

機関番号：82108

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21710142

研究課題名(和文) 強相関ナノワイヤの磁壁制御

研究課題名(英文) Control of magnetic domain walls in nanowires of strongly correlated electron material

研究代表者

長井 拓郎 (NAGAI TAKURO)

独立行政法人物質・材料研究機構・電子顕微鏡クラスター・主任エンジニア

研究者番号：90531567

研究成果の概要(和文)：強相関強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化物のナノワイヤを作製して磁場印加その場ローレンツ電顕実験を行い、外部磁場による磁壁内磁化分布のカイラリティの制御を試みた。ボルテックス磁壁のカイラリティは、交流消磁における外部磁場方向のワイヤ長手方向に対する相対角度により制御されることを見出した。また、同一ピンニングサイトにおけるトランスバース磁壁のカイラリティは、磁壁の両側の磁区の磁化配置の反転に伴って反転することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We performed in situ Lorentz microscopic observation of ferromagnetic perovskite-type manganite nanowires with the magnetic field applied to control the chirality of magnetization distribution of the magnetic domain walls. The chirality of vortex walls was controlled by the direction of external magnetic field in alternating current demagnetization. The chirality of transverse walls formed at the same pinning site was reversed by the reversal of the magnetization direction of separated domains.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：透過型電子顕微鏡

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 マイクロ・ナノデバイス

キーワード：強磁性ナノワイヤ、ボルテックス磁壁、トランスバース磁壁、カイラリティ制御

1. 研究開始当初の背景

ナノスケールで構造を制御された磁性体は次世代エレクトロニクススピンロニクスにおいて中心的役割を担うものとして注目を集めている。ナノドメインの局所的な磁化配置を使って状態を記憶するメモリデバイスへの応用が期待されるためである。また、ナノワイヤにおいて電流誘起磁壁移動現象の存在が明らかにされ更に関心が高まり、国内外の多くの研究グループにより実

験・理論両面から精力的に研究がなされてきている。現時点での大きな課題は、磁壁トランスファーの臨界電流密度が非常に高いこと($\sim 10^{12} \text{A/m}^2$)であり、未解決な問題として残されている。

2. 研究の目的

強相関強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化

物のナノワイヤを作製して電流及び磁場印加その場ローレンツ電顕実験を行い、ボルテックス磁壁の外部磁場によるカイラリティの制御法、電流による位置の制御法を確立し、次世代メモリデバイスの新奇な基礎原理を構築することを目的とする。100%スピン偏極した完全スピン偏極強磁性体(ハーフメタル)である強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化物のナノワイヤでは、磁壁トランスファーの臨界電流密度の減少等、通常の強磁性合金とは異なった振舞いを示すことが期待される。まず第一に、ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ のナノワイヤを作製し、電流印加その場ローレンツ電顕実験を行い、電流誘起磁壁移動により磁壁の位置を制御することを試みる。第二に、外部磁場によるボルテックスカイラリティの制御を試みる。

3. 研究の方法

強相関強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ のナノワイヤを作製し、磁場および電流印加その場ローレンツ電顕実験を行い、①外部磁場印加による磁壁内磁化分布のカイラリティの制御、および、②電流印加による磁壁の位置の制御を試みる。具体的なプロセスとして、ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ のエピタキシャル薄膜の作製、マイクロサンプリングを用いた集束イオンビーム(FIB)加工による断面試料作製、磁場および電流印加その場ローレンツ電顕実験、ローレンツデータを用いた強度輸送方程式法によるスピン構造解析、データ解析および考察を行う。

