

## W/Fe/W (001)エピタキシャル 3 層膜の 巨大な負の垂直磁気異方性

松本勇輝<sup>1</sup>, 岡本聡<sup>1</sup>, 菊池伸明<sup>1</sup>, 北上修<sup>1</sup>, 三浦良雄<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東北大, <sup>2</sup>京都工芸繊維大)

Large negative magnetic anisotropy in epitaxial trilayer of W/Fe/W (001)  
Y. Matsumoto<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, O. Kitakami<sup>1</sup>, and Y. Miura<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tohoku Univ, <sup>2</sup>Kyoto Institute of Technology)

### はじめに

負の一軸異方性を発現する物質としては、これまでに CoIr 合金[1]や Fe/Co 多層膜[2]などが知られており、その値は $-0.8 \times 10^{-7}$  erg/cc (CoIr),  $-1 \times 10^{-7}$  erg/cc (Fe/Co)に達する。これらは垂直記録媒体の裏打ち層やスピントルク発振器のフリー層などへの応用が期待されている。本研究では新たな材料として、W/Fe/W(001)において大きな負の垂直磁気異方性が観測されたので報告する。

### 実験方法

分子線エピタキシー(MBE)によって、MgO sub./W (10)/Fe ( $t_{Fe}$ )/W (3)3 層膜を作製した。( )内は各層の膜厚(単位 nm)である。基板は MgO (001)とし、到達真空度は $3 \times 10^{-7}$  Pa 以下である。まず 800°Cで基板をフラッシング後、同温度に保ったまま W 下地を製膜、その後室温まで冷却後に Fe, W の製膜を順次行った。構造評価には RHEED および XRD, 磁気特性の評価には VSM および異常ホール効果(AHE)測定を行った。

### 実験結果

Fig.1に W/Fe/W3 層膜の RHEED 像を示す。解析の結果、以下の方角関係でエピタキシャル成長していることが確認出来た。

MgO (001)[100] || W (001)[110] || Fe (001)[110]  
|| W (001)[110]

なお、下地膜 W (10 nm)の RHEED 像では (2×2)の表面再構成が確認でき、また XRD においてはメインピークの周囲にフリンジ回折が確認でき、平滑かつ結晶性に優れた下地膜が得られているものと判断できる。格子歪として  $c/a$  を評価したところ、 $t_{Fe} \sim 1$  nm を境界にして緩和が生じており、 $t_{Fe} < 1$  nm では  $c/a \sim 0.96$  であった。Fig.2に垂直磁気異方性  $K_u$  の Fe 膜厚( $t_{Fe}$ ) 依存性を示す。 $t_{Fe}$  の減少に伴い、 $K_u$  が大きな負の値をとり、 $t_{Fe} = 0.5$  nm において $-2 \times 10^{-7}$  erg/cc (300K),  $-3.5 \times 10^{-7}$  erg/cc (10 K)であり、著者らの知る範囲では、これまでに報告されている中で最大の負の垂直磁気異方性が得られた。当日は第一原理計算の結果も併せて報告する。

### 参考文献

- 1) N. Kikuchi et al, J. Phys.: Condens. Matter **11** L485 (1999).
- 2) S. Okamoto et al, J. Magn. Soc. Jpn. **33**, 451 (2009).

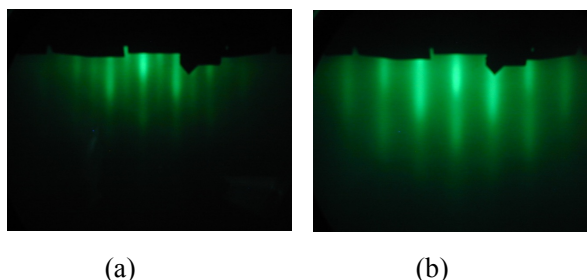


Fig. 1 RHEED patterns of MgO/W (a) and MgO/W/Fe (b). E-beam is parallel to MgO[110].

