

令和元年6月6日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K14228

研究課題名(和文) チューナブルトポロジカル絶縁体を用いた純スピン注入源の開発

研究課題名(英文) Research of pure spin current source using tunable topological insulator

研究代表者

PHAM NAM HAI (PHAM, NAM HAI)

東京工業大学・工学院・准教授

研究者番号：50571717

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、第3世代スピン軌道トルク磁気抵抗メモリ(SOT-MRAM)の実現に向けて、高い電気伝導率および大きいスピンホール角を両立できるトポロジカル絶縁体BiSbの高品質な結晶成長技術を開発した。BiSbのスピンホール効果を評価したところ、常温において超強大なスピンホール効果( $\theta_{sh} \sim 52$ )を観測し、さらに非常に低い電流密度(1.5 MA/平方cm)でMnGa薄膜の磁化反転に成功した。この値は従来に使われた重金属/MnGaの磁化反転に必要な電流密度よりも1桁～2桁小さい。また、BiSbのスピンホール伝導率がPtよりも30倍、Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>などの他のトポロジカル絶縁体よりも100倍大きい。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン軌道トルク磁気抵抗メモリ(SOT-MRAM)は、スピンホール効果による純スピン流を用いて、高速で書き込みができる次世代の不揮発メモリ技術である。しかし、従来から純スピン流源として使われている重金属は、スピンホール角が低い。本研究では、BiSbトポロジカル絶縁体薄膜を評価したところ、金属並みの高い電気伝導率と超巨大なスピンホール角を示すことを発見した。さらにBiSbを用いて、従来よりも1桁～2桁少ない電流密度でMnGa垂直磁性膜の磁化反転を実証した。BiSbをSOT-MRAMへ応用すると、書き込み電流を1桁、エネルギーを2桁低減でき、さらに記録速度を20倍、記録密度を1桁向上させられる。

研究成果の概要(英文)：In this research, we developed a high-performance pure spin current source using BiSb topological insulator thin films for the next generation spin-orbit torque (SOT) MRAM. We developed growth techniques for high quality BiSb thin films with both high electrical conductivity and high spin Hall angle. We found that BiSb(012) thin films have a giant spin Hall angle of 52 at room temperature. We further demonstrated current-induced magnetization switching of a MnGa ferromagnetic thin film with a current density as low as 1.5 MA/square cm. This value is one to two orders of magnitudes lower than those of heavy metal/MnGa bilayers. Furthermore, the spin Hall conductivity of BiSb is 30 times higher than that of Pt, and 100 times higher than that of other topological insulators, such as Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>. Our results show that BiSb is very promising for SOT-MRAM.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：SOT-MRAM トポロジカル絶縁体 スピン軌道トルク スピンホール効果

## 1. 研究開始当初の背景

近年、消費電力が少ない不揮発性メモリの開発が盛んに行われている。中には、磁気抵抗メモリ (MRAM)は大変有望視されている。MRAM は不揮発性に加えて、GHz 級の高速動作、極めて高い耐久性 (書き込み回数  $10^{16}$  回以上) および高い対放射線性など、大変優れた特性を示す。従って、MRAM を集積回路に不揮発性メモリとして内蔵すれば、パワーゲーティング効果により集積回路の消費電力を9割削減できると期待されるため、日米を中心に研究開発と製品化が急がれている。第一世代の MRAM のメモリ素子(磁気トンネル接合; MTJ)において、磁場による磁化反転法が用いられた。しかし、磁場による磁化反転はエネルギー消費量が大きかった。2000 年台に第二世代の書き込み技術として、スピン注入磁化反転法が研究開発され、実際に製品に使われている。スピン注入磁化反転技術では、MTJ 素子の固定磁性層から自由磁性層にスピン偏極電流を注入し、スピントランスファートルク (Spin transfer torque; STT)によって、磁化反転を起こす。スピン注入磁化反転では、次のスピン流が定義できる:  $I_s = (\hbar/2e)PI$ 。ここで、スピン流  $I_s$  は単位時間のスピン角運動量の流量、 $I$  は電流、 $P$  は磁性電極材料のスピン分極率である。 $P$  の上限は 1 であり、通常では  $P \sim 0.5$  程度である。この式から分かるように、スピン注入磁化反転技術では、スピン流が  $(\hbar/2e)I$  を超えることはない。これは、各電子が  $\hbar/2$  のスピン角運動量しか運べない物理限界があるから、MRAM の書き込み電力が他の不揮発性メモリよりもまだ 1~2 桁大きいという課題が残っている。

