

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18891

研究課題名（和文）電場印加磁化反転を用いた低消費電力メモリデバイスの実証

研究課題名（英文）Demonstration of low power consumption memory device using electric field induced magnetization reversal

研究代表者

東 正樹（Azuma, Masaki）

東京工業大学・科学技術創成研究院・教授

研究者番号：40273510

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub>（BFCO）は電気分極に直行した自発磁化を持ち、電場による分極反転に伴って磁化が反転するため、電場書き込み磁気読み出しの超低消費電力メモリへの応用が期待される。陽極酸化ポーラスアルミナをマスクとして用いた成膜によって、シングルドメインのナノドット化に成功した。また、BFCO薄膜上にホールセンサーとして働くInSbを成膜し、1 Oeの外部磁場の反転を検出出来ることを確かめた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub>の強誘電・強磁性シングルドメイン化に必要なサイズを明らかにしたこと、さらにInSbが磁化反転検出のセンサーとして用いられる事を確認したことで、電場書き込み磁気読み出しの超低消費電力メモリ応用への道筋が明らかになった。学術的にも社会的にも意義深い成果で、研究を継続する必要がある。

研究成果の概要（英文）：BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> (BFCO) has spontaneous magnetization perpendicular to electric polarization and magnetization reversal upon polarization reversal by electric field, which is expected to be applied to ultra-low power consumption memory with electric field write magnetic readout. Single-domain nanodots were successfully fabricated by deposition using anodized porous alumina as a mask. InSb, which acts as a Hall sensor, was deposited on the BFCO thin film, and it was confirmed that the reversal of an external magnetic field of 1 Oe can be detected.

研究分野：固体化学、材料科学

キーワード：強磁性強誘電体 電場印加磁化反転 ナノドット 磁気センサー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

HDD や MRAM (Magnetic Random Access Memory) 等の磁気メモリは温度安定性に優れるが、書き込みのためにコイルに電流を流して磁場を発生する必要があるため、消費電力が大きくなってしまふという欠点がある。電流で磁壁を移動するレーストラックメモリなどのスピントロニクスデバイスも、スピン偏極した電流によって書き込みを行っている。強磁性と強誘電性が共存するマルチフェロイクス材料を用い、電気分極反転に伴って磁化を反転することが可能ならば、電場書き込み磁気読み出し(電圧駆動)の超低消費電力磁気メモリを実現できると期待される。これはマルチフェロイクス材用研究の一つの大きな目標であるが、室温で明確に観測した例はなかった。

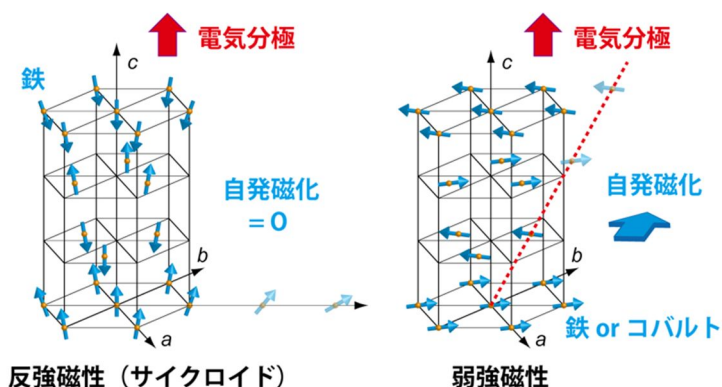


図1: BiFeO<sub>3</sub> (左)と BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> (右)のspin構造の模式図。BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub>では DM 相互作用のため、電気分極と直交した自発磁化が現れる。

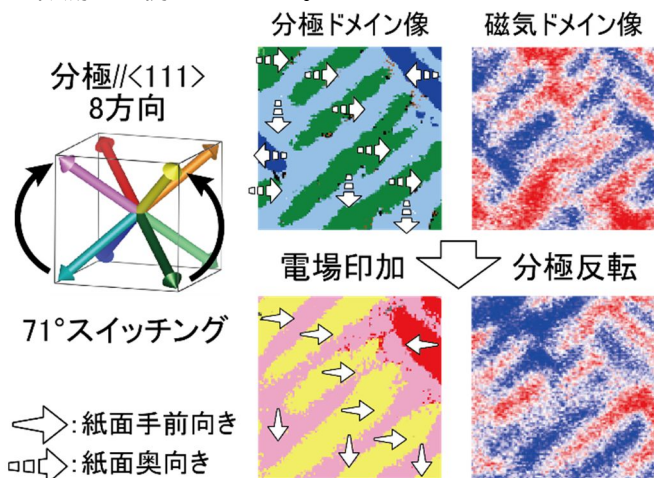


図2: GdScO<sub>3</sub> 基板上の BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の強誘電・強磁性ドメイン構造 (領域 1.4 μm × 1.4 μm)。紙面奥向きから手前への分極反転の前後で、磁気ドメインのコントラストが反転している。