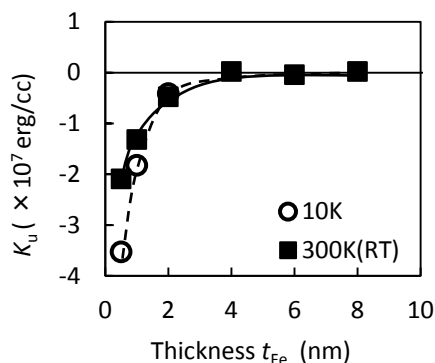


Fig. 2 Fe layer thickness ( $t_{Fe}$ ) dependence of perpendicular magnetic anisotropy  $K_u$  for W/Fe/W trilayer

## 結晶粒内で反強磁性的結合を有する CoCrPt グラニューラ 垂直磁気記録媒体の磁気特性と磁化反転機構

中山湧稀, 堀田明良, 島津武仁, 菊池伸明, 岡本 聡, 北上 修  
(東北大学)

Magnetic properties and magnetization reversal for CoCrPt granular perpendicular media consisting of anti-ferromagnetic coupling grains

Y. Nakayama, A. Hotta, N. Kikuchi, S. Okamoto, T. Shimatsu, and O. Kitakami  
(Tohoku University)

**はじめに** MAMR (Microwave Assisted Magnetic Recording) は, 将来の高密度磁気ハードディスクの有望な記録方式である. グラニューラ垂直磁気記録媒体では粒子間の静磁的な相互作用 (双極子相互作用) が磁化の反転磁界分散を引き起こす. そのため, 結晶粒内で磁化を反強磁性的に結合させることで双極子相互作用を低減させた媒体を MAMR 記録に用いて, 強磁性共鳴により再生する方法が検討されている<sup>1,2)</sup>. 反強磁性的な結合を取り入れた垂直媒体は熱安定性向上のために検討されたことがあるが<sup>3)</sup>, 従来の記録方式では再生出力が低下する等の理由から応用に至らなかった. 本研究では, 結晶粒内で反強磁性的結合を有する CoCrPt-TiO<sub>2</sub> グラニューラ垂直媒体を作成し, その磁化機構と MAMR へ向けた同媒体の課題を議論した.

**実験方法** CoCrPt-TiO<sub>2</sub> グラニューラ媒体は DC マグネトロンスパッタ法により焼結ターゲット用いて形成した. 薄膜は 2.5 インチディスクを 10mm 角にカットした基板の上に, Ru 下地膜を用いて室温で形成した. CoCrPt-TiO<sub>2</sub> 層内部に設けた Ru 層の厚みにより, 上下の CoCrPt の反強磁性的な磁化結合強さを調整した.

**結果および考察** Fig.1 は, CoCrPt(15 nm) 単層媒体, ならびに, 上から CoCrPt(3 nm)/Ru(0.7 nm)/CoCrPt(12 nm) の反強磁性結合媒体 (AFC 媒体) の磁化曲線と,  $\Delta M$  プロット<sup>4)</sup>の結果を示した. AFC 媒体の残留磁化は 360 emu/cm<sup>3</sup> と単層媒体の残留磁化の約 60% であり, AFC 媒体の上下層が反強磁性結合した際の見かけの磁化量に比例している. AFC 媒体の  $\Delta M$  プロットの最大値  $\Delta M^{\max}$  (190 emu/cm<sup>3</sup>) ならびに図中に示した反転磁界分散  $\Delta H$  (約 4.0 kOe) も, 見かけの磁化量に比例して単層媒体の約 60% に低下していた. このことは, 粒子分離度を始めとするグラニューラ構造を大きく変化させずに, 結晶粒内に AFC 構造が実現できていることを示唆している. Fig.2 には, 見かけの磁化量がゼロとなる CoCrPt(3 nm)/Ru(0.7 nm)/CoCrPt(3 nm) AFC 媒体の磁化曲線を示した. 残留磁化状態から磁界を増加させた際の磁化反転は非常にシャープになっており, 磁化の反転磁界分散が, 見かけの磁化量に比例して低下することを示している.

