

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年4月19日現在

機関番号：11401

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760224

研究課題名（和文） 強磁性-反強磁性型二次元ナノ構造体におけるスピン配列の解明

研究課題名（英文） Study on spin arrangement in two dimensional ferromagnetic-antiferromagnetic nanostructure

研究代表者

長谷川 崇 (Hasegawa Takashi)

秋田大学・工学資源学研究科・助教

研究者番号：10564742

研究成果の概要（和文）：

ドットの結晶構造の均一性と製造の容易さに大きな特徴をもつ新規な磁性ナノ構造体の作製法を確立した。強磁性(FM) - 弱 FM ナノ構造体 (FM ドット径 50nm) では、ドット - スペーシング間における交換結合の影響で保磁力分散が約 2/5 に低減された。FM - 反強磁性(AF) ナノ構造体では、交換バイアスが生じず、その理由はスピン配列が AF1 または AF3 型であるか、または AF 膜厚がスピンプラストラーションの存在のための臨界膜厚よりも薄かった可能性が考えられる。これらの結果は HDD への応用の観点からは、反転磁場分布の抑制に対して有利であると考える。

研究成果の概要（英文）：

Magnetic nano-patterned films which have $L1_0$ ordered structure in whole patterned area were fabricated for investigating bit patterned media. On the ferromagnetic (FM)-weak FM pattern with the dot size of 50nm, the switching field distribution of FM dots were decreased to 2/5 due to its exchange coupling between dots and spacing. On the FM-antiferromagnetic (AF) pattern, no exchange bias occurred because of its canceled spin arrangement (AF1 or AF3 type) or insufficient thickness of AF phase for existence of spin-frustrations. These results should be advantageous for decreasing the switching field distribution on HDD.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：磁性薄膜工学

科研費の分科・細目：電気電子工学，電子・電気材料工学

キーワード： $L1_0$ 規則合金，FePtRh，ナノドット，ビット・パターンド・メディア，強磁性 - 反強磁性相変化，交換結合，磁化反転，磁気力顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

(1) 微細加工と結晶ダメージ

磁性分野における近年の基礎・応用研究の

焦点は、薄膜のナノスケール微細加工と、ナノ構造体のスピン構造の解明、さらにはそのデバイス応用にある。良好な磁気特性の発現には結晶配向性の制御が不可欠であり、これ

はナノスケールでも変わらない。しかし国内外の報告において、薄膜をナノスケールに加工する際に、ミリングにより結晶がダメージを受け、均一な磁気特性が発現せずに、基礎・応用研究において大きな課題の一つとなっている (B. D. Terris and T. Thomson, J. Phys. D: Appl. Phys. 38 (2005) R199.)。ナノ構造体の磁気物性は界面スピン構造により大きく支配されるために、表面・界面における結晶ダメージは基礎データの取得を困難にし、さらにデバイスの素子性能をバラつかせる。そのため磁性薄膜を物理的に削らずにナノ加工する技術の確立は、基礎研究に対してのみならず、例えば次世代の磁気記録媒体 (ビット・パターンド・メディア; BPM) の実現の観点からも必要不可欠である。

(2) BPMと表面凹凸の問題

BPMとは、直径10~20 nmの強磁性体(ドット)を非磁性体中に規則配列させたナノ構造体であり、次世代の磁気記録媒体として注目され、理論では数テラビット/inch²の記録密度を実現するための仕様が報告されている (H. J. Richter et al., Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 222512.)。ここで、現在国内外で検討されているBPM作製法とその問題点を整理する。現在は(a)トップダウン方式(直接微細加工による手法)、あるいは(b)ボトムアップ方式(化学的手法)が主に検討されている。ハードディスク(HDD)では、ディスク表面から数nmの高さで磁気ヘッドを浮上させて情報を読み書きするため、表面の凹凸は2~3nm以下に抑える必要がある。上記(a)、(b)の両手法で作製したBPMでは、ドットは物理的に孤立するため必ず凹凸埋戻し/表面研磨の工程が必要となる。これはプロセスの大型化・複雑化をまねき、さらに埋戻し工程によりドット結晶に歪みが導入される問題等も懸念される。

