

機関番号：82626

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21760243

研究課題名（和文） 界面スピントロニクス顕微分析技術の開発と界面強磁性の直接解析

研究課題名（英文） A microscopic technique for direct analysis of local spin arrangement at ferromagnetic interfaces

研究代表者

甲野藤 真 (KONOTO MAKOTO)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・研究員

研究者番号：80425735

研究成果の概要（和文）：積層薄膜の界面で発現するスピン機能を活用した不揮発メモリ・ロジックデバイス等の開発が精力的に進められている。界面スピン機能は界面内の局所スピンの方向に支配されるため、これら新型デバイスの開発研究において、界面スピンの直接評価を可能とする実空間スピン計測技術が不可欠となる。本研究では、界面の局所スピン分布をナノスケールで定量分析できる高分解能スピン計測技術を開発した。

研究成果の概要（英文）：Various types of spintronic devices based on magnetic functions at thin film interfaces have been extensively studied. Direct measurement of interface spin is crucial to realize such applications, because the device function is governed by local spin orientations at the interface. In this study we have developed a high-resolution microscopic technique capable of quantitative analysis of interface spin arrangement at nanometric resolution.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：材料科学

科研費の分科・細目：電気電子工学 電子・電気材料工学

キーワード：電子・電気材料、スピントロニクス、表面・界面物性、電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

（1）半導体エレクトロニクスに代わる次世代機能デバイスのプラットフォームとして、スピントロニクス材料のヘテロ界面が注目されている。代表的なスピントロニクス材料の一つである遷移金属酸化物の界面では、電荷授受に伴う電子状態の再構成が発生し、新奇な電子相や磁気相が局所的に発現し得ることが予測されている。実際、酸化物接合の作製技術や評価技術の進歩に伴い、絶縁体界

面で生ずる金属伝導や、非磁性界面において局所発現する磁気秩序など、様々な界面現象が今世紀に入り相次いで発見されている。これらの現象の機構詳細を解明し、界面機能を活用した新デバイスを創出するためには、接合面近傍のナノ領域で発現する諸物性を直接分析可能なナノ計測技術を確立することが必要である。また、スピントロニクスデバイスでは、デバイス機能が局所スピンの方向に支配されるため、スピン方向の定量解析機

能を備えていることも計測技術に対する要件となる。

(2) 界面現象の発現領域は、接合面から僅か数ナノメートルの微小領域と予想される。従って、計測技術には検出感度や空間分解能において高い性能が要求される。界面近傍の電荷分布等に関しては、透過電子顕微鏡など既存技術の活用によって解析が進められている (A. Ohtomo et al., Nature 419 (2002) 378)。一方、界面領域の磁化分布に関しては、直接的・定量的計測が可能な顕微手法が存在しない。そのため、界面機能開発に欠かせない物性の一つである磁性について、直接的な知見が得られていないのが現状である。近年最も普及した磁気顕微鏡技術として磁気力顕微鏡が挙げられる。この技術では、磁性材料から発生する漏洩磁場を、微細に加工された磁性探針を用いて測定することにより、観察面内方向の磁化分布を高感度に検出することができる。一方、漏洩磁場には深部の磁気情報も反映されてしまうことから、深さ方向に関しては情報が平均化されてしまう。従って、厚さ数ナノメートルの界面領域の情報を選択計測する事は困難と予想される。このような背景から、界面磁気機能の開発を推進するためには、界面ナノ領域の局所磁化を直接検出可能な新技術を開発することが不可欠と考えられる。スピン偏極走査電子顕微鏡 (スピン偏極 SEM) は、最も有望な局所スピンプローバーの一つとして、NIST、Max Planck 研、IBM 基礎研など世界の拠点研究機関で開発が進められている。この中で、研究代表者が開発中の高分解能スピン偏極 SEM は面内分解能が 5 nm 以下にまで到達しており、世界最高の性能を有している。この技術を用いて、層状酸化物結晶の劈開面に現れた層状反強磁性の直接観察を試みたところ、深さ方向に 1 nm の周期で反転する反平行スピン構造の信号が相殺されることなく検出された (M. Konoto et al., Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 107201)。この結果は、本技術が深さ方向に約 1 nm の分解能を有することを示す。界面近傍数ナノメートルのスピン情報を検出するために十分な分解能であり、この技術が機能界面の分析手法としても極めて有望であることを示している。

