

平成 30 年 2 月 23 日

要旨

工学研究科 電子工学専攻
ふりがな まくた ひろかず
氏名 幕田 裕和

学位論文題目

高磁気異方性を有する磁性薄膜の磁気記録への応用に関する研究

情報処理、情報通信技術が急速に進歩するとともに、記録容量と価格に優位性があるハードディスクドライブ(HDD)はますます重要な役割を担うようになった。International data corporation (IDC)によれば、2016 年に全世界で生成された情報量は 16.1 Zbytes であり、2025 年には 163 Zbytes にまで急激に増加すると予測されている。したがって、このような膨大な情報量を記録できるほどのストレージメディアの開発が求められている。現在の記録密度は 1 Tbit/inch² に達しており、さらにこれを超えるために、ビットパターンドメディアや多値磁気記録媒体が考案されている。

記録密度を高めるためには記録ビットサイズを減少させる必要がある。例えば 2 Tbit/inch² のビットパターンドメディアの場合、およそ 15 nm サイズのドットが 18 nm ピッチ程度で配列することが考えられる。しかしながら、磁性ビットサイズの低減に伴い、外部からの熱エネルギーの影響を受けやすくなり、磁化方向を一方向に保つことができなくなる磁化の熱揺らぎという問題が出てくる。磁気記録媒体において安定的に磁気記録を行うための条件は、

$$K_u V / k_B T > 60 \quad (1)$$

で与えられている。ここで K_u は一軸結晶磁気異方性定数、 V は磁性粒子の体積、 k_B は Boltzmann 定数、 T は温度である。室温でこれを満たすためには、15 nm サイズのドットの場合、1 Merg/cm³ オーダーの K_u が必要となる。磁気記録媒体応用に向けた材料として、70 Merg/cm³ の K_u および 1140 emu/cm³ の適度な飽和磁化を有する L1₀ 型 FePt 規則合金が注目されているほか、20 Merg/cm³ 以上の K_u を示す、L1₀ 構造や D0₂₂ 構造を有する Mn-Ga 系合金が候補に挙げられる。

次世代の高密度磁気記録媒体として、ビットパターン化した多値磁気記録媒体の設計指針を得ることが重要と考えられるが、それに L1₀-FePt や Mn-Ga 系合金これら材料を応用することを目的とした研究報告は多くない。

本研究では、高い磁気異方性を有する L1₀-FePt、L1₀-Mn-Ga、および D0₂₂-Mn-Ga に着目し、ビットサイズ 15 nm の磁気多値記録媒体開発への知見を得るために以下の実験を行なった。

- (1) FePt/MgO/FePt 多層薄膜の MgO 中間層厚に対する結晶構造と磁気特性の変化を調べ、2 層の FePt 層のそれぞれ独立した磁化反転が見られるか検討した。
- (2) FePt/MgO/FePt 多層円形ドット配列パターンを作製し、磁気特性の直径依存性を調べ、高記録密度な磁気多値記録媒体へ応用可能かどうか検討した。
- (3) L1₀-Mn-Ga の基礎的な物性を明らかとするため、L1₀-Mn-Ga 薄膜および円形ドット配列パターンを作製し、結晶構造と磁気特性のほか、磁区構造観察を行なった。
- (4) L1₀-Mn-Ga/Cr/ D0₂₂-Mn-Ga 多層薄膜および円形ドットの磁気特性を評価し、高記録密度な磁気多値記録媒体へ応用可能かどうか検討した。

(1) FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層薄膜の結晶構造と磁気特性

成膜にはマグネットロンスパッタリング装置を用いた。FePt 単層薄膜の成膜手順は次に示す。MgO (100) 単結晶基板上に Fe シード層 1 nm、Au バッファ層 40 nm を室温で積層し、さらに FePt 層 5 – 30 nm を成膜後、熱処理を施し FePt の規則化を促進させた。多層薄膜の場合は、単層薄膜と同様の手順で Fe シード層から FePt 層 10 nm まで積層し、MgO 中間層 3 – 20 nm を積層した。さらに FePt 層 5 nm を積層し、最後に熱処理を施した。結晶構造評価には X 線回折装置(XRD)、磁気特性評価には超伝導量子干渉磁束計(SQUID)を用いた。

