

高保磁力 FePt 合金の磁化制御

関 剛 斎*

1. はじめに

今日の我々の生活は電子情報機器の高性能化および多機能化の恩恵を大いに受けており、それらの機器は利便性を追求しながら発展してきた。しかしながら、近年のエネルギー問題や資源枯渇の危惧から、電子情報産業においても省エネルギー、環境調和、あるいは低炭素排出といった観点が重要視されるようになってきている。中でも、電子情報機器の根幹を成す記憶素子の低消費電力化を進めることが、豊かな持続性社会を実現するための最重要課題の一つである。

低消費電力性、小型・大容量・高速といった高性能、さらには多機能性といった条件を満たす電子機器が望まれている現状において、磁性体を用いた磁気記憶デバイスへの期待は大きい。磁性体を用いる最大の利点は、情報の不揮発性にある。磁気記録媒体(Hard Disc Drive; HDD)や磁気ランダムアクセスメモリ(Magnetic Random Access Memory; MRAM)、あるいはスピンRAMといった磁気記憶デバイスは、磁性体の磁化方向により情報を記録するため電流をOFFにしても情報が消えない。そのため、情報保持に電流を必要とする半導体メモリなどの電子デバイスと比較して、低消費電力化という観点から有利となる。

しかしながら、今後磁気記憶デバイスが更なる高性能化および低消費電力化を遂げるには、磁化の熱安定性の確保と低エネルギーでの磁化方向制御という相反する要求を同時に満足することが不可欠となる。磁性体における磁化の熱安定性の指標 Δ は $\Delta = KV/k_B T$ で与えられ、ここで K は磁気異方性定数、 V は磁性体の体積、 k_B は Boltzmann 定数、 T は温度である。 Δ が大きいほど磁化の熱安定性が向上することから、例えば磁気メモリの高集積化を行う際に磁性体積の V を減少させた場合、磁化の熱揺らぎによる情報の消失を防ぐために $k_B T$ の熱エネルギーに打ち勝つ大きな K が必要となる。一方、情報の書込み時には、例えば保磁力(H_c)以上の

外部磁場を印加して磁化反転させるが、磁化が均一に反転する一斉回転を仮定した場合、 $2K/M_s$ で与えられる異方性磁場(H_k)と H_c が等しくなる⁽¹⁾。このため、 K を増加させることにより熱安定性が向上するが、 H_c が増大することにより磁化反転に要するエネルギーも増大する、というジレンマが生まれる。そのため、高い K を有する磁性体の磁化を低エネルギーで磁化反転する(制御する)手法の確立が切望されている。

筆者はこれまでに、高 K 材料として結晶 c 軸方向に高い一軸磁気異方性(K_u)を有する $L1_0$ 型 FePt 規則合金⁽²⁾に着目してきた。 $L1_0$ -FePt の K_u はバルク形態において 7×10^6 J/m³ であり、Nd-Fe-B や Sm-Co といった希土類系永久磁石材料に匹敵するほどの大きな値を有している魅力的なハード磁性材料である⁽³⁾。本稿ではまず、 $L1_0$ -FePt 薄膜におけるナノサイズ化に伴う磁化過程の変化⁽⁴⁾について説明し、 H_c の発現機構について議論する。さらに、 $L1_0$ -FePt 薄膜の H_c の制御手法として、 $L1_0$ -FePt 薄膜に電圧を印加することによって H_c を変調する最近の研究⁽⁵⁾について紹介する。

2. ナノサイズ $L1_0$ -FePt の磁化過程と高保磁力化

単結晶基板の上にエピタキシャル成長させた $L1_0$ -FePt 薄膜は、高い K_u を有しているものの、一斉回転モデルによる K_u から期待される H_c の値を示すことはまずない。これは H_c がその磁化過程により決定されているためであり、例えば $L1_0$ -FePt のエピタキシャル薄膜や単結晶薄膜という結晶欠陥や不純物の少ない薄膜では、 H_k より低い外部磁場で逆磁区が生成されると、逆磁区が薄膜全体に広がるよう磁壁の移動がスムーズに起きてしまい、磁化反転が生じる⁽⁶⁾⁽⁷⁾。この場合、逆磁区生成磁場が H_c を決めることになる。一方で、単磁区サイズに近い $L1_0$ -FePt の微粒子からなる島状薄膜を作製すると、磁壁移動ではなく一斉回転もしくはそれに近い磁化回転過程が主となり、巨大な H_c が発現することが

