

MgO(001)基板上に成長させた Rh / FeCo 膜の磁気特性

大宮裕之, [○]吉田真司, 王博羽中, 金谷峻介, 高橋海里, 荒川明, 長谷川崇, 斉藤伸*, 石尾俊二
(秋田大工資, *東北大学)

Magnetic properties of Rh/FeCo film grown on MgO(001) substrate

H. Omiya, S. Yoshida, B. Wang, S. Kanatani, K. Takahashi, A. Arakawa, T. Hasegawa, S. Saito*, S. Ishio
(Akita Univ. *Tohoku Univ.)

はじめに

第1原理計算によると $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ は $x=0.5\sim 0.6$ の場合に, 軸比(c/a)が 1.22~1.25 を取ると $1.0 \times 10^8 \text{ erg/cm}^3$ の高結晶磁気異方性(K_u)を発現すると報告されており¹⁻²⁾, 高 K_u と高 M_s を兼ね備えた材料として期待されている. 実験では, 適当なバッファ層を用いたエピタキシャル成長によって FeCo に正方晶歪が導入できれば, 垂直磁気異方性が誘起されるという報告がある³⁾. 本研究ではバッファ層として Rh を用いて, FeCo 結晶に誘起される結晶磁気異方性(K_u)を評価した. 今回は K_u の組成依存性と膜厚依存性に焦点をあてて検討していく.

実験方法

マグネトロンスパッタリング法により, 基板温度 400°C として, MgO(001)基板上に(001)配向した Rh を成膜した. その後, 基板温度を 200°C として, FeCo を成膜し, 最後に Ru を保護膜として成膜した. 磁気特性評価には極カー効果測定装置, 構造評価には X線回折装置, 結晶磁気異方性(K_u)の算出には磁気トルクを用いた.

実験結果

Fig.1 は, MgO(001)sub. / Rh(20 nm) / $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ (1.5 nm) ($x=0, 0.2, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1$) / Ru(2nm)の室温での極カー効果の測定結果を示している. 磁化曲線には明瞭な変化が現れ, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ の組成が $x=0.4\sim 0.6$ で垂直磁気異方性を発現し, Fe もしくは Co の増加とともに垂直磁気異方性は消失する. Fig.2 では, 磁気トルクの組成依存性を示している. トルク曲線は, ほぼ 2θ 成分のみであり, 従って $L_{2\theta}$ はほぼ K_{u1} に対応している. 磁気トルクの値は Co の濃度を増加させるにつれて大きくなり, $x=0.5$ 付近で最大値となり, $x=0.6$ 以上では減少する. この結果は第1原理計算の結果と傾向が良く一致している. 最も磁気トルクの値が大きかった $x=0.5$ に着目し, 上記と同じ膜構造で FeCo の膜厚を 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 5.0 nm と変化させた. K_{u1} の値は, 膜厚の増加とともに減少し 2.5~3.0 nm 付近で負に転ずる.

学会時には, FeCo 中の正方晶歪に誘起された一軸磁気異方性及び Rh による界面効果, 更に第3元素添加の効果についても報告する.

参考文献

- 1) T. Burkert *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 027203 (2004)
- 2) Y. Kota, A. Sakuma, *J.magn.Soc.Jpn.* **37**, 17-23 (2013)
- 3) F. Yildiz *et al.*, *Phys. Rev. B* **80**, 064415 (2009)

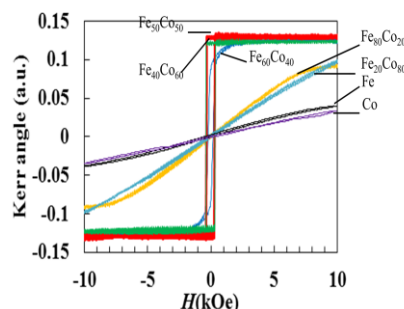


Fig.1 Polar Kerr loops of $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ films.