膜厚 $t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ の FePt 薄膜の XRD パターンから FePt 層が L₁₀ 構造に規則化していること、薄膜面に対して垂直方向に(001)配向していることが確認された。磁化測定の結果、 $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ の試料では 30 nm の試料と比較して良好な角形性を有する磁化曲線が確認された。多値磁気記録媒体には明瞭なステップ形状を有する磁化曲線を示す磁性薄膜が望ましいことから、良好な角形性を有する磁化曲線が確認された膜厚 5, 10 nm の FePt 層をもとに FePt/MgO/FePt 多層薄膜を作製した。MgO 中間層厚 $t_{\text{MgO}} = 3-20 \text{ nm}$ とした FePt/MgO/FePt 多層薄膜においても FePt 層が L₁₀ 構造に規則化していること、薄膜面に対して垂直方向に(001)配向していることが確認された。FePt 単層薄膜および $t_{\text{MgO}} = 3-20 \text{ nm}$ の FePt 多層薄膜の磁化曲線から、多層薄膜の下層および上層 FePt の磁化容易軸がどちらも薄膜面に対して垂直であることが確認された。 $t_{\text{MgO}} = 3-10 \text{ nm}$ の多層薄膜の磁化曲線からは第 1 象限と第 3 象限に明瞭なステップが確認された。これは下層および上層 FePt の独立した磁化反転を示しており、それぞれの FePt 層が異なる保磁力を有していること、MgO 中間層が FePt 層間の磁気双極子結合を弱めていることを意味する。1 度目と 2 度目に反転した磁化の絶対値の比はおよそ 2 : 1 であり、これは下層、上層 FePt のそれぞれの層厚 10 nm, 5 nm に対応している。つまり、下層 FePt が最初に、そして上層 FePt が次に磁化反転していると考えられる。FePt/MgO/FePt 多層薄膜において FePt の独立した磁化反転が観察されたことから、多値磁気記録媒体応用への可能性があることを見出した。

(2) FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層円形ドットの作製と磁気特性

ドットパターンの微細加工には電子線リソグラフィ装置および Ar イオンエッチング装置を用いた。ドットの形状観察に原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性評価に Kerr 効果測定装置(μ -MOKE)を用いた。

$t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ の FePt 薄膜を連続薄膜から微細加工することにより、特に $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ で大幅な H_c の増加が見られた。 $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ においては、 $D = 0.5 \mu\text{m}^\varphi$ 付近から H_c が急激に上昇し、両者とも $D = 0.3 \mu\text{m}^\varphi$ で 12 kOe 以上の同程度の H_c まで増加した。 $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線からは連続薄膜では SQUID で測定した磁化曲線と同様に、上下の FePt 層の独立した磁化反転を示すステップが現れた。ドットパターンに微細加工後、 $D = 1 \mu\text{m}^\varphi$ を除くドットにおいてはステップが確認されなかった。 $t_{\text{MgO}} = 5, 8 \text{ nm}$ の場合は $D = 3-0.5 \mu\text{m}^\varphi$ においてステップが見られたが、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\varphi$ まで減少させるとステップは消失した。 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ に増加させると、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\varphi$ においてもステップが現れた。 $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の多層ドットにおいては、 H_c^{top} と H_c^{bottom} がほぼ重なり、 D に対する変化は単層ドットと似た傾向を示した。 $t_{\text{MgO}} = 5 \text{ nm}$ に増加させると、 D の減少とともに $H_c^{\text{top}}, H_c^{\text{bottom}}$ の上昇の他に、 $D = 3-0.5 \mu\text{m}^\varphi$ の範囲で H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が明瞭に現れ、 $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ nm}$ ではこの差がさらに大きくなつた。これは、 t_{MgO} が増加したことにより FePt 層間のダイポールカップリングが弱まつたことを意味している。また、 $t_{\text{MgO}} = 3-8 \text{ nm}$ では $D = 0.3 \mu\text{m}^\varphi$ のドットにおいて H_c^{top} と H_c^{bottom}

の差が生まれなかつたが、これは D の減少により $H_{c\text{top}}$ と $H_{c\text{bottom}}$ が近い値まで上昇したためであると考えられ、それゆえに、 t_{MgO} の増加によりダイポールカップリングが弱まつても上下の FePt 層が同時に磁化反転したものと思われる。 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ まで増加させダイポールカップリングがさらに弱くなると、 $D = 3\text{--}0.5 \mu\text{m}^\varphi$ だけでなく $D = 0.3 \mu\text{m}^\varphi$ でも $H_{c\text{top}}$ と $H_{c\text{bottom}}$ の差が確認された。これらの結果から、ナノメートルサイズの FePt/MgO/FePt 多層ドットにおいて上下の FePt 層が独立して磁化反転するためには、厚い中間層を設けて FePt 層間のダイポールカップリングを弱める必要があることが明らかとなつた。また、FePt よりも飽和磁化の低い磁性材料を用いること、ドットサイズを減少させても上下の磁性層の保磁力差を保つためにそれぞれ K_u が異なる材料を用いることも有効であると考えられ、この二つが高密度多値磁気記録媒体実現のための指針だと言える。