## 2. 研究の目的

本研究では、MRAM の書き込み電力を二桁以上削減できる純スピン流を用いた磁化反転方式に着目する。図 1 に純スピン注入によるスピン軌道トルク(Spin-orbit torque; SOT)方式の模型図を示す。本研究では、純スピン注入源として**独自のチューナブルトポロジカル絶縁体**を提案する。トポロジカル絶縁体層に電流  $I$  を流すと、垂直方向に純スピン流  $I_s$  が流れる。このような現象は**スピンホール効果**と呼ばれている。純スピン流密度  $J_s$  と電流密度  $J$  の間に  $J_s = \theta_{SH}J$  という関係が成り立つ。ここで、 $\theta_{SH}$  はスピン軌道相互作用の強さを反映するパラメータで、**スピンホール角**と呼ばれている。一方、純スピン流  $I_s$  と電流  $I$  の間に、次の関係が成り立つ  $I_s = (\hbar/2e)(L/t) \theta_{SH}I$ 。ここで、 $L$  は素子のサイズ、 $t$  はトポロジカル絶縁体層の厚さである。従って、スピン軌道トルク方式では、**各電子が実効的  $(L/t)\theta_{SH}$  分のスピンを発生できる**。もし、 $(L/t)\theta_{SH} \gg 1$  を実現できれば、通常のスピン注入磁化反転よりも純スピン流による磁化反転の方は効率が良いことが分かる。通常  $L/t \sim 10$  であるため、 $\theta_{SH} > 1$  のチューナブルトポロジカル絶縁体を用いることができれば、MRAM 素子の磁化反転に必要な電流を一桁、書き込みの消費電力を2桁下げることができる。

本研究では、 $\theta_{SH} > 1$  と同時に、MRAM の書き込みに必要な高い伝導率  $\sigma \sim 10^5 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$  を同時に実現できる  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  系チューナブルトポロジカル絶縁体を開発し、最終的に  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  系トポロジカル絶縁体 / 強磁性金属接合を作製し、従来のスピン注入磁化反転方式よりも書き込み電流を1桁、書き込み電力を2桁以上削減できる SOT-MRAM 素子を実現する。

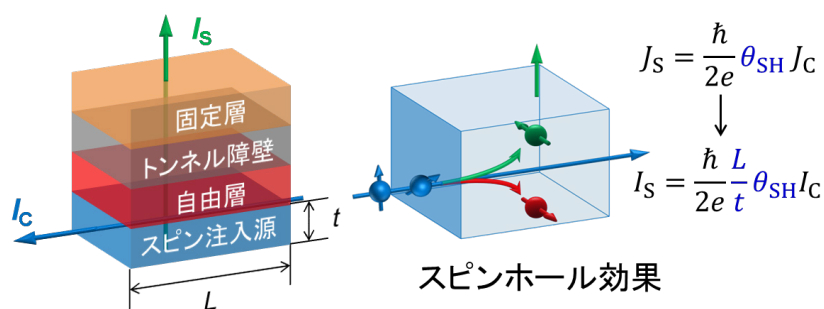


図 1. 本研究独自のトポロジカル絶縁体による純スピン流を用いたスピン軌道トルク方式。下部のトポロジカル絶縁体層に電流  $I$  を流し、上部の磁性層に純スピン流  $I_s$  を注入できる。トポロジカル絶縁体層のスピンホール効果によって、磁性層の磁化反転ができる。

## 3. 研究の方法

### (1) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体の薄膜の結晶成長技術の確立:

本研究の結晶成長には分子線エピタキシャル法(MBE)を用いる。MBE 法とは  $10^{-10}$ Torr 級の超高真空下で、材料元素の分子線を基板に照射し、基板の上に化学反応をさせることによ

って、結晶成長を行う技術である。半導体ヘテロ構造の結晶成長のために開発された技術であるが、近年に金属、絶縁物など多くの材料系に応用されている。また、基板温度、成長レート、組成などのパラメータを精密に制御できるため、高品質な結晶の成長に最適な方法である。トポロジカル絶縁体の結晶成長は MBE が必要不可欠である。本研究は MBE 装置を使って、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体の薄膜の結晶性、電気伝導特性の評価を行い、結晶成長の最適化を行う。最終的に伝導率  $\sim 10^5 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$  と高い  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体を開発する。

#### (2) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体/垂直磁化膜接合の結晶成長技術の確立

次に MBE 法を用いて、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体/垂直磁化膜の接合を作製する。磁化特性、磁気光学特性、異常ホール効果の評価を行い、高品質な  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体/垂直磁化膜の接合の作製技術を確立する。

