

磁気力顕微鏡を用いた Fe 系高磁気異方性薄膜の磁化過程に関する研究

東北学院大学院工学研究科 電子工学専攻

博士後期課程3年 岩間 弘樹

はじめに

磁気記録媒体は現在の記録密度は 1Tbit/in^2 に達しており、次世代的に考えられているディスクリットトラックメディアやビットパターンドメディア数 Tbit/in^2 に達すると考えられている。そのような超高密度記録媒体では記録磁性粒子の縮小にともなう熱揺らぎの問題が深刻化する。この問題を解決するには高い結晶磁気異方性を有する材料が求められる。そこで注目を集めているのが $L1_0$ 型 FePt 規則合金である。 $L1_0$ 型 FePt 規則合金は高い結晶磁気異方性 ($K_u = 7.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$) を有する事から、次世代の磁気記録媒体材料として期待され数多くの研究がなされている。また、上記の記録方式では磁性粒子の臨界粒径以下まで縮小するとそれ以上の記録密度の向上は難しい。そこで期待されているのが多値記録媒体である。現行の磁気記録媒体はひとつの記録ビットに、磁気モーメントの上下の向きを変化させることで2値の情報しか記録できないが、多値記録媒体は複数の記録層を積層させることで、各層の磁気モーメントの配列を変えることにより多値情報を書き込むことができる。このように多値記録媒体は記録層の積層数を増やすことで大きく記録密度の増加が見込まれ、記録密度の限界を大幅に引き上げる可能性を秘めている。しかしながら、FePt 薄膜の磁化過程については未だ解明されていない。

持続発展可能な社会の実現のためには、ハイブリッドカー(HV)、電気自動車(EV)、また風力発電等を積極的に活用する省エネルギー・クリーンエネルギー社会への移行が急務である。今後更なる高性能モーターが求められるため、現行の永久磁石を超える新たな高特性磁石材料開発が切望されている。そこで注目を集めているのがナノコンポジット磁石である。ナノコンポジット磁石は高い飽和磁化を持つソフト相と高い保磁力を持つハード相との交換結合により高い最大エネルギー積が得られることが期待されている。しかしながら、現行の永久磁石の特性を超えるようなナノコンポジット磁石材料の報告は未だになされていない。

本研究では、高い結晶磁気異方性を有する $L1_0$ 型 FePt 規則合金に着目し、次世代の磁気記録媒体への応用及び新規磁石材料として期待されるナノコンポジット磁石開発への知見を得るため以下の実験を行った。

第3章 異なる単結晶基板上に作製した FePt 薄膜の構造と磁氣的性質

本章では $L1_0$ 型 FePt 規則合金との格子整合性の良い単結晶基板として MgO 単結晶基板、 MgAl_2O_4 単結晶基板及び KTaO_3 単結晶基板上に FePt 薄膜を作製し、構造と磁化過程について詳細に調べた。

試料は超高真空スパッタリング装置(QAM-4)を用いて作製した。到達真空度は $8.5 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ 以下及び Ar ガス圧 0.2 Pa にて成膜した。基板には MgO (100)、 MgAl_2O_4 (100) 及び KTaO_3 (100) 単結晶基板上に基板温度 $T_s = 700^\circ\text{C}$ にて FePt 層(10 nm)成膜した。FePt の組成を $\text{Fe}_x\text{Pt}_{100-x}(\text{at. \%})(X = 45.0 \sim 50.8)$ と変化させた。評価には膜組成を電子線マイクロアナライザ(EPMA)、結晶構造に X 線回折(XRD)、表面形状には原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性には超伝導量子干渉磁束計(SQUID)及び磁区構造観察には磁気力顕微鏡(MFM)を用いて行った。

X線回折パターンより異なる単結晶基板を用いて作製した FePt 薄膜において、 $L1_0$ 型 FePt 相の基本反射ピークである FePt(002)及び超格子反射ピークである FePt(001)、FePt(003)が明瞭に観察された。このことより FePt 層は規則化しており、磁化容易方向である $L1_0$ 規則構造の c 軸が膜面に対して垂直である事が得られた。AFMによる表面観察結果より MgO(100)単結晶基板及び MAO(100)単結晶基板上に作製した FePt 薄膜では島状の表面形態が観察されたが、KTO(100)単結晶基板上に成膜した FePt 薄膜では平坦な連続膜が観察された。図1に異なる単結晶基板上に作製した磁化曲線を示す。MgO(100)及び MAO(100)単結晶基板上に作製した FePt 薄膜においては 50 kOe を超える保磁力を示したが、KTO(100)単結晶基板上に成膜した FePt 薄膜では 3.3 kOe と保磁力は大きく減少した。これは初磁化曲線より、KTO は 10 kOe 程度の印加磁場で飽和することから磁壁移動が支配的であるのに対し、MgO 基板及び MAO 基板ではステップが見られ、磁壁移動と磁化回転が共存していると考えられる。以上の結果から、KTO 基板では保磁力が大きく減少した。これは歪みによる K_u の減少と層状成長によって保磁力が下がることを明らかにした。

