## 傾斜配向磁性膜の本質的な一軸異方性の定量解析

# Quantitative analysis of intrinsic uniaxial anisotropy of tilt-oriented magnetic film

宮崎 大輝<sup>a, b)†</sup>・齊藤 伸<sup>b)</sup>・本多 直樹<sup>a)</sup>・田河 育也<sup>a)</sup> <sup>a)</sup>東北工業大学工学部,宮城県仙台市太白区八木山香澄町 35-1 (〒982-8577) <sup>b)</sup>東北大学大学院工学研究科,仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05 (〒980-8579)

Daiki Miyazaki <sup>a, b)†</sup>, Shin Saito <sup>b)</sup>, Naoki Honda <sup>a)</sup>, and Ikuya Tagawa <sup>a)</sup> <sup>a)</sup>Tohoku Institute of Technology, 35-1 Yagiyamakasumi-cho, Taihaku-ku, Sendai 982-8577, Japan <sup>b)</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku University, 6-6-05 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

The tilt angle of the crystal orientation axis was quantitatively evaluated for tilt-oriented magnetic film, and a method for separating the effective crystal magnetic anisotropy energy  $K_{u}^{eff}$  of the film from the intrinsic crystal magnetic anisotropy energy  $K_{u}^{\text{grain}}$  of magnetic crystal particles was investigated. As a measurement sample, a Co/Pt multilayer magnetic film was formed on an underlayer composed of Ta and Pt by sputtering with a cylindrical collimator at an inclined incident angle of 60 deg. To quantitatively evaluate the crystal inclination angle, a rocking curve was measured with a three-dimensional polar-coordinate X-ray diffraction system, and in addition, the angle dependence of the magnetic switching field  $H_{sw}$  was measured with a Polar-Kerr system. It was also shown that both  $K_{u}^{eff}$  and  $K_{u}^{\text{grain}}$  can be separated quantitatively even in tilt-oriented magnetic films by correcting the inclination angle of the crystal orientation axis, the larger the difference from the case without correction. Therefore, the derived equation becomes more effective as the inclination angle of the crystal axis gets larger.

**Key words:** tilt-oriented magnetic film, tilt angle of crystal orientation axis, effective crystal magnetic anisotropy energy, essential crystal magnetic anisotropy energy

#### 1. はじめに

磁気記録には、高信号品質、高熱擾乱耐性、および、書き 込み容易性のすべてを同時に実現することが難しいという問題 があり、トリレンマとして知られている。その解消には書き込み容 易性の確保が必須であるが、これを改善する一つの方法として 傾斜配向磁性膜が提案されている<sup>1)</sup>。これは、磁気異方性の傾 斜により、媒体の反転磁界を低減しようとするものであり、 ECC<sup>2)</sup>ドット構造媒体に適用することにより、反転磁界を10-30%低減できることが示されている<sup>3)</sup>。しかし、実際に作成した 傾斜配向磁性膜の磁気異方性を評価する際に、結晶配向軸 の傾斜が考慮されていない、という問題があった。

傾斜配向磁性膜では磁化容易軸が傾斜しているが、磁化に より生じる反磁界は膜面に対して垂直方向であるので、反磁界 と磁化容易軸の方向が一致していない。このため、膜の形状磁 気異方性と結晶磁気異方性を含めた実効的な磁気異方性エ ネルギーKu<sup>eff</sup>を導出する際、垂直配向磁性膜では磁性結晶 粒の本質的な磁気異方性エネルギーKu<sup>grain</sup>から反磁界による エネルギーを差し引けばよいが、傾斜配向磁性膜では単純な 差し引きでは導出できない<sup>4)</sup>。本論文では、結晶配向軸の傾斜 角度の定量的な評価を行い、さらに、傾斜配向磁性膜の磁性 結晶粒の本質的な結晶磁気異方性エネルギーKu<sup>grain</sup>の分離 方法を導出する。

