

## MBE 成長した FePt-Ag および FePd-Ag グラニューラー膜の 垂直磁気異方性と構造

瀬戸 陽介<sup>†</sup> 池田 遼太<sup>†</sup> 加藤 剛志<sup>†</sup> 岩田 聡<sup>†</sup>

<sup>†</sup>名古屋大学大学院工学研究科量子工学専攻 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町

E-mail: <sup>†</sup>(y\_seto, r\_ikeda, takeshik, iwata)@echo.nuee.nagoya-u.ac.jp

**あらまし** MBE 法により MgO(001)基板上に FePt-Ag 合金膜を作製し、その結晶および表面構造と垂直磁気異方性の関係を調べた。また、FePt と同じ結晶構造を持つが規則・不規則変態温度の低い FePd についても同様の検討を行い、FePt の結果と比較した。FePt に Ag を 20at.% 添加することで、グラニューラー化および L1<sub>0</sub> 規則化温度の低減に有効であることが分かった。また、これに伴い、FePt では Ag 添加により保磁力および垂直磁気異方性の増大が観測された。一方 FePd では Ag 添加によりグラニューラー構造から連続膜に変化し、保磁力、磁気異方性も低下した。

**キーワード** L1<sub>0</sub> 型規則合金, 垂直磁気異方性, グラニューラー, FePt, FePd

## Perpendicular anisotropy and structure of MBE-grown FePt-Ag and FePd-Ag granular films

Yosuke SETO<sup>†</sup> Ryota IKEDA<sup>†</sup> Takeshi KATO<sup>†</sup> Satoshi IWATA<sup>†</sup>

<sup>†</sup>Graduated School of Engineering, Nagoya University Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8603 Japan

E-mail: <sup>†</sup>(y\_seto, r\_ikeda, takeshik, iwata)@echo.nuee.nagoya-u.ac.jp

**Abstract** FePt-Ag alloy films were prepared on MgO(001) substrates by an MBE method, and their crystal, surface structures and perpendicular magnetic anisotropies were investigated. Moreover, the same experiments were performed for FePd alloy, films which have the same crystal structure as FePt while exhibit much lower order-disorder transition temperature than that of FePt, and the results obtained for the two systems were compared. In the case of FePt system, the Ag addition with the amount of 20 at.% was effective to promote the granular structure and lower the ordering temperature. These results were consistent with the increase of the coercivity and perpendicular anisotropy by the addition of Ag in FePt. On the other hand, the structure of FePd varied from granular to continuous film by adding Ag, accompanying the reduction of its coercivity and perpendicular anisotropy.

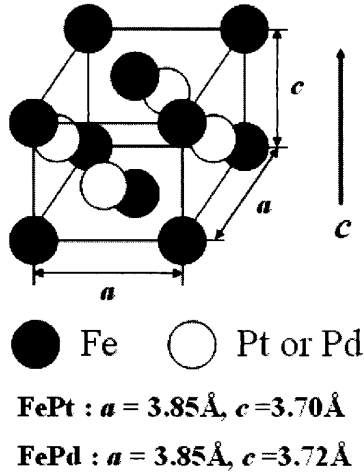
**Keyword** L1<sub>0</sub> ordered alloy, perpendicular magnetic anisotropy, granular, FePt, FePd

### 1. はじめに

磁気記録媒体は、パソコンのみでなく、ビデオレコーダー家電としても急速に普及するようになり、テレビの地上デジタル放送化が完了した中、さらに需要が大きくなることが期待される。今後のユビキタス・ネットワークの時代に向けて、このようなデジタルデータをより長時間記録し、また小型化により携帯性を高めるためにはより一層のデータの高密度化が求められている。現在、磁気ディスクは製品レベルでは 500~600Gb/inch<sup>2</sup>、研究レベルでは 1Tb/inch<sup>2</sup> にも達しているが、このままのペースで研究、開発が進めば 10 年以内に 2Tb/inch<sup>2</sup> 以上に達するであろうと予測されている。