2. 研究の目的

本研究では、界面機能開発を推進するための界面スピン直接評価技術の創出を目的としている。界面スピンの分析においては、深さ方向の検出感度が特に重要である。ナノ薄膜を積層して形成した極薄い接合界面の情報を精度良く分析するためには、観察面への吸着汚染による検出信号の減弱を防ぐ必要がある。従って、作製した遷移金属酸化物ナ

ノ接合を、真空状態を保持したままその場分析することが最善の方法となる。そこで、スピン偏極 SEM と原子層単位で制御された酸化物薄膜を形成可能なパルスレーザー堆積技術 (PLD) とを複合化することによって、原子スケールで膜厚制御された遷移金属酸化物のヘテロ接合を作製し、接合面のスピン状態を直接解析する技術を開発する。真空中劈開面を利用した深さ分解能に関する事前検討結果は本技術の実現可能性が十分高いことを示している。界面磁性の発現領域や界面内部の局所スピン方向をナノメートルオーダーで定量評価できる高機能界面分析技術の実現が見込まれる。界面強磁性の存在が示唆される遷移金属酸化物ヘテロ接合のスピンを検出することによって、開発した装置の分析機能を実証する。

本研究で開発する新技術によって、機能性界面やそれを活用した新デバイスにおけるスピン状態の直接評価が可能となる。界面ナノ領域のスピンを実空間分析する技術が存在しない現状では、多数の界面が内包された多層膜構造を形成し、磁化曲線などの巨視的分析から得られた平均情報をもとに、界面特性を推察する方法がとられている。本研究で開発する技術は界面ナノ領域のスピンを直接計測するため、平均情報を計測する従来手法とは取得情報が質的に異なる点で重要である。更には、界面スピンの直接検出だけでなく、界面内部のスピン配列を定量分析する機能の実現も目指している。界面スピンのナノ精度定量分析が可能となり、界面機能デバイスの開発を加速度的に推進するものと期待される。

3. 研究の方法

本研究では、PLD とスピン偏極 SEM の機能を統合した新しい複合分析システムを開発する。開発における重要なポイントとして、分解能や検出感度に関する性能出しとナノスケールで制御された接合形成技術の確立が挙げられる。

表面清浄性は本手法の要である検出感度の確保に不可欠な要素であるため、吸着汚染等を極力抑えたクリーンなプロセスによる界面作製・分析が必要となる。PLD システムとスピン偏極 SEM を直結して単一真空システムとして機能を統合し、全領域が超高真空状態に保たれた複合分析装置を新たに構築する。一般に、PLD 技術は超高真空下での活用を想定していないため、定常的に超高真空環境を維持するための真空機構を構築するとともに運用技術を確立する。続いて、PLD とスピン偏極 SEM を接続した状態での脱ガス処理を行い、システム全体の超高真空化を図る。雰囲気的清浄化によって、真空中劈開面における事前検討で確認された深さ分解能が再

現できれば、高精度な界面スピン検出が実現可能と考えられる。

界面磁性の発現領域は接合面から数ナノメートル程度と予想されているため、分析技術のみならず、接合作製技術にもナノレベルの精度が必要となる。本研究で採用する PLD 法は、原料ターゲットに高出力レーザーを間欠照射することによって、蒸発原料を制御性良く基板上に堆積させることが可能である。電子線回折等によって薄膜の表面構造をリアルタイムで解析しながら成膜を行い、理想的な2次元薄膜成長を実現するための条件を決定する。原子レベルで平坦な接合面を有し、原子層単位で膜厚が制御された遷移金属薄膜を形成するための設備を製作するとともに、成膜技術の高度化を目指す。また、薄膜の接合を高精度に作製するため、コンビナトリアル成膜技術を確立する。この技術を用いると厚さや材料組成の異なる界面を1試料内に作り込むことができるため、成膜条件のゆらぎを含まない分析データを得ることが可能となる。面内方向の高い分解能を活用すれば、高精度で界面磁性相の発生領域を特定することができる。更に、条件の異なる多数の試料を逐次分析する場合に比較して、処理の大幅な高速化を図ることが可能となる。将来的な計画としての界面機能の最適化や新規界面機能の探索の際に極めて有効な技術となる。