#### 2. 実験方法

試料は、DC/RF マグネトロンスパッタリング法を用い、ガラス 基板上に成膜した。まず下地層として Ta (10 nm)と Pt (10 nm) を、スパッタ粒子入射方向が基板法線方向から 60°の傾斜とな るコリメータを用い、Ar ガス圧を 0.8 Pa として成膜した。これに より下地層の結晶成長方向が傾き、その表面もある程度傾斜す ると考えられる<sup>50</sup>。次に磁性層として Co/Pt 多層膜を、傾斜を与 えず垂直方向のコリメータを用いて、Ar ガス圧を 3.2 Pa と高い ガス圧で成膜した。高ガス圧ではスパッタ原子の平均自由行程 がコリメータ径に比べ遥かに小さいため、下地層表面の傾斜に 合わせて Co/Pt 層の界面が形成され、傾斜配向磁性膜が得ら れる<sup>60</sup>。Co/Pt 多層膜は、1 層あたり Co を 3 原子相当、Pt を 2 原子相当の膜厚 (Co/Pt= 3L/2L: Cont= 0.205 nm, Ptit= 0.225 nm)で積層した<sup>70</sup>。Co が 10 層、Pt が 9 層の合計 19 積 層で、総膜厚は 20 nm である。すべての層は室温で成膜した。

磁気特性は、振動試料型磁力計(VSM)と磁気トルク計、および、Polar-Kerr装置で評価した。結晶構造解析には、3次元 極座標で測定できるX線回折(XRD)装置を使用した。

#### 3. 結晶配向軸の傾斜角度

## 3.1 3 次元 XRD による結晶配向軸の傾斜角度の評価

Fig.1 に Out-of-plane 測定における垂直配向膜(Vertical)

と傾斜配向膜(Inclined)のXRD回折パターンを示す。下地層 Pt(111)と磁性層 Co/Pt(111)の明瞭な回折線ピークが観測さ れるため、PtとCo/Ptがfcc構造であることが確認できる。また、 垂直配向膜と傾斜配向膜でピークを与える角度が一致してい ることから結晶配向の面間隔が同じであることが分かる。ここで 垂直配向膜に比べて傾斜配向膜の回折線強度が大幅に低い のは、膜面に対して垂直に配向した結晶面からの回折線しか 観測されないためである<sup>6</sup>。

Fig.2 に3次元極座標X線回折装置(3次元XRD)によっ て得られたロッキングカーブ測定結果を示す。3次元XRDは、 回折角度を一定に保ったまま試料をあらゆる方向に回転させて、 結晶配向の方位分布を評価するものである。具体的には、検 出器を測定対象物の回折角度に固定し、面直方向(Pole



Fig. 1 Out-of-plane XRD patterns for inclined and vertically oriented Co/Pt multilayer films.



Fig. 2 Polar coordinate maps of the rocking curves for (a) Pt (111) and (b) Co/Pt (111) of the tiltoriented film, while (c) Pt (111) and (d) Co/Pt (111) of the vertically oriented film, respectively.

angle)に試料を傾けながら、面内方向(Azimuth angle)に回転させてあらゆる方向に傾斜した格子面の回折線強度を測定する。測定結果は極点図と呼ばれ、高い回折強度が観測される方向に結晶方位が集中していることを示す。今回作製した傾斜配向膜では、下地層 Pt(111)と磁性層 Co/Pt(111)の両層とも、同方位に、膜面垂直方向(0°)から 8°傾斜した方向で最も強度が強くなっている。したがって、このサンプルの結晶配向軸の傾き角度は 8°であることがわかる。一方、垂直配向膜では膜面垂直方向(0°)で最も強度が強くなっていることから、結晶配向軸が膜面に対して垂直であることがわかる。