ハードディスクに代表されるような磁気記録媒体

の記録面は、磁氣的に孤立した微粒子からなっているため、記録密度を上昇させるためには、1 つの磁性結晶粒子をさらに小さくする必要がある。しかし、このような磁性粒子サイズの低減によって、孤立磁性粒子の体積の減少に伴う磁化の熱擾乱耐性の低下や熱揺らぎによる磁性粒子の磁化反転などが起こり、媒体に記録された情報が消失してしまうという問題が引き起こされる。1Tb/inch<sup>2</sup> の記録密度では 1 ビットの大きさは約 40nm×15nm となり、約 20 個の結晶粒で 1 ビットを構成すると磁性粒の粒径は 5nm 程度となる。このとき記録ビットの熱安定性という問題を考えると、磁気異方性定数  $K_u > 1 \times 10^7 \text{ erg/cc} (1 \times 10^6 \text{ J/m}^3)$  の磁性材料を用いる必要がある。このような磁性材料として、L1<sub>0</sub> 構造を持つ FePt 合金や FePd 合金などが期待されている。

図 1.  $L_{10}$  型 FePt, FePd 規則格子

$L_{10}$  型 FePt, FePd は図 1 に示すように Fe と Pt (Pd) が  $c$  軸方向に 1 原子層ごとに交互に積層された構造を持ち、結晶の  $c$  軸方向を容易軸とする高い結晶磁気異方性 (FePt :  $7.0 \times 10^7 \text{erg/cc}$ , FePd :  $2.6 \times 10^7 \text{erg/cc}$ ) を示す[1, 2]. FePt, FePd の規則・不規則変態点はそれぞれ  $1300^\circ\text{C}$ ,  $790^\circ\text{C}$  であり、これ以下の温度では  $L_{10}$  型構造が安定となる。しかし、磁気記録媒体作製に用いられる物理蒸着法では材料は気相から固相へと急冷されるため、室温での成膜では一般に不規則構造となり、これを熱処理することで  $L_{10}$  構造が得られる。

これらの  $L_{10}$  規則合金を記録媒体として実用化するためには、ナノサイズの結晶粒の作製、(001)配向性の制御、および  $L_{10}$  相の規則化温度の低減が必要となる[3, 4]. 向井らは、(001)配向した MgO 下地層の上に  $0.3 \sim 0.5 \text{nm}$  の FePt 層を蒸着し  $500^\circ\text{C}$  でのアニールを行うプロセスを繰り返すことで、直径  $14.5 \text{nm}$  の結晶粒を作製出来ることを報告した[5, 6]. 他方では、 $L_{10}$  FePt の規則化温度を低減させるために、Ag の添加が有効であることが報告されている[7-10].

我々は、MBE 法による三元同時蒸着により単結晶 MgO (001)基板上 FePt-Ag 膜を作製し、その構造と磁気特性について報告してきた[11]. FePt-Ag 膜は加熱基板温度  $250^\circ\text{C}$  で Ag を 20 %程度添加したとき、グラニューラ構造の(001)配向成長することが明らかとなったが、本稿では、Ag 添加量や成膜温度と磁気特性の関係についてより詳しく調べた。また、FePt と同様に  $L_{10}$  型の構造を持ち、FePt に比べ規則・不規則変態温度が低い FePd についても報告する。

## 2. 実験方法

FePt-Ag (5 nm) および FePd-Ag (5 nm) を、MBE 法により三元同時蒸着することで作製した。蒸着中の真空度は  $5 \times 10^{-9}$  Torr 以下であり、Fe, Pt, Pd, Ag の蒸着速度は  $0.1 \sim 0.2 \text{nm}$  となるよう、それぞれ水晶膜厚モニターを用いて制御した。基板には MgO (001)単結晶基板を用い、加熱基板温度  $T_{sub} = 200 \sim 450^\circ\text{C}$  において成膜した。成膜中の結晶構造を反射高速電子線回折 (RHEED) で観察することで、(001)配向したエピタキシャル膜になっていることを確認した。X線回折(XRD)によって膜法線および膜面内方向の結晶構造を調べ、 $L_{10}$  規則度および格子定数を評価した。表面構造は原子間力顕微鏡(AFM)により観察した。磁気特性は交番磁界勾配型磁力計(AGM)およびトルク磁力計により測定した。

## 3. 実験結果および考察

図 2 に Ag 添加率 0% および 20% の FePt-Ag ( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$ ) と FePd-Ag ( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ) の膜法線方向のエクス線回折プロファイルを示す。全ての膜で  $L_{10}$  相の (001)配向を示す 001, 002 回折ピークが得られた。Ag を 20% 添加することで、FePt の場合は 001, 002 ピークともに増大したが、FePd では 001, 002 ピークとも