①外部磁場印加による磁壁内磁化分布のカイラリティの制御を試みるため、ナノワイヤに対する外部磁場の方向を任意に変えることが可能な電顕観察試料を作製する。 SrTiO_3 基板上に厚さ100nmの $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x=0.3$) および厚さ2nmの SrTiO_3 をパルスレーザー堆積法によりエピタキシャル成長させた薄膜試料(図1)についてマイクロサンプリングを用いた FIB 加工を実施し、FIB 用切欠けメッシュに固定して断面 TEM 観察試料を作製する。この試料について液体窒素冷却ホルダーを用いてローレンツ電子顕微鏡観察(Hitachi HF-3000L, 加速電圧 300kV)を行う。電子顕微鏡に付属の外部磁場印加ユニットにより試料に外部磁場を印加し、ホルダーに固定するメッシュの相対角度を変えることで、印加磁場の方向を試料面と平行な面内で変化させる(図2)。イメージングプレートを用いてフレネル像を記録し、強度輸送方程式法を用いた解析プログラムにより磁壁内磁化分布の解析を行う。

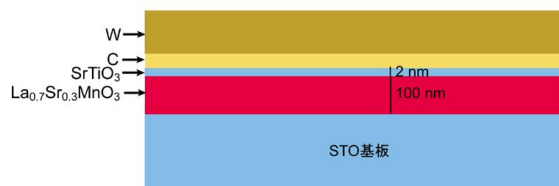


図1 $\text{SrTiO}_3/\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ エピタキシャル薄膜試料

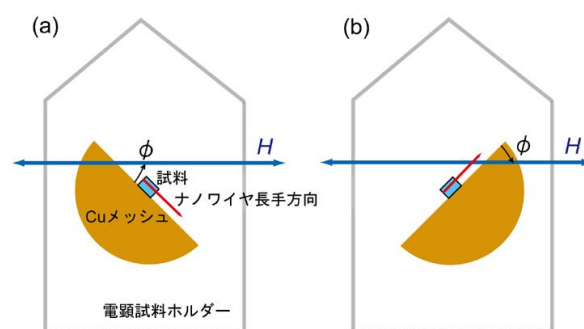


図2 試料の電子顕微鏡試料ホルダーへの固定方法。(a)と(b)で外部磁場方向のワイヤ長手方向に対する相対角度が異なる。

②電流印加による磁壁の位置の制御を試みるため、ナノワイヤに通電が可能な電顕観察試料を作製する。部分的に Au レイヤーを含みポリイミド樹脂を表面に堆積させた $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3 / \text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3 / \text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3 / \text{SrTiO}_3$ エピタキシャル薄膜試料に対し FIB マイクロサンプリング加工を実施し、Cu 電極付ポリイミド板にタングステンデポジションにより固定して、両端に Au 電極が付属する $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ナノワイヤの TEM 断面試料を作製する(図3)。この試料の Cu 電極が液体ヘリウム冷却通電試料ホルダーの電極に接するようにセットし、システムソースメータを接続して電流-電圧特性の測定を実施してオーミック接触が得られていることを確認した後、電流印加その場ローレンツ電顕観察を行う。試料にパルス電圧を印加しながら磁壁コントラストを示すローレンツフレネル像の変化を観察する。パルス電圧は試料の状態を確認しながら 100V 程度まで徐々に上げていき、フレネル像の動的変化を DVD に録画する。また、この試料に対して、外部磁場印加ユニットによりワイヤ長手方向に外部磁場を印加し、磁場印加その場ローレンツ電顕観察を行う。イメージングプレートを用いてフレネル像を記録し、強度輸送方程式法を用いた解析プログラムにより磁壁内磁化分布の解

析を行う。

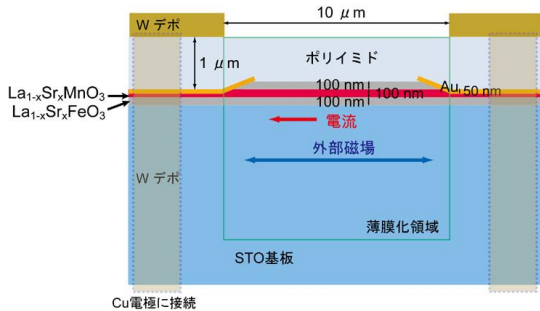


図3 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3/\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3/\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3/\text{SrTiO}_3$ エピタキシャル薄膜試料から FIB 加工により作製する通電用断面 TEM 試料