## 3.2 スイッチング磁界 /と、の角度依存性

垂直配向磁性膜のスイッチング磁界 H<sub>sw</sub> は Polar-Kerr 装 置により測定できることが知られている。Fig.3 に文献 8)から引 用した通常の VSM と Polar-Kerr による磁化検出方法の概念、 および、磁化曲線の測定例を示す<sup>8)</sup>。VSM ではピックアップコ イルが固定されているため、印加磁界の角度を変化させたとき に、試料の磁気モーメントの印加磁界方向成分のみが検出さ れる。これに対して Polar-Kerr 装置の場合、印加磁界の角度 に関係なく、常に膜面に対して垂直方向成分の磁化が検出さ れる。したがって、測定試料が垂直磁気異方性を持つとき、 Polar-Kerr により得られた残留保磁力 H<sub>cr</sub> は、印加磁界角度



Fig. 3 Concepts of magnetic moment measurement and examples of *M*-*H* curve measured on (a) VSM and (b) Polar-Kerr systems<sup>8)</sup>.

によらずスイッチング磁界 Hsw そのものを表すことになる。

Fig.4 は、Polar-Kerr 装置で得られた、結晶配向軸が傾斜 した磁性膜のスイッチング磁界  $H_{sw}$ の印加磁界角度  $\theta$  依存性 である。グラフの形状より、次に説明するように、作製した傾斜 配向膜の磁化反転が磁壁移動型ではなく、単磁区微粒子型の 磁化反転に近いことがわかる。また、印加磁界角度  $\theta=0^\circ$ にお ける  $H_{sw}$ は  $\theta=8^\circ$ のときよりも小さい。

この理由を、Fig.5 を使って説明する。これは、単磁区型および磁壁移動型磁性膜において、スイッチング磁界 H<sub>sw</sub>の磁界 角度依存性の一般的な概念図である。単磁区型の場合は、磁 界角度が 0°から 45°へと大きくなるにつれて H<sub>sw</sub>が低下し、45° 以上になると、また H<sub>sw</sub>が増加する。一方、磁壁移動型では、 磁界角度の増大に伴って H<sub>sw</sub>が単調に増大する。ここで、横軸 は膜の法線(垂直)方向からの角度とした。磁化容易軸が垂直 方向にある場合、点線で示されるような曲線となるはずである。 しかし、今回の試料は結晶配向軸が 8°傾斜しているので、スイ ッチング磁界の角度依存性も 8°移動し、その結果、実線のよう な曲線になると予想される。実際測定した結果である Fig.4 を 見ると、まさに曲線が右側に約 8°シフトした形状をしていること



Fig. 4 Angular dependence of the switching field  $H_{\rm sw}$  of tilt-orientated Co/Pt film.



Fig. 5 Illustrations of angular dependence of  $H_{sw}$  on a single domain particulate and a domain wall motion models.

がわかる。

また、印加磁界が垂直(0°)であるときにスイッチング磁界が 減少していることから、傾斜配向による反転磁界低減効果も確 認できる。0°での H<sub>sw</sub>の低下は、結晶配向軸が傾斜していない 場合を理論値とした H<sub>sw</sub>から、2.6%低下していた。低下率はま だまだ低いが、さらに結晶配向軸を傾斜させることができれば、 低下率の上昇が期待できる。ただし、極小点は、45°から8°シフ トした 53°とはならなかった。これは、完全な一斉磁化回転型で ないことや、極小付近の測定精度が高くないことなどが考えら れるが、更なる検討が必要である。