* 東北大学助教；金属材料研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)
Magnetization Control of Highly Coercive FePt Alloy; Takeshi Seki (Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai)
Keywords: magnetization reversal process, FePt, nanostructure, coercivity, voltage application
2012年2月21日受理

報告されている⁽⁸⁾⁻⁽¹¹⁾。このことは、 $L1_0$ -FePtのサイズを制御することにより、 H_c を決定している磁化過程を制御できることを意味している。しかしながら、薄膜成長形態を利用したこれまでの研究では微粒子の形状やサイズの制御が困難であった。本研究では、微細加工法を用いることで任意にかつ精密に形状やサイズを制御できる利点に着目し、数10 nm サイズまで $L1_0$ -FePtをドット化することで、 $L1_0$ -FePtのサイズに依存した磁化過程の変化を系統的に調べた。

超高真空対応マグネトロンスパッタ装置を用いてMgO(100)単結晶基板上にFeおよびAu下地層を室温で成膜し、基板温度を573 Kまで上昇させて10 nm厚のFePt層を成膜した。さらに、成膜後に真空中熱処理を行うことで、FePtの $L1_0$ 規則化を促進した。この薄膜試料を、電子描画装置およびArイオンミリング装置を用いて、円形ドットの配列へと加工した。図1に、ドット直径(D)を500 nm, 100 nm および 30 nm とした $L1_0$ -FePtドットにおける磁気力顕微鏡(MFM)像に原子間力顕微鏡(AFM)像を重ねた結果を示す。FePt薄膜の熱処理温度は673 Kであり、連続膜の状態では $K_u = 8 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ の垂直磁気異方性を有している。MFM像の明暗のコントラストは膜面に対して上向きおよび下向き磁化に対応しており、外部磁場(H)は薄膜の膜面垂直

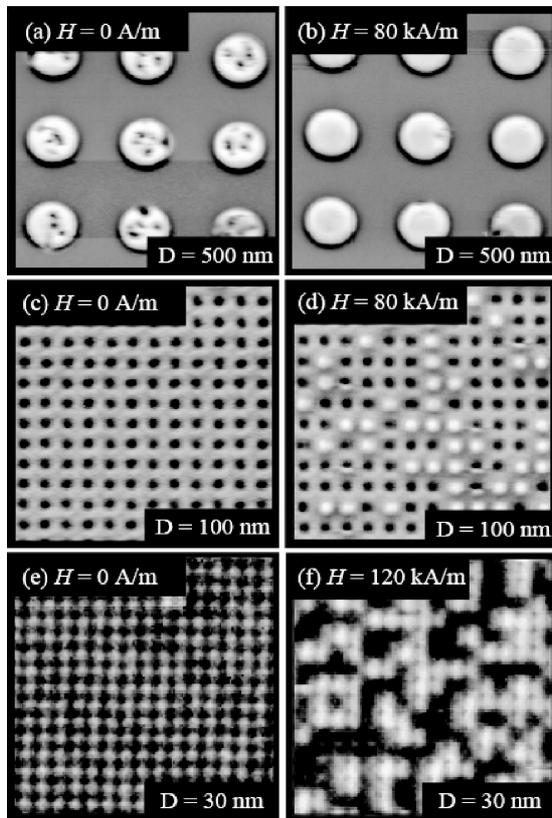


図1 $L1_0$ -FePtドットの残留磁化状態((a), (c), (e))および磁場中((b), (d), (f))における磁気力顕微鏡(MFM)像。いずれの像も原子間力顕微鏡(AFM)像を重ねた。ドット直径(D)は500 nm ((a), (b)), 100 nm ((c), (d))および30 nm ((e), (f))とした。