#### (3) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体のスピンホール効果の評価およびそれを用いた超低電流密度による磁化反転の実証

作製した  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体/垂直磁化膜を用いて、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体のスピンホール効果の評価および超低電流密度による磁化反転の実証を行う。

#### (4) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ の結晶成長モードの評価

様々な面方位の GaAs 基板の上に、 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  の結晶成長を行い、BiSb の結晶成長モードの評価を行う。

### 4. 研究成果

#### (1) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体の薄膜の結晶成長技術の確立

MBE 法を使って、GaAs(111)A 基板の上に幅広い組成を持つ  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  トポロジカル絶縁体単結晶薄膜の結晶成長に成功した。X 線回折および反射型高エネルギー電子線回折から BiSb(001) 単結晶がエピタキシャル成膜したことを確認した。BiSb の電気伝導率が他のトポロジカル絶縁体よりも一桁高く、SOT-MRAM の純スピン流源として非常に有望であることを明らかにした。さらに、Sb 組成の調整により、トポロジカル絶縁相(Sb 組成 0~40%)および半金属相 (Sb 組成 50%以上) を作り分けることが出来た。特に、絶縁相はバルクの 7-25% Sb よりも広いことが分かった。これは、BiSb 薄膜の量子閉じ込め効果によって、バルクよりもバンドギャップが広がり、バルクの半金属領域においても、薄膜では、絶縁状態になりえることを明らかにした。さらに、電気伝導の温度依存性および膜厚依存性を系統的に評価し、トポロジカル絶縁相の BiSb 薄膜では、膜厚が約 10 nm と薄いと、金属的な界面状態が電気伝導を支配することを確認した。発表論文: Appl. Phys. Lett. 110, 062401 (2017).

#### (2) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体/垂直磁化膜接合の結晶成長技術の確立

次に BiSb のスピンホール効果の評価するために、BiSb/垂直磁化膜のヘテロ接合の結晶成長を試みた。垂直磁化膜として、高い垂直磁気異方性を持つ MnGa を選んだ。結晶成長条件を最適化し、BiSb(001)/MnGa 薄膜ヘテロ接合の作製に成功した。磁化特性の測定、磁気円二色性の測定および異常ホール効果の測定を系統的に行い、三回対称の BiSb(001)薄膜の上に四回対称の高い垂直磁気異方性を示す MnGa の製膜に成功した。発表論文: J. Appl. Phys. 122, 143903 (2017)。本論文は米国物理協会の Feature Article および Scilight に選ばれた。

#### (3) $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ トポロジカル絶縁体のスピンホール効果の評価およびそれを用いた超低電流密度による磁化反転の実証

次に MnGa(001)/BiSb(012)のヘテロ接合を作製し、BiSb のスピンホール効果および MnGa に作用するスピン軌道トルクによる磁化反転を行った。その結果、常温において超強大なスピンホール効果 ( $\theta_{\text{SH}} \sim 52$ ) を観測した。さらに、図 2 に示すように、非常に低い電流密度 ( $1.5 \text{ MA/cm}^2$ ) で 3 nm の MnGa 薄膜の磁化反転に成功した。この値は従来に使われた重金属/MnGa の磁化反転に必要な電流密度よりも 1 桁~2 桁小さい。表 1 に示すように、BiSb のスピンホール伝導率  $\sigma_{\text{SH}} \sim 1.3 \times 10^7 (\hbar/2e) 10^5 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$  に達し、Pt よりも 30 倍、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  などの他のトポロジカル絶縁体よりも 100 倍大きい。BiSb をナノスケールの SOT-MRAM に適用する場合、STT-MRAM よりも書き込み電流を 1 桁、書き込みエネルギー 2 桁以上削減でき、書き込み速度も 10 倍速くできると分かった。

発表論文: Nature Materials 17, 808–813 (2018).

