

## 光電子顕微鏡による強相関スピントンネル接合 ナノ構造界面の磁区構造観察

### PEEM studies on the magnetic domain structure of the spin tunneling junction with nano-interface structure based on strongly correlated oxides

谷内敏之<sup>a</sup>、安原隆太郎<sup>a</sup>、岡崎宏之<sup>b</sup>、組頭広志<sup>a</sup>、久保田正人<sup>c</sup>、脇田高德<sup>b</sup>、横谷尚睦<sup>b</sup>、  
尾嶋正治<sup>a</sup>、小野寛太<sup>c</sup>、秋永広幸<sup>d</sup>、Mikk Lippmaa<sup>e</sup>、川崎雅司<sup>f</sup>、鯉沼秀臣<sup>g</sup>  
T. Taniuchi<sup>a</sup>, R. Yasuhara<sup>a</sup>, H. Okazaki<sup>b</sup>, H. Kumigashira<sup>a</sup>, M. Kubota<sup>c</sup>, T. Wakita<sup>b</sup>, T. Yokoya<sup>b</sup>,  
M. Oshima<sup>a</sup>, H. Akinaga<sup>d</sup>, K. Ono<sup>c</sup>, M. Lippmaa<sup>e</sup>, M. Kawasaki<sup>f</sup>, H. Koinuma<sup>g</sup>

<sup>a</sup> 東京大学大学院工学系研究科、<sup>b</sup> 岡山大学理学部、<sup>c</sup> 高エネルギー加速器研究機構、  
<sup>d</sup> 産業技術総合研究所、<sup>e</sup> 東京大学物性研、<sup>f</sup> 東北大学金属材料研、<sup>g</sup> 物質材料研究機構  
<sup>a</sup>The Univ. of Tokyo, <sup>b</sup>Okayama Univ. <sup>c</sup>KEK, <sup>d</sup>AIST, <sup>e</sup>ISSP, <sup>f</sup>Tohoku Univ., <sup>g</sup>NIMS

単結晶 SrTiO<sub>3</sub> (STO) ステップ基板の上に成長した STO / La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) / STO の多層膜構造について、放射光光電子顕微鏡を用いて埋もれた LSMO 層の磁区構造の観察を行った。その結果、STO/LSMO 界面には磁性を失った劣化層が形成されステップ誘起の異方性が無くなるにも関わらず、LSMO 層は基板ステップ方向に沿った一軸の磁気異方性を有し、180° ストライプ磁区構造を形成していることが明らかになった。この結果は、LSMO 薄膜の一軸異方性が単純な表面ステップ構造により誘起されたものではないことを示していると考えられる。

We report the direct observation for the magnetic structures of La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) layer in the SrTiO<sub>3</sub> (STO) / LSMO / STO multilayer grown on stepped STO substrates using photoelectron emission microscope. Despite the absence of step-induced magnetic anisotropy in LSMO layer due to the formation of magnetic dead layers between LSMO and STO layer, the 180° stripe domain structures running parallel to step direction was observed. This result implies that the uniaxial magnetic anisotropy and magnetic domain formation are not generated by the step-and-terrace structure of LSMO films.

#### 背景と研究目的

近年の磁気記録技術の発展には、スピントロニクス分野の発展が重要な役割を担っている。特にハーフメタリック伝導を示す材料は磁気トンネル接合 (TMR) 構造化により、非常に大きな磁気抵抗効果を示すことが期待されるため、ハードディスクや磁気ランダムア

クセメモリー (MRAM) への実用化に向け熾烈な研究がなされている。中でもハーフメタリック伝導性を有する La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) は次世代 TMR 素子への応用が期待されている。酸化物薄膜においては、薄膜の磁性や磁区構造がその電気物性・磁気物性に大きな影響を与えており、素子としての特性

向上には磁気異方性の制御が必要不可欠である。

ペロブスカイト型酸化物薄膜成長用の単結晶基板として SrTiO<sub>3</sub> (STO) 基板が最も広く用いられているが、STO 基板上に成長した LSMO 薄膜は面内方向に引っ張り応力を受けるために面内に磁化容易軸を持つことが過去に報告されている<sup>1)</sup>。我々はこれまで、STO ステップ基板上に成長した LSMO 単結晶薄膜の放射光光電子顕微鏡 (PEEM) を用いた磁区構造観察を行い、ステップ方向に沿った数ミクロンの太さのストライプ磁区が形成していることを明らかにしてきた<sup>2)</sup>。