### 参考文献

- 1) T. Yang, T. H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, K. Mizushima and R. Sato, *J. Appl. Phys.*, **114**, 213901 (2013).
- 2) H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, K. Mizushima and R. Sato, *Nanotechnology*, **25**, 245501 (2014).
- 3) Erol Girt and H. J. Richter, *IEEE Trans Magn.*, **39**, 2306 (2003).
- 4) P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, R. W. Chantrell, *IEEE Trans. Magn.*, **25**, 3881 (1989),

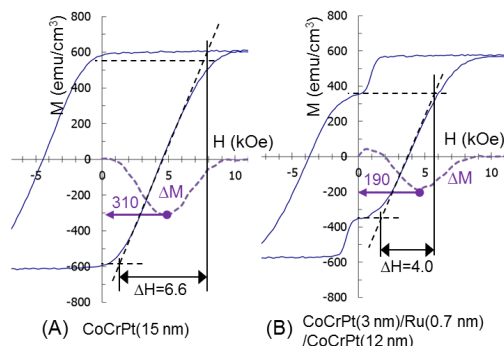


Fig.1 Magnetization curves for (A) single layer medium and (B) AFC medium.

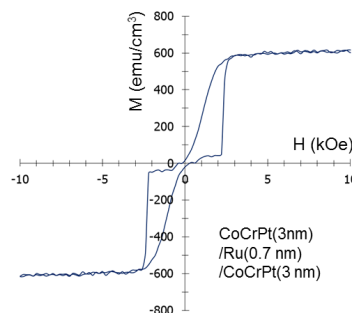


Fig.2 Magnetization curve for CoCrPt(3nm)/Ru(0.7nm)/CoCrPt(3nm) AFC medium.

# $L1_0$ -FePt 多結晶垂直磁化膜の Pt 表面偏析と規則度の Pt 組成依存性

堀田明良\*, 小野拓也\*\*\*, 島津武仁\*, 菊池伸明\*, 岡本 聡\*, 北上 修\*  
(\*東北大学, \*\*富士電機)

Pt surface segregation and ordering of  $L1_0$ -FePt perpendicularly magnetized polycrystalline films

A. Hotta\*, T. Ono\*\*\*, T. Shimatsu\*, N. Kikuchi\*, S. Okamoto\*, and O. Kitakami\*  
(\*Tohoku University, \*\*Fuji Electric Co., Ltd.)

**はじめに**  $L1_0$ -FePt は  $7 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> 程度の大きな一軸磁気異方性  $K_u$  を有し<sup>1,2)</sup>,  $L1_0$ -FePt グラニューラ垂直磁化膜は次世代磁気記録媒体の有力候補である。我々は、超清浄雰囲気中のスパッタ法を用いることで、成膜温度 300°C でも  $K_u = 3.5 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> を有する  $L1_0$ -FePt 多結晶膜が形成できることを報告している<sup>3)</sup>。しかし、MgO 基板に形成した単結晶膜では、膜厚を 2 nm まで低下させると規則度および  $K_u$  が低下しており<sup>4)</sup>、これは多結晶膜でも同様であった。 $L1_0$ -FePt の膜面垂直方向への規則化挙動に関する解析の結果、Pt の表面偏析現象が観察されたので、本研究では、 $L1_0$ -FePt 多結晶膜の Pt の表面偏析と規則度の Pt 組成依存性について議論した。

**実験方法** 試料は、超高真空性能を有するマグネトロンスパッタ装置を用いて形成した。FePt の組成は、RBS により分析した。多結晶垂直磁化膜は、2.5 インチガラスディスク上に、(001)配向した MgO 多結晶膜等の下地膜を形成し、その上にエピタキシャル成長させた。 $K_u$  は異常ホール効果を用いた磁化方位検出法を利用して磁気トルク法により求めた (最大印加磁界 7T)。