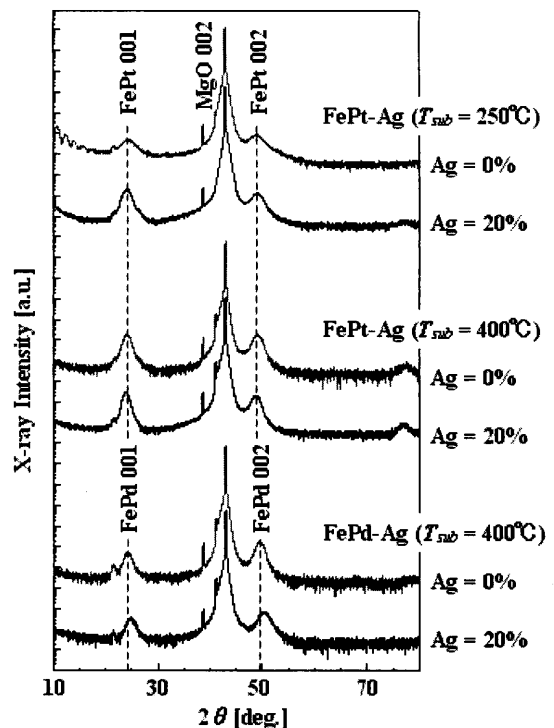


図 2. Ag 添加率 0% および 20% の FePt-Ag ( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$ ) と FePd-Ag ( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ) の膜法線方向の X 線回折プロファイル

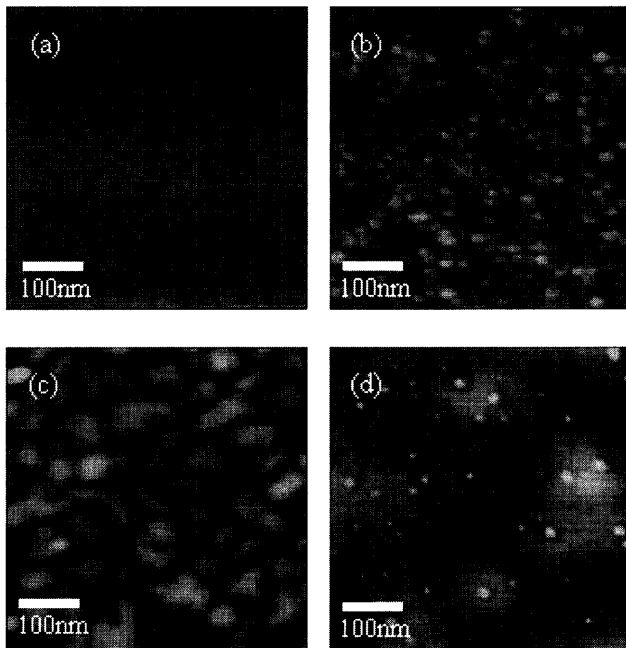


図 3. (a) FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (b) (FePt)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ), (d) (FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )の原子間力顕微鏡像

に減少した。これらのピーク強度比  $I_{001}/I_{002}$  から規則度  $S$  を算出した。FePt-Ag( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$ )では、規則度はそれぞれ 0.48 から 0.69, 0.56 から 0.63 と Ag の 20% 添加により増加した。FePd-Ag( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )でも同様に Ag の 20% 添加により規則度が 0.66 から 0.83 へと増加した。ここで FePt に比べ FePd の規則度が大きい原因は、バルクの  $L_1_0$  規則化温度が FePt で  $1300^\circ\text{C}$  であるのに対し、FePd では  $790^\circ\text{C}$  と小さいためであると考えられる。また、FePt の 001, 002 ピーク位置はともに Ag 添加前後で変化がないのに対し、FePd では Ag 添加により 001, 002 ピーク位置ともに高角側へとシフトしている。001 ピークのピーク角度から格子定数  $c$  を算出したところ、FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$ )ではともに Ag 添加によらず、それぞれ  $3.67\text{ \AA}$  から  $3.70\text{ \AA}$  となるのに対し、FePd では Ag 添加により  $c = 3.66\text{ \AA}$  から  $c = 3.56\text{ \AA}$  へと低下することが分かった。この結果から FePd と Ag が合金化している可能性が考えられる。このように、Ag 添加による構造変化は FePt と FePd とで異なることが分かる。

