MgO 下地層上に形成した FePt 合金薄膜の結晶配向解析

野口陽平・中村将大・落合亮真・大竹充・二本正昭・桐野文良^{*}・稲葉信幸^{**} (中央大,^{*}東京藝大,^{**}山形大)

Characterization of Crystallographic Orientation of FePt Alloy Thin Films Formed on MgO Underlayer

Youhei Noguchi, Masahiro Nakamura, Ryoma Ochiai, Mitsuru Ohtake,

Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino^{*}, and Nobuyuki Inaba^{**}

(Chuo Univ., ^{*}Tokyo Univ. Arts, ^{**}Yamagata Univ.)

<u>はじめに</u> $L1_0$ 型構造を持つ FePt 規則合金は 10^7 erg/cm³ オーダーの一軸磁気異方性エネルギーを持つ. その ため,この合金薄膜は高密度垂直記録媒体や MRAM などへのデバイス応用に向けて,研究が盛んに行われて いる.デバイス応用では,磁化容易軸である c 軸を基板面に対して垂直に配向させる必要があり,(001)配向 した下地層もしくは(001)単結晶基板が用いられる.しかしながら,膜中に c 軸が面直に向いた(001)結晶に加 えて,面内に向いた(100)結晶が混在する場合が報告されている.(100)配向の解析には HR-TEM¹⁻³⁾や面内 XRD⁴⁾法が有効である.我々は,これまで,単結晶基板上に形成した FePt 膜に対して面内 XRD 法を用いた配 向解析を行ってきた⁵⁾.本研究では,熱酸化 Si 基板上に FePt/MgO 膜を形成し,結晶配向評価を行った.

実験方法 試料の作製には超高真 空マグネトロンスパッタリング装 置を用いた. 熱酸化 Si 基板上に 200 °C で 10~100 nm 厚の MgO 下 地層を形成し, その上に 10 nm 厚 の FePt 膜を形成した. その後, 600 °C で熱処理を施すことにより, *L*1₀相へ規則化させた. 構造評価に は RHEED および XRD, 磁化曲線 測定には VSM を用いた.

実験結果 Fig. 1(a-1)-(c-1)に 10~ 100 nm 厚の MgO 下地層上に形成 した FePt 膜の面外 XRD パターン を示す. いずれの場合も, FePt(001) 超格子反射が観察されており, *c* 軸が面直に向いた FePt(001)結晶が 形成されていることが分かる.ま た, 10 nm 厚の MgO 下地層上に形 成した FePt 膜では (Fig. 1(a-1)), FePt(111) 反射も認められる. FePt(001)結晶に加えて(111)結晶が 混在していることが分かる. 一方, 下地層厚が 40 nm を超えると,



Fig. 1 (a-1)-(c-1) Out-of-plane and (a-2)-(c-2) in-plane XRD patterns of FePt films deposited on MgO underlayers of (a) 10, (b) 40, and (c) 100 nm thicknesses.

FePt(111)反射は消失しており、このことは FePt 膜で FePt(001)結晶が優先成長していることを示している. 基本反射と超格子反射の強度比から算出した FePt 膜の規則度は、下地層厚 10~100 nm に対して 0.5~0.6 とほぼ一定であった. Fig. 1(a-2)-(c-2)に面内 XRD パターンを示す.全ての下地層厚の場合において、強度が弱いが FePt(001)超格子反射が観察されており、L1₀(100)結晶が混在していることが分かる.

参考文献
1) K. Sato, B. Bian, and Y. Hirotsu: J. Appl. Phys., 91, 8516 (2002).
2) Y. K. Takahashi, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: J. Magn. Magn. Mater., 267, 248 (2003).
3) A. Perumal, Y. K. Takahashi, T. O. Seki, and K. Hono: Appl. Phys. Lett., 92, 132508 (2008).
4) S. Jeong, T. Ohkubo, A. G. Roy, D. E. Laughlin, and M. E. McHenry: J. Appl. Phys., 91, 6863 (2002).

5) M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: IEEE Trans. Magn., 50, 2104204 (2014).