このようなステップ誘起磁気異方性が薄膜中のどこで発現し何を起源にして起こっているかを明らかにすることは、磁気異方性に関する基礎的な理解のみならず、磁気異方性の制御が必要となるデバイス応用の観点からも大変重要である。発現の要因は主に3つ考えられる。すなわち、金属磁性薄膜において観察されるような、①界面磁気異方性、②ステップの幾何学的な構造から現れる形状磁気異方性、③薄膜成長過程において誘導される磁気異方性、である。要因①、②から生じる異方性はステップ構造に直接由来した「ステップ構造誘起磁気異方性」であり、要因③から生じる異方性はステップ構造そのものによって誘起されるものではなくステップ構造から間接的に誘導された「ステップ誘導磁気異方性」と定義できる。

ステップ誘起磁気異方性が薄膜の表面・界面で起こっているのかそれとも薄膜内部で発現しているのかを明らかにするためには、STO/LSMO/STO サンドイッチ構造における LSMO 層の磁区形成を観察すればよい。な

ぜなら、STO のような絶縁体との界面では磁性を失った劣化層が存在することが報告されており<sup>3)</sup>、このような磁氣的劣化層が界面に存在する場合、ステップ&テラス構造から誘起されるステップ構造誘起磁気異方性 (要因①、②) の寄与をなくすことが出来るからである。そこで、今回我々は LSMO の上・下界面に劣化層を持つ STO/LSMO/STO サンドイッチ構造を作製し、放射光 PEEM の大きな特徴である LSMO の元素選択的な磁気イメージングを行った。このようにしてステップ誘起磁気異方性が発現するかどうかを検証することで、ステップ誘起磁気異方性が表面・界面で起こっているのか、それとも薄膜内部で起こっているのかの検討を試みた。

## 実験

レーザー MBE 法を用いて STO/LSMO ( $x = 0.4$ ) / STO サンドイッチ構造を持つ多層膜試料を作製した。[100] 方向に原子ステップを持つ STO (100) 基板上に、面内に磁化容易軸を持つ単結晶 LSMO ( $x = 0.4$ ) 薄膜および STO 薄膜をステップフローモードで成長させた<sup>4)</sup>。上部 STO と LSMO 層の膜厚は、それぞれ約 2 nm および 40 nm である。作製した薄膜は基板からのステップ & テラス構造を持っており、原子レベルで平坦な表面が得られている。LSMO 単結晶薄膜は面内に磁化容易軸を持つ強磁性体であり、キュリー温度は約 340 K であることを磁化測定により確かめた。

磁区観察は高速偏光切り替えが可能な SPring-8 BL25SU に設置した PEEM (Elmitec, PEEMSPECTOR) を用いて行った。磁気イメージは、Mn L<sub>3</sub> 吸収端に対応する光子エネルギーの円偏光を用いて、左・右円偏光で得

られた2つの像の差分から得た。放射光は薄膜面内から垂直に30°の角度から入射し、面内の磁化成分に敏感な配置で磁区観察を行った。試料はキュリー温度以上に加熱して消磁の後、室温で測定を行った。

### 結果、および、考察

Fig. 1 に室温における STO (2 nm) / LSMO (40 nm) 薄膜の Mn 元素選択的磁気イメージを示す。図に示す明るい領域は磁化方向が光の入射方向に平行であることを示しており、一方暗い部分は反平行であることを示している。基板のステップ方向 ([100]) は図の縦方向に走っている。放射光は基板のステップ方向に対して平行に入射しているため、原子ステップに平行な方向の磁化を測定していることになる。この観察結果から、磁気ドメインが [100] 方向に細長く伸びていることから、数ミクロンの太さのステップ方向に沿ったス