確立したシステムを用いて、 $\text{LaMnO}_3/\text{SrMnO}_3$ 接合を形成・分析する。 LaMnO_3 および SrMnO_3 はいずれも強磁性スピン秩序を示さないが、これらを交互に積層した多層膜の巨視的磁化計測の結果から、多層膜内での強磁性

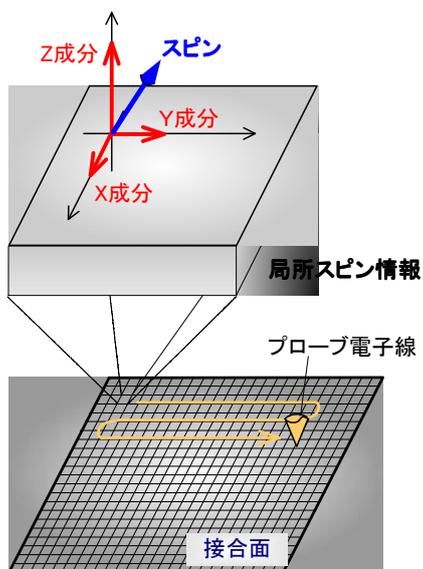


図1 複合分析システムによって計測される界面スピン情報

的磁気秩序の発現が示唆されている (H. Yamada et al., Appl. Phys. Lett. 92 (2008) 062508)。この磁性は界面における電荷移動に関連した現象と考えられており、発現領域は接合面から2~3ユニットセル(厚さ1~2 nm)と予想されている。事前検討結果から推測される約1 nmの深さ分解能を考慮すると、新技術の性能を評価する上で好適な系と言える。作製した接合試料の界面を電子線で走査しながら、ナノ領域のスピン偏極ベクトルをベクトル3成分に分解検出し、それぞれイメージデータとして記録する(図1)。界面スピンの直接検出によって局所磁性の発現を検証し、磁化容易方向の有無や界面ナノ領域でのドメイン形成の可能性など、これまでに得ることが不可能であった知見の収集を試みる。

4. 研究成果

(1) 界面スピン分析システムの開発

超高真空 PLD とスピン偏極 SEM による複合分析システムを構築するため、これらのユニットを真空下で接続して機能の統合を図った。最初に、超高真空対応 PLD システムの開発を行った。ナノメートル精度の薄膜形成を目標とした PLD 技術の高度化とともに、界面機能開発において有力な技術となるコンビナトリアル成膜法の開発を行った。膜厚等に精密制御された面内空間分布を持たせるため、高い位置精度で制御された可動式マスクを基板直近に設置した。また、成膜用レーザーを材料ターゲット表面に収束させるレンズを高速・精密に位置制御するための機構を製作した。これらをレーザー発生装置やターゲット移動機構等と連動させる制御系を構築し、ナノ精度での構造作製を可能とした。また、反射高速電子回折によって、成膜時の試料表面構造をリアルタイムで評価できるようにした。基板温度その他の成膜パラメータとリンクさせながらこれらをプログラ