MgO(001)基板上に形成した FePt/FePd 二層薄膜の構造解析

中村将大・落合亮真・野口陽平・大竹充・二本正昭・桐野文良^{*}・稲葉信幸^{**} (中央大,^{*}東京藝大,^{**}山形大)

Structure Analysis of FePt/FePd Bilayer Films Formed on MgO(001) Substrate Masahiro Nakamura, Ryoma Ochiai, Youhei Noguchi, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino^{*}, and Nobuyuki Inaba^{**}

(Chuo Univ., ^{*}Tokyo Univ. Arts, ^{**}Yamagata Univ.)

<u>はしめに</u> $L1_0$ 構造を持つバルク FePt および FePd 合金 は、それぞれ、 6.6×10^7 および 1.8×10^7 erg/cm³ の K_u を持 っため、これらの薄膜は高密度磁気記録媒体や MRAM などへの応用に向けて研究されている.デバイス応用で は、高規則化に加えて、磁化容易軸である c 軸が面直に 向くように方位制御する必要がある.しかしながら、 (001)配向下地層や単結晶基板上にこれらの合金膜を形 成した場合、c 軸が面直に向いた(001)結晶に加え、面内 に存在する(100)結晶が混在する場合が報告されている ¹⁻³⁾.我々は、これまで、MgO(001)基板上に 10~40 nm 厚の FePt および FePd 膜を形成し、結晶配向について調 べてきた^{4.5)}. FePt 膜では、僅かに $L1_0(100)$ 結晶が混在し たが、FePd 膜は、 $L1_0(001)$ 結晶のみから構成されている ことが分かった.本研究では、FePt/FePd 二層膜を形成 することにより、FePt 層の配向制御を試みた.

実験方法 試料作製には超高真空 RF マグネトロンスパッ タリング装置を用いた. MgO(001)基板上に 200 ℃ で FePt(40-*x* nm)/FePd(*x* nm)もしくは FePt(10-*y* nm)/FePd(*y* nm) 二層膜を形成した. 製膜後, *L*1₀ 相への規則化を促進させ るために, 600 ℃ での熱処理を施した. 構造評価には RHEED, XRD, 磁気特性評価には VSM を用いた.

実験結果 作製したすべての膜で、エピタキシャル成 長していることをRHEED観察で、L10相に規則化して いることを面外XRD測定で確認した. c軸が面内に向 いた(100)結晶の有無を調べるために、面内XRD測定を 行った. Fig. 1(a)にFePt(40-x nm)/FePd(x nm)膜の面内 XRDパターンを示す. いずれの二層膜 (x = 10~30 nm) でもL10(001)反射が認められ、L10(100)結晶が混在して いることが分かる. Fig. 1(b)に総膜厚を10 nmへ減少さ せた場合の結果を示す. FePt: FePd層厚比を1:3とし た試料ではL10(001)反射が観察されていない. c軸が面 直に向いたL10(001)結晶からなる膜構造が実現できて いる. Fig. 2に面内および面外XRD測定の結果から算 出した面内格子間隔aと面外間隔cを示す.総膜厚を40 から10 nmへ, さらにFePd層比を増加させると, 面内 格子は膨張し面外格子が収縮する傾向が認められる. このような格子歪がc面配向の促進に寄与しているこ とが考えられる.



Fig. 1 In-plane XRD patterns of (a) FePt(40-x nm) /FePd(x nm) and (b) FePt(10-y nm)/FePd(y nm) bilayer films deposited on MgO(001) substrates.



Fig. 2 Lattice parameters, a and c, of (a) FePt(40–x nm) /FePd(x nm) and (b) FePd(10–y nm)/Pd(y nm) bilayer films.

参考文献
1) K. Sato, B. Bian, and Y. Hirotsu: J. Appl. Phys., 91, 8516 (2002).
2) Y. K. Takahashi, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: J. Magn. Magn. Mater., 267, 248 (2003).
3) H. Ho, J. Zhu, A. Kulovits, D. E. Laughlin, and J. Zhu: J. Appl. Phys., 116, 193510 (2014).
4) A. Itabashi, M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto: J. Magn. Soc. Jpn., 37, 358 (2013).
5) M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: IEEE Trans. Magn., 50, 2104204 (2014).