### 4. 結晶配向膜の結晶磁気異方性

#### 4.1 傾斜配向膜のトルク曲線

Fig.6 に垂直配向膜と傾斜配向膜のトルク曲線を示す。25 kOe の非常に強い磁界を印加したが、飽和特性を示す正弦波 ではなく、不飽和であることを示すのこぎり波状に歪んだ正弦波 が観測された。さらに、傾斜配向膜は垂直配向膜と比べて位相 の遅れが見られ、結晶配向軸の傾斜角度が 8°であるにもかか わらず、その位相差は容易軸周りで14.4°、困難軸周りで16.2°、 平均すると約 15°であった。これは、結晶配向軸の傾斜角度は 8°であるが、垂直方向にかかる反磁界の影響を受けて、磁気異 方性軸が実効的に 15°程度にまで傾いて見えるためである。図 中に初期設定、すなわち印加磁界角度 0°において試料に対 する印加磁場と磁化と磁化容易軸の向きの関係を示すように、 磁界は最初、膜面に対して垂直方向に印加される。その時、磁 化が飽和するほどの強い磁界を印加すると、磁界と磁化の向き はほぼ同じ向きになっているはずであるが、傾斜配向膜では結 晶配向軸が傾斜しているため、磁化容易軸が垂直方向から傾 いている。したがって、初期状態で、磁化と磁化容易軸には角 度差が生じるのである。

磁気異方性エネルギーを考える際、垂直配向膜の場合は Fig.7 (a)に示すように磁化容易軸と印加磁界のなす角度を $\varphi$ 、 同様に磁化のなす角度を $\theta$ として、(1)式で表される<sup>9)</sup>。一方、



Fig. 6 Torque curves of vertical and tiltoriented Co/Pt films.

傾斜配向膜の場合は、Fig.7 (b)のように、磁化容易軸角度 θを 結晶配向軸傾斜角度 α で補正した(2)式を用いる必要がある。 すなわち、磁気異方性エネルギーの項と静磁界エネルギーの 項に角度差が生じる。このとき、トルク曲線で確認したように、反 磁界の影響により実効的な磁化容易軸が傾斜しているので、 Fig.7 に示すように、その傾斜角度を θと定義する。

## 垂直配向膜

 $E = K_{\rm u1} \sin^2\theta + K_{\rm u2} \sin^4\theta$ 

 $-M_{\rm s}H\cos(\varphi-\theta)+2\pi M_{\rm s}^2\cos^2\theta. \quad ...(1)$ 

傾斜配向膜

 $E = K_{u1} \sin^2(\theta - \alpha) + K_{u2} \sin^4(\theta - \alpha)$  $-M_s H \cos(\varphi - \theta) + 2\pi M_s^2 \cos^2\theta. \dots (2)$ 

次に、この場合の磁気異方性エネルギーの導出方法を議論 する。

#### 4.2 磁性膜の実効的な磁気異方性, Keff

最初に、傾斜配向膜の実効的な磁気異方性エネルギー  $K_{u}^{eff}$ を求める。傾斜配向膜が持つ磁気的エネルギーの(2)式 において、トルク測定中、ある印加磁界の角度 $\varphi$  で磁化の角度  $\theta$ はエネルギー極小となる角度に落ち着いているから、(2)式を  $\theta$ で偏微分した式は0でなければならない。すなわち、

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = (K_{u1} + K_{u2})\sin 2(\theta - \alpha) - 1/2K_{u2}\sin 4(\theta - \alpha)$$
$$-2\pi M_s^2 \sin 2\theta - M_s H \sin(\varphi - \theta) = 0. \quad \dots (3)$$

である。

一方、トルクLはエネルギーEを $\varphi$ で偏微分したものであるから、

 $L = -\partial E / \partial \varphi = -M_{\rm s} H \sin(\varphi - \theta). \qquad \dots (4)$ 

であり、(3)式を使って変形すれば、

 $L = -(K_{u1} + K_{u2})\sin 2(\theta - \alpha)$ 

 $+1/2K_{u2}\sin 4(\theta - \alpha) + 2\pi M_s^2 \sin 2\theta$ . ...(5)

が得られる。しかし、このままでは結晶軸の傾斜角度分のずれ 量 a が残る。そこで、まず、三角関数の加法定理を用いて、磁 気異方性エネルギーの項を sin2θになるように変形すると、