方向に印加した。残留磁化状態($H=0 \text{ A/m}$)におけるMFM像を比較すると、 $D=500 \text{ nm}$ では多磁区構造が形成されているのに対し、 $D=100 \text{ nm}$ および 30 nm では単磁区構造が観察された。これは、ドットサイズを微小化することにより、磁区構造を単磁区化できることを示している。また、磁場中のMFM像より各ドットにおいて磁化反転が独立に生じていることがわかり、加えて100 nm および 30 nm ドットでは磁化反転の過程で多磁区構造の形成が観測されていない。

次に、磁気光学カー効果により評価した $L1_0$ -FePtドットの磁気特性を示す。図2は $D=30 \text{ nm}$ のドットにおける極カー効果曲線である。比較のために、微細加工する前の連続膜における結果も示した。連続膜の形態では H_c は47 kA/mと小さいが、30 nmサイズのドット形状へ加工することにより H_c は320 kA/mまで増加している。図3に、ドットサイズに依存した H_c の変化をまとめた。 D を微小にすることにより、 H_c が徐々に増加していく傾向がみられる。この H_c の変化は図1において観測された磁区構造の変化と対応し

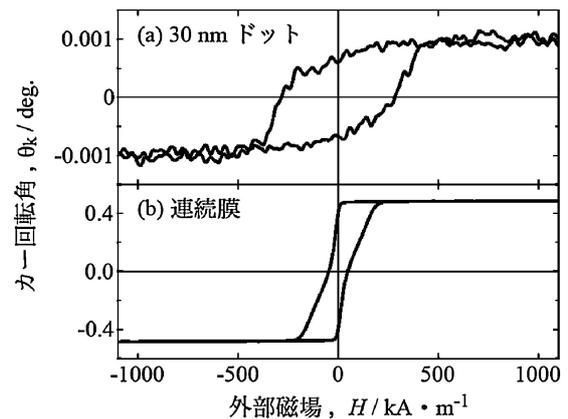


図2 (a)ドット直径が30 nmの $L1_0$ -FePtドットおよび(b) $L1_0$ -FePt連続膜における極カー効果曲線。FePt薄膜の熱処理温度は673 Kである。

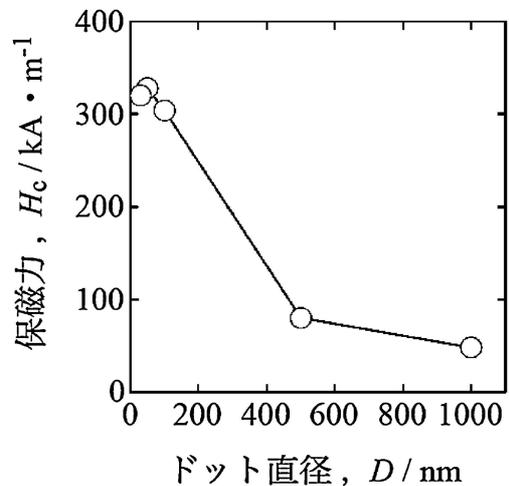


図3 保磁力(H_c)のドット直径(D)依存性。FePt薄膜の熱処理温度は673 Kである。

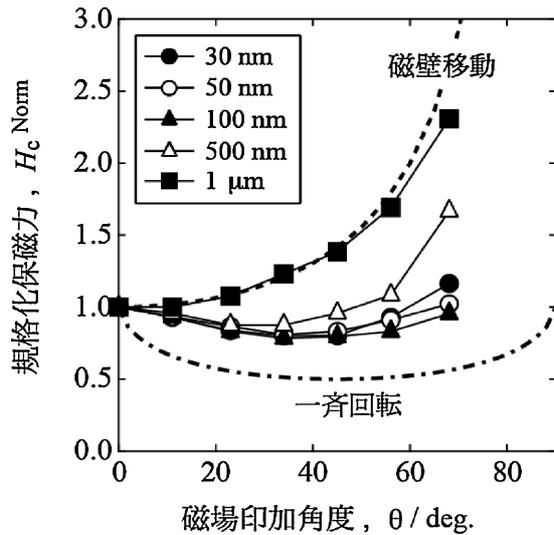


図4 規格化された保磁力(H_c^{Norm})の磁場印加角度(θ)依存性. $\theta=0^\circ$ が膜面垂直方向に対応し, $\theta=90^\circ$ が膜面内方向である. H_c^{Norm} は $\theta=0^\circ$ の H_c で各 θ における保磁力を規格化したものである. 図中の点線は磁壁移動が支配的な場合の角度依存性の計算結果, 一点鎖線は一斉回転モデルによる計算結果を示している. FePt 薄膜の熱処理温度は 673 K である.

