Fe/Pt 系組成変調多層膜における垂直磁気異方性の温度依存性

Temperature Dependence of Perpendicular Magnetic Anisotropy in Fe/Pt Compositionally Modulated Multilayer Films

杉本利夫*・片山利一・橋本昌俊*・鈴木義茂・西原美一

電子技術総合研究所, 茨城県つくば市梅園 1-1-4 (☎305)

*日本大学理工学部, 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 (☎274)

T. Sugimoto*, T. Katayama, M. Hashimoto*, Y. Suzuki and Y. Nishihara

Electrotechnical Laboratory, 1-1-4, Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305

*College of Sci. & Technol., Nihon Univ., 7-24-1, Narashinodai, Funabashi, Chiba 274

Temperature dependences of magnetization and magnetic anisotropy were investigated in Fe/Pt compositionally modulated multilayer films (CMF's) prepared by rf sputtering method. The magnitude of surface magnetic anisotropy K_s of Fe/Pt CMF's is nearly equal to that of Co/Pt CMF's at 77 K and room temperature. Absolute value of volume magnetic anisotropy K_v of Fe/Pt CMF's is about two times as large as that of Co/Pt CMF's. The K_s obtained from the CMF's with thick Fe layer thickness seems almost constant against temperature. However, the K_v decreases gradually with temperature increases in Fe/Pt CMF's. The relation between the saturation magnetization $M_s(T)$ and the perpendicular magnetic anisotropy $K_{\perp}(T)$ are discussed.

Key words: Fe/Pt, compositionally modulated multilayer film, perpendicular magnetic anisotropy, volume magnetic anisotropy, surface magnetic anisotropy, saturation magnetization

1. はじめに

Co/Pt, Fe/Pt, Co/Pd 系などの組成変調多層膜は、磁性層厚を薄くすると大きな垂直磁気異方性が誘起され、垂直磁化膜になる^{1), 2)}。またこれらの組成変調多層膜は、短波長域において大きな磁気 Kerr 回転角を示すので^{3)~5)}、将来の高密度光磁気記録材料としての応用が期待されている。さらに、これらの組成変調多層膜の垂直磁気異方性や磁気光学 Kerr 効果の起源を調べることは、学術的に非常に興味のある問題となっている。現在、垂直磁気異方性の起源として、表面磁気異方性^{1)~3)}、6)や格子不整合に伴うひずみ誘導磁気異方性の寄与⁷⁾などが考えられているが、まだ十分に明らかにされていない。そこで、Fe/Pt 系組成変調多層膜の垂直磁気異方性の起源を知る手掛かりを得ることを目的として、飽和磁

化、表面磁気異方性、垂直磁気異方性などの温度特性を調べたので、その結果を報告する。

2. 実験方法

Fe/Pt 系組成変調多層膜（以下、多層膜という）を、2 元高周波スパッタ装置で作製した。スパッタ原子の堆積時間により各金属層の厚さを制御した。主なスパッタ条件は、到達真空度： $\sim 10^{-8}$ Torr 台、電極間距離：40 mm、予備スパッタ時間：3 時間以上、入力電力：約 50 W、スパッタ (Ar) ガス圧：11 mTorr、ターゲット：単金属ターゲット（純度 Fe: 99.95%, Pt: 99.99%）、基板：水冷ガラスまたは石英基板である。

X 線回折法（X 線源：Co- K_{α} ）により、組成変調周期と結晶性を調べた。試料全体の膜厚は、1500~3300 Å である。磁化曲線および飽和磁化 (M_s) は、量子干渉型磁力計または振動試料型磁力計により、5 K から 300 K もしくは 400 K の温度範囲で測定した。面内方向と膜面に垂直な方向に磁場を加えたときの二つの磁化曲線の囲む面積より、形状磁気異方性エネルギーの補正をしていない実効的な垂直磁気異方性エネルギー ($K_{\perp, \text{eff}}$) を算出した。