**結果及び考察** Fig.1 は、Cs(球面収差補正)-STEM で観察した  $L1_0$ -FePt 多結晶膜の HAADF 像である。膜の最表層において Pt が 2 層連続で形成されており、単結晶膜でも同様に観察された。このことは、NiPt 等の薄膜堆積過程で観察されている Pt の表面偏析<sup>5,6)</sup>が FePt 薄膜の堆積中にも生じており、膜面垂直方向に規則化を促す要因の一つになっていることを示唆している。Fig.2 には、膜厚 2nm および 10nm の FePt 多結晶膜における  $K_u$  の Pt 組成依存性を示した。いずれの膜厚でも  $K_u$  は 50at.% Pt において最大値を示し、46at.%Pt 組成を除き、膜厚 2 nm の  $K_u$  は 10 nm よりも低い。薄膜堆積初期から Pt 表面偏析が生じている場合、膜厚 2 nm の膜中 Pt 組成は設計組成よりも低下し、 $K_u$  が最大となる組成が高 Pt 側にシフトすると考えられるが、そのような結果は得られていない。このことから、薄膜堆積初期段階では Pt 表面偏析が生じず、膜厚 2 nm での規則度の低下に結びついているものと考えられる。一方、46at.%Pt 組成では、膜厚 2 nm の  $K_u$  は比較的高いものの、膜厚 10 nm になると  $K_u$  が低下した。構造解析の結果、膜厚の増加にともない膜面内方向のバリエーションが生じているためであり、低 Pt 組成域におけるバリエーションの形成は、厚い薄膜における先行検討の結果<sup>7)</sup>と定性的に一致した。

**参考文献** 1) R. F. C. Farrow, et al., *JAP*, **79**, 5967 (1996), 2) S.

Okamoto, et al., *PRB*, **66**, 024413 (2002), 3) T. Shimatsu, et al., *JAP*, **109**,

07B726 (2011), 4) A. Hotta, et al., *JAP*, **115**, 17B712 (2014), 5) Y.

Gauthier, et al., *PRB*, **31**, 6216(1985), 6) G. Treglia and B. Legrand, *PRB*,

**35**, 4338(1987), 7) K. Barmak, et al, *JAP*, **95**, 7501 (2004).

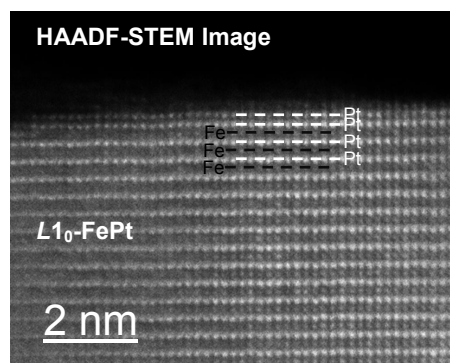


Fig.1 HAADF-STEM cross sectional image of  $L1_0$ -FePt polycrystalline film.

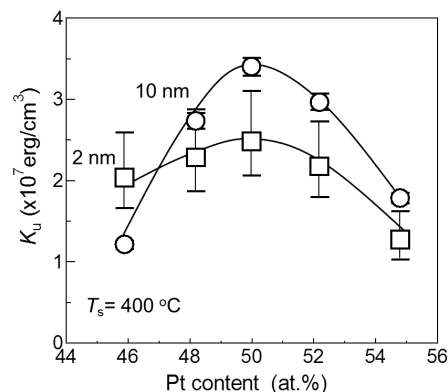


Fig.2  $K_u$  of  $L1_0$ -FePt polycrystalline film as a function of Pt content.

