

光電子顕微鏡によるマンガン酸化物薄膜の相分離：

電子・磁気状態のドメイン観察

**Photoelectron emission microscopic studies on the phase separation in
manganite films: A comprehensive study for electronic and magnetic
domain states**

組頭広志^a、谷内敏之^a、尾嶋正治^a、脇田高德^b、
中村哲也^b、横谷尚睦^b、久保田正人^c、小野寛太^c、ミック リップマー^d、
川崎雅司^e、鯉沼秀臣^f

Hiroshi KUMIGASHIRA^a, Toshiyuki TANIUCHI^a, Masaharu OSHIMA^a, Takanori WAKITA^b,
Tetsuya NAKAMURA^b, Takayoshi YOKOYA^b, Masato KUBOTA^c, Kanta ONO^c, Mikk LIPPMAA^d,
Masashi KAWASAKI^e, and Hideomi KOINUMA^f

^a東京大学、^bJASRI、^c高エ研、^d東大物性研、^e東北大金研、^f物材機構

^aUniversity of Tokyo, ^bJASRI, ^cKEK-PF, ^dISSP, ^eTohoku Univ., and ^fNIMS

La_{1-x}Sr_xMnO₃ (LSMO) 薄膜の電子・磁気構造を調べるために、大型放射光施設 SPring-8 の高輝度ビームライン BL25SU において軟 X 線内殻磁気円二色性 (X-MCD) を用いた光電子顕微鏡 (PEEM) 測定を行った。これにより、PEEM を用いた強相関酸化物薄膜の磁区構造観測に初めて成功した。試料はレーザー分子線エピタキシー法を用いて、成長を原子レベルで制御しながら SrTiO₃ ステップ基板状に作製した。その XMCD-PEEM 観察の結果、面内磁気異方性を示すストライプ状の磁区構造が明瞭に観測された。また、詳細な角度依存性の測定により、SrTiO₃ 基板における面内の結晶軸が等価にもかかわらず、このストライプ状の磁区構造が LSMO 薄膜のステップ構造の方向に並んでいることを明らかにした。このことは、薄膜のステップ構造が LSMO 薄膜の磁区構造を支配していることを示している。

Magnetic imaging measurements using photoelectron emission microscopy (PEEM) combined with x-ray magnetic circular dichroism (X-MCD) have been performed on ferromagnetic La_{1-x}Sr_xMnO₃ (LSMO) films deposited on atomically-flat SrTiO₃ (STO) substrates to study the magnetic domain structure of the LSMO films. In spite of the crystallographically equivalent [100] and [010] directions, we have clearly observed stripe magnetic domain which aligns with the [100] direction of the LSMO films epitaxially grown on cubic

STO single crystal. The detailed atomic force microscopic studies on the LSMO films reveal the close relationship between the formation of the stripe magnetic domain and the step structures of the LSMO films. These results suggest that magnetic shape anisotropy induced by step structures play an important role in magnetic domain formation and resultant magnetic properties of the LSMO films.

背景と研究目的

強相関酸化物においては、複数の秩序（相）が競合、共存しており、その結果生じる電子・磁性状態のナノスケールでの不均一性が重要な役割を担っていることが明らかになりつつある。そのため、顕微分光を用いたその直接観測が重要な研究課題の一つになっている。特に、巨大磁気抵抗効果や完全スピン偏極強磁性（ハーフメタル）を示すことから磁気メモリー等への応用が注目されているペロブスカイト Mn 酸化物においては、ナノスケールからマイクロスケールの電子的・磁氣的相分離現象が発現していることが明らかになりつつある[1]。ペロブスカイト Mn 酸化物の示す超巨大磁気抵抗効果などの物性は、スピンと電荷が密接に関わった現象であるために[2]、その磁区構造が物性に大きな影響を与えると考えられる。その物性を解明しさらに制御するためには、電子（軌道）状態と磁気状態がどのように関わり合っている空間的な不均一性が

発現しているかを「画像化」する必要がある。また、この「不均一性」がどのように相関の強い電子の振る舞いを支配しているかを調べることは、ペロブスカイト Mn 酸化物の物性解明のみならず、素子応用における微細化極限においても解決すべき重要な問題となっている。そのため、本研究ではステップ基板上に成長した単結晶 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) 薄膜の磁区形成を明らかにするため、高輝度軟 X 線内殻磁気円二色性 (XMCD) を用いた放射光光電子顕微鏡 (PEEM) による磁区構造観察を行った。

実験

実験は、挿入光源に可変偏光型アンジュレーターをもつ SPring-8 BL25SU で行った。Mn L_3 吸収端における右円偏光と左円偏光に対する PEEM 像を測定し、その差分を取ることによって、磁気イメージングに対応する XMCD-PEEM 像を得た。LSMO 薄膜は、Nb

