

FePt/Pt 人工格子の構造異常と光磁気特性

Structural Anomaly and Magneto-optical Properties of FePt/Pt Multilayer Films

渡辺雅人・高梨弘毅・藤森啓安・佐藤勝昭*・本宮秀俊*・本多茂男**

東北大学金属材料研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (☎980)

*東京農工大学工学部, 小金井市中町 2-24-16 (☎184)

**広島大学工学部, 東広島市鏡山 1-4-1 (☎724)

M. Watanabe, K. Takanashi, H. Fujimori, K. Sato*, H. Hongu* and S. Honda**

Institute for Materials Research, Tohoku Univ., Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980

*Faculty of Engng., Tokyo Univ. of Agri. and Tech., Nakamachi 2-24-16, Koganei 184

**Faculty of Engng., Hiroshima Univ., Kagamiyama 1-4-1, Higashihiroshima 724

Multilayer films (MLF's) composed of FePt ordered alloy and Pt were prepared by an ion beam sputtering method. X-ray diffraction in a low angle region indicated that the structural anomaly, leading to the absence of the multilayer periodicity, was seen in the case of the FePt layer thickness (d_{FePt}) around 50Å. The interplanar spacing along the perpendicular direction to the film plane increases for d_{FePt} around 50 Å. Furthermore, in the case of d_{FePt} around 50Å, the existence of an antiferromagnetic phase was also confirmed from the shift of the hysteresis loops at 4.5K in field cooling. Therefore, we consider that Pt-rich FePt alloy is formed in the FePt/Pt MLF's with d_{FePt} around 50Å. The spectral shapes of the θ_K and η_K spectra show a significant change for $d_{\text{FePt}} > 50$ Å and $d_{\text{FePt}} < 50$ Å. This fact suggests that the change in the electronic structure of the FePt/Pt MLF's occurs around $d_{\text{FePt}} = 50$ Å, accompanied by the structural anomaly.

Key words: FePt ordered alloy, Pt, multilayer film, structural anomaly, interplanar spacing, hysteresis loop shift, Bitter pattern, antiferromagnetic phase, magneto-optical spectrum

1. はじめに

近年 Co/Pt および Co/Pd 人工格子が垂直磁化膜となることから注目され, 垂直磁気異方性の起源や電子状態に着目した基礎的観点から光磁気記録媒体としての応用を意識したものに至るまで活発に研究が行われている^{1)~3)}. 我々はこのような単体同士の組合せではなく FePt 規則合金と Pt とを組み合わせた人工格子の研究を行っている^{4)~6)}. FePt 規則合金はそれ自身が非常に大きな一軸の結晶磁気異方性⁷⁾を持ち, さらに短波長領域で大きな磁気カー回転角も有している⁸⁾. FePt と Pt の組合せは格子整合性が非常に良く (格子不整合約

0.5%), また Pt はスピン軌道相互作用が大きいため界面での磁気分極した Pt が光磁気効果を増強することも期待できる. 以前の論文で MgO 基板上に作製した FePt 層厚 (d_{FePt}) が 50Å 付近で X 線回折からは人工周期性が確認できなくなるという構造的な異常が生じることを報告した^{4), 6)}. 今回の論文では, この構造異常と磁気特性および光磁気特性との関連について述べる.

2. 実験方法

試料の作製には多元イオンビームスパッタ装置を用いた. 基板には配向性の制御のため MgO(100) 単結晶基板を用い, 基板温度は 600°C まで昇温した. また比較のため石英基板上にも同時に人工格子を作製した. 参照用として MgO 基板上に FePt 規則合金単層膜を作製した. 主なスパッタ条件は最終到達真空度: $0.9 \sim 1.0 \times 10^{-6}$ Torr, 成膜中真空度: 5×10^{-5} Torr, イオン加速電圧: 1100 V である. ターゲットには Fe および Pt の溶解ターゲット (99.9%) を用いた. 基板上に最初に 1000Å の Pt バッファ層を蒸着させた後人工格子を成長させた. Pt 層厚はすべて 50Å に固定し, FePt 層 (d_{FePt}) は 200Å から 10Å まで変化させた. 繰り返し回数は 5 回から 45 回まで変化させた. 最表面層はすべて FePt 層とした. 構造解析には回転対陰極型 X 線回折装置 (Cu-K α) を, 磁気異方性の測定にはトルク磁力計 (最大印加磁場 20 kOe) をそれぞれ用いた. 低温での磁化測定には量子干渉型磁力計 (SQUID) を用いた. 極磁気カー回転 θ_K および極磁気カー楕円率 η_K は円偏光変調法⁹⁾で膜面側より室温で測定した. 測定した波長範囲は 200 nm から 1000 nm である.