Cr シード層による MgO/FePt-C の配向性改善

城山泰祐、Varaprasad, B. S. D. Ch. S., J. Wang, A. Felicia、高橋有紀子、宝野和博 (物質・材料研究機構)

Improvement of texture for MgO/FePt-C by Cr seed layer T. Shiroyama, B. Varaprasad, J. Wang, A. Felicia, Y.K. Takahashi and K. Hono (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

次世代超高密度磁気記録方式として提案されている熱アシスト方式用記録媒体として、MgO下地上にL1₀ 規則構造をもつFePt-Cナノグラニュラー膜の研究が盛んに行われている。以前、我々はFePt-Cナノ粒子のc 軸配向性について、MgO(001)単結晶基板上とガラス基板に成膜した多結晶 MgO(001)下地上において比較解 析を行い、多結晶 MgO の配向性不良が FePt-Cナノ粒子の配向性不良に大きく影響していることを示した¹⁾。 また、Cr(002)膜は MgO との格子整合性が良く、成膜後のアニールにより結晶性と表面平滑性が改善される ことから、MgO(002)/ホイスラー合金等の磁性薄膜の配向性向上を目的としても利用されている²⁾。

我々は、ガラス基板上に成膜した FePt-C ナノグラニュラ―膜の C 軸配向性向上を目的として、多結晶 MgO 膜の下地に Cr(002)膜を挿入し、成膜条件の種々検討を行った。そして、Cr(002)膜の挿入が、FePt-C 膜の特性 向上に有用であることを確認した。さらに、Cr(002)層の有無が、多結晶 MgO や FePt-C の特性に対してどの ように影響したのかを考察したので、その検討内容について報告する。

実験方法

製膜は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて行った。まず、ガラ ス基板上にNiTa(100nm)を製膜し、続いて、Cr(5~20nm)を室温で製膜後 600℃30分アニールし、MgO(10nm)を室温にて製膜した。さらに、それら のCr/MgO下地上にFePt-C(10nm)膜を、3.6mTorr Ar ガス雰囲気下、基板温 度 550℃、Fe、Pt、C の 3 元同時スパッタによって製膜した。試料の構造は、 X線回折にて、平面及び断面構造形態は透過型高分解能電子顕微鏡により 評価した。また、磁気特性は超伝導量子干渉振動試料型磁力計にて行った。 実験結果



図 1 に Glass/NiTa/Cr/MgO の MgO(002)ロッキングカーブを示す。Cr 層が厚 い程、MgO の配向性は向上するが、Cr 20nm でも Cr が無い場合とほぼ同

じカーブとなった。また、図2にMgO/FePt-Cの 磁気特性のCr層(15nm)有無による違いを示す。 Cr層の挿入により、面内保磁力が約半分となり、 また面直方向のループは角形性が改善されてい る。このことは、Cr層の挿入により、MgO(002) の配向性が改善されていないにも関わらず、 FePt-C 微粒子のc軸配向性が向上したことを意 味している。講演では、微細構造観察からこの 原因についても議論する。

Fig.1 MgO(002) rocking curve of Glass/NiTa/Cr/MgO.



Fig.2 Magnetic properties of MgO/FePt-C (a)w/o and (b) w/ $\rm Cr(15nm).$

<u>参考文献</u>

1) J. Wang et al., Acta Mater. 91, 41 - 49 (2015).

2) J. Okabayashi et al., Appl. Phys. Lett. 103, 102402 (2013).