4. 研究成果

(1)磁場印加その場ローレンツ電顕実験の結果、強相関強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化物のナノワイヤに形成されるボルテックス磁壁のカイラリティは、交流消磁における外部磁場方向のワイヤ長手方向に対する相対角度により制御されることを見出した。厚さ 100nm の $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜試料から作製した $40\text{nm}\times 100\text{nm}\times 8\mu\text{m}$ のナノワイヤでは、断面 TEM 試料のローレンツ電顕観察および強度輸送方程式法を用いた面内磁化分布のシミュレーション計算の結果、ボルテックス磁壁が形成されることが確認された。シミュレーション計算(図4)において、ボルテックスのカイラリティが時計回り(CW)の時は、磁壁のコントラストがオーバーフォーカス像で黒(暗)、アンダーフォーカス像で白(明)、カイラリティが反時計回り(CCW)の時は、磁壁のコントラストがオーバーフォーカス像で白(明)、アンダーフォーカス像で黒(暗)となること示されている。このナノワイヤの磁場印加その場ローレンツ電顕観察の結果を図5に示す。(a)は交流消磁における外部磁場方向をワイヤ長手方向に対して $+45^\circ$ 、(b)は外部磁場方向をワイヤ長手方向に対して -45° にした時のローレンツフレネル像である。(a)では、磁区の磁化が向き合う head-to-head 磁壁のカイラリティは時計回り、磁区の磁化が離れる tail-to-tail 磁壁のカイラリティは反時計回りになっている。一方、(b)ではこの関係が逆転して head-to-head 磁壁では反時計回り、tail-to-tail 磁壁では時計回りになっている。磁場方向をワイヤ長手方向と平行にした時にはこのような相関は確認されなかった。

この現象はボルテックス磁壁の磁化分布が元来もつ異性に起因していると考えられる。ロー

レンツデータを用いた強度輸送方程式法の解析及び Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)方程式法によるマイクロマグネティック計算から、ボルテックス磁壁の磁化分布は2回回転対称性を持ち、磁化方向が大きく変化するバンド状の領域がワイヤ長手方向に対して対角方向に存在することが明らかになっている。ボルテックス磁壁の磁化はこのバンドの方向の成分が支配的であるため、交流消磁の外部磁場方向に近いバンドをもつボルテックス磁壁が形成されたと考えられる。ボルテックスのカイラリティはこのバンドの方向と両側の磁区の磁化配置によって一義的に決定されるため、この現象が現れると考察される。この外部磁場によるボルテックス磁壁のカイラリティ制御はメモリデバイスやロジックデバイスへの応用が期待される。

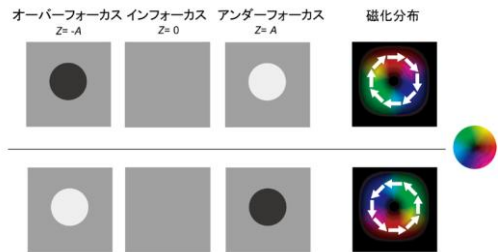


図4 強度輸送方程式法に基づくボルテックスの面内磁化分布のシミュレーション

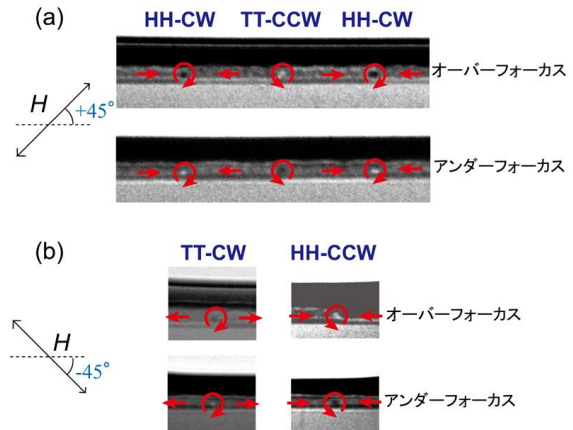


図5 交流消磁における印加磁場方向と形成されるボルテックス磁壁のカイラリティとの相関を示すローレンツ電顕観察結果。外部磁場方向のワイヤ長手方向に対する相対角度は(a)で $+45^\circ$ (b)で -45° となる。