# 稠密面配向 CoPt 合金スパッタ薄膜の原子積層構造および一軸結晶磁気異方性 (I)

○斉藤伸, 野沢直樹, 日向慎太郎, 高橋研 (東北大学)

Atomic Layer Stacking Structure and Uniaxial Magnetocrystalline Anisotropy of CoPt Alloy Sputtered Films with Close-packed Plane Orientation (I)

S. Saito, N. Nozawa, S. Hinata, and M. Takahashi (Tohoku Univ.)

## 1. はじめに

次世代のエネルギーアシスト磁気記録媒体では、室温での高い熱擾乱耐性が求められ、 $10^7 \text{ erg/cm}^3$  を越える高い一軸結晶磁気異方性 ( $K_u$ ) を備えた材料の開発が必須である。我々は、六方晶 (hcp) Co-Pt 系合金を次世代媒体に適用することが、現行の成膜プロセスや結晶配向制御用下地材料についての知見を引き継げるため有益であると考え、本合金の稠密面配向薄膜の材料探索を続けている。Co-Pt 合金の結晶構造と磁性に関する研究の歴史は古いですが、スパッタ法により作製される薄膜では、新たな規則相や積層欠陥 (SFs) 等、平衡状態図に記載されない準安定構造が形成され、またそれらに対応する  $K_u$  は  $10^6 \sim 3 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  程度の様々な値が報告されており、未だ構造と  $K_u$  の体系的な理解に至っていない。一般に Co 基合金の  $K_u$  はスピン-軌道相互作用によってもたらされることが知られており、六方晶の格子定数比 ( $c/a$ ) や SFs, 異種原子の配列周期性により大きく影響を受けると考えられるため、スパッタ薄膜についてもこれらを定量的に評価する必要がある。

一方で我々は、稠密面配向薄膜中の SFs の導入度合いをインプレーン X 線回折装置により定量評価する解析法を確立しており、これを種々の非磁性遷移金属合金スパッタ薄膜 (host; Ru, Rh, Ir, Ni, Pd, Pt, Cu, Au Additional; Cr, Mo, W, Ta, Ti) について適用した結果、合金の平均価電子数 9 が hcp と面心立方構造 (fcc) との臨界であることを見出している。このような観点からも 9 族元素と 10 族元素との合金である強磁性 Co-Pt 合金薄膜中の SFs の導入量には興味を持たれる。そこで本講演では、種々のプロセス条件にて作製した  $c$  面配向 CoPt 合金薄膜の原子積層構造を評価した結果を説明する。

## 2. 実験結果

Fig. 1 および Fig. 2 に種々の基板温度  $T_{\text{sub}}$  にて作製した hcp  $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  薄膜の SFs の導入度合い  $P_{\text{fcc}}$  と格子定数比  $c/a$  を Pt 濃度  $x$  に対して示す。横軸副軸には合金の平均価電子数も付した。Fig. 1 によると  $T_{\text{sub}} \geq 300^\circ\text{C}$  では、 $P_{\text{fcc}}$  は純 Co 薄膜の 0.7% 程度から  $\text{Co}_{50}\text{Pt}_{50}$  薄膜の 100% に向け  $x$  に対して単調に増加している。Fig. 2 によると、 $c/a$  は  $T_{\text{sub}}$  に依らず  $x < 50 \text{ at}\%$  では剛体球モデルの理論値 1.633 より小さく、 $x = 50 \text{ at}\%$  付近でほぼ 1.633 となっている。すなわち Co-Pt 合金薄膜は、hcp-fcc の共有結合をもたらす混成軌道の安定性が拮抗している材料系であり、その原子積層構造は  $T_{\text{sub}} \geq 300^\circ\text{C}$  では、概して平均価電子数に対応して、軸比と SFs 導入度合いとが決定づけられていることがわかった。

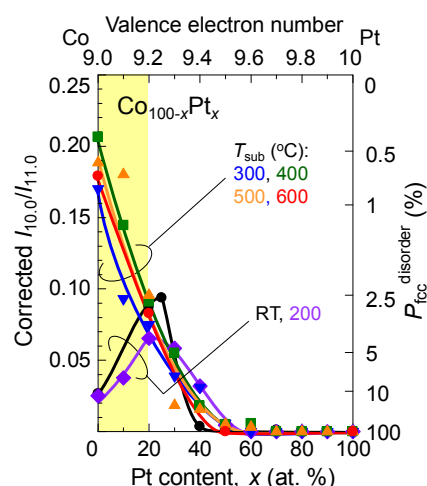


Fig. 1 Integral intensity ratio of  $I_{10.0}$  to  $I_{11.0}$  in in-plane XRD corrected by Lorentz and polarization factors for  $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  sputtered films. The second vertical axis corresponds to fcc-like stacking faults probability.