ており, 単磁区構造を形成することにより H_c が増加することを示唆している. そこで, サイズに依存した磁化過程の変化を議論するために, H_c の磁場印加角度(θ)依存性を調べた. $\theta=0^\circ$ が膜面垂直方向に対応し, $\theta=90^\circ$ が膜面内方向である. $\theta=0^\circ$ の H_c で規格化された H_c (H_c^{Norm}) の θ 依存性を図4に示す. 最もサイズの大きな $D=1\ \mu\text{m}$ では, θ が増加するにつれて H_c^{Norm} が単調に増加した. 磁化反転時に逆磁区を拡大させるための磁壁移動が支配的となる場合, H_c^{Norm} は $1/\cos\theta$ で変化する. $D=1\ \mu\text{m}$ における傾向は, 磁壁移動による磁化過程で良く説明される. 一方で, ドットサイズを $1\ \mu\text{m}$ から減少させるに伴い H_c^{Norm} の θ 依存性に下に凸の傾向が現れ始め, $D=100\ \text{nm}$ 以下では $\theta=45^\circ$ 近傍で H_c^{Norm} が極小となっている. 理想的な磁化の一斉回転を表す Stoner-Wohlfarth モデル⁽¹⁾では, $\theta=45^\circ$ において H_c^{Norm} が 0.5 となる. 実験結果は一斉回転モデルに完全には一致しないものの, 下に凸の傾向が現れ始めたことは, 非一斉ではあるが磁化回転が支配的な磁化反転機構へと変化したことを示唆している.

上記したドットサイズを微小にすることによる単磁区化, 磁化回転を主とした磁化過程への変化, それに伴う H_c の増加といった実験結果は, サイズにより $L1_0$ -FePt の磁化過程および H_c を制御できることを意味している. これらは熱処理温度を 673 K とした試料において得られた知見であるが, 熱処理温度を高くすることで $L1_0$ 規則化が促進され, $L1_0$ -FePt 薄膜自体の K_u が向上し, より大きな H_c が得られると考えられる. そこで, 30 nm サイズの $L1_0$ -FePt ドットにおける H_c の熱処理温度(T_A)依存性を調べた. 図5に示すように, 熱処理温度を 873 K まで上昇させることで, $L1_0$ 規

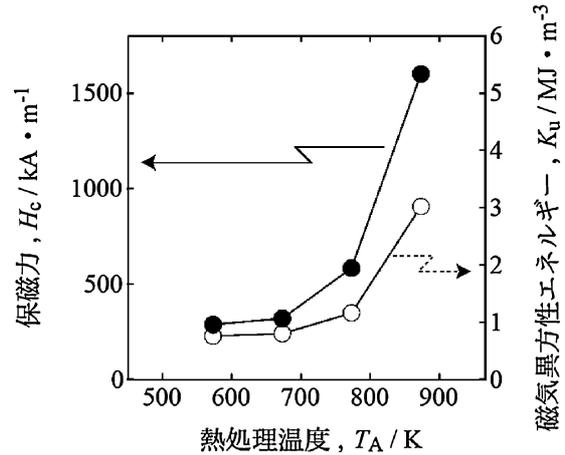


図5 $L1_0$ -FePt ドットの保磁力(H_c)および連続膜形態での一軸磁気異方性エネルギー(K_u)の熱処理温度(T_A)依存性.

則化が促進されるため K_u が向上し, その結果 $H_c=1.6\ \text{MA/m}$ という高保磁力化が可能であることが明らかとなった.

以上は, 微細化による磁化過程の制御および高 H_c の発現に関する有益な知見であるが, ではこの H_c を外部から制御していかに効率よく磁化反転させるかというのが次の課題となる. その一つの手法として, 次節では電圧印加による H_c の変調に関する実験を説明する.