(2)電流印加その場ローレンツ電顕実験の結果、強相関強磁性ペロブスカイト型マンガン酸化物のナノワイヤの磁壁は、印加可能な最大電圧まで位置の変化が観測されなかった。しかし、この

ナノワイヤの同一ピンニングサイトにおけるトランスバース磁壁のカイラリティが、磁壁の両側の磁区の磁化配置の反転に伴って反転することが明らかとなった。Au 電極を内包した $40\text{nm} \times 100\text{nm} \times 10\mu\text{m}$ の大きさの $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ナノワイヤの試料の両端の Cu 電極を用いて電流-電圧特性の測定を測定したところ線形の関係が得られた。試料を冷却後、電流印加その場ローレンツ観察を行ったが、最大印加電圧 85V、最大電流密度 10^{12}A/m^2 まで、ナノワイヤの磁壁のコントラストに変化が確認されなかった。更に印加電圧を上げると試料が絶縁破壊を起こした。

また、外部磁場の方向をワイヤ長手方向にして交流消磁を行うことにより、ピンニングサイトとなるワイヤの特定個所に磁壁のコントラストが形成された。ローレンツ電顕像を用いた強度輸送方程式法による解析の結果、この磁壁は、磁壁内の磁化がワイヤ長手方向とおおよそ直交するトランスバース磁壁であることが明らかになった(図 6)。交流消磁を繰り返し行くとピンニングサイトを挟む磁区の磁化配置が反転したが、解析の結果、この磁化配置の反転に伴ってトランスバース磁壁のカイラリティが反転することが明らかとなった(図 7)。外部磁場を用いた方法によりトランスバース磁壁のカイラリティを制御できることが明らかになった。このカイラリティ制御についてもメモリデバイスやロジックデバイスへの応用が期待できると考えられる。

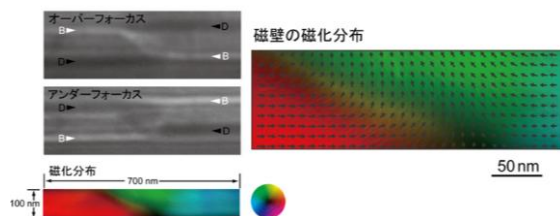


図 6 ローレンツ像を用いた強度輸送方程式法により解析された、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ナノワイヤにおけるトランスバース磁壁の面内磁化分布

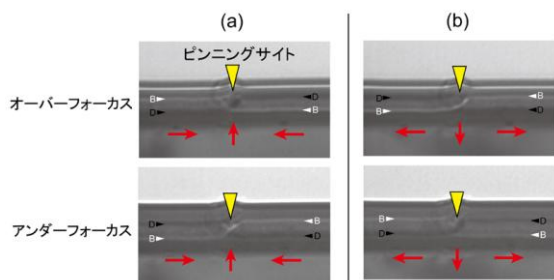


図 7 同一ピンニングサイトにおけるトランスバース磁壁のカイラリティ反転現象を示すローレンツ電顕観察結果。このピンニングサイトでは交流消磁により(a)または(b)の磁化分布が形成される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① 長井拓郎、木本浩司、竹口雅樹、松井良夫、ローレンツ TEM 法による強磁性ナノワイヤの磁化分布解析、日本金属学会誌 48 巻、2009、613-613

[学会発表] (計 2 件)

- ① 長井拓郎、ローレンツ電顕法による強磁性ナノワイヤの磁化分布解析、平成 22 年度 NIMS ナノ計測センター研究成果発表会、2010 年 12 月 7 日、物質・材料研究機構 (つくば市)
- ② 長井拓郎、ローレンツ電子顕微鏡法による強磁性ナノワイヤのスピ構造解析、日本顕微鏡学会第 65 回学術講演会、2009 年 5 月 26 日、仙台国際センター (仙台市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長井 拓郎 (NAGAI TAKURO)

独立行政法人物質・材料研究機構・電子顕微鏡クラスター・主任エンジニア

研究者番号：90531567

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし