Bi 下地による FePt 規則相の低温合成

Low-Temperature Formation of Ordering Phase in FePt Film with Bi Under Layer

宮崎孝道・岡本 聡^{*}・北上 修^{*}・島田 寛^{*}

東北大学工学研究科応用物理学専攻, 仙台市青葉区荒巻字青葉 08 (〒980-8579)

^{*}東北大学多元物質研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

T. Miyazaki, S. Okamoto^{*}, O. Kitakami^{*}, and Y. Shimada^{*}

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University

^{}Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University*

We investigated the L1₀ ordering process of FePt films deposited on a Bi underlayer. When annealed at relatively low temperatures, Bi tends to move toward the surface of an FePt layer. It was found that Bi travels along the grain boundary of FePt. This accelerates coalescence of FePt grains with intensive atomic diffusion, which leads to faster transformation from the disordered phase to the ordered. Subsequent rapid increase of coercivity is observed after annealing at 350 °C. This appreciable reduction of ordering temperature may remove the difficulty of fabrication of L1₀-type, high-density recording media.

Key words: L1₀-FePt, underlayer, grain boundary, coalescence, atomic diffusion

1. はじめに

磁気記録媒体の超高密度化を進める上で、媒体を構成する磁性微粒子のナノスケールの微細化が要求される。しかしながら、磁性微粒子のサイズの低減は媒体ノイズを軽減させる一方、磁性微粒子がもつ磁気異方性エネルギーをも低下させ、磁化の熱揺らぎによる記録磁化の不安定性を生み出す。これに対応できる磁性体材料として、L1₀構造で高い一軸異方性エネルギー ($K_u = 7.0 \times 10^7$ erg/cc) を有する FePt 規則合金¹⁾²⁾が注目を集めているが、その応用に向けて克服すべき課題が多く、そのひとつにプロセス温度の低減の問題がある。これまでの FePt 系薄膜の研究報告では、スパッタリングにより作製した単層膜³⁾やグラニュー膜⁴⁾の場合、不規則相から規則化が開始される温度が 600°C 前後と非常に高く、粒子の微細化、結晶配向制御と規則化が同時に行えるようなプロセス温度の低減が重要になると思われる。

我々は、Ag を添加した FePt-SiO₂ グラニュー膜において、Ag が規則化に対して有効に作用し、その原因がグラニュー膜中の FePt 微粒子合体の促進である事、また、単層膜では格子欠陥や非固溶添加物を介した原子拡散に FePt の規則化が強く依存し、CoPt-X (X = Sn, Pb, Sb,

and Bi) においては、これらの規則相形成温度を約 400°C まで低減できることを報告してきた⁵⁾⁶⁾。

そこで、特に Bi については、適度な熱処理後に膜表面から蒸散するので、添加量に自由度が大きく、表面エネルギーが非常に低いので、Bi 下地上の極薄の FePt は島状構造を形成しやすい利点がある。本研究では、FePt/Bi/sub. 膜を作製し、熱処理過程における FePt 規則相の形成への影響および FePt 微細構造の変化について検討した。

2. 試料の作製及び実験方法

試料は、表面酸化膜を形成させたシリコン基板上に FePt (20 nm) / Bi (0 ~ 560 nm) / sub.(Si) 膜を DC マグネトロンスパッタ装置で製膜した。FePt は合金ターゲット (Fe₅₀Pt₅₀) を用い、基板温度は室温、到達真空度は 1×10^{-8} Torr 以下、また製膜中の Kr ガス圧は 5 mTorr とした。製膜速度はそれぞれ FePt が 0.94 Å/sec, Bi が 2.33 Å/sec であった。作製した試料の熱処理は、スパッタ装置内に据え付きのランプ加熱で行い、昇温時間 40 min, 熱処理温度 (T_a) 260 ~ 620°C とし、所定温度に 40 分間保持して熱処理を施した。熱処理後の試料は、基板準備室 (1×10^{-7} Torr 以下) に移して急冷をおこなった。試料の磁気特性は、振動試料型磁力計 (VSM) により最大印加磁場 15 kOe で膜面内及び膜面垂直方向に磁場を印加して測定した。また結晶構造及び試料の膜深さ方向の測定は、Cu-K α 線を用いた X 線回折 (XRD), 及び X 線光電子分光 (XPS) により調べた。

3. 結果及び考察

3.1 FePt/Bi 膜の磁気特性

Fig.1 は FePt 単層膜及び FePt/Bi 膜の面内保磁力 (H_c) の熱処理温度 (T_a) 依存性である。この図からわかるように、FePt 単層膜の場合、 $T_a \leq 320^\circ\text{C}$ では H_c は非常に小さく、 $T_a > 320^\circ\text{C}$ において H_c は T_a の増加とともに増大

Fig. 1 Coercivity of FePt(20 nm)/Bi(14 nm) and FePt(20 nm) films as a function of annealing temperature.

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of FePt(20 nm)/Bi(10 nm) films after annealing. Diffraction peaks of Bi, ordered-FePt, and other FePt are marked by double circles (◎), open triangles (▽), and solid triangles (▼), respectively.