3. 電圧印加による $L1_0$ -FePt の保磁力変調

最も古典的な磁化反転の手法は, 外部から磁場を印加する方法である. しかしながら, MRAM などの記憶デバイスでこの手法を用いると配線の複雑化や消費エネルギーの増大を招くため, 代替手法としてスピン偏極した電流を磁性体に直接通電させるスピン注入磁化反転が注目されるようになった. スピン注入磁化反転は, スピン偏極電子と局在スピンの相互作用による角運動量移行に基づくもの⁽¹²⁾⁽¹³⁾であり, 現在盛んに研究が行われている. 著者らのグループでは $L1_0$ -FePt におけるスピン注入磁化反転⁽¹⁴⁾⁻⁽¹⁶⁾に取り組んできたが, 磁化反転時に必要とされる電流値が高く, 低消費電力化といった目標を達成するには課題が山積していた. スピン注入磁化反転は, 電流を通電させるため少なからず電力消費が生じてしまう. そこで, 電流ではなく電圧を磁性体に印加することで超低消費電力で磁化制御する概念が提案され, 実験的に観測されるようになってきた.

磁性体に電圧を印加しキュリー温度や H_c , 磁気異方性といった磁気特性を制御する試みは, (In, Mn)As や (Ga, Mn)As に代表される希薄磁性半導体において精力的に研究されてきた⁽¹⁷⁾. これは, 上記の磁性半導体がキャリア誘起を起源とする強磁性であり, 電界を与えることでキャリア密度を大きく変調できることに起因している. しかしながら, 近年になって, 金属磁性体においても同様に電圧印加により磁性を制御できることがわかってきた⁽¹⁸⁾⁻⁽²²⁾. 金属において電

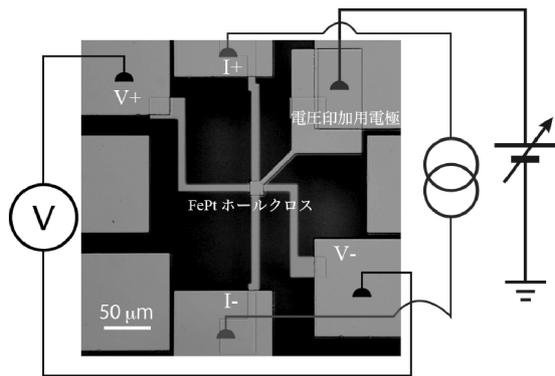


図6 電圧印加用 $L1_0$ -FePt ホール素子の光学顕微鏡像および測定セットアップの模式図。

圧を印加して特性制御を行うときに重要となるのが、物質の極薄化である。半導体とは異なり金属はキャリア密度が極めて高い ($10^{22} \sim 10^{23} \text{ cm}^{-3}$) ため電子の遮蔽効果が強く、例えば絶縁障壁を介して金属に電圧を印加しても、電荷蓄積が生じるのは絶縁障壁との界面近傍に限られてしまう。そのため、界面での特性変化が顕著となるよう、極薄の薄膜試料を用いることが不可欠である。そこで本研究では、 $L1_0$ -FePt を膜厚 1.5 nm まで薄膜化し、FePt の異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect: AHE) を利用して電圧を印加しながら磁気特性を測定することにより、電圧による H_c の変調を検討した。

MgO(100) 単結晶基板の上に、Fe および Au 下地層 / $L1_0$ -FePt 層 (1.5 nm) / MgO 絶縁層 (5 nm) / Al-O 絶縁層 (20 nm) / Cr および Au 上部電極層を有する薄膜試料を作製した。ここで、MgO 絶縁層は電子線蒸着法、Al-O 絶縁層は原子層堆積 (Atomic Layer Deposition; ALD) 法、その他の層はスパッタ法を用いて作製された。素子の光学顕微鏡像および測定セットアップの模式図を図 6 に示す。本測定では、 $L1_0$ -FePt 層と Au 層から成るホールクロス部に対し、MgO 絶縁層および Al-O 絶縁層を介して上面から FePt 層に電圧 (V_{app}) を印加する配置となっている。ホールクロス形状への加工には、電子描画装置および Ar イオンミリング装置を用いた。