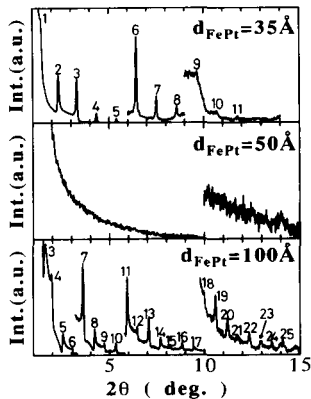


Fig. 1 X-ray diffractograms in a low angle region of FePt ($d_{\text{FePt}}\text{Å}$, Pt 50Å) multilayer films on MgO(100) substrates with $d_{\text{FePt}}=35\text{Å}$, 50Å and 100Å.

3. 実験結果

3.1 構造

人工周期性は低角領域における X 線回折パターンから $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ 付近の場合を除いてすべての人工格子において確認された。例として Fig. 1 に MgO 基板上の $d_{\text{FePt}}=35\text{Å}$, 50Å と 100Å の場合の人工格子の低角 X 線回折パターンを示す。 $d_{\text{FePt}}=35\text{Å}$ と 100Å の場合には人工周期に対応するブラッグピークがかなり高次まで観測され、高い基板温度にも関わらず良好な人工周期性が確認される。ところが $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ の場合には低角領域にはピークが全く確認されず人工周期性が失われていることが分かる。この構造的異常の原因は現在のところはっきりとは分からないが、このあとで述べるように磁気特性と光磁気特性に明確な影響を与えている。

高角領域の FePt(002) 面あるいは (200) 面付近の X 線回折パターンにおいて人工周期構造に起因するメインピークとサテライトピークが $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ の場合を除いて観測されたことを以前の論文⁴⁾で報告した。しかし同時に Pt バッファ層による Pt(200) 面の強いピークが現れるため、構造異常の起こる $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ 付近においては人工格子部分に由来するピークは隠されてしまう。一方 Pt バッファ層の (100) 面は消滅則によりブラッグピークは観測されないため、Pt(100) 面あるいは FePt(001) 面付近の角度領域では人工格子部分に起因するピークのみを観測することができる。この角度領域では構造異常を起こすか起こさないに関わらずすべての人工格子の場合で 1 本のブロードなピークが観測される。Fig. 2 に、この FePt(001) 面付近に観測されたピークか

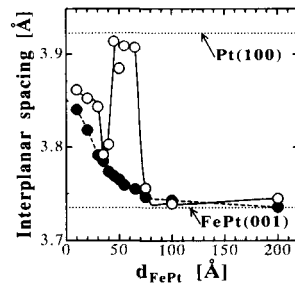


Fig. 2 d_{FePt} dependence of the (001) interplanar spacing for FePt ($d_{\text{FePt}}\text{Å}$)/Pt (50Å) multilayer films on MgO(100) substrates. Solid circles indicate the calculation from the step model.

ら求めた格子面間隔の d_{FePt} 依存性を示す。同時に FePt および Pt の格子面間隔として文献値 (FePt⁸⁾: $a=3.905\text{Å}$, $c=3.735\text{Å}$ Pt¹⁰⁾: $a=3.923\text{Å}$) を仮定したステップモデル¹¹⁾から得られた格子面間隔の d_{FePt} 依存性も示す。ただし、ステップモデルによる計算ではメインピークとサテライトピークの幅が広がり 1 本のピークとなったと考えて格子面間隔の値を求めた。構造異常を起こす $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ 付近を除くと、格子面間隔の変化はステップモデルによる結果と比較的良好一致を示していることから構造異常を起こさない領域では FePt 層は膜面垂直に c 軸配向していると考えられる。一方、構造異常を起こす領域では格子面間隔がステップモデルによる結果よりもかなり大きくなり、Pt(100) 面の格子面間隔に近い値が得られている。したがって構造異常を起こす領域では何らかの理由で FePt 層と Pt 層の拡散が進むことにより、化学量論よりも Pt 過剰側にずれた FePt 合金が形成されていることが推測される。