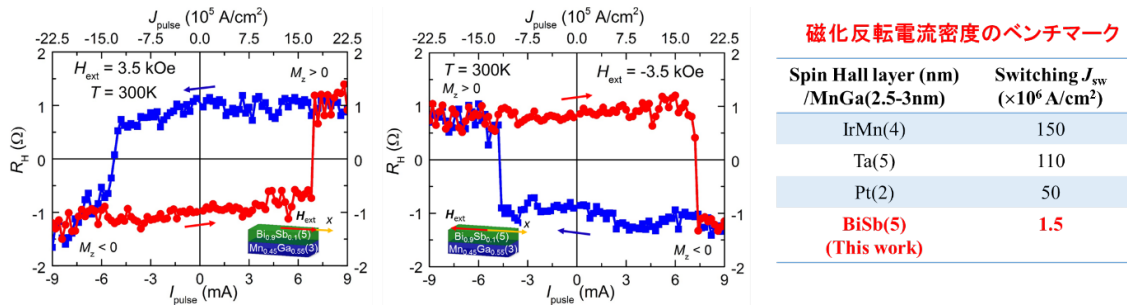


図 2. 幅 50  $\mu\text{m}$  の BiSb(5nm)/MnGa(3nm) 接合における SOT による磁化反転の実証および磁化反転電流密度のベンチマーク。MnGa の磁化の向きを異常ホール効果により評価した。BiSb による MnGa 磁化反転の電流密度は  $1.5 \times 10^6$  A/cm $^2$  と既存の材料より 1 桁～2 桁少ないことを実証した。

	スピントール材料	$\theta_{SH}$	$\sigma$ ( $\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ )	$\sigma_{SH}$ ( $\frac{\hbar}{2e} \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ )
重金属	Ta (Science '12)	0.15( $\Delta$ )	$5.2 \times 10^5$ ( $\odot$ )	$0.8 \times 10^5$
	Pt (PRL '12)	0.08( $\times$ )	$4.2 \times 10^6$ ( $\odot$ )	$3.4 \times 10^5$
	W (APL '12)	0.4( $\Delta$ )	$4.7 \times 10^5$ ( $\odot$ )	$1.9 \times 10^5$
トポロジカル絶縁体	Bi $_3$ Se $_2$ (Nature '14)	2~3.5( $\circ$ )	$5.5 \times 10^4$ ( $\Delta$ )	$1.1\text{-}2.0 \times 10^5$
	<b>BiSb (本研究) (Nature Mat.'18)</b>	<b>52(<math>\odot</math>)</b>	<b><math>2.5 \times 10^5</math> (<math>\odot</math>)</b>	<b><math>1.3 \times 10^7</math></b>

二桁高い

表 1. 今まで研究されてきた重金属とトポロジカル絶縁体の常温におけるスピントール角、電気伝導率およびスピントール伝導率。

#### (4) Bi $_{1-x}$ Sb $_x$ の結晶成長モードの評価

BiSb の結晶成長モードを調べるために、様々な面方位の GaAs 基板の上に、BiSb の結晶を成長させた。その結果、BiSb の結晶成長は基板の対称性ではなく、表面を終端している原子の種類と再構築表面パターンに強く依存することを明らかにした。

発表論文: J. Cryst. Growth 511, 99-105 (2019).

### 5. 主な発表論文等

#### 【雑誌論文】 (計 5 件)

1. K. Yao, N. H. D. Khang, P. N. Hai, "Influence of crystal orientation and surface termination on the growth of BiSb thin films on GaAs substrates", J. Cryst. Growth 511, 99-105 (2019). 査読有り
2. P. N. Hai, N. H. D. Khang, K. Yao, Y. Ueda. "Conductive BiSb topological insulator with colossal spin Hall effect for ultra-low power spin-orbit-torque switching", Proc. SPIE 10732, 107320U (2018). 査読有り
3. N. H. D. Khang, Y. Ueda, P. N. Hai, "A conductive topological insulator with large spin Hall effect for ultralow power spin-orbit torque switching", Nature Materials 17, 808–813 (2018). 査読有り
4. N. H. D. Khang, Y. Ueda, K. Yao, and P. N. Hai, "Growth and characterization of MnGa thin films with perpendicular magnetic anisotropy on BiSb topological insulator", J. Appl. Phys. 122, 143903 (2017). 査読有り 【米国物理協会の Feature Article および Scilight に選ばれた】
5. Y. Ueda, N. H. D. Khang, K. Yao, and P. N. Hai, "Epitaxial growth and characterization of Bi $_{1-x}$ Sb $_x$  spin Hall thin films on GaAs(111)A substrates", Appl. Phys. Lett. 110, 062401 (2017). 査読有り

#### 【学会発表】 (計 23 件)

##### 招待講演 (計 6 件)

1. Pham Nam Hai, (Invited) "Topological insulator for ultralow power SOT-MRAM", International

School on Spintronics and Korea-Japan Spintronics Workshop - Topological Phenomena in Magnetism -, Nagoya, Japan, 21 Jan. 2019.