第4章 FePt 単層膜及び FePt 多層膜の構造と磁気的性質

本章では始めに膜厚を変化させて作製した FePt 単層膜について構造、磁気特性及び磁区構造観察を行い、膜厚による磁化過程の変化について調べた。次に異なる中間層を用いて、FePt 多層膜を作製し上層 FePt 膜の規則度を変化させ、磁化反転過程を調べた

全ての試料は超高真空多元スパッタ装置 (MPS-2000-8C) を用いて作製した。基板に MgO(100)単結晶基板を用い、シード層として Cr (1 nm)、バッファ層には Au (40 nm) を室温にて成膜後、Au バッファ層をエピタキシャル成長させるため基板温度 $T_s = 300^\circ\text{C}$ にて 1 時間の熱処理を行った。その後 FePt 層を基板温度 $T_s = 300^\circ\text{C}$ にて成膜した。下層 FePt 層の膜厚は $t_{\text{FePt}} = 20 \text{ nm}$ とした。中間層には Cu (10 nm)、Fe (0.5 nm)/ Au (10 nm)、MgO (10 nm) を成膜した。再び基板温度を 300°C まで上昇させ、FePt 層 ($t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$) を成膜後、最後に熱処理を 600°C において 1 時間行っ

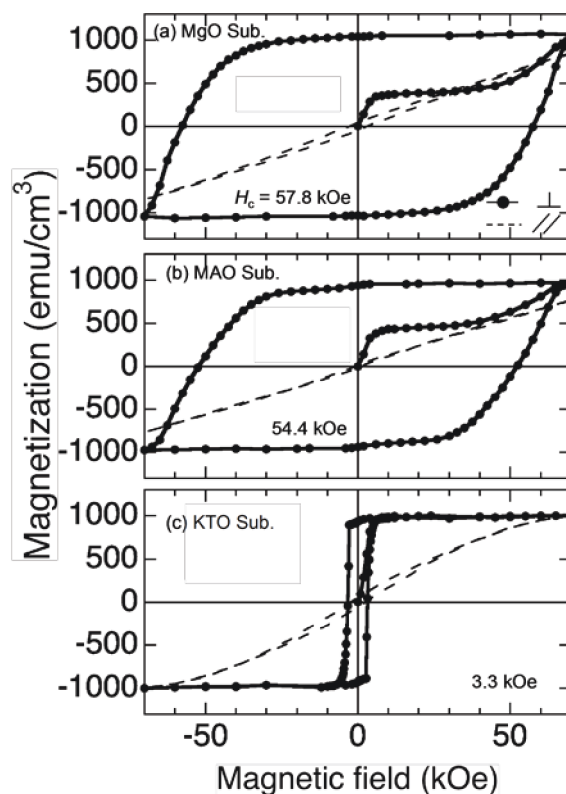


図1. 異なる単結晶基板上に作製した FePt 薄膜の磁化曲線。(a) MgO 基板、(b) MAO 基板及び(c) KTO 基板。

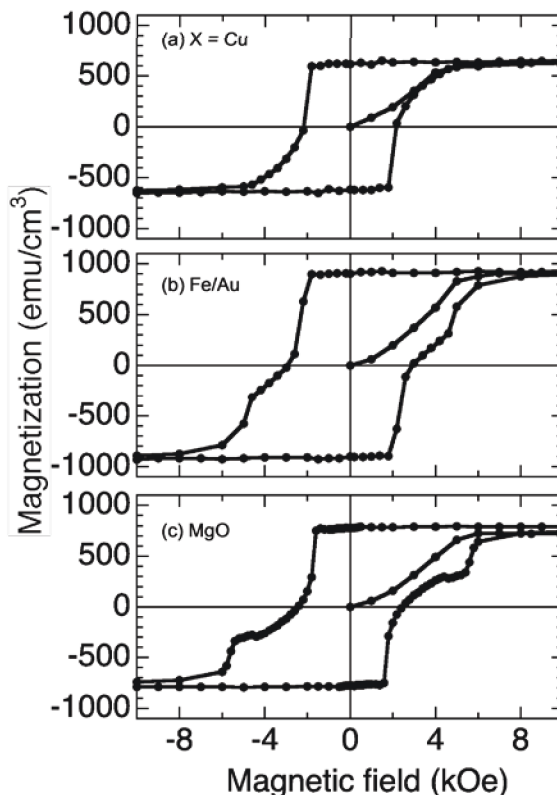


図2. 異なる中間層を変化させて作製した FePt(20 nm)/ X/ FePt(10 nm)多層膜の X線回折パターン。(a) X = Cu、(b) Fe/Au 及び(c) MgO。