(3) 強磁性-反強磁性型二次元ナノ構造体の開発と磁気特性

上記(1)、(2)の両課題を同時に解決することを目標として、本研究者はこれまでに、磁性薄膜を物理的にではなく磁気的にのみ孤立化させる新規なBPM作製法の開発に従事してきた。この手法では、L1₀型FePtRh薄膜における強磁性-反強磁性相変化を利用する。この材料は、わずかなRh組成の変化によって磁気相変化が容易に制御可能であり、同時に高い熱安定性(現行の媒体材料の10倍以上)を有する。本手法では、反強磁性L1₀-FePtRh薄膜中にFePt原子を部分的に拡散させて、その領域の組成のみを強磁性に変化させ、同一L1₀結晶構造内で磁性のみを変化させたナノ領域(ドット)を形成する。このように強磁性ナノドットが反強磁性体中

に2次的に規則配列した系において、ドット間相互作用やスピン構造等を調べた研究は極めて少ない。

2. 研究の目的

強磁性-反強磁性型二次元ナノ構造体におけるスピン構造を詳細に調べ、BPMとしての可能性を明らかにする。

(1) 上記の独自のBPM作製法を用いて、ドット径100nm以下の強磁性-反強磁性型二次元ナノ構造体を作製する。

(2) ナノ構造体の物理的形狀評価を行う。具体的には、表面平滑度、ドット形状、ドット位置分散等を評価する。

(3) 磁気特性の評価を行い、次世代BPMとしての可能性を明らかにする。具体的には、強磁性ドットと反強磁性スペーシングとの間に働く交換相互作用を詳細に調べる。実験では、強磁性ドットと弱強磁性スペーシングから成るナノ構造体を合わせて作製し、磁化反転過程等を比較することで巨視的物性とスピン構造との相関を明らかにする。

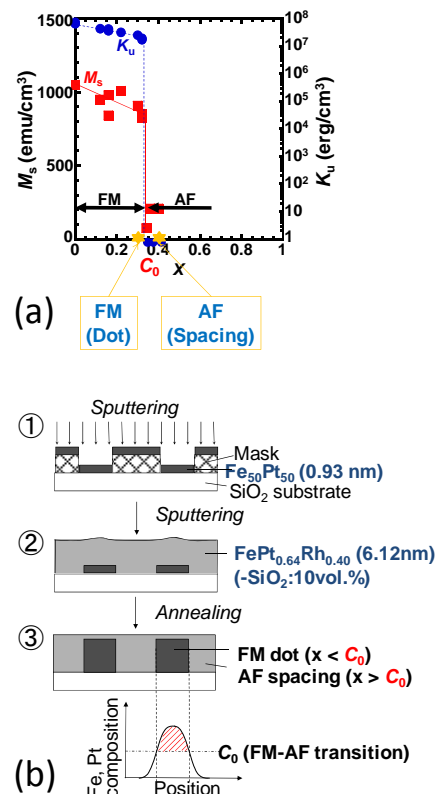


図1 (a) L1₀-FePt_{1-x}Rh_x薄膜の磁気特性. (b) 開発した強磁性-反強磁性型二次元ナノ構造体の作製プロセス

3. 研究の方法

(1) 強磁性 - 反強磁性型二次元ナノ構造体の作製 (H22年度)

本研究者はこれまでに $L1_0$ -FePtRh 薄膜の磁気特性について詳細に調べ、[図 1\(a\)](#) に示す結果を得ている。 $L1_0$ -FePt $_{1-x}$ Rh $_x$ 薄膜は、Rh 添加量が $x=0.34$ 付近で強磁性 (FM) が反強磁性 (AF) に急激に変化する。ここで、例えば AF を示す $x=0.36$ の薄膜に対し、[図 1\(b\)](#) に示すように Fe, Pt 原子を部分的に添加すると、添加された微小領域の組成は FM - AF の臨界組成 C_0 を越えて FM 側 ($x < 0.34$) に移動する。この手法を用いることで、薄膜全体の結晶構造を $L1_0$ 型で一様に保ったまま、AF 母相中に高 Ku の FM ドットを形成する。

(2) ナノ構造体の物理的形狀評価 (H22年度)

原子間力顕微鏡 (AFM) や電子顕微鏡等を用いて、表面平滑度、最大凹凸高さ、ドット径、ドット位置分散等の評価を行う。

(3) ナノ構造体の磁気特性評価 (H23年度)

FM ドットと弱 FM 並びに AF スペーシングとの間に働く交換相互作用の評価には、極カー効果顕微鏡、磁気力顕微鏡 (MFM)、及び大型放射光施設 SPring-8 における X 線 MCD 観察装置 (BL39XU) を使用する。

4. 研究成果

(1) 強磁性 - 反強磁性型二次元ナノ構造体の作製と物理的形狀評価 (H22年度)

[図 2\(a\)](#) に FM-弱 FM ナノ構造体 (設計値: ドット径 $D=50\text{nm}$, スペーシング幅 $S=70\text{nm}$)、[図 2\(b\)](#) に FM-AF ナノ構造体 (設計値: $D=50\text{nm}$, $S=100\text{nm}$) の表面形状 (AFM) 像を示し、そこ

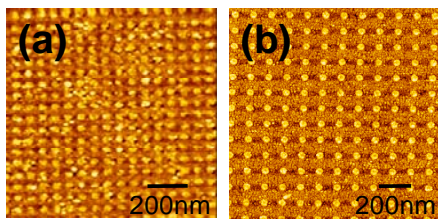


図 2 (a) FM-弱 FM ナノ構造体 ($D=50\text{nm}$, $S=70\text{nm}$), (b) FM-AF ナノ構造体 ($D=50\text{nm}$, $S=100\text{nm}$) の AFM 像。

表 1 各種ナノ構造体の物理的形狀

	(a) FM-弱FM	(b) FM-AF
ドット径(D)	56.8nm	51.2nm
ドット径分散(σ_D)	6.5nm(=19.6%)	3.0nm(=9.6%)
ドット位置分散(σ_P)	5.6 nm(=4.8%)	3.7nm(=2.6%)
凹凸(最大高低差)	2.07nm	3.26nm
表面粗さ(R_a)	0.40nm	0.98nm

から得られた各種形状パラメータを表 1 に整理した。加工の精度 (ドット径やドット位置等) は、全て設計値からのズレが数 nm 以内であることがわかる。また、全ドットとスペーシングを含む測定領域全体における最大高低差と表面粗さ (R_a) は、どちらのナノ構造体においてもそれぞれ 2~3nm 程度、0.4~1.0nm 程度であり、磁気ヘッド浮上にはほぼ問題がない程度で加工が実現できていることがわかる。

(2) FM-弱FMナノ構造体の磁気特性評価 (H23年度)

[図 3](#) に FM-弱 FM ナノ構造体の磁化反転の様子 (MFM 像) を示す。設計上のドットとスペーシング領域の組成はそれぞれ $x=0.28$ (FM), $x=0.32$ (弱 FM) であり、ベタ膜での保磁力 (H_c) はそれぞれ 4kOe, 1.5kOe であった。ドット径は 50nm であり、孤立ドット系を仮定すると単磁区寸法以下のサイズである。MFM 測定に先立ち、膜面垂直方向に磁場を印加し、その残留磁化状態を観察した。MFM 像における白黒コントラストはそれぞれ N 極・S 極に対応する。図を見ると、磁化反転は以下の順に進行していることがわかる。

