル結晶成長法によって成膜した単結晶 BiSb/MnGa ヘテロ接合同様である。また、この磁気センサー構造は 4 Tb/inch² 以上の超高密度磁気記録の次世代磁気センサーとして、有望であることを実証した。

• H. H. Huy, J. Sasaki, N. H. D. Khang, S. Namba, P. N. Hai *et al.*, “Large spin Hall angle in sputtered BiSb topological insulator on top of various ferromagnets with in-plane magnetization for SOT reader application”, *IEEE Trans. Magn.* 59, 3000904 (2022).

• Ho Hoang Huy, Julian Sasaki, Nguyen Huynh Duy Khang, Pham Nam Hai, *et al.*, “Large inverse spin Hall effect in BiSb topological insulator for 4 Tb/in² magnetic recording technology”, *Appl. Phys. Lett.* 122, 052401 (2023).

<代表的な論文>

1. Hao Wu, Aitian Chen, Peng Zhang, Haoran He, John Nance, Chenyang Guo, Julian Sasaki, Takanori Shirokura, Pham Nam Hai *et al.*, “Magnetic memory driven by topological insulators”, *Nature Commun.* 12, 6251 (2021)

概要：東工大グループは米国 UCLA 大学の K. Wang グループとの共同研究を行い、トポロジ

カル絶縁体/面内磁化型磁気トンネル接合の集積による3端子 SOT-MRAM デバイスの実証を行った。UCLA グループは MBE 法を用いてトポロジカル絶縁体(BiSb)₂Te₃を成膜したことに対して、東工大グループはスパッタリング法を用いて、トポロジカル絶縁体 BiSb と CoFeB/MgO/CoFeB 面内磁化型磁気トンネル接合を作製した。3 端子 SOT-MRAM デバイスの試作を行い、比較的の高いトンネル磁気抵抗比(～90%)による読み出しおよび BiSb の巨大なスピンホール効果による書き込みを同時に達成した。本論文は Nature Commun.誌の 2021 Top 25 Physics Articles に選出された。

2. Nguyen Huynh Duy Khang, Takanori Shirokura, Tuo Fan, Mao Takahashi, Naoki Nakatani, Daisuke Kato, Yasuyoshi Miyamoto, Pham Nam Hai, “Nanosecond ultralow power spin orbit torque magnetization switching driven by BiSb topological insulator”, Appl. Phys. Lett. 120, 152401 (2022).

概要：東工大グループとNHKグループは、BiSbトポロジカル絶縁体を用いて、垂直磁気異方性を持つ磁性薄膜を低電流密度かつナノ秒オーダーの超高速で磁化反転させることに成功した。まず、垂直磁気異方性の大きな(Pt/Co)多層膜と BiSb トポロジカル絶縁体との接合を、スパッタリング法を用いて表面熱酸化 Si 基板上に製膜した。次に、1,000 nm×800 nm のホールバー素子を作製し、1～4 ナノ秒幅のパルス電流を掃引した時の磁化反転を実証した。面内に印加したバイアス磁場の向きを逆にすると、磁化反転の向きが逆になったことから、SOT 方式による超高速磁化反転が確認された。さらに、磁化反転に必要な電流密度の大小の指標として、絶対零度閾値電流密度 J_0 を評価した。その結果、 $J_0=2.5 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$ が得られ、この値は従来研究されてきた重金属より 2 桁小さい。これらの結果により、超高速磁化反転に必要な電流密度を劇的に低減することに成功したことから、超高速 SOT-MRAM の実現が期待できる。

3. Tuo Fan, Nguyen Huynh Duy Khang, Takanori Shirokura, Ho Hoang Huy, Pham Nam Hai, “Ultrahigh efficient spin orbit torque magnetization switching in fully sputtered topological insulator and ferromagnet multilayers”, Sci. Rep. 12, 2988 (2022)

概要：トポロジカル絶縁体 BiSb を用いた超低消費電力 SOT-MRAM を実現するためには、BiSb/高い垂直磁気異方性磁性多層膜を工業量産性に優れたスパッタリング法を用いて製膜し、巨大なスピンホール効果および超低消費電力磁化反転の実証が必要である。東大グループは BiSb/(Pt/Co)_n 多層膜構造をスパッタリング法で製膜し、巨大な有効スピンホール角(10.7)および超低消費電力磁化反転を実証した。この成果は共同研究の相手企業が本格的に設備投資を行い、BiSb を用いるデバイス開発を決定したきっかけである。本論文は Sci. Rep.誌の Top 100 in Physics - 2022 に選出された。