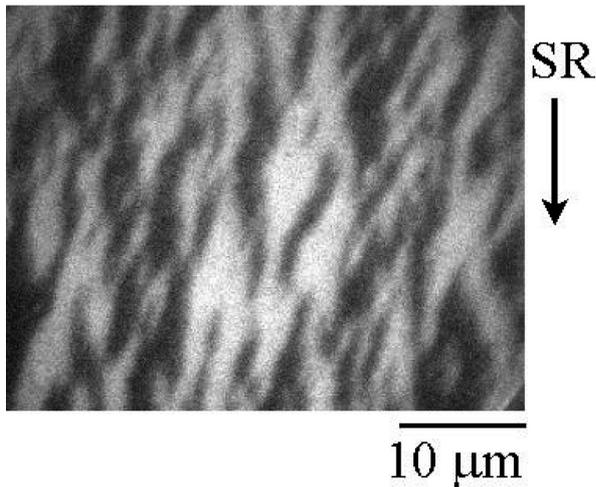


Fig. 1 Element-specific magnetic image of SrTiO<sub>3</sub> / La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> multilayer grown on SrTiO<sub>3</sub> substrate. The image was taken at room temperature ( $T = 300$  K) with a photon energy of 641 eV, corresponding to the Mn  $L_3$  edge. The incident directions of the synchrotron radiation beam are along the [100] direction, where the atomic step direction is aligned with the [100] direction.

トライブ磁区が形成されてことがわかる。また放射光の入射方向をステップに垂直になるように面内に90°回転させて同様の測定を行い、このステップ方向に伸びたストライプ構造が確かに消滅することを確認した。この結果は、過去に我々が単純な LSMO 薄膜にて観察したものと同様であり、薄膜中の磁区の磁化成分の大部分がステップ方向に向いていることを示している。以上の結果は、表面・界面構造の如何に関わらず、ステップ方向に支配された一軸磁気異方性が発現していることを示している。つまり、LSMO 層の磁気異方性は、薄膜界面もしくは表面におけるステップ&テラス構造により発現しているのではなく、薄膜全体で発現していることを示唆している。

観測されたステップ誘起磁気異方性の起源は、明らかに磁性金属薄膜において報告されている表面・界面構造に起因した要因①のような磁気異方性とは異なる。また、LSMO の STO との界面付近の数原子層において磁性を持たない劣化層形成されるため界面において磁気的な急峻性を持たないということを考えると、ステップの幾何構造より現れる要因②の形状磁気異方性とも異なると考えられる。我々が観測した一軸異方性の起源については、現在のところよくわかっていない。可能性の一つとして、薄膜成長過程において誘導される欠陥等により誘起された誘導磁気異方性 (要因③) が挙げられる。今後、結晶成長過程と磁気異方性の関係についてのより詳細な検討が必要となる。

### 今後の課題

今後、膜厚の異なる薄膜やステップの方向

が面内で異なる薄膜の磁区形成を系統的に観察することで、磁気異方性の起源を明らかにすることができると考えられる。また成長モードを変えた薄膜を作製し磁区構造を観察することで成長過程と磁気異方性の関係が明らかになるものと期待される。

## 参考文献

- 1) J. Dho, Y. N. Kim, Y. S. Hwang, J. C. Kim, and N. H. Hur, Appl. Phys. Lett. **82**, 1434 (2003).
- 2) T. Taniuchi, H. Kumigashira, M. Oshima, T. Wakita, T. Yokoya, M. Kubota, K. Ono, H. Akinaga, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma, Appl. Phys. Lett. **89**, 112505 (2006).
- 3) H. Yamada, Y. Ogawa, Y. Ishii, H. Sato, M. Kawasaki, H. Akoh, and Y. Tokura, Science **305**, 646 (2004).
- 4) H. Kumigashira, K. Horiba, H. Ohguchi, K. Ono, M. Oshima, N. Nakagawa, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma, Appl. Phys. Lett. **82**, 3430 (2003).

## 論文発表状況・特許状況

- [1] T. Taniuchi, R. Yasuhara, H. Kumigashira, M. Kubota, H. Okazaki, T. Wakita, T. Yokoya, K. Ono, M. Oshima, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma, The 5th International Conference on LEEM/PEEM (ポスター発表、発表予定)

## キーワード

・光電子顕微鏡

真空準位より高いエネルギーの光を入射したときに放出される光電子を加速し、電子レンズによって拡大、結像させる顕微鏡。