た。評価には結晶構造を X 線回折(XRD)、表面形状には原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性には超伝導量子干渉磁束計(SQUID)及び磁区構造観察には磁気力顕微鏡(MFM)を用いて行った。

全ての試料において、基本反射ピークである FePt (002)、超格子反射ピークの FePt (001) 及び FePt (003)が観察された。このことより FePt 層は規則化しており、磁化容易方向である $L1_0$ 規則構造の c 軸が膜面に対して垂直である事が得られた。図 2 に中間層を変化させて作製した FePt(20 nm)/ X/ FePt(10 nm)多層膜の磁化曲線を示す。上から中間層に(a) X=Cu、(b)Fe/ Au 及び(c)MgO である。MgO 中間層の多層膜において明瞭にステップを確認した。これは上下の FePt 層に保磁力差により独立した磁化反転を起こしたためである。これらの結果から中間層を変化させることで上下の FePt 層の独立した反転を確認した。

第 5 章 Au_xPt_{100-x} バッファ層上に作製した FePt 単層膜及び FePt 多層膜の構造と磁氣的性質

本章では AuPt バッファ層の組成を変化して作製した FePt 単層膜及び FePt 多層膜を作製した。AuPt バッファ層の組成を変化させることで FePt 薄膜の磁化反転を制御するため、構造、磁気特性及び磁区構造観察を行い詳細に調べた。

全ての試料は超高真空多元スパッタ装置(MPS-2000-8C)を用いて作製した。基板に MgO 単結晶基板を用い、シード層として Fe (1 nm)、バッファ層には Au_xPt_{100-x} を室温にて成膜した。バッファ層の組成を $X = 0 \sim 100$ と変化させた。バッファ層上に FePt 層を基板温度 $T_s = 300 \text{ }^\circ\text{C}$ にて成膜した。FePt 層の膜厚を 10 nm である。その後室温に下げたのち中間層として MgO 層 (5 nm)を成膜後、基板温度 $300 \text{ }^\circ\text{C}$ にて FePt 層 (5 nm)を成膜した。最後に熱処理を $500 \text{ }^\circ\text{C}$ にて 1 時間行った。微細加工には電子ビームリソグラフィ装置及び Ar イオンエッチング装置を用いて行った。評価には膜組成を電子線マイクロアナライザ(EPMA)、結晶構造に X 線回折(XRD)、表面形状には原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性には超伝導量子干渉磁束計(SQUID)、磁気光学カー効果(MOKE)及び磁区構造観察には磁気力顕微鏡(MFM)を用いて行った。

バッファ層を変化させて作製した FePt 多層膜の X 線回折パターンより、バッファ層の Pt 組成の増加に伴い Au(200)から Pt(200)へとピーク位置がシフトした。全ての試料において、基本反射ピークである FePt (002)、超格子反射ピークの FePt (001)及び FePt (003)が観察された。このことより FePt 層は規則化しており、磁化容易方向である $L1_0$ 規則構造の c 軸が膜面に対して垂直である事が確認された。また FePt (003)がバッファ層の Pt 組成の増加に伴い高角側にシフトした。Au、Au-Pt 及び Pt バッファ層上に作製した FePt 多層膜の磁化曲線より保磁力はそれぞれ、2.0 kOe、1.5 kOe 及び 1.0 kOe が得られた。Pt 組成の増加に伴い保磁力の減少傾向が見られた。磁化反転過程において明瞭にステップが見られた。これは上下の FePt 層の独立した磁化反転が起きたためと考えられる。これらの結果から AuPt バッファ層で格子定数を変化させることで磁気特性を制御出来ることを明らかにした。磁場印加による磁区構造観察を行った結果、独立した磁