- ① 印加磁場 (H) が $+1.5 < H < +2.0\text{kOe}$ において、ドット周囲のスペーシング領域から磁化反転が開始し、磁壁移動によって全体に伝播している。このときの安定なスピン方向は膜面に対して垂直である。
- ② $+1.5 < H < +2.0\text{kOe}$ において、スペーシング領域の磁化反転に伴い、約 50% のドットが反転している。このときの H の大きさは、

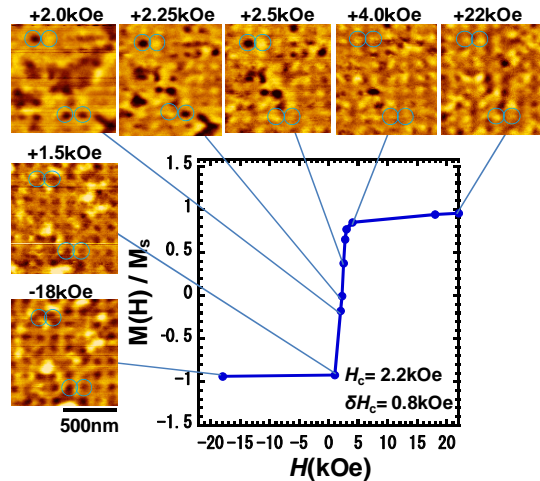


図 3 FM-弱 FM ナノ構造体の磁化反転の様子 (MFM 像) とそこから見積もられたドットの磁化曲線. $M(H)/M_s = (N_B - N_D) / (N_B + N_D)$. N_B は白いドットの数, N_D は黒いドットの数。

ドットの組成に対応するベタ膜の H_c (4kOe) の 50%程度であることから、ドット - スペース間の交換結合の存在が示唆される。

③ $+2.0 < H < +2.25 \text{kOe}$, $+2.25 < H < +2.5 \text{kOe}$ において、例えば丸で囲んだ4つのドットに注目すると、ドットの磁化反転は最近接ドットとは独立に進行している。

以上より、ドット - スペース間の交換結合の強さはドット H_c (4kOe) 未満であり、各ドットの磁化反転は互いに独立に制御可能であることがわかる。また後述する FM-AF ナノ構造体と比較して、保磁力分散 (δH_c) が約 2/5 に低減された。すなわち BPM への応用の観点からは、FM-弱 FM 交換結合はドットの磁化反転を促進 (アシスト) しバラツキを抑制する効果が期待される。

(3) FM-AF ナノ構造体の磁気特性評価 (H23 年度)

図 4 に FM-AF ナノ構造体の磁化反転の様子 (MFM 像) を示す。設計上のドットとスペース領域の組成はそれぞれ $x=0.28$ (FM), $x=0.40$ (AF) であり、その他の MFM 測定条件は図 3 と同様である。MFM 像を見ると、スペース領域では磁気コントラストは検出されず、ドット領域のみが白黒コントラストを有している。このことからスペース領域は AF を示し、スピン配列はトータルでキャンセルしていると考えられる。ここには示していないが、AF 膜 ($x=0.40$) の MCD ヒステリシス曲線を測定したところ、 $H=100 \text{kOe}$ においてもスピフロップは生じなかった。このことから本 MFM 観察中における AF 相のスピン配列は、ドットの磁化反転にかかわらず固定されていると考えられる。まず、 $+3.0 < H < +3.5 \text{kOe}$, $+3.5 < H < +4.0 \text{kOe}$ において、例えば丸で囲んだ4つのドットに注目すると、ドットの磁化反転は最近接ドットとは独立に進行している。AF 相のスピン配列は固定されているので、個々の FM ドットは互いに磁氣的