3. 実験結果

Fig. 1(A), (B) に、一例として、{Fe(2.8 Å)/Pt(18.5 Å)}₈₀ 多層膜の小角および広角領域における X 線回折図形を示す。Fig. 1(A) においては、周期構造を示す回折線を 2 次まで確認することができ、この膜が周期構造をもつことがわかる。Fig. 1(B) の X 線回折図形からは、この多層膜の Pt 層が fcc(111) 配向していることがわかる。このような周期構造と配向性は、今回作製したすべての膜で確認された。しかし、Fe bcc(110) テクスチャー構造に起因する回折線は観察されなかった。同条件で作製した Co/Pt 系多層膜と Fe/Pt 系多層膜の周期性、結晶性

Fig. 1 Low (A)- and high (B)-angle X-ray diffraction patterns of $\{\text{Fe}(2.8\text{\AA})/\text{Pt}(18.5\text{\AA})\}_{80}$ multi-layer film.

を比較した結果、小角領域における回折線の数や広角領域の主回折線の回折強度に顕著な差は見られなかった。

Fig. 2 に、Fe/Pt 系多層膜の Pt 層厚を一定としたときの飽和磁化 (M_s) の Fe 層厚 (d_{Fe}) 依存性を示す。ここで、 M_s の値は Fe 層厚の単位体積当りに換算した値である。Fe 層厚が 15 Å 以上の厚い領域での M_s の値は、293 K, 5 K 共に、Fe バルクの値よりも大きく、ほぼ一定である。しかし、Fe 層厚が約 15 Å 以下になると、293 K での M_s は、Fe 層厚の減少に伴い徐々に減少する。一方、5 K での M_s は Fe 層厚が約 10 Å 以下になると増大する。

Fig. 3 に、Fe/Pt 系多層膜の M_s の温度依存性を示す。低温での M_s は、Fe 層厚の薄い多層膜がより大きな値を示している。また、Fe 層厚が薄くなるに従い、キュリー点 (T_c) が低下する傾向にあることもわかる。

Fig. 4 と Fig. 5 に、Fe/Pt 系および Co/Pt 系多層膜の実効的な垂直磁気異方性エネルギー（形状磁気異方性の補正をしていない垂直磁気異方性エネルギー： K_{eff} ）と磁性層厚 (d_{Fe} および d_{Co}) の積の磁性層厚依存性を示す。これらの図から、Fe/Pt 系多層膜は Fe 層厚が約 5 Å 以下で、Co/Pt 系多層膜は Co 層厚が約 8 Å 以下の領域で室温で垂直磁化膜となることがわかる。Fig. 4 から、Fe/Pt 系多層膜の表面磁気異方性エネルギー (K_s) はほとんど温度変化せず、体積磁気異方性エネルギー (K_v) の大きさは低温になるに従い大きくなることがわかる。尚、 K_s と K_v は以下の関係式⁶⁾より求めた。

Fig. 2 Fe layer thickness (d_{Fe}) dependence of saturation magnetization (M_s) in Fe/Pt multi-layer films with almost constant Pt layer thickness at 5 K and 293 K.

Fig. 3 Temperature dependence of M_s in Fe/Pt multilayer films with several kinds of Fe layer thickness.

$$K_{\text{eff}} \cdot d_{\text{Fe, Co}} = K_v \cdot d_{\text{Fe, Co}} + 2K_s \quad (1)$$

また Fig. 5 により Co/Pt 系多層膜の K_s も、温度に対してほとんど変化せず、 K_v , K_s とともに Fe/Pt 系と同様の傾向を示していることがわかる。これら K_s と K_v の温度依存性を Fig. 6 に示す。 K_v の値と形状磁気異方性エネルギー ($2\pi M_s^2$) とを比較するために、図には $2\pi M_s^2$ の値も示した。この時、 M_s の値としては、磁性層厚の厚い領域の値を用いた。Fig. 6 から Fe/Pt 系と Co/Pt 系多層膜の K_s の値は、Fe/Pt 系、Co/Pt 系ともほぼ等しく、温度変化はほとんど見られない。一方、Fe/Pt 系多層膜の K_v は Co/Pt 系多層膜の K_v の約 2 倍であり、温度の上昇とともに徐々に減少する傾向を示す。いずれの多層膜においても、 K_v の大きさは磁性層厚当たりの M_s から求めた $2\pi M_s^2$ よりも小さい。

