高保磁力 FePt 合金の磁化制御

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.

1. はじめに

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 $\Delta = KV/k_{\rm B}T$ 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、 $k_{\rm B}$ 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 $k_{\rm B}T$ 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

関 剛 斎*

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 $(H_k) \ge H_c$ 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7×10⁶ 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 *L*1₀-FePt の磁化過程と高保磁力化

単結晶基板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 移動がスムースに起きてしまい、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 $K_u = 8 \times 10^5$ J/m³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 方向に印加した.残留磁化状態(*H*=0 A/m)における MFM 像を比較すると,*D*=500 nm では多磁区構造が形成されて いるのに対し,*D*=100 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 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1 L1₀-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.



図2 (a) ドット直径が 30 nm の L1₀-FePt ドットおよ び(b) L1₀-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°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 Hc 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. $\theta = 0^{\circ} O H_{c}$ で規格化された $H_{c}(H_{c}^{Norm}) O \theta$ 依存性を図 4 に 示す. 最もサイズの大きな $D=1 \mu m$ では, θ が増加するに つれて H^{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^{Norm}は1/cos θ で変化する. $D=1 \mu m$ 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1µm から減少させるに伴い Hcormの の 依存性に下に凸の傾向が現 れ始め、D=100 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、 θ =45°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 *L*1₀-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 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 L1₀-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 L1₀-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 *L*1₀-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($10^{22} \sim 10^{23}$ 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 (<u>Anomalous Hall Effect: AHE</u>)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-13V,0Vおよび+13V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±13V変化させることに より、3.2kA/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



(a)

図7 (a)印加電圧(V_{app})を-13V,0Vおよび+13V 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 $V_{app} = +13$ V,白丸が $V_{app} = -13$ Vの結果であ る.



図8 保磁力 (H_c) の印加電 $E(V_{app})$ 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 L1₀-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 化などを検討していく必要がある.

4. おわりに

本稿では、 $L1_0$ -FePt 薄膜におけるナノサイズ化による磁 化過程の制御および高い H_c の発現について説明し、さらに $L1_0$ -FePt 薄膜の H_c を電圧印加により制御できることを示 した.上述のように、 $L1_0$ -FePt は希土類系磁石材料を除け ば最も高い磁気異方性を有しており、ナノサイズにおける磁 化の熱揺らぎ問題を解決するための究極の材料である.今回 紹介した電圧印加 H_c 制御は有効な磁化制御の手段の一つと して期待されるが、より効率的に $L1_0$ -FePt のような高磁気 異方性材料の磁化を制御する手法を確立することで、低消費 電力且つ高記録密度の次世代磁気記憶デバイスの実現に向け て貢献できるものと考えている.

今回紹介した研究を遂行するにあたり,東北大学金属材料研究所・高梨弘毅教授には,ご指導およびご助言を頂いた. また, L1₀-FePtドットのAFM および MFM 観察では東北 学院大学・嶋敏之教授,岩間弘樹氏にご協力頂き,電圧印加 用 Al-O 絶縁膜の作製では東北大学大学院工学研究科・新田 淳作教授,好田誠准教授にご協力頂いた.ここに感謝申し上 げます.本研究の一部は,NEDO 先導的産業技術創出事業 (若手研究グラント),および財団法人前川報恩会学術研究助 成の支援を受けて遂行された.

文 献

- (1) E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth: Nature, 160(1947), 650–651.
- (2) O. A. Ivanov, L. V. Solina, V. A. Demshina and L. M. Magat: Phys. Met. Metallogr., 35(1973), 81–85.
- (3) T. Shima and K. Takanashi: Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials, eds by H. Kronmüller and S. Parkin, John Wiley & Sons Ltd., 4(2007), 2306.
- (4) T. Seki, H. Iwama, T. Shima and K. Takanashi: J. Phys. D: Appl. Phys., 44(2011), 335001–1–10.
- (5) T. Seki, M. Kohda, J. Nitta and K. Takanashi: Appl. Phys. Lett., 98(2011), 212505–1–3.

- (6) T. Shima, T. Moriguchi, S. Mitani and K. Takanashi: Appl. Phys. Lett., 80(2002), 288–290.
- (7) T. Seki, T. Shima, K. Takanashi, Y. Takahashi, E. Matsubara and K. Hono: Appl. Phys. Lett., 82(2003), 2461–2463.
- (8) T. Shima, K. Takanashi, Y. K. Takahashi and K. Hono: Appl. Phys. Lett., 81 (2002), 1050–1052.
- (9) T. Shima, K. Takanashi, Y. K. Takahashi and K. Hono: Appl. Phys. Lett., 85(2004), 2571–2573.
- (10) S. Okamoto, O. Kitakami, N. Kikuchi, T. Miyazaki, Y. Shimada and Y. K. Takahashi: Phys. Rev. B, 67 (2003), 094422–1–7.
- (11) Y. K. Takahashi, T. O. Seki, K. Hono, T. Shima and K. Takanashi: J. Appl. Phys., 96 (2004), 475–481.
- (12) J. C. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater., **159**(1996), L1–L7.
- (13) L. Berger: Phys. Rev. B, 54(1996), 9353-9358.
- (14) T. Seki, S. Mitani, K. Yakushiji and K. Takanashi: Appl. Phys. Lett., 88(2006), 172504–1–3.
- (15) T. Seki, S. Mitani, K. Yakushiji and K. Takanashi: J. Appl. Phys., 99(2006), 08G521-1-3.
- (16) T. Seki, S. Mitani and K. Takanashi: Phys. Rev. B, **77** (2008), 214414–1–8.
- (17) H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno and K. Ohtani: Nature, 408 (2000), 944–946.
- (18) M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon and D. Givord: Science, **315**(2007), 349–351.
- (19) T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, M. Mizuguchi, A. A. Tulapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando and Y. Suzuki: Nature Nanotech., 4 (2009), 158–161.
- (20) Y. Shiota, T. Maruyama, T. Nozaki, T. Shinjo, M. Shiraishi and Y. Suzuki: Appl. Phys. Exp., 2(2009), 063001–1–3.
- (21) M. Endo, S. Kanai, S. Ikeda, F. Matsukura and H. Ohno: Appl. Phys. Lett., 96 (2010), 212503–1–3.
- (22) D. Chiba, S. Fukami, K. Shimamura, N. Ishiwata, K. Kobayashi and T. Ono: Nature Mater., 10(2011), 853–856.



関 剛斎

しての応用に向けた研究に従事. ★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★