

# 論文内容の要旨

## 論文題目

Magnetic domain structure of oxide thin films observed by low temperature Magnetic Force Microscopy

(低温磁気力顕微鏡による酸化物薄膜の磁気ドメイン構造観察)

氏名 村中 伸滋

### 【序】

強磁性体の磁区構造は、交換相互作用などの強磁性発現機構を反映するばかりでなく、磁区の界面（磁壁）はキャリアの散乱源となるため、デバイス作製の観点からも興味を持たれている。磁区の観察法としては、磁性微粒子を利用するビッター法その他、カー効果顕微鏡、ローレンツ顕微鏡、走査型 SQUID 顕微鏡、磁気力顕微鏡 (Magnetic Force Microscopy; MFM) などの各種顕微鏡が用いられてきた。なかでも MFM は、数十 nm レベルの高い空間分解能を有する、磁場下の測定が可能である、などの特徴を持つことから、微細な磁区を観察する上で強力なツールとなっている。

一方、磁性半導体や強相関巨大磁気抵抗材料の登場により、電子の電荷とスピンの両方の自由度を利用するスピンエレクトロニクスが注目されている。このような物質では、一般に室温以下の低温で強磁性が発現するため、低温での磁区構造観察が必要となるが、特に磁性半導体では、磁化が小さいため高い磁場感度が求められる。現時点では、これらの要求を満足する MFM 装置は見当たらない。

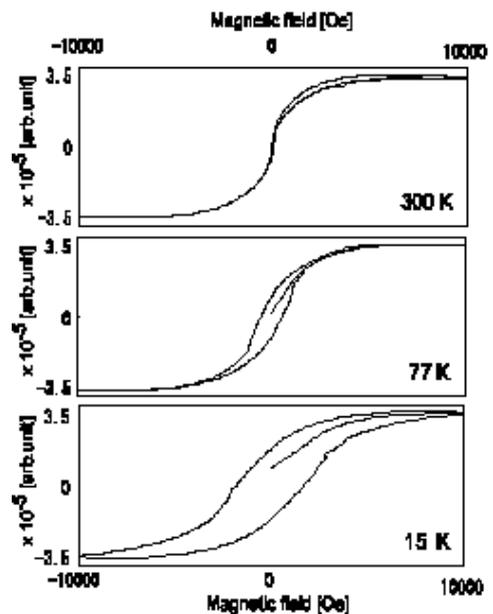


図 1 磁性探針の  $M-H$  曲線

本研究では、低温測定に適した MFM ヘッドを設計・製作するとともに、カンチレバーの変位を抵抗値として検出する抵抗検知方式を採用することにより、高感度超高真空低温 MFM の開発を行った。また、試作した低温 MFM を用い、酸化物系磁性半導体  $Ti_{1-x}Co_xO_2$  および巨大磁気抵抗材料  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$  エピタキシャル薄膜の磁区構造観察を行った。

### 【低温 MFM 装置の開発】

低温 MFM では、ヘッド周囲を低温の壁で覆う必要があり、また防震性能を向上させるためにも、ヘッド部をできるかぎりコンパクトに設計する必要がある。試料の粗動には慣性駆動方式を採用した。また、ヘッド部は回転ステージ上に設置し、真空チャンバー内でヘッド部全体を 90 度回転できるように設計した。真空チャンバー外部から、電磁石により外部磁場（最大 2700Oe）を印加できる。また、ヘッドの回転により、外部磁場の方向を変化させることが可能である。MFM は冷媒によって冷却したコールドヘッドに接触させることにより冷却した。最低到達温度は、液体ヘリウム、液体窒素を使用した場合、それぞれ 15 K、78 K である。

カンチレバーには、抵抗検知型 AFM カンチレバーを用いた。カンチレバー部をレジスト樹脂でマスクし、先端部に PLD 法（Pulsed Laser Deposition technique）を用いて CoCrPt 薄膜（膜厚 50nm）を堆積させた。得られた CoCrPt 薄膜の磁化-外部磁場 ( $M-H$ ) 曲線を図 1 に示す。低温になるほどで、大きな保磁力を示しており、液体窒素温度では 600 Oe に達している。z 方向のフィードバック制御は、周波数検知方式により行った。まず、励振ピエゾによりカンチレバーを自励発振させておく。探針先端が試料表面に近づくと、共振周波数がシフトするが、このシフト量  $\Delta f$  を自作した PLL(Phase-locked loop)回路で検知し、サーボ回路を通してフィードバックピエゾを駆動する。

MFM では、原子間力と磁気力を分離するため、試料-探針間距離が近い状態（原子間力が支配的）と遠い状態（磁気力が支配的）で同一領域を走査することが行われる。ストライプ型磁区構造を仮定し、試料-探針間距離 40 nm で磁気イメージを計測した場合の、z 方向磁気勾配と磁区幅との関係を見積もった結果を図 2 に示す（77 K）。抵抗検知の検出限界( $1.6 \times 10^{-5}$  N/m)を考慮すると、空間分解能は、飽和磁化の小さい  $Ti_{0.95}Co_{0.05}O_2$  ( $M_s=1m$  T) で 40 nm と見積もられる。