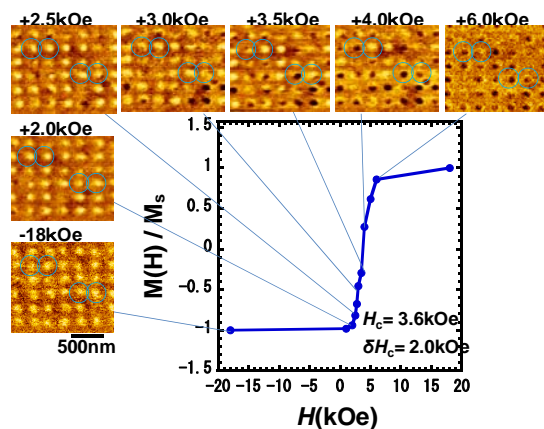


図 4 FM-AF ナノ構造体の磁化反転の様子 (MFM 像) とそこから見積もられた磁化曲線。

に孤立していると考えられる。すなわち BPM への応用を考える場合には、各ドットの磁化反転は互いに独立に制御可能であることがわかる。

次に、ドット - スペース間にはたらく交換相互作用を調べるために、図 5 のように、 $H=100 \text{kOe}$ 中で 300K から 5K まで冷却する磁場中冷却過程 (FC) を経た後の MCD ヒステリシス曲線の測定を行った。破線はその生データである。縦軸方向 (下向き) にシフトが見られる。これは AF 相中に存在する非補償スピンの成分か、または測定誤差であると考えられる。実線は生データの縦軸のシフト量が 0 になるように補正した曲線である。補正後の曲線を見ると、 $H > 0$ と $H < 0$ の両領域における H_c は、どちらも同程度の値 (3.6kOe) を示している。すなわちドット - スペース境界におけるスピン間には、一軸異方性 (交換バイアス) は生じないことがわかる。これは BPM への応用の観点からは、反転磁場分布の抑制に対して有利であると考えられる。

FM 相と AF 相の 2 相間にはたらく交換相互作用に関しては、1950 年代から現在まで NiFe/IrMn 二層膜などの連続膜を用いた研究が行われ (例えば M. Tsunoda, M. Takahashi; J. Mag. Soc. Jpn. 28 (2004) 55.), AF 相中のスピン配列の影響で FM 相の磁化曲線が H 軸に沿って一方向にシフトする一軸異方性 (交換バイアス) 効果が報告されている。図 6(a) は、 L_1_0 規則構造の AF 相がとり得る各種スピン配列の模式図を示している。本ナノ構造体では c 軸が膜面に対して垂直方向に配向しているので、FM ドットは AF スペースと図中の網掛けの面で接することになる。そのため AF2 型の場合には交換バイアスが生じるが、AF1 または AF3 型の場合には、網掛けの面内のスピン方向がトータルでキャンセルするため、交換バイアスは生じないと考えられる。すなわち本ナノ構造体における AF スピン配列は、AF1 または AF3 型である可能

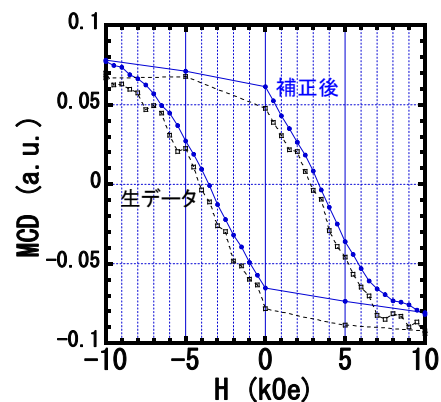


図 5 FM-AF ナノ構造体の磁場中冷却 ($H=100 \text{kOe}$ 中で 300K から 5K まで冷却) 後の MCD ヒステリシス曲線 (Pt- L_3 吸収端)。

