

氏名(本籍)	王 博翀 (中国)
専攻分野の名称	博士 (工学)
学位記番号	工博甲第215号
学位授与の日付	平成26年9月29日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工学資源学研究科 (機能物質工学)
学位論文題名	Preparation and investigation of magnetic properties of iron-cobalt thin films with perpendicular magnetic anisotropy (垂直磁気異方性を有する FeCo 薄膜の合成と磁気特性に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 石尾 俊二 (副査) 教授 齋藤 嘉一 (副査) 教授 大笹 憲一 (副査) 教授 齋藤 準 (副査) 教授 田島 克文

## 論文内容の要旨

In this thesis, FeCo films with perpendicular magnetic anisotropy were prepared by a high vacuum multiple dc-sputtering system. All of the experimental efforts were devoted to obtain the tetragonal distorted FeCo films which possess both large saturation magnetization and high magnetic anisotropy energy. It has great potential for using as the ultra-high density perpendicular magnetic recording media and the permanent magnet.

The experiments included three sections: the  $[\text{FeCo}/\text{Ir}]_N$ ,  $[\text{FeCo}/\text{Pt}]_N$  multilayer films, the  $L1_0$  FePt/FeCo bilayer films and the  $L1_0$  CoPt/FeCo bilayer films. The films structure and magnetic properties were investigated.

### I. $[\text{FeCo}/\text{Ir}]_N$ and $[\text{FeCo}/\text{Pt}]_N$ multilayer films

For the  $[\text{FeCo}/\text{Ir}]_N$  multilayers, the easy axis of FeCo magnetic moment changes from in-plane to out of plane with decreasing the FeCo thickness, but it does not show the

perpendicular magnetic anisotropy. The reinforcement of magnetic anisotropy energy is mainly coming from the interface anisotropy. When the thickness of FeCo layer is fixed, the magnetic anisotropy energy increases with the Ir thickness. This enhancement may be due to the distorted FeCo film with perpendicular magnetic anisotropy.

For the  $[\text{FeCo/Pt}]_N$  multilayers, the crystal lattice of FeCo is distorted into a body centered tetragonal (bct) structure with  $c/a$  ratio in the range of 1.12 to 1.19, which is confirmed by the XRD measurement. The multilayer films show perpendicular magnetic anisotropy when the FeCo thickness is lower than 3 ML. According to the theoretical calculation and the structure analysis, the perpendicular anisotropy of  $[\text{FeCo/Pt}]_N$  multilayer film is induced by the strain. The saturation magnetization of the multilayer is enhanced by decreasing the temperature due to the Curie's law. The magnetic anisotropy energy obtained at liquid nitrogen temperature is agree with the theoretical calculation quite well.

## II. $L1_0$ FePt/FeCo bilayer films

The conditions to obtain the FePt film with  $L1_0$  ordered phase are optimized. FePt film annealed at 640 °C for 60 minutes will have the largest ordering parameter and magnetic anisotropy energy.

For the  $\text{Fe}_{60}\text{Pt}_{40}/\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  bilayer films, the lattice structure of  $\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  is distorted. The  $c/a$  ratio of  $\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  is around 1.07 at 3 nm and inversely proportional to the layer thickness. The polar MOKE and VSM results demonstrate that the easy magnetization axis of  $\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  layer is perpendicular to the film plane. The saturation magnetization of  $\text{Fe}_{60}\text{Pt}_{40}/\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  films increase with the FeCo layer. According to the LLG simulation, magnetic anisotropy energy of  $\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}$  film is separated from the whole system. It shows large positive magnetic anisotropy energy when the thickness is lower than 2 nm. The element-specific magnetic hysteresis curves are obtained from the XMCD measurement. Both Fe and Co hysteresis curves show perpendicular magnetic anisotropy. FeCo films with different composition are also investigated. The maximum positive magnetic anisotropy energy appears at Co 60 at.%, and then shift to negative when the composition is close to pure Fe or Co.

For the  $L1_0$   $\text{Fe}_{60}\text{Pt}_{40}/\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}\text{-C}$  bilayer films, the  $c/a$  ratio of  $\text{Fe}_{40}\text{Co}_{60}\text{-C}$  films increases linearly with the carbon content, which indicates that the C atoms are induced

into the lattice structure of FeCo and extend the  $c$  axis of FeCo. The magnetic property of Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub>-C films can be improved with a small amount of carbon and the magnetic anisotropy energy shows a maximum value around C 15 at.%.

The combination of high magnetic anisotropy energy and large saturation magnetization of L1<sub>0</sub> FePt and bct FeCo is quite attractive to create high density perpendicular magnetic recording media and, at the same time, will give a clue to exploit a new type of permanent magnet without rare-earth metals.

### III. L1<sub>0</sub> Co<sub>55</sub>Pt<sub>45</sub>/Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> bilayer films

The conditions to obtain the CoPt film with L1<sub>0</sub> ordered phase are optimized. Co<sub>55</sub>Pt<sub>45</sub> film annealed at 600 °C will have the largest ordering parameter and magnetic anisotropy energy.