### 【 $Ti_{0.95}Co_{0.05}O_2$ 薄膜の磁区構造観察】

$Ti_{1-x}Co_xO_2$  は室温磁性半導体であり、これまで SQUID 顕微鏡（空間分解能 $\sim 5 \mu m$ ）観察によりミクロンオーダーの磁場分布は観測されているものの、nm スケールでの磁区構造観察例は皆無である。 $Ti_{0.95}Co_{0.05}O_2$  薄膜はサファイア基板上に PLD 法により作製した。同薄膜を、本研究で開発した MFM を用いて観察した結果（測定温度 78 K）を図 3 に示す。同時に観測した凹凸像より、本薄膜は 400nm

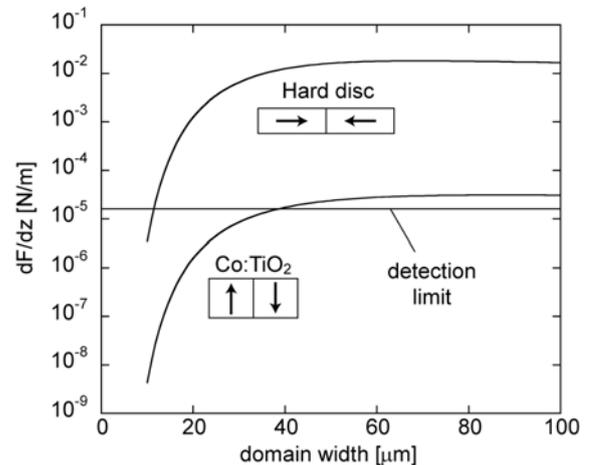


図 2 空間分解能と磁場感度との関係

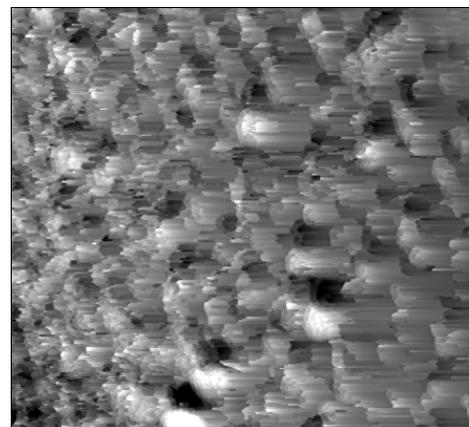


図 3  $Ti_{0.95}Co_{0.05}O_2$  の MFM 像  
3.3  $\mu m \times 3.3 \mu m$

程度の径を持つグレインからなっている。一方、磁気イメージを見ると、個々のグレイン内には構造がないものの、グレインにより磁場強度が異なっている。面直磁化ストライプ磁区モデルを用いると、磁区の幅  $d$  は

$$d = 3.04 \times 10^{-3} \sqrt{\gamma L} / M_s \text{ [m]} \text{ であたえられる。ここに、} L \text{ は膜厚、} \gamma \text{ は磁壁エネルギー、}$$

$M_s$  は飽和磁化である。Ti<sub>0.95</sub>Co<sub>0.05</sub>O<sub>2</sub> について見積もった  $\gamma = 1.02 \times 10^{-2} [\text{J/m}^2]$  を用いると、 $d = 20 \mu\text{m}$  と計算され、粒子径よりも大きい。従って、本薄膜では、粒子間の磁気結合が弱く、その結果、各グレインが単磁区として振舞っているものと考えられる。

**【La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> の磁区構造観察】**

ペロブスカイト型 La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> は代表的な強相関物質であり、 $x=0.4$  の系は、キュリー温度 270K の強磁性を示す。本研究では、PLD 法により SrTiO<sub>3</sub> (001) 基板の上に堆積させた La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> 薄膜について、78 K で MFM 測定を行った。無磁場下で観測された凹凸像と磁気イメージを図 4 に示す。凹凸像より見積もったグレインサイズは 200 nm 程度である。走査範囲 2.7  $\mu\text{m} \times 2.7 \mu\text{m}$  の磁場像を見ると、明るい領域と暗い領域に明確に認められ、それぞれスピンの上向きと下向きの磁区に対応している。各磁区の内部で磁気構造は観測されず、従って、本系の磁区は複数のグレインにより構成されている。また、グレインの境界と磁区の境界は一致していることが分かった。磁区のサイズは 1~2  $\mu\text{m}$  程度であり、この値は、これはまで La<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> 系や Nd<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> 系で観測された値(300nm) に比べやや大きい。