3.2 磁気特性

Fe-Pt 合金には Cu_3Au 型規則合金の Pt_3Fe ($T_N=170\text{K}$) と Pt_3Fe よりはやや Fe 過剰側にずれた $\text{Pt}_{2.2}\text{Fe}$ の組成付近の合金 ($T_N=120\text{K}$) という二つの異なる磁気構造を持つ反強磁性相の存在が報告されている¹²⁾。構造異常を起こす領域では Pt 過剰側にずれた FePt 合金が形成されているならば、このような反強磁性相が存在していることが予想されるので磁場冷却を行った時のヒステリシスループの測定を行った。Fig. 3 に MgO 基板上の FePt (50Å)/Pt (50Å) 人工格子の 5 T で磁場冷却をした時の 4.5 K でのヒステリシスループを示す。比較のため零磁場で冷却した時のヒステリシスループも同時に示す。磁場冷却した場合に 330 Oe 程度のループシフトが確認でき、先に述べた反強磁性相が混在していると思われる。一方構造異常を起こさない人工格子においては、

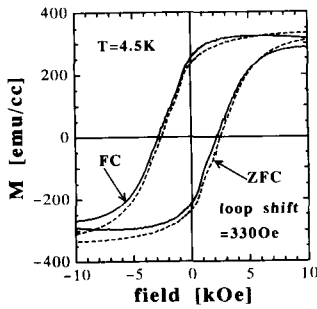


Fig. 3 Hysteresis loops of the FePt (50Å)/Pt (50Å) multilayer film on a MgO(100) substrate at 4.5K in field cooling (FC). The loop in zero field cooling (ZFC) is also shown with broken lines.

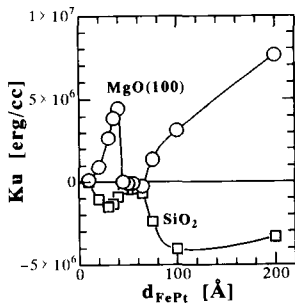


Fig. 4 d_{FePt} dependence of uniaxial magnetic anisotropy constant K_u for FePt (d_{FePt} Å)/Pt (50Å) multilayer films on MgO(100) (circles) and quartz (squares) substrates.

このようなループシフトは観測されない。したがって構造異常の起こる場合にはFePt層とPt層間の拡散が進み化学量論よりもPt過剰側にずれた合金となり、その一部が規則化することにより反強磁性相となっていることが示唆される。

次に磁気異方性について述べる。Fig. 4にMgO基板上の人工格子の一軸異方性定数 K_u の d_{FePt} 依存性を示す。 K_u を求めるに当たってはMiyajimaらの方法¹³⁾を用いた。ここで K_u の値はFePt層の総体積当たりの値である。膜面垂直にFePt層の[001]方向が配向したMgO(100)基板の場合には $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ 付近を除いてすべて $K_u>0$ の垂直磁化膜となっている。一方、膜面垂直に(111)面が優先配向した石英基板の場合にはすべて面内磁化膜となっている。したがってMgO基板の場合の正の垂直磁気異方性の主な原因はFePt層の結晶磁気異方性であると考えられる。Fig. 5に垂直磁化膜となるMgO基板上の $d_{\text{FePt}}=35\text{Å}$ の人工格子のビッターパターンを示す。Fig. 5(b)から垂直磁化膜によく見られるストリップ磁区が現れていることが分かる。Fig. 5(a)に(b)

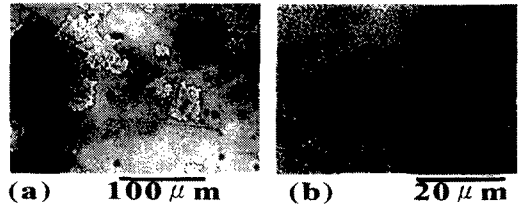


Fig. 5 Bitter patterns of the FePt (35Å)/Pt (50Å) multilayer film on a MgO(100) substrate.