Fig. 7 に、室温で垂直磁化膜となった Fe/Pt 系多層膜の実効的な垂直磁気異方性エネルギー (K_{eff}) の温度依

Fig. 4 Effective magnetic anisotropy ($K_{\perp\text{eff}}$) multiplies the Fe layer thickness (d_{Fe}) as a function of d_{Fe} for Fe/Pt multilayer films with almost constant Pt layer at several temperature.

Fig. 5 $K_{\perp\text{eff}}$ multiplies the Co layer thickness (d_{Co}) as a function of d_{Co} for Co/Pt multilayer films with constant Pt layer at 77 K and 293 K.

存性を示す。{Fe(4.7Å)/Pt(18.5Å)}₈₀多層膜では、温度の低下に伴い、 $K_{\perp\text{eff}}$ が減少し、200 K付近で垂直磁化膜から面内磁化膜に変化している。多層膜のFe層厚が薄くなるに従い、垂直磁化膜から面内磁化膜に変化する温度は低温側にシフトして行き、Fe層厚がほぼ1原子層に近い{Fe(2.8Å)/Pt(18.5Å)}₈₀多層膜では、 $K_{\perp\text{eff}}$ は温度が低くなるにつれて増加するようになる。このことから、Fe層厚を厚くするほど、低温での $K_{\perp\text{eff}}$ が減少することがわかる。

そこで、本質的な垂直磁気異方性の振舞を明らかにするために、各多層膜について、形状磁気異方性エネルギーの補正を行い、次式で示されるような膜本来の垂直磁気異方性エネルギー($K_{\perp}$)を求めた。

$$K_{\perp} = 2K_s/d_{\text{Fe}} + (K_v - 2\pi M_s^2) \quad (2)$$

$K_{\perp}$ の温度特性をFig. 8に示す。Fe層厚が薄い場合、低温で $K_{\perp}$ は増大し、温度変化が著しくなる。 $K_{\perp}$ の温度変化は M_s の温度変化と類似しているが、より激しい。し

Fig. 6 Temperature dependence of surface magnetic anisotropy (K_s) and volume magnetic anisotropy (K_v) in Fe/Pt and Co/Pt multilayer films with almost constant Pt layer thickness of 18Å.

Fig. 7 Temperature dependence of $K_{\perp\text{eff}}$ in Fe/Pt multilayer films with several kinds of Fe layer thickness.

かし、Fe層厚が厚い場合、 M_s の温度変化に対して $K_{\perp}$ の変化は小さい。この傾向はCo/Pt系多層膜においても同様であった。

4. 考 察

Fig. 2 および Fig. 3 において、Fe/Pt系多層膜の M_s がFeバルクの値よりも増大している。これは、Ptに隣接したFeの磁気モーメントの増加およびスピンの極化したPtの磁気モーメントの重畳によるものと考えられる。また、293 KにおいてFe層厚が薄くなることにより M_s が減少するのは、 T_c の低下によるものである。この T_c の減少の原因は、Fe原子同士の3次元的結合が、Fe層厚の減少により2次元的なものに変化したためと界面でのFe原子のミキシングによるものと考えら

Fig. 8 Temperature dependence of perpendicular magnetic anisotropy ($K_{\perp}$) in Fe/Pt multilayer films with several kinds of Fe layer thickness.