 $L = -(K_{u1} + K_{u2})\{\sin 2\theta \cos 2\alpha - \cos 2\theta \sin 2\alpha\}$ 

$$+1/2K_{u2}\sin 4(\theta - \alpha) + 2\pi M_s^2 \sin 2\theta$$
. ...(6)

となる。磁気異方性エネルギーの項と反磁界の項の角度が一 致したので、まとめると、

 $L = \{2\pi M_{\rm s}^{2} - (K_{\rm u1} + K_{\rm u2})\cos 2\alpha\}\sin 2\theta$ 

$$+(K_{u1} + K_{u2})\sin 2\alpha \cos 2\theta + 1/2K_{u2}\sin 4(\theta - \alpha).$$
 ...(7)

となる。しかし、cos20成分が残っているので、これを消去するため、正弦関数の合成を用いると、最終的に次式のようにまとめられる。この時、まとめた sin20の係数が、形状磁気異方性と



**Fig. 7** Definitions of crystal orientation angle a, magnetization angle  $\theta$ , magnetic field angle  $\varphi$ , and effective easy axis  $\beta$ , on vertically-oriented and tilt-oriented films.

結晶磁気異方性を含めた二回対称の実効的な磁気異方性エネルギーKu<sup>eff</sup>である。

$$L = K_{\rm u}^{\rm eff} \sin 2(\theta + \beta) + 1/2K_{\rm u2} \sin 4(\theta - \alpha). \qquad \dots (8)$$

計算に用いた飽和磁化  $M_{\rm s}$ の値は VSM の磁化曲線より、482  $(\text{emu/cm}^3)$ とした。また、 $K_{\rm u}$  eff は次のように記述される。

$$K_{\rm u}^{\rm eff} = \sqrt{(2\pi M_{\rm s}^{\,2})^2 - 4\pi M_{\rm s}^{\,2} (K_{\rm u1} + K_{\rm u2}) \cos 2\alpha + (K_{\rm u1} + K_{\rm u2})^2} \dots (9)$$

ただし、 $\beta$ は先に定義したように、実効的な磁化容易軸の角度である。また、 $\beta$ は(7)式より、

$$\tan 2\beta = (K_{u1} + K_{u2})\sin 2\alpha / \{2\pi M_s^2 - (K_{u1} + K_{u2})\cos 2\alpha\}$$

 $= -\sin 2\alpha / \left\{ \cos 2\alpha - 2\pi M_{\rm s}^2 / (K_{\rm u1} + K_{\rm u2}) \right\}. \quad \dots (10)$ 

と求められる。計算すると、*B* = 12.6°となり、トルク曲線から導出 した実効的な磁化容易軸の傾斜角度約 15°と誤差が生じた。こ れは、トルク曲線では(8)式に示すように、4 次の高次成分が含 まれているからだと思われる。

 $K_{u}^{eff}$ と $K_{u2}$ は、測定したトルク曲線においてフーリエ解析を行うことによって得られ、測定した試料について算出すると、 $K_{u2} = 0.826 \times 10^{6} (erg/cm^{3})$ 、 $K_{u}^{eff} = 2.51 \times 10^{6} (erg/cm^{3})$ であった。

#### 4.3 磁性粒の本質的な結晶磁気異方性, Kugrain

次に、磁性結晶粒の本質的な結晶磁気異方性エネルギー  $K_{u}$ grain を求める。 $K_{u}$ grain は一般的に形状異方性を除いた、磁 気異方性定数の2次の項までの和となり、 $K_{u}$ grain =  $K_{u1} + K_{u2}$ <sup>10)</sup> であるので、(9)式を変形することにより、

$$K_{u1} = -1/2 (2K_{u2} - 4\pi M_s^2 \cos 2\alpha)$$
  
+1/2  $\sqrt{16\pi^2 M_s^4 (\cos^2 2\alpha - 1) + 4K_u^{eff^2}}$ . ...(11)