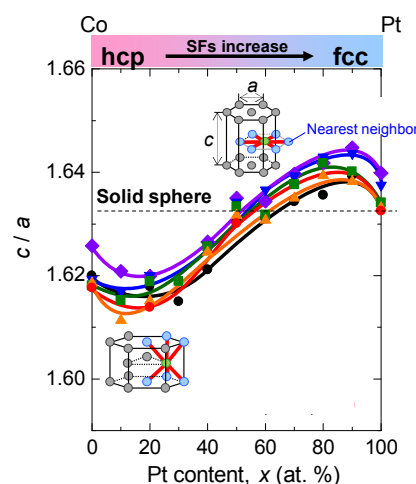


Fig. 2 Lattice constant ratio,  $c/a$  for  $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  sputtered films. The theoretical value of  $c/a$  (1.633) for solid sphere model is also shown by a broken line.



# 稠密面配向 CoPt 合金スパッタ薄膜の原子積層構造および一軸結晶磁気異方性 (II)

○齊藤伸, 野沢直樹, 日向慎太郎, 高橋研, 澁谷一成\*, 星野和哉\*, 栗屋聡\*  
(東北大学, \*材料科学技術振興財団)

## Atomic Layer Stacking Structure and Uniaxial Magnetocrystalline Anisotropy of CoPt Alloy Sputtered Films with Close-packed Plane Orientation (II)

S. Saito, N. Nozawa, S. Hinata, M. Takahashi, K. Shibuya\*, K. Hoshino\* and S. Awaya\* (Tohoku Univ., MST)

### 1. はじめに

高い一軸結晶磁気異方性 ( $K_u$ ) を備えた材料開発の一つの指針として, 規則相の探索が有望視されている. 稠密面配向 Co-Pt 合金スパッタ薄膜においては, 平衡状態では形成されないスパッタ膜特有の構造として  $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}$  組成近傍で  $m\text{-D0}_{19}$  型構造,  $\text{Co}_{50}\text{Pt}_{50}$  組成近傍で  $L1_1$  型構造の存在が超格子回折線の観測を根拠として報告されている. しかしながらこれらの実験報告によると試料の規則度は大きくても 0.6 程度であり, 各サイトの原子まで特定した構造解析は行われていない. 著者らは稠密面配向 Co-Pt 合金薄膜では, 膜面と平行に積層欠陥が導入されやすいこと, すなわち fcc 原子積層と hcp 原子積層との形成安定性が拮抗していることを別途見出ししており, そのような合金系でも規則相が存在するのか興味を持たれる. 本研究では, 超格子回折線が観測される Co-Pt 合金スパッタ薄膜に形成される原子積層構造について, プローブ径  $1\text{\AA}$  以下の走査型透過電子顕微鏡の高角散乱環状暗視野法 (HAADF 法) にて直接評価したので報告する.

### 2. 実験結果

Fig. 1 に基板温度  $400^\circ\text{C}$  で作製した  $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  薄膜の out-of-plane X 線回折プロファイルを示す. 純 Co 薄膜において  $44.5^\circ$  付近に観測された hcp (00.2) 回折線は  $x$  の増加に伴い, 純 Pt 薄膜で  $39.8^\circ$  付近に観測される fcc (111) 回折線へと滑らかに低角側にシフトしている. これを基礎線とすると,  $10 \leq x \text{ (at\%)} \leq 50$  の薄膜では基礎線の 2 倍の面間隔に相当するブラッグ角に超格子線が観測されていることがわかる. この超格子線に注目すると, 積分強度が  $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$  薄膜で最大となっていること, 並びに  $x \geq 20 \text{ at\%}$  ではブロードニングを起こしていることが特筆される.