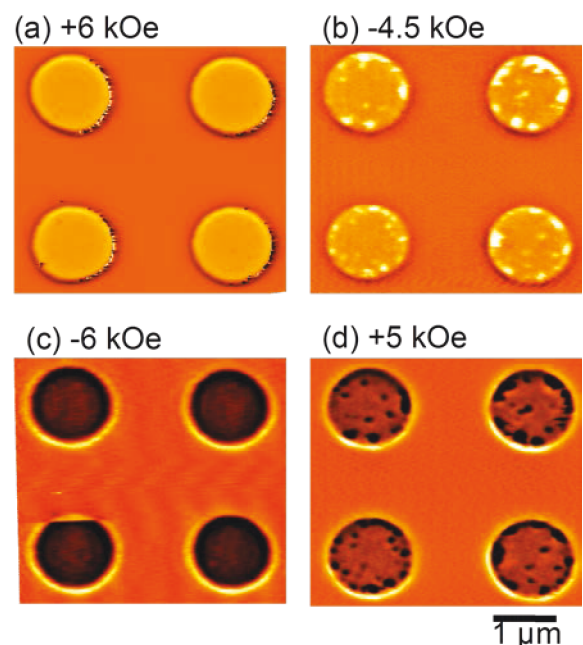


図 3. 印加磁場を変化させて観察した FePt(10 nm)/ MgO (5 nm)/ FePt(5 nm)円形ドット試料の磁気像。(a) +6 kOe、(b) -4.5 kOe、(c) -6 kOe 及び(d) +5 kOe。

化反転過程を観察することが出来た。より明瞭に上下の FePt 層の独立した磁化反転を確認するため円形ドット試料を作製した。図3に Au バッファ層上に作製した FePt (10 nm)/ MgO (5 nm)/ FePt (5 nm) 円形ドット試料の磁気像を示す。ドットの直径は $D = 1 \mu\text{m}$ である。(a) +6 kOe において明るい領域が観察された。負の方向に印加磁場を変化させると (b) -4.5 kOe で薄明るい領域、(c) -6 kOe では暗い領域を観察した。正の方向に印加磁場を変化させると (d) +5 kOe で薄暗い領域を観察した。これらの結果から円形ドット試料において明瞭に上下の FePt 層の磁化反転を観察した。以上の結果から多値記録媒体への有益な知見を得た。

第6章 FePt/Fe ナノコンポジット試料の磁区構造観察

本章では新規磁石材料として期待されるナノコンポジット磁石開発のために、ハード相として $L1_0$ 型 FePt 規則合金、ソフト相として Fe 相を用いて作製した。始めに積層構造を示すナノコンポジット薄膜を作製し構造及び磁気特性について調べた。そして、コアシェル構造を示すナノコンポジット試料作製を試みた。これらの試料について磁場中磁区構造観察より詳細に観察を行いナノコンポジット磁石開発への指針を得る事を目的とした。

全ての試料は超高真空多元スパッタ装置(MPS-2000-8C)を用いて作製した。基板に MgO 単結晶基板を用い、シード層として Fe (1 nm)、バッファ層には Au (40 nm) を室温にて成膜した。その後 FePt (10 nm) 層を基板温度 $T_s = 300 \text{ }^\circ\text{C}$ にて成膜した。最後に熱処理を $500 \text{ }^\circ\text{C}$ にて1時間行い、FePt 単層膜を作製した。微細加工には電子ビームリソグラフィ装置及び Ar イオンエッチング装置を用いた。評価には結晶構造に X 線回折(XRD)、表面形状には原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性には超伝導量子干渉磁束計(SQUID)、磁気光学カー効果(MOKE)及び磁区構造観察には磁気力顕微鏡(MFM)を用いて行った。

図4に (FePt シェル/Fe コア) ナノコンポジット試料の印加磁場 $H_{\text{ex}} = -6 \text{ kOe}$ における磁気像を示す。FePt シェルの内径を (a) $D_{\text{id}} = 1.0 \mu\text{m}$ 及び (b) $1.8 \mu\text{m}$ である。(a) $1.0 \mu\text{m}$ の磁気像において内部の Fe 相にクロスマークが観察され、 90° 磁壁を示す磁区構造を観察した。(b) $1.8 \mu\text{m}$ の磁気像では Fe 相中心に暗い領域が見られ、下向きの磁化方向を示した。これらの結果から FePt シェルの幅を変えることで内部の Fe 相の磁区構造を制御できることを明らかにした。図5に Fe シェルの内径が $D_{\text{id}} = 1.0 \mu\text{m}$ の (Fe シェル/FePt コア) ナノコンポジット試料の磁気像を示す。Fe シェルに特異な4回対称のプロペラ型の磁壁からの漏れ磁束を観察した。このような漏れ磁束の報告例はなく今後さらに研究が求められる。

