

C-1

Fe/Pt 多層膜熱処理過程における温度低下速度操作による
L1₀-FePt 連続薄膜磁気特性評価・分析

Manipulation of the temperature drop rate during the heat treatment process of Fe/Pt multilayer films by
L1₀-FePt continuous thin film magnetic property evaluation and analysis

○大家幸太¹, 吉川大貴², 塚本新²

○Kouta Daike¹, Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

Abstract: We have reported that the crystalline orientation of Fe/Pt multilayers deposited on non-oriented substrates can only be controlled by heat treatment. We found that the crystalline orientation can be changed by manipulating the temperature drop rate during heat treatment. In this report, the magnetic properties of the samples after heat treatment were evaluated. The results showed that the magnetic properties were not perfect and had large anisotropy. One of the reasons for the smaller than theoretical values was identified as a change in the composition ratio in the thin film.

1. はじめに

高い磁気異方性を有する薄膜は記録媒体や MEMS などで活用されている。そこで高い磁気異方性定数を有する L1₀-FePt (K_u : $6.6 \sim 10 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$)^[1] は化学的にも安定し、ナノサイズでも磁気的特性を保持する事が可能であり、更なる高密度磁気記録媒体で期待されている材料である。L1₀ 規則合金化には約 600 °C 以上の熱処理が必要となり、不均一な結晶配向、膜の分離や微粒子化が起きる。そのため望む結晶配向を制御するには、誘導配向基板を用いた作製法があるが、基板選定、基板温度、ガス注入量など多数の要素が必要となるため作製は困難である。そこで、誘導配向基板を使わずより簡便な手法として、無配向かつ平坦な熱酸化 Si 基板上に Fe/Pt 多層膜を積層し、熱処理降温過程温度低下速度を操作することで結晶配向が変化することを報告している^[2]。本報告では結晶配向が (111) 優先配向と (001) 優先配向試料から、結晶配向に適した磁気特性を有しているかを評価・考察する。

2. 試料の作製法と評価・分析手法

Si 基板を大気中にて 最高温度 1000 °C, 保温時間 20 hours の加熱を行い、約 300 nm の熱酸化 Si を作製した。その後 DC マグネトロンスパッタリング法により熱酸化 Si 基板上に Fe/Pt 多層膜 [Fe (1.09 nm) / Pt (1.41 nm) = Fe₅₀Pt₅₀] × 6 cycle を積層した (Fig.1)。この多層膜に対し到達真空度 $\leq 2.0 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ の雰囲気下で赤外線ランプ加熱により、昇温速度 200 °C/min., 到達温度 700 °C, 保温時間 240 min. を経た後 x °C/min. (x = -5.0, -1.0) で 200 °C まで温度低下させた (Fig.2)。熱処理後の試料に対し、振動試料型磁力計 (SQUID-VSM) で 300 K, 磁場印可範囲 $\pm 70 \text{ kOe}$ での磁気特性を測定した。また、表面分析にエネルギー分散型 X 線分光法 (SEM-EDS) を使用した。

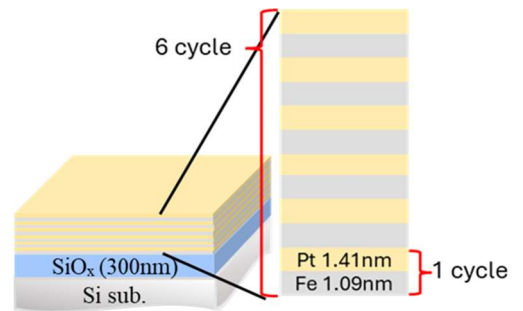


Fig.1 Initial multilayer

3. 実験結果

3.1 優先配向の異なる磁気特性

Fig.3 に (111) 優先配向した温度低下速度 -5 °C/min, (001) 優先配向した温度低下速度 -1 °C/min の膜面垂直方向の磁気特性を示す。また、Table.1 に磁気特性の飽和磁化 M_s , 残留磁化 M_r , 角型比, 保磁力 H_c の値を示す。本磁場印可範囲では常に磁化の値が変化しているため、飽和しきれていないことが確認できる。また、保磁力が約 10 kOe と L1₀-FePt の理論値と比較すると小さいが、大きな保磁力を有するため L1₀ 規則合金化していることが考えられる。

角形比に注目すると、(001) 優先配向試料の方が 1 に近い値である事

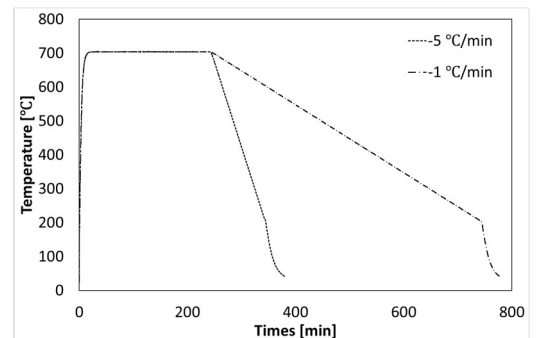


Fig.2 Temperature profiles

1 : 日大理工・院 (前)・電子 2 : 日大理工・教員・電子

が確認できる。そのため、(001) 優先配向試料の方が (111) 優先配向試料よりも膜面垂直方向に近い方向に磁化容易軸を有している事が考えられる。しかし、外部磁場印可 30kOe 以上での磁化の変化量は (001) 優先配向試料、(111) 優先配向試料どちらも同じように変化している。どちらの試料も増加率は近い値であるため、膜面垂直方向ではない磁化容易軸が同じように存在している可能性が考えられる。また、 $L1_0$ -FePt の理論値より小さい磁気特性である。要因として、規則化度の減少、(001) 配向以外の配向成分、磁壁によるエネルギーの低下が考えられる。特に熱処理による $L1_0$ -FePt 以外 FePt 系合金の生成され、実効的組成の変化が発生する事で規則化度が減少すると考えられる。