図 3 に、(a) FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (b) (FePt)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ), (d) (FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )の原子間力顕微鏡像を示す。図 3(a)より、Ag 添加をしていない FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ )膜は約 0.5nm 程度の凹凸しか見られず比較的平坦な膜になっている。これに対し、図 3(b)の (FePt)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ )膜では 1.5nm 程度の凹凸を示す結晶粒が形成されているのが

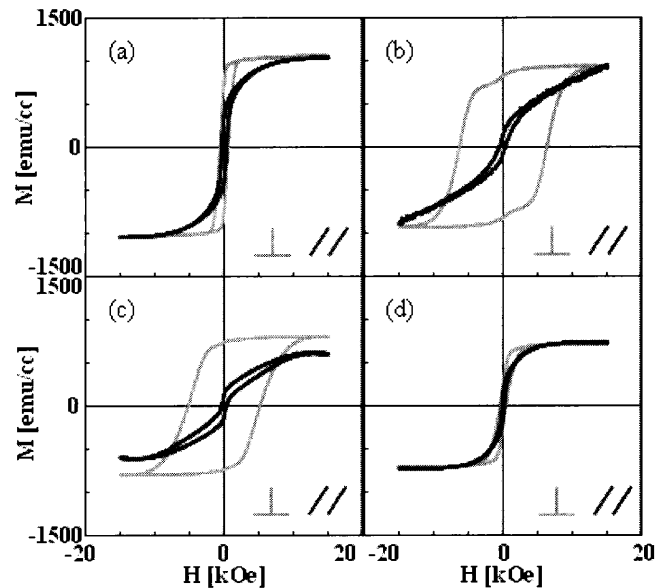


図 4. (a) FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (b) (FePt)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ), (d) (FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )の磁化曲線

確認できた。このことから FePt では Ag 添加がグラニューラー化に有効であると言える。一方 FePd では、図 3(c) の FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )膜で高さ 2nm 程度の結晶粒が密に存在しているのに対し、図 3(d)の (FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )膜では平坦膜の一部に突起状の粒子が存在するような構造であった。ここで、直流 2 端子法により膜の電気抵抗率を測定した結果、FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )膜で絶縁状態であったのに対し、(FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )膜では  $1000\ \mu\Omega\text{ cm}$  程度となったこともこの構造変化に対応している。このことから FePd では Ag 添加によるグラニューラー化の効果がないことが分かる。

図 4 に (a) FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (b) (FePt)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ ), (d) (FePd)<sub>80</sub>-Ag<sub>20</sub>( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )の磁化曲線を示す。図 4(a)と図 4(b)より、FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ )に Ag を添加することで、保磁力の大きさが 0.6kOe から 6.3kOe へと増加したことが分かる。これは Ag 添加による  $L_1_0$  規則度の増加とグラニューラー化によるピンングサイトの増加によるものと考えられる。一方、FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )については図 4(c), 図 4(d)を比較すると分かるように、Ag の添加によって保磁力は 5.2kOe から 0.4kOe へと減少した。これは Ag 添加により FePd が微粒子構造から連続膜となったことが一因と考えられる。ここで、図 4(a)FePt( $T_{sub} = 250^\circ\text{C}$ )よりも図 4(c)FePd( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )の方が、保磁力が大きいのは成膜温度  $T_{sub}$  の違いによるものであると考えられる。参考までに FePt( $T_{sub} = 400^\circ\text{C}$ )では 7.9kOe の保磁力が得られており、Ag 添加により保磁力は更に増加している。

## 謝 辞

本実験を進めるにあたりご協力頂いた名古屋大学熊澤 正幸氏に感謝いたします。なお、本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金の助成のもと行われた。