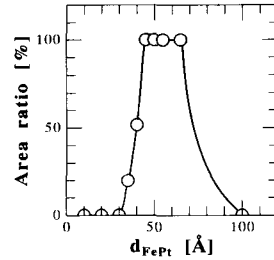


Fig. 6 d_{FePt} dependence of the area ratio of the region where no magnetic domains can be seen for FePt (d_{FePt} Å)/Pt (50Å) multilayer films on MgO(100) substrates.

の場合よりも倍率を下げて視野を広げた写真を示すが、ストリップ磁区の外に磁区の観察されない領域がかなり見られることが分かる。この領域の全体に対する面積比の d_{FePt} 依存性をFig. 6に示す。 d_{FePt} が30Å以下の場合には磁区の観察されない領域は確認されないが、 d_{FePt} が35Åから45Åの間で急速に面積が増加し、構造異常を起こす $d_{\text{FePt}}=45\text{Å}$ から65Åの範囲では全体が磁区の観察されない領域となる。さらに d_{FePt} が増加し $d_{\text{FePt}}=100\text{Å}$ の場合にはストリップ磁区のみが観察されるだけとなる。したがって、Fig. 5のビッターパターンに見られる磁区の観察されない部分が構造異常を起こしている領域であると推測される。

3.3 光磁気特性

Fig. 7(a), (b)にMgO基板上に作製した $d_{\text{FePt}}=200\text{Å}$, 100Å, 50Åと35Åの場合の人工格子の θ_K と η_K スペクトルを各々を示す。比較のためにFePt合金単層膜のスペクトルも示す。人工格子の短波長側での θ_K の値は $d_{\text{FePt}}=50\text{Å}$ の場合を除くと d_{FePt} が大きいくほど増大しており、 $d_{\text{FePt}}=200\text{Å}$ の場合には合金単層膜の値を越えている。 η_K スペクトルの場合も同様に400nm以下の短波長側で $d_{\text{FePt}}=200\text{Å}$ と100Åの人工格子の η_K が合金単層膜の値よりもかなり大きくなっていることがわかる。このように人工格子の θ_K および η_K が短波長側で増強される理由として、多重反射の効果の他に界面の磁気

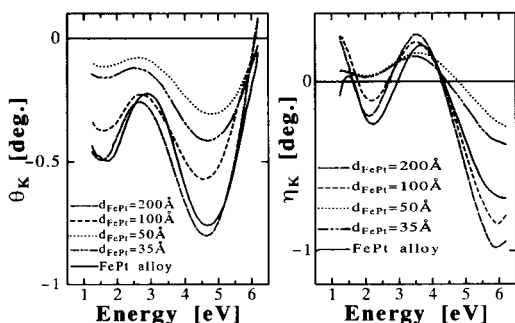


Fig. 7 θ_K spectra (a) and η_K spectra (b) of FePt ($d_{\text{FePt}} \text{Å}$)/Pt (50Å) multilayer films on MgO(100) substrates with $d_{\text{FePt}} = 200 \text{Å}$, 100Å, 50Å and 35Å. The spectra of the FePt single layer film are also shown.

分極した Pt が寄与していることが考えられるが、さらに誘電率テンソルまで遡った仮想光学定数の方法¹⁴⁾を用いた解析が必要であると思われる¹⁵⁾。

$d_{\text{FePt}} > 50 \text{Å}$ の場合の人工格子の η_K スペクトルは合金単層膜の場合とほぼ似通った形状を有しているが、 d_{FePt} が 50Å より小さくなると低エネルギー側での極大は負の値をとるようになり、スペクトルの形状に違いが見られる。 θ_K スペクトルでも $d_{\text{FePt}} > 50 \text{Å}$ の場合に比べて $d_{\text{FePt}} < 50 \text{Å}$ の場合では低エネルギー側のピークが著しく減少している。このように構造異常の起こる $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近を境にしてスペクトルの形状に違いが見られることは、何らかの理由で電子状態が変化していることが推測される。 θ_K とホール角の関係においても $d_{\text{FePt}} > 50 \text{Å}$ の場合で異なる直線関係が得られており⁵⁾、この電子状態の変化を支持する結果となっている。