FePt 媒体における円偏光誘起磁化反転

高橋有紀子¹、R. Medapali²、石岡邦江¹、J. Wang¹、葛西伸哉¹、宝野和博¹、E.E. Fullerton² (物材機構¹、Univ. of California San Diego²) Helicity-dependent all-optical switching in FePt media Y.K. Takahashi¹, R. Medapali², K. Ishioka¹, J. Wang¹, S. Kasai¹, K. Hono¹ and E.E. Fullerton²

 $(NIMS^1, UCSD^2)$

はじめに

ハードディスクドライブ(HDD)の更なる記録密度向上には磁気記録媒体の微細化が必要不可欠である。媒体 を構成する強磁性微粒子の微細化に伴い生じる熱安定性の問題を解決するために FePt などの高い異方性(Ku) を持つ材料が次世代媒体材料として検討されている。高 Ku 材料を用いた媒体は高い反転磁界を必要とする ため、熱や高周波磁場などを用いたエネルギーアシスト磁化反転方式を使う必要がある。熱や高周波磁場に よる磁化反転のエネルギーアシストの他に、近年円偏光の極性により無磁場中で磁化反転制御が可能な円偏 光誘起磁化反転が次世代記録技術の1つとして注目されている。本研究では、円偏光誘起磁化反転の FePt 媒 体への応用を念頭に、円偏光照射による FePt 媒体の磁化変化について検討を行った。

実験方法

FePt-C グラニュラー薄膜は、Fe、Pt、C の 3 つのターゲットを用いたコスパッタ法で MgO 単結晶基板上に作 製した。成膜時の基板温度は 600℃である。円偏光照射による磁化反転はファラデー像およびホール素子に より評価した。円偏光には、波長 800nm、周波数 10kHz のフェムト秒レーザーを用いた。サンプルへの熱の 影響を最小限にするために、チョッパーにより周波数を 1kHz に低減した。ホール素子は、ホトリソと Ar イ オンミリングを用いた微細加工で作製した。

結果

Fig.1 に FePt-C グラニュラー薄膜の面内の TEM 像を示す。平均粒子径が 9.1 nm の FePt 粒子が C マトリック ス中に均一に分散している。Fig.2 に FePt-C グラニュラー薄膜より作製したホール素子の異常ホール抵抗 (AHE)曲線と円偏光を照射した後のホール抵抗をそれぞれ(a)(b)に示す。AHE 曲線より薄膜の保磁力は 42.5 kOe である。(b)より円偏光による磁化変化は全体の磁化に対して約 13%である。円偏光を照射することによ り極性に応じた磁化変化が観測されているが、照射回数の増加に伴い磁化変化量が小さくなっている。円偏 光を照射した後に測定した AHE 曲線は照射前に測定したものと同じであったため、照射回数による磁化変化 の減少は熱による破壊的なダメージによるものではなく、円偏光照射による膜の磁化状態の変化によるもの と考えられる。以上のことから、円偏光照射量を最適化することにより高効率な磁化変化および再現性のあ る磁化変化が実現できると考えられる。

参考文献

1) C-H. Lambert et al., Science345, 1337 (2014).



Fig. 1 TEM image of FePt-C granular film.

Fig. 2 (a) AHE curve and (b) Resistance after the laser irradiation in Hall cross of FePt-C granular film.

FeCuPt 孤立ナノ磁性微粒子形態・磁気特性の

微粒子形成過程における Fe・Cu・Pt 薄膜-基板界面依存性

小林廉¹, 今里真之¹, 小笠原亜紀¹, 塚本新²

(1日本大学大学院理工学研究科,2日本大学理工学部)

Fe, Cu, Pt Interfacial Effect Dependency in the Fabrication Process of

Isolated FeCuPt Nano Particles and Induced Magnetic and Shape Propaties

Ren Kobayashi¹, Masayuki Imazato¹, Aki Ogasawara¹, Arata Tsukamoto²

(¹Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ., ²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

1.はじめに 超高密度熱アシスト用垂直磁気記録媒体等への応用として,我々は熱酸化 Si 基板上に Pt / Fe 多 層薄膜を作製し急速昇温熱処理(Rapid Thermal Annealing: RTA)を施すことによる L1₀ – FePt 孤立磁性微粒子 の形成¹⁾を報告した. RTA の粒子形成の起点は基板上での金属原子の拡散による粒子核形成²⁾であり,さら に数 nm の金属超薄膜を利用することから,金属薄膜と熱酸化 Si 基板との界面が微粒子形態や磁気特性を決 定づける大きな要因になると考えた. そこで界面と粒子形態および磁気特性の相関を明らかとするためエキ シマ光による基板表面改質および金属薄膜の層構成を変えた多層薄膜にて粒子を作製し評価・検討を行った.