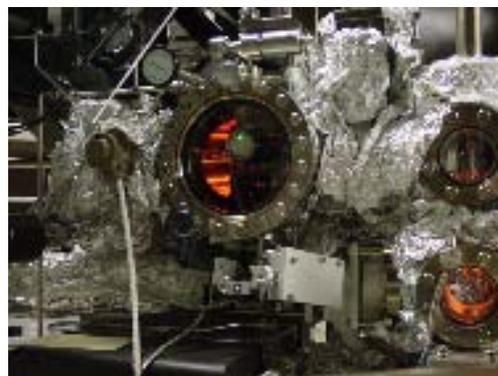


図2 開発した酸化物ヘテロ接合形成ユニット

ム制御できるよう自動化した。高速かつ高精度な接合作製を実現し、試料への吸着汚染の発生を抑制した。これらの全機構を図2のようなコンパクトな真空槽に集約し軽量化した。除振機構への影響を低減し、分解能を維持する設計意図があったが、電子回折装置付近の一部部材から生じた磁場が電子線に干渉して測定精度を低下させることが判明した。磁場の発生源を特定し、装置設計や部品の変更、磁気シールド処理等によって干渉を低減した。

計測結果をイメージデータとして表示するには高いS/N比が要求されるため、成膜時のみならず、試料搬送・分析の間に生じる吸着汚染の対策も必要となる。十分な解像度を確保するため、システム全体の真空雰囲気改善と、試料作製および搬送方法の最適化を引き続いて行った。高潔浄環境を実現するため、雰囲気ガスの分析や真空排気性能および脱ガス機能の強化などを行うことにより、複合分析システム内の全領域を超高真空に到達可能とした。この際、低振動の真空排気ポンプを適所に配置することによって、分析の障害となる振動ノイズの発生を低減した。これらにより、試料作製・搬送・分析の全プロセスを高潔浄環境下で実施することが可能となった。一方、PLD およびスピン偏極 SEMの両ユニットを接続した際、重量バランスなどの関係で、装置全体の機械的振動の周波数が増加して振動ノイズが増大した。この問題を解決するため、制振ステージに改造を施して共振点を調整することにより、振動ノイズの低減を図った。

試料作製・分析ユニット間の試料搬送のため、両者に適合する試料ホルダーを開発した。成膜から分析までの全プロセス中で、ホルダーの温度は30から1300 Kの広範囲で変化する場合があります。酸化雰囲気にも曝されることもあるため、耐食性や熱伝導性を考慮して材料や部品の選択を行った。また、ホルダーの設計を工夫し、界面に垂直なスピン成分と界面内で直交する2成分が検出されるような構成とした。

(2) 開発したシステムの機能試験

開発したシステムの機能を確認するため、強磁性スピン秩序の生成が期待されるヘテロ接合界面の直接観察を試みた。装置の高真空化によって雰囲気の不純物レベルを低減した結果、イメージデータの構成に十分なシグナル強度を確保することができた。いずれも強磁性スピン秩序を有しない LaMnO_3 および SrMnO_3 で構成したヘテロ接合において界面スピン状態を分析したところ、図3のようなスピン分布像の取得に成功した。記録したイメージデータは、図1に示したように、界面に平行な2成分(a)、(b)および垂直な1成