Letters **19**, 1767 (2019)。これはまさに電場印加による磁化反転であり、電圧駆動マルチフェロイクメモリの実現に大きく近づく成果である。

2. 研究の目的

上記の電場印加磁化反転現象を用いたメモリデバイスを実現するには、図3の様に微細加工によってシングルドメインのドット構造を形成し、さらに磁化反転を検出する高感度の磁気センサーを開発する必要がある。本研究では、ポラス陽極酸化アルミ箔をマスクに用いたレーザー蒸着法による単結晶のナノドット形成と、1 Oe 以下の磁化反転を検出できるセンサーの開発を目的とした。

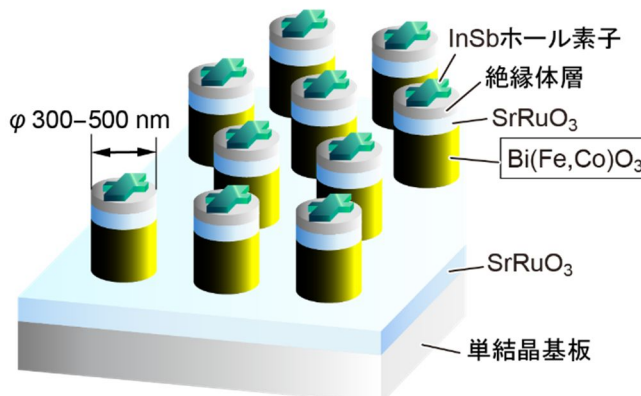


図3: 最終目標のデバイス構造

### 3. 研究の方法

薄膜試料の育成はパルスレーザー蒸着法で行った。シュウ酸、マロン酸中で陽極酸化することでポーラスな形状にしたアルミ箔をマスクに用いる事で BFCO ナノドットを作製し、圧電応答顕微鏡 (PFM) と磁気力顕微鏡 (MFM) で強誘電、磁気ドメイン観察を行った。また、III-V 属化合物半導体の中でも高い移動度を持つ InSb の薄膜を SrTiO<sub>3</sub> 基板上に育成して、磁場を反転しながらホール抵抗の測定を行った。

### 4. 研究成果

シュウ酸中での陽極酸化マスクを用いた場合には直径 60 nm、マロン酸の場合には 180 nm のドットを得ることができた。図 4 に示す様にこれらの PFM 観測を行ったところ、前者では面内、面直のどちらもドット内にコントラストの変化がなく、シングル強誘電ドメインである事が確認された。一方後者では、面内に 4 つのドメインを持つ事がわかった。また、MFM でも同様に前者はシングルドメイン、後者はマルチドメインであり、情報担体にするためには 100 nm 程度への微細化が必要な事がわかった。