れる。

Fig. 4 と Fig. 5 で、垂直磁化膜となった磁性層の領域で、実験値が式 (1) の直線よりずれているのは、積層界面の乱れ及び T_c の低下によるものと考えられる。実験的には Co/Pt 系多層膜の方が、Fe/Pt 系多層膜よりも垂直磁化膜になりやすいが、この原因は Fig. 6 の結果からわかるように、二つの系で K_s が同程度なのに対して、Co/Pt 系の K_v が Fe/Pt 系のそれよりも小さいことによる。さらに、両者の多層膜で $2\pi M_s^2$ と K_v の大きさを比較すると、 K_v よりも $2\pi M_s^2$ の方が大きい。このことは、分極した Pt の磁気モーメントを無視したことにより Fe 層当たりの磁気モーメントを大きく見積りすぎたため、あるいは磁化を垂直にしようとする何らかの磁気異方性が K_v の中にあることを示唆している。

次に、Fig. 7 と Fig. 8 を比較すると、 $K_{\perp}$ と M_s の温度変化が類似した挙動を示していることがわかるが、このことは、Zener が報告したように⁸⁾、 M_s と $K_{\perp}$ が何らかの密接な関係を持っていることを示唆しているものと考えられる。 $K_{\perp}$ と M_s の関係を明らかにすることは、 $K_{\perp, \text{eff}}$ の特異な温度変化や垂直磁気異方性の起源について、重要な知見を与えようと考えられる。

5. まとめ

高周波スパッタ法を用いて、Fe/Pt 系組成変調多層膜を作製し、飽和磁化、表面磁気異方性、垂直磁気異方性などの温度依存性を測定した。結果をまとめると、

1) Fe/Pt 系多層膜の表面磁気異方性エネルギー (K_s) は、Co/Pt 系多層膜の K_s とほぼ等しい。また、Fe/Pt 系多層膜の体積磁気異方性エネルギー (K_v) は、Co/Pt 系の約 2 倍である。そのため、Co/Pt 系の方が Fe/Pt 系よりも垂直磁化膜になりやすい。

2) 磁性層厚の厚い領域から算出した K_s は、ほとんど温度変化しない。

3) Fe 層厚が 4 Å 近傍の Fe/Pt 系多層膜は、温度を室温から低下するにつれて、垂直磁化膜から面内磁化膜に変化する。

多層膜の垂直磁気異方性の起源を明らかにするためには、今後、種々の系で垂直磁気異方性エネルギー ($K_{\perp}$)、 K_s 、飽和磁化 (M_s) の温度変化とその相互関係を詳細に検討することが重要である。

謝 辞

本研究を遂行するに当たり、電子技術総合研究所量子材料研究室吉田貞史博士をはじめ研究室諸氏、日本大学理工学部川西健次教授、伊藤彰義教授に有益な御助言を頂きました。ここに深く感謝いたします。

文 献

- 1) P. F. Garcia, A. D. Meinhardt and A. Suna: *Appl. Phys. Lett.*, **47**, 178 (1985).
- 2) P. F. Garcia: *J. Appl. Phys.*, **63**, 5066 (1988).
- 3) W. B. Zeper, F. J. M. Greidaus, P. F. Garcia and C. R. Fincher: *J. Appl. Phys.*, **65**, 4971 (1989).
- 4) 中村公夫, 綱島 滋, 岩田 聡, 内山 晋: 日本応用磁気学会誌, **13**, 319 (1989).
- 5) T. Sugimoto, T. Katayama, Y. Suzuki and Y. Nishihara: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**, L2333 (1989).
- 6) H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge and F. J. A. den Broder: *J. Magn. Magn. Mat.*, **66**, 351 (1987).
- 7) S. Tsunashima, K. Nagase, K. Nakamura and S. Uchiyama: *IEEE Trans. Magn.*, **Mag-25**, 351 (1989).
- 8) C. Zener: *Phys. Rev.*, **96**, 1335 (1954).

1990 年 12 月 3 日受理, 1991 年 1 月 16 日採録