また他の領域を観察した所、グレインサイズが 50nm 程度の領域も観察された。その磁区境界部分の拡大図を図 4(c),(d)に示す。境界部での磁気イメージには、グレインを反映した円形構造が現れている。また、各グレインの発する磁場は異なっており、従って、磁区の境界では、グレインを単位としてスピンの方向が徐々に変化していると考えられる。スピンが変化する領域の幅は 500 nm 程度である。このような、グレインを単位とする磁区境界での磁氣的振舞いは、本高感度 MFM

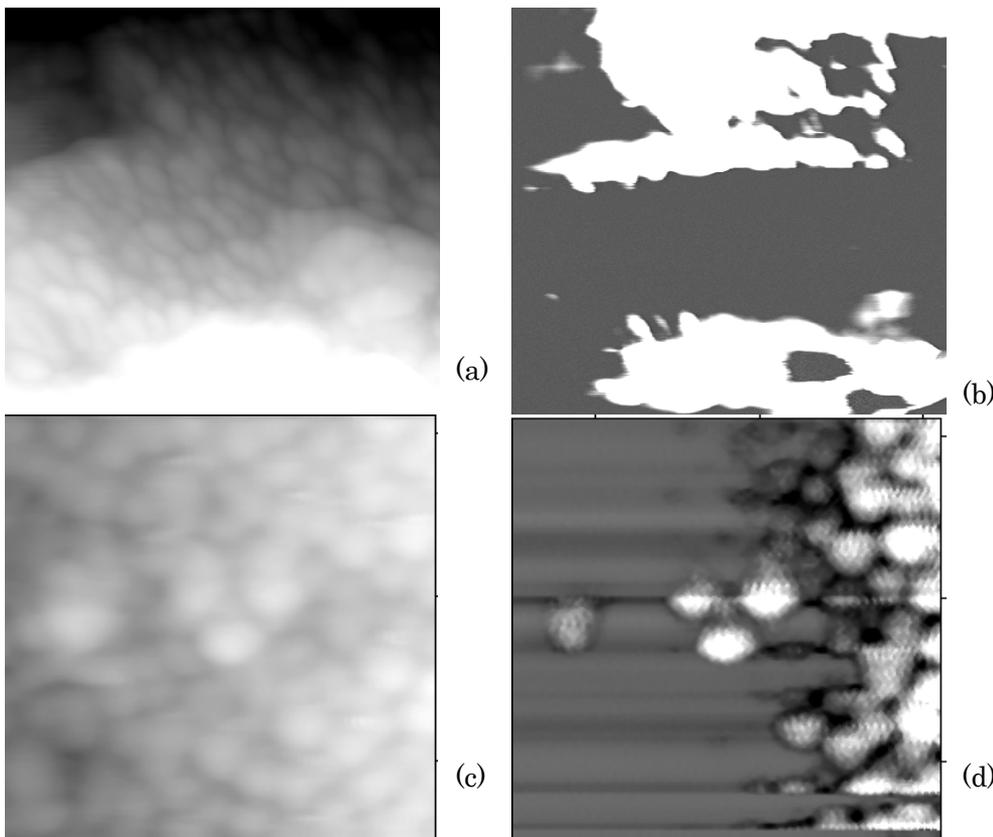


図 4 La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> の 78K における AFM 像と MFM 像  
 (a) AFM 像 2.7  $\mu\text{m} \times 2.7 \mu\text{m}$   
 (b) MFM 像 2.7  $\mu\text{m} \times 2.7 \mu\text{m}$   
 (c) AFM 像 670 nm  $\times$  670 nm  
 (d) MFM 像 670 nm  $\times$  670 nm

で始めて観測された現象である。

また、グレインサイズが 50nm 程度の場合に外部磁場を面直方向に徐々に印加した。通常の強磁性体は磁区境界である磁壁は、外部磁場を印加するとその大きさにより徐々に移動することが知られている。本研究で観測した  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  薄膜の場合にも外部磁場を印加していくことで徐々に移動が観察された。また 1200Oe までの強い外部磁場を印加することで最終的には MFM 観測範囲領域のすべての磁気モーメントの方向がそろうことを確認した。MFM による磁壁移動を観測したのも本研究が初めてである。

#### 【結論】

高感度な低温磁気力顕微鏡装置の開発に成功した。同装置を用いて磁性半導体である  $\text{Ti}_{0.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}_2$  薄膜の磁区構造を観測した結果、初めて nm スケールの磁区構造を観察した。また、各グレインが単磁区として振舞っていることがわかった。一方、強相関強磁性体  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  では、グレインサイズにより、磁区の振る舞いが異なることが分かった。グレインサイズが 200nm 以上の場合、磁区のサイズは 200~400 nm であり、磁区は複数のグレインから構成されていた。しかし、グレインサイズが 50nm 程度と小さくなった場合、磁区境界の幅~500 nm の領域では、各グレインを単位としてスピンの向きが徐々に変化することを見出した。また、外部磁場を印加した際、磁壁は徐々に移動していき、最終的には一様に磁気モーメントの方向がそろうことを確認した。