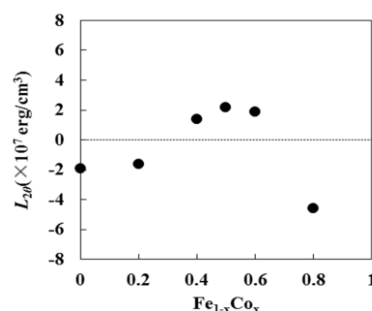


Fig.2 Composition dependence of $L_{2\theta}$ for $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ films.

FePt/FeCo 二層膜の結晶構造並びに表面・界面異方性

王 博羽中, 大宮 裕之, 吉田 真司, 荒川 明, 佐々木 博美, 佐久間 昭正*, 石尾 俊二
(秋田大工資, 東北大学*)

Crystalline structure and surface/bulk magnetic anisotropy in FePt/FeCo bilayer films

B. Wang, H. Oomiya, S. Yoshida, A. Arakawa, H. Sasaki, A. Sakuma, S. Ishio
(Akita Univ., Tohoku Univ.)

はじめに: FePt は 10^7 erg/cm^3 を超える大きな一軸磁気異方性を示す。bcc FeCo は磁性材料の中で、最も大きな飽和磁化を有す金属磁性材料であり、更に正方晶歪 ($c/a \sim 1.2$) を付加することによって、FePt と同レベルの一軸磁気異方性 K_u が誘起されることが第 1 原理計算並びにいくつかの実験によって報告されている。これらより FePt と FeCo に複合材料は、FeNdB のエネルギー積を越える永久磁石材料、あるいは現在盛んに研究されている二次元記録、熱アシスト記録、パターン記録等に対応可能な次世代 FePt 系メディアとなる可能性がある。本研究では、FePt/FeCo 二層膜の磁気相図、FePt および FeCo 各層の磁気異方性の定量的評価を行い、次いで FePt/FeCo 二層膜の結晶構造との対応および第 1 原理計算結果との比較を行なったので報告する。

実験方法: Fe₆₀Pt₄₀/Fe_{1-x}Co_x (t nm) 薄膜 ($0 \leq x \leq 1; 0 \leq t \leq 10$) は、 10^{-6} Pa の超高真空中で MgO (001) 基板上に製膜した。まず、FePt 層 (10 nm) を製膜後 640 °C でアニールを行い、その後 200 °C に冷却して FeCo $t_{\text{FeCo}} = 0 \sim 10$ nm を製膜した。磁気異方性は、磁化曲線の解析ならびにトルクメータを用いた。磁化曲線の解析では、磁気エネルギー F を次式の一次元モデルで与え、印加磁場の増減に伴う FePt、FeCo 各成分の磁化の安定方向の変化から磁化曲線を算出し、膜面および垂直方向の磁化曲線測定結果とのフィッティングにより膜の一軸磁気異方性 $K_u(\text{FePt})$ 、 $K_u(\text{FeCo})$ を求めた。なおここで F は、以下の通りである。

$$F = \sum_i \{ -M_i H \cos(h - \varphi_i) + (K_u - 2\pi M_i^2) \sin^2 \varphi_i \} V_i + \sum_i J_{i,i+1} \cos(\varphi_i - \varphi_{i+1}) / t$$

ここで、 i は磁性層の番号、 h 、 φ_i は磁場及び磁化が c 軸となす角度である。

実験結果: Fig1 は、FePt、FeCo の各層の磁気異方性である。FeCo 膜厚が 1 nm 以下のときは FeCo も FePt 同程度の K_u を保持しており、両者の分離は困難である。次いで FeCo の K_u は次第に減少するが、膜厚が 2 nm でも正の値を有している。更に 2 nm 以上になると、 K_u はゼロもしくは負の値に転ずる。断面 TEM 観察および X 線観察の結果によれば、FePt 上に製膜した FeCo では、初期層として FePt (001) 面に整合した fcc 相が形成され、その後格子緩和を起し bcc 格子へと変化し c/a は 1 に近づく。また第 1 原理計算の結果から、FeCo 中に生じる FePt 層との界面効果は、およそ 1 nm 程度で消失すると考えられる。即ち、膜厚が 2 nm のときの磁気異方性はほぼバルク効果と考えられる。そこで、FeCo 膜厚が 2 nm の時の FeCo 依存性を Fig2 に示した。図のように K_u の組成依存性は、FeCo が正方晶歪を有する場合の第 1 原理計算の傾向とよく一致している。結晶構造と磁気異方性の実験結果を合わせ、膜厚 2 nm 程度の FeCo 膜の磁気異方性は、正方晶歪によるものと考えられる。