4. ま と め

MgO 基板上の FePt/Pt 人工格子の $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近の構造異常と磁気特性及び光磁気特性との関連を調べた。

1) 人工格子の (001) 面の格子面間隔の d_{FePt} 依存性から構造異常になる $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近の人工格子では何らかの原因で異常に拡散が進み、化学量論比よりも Pt 過剰の FePt 合金が形成されていると考えられる。

2) 磁場冷却した場合の低温におけるヒステリシスループのループシフトから、 $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近の人工格子には Pt_3Fe などの反強磁性相が混在していると考えら

れる。

3) 人工格子のビッターパターンは $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近を除いて垂直磁化膜に特有なストリップ磁区を示した。一方 $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近では磁区の見られない領域が認められ、この領域が、構造異常を起こしている部分であると考えられる。

4) θ_K と η_K スペクトルの形状の変化から、 $d_{\text{FePt}} > 50 \text{Å}$ と $d_{\text{FePt}} < 50 \text{Å}$ の場合で人工格子の電子状態の違いが生じている可能性が示唆される。

5) 今後の課題としてどのような原因で $d_{\text{FePt}} = 50 \text{Å}$ 付近で異常に拡散が進むのか、また拡散が進んだ結果具体的にどのような構造を持った膜となっているのか詳細を明らかにするため TEM による断面観察や人工格子の成長過程のその場観察を行う必要がある。

文 献

- 1) C. J. Lin, G. L. Gorman, C. H. Lee, R. F. C. Farrow, E. E. Marinero, H. V. Do, H. Notarys and C. J. Chien: *J. Magn. Magn. Mat.*, **93**, 194 (1991).
- 2) S. Ruegg, G. Schutz, P. Fischer, R. Wienke, W. B. Zeper and H. Ebert: *J. Appl. Phys.*, **69**, 5655 (1991).
- 3) S. Hashimoto and Y. Ochiai: *J. Magn. Magn. Mat.*, **88**, 211 (1990).
- 4) 渡辺雅人, 高梨弘毅, 藤森啓安: 日本応用磁気学会誌, **15**, 415 (1991).
- 5) K. Takanashi, M. Watanabe and H. Fujimori: *J. Magn. Magn. Mat.* (Proceedings of ICM '91 in Edinburgh), in press.
- 6) M. Watanabe, K. Takanashi and H. Fujimori: submitted to *J. Magn. Magn. Mat.* (presented at ICMFS in Glasgow, 1991).
- 7) O. A. Ivanov, L. V. Solina, V. A. Demshina and L. M. Magat: *Fiz. Metal. Metalloved.*, **35**, 92 (1973).
- 8) K. H. J. Buschow, P. G. van Engen and R. Jongebreur: *J. Magn. Magn. Mat.*, **38**, 1 (1983).
- 9) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2403 (1981).
- 10) 日本化学会編: 化学便覧 基礎編 II 改訂 3 版, 丸善, (1984), p. 695.
- 11) A. Segmuller and A. E. Blakeslee: *J. Appl. Cryst.*, **6**, 19 (1973).
- 12) A. Z. Men'shikov, Yu. A. Dorofeyev, V. A. Kazantsev and S. K. Sidorov: *Fiz. Metal. Metalloved.*, **38**, 505 (1974).
- 13) H. Miyajima, K. Sato and T. Mizoguchi: *J. Appl. Phys.*, **47**, 4669 (1976).
- 14) K. Ohta, A. Takahashi, T. Deguchi, T. Hyuga, S. Kobayashi and H. Yamaoka: *SPIE*, No. **382**, 252 (1983).
- 15) K. Sato: in preparation.

1991 年 11 月 11 日受理, 1991 年 12 月 17 日採録