For the Co<sub>55</sub>Pt<sub>45</sub>/Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> bilayer films, the lattice structure of Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> is distorted. The  $c/a$  ratio of Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> is around 1.08 at 3 nm and inversely proportional to the layer thickness. The polar MOKE results demonstrate that the easy magnetization axis of Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> layer is perpendicular to the film plane until 2 nm. Based on the VSM results, the saturation magnetization of Co<sub>55</sub>Pt<sub>45</sub>/Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> films increase with the FeCo thickness. Using the LLG Micromagnetics Simulator, the magnetic anisotropy energy of FeCo layer is separated from the whole system. The Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> layer in Co<sub>55</sub>Pt<sub>45</sub>/Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> film shows large positive magnetic anisotropy energy when the Fe<sub>40</sub>Co<sub>60</sub> thickness thinner than 1.5 nm.

## 論文審査結果の要旨

パーソナルコンピューターやデジタル情報機器の記憶装置として用いられるハードディスクドライブ(HDD)の高密度化が進み、面記録密度が Tbit/inch<sup>2</sup> を超える超高密度 HDD の開発の要請が高まっている。その実現には、情報を記録する磁性ナノドットに対する書き込み性能と熱安定性の 2 つの相反する性質の両立が必要であり、大きな結晶磁気異方性と高い飽和磁化を兼ね備える新材料の開発が必須である。またこのような新材料の開発は、クリーンエネルギー社会の実現に必須な、希土類元素を含まず高エネルギー積をもつ革新的永久磁石開発の観点からも必要不可欠である。FeCo は体心立方格子(bcc)であり、既存の磁性材料の中で最も大きな飽和磁化  $M_s$ (~1900 emu/cm<sup>3</sup>)を有しているが、結晶構造は立方

対称であるために磁気異方性は小さい。近年、第1原理計算によって、軸比  $c/a=1.2$  付近の体心正方(bct)FeCo は  $107\text{erg/cm}^3$  を超える一軸磁気異方性を発現する可能性が高いことが指摘されている。高飽和磁化を有する FeCo に、人為的に正方歪を導入し、大きな  $K_u$  と高い  $M_s$  を兼ね備える新材料が開発されれば、産業社会に大きなインパクトを与えるとともに、金属磁気物性の観点から大きな知見となる。

本研究では高  $K_u$  性と高  $M_s$  を兼ね備える FeCo 合金の創成を目指して、超高真空エピタキシャル薄膜法により、種々の金属との多層膜と二層膜を合成し、その飽和磁化  $M_s$  や磁気異方性  $K_u$  等の磁化特性を明らかにしたものである。

本論文は5章から構成されており、その概要は以下の通りである。

第1章では、本研究の社会的および技術的な背景、磁気記録媒体に要請される種々の物性、基本材料である体心立方(bcc)FeCo 合金と体心正方晶(bct)FeCo の磁気特性、及び現在までの研究を説明している。

第2章では、 $[\text{FeCo}/\text{Pt}]_n$  多層膜の結晶構造と磁気特性を報告している。Pt によるエピタキシャル効果により、FeCo に正方歪が誘起される。FeCo と Pt の層厚比  $n\text{Co}/(n\text{FeCo} + n\text{Pt})$  の増加とともに、 $c/a$  が増加し、 $K_u$  も増加することを報告している。

第3章では、本来  $K_u$  を有する  $\text{L}_{10}\text{FePt}$  薄膜と FeCo からなる二層膜の磁気特性を報告している。FeCo には、エピタキシャル効果により正方歪が誘起される。 $c/a$  は、FeCo 膜厚の減少とともに増加し、それに伴い  $K_u$  も増加する。更に、 $\text{FePt}/\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$  膜に誘導される  $K_u$  の組成  $X$  依存性を明らかにし、その結果が第1原理計算結果と一致することを報告している。また直径  $300\text{nm}$  の  $\text{L}_{10}\text{FePt}(10\text{nm})/\text{FeCo}(3\text{nm})$  ドットパターンのエネルギー積は約  $60\text{MGOe}$  に達し、永久磁石材料としても有望であることを示している。

第4章では、 $\text{L}_{10}\text{CoPt}$  薄膜と FeCo 合金二層膜の磁気特性を報告し、FeCo 中に  $2 \times 10^7\text{erg/cm}^3$  程度の  $K_u$  が誘起されていることを報告している。

第5章では、本論文の成果をまとめている。その要約は以下のとおりである。

- ①適切なバッファー層を用いたエピタキシャル薄膜法によって、FeCo に正方歪が誘導され、bctFeCo が形成できる。
- ② $[\text{FeCo}/\text{Pt}]_n$  や  $\text{FePt}/\text{FeCo}$  膜中の FeCo は bct 構造となり、膜面垂直方向に磁化容易軸をもち、大きさが  $107\text{erg/cm}^3$  を超える  $K_u$  が誘導される。 $K_u$  の大きさは、 $c/a$ 、Fe、Co 濃度比に依存する。
- ③ $\text{FePt}/\text{FeCo}$  膜は、高  $K_u$  と高  $M_s$  を有し、次世代新磁気記録メディアや新永久磁石材料の候補素材である。

以上より、本研究は磁気物性における先駆的な研究として優れた成果を上げており、しかも新材料開発の指針を与えており産業的価値も高く、十分に博士(工学)の学位論文としての価値を有している。