以上をまとめると、膜厚 1 nm 以下の fcc 初期層では、FePt との界面効果と正方晶歪の両者により磁気異方性が誘起され、1 nm 以上では正方晶歪が一軸磁気異方性を誘起していると考えられる。更に膜厚を増加すると正方歪が緩和され、磁気異方性も消失する。

本研究は JST 産学共創基礎基盤研究プログラム「次世代磁石」による支援うけて行われたものである。

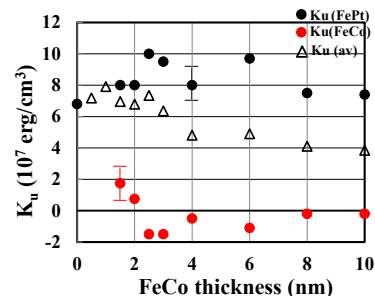


Fig.1 Thickness dependence of uniaxial anisotropy K_u of FePt and FeCo in the FePt/FeCo bilayer.

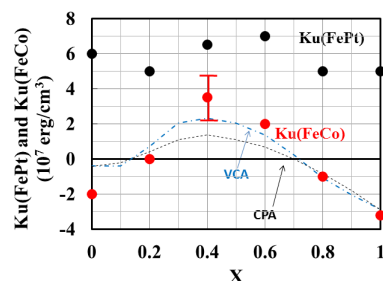


Fig.2 Composition dependence of uniaxial anisotropy K_u of Fe_{1-x}Co_x in the FePt/FeCo bilayer.

$L1_0$ FePt-M(M=Mn,Rh)薄膜の磁気相転移温度に対する格子歪効果

木村詩織, 山田紘己, 長谷川崇, 荒川明, 石尾俊二
(秋田大工資)

Effect of lattice distortion on magnetic phase transition on $L1_0$ FePt-M(M=Mn,Rh) thin film
S. Kimura, H. Yamada, T. Hasegawa, A. Arakawa, S. Ishio
(Akita Univ.)

はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金薄膜は, [001]方向 (c 軸方向) に $7.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ の大きな K_u を有する. FePt の各サイトに Rh などの第三元素を置換すると, 室温において強磁性 (FM) -反強磁性 (AF) 相変化することが知られている¹⁾. $L1_0$ 型 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ 薄膜の $0 \leq x \leq 0.30$ の組成における各 T_c の値が報告されているが²⁾, $x > 0.30$ 以降の詳細なデータが取られておらず, 各組成に対する詳細な相転移温度を求める系統的な実験は極めて少ない. また, 第一原理計算により $L1_0$ 型 FePt 規則合金の c/a の減少に伴い, T_c も減少するという計算結果が報告されている³⁾. しかしながら, c/a と相転移温度の相関を実験的に研究した報告はまだなされていない. そこで本研究では, 異なる基板を用いて歪を導入し, $L1_0$ 型 $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ および $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ 薄膜における磁化温度変化と磁気相転移温度を調査し, c/a と相転移温度との相関を考察する.