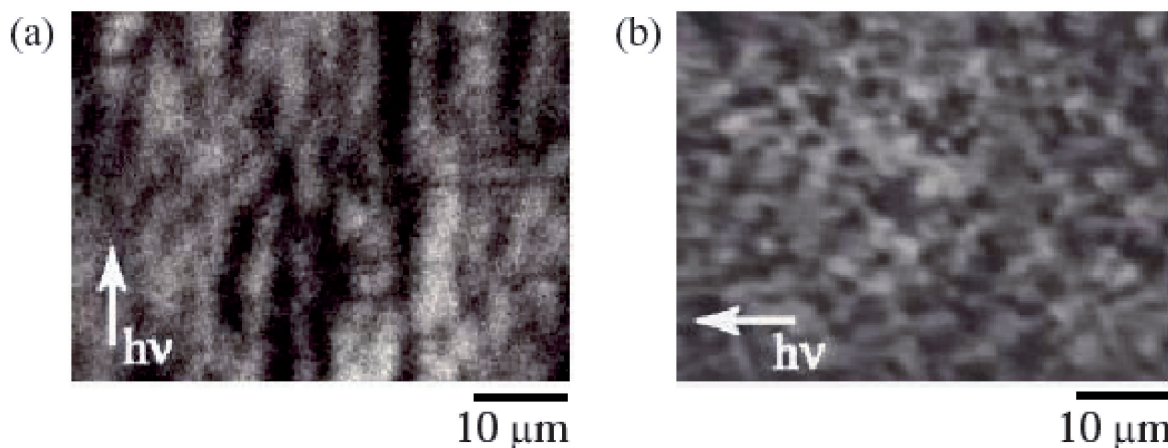


Figure.1 Magnetic PEEM images of LSMO thin films. The angle between the incident direction of synchrotron radiation and the [100] direction is set to (a) 0° and (b) 90° .

をドープした STO 基板 (001) にレーザー分子線エピタキシー法により作製した[3]。アブレーションレーザーには Nd:YAG レーザーの 3 倍波 ($\lambda=355$ nm) を用いた。堆積条件は、基板温度が 1050°C 、酸素分圧が 10^{-4} Torr であった。薄膜の表面モロロジーは原子間力顕微鏡 (AFM) により評価し、原子レベルで平坦なステップ&テラス構造を持っていることを確かめた。

結果および考察

図 1 に室温における LSMO ($x=0.2$) 薄膜の磁気イメージを示す。測定は強磁性相である 160 K ($T_c=287$ K) で行った。図 1(a) は放射光が基板のステップ方向 ([100]) に対して平行に入射したときの像である。明るい領域は磁化方向が光の入射方向に対して平行であり、暗い部分は反平行であることを示している。観察結果から薄膜の磁区がステップ方向に細長く伸びていることが分かった。基板のテラス幅が約 200 nm であることから、磁区の幅は 10 ステップ程度の大きさに相当している。一方、図 1(b) に示すように放射光をステップ方向に対して垂直に入射したときの像ではこのような磁気イメージは観測されていない。以上の結果から、ステップ基板上に成長させた LSMO 薄膜においては、約 $2\sim 3$ μm の幅を持った細長い 180° 磁区が支配的であること、つまり、一軸磁気異方性を持っていることが明らかになった。SrTiO₃ 基板における面内の結晶軸 ([100] 軸と [010] 軸) が等価であることを考えると、このような異方的な磁区形成はステップ構造によって誘起されたものと考えられる。

まとめと今後の課題

次世代磁気デバイス材料として注目されている強相関ペロブスカイトマンガン酸化物の磁区構造を放射光 PEEM 測定により明らかにした。また、XMCD-PEEM が酸化物の磁区観測においても非常に有用な手法であることが明らかになった。今後は、XMCD-PEEM の特性をさらに生かし、1. 元素選択的な磁区観測が可能なを生かした「埋もれた界面」における磁区観測、2. 高い空間分解能を生かしたナノドット、ナノワイヤーにおける磁区の閉じこめ効果、等の研究を行ってゆきたいと計画している。

参考文献

- [1] Y. Murakami, J.H. Yoo, D. Shindo, T. Atou, and M. Kikuchi, *Nature* **423**, 965 (2003).
- [2] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998), and references there in.
- [3] K. Horiba, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, M. Oshima, N. Nakagawa, M. Lippmaa, K. Ono, M. Kawasaki, and H. Koinuma, *Phys. Rev. B* **71**, 155420 (2005).