Fig. 2 に  $T_{\text{sub}} = 300^\circ\text{C}$  で作製した  $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$  薄膜の断面方向の HAADF 像を示す. 各結像点は奥行き方向に連なる原子群に対応する. 結像点の位置関係に注目すると, ほぼ hcp 原子積層していることがわかる. またコントラストに着目すると, 明点と暗点は概して層状かつ交互に配列しており, 同一原子層内では結像点にコントラストがついていない. これらのことから本薄膜では, 原子稠密面内では Pt と Co がランダムにサイトを占めており, 膜厚方向には Pt リッチ, Pt プア層が交互積層された原子層組成変調構造が形成されていることがわかった. この CoPt 合金スパッタ薄膜中にみられる原子層組成変調構造は, 最隣接原子が上下の稠密面内に存在すること (交互積層), Co-Pt 原子対を可能な限り多く形成すること (層状配列) という配列原理により形成されたものと推察している.

講演では, 積層欠陥の導入度合い, 並びに組成変調度合いに対する  $K_u$  の変化について, 結晶磁気異方性の高次項の発現についても触れながら説明する.

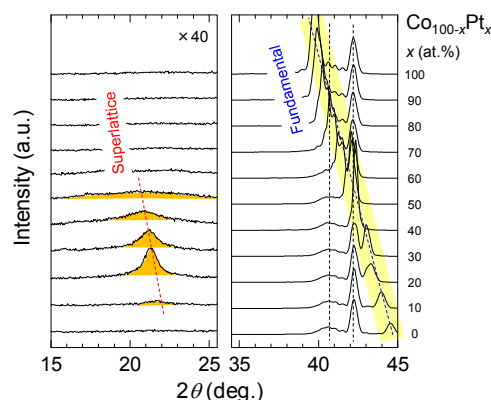


Fig. 1 Out-of-plane XRD for  $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  sputtered films with  $(00.2)_{\text{hcp}}$  and/or  $(111)_{\text{fcc}}$  sheet texture sputtered under  $T_{\text{sub}} = 400^\circ\text{C}$ .

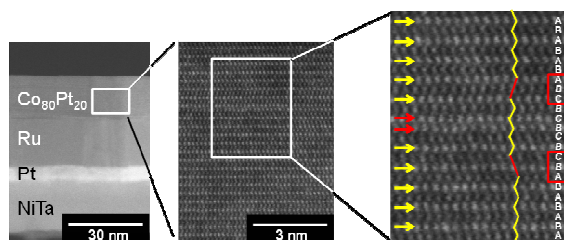


Fig. 2 HAADF image for a  $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$  sputtered film fabricated under  $T_{\text{sub}} = 300^\circ\text{C}$ .

## 原子層積層制御した Ni / Co 人工格子の磁気特性

塩田明弘、島田淳平、関剛斎、高梨弘毅

(東北大金研)

Magnetic property of Ni / Co multilayers prepared by atomic layer control

A. Shioda, J. Shimada, T. Seki, and K. Takanashi

(IMR, Tohoku Univ.)