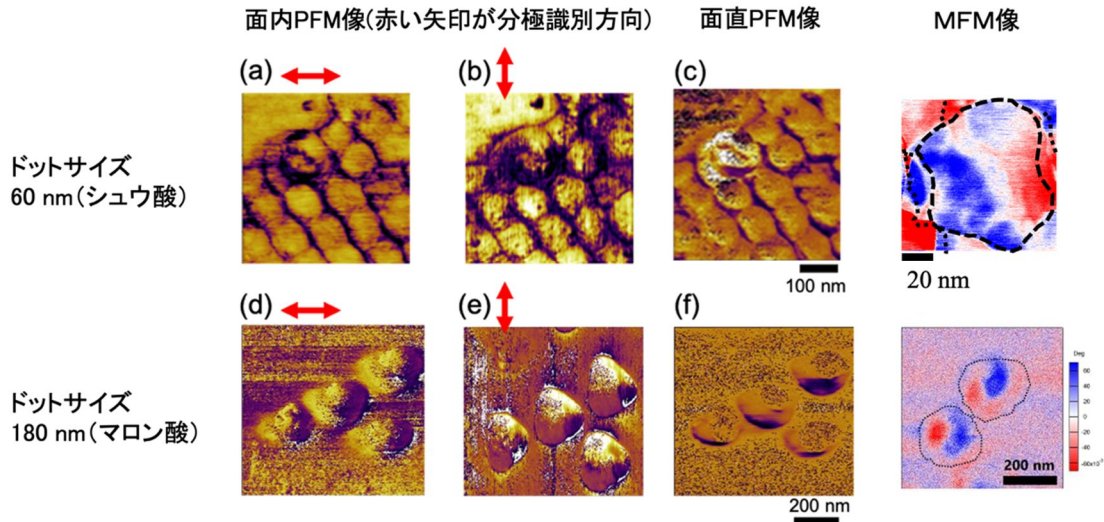


図 4 : BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> ナノドットの PFM, MFM 像

基板温度や成膜速度などの検討を行い、SrTiO<sub>3</sub> 基板上への InSb のエピタキシャル成長が確認された。面内配向を調べるために X 線回折の スキャンを行ったところ、六方晶 InSb が互いに 90° 回転したマルチドメイン構造をもつ薄膜であることがわかった。この InSb 薄膜に対して、外部磁場 ±1 Oe 下のホール抵抗の変化を検証したところ、図 5 の通り、磁場の反転によって符合が変化することを確認した。BFCO 上に成膜すると Bi と In が反応してしまうため、バッファ層として厚さ 5nm 程度の SrTiO<sub>3</sub> を挟む事で、InSb (111)/SrTiO<sub>3</sub> (001)/BFCO (001)/SrTiO<sub>3</sub> (001) のヘテロ構造の作成に成功した。さらに、10e までの磁場の反転をホール抵抗の符合の反転として検出出来ることが確認された。

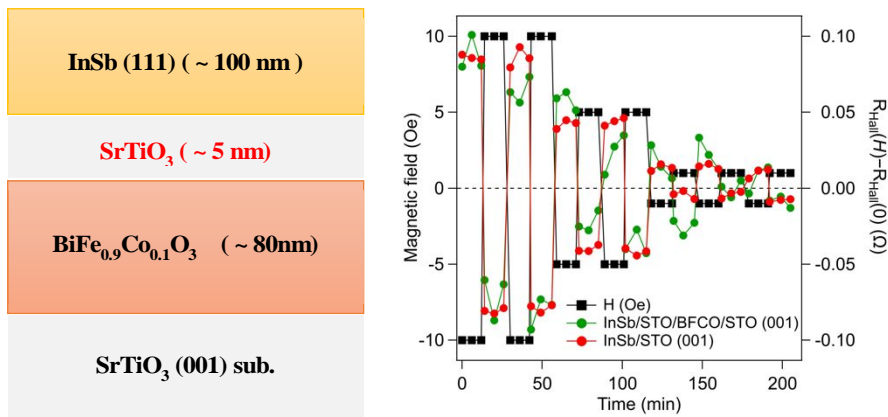


図 5 : BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> 上に成膜した InSb の模式図と、ホール抵抗の外部磁場依存