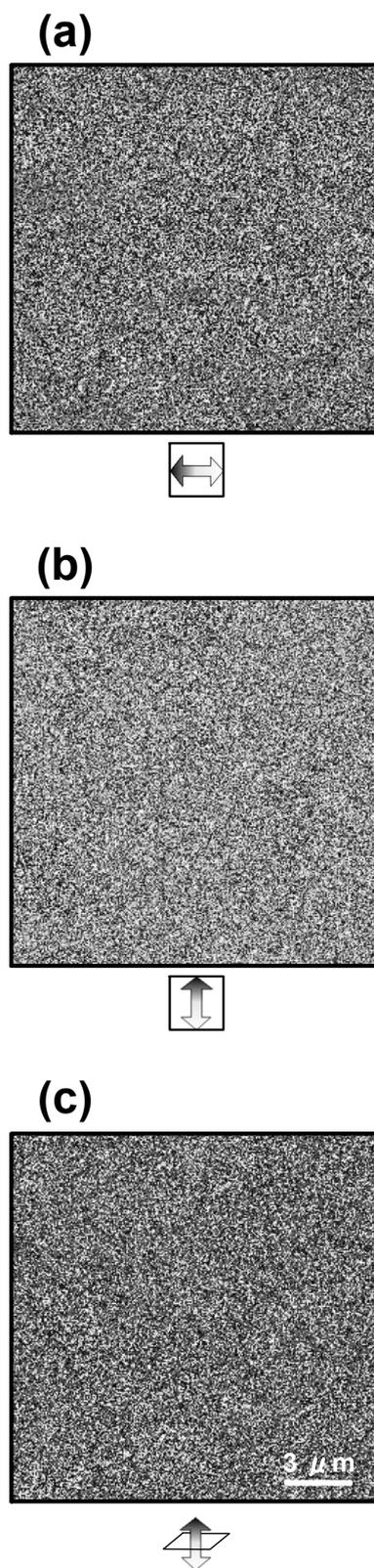


図3 $\text{LaMnO}_3/\text{SrMnO}_3$ 接合界面のスピン分布像。(a)、(b) 界面に平行で直交する2成分と(c) 界面に垂直な方向の成分をそれぞれ計測した。

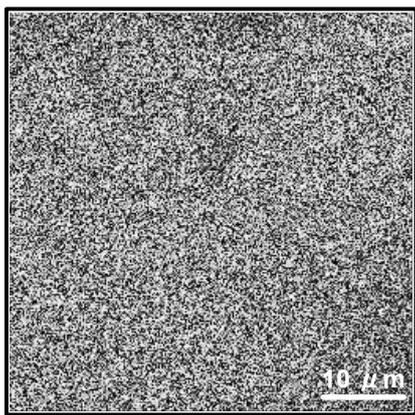


図4 LaMnO₃/SrMnO₃ 接合界面のスピンド分布像。矢印方向の面内成分を広域で観察した。

分(c)の実空間分布に対応する。それぞれの方向は矢印で示されており、成分の符号と大きさをグレースケールで示した。図3(a)に見られる明暗のコントラストは界面内に形成されたドメインを反映したものである。図3(b), (c)にはコントラストが無いことから、残りの2成分は存在しない事がわかった。これらの結果から、スピンの方向は界面に平行かつ隣接ドメイン間で反平行であることが明らかとなった。より広い視野を分析したところ、図3では検出されなかった方の面内成分も検出されたが(図4右下の領域)、垂直成分はやはり検出されなかった。このことから、強磁性秩序を有する界面スピンは界面に平行に配列し、面内方向にドメインを形成することが明らかになった。これらの観察は界面スピン秩序が発生する磁気転移温度よりも十分低温で実施したが、確認のため転移温度以上でも同様の試験を行った。その結果、いずれの磁化成分も検出されなかったことから、図3、4に現れたコントラストは界面スピンを反映したものであることが確かめられた。これらの結果は、開発した装置が界面のスピンを直接検出可能であり、スピン方向の分布等を実空間で定量分析できることを実証するものである。性能試験では、最も分解能が必要と考えられる系の一つとして遷移金属酸化物界面を対象としたが、本技術の応用範囲はこれに限られるものではない。金属・酸化物やそれらの複合界面における局所スピン構造、磁氣的相互作用の解析など、界面機能研究の基盤的技術として、様々な材料系の磁性計測へ広汎に応用可能と見込まれる。

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)

[学会発表] (計3件)

- ① 甲野藤真、Recent progress in spin-polarized scanning electron microscopy、日本磁気学会講演会、2010年9月5日、つくば国際会議場(茨城県)
- ② 甲野藤真、スピン偏極SEMによるナノ領域磁性の顕微分析、日本放射光学会研究会、2010年8月4日、東京大学(東京都)
- ③ 甲野藤真、山田浩之、澤彰仁、Direct observation of magnetic ripple domain structures developed in La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃ thin films、11th Joint MMM/INTERMAG Conference、2010年1月19日、Marriott Washington Wardman Park (Washington DC)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

甲野藤 真 (Konoto Makoto)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・研究員

研究者番号：80425735