2. Pham Nam Hai, (Invited) “Giant spin Hall effect in BiSb topological insulator”, The 50th Reimei workshop: Universal Physics in Many-Body Quantum Systems — From Atoms to Quarks —, Tokai, Ibaragi, 14 Dec. 2018.
3. Pham Nam Hai, Khang Huynh Duy Nguyen, Kenichiro Yao, Takanori Shirokura, (Invited) “Topological insulator for ultra-low power magnetic memories”, 第23回 半導体におけるスピ工学の基礎と応用 (PASPS-23), 東京工業大学すずかけ台キャンパス, 2018年12月6日.
4. Namhai Pham, Khang Huynh Duy Nguyen, Kenichiro Yao, Takanori Shirokura, (Invited) “超高性能純スピン注入源としての BiSb トポロジカル絶縁体”, ISSP ワークショップ「スピン軌道強結合伝導系におけるサイエンスの新展開」, 東京大学物性研究所, 2018年11月11日.
5. Nguyen Huynh Duy Khang, Yugo Ueda, Pham Nam Hai, (Invited) “Colossal spin Hall effect in a conductive topological insulator  $\text{Bi}_{0.9}\text{Sb}_{0.1}$  for ultra-low-power spin-orbit-torque switching”, The 11th Vietnam-Japan Scientific Exchange Meeting, Sendai, Japan, 15 Sep. 2018.
6. Pham Nam Hai, Nguyen Huynh Duy Khang, Kenichiro Yao, Yugo Ueda, (Invited) “Conductive BiSb topological insulator with colossal spin Hall effect for ultra-low power spin-orbit-torque switching”, SPIE Spintronics XI, San Diego, USA, Aug. 2018.

#### 国際学会発表 (計 7 件)

1. Kenichiro Yao, Nguyen Huynh Duy Khang, Pham Nam Hai, “Influence of crystal orientation and surface termination on the growth of BiSb topological insulator thin films on GaAs substrates”, 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (ICMBE 2018), Shanghai, China, Sep. 2018.
2. Kenichiro Yao, Takanori Shirokura, Pham Nam Hai, “Role of surface states in the generation of the colossal spin Hall effect in BiSb topological insulator”, Intermag2018, Singapore, Apr. 2018.
3. Nguyen Huynh Duy Khang, Yugo Ueda, Pham Nam Hai, “Ultra-low-power spin-orbit-torque switching using the colossal spin Hall effect in BiSb topological insulator”, Intermag2018, Singapore, Apr. 2018.
4. N. H. D. Khang, Y. Ueda, P. N. Hai, “Magnetic and structural properties of MnGa thin films grown on  $\text{Bi}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  topological insulator”, Junjirou Kanamori Memorial International Symposium – New Horizon of Magnetism-, Tokyo, Japan, 27 Sep. 2017.
5. Nguyen Huynh Duy Khang, Yugo Ueda, Pham Nam Hai, “MnGa thin films with perpendicular magnetic anisotropy grown on BiSb topological insulator”, 9th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech IX), Fukuoka, Japan, 4 Jun. 2017.
6. Yugo Ueda, Pham Nam Hai, “Epitaxial Growth and Characterization of  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  Spin Hall Alloy on GaAs(111) Substrates”, 19th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2016), Montpellier, France, 4 Sep. 2016.
7. Yugo Ueda, Pham Nam Hai, “Growth and characterization of  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  thin films on GaAs(111) substrates”, 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS9), Kobe, Japan, 4-8 June, 2016.

#### その他の国内学会発表 (計 10 件)

##### 〔図書〕 (計 0 件)

##### 〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

名称：スピンホール発振器および磁気記録デバイス

発明者：ファム ナムハイ, 白倉 孝典

権利者：ファム ナムハイ, 白倉 孝典

種類：特許

番号：2019- 37682

出願年：2019

国内外の別：国内

名称：磁性体と BiSb の積層構造の製造方法、磁気抵抗メモリ、純スピン注入源

発明者：ファム ナムハイ, ゲイン フン ユィ カン

権利者：ファム ナムハイ, ゲイン フン ユィ カン

種類：特許

番号：2017-177564

出願年：2017

国内外の別：国内

○取得状況（計 0 件）

#### 〔その他〕

ホームページ等

● Combining a topological insulator with a perpendicular magnetized ferromagnetic thin film

<https://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.5008260>

● Colossal breakthrough for topological spintronics

<https://www.titech.ac.jp/english/news/2018/042001.html>

● トポロジカル絶縁体で高性能純スピン注入源開発

<http://eetimes.jp/ee/articles/1808/02/news051.html>

● BiSb films feature a colossal spin hall effect

<https://www.spintronics-info.com/bisb-films-feature-colossal-spin-hall-effect-and-high-electrical-conductivity>

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

無し

### (2)研究協力者

無し