## 文 献

- [1] O. A. Ovanov, L. V. Solina, and V. A. Denshima, Phys. Met. Metallogr., 35, 81 (1973)
- [2] H. Shima, K. Oikawa, A. Fujita et al.: Appl. Phys. B, 70, 224408 (2004)
- [3] D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J. U. Thiele, and M. F. Doerner, IEEE Trans. Magn., 36, 10 (2000).
- [4] S. H. Charap, P. L. Lu, Y. He, and J. C. Maxwell, IEEE Trans. Magn., 33, 978 (1997).
- [5] R. Mukai, T. Uzumaki and A. Tanaka, IEEE Trans. Magn., 39, 1925 (2003).
- [6] T. Itoh, T. Kato, S. Iwata and S. Tsunashima, IEEE Trans. Magn., 41, 3217 (2005).
- [7] Y. N. Hsu, S. Jeong, D. E. Laughlin and D. N. Lambeth, J. Appl. Phys., 89, 7068 (2001).
- [8] Y. Shao, M. L. Yan and D. J. Sellmyer, J. Appl. Phys., 93, 8152 (2003).
- [9] T. Yang, E. Ahmad and T. Suzuki, J. Appl. Phys., 91, 6860 (2002).
- [10] K. Kang, T. Yang and T. Suzuki, IEEE Trans. Magn., 38, 2039 (2002).
- [11] T. Konagai, Y. Kitahara, T. Itoh, T. Kato, S. Iwata, and S. Tsunashima, J. Magn. Mater., 310, 2662 (2007).

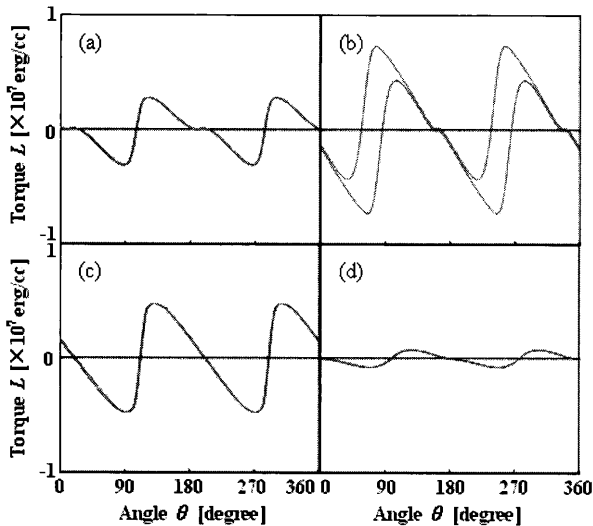


図 5. (a) FePt( $T_{sub} = 250^{\circ}\text{C}$ ), (b)  $(\text{FePt})_{80}\text{-Ag}_{20}$ ( $T_{sub} = 250^{\circ}\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^{\circ}\text{C}$ ), (d)  $(\text{FePd})_{80}\text{-Ag}_{20}$ ( $T_{sub} = 400^{\circ}\text{C}$ )のトルク曲線 (ここで  $\theta = 0\text{deg}$  とは印加磁界 15kOe と膜法線方向が平行となる場合である.)

図 5 に(a) FePt( $T_{sub} = 250^{\circ}\text{C}$ ), (b)  $(\text{FePt})_{80}\text{-Ag}_{20}$ ( $T_{sub} = 250^{\circ}\text{C}$ ), (c) FePd( $T_{sub} = 400^{\circ}\text{C}$ ), (d)  $(\text{FePd})_{80}\text{-Ag}_{20}$ ( $T_{sub} = 400^{\circ}\text{C}$ )のトルク曲線を示す。FePt( $T_{sub} = 250^{\circ}\text{C}$ )に Ag を添加することで、 $K_{eff}$  が  $0.3 \times 10^7 \text{erg/cc}$  から  $0.57 \times 10^7 \text{erg/cc}$  へと増加しており、これは  $L_{10}$  規則度の増加に対応している。一方、FePd( $T_{sub} = 400^{\circ}\text{C}$ )では Ag の添加によって  $K_{eff}$  が  $0.47 \times 10^7 \text{erg/cc}$  から  $0.08 \times 10^7 \text{erg/cc}$  へと減少している。FePd においては Ag 添加によって規則度が増加したにもかかわらず、 $K_{eff}$  が減少しているが、これは Ag と FePd の合金化によるキュリー温度の低下が影響している可能性が考えられ、現在検討を進めている。

## 4. まとめ

高い一軸磁気異方性を持つ  $L_{10}\text{FePt}$ , FePd 規則合金に Ag を添加した薄膜を作製し、磁気特性と構造についての測定を行った。その結果、FePt と FePd とで Ag 添加による変化に差異が見られた。構造解析および磁気特性の結果から、FePt-Ag では FePt と Ag が相分離しているのに対し、FePd-Ag では固溶している可能性があることが分かった。同様の構造を持つ FePt と FePd において Ag 添加効果に差が見られた理由については、より詳細な構造解析を行う必要があるものと考えられる。