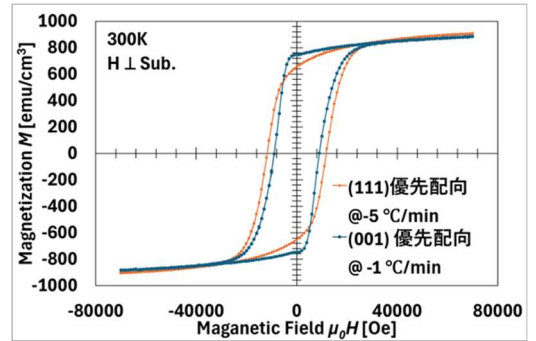


Fig.3 Perpendicular hysteresis loop at -5°C/min and -1°C/min.

Table 1 Perpendicular hysteresis loop parameter at -5°C/min and -1°C/min.

300K	$M_s (\mu_0 H = 70kOe)$ [emu/cm ³]	M_r [emu/cm ³]	角型比 (M_s/M_r)	H_c [kOe]
(111)優先配向 (-5 °C/min)	904	652	0.72	11
(001)優先配向 (-1 °C/min)	882	746	0.84	9

3.2 元素の違いによる表面被覆率分析

$L1_0$ -FePt の理想的な値を取らない原因の調査のため、実効的組成比の変化により、 $L1_0$ -FePt 以外の FePt 系合金の生成が起きていると考え、温度低下速度 -1 °C/min の試料において、SEM-EDS による元素分析を行った。その結果を Fig.4 に示す。(a) には約 $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ の分析結果を示し、(b) には欠損箇所 (SEM 像で黒く見える箇所) に注目した結果を示す。欠損箇所の周りは Pt が明るくなっていることから Pt は熱処理により凝集し、欠損箇所を生成し、元素の偏りを生成する原因であることが考えられる。欠損箇所の内部は Pt と Fe の凝集エネルギー・電気陰性度等の違いにより主として Fe が存在している事が考えられる。また、熱酸化 Si 基板上に Fe/Pt を成膜すると、Fe が熱酸化 Si と反応し、成膜時に Fe を Pt よりも多く成膜することでより大きな M_s , H_c を有することが報告されている^[3]。そのため、初期成膜条件で Fe を多く成膜することで実効的組成比の変化を抑えられ、より大きな M_s , H_c を有する材料を作製できる可能性が考えられる。以上のことから、(001) 優先配向試料は膜面垂直方向に近い方向で磁化容易軸を形成していることが考えられ、理論値と比較すると小さい値を形成しているが、その一つの原因として実効的組成比の変化であることが示され、成膜時に組成比を調整することでより大きな硬磁性材料特性を得ることが考えられる。

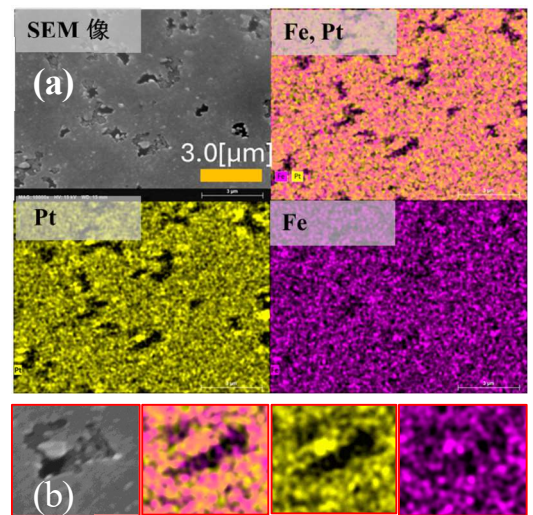


Fig.4 Elemental analysis at -1°C/min

4. まとめ

Fe/Pt 多層膜に対し熱処理降温過程温度低下速度変化により結晶の配向性が変化する事を磁気特性から評価を行った。角型比の値と磁気特性の外形から、優先配向と適する特徴を一部有しているが、 $L1_0$ -FePt の理論値と比較すると小さい磁気特性を有することを確認した。その原因として熱処理後の実効的組成比の変化が考えられ、初期積層時に Fe と Pt の組成比を調整することでより理想的な $L1_0$ -FePt 連続薄膜が作製できる可能性を示した。

5. 参考文献

- [1] Dieter Weller, et. al., IEEE Trans. Magn., Vol.36, No.1 pp.10-15 (2000)
- [2] 大家幸太, 吉川大貴, 塚本新, 第 48 回日本磁気学会学術講演会, 25aB-11, 2024
- [3] 小松田恭祐, 吉川大貴, 塚本新 電気学会研究会資料. MAG, IEE Japan 2021, MAG21004, pp.35-40(2021)