実験方法

熱酸化 Si 基板と MgO 基板の二つの異なる基板を用いて, 各試料に歪を導入した. 成膜はマグネトロンスパッタリング装置を用い, 室温で熱酸化 Si 基板上に膜厚 6.12 nm の $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ および $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ と SiO_2 (10 vol.%) を同時成膜した. SiO_2 (10 vol.%) は c 軸の配向制御のための添加剤であり, これにより引張歪が導入されることが分かっている⁴⁾. また, MgO 基板には $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ および $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ を成膜した. 次いで各基板の試料を急速加熱処理装置を用いて, 昇温速度 $300 \text{ }^\circ\text{C/s}$, 熱処理温度 $700 \text{ }^\circ\text{C}$, 保持時間 10 分間の熱処理を行った. 組成比 (x) は Pt と Rh または Fe と Mn の膜厚比を変えることで制御した. 結晶構造の評価には X 線回折装置, 磁気特性の評価には振動試料型磁力計及び超電導量子干渉素子を用いた.

実験結果

Fig. 1 は, 熱処理後の $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ 薄膜の Rh 置換濃度 x に対する相転移温度を示している. SiO_2 基板上に成膜した薄膜は MgO 基板上に成膜した薄膜よりも相転移温度が上昇する傾向を示している. Fig. 2 は, Fig. 1 のデータを c/a で整理したものである. 同組成で見た場合, T_c は c/a の減少に依存して上昇している. この傾向は, 先行研究³⁾の計算結果とは逆の傾向となっている. キュリー温度 T_c に関しては, ここには示していないが, a 軸のみが縮小した場合には, それに伴い T_c は低下した. これは $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ とは逆の傾向となった. 一方 c 軸の変化に対しては, $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ 及び $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ のいずれも相関を示さなかった. また, AF-FM 相転移温度 T_0 に関しては, ここには示していないが, c 軸の減少に対し, $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ においては T_0 は低下し, 反対に $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$ においては T_0 は上昇した. これらの違いは歪導入に伴う電子構造の変化に起因するものと考えられるが, 現状では歪の差が僅かであるため, 今後は基板を工夫し歪量をさらに増加させた実験を行う.

1) T. Hasegawa *et al.*, *Acta Materialia* **56**, 1566 (2008). 2) D. B. Xu *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B747 (2011). 3) X. B. Liu *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B762 (2011). 4) T. Narisawa *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 033918 (2011)

本研究は NEDO 若手グラント(11B0700d)の助成を受けて行われた.

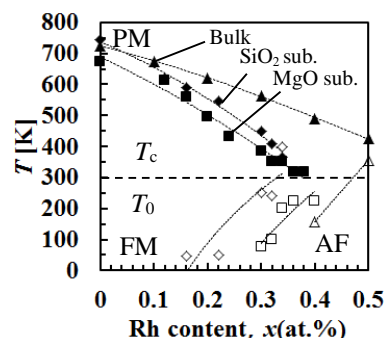


Fig.1 Rh composition (x) dependence of phase transition temperatures of $L1_0$ $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ films.

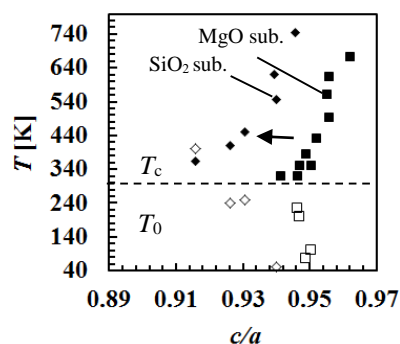


Fig.2 c/a dependence of T_c of $L1_0$ $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$ films.

Fe/Co 人工格子による FeCo 膜の作製と磁気特性

新宅 一彦、藤島 周*、石尾 俊二*
(秋田県産業技術センター、*秋田大工資)

Preparation and magnetic properties of FeCo films by using Fe/Co superlattices

K. Shintaku, S. Fujishima*, S. Ishio*
(Akita Industrial Technology Center, *Akita Univ.)

はじめに

NdFeB 磁石が開発されてから 30 年が経過し、その間に新磁石の探索が長年試みられてきたが、これを越えるものは見つかっておらず、次世代磁石の開発が強く望まれている。また、磁石性能に加えて資源的な観点からも既存磁石の飛躍的特性改善や新磁石の開発が必要とされている。L₂₀FeCo は NdFeB に比べて磁気異方性や飽和磁化が約 50% 大きいと予測されている¹⁾²⁾。また、FeCo/Pt 多層膜において、理論値前後の大きな歪みを生じたとの報告もある³⁾。下地膜とのエピタキシャルにより、FeCo に結晶歪みを導入し、磁気特性との関係を調べた。