**はじめに** 磁気記録媒体や磁気記憶メモリなどの高密度化には、ナノサイズでの磁化の熱安定性を確保するために、高い一軸磁気異方性( $K_u$ )を有する材料が必要となる。FePt や FePd などの  $L1_0$  型規則合金は高  $K_u$  材料の代表格であるが、Pt 等の貴金属が含まれるため高価であることが問題となっている。これまで、Co-Fe 系[1]、Fe-Ni 系[2]において規則構造の形成による一軸磁気異方性の増大が検討されてきた。一方で、Ni-Co 系では、多層膜における垂直磁気異方性の発現は多く報告されているものの[3]-[5]、規則構造を形成させる試みは少ない。そこで本研究では、貴金属や希土類元素を含まない材料系として Ni-Co 合金に着目する。Ni および Co 層厚を原子層レベルで制御し、Ni / Co 人工格子において各層厚と磁気特性との相関を系統的に調べた。

**実験方法** 分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて、サファイア基板 a 面上に V(110) を 10 nm、Au(111) を 10 nm 成長した後に、Ni 層と Co 層を交互に積層させて人工格子を作製した。本研究では、およそ 0.20 nm が一原子層に相当すると計算した。X 線回折により構造解析を行い、原子間力顕微鏡で表面形態を評価した。磁気特性の評価には極カー効果および振動試料型磁束計を用いた。

**実験結果** 図 1 に、(a)[Ni(0.6 nm) / Co(0.2 nm)]<sub>10</sub> 膜と (b)[Ni(0.2 nm) / Co(0.2 nm)]<sub>20</sub> 膜の磁化曲線をそれぞれ示す。いずれも膜面垂直磁場を印加した磁化曲線の角形性が高く、垂直磁化膜となっている。 $K_u$  の値は、それぞれ  $8.4 \times 10^6$  (erg / cc) および  $6.8 \times 10^6$  (erg / cc) であり、Ni 膜厚の減少に伴い  $K_u$  は減少することが分かった。しかしながら、一原子層レベルで交互積層させた試料においても、垂直磁化が得られたということは、各層が平坦に成長しており、原子層積層制御の効果が現れていることを示唆している。発表では、界面磁気異方性の大きさについても議論する予定である。

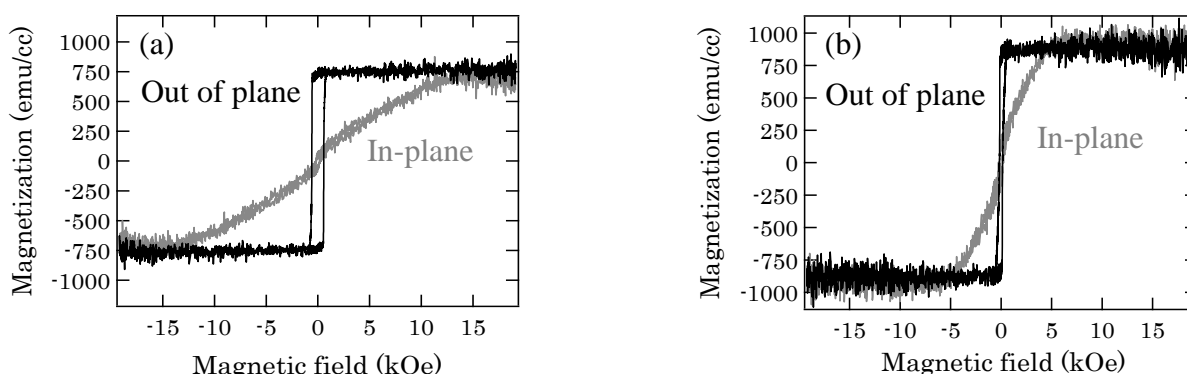


Fig. 1. Magnetization curves of (a) [Ni(0.6nm) / Co(0.2nm)]<sub>10</sub> and (b) [Ni(0.2nm) / Co(0.2nm)]<sub>20</sub>.

**謝辞** 本研究は、科研費 基盤研究(S) (No. 25220910)による支援を受けて行われた。

- 参考文献** [1] T. Burkert *et al.* PRL **93**, 027203 (2004) [2] T. Kojima *et al.* JJAP **51**, 062601 (2012).  
 [3] G. H. O. Daalderop *et al.* PRL **68**, 682-685 (1992) [4] S. Girod *et al.* APL **94**, 262504 (2009)  
 [5] S. Fukami *et al.* APEX **6**, 073010 (2013)