している。これに対し FePt/Bi 膜の場合、 $T_a \sim 260^\circ\text{C}$ 付近において H_c の立ち上がりがみられ、 T_a の増加とともに急激に増大している。なかでも $T_a \geq 350^\circ\text{C}$ では H_c は 5 kOe 以上の値を示し、FePt 単層膜と比較して 100°C 程度低い T_a から保磁力が立ちあがることがわかった。

3.2 FePt/Bi 膜の規則化の進行過程

Fig.2 は、FePt/Bi 膜における XRD 回折パターンが T_a 依存性である。図中の回折線においてそれぞれ◎は Bi、▽は FePt (規則格子反射) 及び▼は FePt (基本格子反射) を示す。図からわかるように、 $T_a \leq 350^\circ\text{C}$ では Bi の回折線がみられるが、 $T_a \geq 410^\circ\text{C}$ において Bi の回折線は完全

(a) $T_a = 290^\circ\text{C}$

(b) $T_a = 500^\circ\text{C}$

Fig. 3 The XPS depth profiles for FePt(20 nm)/Bi(10 nm) at $T_a = 290, 500^\circ\text{C}$.

に消失する。これは、Bi の単体の飽和蒸気圧が低いことを考慮すると、Bi が蒸発していることが考えられる。また、ここで注目すべき点は、 $350^\circ\text{C} \leq T_a \leq 410^\circ\text{C}$ において、Bi の回折線の消失と同時に起こる FePt 規則相による回折線の出現であり、FePt の規則相の形成が 350°C 付近から始まっていることである。Fig.1 に示した H_c の増加は、この規則相の形成にほぼ一致している。

次に、熱処理中の Bi の挙動を知るため、XPS による膜内深さ方向分析をおこなった。Fig.3 に $T_a = 290, 500^\circ\text{C}$ の場合の XPS depth profile の結果を示す。 $T_a = 290^\circ\text{C}$ では、FePt の下地に形成されていた Bi が FePt 膜面内に、一方 $T_a = 500^\circ\text{C}$ においては膜表面に僅かに偏析している。このことから、 $T_a = 290^\circ\text{C}$ 前後では下地として形成した Bi が膜表面へ向かって移動している事が確認できる。次に、Bi の FePt 膜内の移動過程における結晶状態を調べるために、単

Fig. 4 Lattice spacing d_{111} of FePt(20 nm)/Bi(14 nm) and FePt(20 nm) films as a function of annealing temperature.

層膜と FePt/Bi 膜の FePt(111)の面間隔(d_{111})の熱処理温度 (T_a) 依存性を調べた。その結果を Fig.4 に示す。この図から、いずれの膜においても、 T_a の増加にともない規則化が進行していることによって、 d_{111} が減少する傾向がみられた。また、 $T_a = 290^\circ\text{C}$ 前後ならびにその後の T_a の増加においても、FePt/Bi 膜の d_{111} は FePt 単層膜の d_{111} に非常に近い。このことから Bi は FePt の結晶格子内に進入せずに FePt の粒界を移動しながら、膜表面へ移動しているものと考えられる。Fig.5 には、FePt(111)面からの回折プロファイルから求めた結晶サイズ (d) の T_a に対する変化を示す。FePt 単層膜では、 $T_a > 440^\circ\text{C}$ において d の増加がみられるのに対し、FePt/Bi 膜の場合では、 $T_a > 320^\circ\text{C}$ において著しい d の増加がみられる。

以上の一連の結果より、FePt/Bi 膜において d が増加し始める T_a は、 H_c の増加し始める T_a 、ならびに規則相が形成し始める T_a にほぼ一致していることが確認できること、更に Bi が膜表面へ拡散し始める T_a を考慮すると、FePt/Bi 膜では、Bi が FePt の粒界を活発に移動することで FePt の粒子合体(coalescence)による結晶成長を促し、粒成長に伴い規則化の活性化エネルギーを下げていることが考えられる。このような、nm オーダーの FePt の微結晶構造において、粒子合体による結晶成長が規則化を促進する現象は、すでに FePt-SiO₂ グラニューラー構造において報告しており⁷⁾、FePt/Bi 膜についても同様の促進効果が起こったものと考えている。本研究で見出された Bi の効果は、更に薄い FePt/Bi の積層構造を作製し、また、結晶配向を制御する第2の下地をおく事により、微細な粒子構造を持ち、配向性の高い FePt 規則相の記録媒体が作られる可能性を示唆している。

Fig. 5 Coherent length of FePt (20 nm)/Bi (14 nm) and FePt (20 nm) films as a function of annealing temperature.

4. まとめ

本研究では、FePt/Bi/sub 膜における Bi 下地の FePt 規則相形成への影響について検討した。その結果、単層膜に比べて規則化開始温度が 350°C 程度と非常に低く、この過程では、Bi が FePt の粒界を移動し膜表面へ拡散する際、FePt の粒子成長を促すことがわかった。

謝辞 本研究は、本研究は未来開拓プロジェクト(No. 97R14701)の援助で行われた。

文 献

- 1) K. R. Coffey, M. A. Parker, and J. K. Howard, *IEEE Trans. Magn.* 31, 2737 (1995).
- 2) T. Suzuki, N. Honda, and K. Ouchi, *J. Phys. Soc. Jpn.* 21, 177 (1997).
- 3) M. Watanabe and M. Honma, *Jpn. J. Appl. Phys.* 35, L1264 (1996).
- 4) C. P. Luo and D. J. Sellmyer, *Appl. Phys. Lett.* 75, 3162 (1999).
- 5) C. Chen, O. Kitakami, S. Okamoto, Y. Shimada, K. Shibata and M. Tanaka, *IEEE Trans. Magn.* 35, 3466 (1999).
- 6) O. Kitakami, Y. Shimada, K. Oikawa, H. Daimon and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.* 78, 1104 (2001).
- 7) T. Saito, T. Sakurai, J. W. Cai, O. Kitakami and Y. Shimada, "Grain growth and L1₀ ordering in FePt-SiO₂ granular films", CG-3, ISPM/ISAMT2001, Taipei, Taiwan, 2001.

2001年10月15日 受理, 2002年01月17日 採録