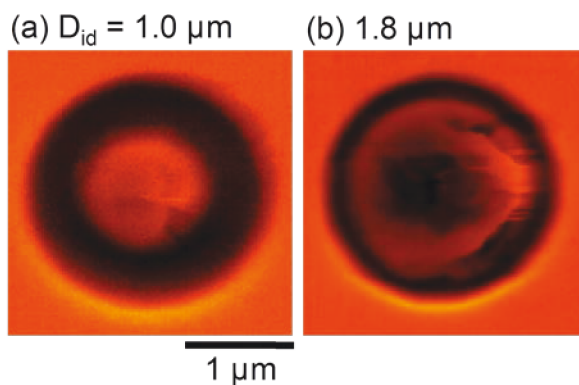


図4. FePt シェルの内径を変化させた (FePt シェル/Fe コア) ナノコンポジット試料の印加磁場 $H_{\text{ex}} = -6 \text{ kOe}$ における磁気像 (a) $D_{\text{id}} = 1.0 \mu\text{m}$ 及び (b) $1.8 \mu\text{m}$ 。

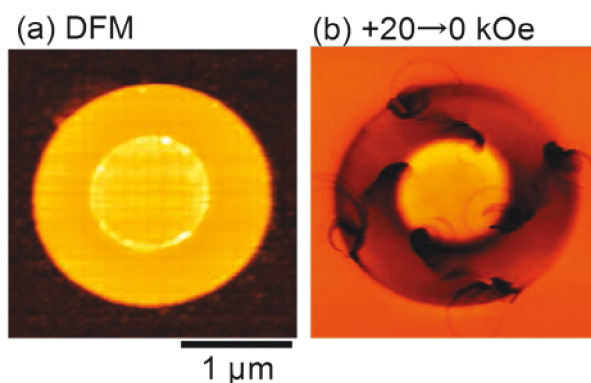


図5. Fe シェルの内径が $D_{\text{id}} = 1.0 \mu\text{m}$ の (Fe シェル/FePt コア) ナノコンポジット試料の (a) 形状像及び (b) 磁気像。

審査結果要旨

工学研究科 電子工学 専攻

ふりがな いわま ひろき

氏名 岩間 弘樹

学位論文題目

「磁気力顕微鏡を用いた Fe 系高磁気異方性薄膜の磁化過程に関する研究」

論文の審査委員

審査委員	職名	氏名	
主査	<u>教授</u>	<u>嶋 敏之</u>	印
副査	<u>教授</u>	<u>土井 正晶</u>	印
副査	<u>教授</u>	<u>石尾 俊二</u>	印

審査結果の要旨

本研究は、高い結晶磁気異方性を有する $L1_0$ 型 FePt 規則合金に着目し、次世代の磁気記録媒体への応用ならびに新規磁石材料として期待されるナノコンポジット磁石開発への知見を得るため以下の実験を行った。

はじめに異なる単結晶基板上に作製した FePt 薄膜の構造および磁気特性について詳細に調べた。その結果、島状 FePt 薄膜では 50 kOe を超える保磁力が得られたが、平坦な FePt 薄膜では 3.3 kOe と大きく減少することを確認した。このような基板による磁気特性の変化は格子不整合に起因する誘導歪みによる K_u の変化および膜形態により説明できることを明らかにした。次に中間層を変化させて作製した FePt/ X (Cu, Fe/ Au, MgO)/ FePt 多層膜においては、中間層の変化により上下の FePt 層が独立に磁化反転することを確認した。続いて、FePt/ MgO/ FePt 円形ドット試料において、明瞭に上下の FePt 層が磁化反転の様子を磁気力顕微鏡を用いて観察することに成功した。これは 4 値の多値記録媒体の応用に有益な知見を与える。最後にハード相として FePt 規則合金、ソフト相として Fe 相を用いたナノ複相磁石作製した。その結果から FePt シェルの幅を変えることにより内部の Fe 相の磁区構造が制御できることを明らかにした。また、外側に Fe を用いた Fe/FePt ナノ複相試料においては、外側の Fe 相に見られる特異な 4 回対称のプロペラ状の磁壁から、空間に明瞭な漏れ磁束が観察された。このような漏れ磁束の報告例はこれまで行われておらず、本研究結果は、磁気記録並びに磁気構造を制御する永久磁石材料に開発においても更なる研究が期待され、今後の工学の発展に大きく寄与すると考えられる。

最終試験結果の要旨

平成28年 2月 6日、関係教員出席のもとで最終試験を行った結果、合格と判定する。