§2 研究実施体制

(1)研究チームの体制について

① 東工大グループ

- 研究代表者: PHAM NAM HAI (東京工業大学 工学院、准教授)
- 研究項目
 - ・ トポロジカル絶縁体の製膜技術および垂直磁気異方性を示す磁性体との接合の作製技術の確立
 - ・ 超高速と超低消費電力の SOT-MRAM に向けたデバイスの試作、カイラル磁壁・スキルミオン用のトポロジカル絶縁体/磁性体接合の開発

② NHK グループ

- 主たる共同研究者: 宮本 泰敬 (日本放送協会 放送技術研究所、主任研究員)
- 研究項目
 - ・ カイラル磁壁・スキルミオン評価用磁性細線の試作
 - ・ カイラル磁壁の発生、駆動、検出技術の開発

③ 東大グループ

- 主たる共同研究者: 小林 正起 (東京大学 工学系研究科、准教授)
- 研究項目
 - ・ スピン角度分解光電子分光法によるトポロジカル絶縁体の表面状態およびトポロジカル絶縁体/垂直磁化膜接合界面の観察
 - ・ スキルミオンの実空間観察による評価

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

(2.1) 国内外の研究機関との連帯・共同研究

- 東工大グループは米国 University of California Los Angeles 校の Kang Wang 教授のグループと共同研究を行い、トポロジカル絶縁体/CoFeB/MgO/CoFeB 面内磁化型磁気トンネル接合の集積技術および動作の実証に成功し、論文が Nature Communication 誌に掲載された。
- 東工大グループは米国 Cornell University および University of Illinois Urbana-Champaign から研究生を受け入れ、トポロジカル絶縁体の製膜とスピントロニクスデバイス応用に関する共同研究を行った。共著論文も 1 本を出版した。
- 東工大グループは東京大学工学系研究科の田中雅明教授のグループと、トポロジカル絶縁体/室温強磁性半導体のスピンプンピングによる室温スピン注入の実証および逆スピンホール効果によるスピン流-電流変換の検出に関する共同研究を行い、論文が Sci. Rep.誌に掲載された。
- 東工大グループは国立研究開発法人物質・材料研究機構 磁性・スピントロニクス材料研究拠点と共同で、BiSb トポロジカル絶縁体/磁性体多層膜に関する原子レベルの構造分析に関する共同研究を行った。スパッタリング BiSb 膜から磁性体への Sb 原子の拡散による垂直磁気異方性およびスピン軌道トルク低下の原因であることを突き止めた。Sb の拡散を防止できれば、MBE 製膜と同じ超巨大なスピンホール効果が期待できる。
- 東工大グループの代表(Pham)は 2022 年 8 月 9 日に東京工業大学大岡山キャンパスで国際シンポジウム Symposium on Topotronics for the Metaverse を開催し、トポロジックを取り込んだフォトニクス、スピントロニクス、量子エレクトロニクスなど、様々なトポトニクスの研究者との交流を行った。

(2.2) 国内外の企業との連帯・受託・共同研究

- 東工大グループは米国企業と BiSb トポロジカル絶縁体の巨大なスピンホール効果およびその応用に関する共同研究を行っている。SiO_x 基板上に BiSb(012)配向できる結晶成長技術を開発し、共同特許出願を行った。また、BiSb の逆スピンホール効果を用いた磁気センサーを試作し、動作確認を行った。
- 東工大グループは韓国企業の日本法人と BiSb/NiO 反強磁性体を用いた BiSb bottom 構造に関する共同研究を行っている。NiO を界面に挿入することで、Sb の拡散とシャント電流を抑制しながら、スピン流を透過させることができるため、BiSb bottom 構造でも高いスピンホール角(~10)を達成した。将来的にキャッシュメモリ用の超高速 SOT-MRAM に応用されると期待できる。研究担当を行った大学院生(佐々木樹里行氏)が国際学会 SSDM 2022 で発表したところ、高い評価を受けた他、SSDM Young Researcher Award を受賞した。
- 東工大グループは国内企業からの受託研究で、BiSb の耐熱性と巨大なスピンホール効果の再確認を行い、目標達成により終了した。
- 東工大グループは国内企業と共同で、トポロジカル絶縁体の熱耐久性を高める第 3 世代トポロジカル SOT 材料「ハーフホイスラー型トポロジカル半金属」の共同研究を行った。、非常に高い熱耐久性(600°C)および高いスピンホール角(~8)を両立した新しいトポロジカル材料 YPtBi を新規開発し、共同特許出願を行った。