となる。今回の試料について計算すると $K_{u1} = 3.05 \times 10^6$ (erg/cm<sup>3</sup>)であった。 $K_{u2}$ は導出済であるので、 $K_{u}$ grain は $K_{u1} + K_{u2} = 3.88 \times 10^6$  (erg/cm<sup>3</sup>) と算出される。以上より、傾斜配向磁性膜の $K_{u}$ eff および $K_{u}$ grain の導出方法を確立できた。

ところで、傾斜角度aを考慮しない(1)式により $K_u$ grain を算出 すると誤差が生じる。実際には、 $K_u$ grain が変化するわけではな いので $K_u$ eff のほうに違いが生じるはずである。そこで、物質定 数である $K_u$ grain が傾斜角度aによらず一定という仮定のもと、aに対する $K_u$ effの変化を(9)式から求めた。Fig.8に上記仮定に 基づいた計算結果示す。 $K_u$ eff はaに依存して大きく変化するこ とがわかる。ここでは $K_u$ grain を固定した計算であるが、実際に 実験から得られる値は $K_u$ eff のほうである。Fig.8は、 $K_u$ eff から  $K_u$ grain を導出する際に、結晶配向軸の傾斜角度aを考慮した (9)式を用いないと正しい $K_u$ grain を求めることができないことを 示している。

#### 5. まとめ

傾斜配向磁性膜の結晶配向軸の傾斜角度の定量的な評価 を行い、磁性結晶粒の本質的な結晶磁気異方性エネルギーの 導出方法を検討した。

3 次元極座標 X 線回折のロッキングカーブ測定より、今回測 定した試料の結晶配向軸の傾斜角度は 8°であることがわかっ た。また、Polar-Kerr 装置により測定したスイッチング磁界 H<sub>sw</sub> の角度依存性からも傾斜角度が約 8°であることを確認できた。

また、磁気トルク曲線に基づいて結晶磁気異方性エネルギーを解析し、磁性結晶粒の本質的な結晶磁気異方性エネルギーKugrainと、形状磁気異方性と結晶磁気異方性を含めた二回対称の実効的な磁気異方性エネルギーKueffの分離導出方法を確立した。



Fig. 8 Changes of  $K_{\rm u}^{\rm eff}$  due to tilt angle of crystal orientation axis calculated by the proposed method when  $K_{\rm u}^{\rm grain}$  is constant.

#### References

- N. Honda, K. Yamakawa, and K. Ouchi: *IEEE Trans. Magn.*, 44, 3438 (2008).
- 2) R. H. Victora, and X. Shen: *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 537 (2005).
- N. Honda, and K. Yamakawa: *IEEE Trans. Magn.*, 53, 3200207 (2017).
- D. Miyazaki, I. Tagawa, N. Honda, and S. Saito: *IEEE Intermag 2020 Digests*, CS-02 (2020).
- A. Honda, N. Honda, and J. Ariake: *IEEE Trans. Magn.*, 49, 3600 (2013).
- N. Honda, S. Hinata, and S. Saito: *IEICE Technical Report*, 116, 348, MR2016-38, 51 (2016).
- 7) N. Honda, T. Tsuchiya, S. Saito, H. Uchida, and K. Yamakawa: *IEEE Trans. Magn.*, **50**, 3203104 (2014).
- D. Hasegawa, S. Saito, N. Itagaki, S. Meguro, Y. Konishi, and E. Yanagisawa: J. Magn. Magn. Mat., 320, 3027 (2008).
- 9) K. Takanashi: Jikikogaku Nyumon, p.59 (Kyoritsu Shuppan, Tokyo, 2008).
- 10) S. Saito, D. Hasegawa, F. Hoshi, D. D. Djayaprawira, and M. Takahashi: Appl. Phys. Lett., 80, 811 (2002).

#### 2021年1月3日受理, 2021年2月12日再受理, 2021年4月5日採録