試料作製

試料は、MgO(100)単結晶基板上に、Ar ガス雰囲気中で dc マグネトロンスパッタ法により作製した。到達真空度は $1\sim 3\times 10^{-7}$ Pa であった。作製された膜の構造は Cu-K α 線を用いた X 線回折 (XRD) により調べた。磁化曲線は試料振動型磁力計 (VSM) と極カー効果磁束計で測定した。

結果と考察

IrMn/Pt 下地膜上に作製された各層が単原子層程度の Fe/Co 人工格子膜は、XRD 測定により、単結晶的なエピタキシャル FeCo 膜が得られ、結晶方位関係は、膜垂直方向が MgO(100)/fcc-Pt(100)/bct-FeCo(100)、膜面内方向が MgO(100)/fcc-Pt(100)/bct-FeCo(110)であることが確認された (図 1)。下地膜とのエピタキシャル関係と人工格子の手法を用いることにより、低温での作製が可能となり、界面での拡散を抑制しながら、原子層レベルでの結晶配向や組成が制御された高品質な FeCo 膜が得ることが可能となった。正方晶歪みの大きさ c/a は、膜厚が薄くなると大きくなり、5nm で 3~4%程度、3nm 以下では 5~8%程度である。磁化測定からは、保磁力が数 Oe 程度の面内軟磁性膜になっている。大きな異方性を出すためには、理論値に近い 20% 以上の歪みを与えることが重要と思われる。大きな歪みを得るために、下地膜の改良や添加元素などの検討を行った。別に報告する多層膜とともに、膜厚が薄い (1nm) ところでは大きな磁気異方性の兆候があり、さらに大きな歪みを与える製膜条件、材料の探索を進行中である。格子歪みや組成依存性などの L₂₀型 FeCo 合金の基本特性を探索することは、材料設計の指針となる理論計算との整合性を検討する上でも極めて重要である。また、第 3 元素の可能性など、新規な材料を探索するモデル物質としての役割を担うことが期待され、応用的な観点からも重要であると考えられる。

謝辞

本研究の一部は JST 研究成果展開事業 (産学共創基礎基盤研究プログラム) の援助を受けたものである。

参考文献

- 1) T. Burkert, L. Nordstrom, O. Eriksson, and O. Heinonen, Phys. Rev. Lett., 93, 027203 (2004).
- 2) Y. Koda, and A. Sakuma, J. magn. Soc. Jpn., 37, 17-23 (2013).
- 3) G. Andersson et al., Phys. Rev. Lett., 96, 037205 (2006).

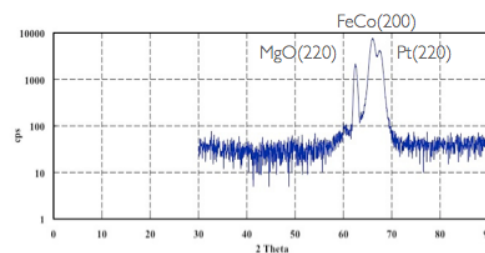
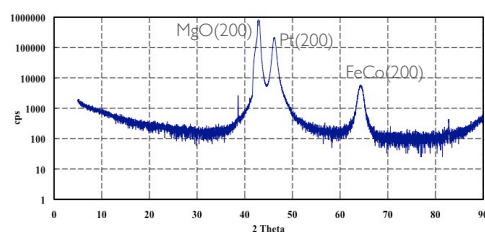


図 1 エピタキシャル FeCo (11nm) 膜の XRD パターン。(上) 面直、(下) 面内。

[FeCo/Pt]多層膜の正方晶歪みと磁気異方性

藤島周, 新宅一彦*, 石尾俊二

(秋田大工資, *秋田県産業技術センター)