(3) L₁₀-Mn_xGa_(100-x) 単層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性

薄膜試料の作製にはマグネットロンスパッタリング装置を用いた。MgO (100) 単結晶基板の上に Cr バッファ層成膜し、さらに Mn_xGa_(100-x) 層を交互積層法によって成膜した。交互積層における MnGa 層の成膜には MnGa (40:60 at. %) 合金ターゲットを用いた。後熱処理により交互積層した Mn、MnGa 層を L₁₀-MnGa へと規則化させた。最後に酸化防止層として Cr を 10 nm 成膜した。微細加工 (2) と同様に行つた。結晶構造評価には XRD、磁気特性評価には SQUID および μ -MOKE、ドット形状観察に AFM、磁区構造観察に磁気力顕微鏡(MFM)を用いた。

$t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ 、 $T_a = 400^\circ\text{C}$ 、 $n = 4\text{--}20$ として作製した Mn₅₈Ga₄₂ 薄膜において c 軸が薄膜面に対して垂直に配向した L₁₀ 構造が確認され、比較的良好な磁気特性、 $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ 、 $H_c = 3.2 \text{ kOe}$ が得られた。ドットパターンにおいては、連続薄膜、 $D = 1000, 500 \text{ nm}^\varphi$ では多磁区構造が観察されたが、 $D = 200 \text{ nm}^\varphi$ まで縮小させると二磁区構造が見られた。さらに $D = 140 \text{ nm}^\varphi$ まで縮小させると、半数以上のドットで单磁区構造が確認された。したがつて、L₁₀-Mn₅₈Ga₄₂ の臨界单磁区粒径は 140 nm であると考えられる。磁気像観察から決定した臨界单磁区粒径をもとに、交換スティフェス定数 A を見積もつた結果、 $A = 1.1 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ と見積もられた。Fe、Co、L₁₀-FePt、Nd₂Fe₁₄B の A と比較すると、L₁₀-MnGa の A はそれらに匹敵する値であることが明らかとなつた。

(4) L₁₀-Mn_xGa_(100-x)/Cr/D₀₂₂-Mn_xGa_(100-x) 多層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性

(3) と同様にマグネットロンスパッタリング装置を用いた交互積層法により、L₁₀-Mn₅₈Ga₄₂/Cr($t_{\text{spacer}} = 0\text{--}40 \text{ nm}$)/D₀₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 多層薄膜を作製した。微細加工と特性評価は (2) と同様に行つた。

まず、D₀₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 単層薄膜からは、 $M_s = 238 \text{ emu/cm}^3$ $K_u = 11 \text{ Merg/cm}^3$ および $H_c = 11.1 \text{ kOe}$ が得られた。多層薄膜において $t_{\text{spacer}} = 0\text{--}40 \text{ nm}$ と変化させた時、 $t_{\text{spacer}} = 0 \text{ nm}$ を除く試料において L₁₀-Mn₅₈Ga₄₂ 層と D₀₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 層がそれぞれ c 軸方向に配向していることが確認された。これら薄膜の磁化曲線からは、 $t_{\text{spacer}} = 5 \text{ nm}$ 以上の場合、上下の Mn-Ga 層がそれぞれ独立して磁化反転していることを示すステップが観察された。低磁場で磁化反転しているのが、 H_c が低い Mn₅₈Ga₄₂ 層、高磁場で磁化反転しているのが、 H_c が高い Mn₇₃Ga₂₇ 層であると考えられる。 $t_{\text{spacer}} = 5 \text{ nm}$ の試料を $D = 2, 1, 0.3, 0.2 \mu\text{m}$ の円形ドットパターンに微細加工した。 $D = 0.3 \mu\text{m}$ まではこれら Mn-Ga 層の H_c に差が見られたが、 $D = 0.2 \mu\text{m}$ ではほぼ同値となつた。 H_c の D 依存性を見ると、 D の減少に伴い、Mn₇₃Ga₂₇ 層の H_c は緩やかに、Mn₅₈Ga₄₂ 層の H_c は急激に上昇する様子が確認された。L₁₀-Mn₅₈Ga₄₂ 層の K_u が D₀₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 層よりも大きいため、

ビットサイズ 15 nmにおいて D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇層の H_c と差が生まれる可能性がある。したがって、FePt/MgO/FePt 多層薄膜よりも L1₀-Mn₅₈Ga₄₂/Cr/D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇多層薄膜のほうが高記録密度多値記録媒体へ応用できる可能性が高い。