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Katsumata Marin, Shigematsu Kei, Itoh Takuma, Shimizu Haruki, Shimizu Keisuke, Azuma Masaki	4. 巻 119
2. 論文標題 Stabilization of correlated ferroelectric and ferromagnetic domain structures in BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.1</sub> films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 132901 ~ 132901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0061508	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Itoh Takuma, Katsumata Marin, Shigematsu Kei, Azuma Masaki	4. 巻 15
2. 論文標題 Control of ferroelectric and ferromagnetic domains in BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.1</sub> thin films by utilizing trailing fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 023002 ~ 023002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac4359	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Lee Koomok, Shigematsu Kei, Das Hena, Azuma Masaki	4. 巻 6
2. 論文標題 Exploring the correlation between the spin-state configuration and the magnetic order in Co-substituted BiFeO <sub>3</sub>	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 064401-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.6.064401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Lee Koomok, Shigematsu Kei, Azuma Masaki	4. 巻 61
2. 論文標題 Heteroepitaxial growth of InSb thin film on SrTiO <sub>3</sub> (001) by pulsed laser deposition for magnetic Hall sensor application	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 080902 ~ 080902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac7bf3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Itoh Takuma, Shigematsu Kei, Nishikubo Takumi, Azuma Masaki	4. 巻 13
2. 論文標題 Out-of-plane polarization reversal and changes in in-plane ferroelectric and ferromagnetic domains of multiferroic BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.103</sub> thin films by water printing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7236-1 ~ 7236-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-023-34386-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shigematsu Kei, Katsumata Marin, Itoh Takuma, Ozawa Keita, Shimizu Haruki, Shimizu Keisuke, Azuma Masaki	4. 巻 -
2. 論文標題 Magnetic Domain Change Induced by In Plane Electric Polarization Switching in Bi(Fe, Co) <sub>03</sub> Thin Film	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Physics Research	6. 最初と最後の頁 2200099-1 ~ 6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/apxr.202200099	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計19件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 Kei Shigematsu, Masaki Azuma
2. 発表標題 Direct Observation of Magnetization Reversal by Polarization Switching in Multiferroic Cobalt-Substituted Bismuth Ferrite Thin Film
3. 学会等名 8th International Congress on Ceramics (ICC8) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takuma Itoh, Marin Katsumata, Kei Shigematsu, Masaki Azuma
2. 発表標題 Control of ferromagnetic and ferroelectric domains in BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.103</sub> thin films by utilizing trailing fields
3. 学会等名 International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kei Shigematsu, Keita Ozawa, Marin Katsumata, Masaki Azum
2. 発表標題 Observation of ferroelectric and ferromagnetic domains of BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub> nanodot array by using anodic porous alumina mask
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING(MRM)2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 東正樹
2. 発表標題 Co置換BiFeO <sub>3</sub> 薄膜における電場印加磁化反転
3. 学会等名 ナノ学会第19回大会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤拓真、勝俣 真綸、重松 圭、東 正樹
2. 発表標題 強誘電性・強磁性が共存するBiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub> 薄膜のtrailing fieldを用いたドメイン制御
3. 学会等名 強誘電体会議FMA
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Koomok Lee、重松圭、東正樹
2. 発表標題 酸化物基板上へのInSbエピタキシャル薄膜の製作
3. 学会等名 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤 拓真、勝俣 真倫、重松 圭、東 正樹
2. 発表標題 マルチフェロイックBiFe0.9Co0.103薄膜におけるtrailing fieldを用いた強誘電性・強磁性ストライプドメイン形成と制御
3. 学会等名 粉体粉末冶金2021年度秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Koomok Lee, Hena Das, Kei Shigematsu, Masaki Azuma
2. 発表標題 Theoretical investigations of the canted antiferromagnetism in Co doped BiFeO3
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤 拓真、重松 圭、東 正樹
2. 発表標題 Water printingによる マルチフェロイックBiFe0.9Co0.103 薄膜の面外分極反転と強誘電性・強磁性 ドメイン制御
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaki Azuma
2. 発表標題 Magnetization Reversal by Electric Field at Room Temperature in Co Substituted Bismuth Ferrite Thin Film
3. 学会等名 CIMTEC 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaki Azuma
2. 発表標題 MAGNETIZATION REVERSAL BY ELECTRIC FIELD AT ROOM TEMPERATURE IN Co SUBSTITUTED BISMUTH FERRITE THIN FILM
3. 学会等名 International Materials Research Congress 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kei Shigematsu
2. 発表標題 Magnetization reversal by electric field in Co-substituted BiFeO <sub>3</sub> under a control of domains by trailing fields
3. 学会等名 ISFD-15 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kei Shigematsu
2. 発表標題 Magnetization Reversal in BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.103</sub> Thin Films 1- Spin Structure and Magnetization Reversal by Electric Field at Room Temperature in Co-Substituted Bismuth Ferrite Thin Film
3. 学会等名 2023 MRS Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takuma Ito
2. 発表標題 Magnetization Reversal in BiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.103</sub> Thin Films 2 - Control of Ferroelectric and Ferromagnetic Domains by Trailing Fields
3. 学会等名 2023 MRS Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 Koomok Lee
2. 発表標題 Exploring the Correlation Between the Spin-State Configuration and the Magnetic Order in Co-Substituted BiFeO <sub>3</sub>
3. 学会等名 2023 MRS Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koomok Lee
2. 発表標題 Co 置換BiFeO <sub>3</sub> 上へのInSb磁気センサ薄膜の製作
3. 学会等名 第39回強誘電体応用会議
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤 拓真
2. 発表標題 強誘電性・強磁性を併せ持つBiFe <sub>0.9</sub> Co <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub> 薄膜のWater printing による面外分極反転とドメイン制御
3. 学会等名 第39回強誘電体応用会議
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 李 邱穆
2. 発表標題 Co 置換BiFeO <sub>3</sub> 上へのInSb 磁気センサ薄膜の製作
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伊藤 拓真
2. 発表標題 (110)配向マルチフェロイックBiFe0.9Co0.103薄膜の面内 電場印加による強誘電性・強磁性ドメイン構造変化
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計3件

産業財産権の名称 ホール素子の製造方法及び磁気メモリ素子	発明者 東 正樹、重松 圭、李 邱穆	権利者 地方独立行政法 人神奈川県立産 業技術総合研究
産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-048131	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 磁気メモリ素子、並びに磁気メモリ素子の情報の 書き込みおよび読み取り方法	発明者 東正樹、重松圭、伊 藤拓真	権利者 東京工業大学、 KISTEC
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-34780	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 ホール素子の製造方法及び磁気メモリ素子	発明者 東正樹、重松圭、LEE Koomok	権利者 東京工業大学、 KISTEC
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2023/9333	出願年 2023年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

#### 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	金子 智 (Kaneko Satoru) (40426359)	地方独立行政法人神奈川県立産業技術総合研究所・電子技術 部・グループリーダー  (82718)	
研究分担者	重松 圭 (Shigematsu Kei) (40754578)	東京工業大学・科学技術創成研究院・助教  (12608)	

#### 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	カリフォルニア大学バークレー校	ノースイースタン大額	