Tetragonal distortion and magnetic anisotropy of [FeCo/Pt] multilayer films

S.Fujishima, K.Shintaku, S.Ishio

(Akita Univ., *Akita Industrial Technology Center)

はじめに

次世代永久磁石や情報記録媒体の向上には、高結晶磁気異方性(K_u)、高飽和磁化(M_s)を兼ね備えた新材料の開発が必要不可欠である。T. Burkert¹⁾、G. Andersson²⁾、Y. Kota、A. Sakuma³⁾らの第一原理計算によれば、 $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ におけるCoの組成が0.5-0.6、軸比(c/a)が1.2-1.25の値を取ったとき 10^7erg/cm^3 をはるかに超える K_u を誘起することができると予想される。また、[FeCo/Pt]多層膜において、 $c/a=1.2-1.3$ の大きな歪みが生じ、一軸磁気異方性が発現されるとの実験結果が報告されている²⁾。本研究では先行研究の結果を検証するとともに、発現する磁気異方性を定量的に評価することを目的とする。

実験方法

成膜には超高真空多元スパッタ装置(到達真空度 $1-3 \times 10^{-7}$ Pa)を用いた。MgO(001)単結晶基板を 600°C で加熱し、1時間保持した。次に、基板温度を 330°C に下げバッファ層としてIrMn、Ptの順に成膜した。その後、基板温度を 200°C に保持し、FeCoとPtを交互に20層成膜した。磁気特性評価には振動試料型磁力計(VSM)、構造評価にはX線回折装置(XRD)を用いた。

実験結果

FeCoとPtのミスフィットから c/a の値は数%増加していると考えられる。しかし、XRD測定から out of plane, in-planeともにFeCoピークは観測することができず歪みの算出は困難であった。ただし、別途報告する同様の成膜条件で作製したPtバッファ層上のFeCo単層膜での c/a の増加は10%以下であった。Fig. 1(a)、(b)、(c)はFeCoの膜厚を変化させたVSMの測定結果である。FeCoの膜厚が 0.84 nm (6 ML)のとき磁化曲線は面内方向を向いているが、 0.56 nm (4 ML)を境に磁化曲線が等方的になっている。このことから、FeCoの膜厚が薄ければ垂直磁気異方性が增大していると考えられる。また、本報告ではFeCoの組成依存性、多層膜におけるPt膜厚依存性、成膜温度依存性、ガス圧依存性など実験もっており、詳細は当日発表する予定である。

謝辞

本研究の一部はJST研究成果展開事業(産学共創基礎基盤研究プログラム)の援助を受けたものである。

参考文献

- 1) T. Burkert et al., *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 027203(2004)
- 2) G. Andersson et al., *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 037205(2006)
- 3) Y. Kota, A. Sakuma, *Jmag. Soc. Jpn.* **37**, 17-23(2013)

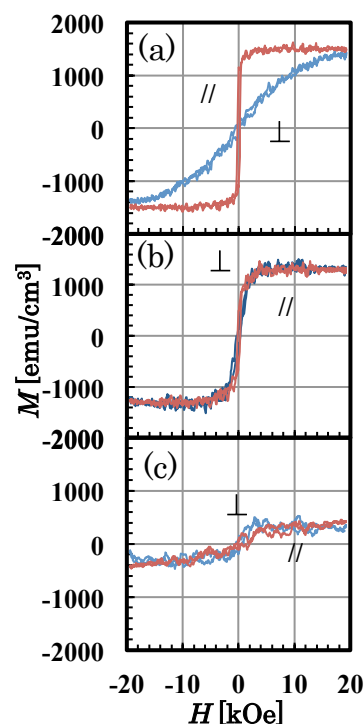


Fig. 1 M-H curves of
 (a) [FeCo(0.84 nm)/Pt(3.12 nm)]₂₀
 (b) [FeCo(0.56 nm)/Pt(3.12 nm)]₂₀
 (c) [FeCo(0.28 nm)/Pt(3.12 nm)]₂₀