2.実験方法 使用する基板は熱酸化 Si 基板とし, エキシマ光 照射時間を 0, 5, 30 sec とした. DC マグネトロンスパッタ 法を用い Fig.1 に示す組成比 Fe43 Cu14 Pt43(積層膜厚 Ts = 1.88 nm)の薄膜をFe,Cu,Pt,がそれぞれ最下層となるよう3つ の層構成にて作製した.これらの薄膜に対し,真空度<3.0×10-3 Pa 雰囲気下にて昇温速度約 90 ℃ / sec, 目標到達温度 600 ℃の RTA を行い、その後粒結合抑制のため窒素導入による急速冷却 ³⁾を行った.作製した微粒子の観察には走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM), 磁気特性の評価には超 伝導量子干涉素子型磁束計(Superconducting Quantum Interface Device Vibrating Sample Magnetometer: SQUID VSM)を用いた. 3.結果 Fig.2 に各条件にて作製した微粒子の表面 SEM 像およ び平均粒径(D_a), 粒子数密度(N_p)の測定結果, Fig.3 に膜面垂 直方向へ磁場印加を行い VSM 計測した磁化曲線を示す. Fig.2 より N_pは最下層が Fe, Cu, Pt の順に大きいことを確認した. これは酸化還元電位の観点から、熱酸化 Si 基板と接合する最 下層の金属薄膜との酸化傾向が強いほど粒子形成密度は高密 度となることを示唆している.そこで更なる Npの増加を図り, 熱酸化 Si 基板に対し Si-O, O-O 等の分子結合を分断すること ができるエキシマ光照射を行ったが、その寄与は小さいこと が確認できる.一方 Fig.3 よりエキシマ光による基板表面改質 を行うことで Fe, Cu が最下層のサンプルにおいては保磁力 (Hc)が低減していることが確認できる.これは規則合金化に 熱酸化 Si 基板と金属薄膜との界面近傍原子が大きく寄与して いることを示唆している.しかし Pt が最下層のサンプルにお いては基板表面改質による磁気特性の変化は小さく、基板に よる寄与を受けにくいと考えられる.以上の結果より N_nの大 きさは熱酸化 Si 基板と界面を形成する金属薄膜に大きく依存 しており、磁気特性はエキシマ光による基板表面改質を行う ことにより変化していることから,熱酸化 Si 基板と金属薄膜 との界面近傍の原子が粒子の規則合金化に大きく寄与してい ると考えられる.



5.参考文献

- A. Itoh, Y. Itoh, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, "*IEICE technical report.* Magnetic recording.", 105 (167),13 (2005).
- 2) H. Zeng, M. L. Yan, N. Powers, and D. J. "Sellmyer: Appl Phys.Lett." 80, 2350, (2002).
- 3) A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame and K. Mizusawa, "J. Magn. Soc. Jpn.", 36, 62-65(2012).



Fig.1 Layer design of FeCuPt thin films.



Fig.2 Sequence of SEM images in (A) (B) (C) for different irradiation conditions.



Fig.3 Magnetization VS magnetic field in (A) (B) (C) measured with SQUID VSM at R.T..