図 7(a) は、 V_{app} を -13 V 、 0 V および $+13 \text{ V}$ として測定したホール曲線である。いずれの V_{app} においても、 $L1_0$ -FePt の磁化反転に起因した明瞭なヒステリシスが観測されている。このホール曲線には、 H に対し線形挙動を示す正常ホール効果と $L1_0$ -FePt の磁化 (M) に比例した AHE の寄与が含まれている。そこで、得られたホール曲線から $L1_0$ -FePt の AHE の成分のみを取り出し、さらに H_c 領域を拡大した (図 7(b))。その結果、 V_{app} を $\pm 13 \text{ V}$ 変化させることにより、 3.2 kA/m の H_c の変調が観測された。これは、 $L1_0$ -FePt の H_c を電圧により制御可能であることを意味している。図 8 に、 H_c の V_{app} 依存性を示す。 V_{app} が正領域では V_{app} の増加に伴い H_c が単調に増加し、逆に負領域では H_c が減少した。正の V_{app} は $L1_0$ -FePt 層の上部界面に電子が

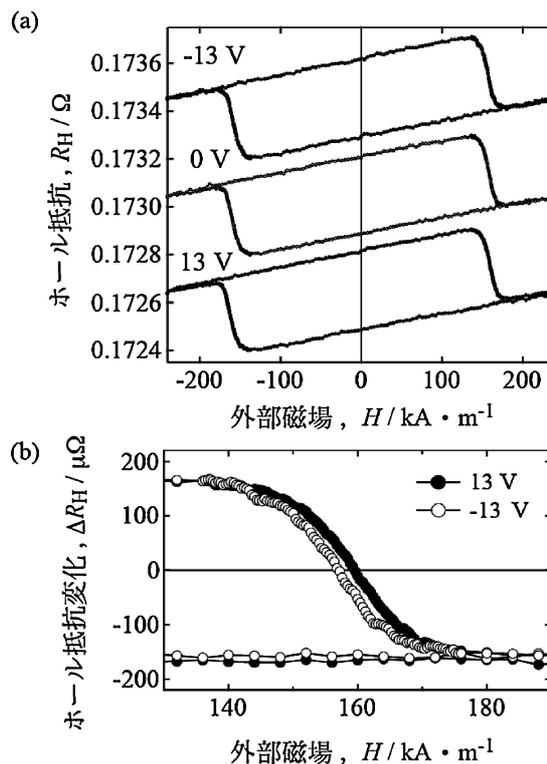


図7 (a) 印加電圧 (V_{app}) を -13 V 、 0 V および $+13 \text{ V}$ として測定したホール曲線。縦軸方向に曲線をオフセットさせて示している。(b) 測定結果から $L1_0$ -FePt の AHE の成分のみを取り出し、さらに正の H_c 領域を拡大したホール曲線。黒丸が $V_{app} = +13 \text{ V}$ 、白丸が $V_{app} = -13 \text{ V}$ の結果である。

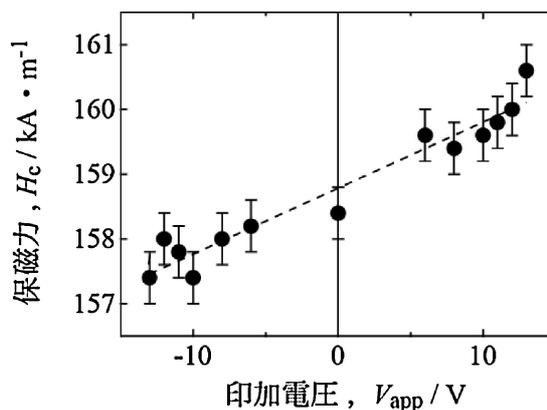


図8 保磁力 (H_c) の印加電圧 (V_{app}) 依存性。

蓄積される電圧符号に対応しており、電子数の増加により $L1_0$ -FePt の H_c が増加することが分かった。

本研究では、最大で 3.2 kA/m の H_c の変調が得られた。この変化量は応用上充分とは言えないが、今回用いた $L1_0$ -FePt が 158 kA/m という比較的大きな H_c を示していることを考慮すると、代表的なハード磁性材料である $L1_0$ -FePt においても電圧による磁化制御が有効であることが示された。今後は、さらに効果を大きくする手法や薄膜構造の最適