急速昇降温熱処理による FePt 孤立微粒子形成の組成依存性

今里真之¹⁾、小笠原亜紀¹⁾、塚本新²⁾

日本大学大学院理工学研究科¹⁾、日本大学理工学部²⁾ Compositional dependency of Isolated FePt grains fabricated by RTA Masayuki Imazato¹⁾, Aki Ogasawara¹⁾, Arata Tsukamoto²⁾ Graduate School of Science and Technology Nihon University, Japan¹⁾

College of Science and Technology, Nihon University, Japan²⁾

はじめに

実験

磁気記録媒体の高密度化のためには磁性微粒子の微細化、高密度化が不可欠である。平坦な熱酸化 Si 基板上 に成膜した連続膜状の Pt / Fe 超薄膜に対して、急速昇降温熱処理(Rapid Thermal Annealing and Rapid Cooling Process :RTA)を施すことのみにより孤立した FePt 微粒子群を形成可能¹⁾であること、また形成される微粒子 径、形成密度は積層金属膜厚に依存すること²⁾を報告している。本報告では、積層膜厚を一定とし、成膜時 の組成比を変化させた金属超薄膜に対する急速昇降温熱処理により形成した Fe_x Pt_{100-x} 孤立微粒子の形成粒 サイズ、結晶構造の組成依存性について報告する。

DC マグネトロン法を用いて Pt_{100-x} / Fe_x (x = 50、55、5i7、63.7) 総積層金属膜厚 1.88 nm を熱酸化 Si 基板上に成膜し、 真空下にて約 90℃ / sec.の昇温速度にて昇温させ到達温度 約 600℃とし熱処理を行った。形成した FePt 孤立微粒子の 形状観察には走査型電子顕微鏡(Scanning Electron

Microscope :SEM)を用いた。結晶構造解析には X 線回折装 置 (X-Ray diffraction : XRD)を用いた。 Figure 1 に形成した 各組成における FePt 孤立微粒子群の表面 SEM 像を示し、 Table 1 に平均粒径(Da)、形成粒子密度(N_p)、粒径分散(S_tD) を示す。Figure 2 に各組成における XRD プロファイルを示 す。Table 1 より、x = 57 の組成比において、平均粒径が最 少、形成粒子密度が最大となる。また、Figure 2 より x = 50 において明瞭なピークは見られず、x = 55 において不規則 相を示す(111)ピークが観察されたが、L10構造化した微粒子 は存在しないと考えられる。また磁気ヒステリシス計測か らも高い磁気異方性を示す特性は得られなかった。一方、x =57、63.7において L10-FePt(001)、(002)の回折ピークが観察 されたことより、x = 55 と 57 の組成に L10 構造化した FePt 微粒子群の規則合金化する組成の境界が存在すると考えら れる。また、約4T以上の保磁力を示した。以上より、本 手法により形成される微粒子群は、組成比により大きくそ の形状、粒サイズ、規則合金化、結果として磁気異方性が 変化、相関を持つことが示唆された。

謝辞 本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構、 文部 科学省私立大学戦略的研究基盤支援事業(S1311020)の助 成により行ったものである。

参考文献

- 1)A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame and K. Mizusawa: J. Magn. Soc. Jpn. 36, 62-65(2012)..
- 2)J. Tsukioka, T. Ubana, A. Tsukamoto, and A. Itoh J. Magn. Soc. Jpn. Vol.38, No.3-2, pp.143-146 (2014).
 3)Watanabe, K., The Research Institute for Electric and Magnetic
- 3)Watanabe, K., The Research Institute for Electric and Magnetic Materials, Japan.Private Communication (1992).
- 4)Cabri, L., Feather. Can. Mineral. 13, 117 (1975)



Figure 1 SEM planer view of isolated Fe_xPt_{100-x} grains in various compositions.

Table 1 Average grain diameter(D_a), Standard deviation of diameter (S_tD), areal density of grains (N_p) for isolated Fe_xPt_{100-x} grains in various compositions.

Composition	Da	StD	N _p (T particle
Fe _x Pt _{100-x}	(nm)	(nm)	/ inch²)
Fe ₅₀ Pt ₅₀	22.4	5.13	0.24
Fe ₅₅ Pt ₄₅	19.6	2.86	0.24
Fe ₅₇ Pt ₄₃	14.3	2.25	0.76
Fee 7Pt 27 2	17.4	3.00	0.27



Figure 2 XRD profiles for isolated Fe_xPt_{100-x} grains in various compositions.