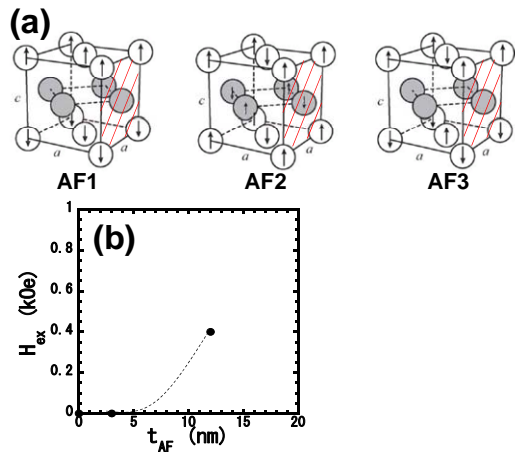


図6 (a) $L1_0$ 型のAF相における安定なスピン配列の模式図. (b) LLGシミュレーションで計算された[FM (3.0nm)/AF (t_{AF})]二層膜における H_{ex} の反強磁性膜厚 (t_{AF}) 依存性.

性が示唆される。

図6(b)は、本FM-AFナノ構造体の物性値(設計値)を用いて、[FM (3.0nm)/AF (t_{AF})]二層膜における交換バイアス磁場 (H_{ex}) をLLGシミュレーションにより計算した結果である。交換バイアスが発現するAF膜厚 (t_{AF}) は $t_{AF} > 12$ nm である結果が得られた。上述の M. Tsunoda らの報告によれば、 $L1_0$ 規則構造を有するPtMnでは、 $t_{AF} > 20$ nmでは大きな一方向異方性定数 ($J_k > 0.25$ erg/cm²) を示すが、 $t_{AF} < 20$ nmでは J_k は急激に減少することが報告されている。また理論計算 (C. Mitsumata *et al.*, Phys. Rev. B, 68 (2003) 014437.) では、交換バイアスの発現にはAF相内におけるスピンプラストレーションの存在が必須であり、そのためには磁壁が存在できる臨界膜厚以上のAF膜厚が必要であることが報告されている。本ナノ構造体におけるAF膜厚は約6nmであることから、AF膜厚が薄く、スピンプラストレーションが存在し得ないために交換バイアスが生じなかった可能性も考えられる。

(4) まとめ

- ①本研究により、ドットの結晶構造の均一性と製造の容易さに大きな特徴をもつ新規な磁性ナノ構造体の作製法が確立された。
- ②加工の精度(ドット径やドット位置等)は、全て設計値からのズレが数nm以内であった。
- ③膜表面における最大高低差と表面粗さ(Ra)はそれぞれ2~3nm程度、0.4~1.0nm程度であり、磁気ヘッド浮上にはほぼ問題がない程度であった。すなわち本手法は次世代HDDの作製法として適用可能であると考えられる。
- ④(a)FM-弱FMナノ構造体と(b)FM-AFナノ構

造体の磁化反転過程を比較した結果、前者(a)にはドット-スペーシング間の交換結合の存在が示唆され、保磁力分散 (δH_c) は後者(b)の2/5に低減された。

⑤(b)FM-AFナノ構造体では、ドット-スペーシング境界におけるスピン間には交換バイアスが生じなかった。これはAFスペーシングにおけるスピン配列がAF1またはAF3型であるか、またはAF膜厚(6nm)がスピンプラストレーション形成のための臨界膜厚よりも薄かった可能性が考えられる。このことは、BPMへの応用の観点からは、反転磁場分布の抑制に対して有利であると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

①T. Hasegawa, T. Tomioka, Y. Kondo, H. Yamane, and S. Ishio, Fabrication of [001] $L1_0$ -FePtRh ferro-antiferromagnetic pattern by flat-patterning method, Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 111, No. 7, (2012) p.p. 07B903-1 ~ 07B903-3.

②T. Hasegawa, T. Tomioka, Y. Kondo, H. Yamane, and S. Ishio, Study on nanoscale patterning using ferro-antiferromagnetic transition in [001]-oriented $L1_0$ FePtRh film, Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 109, No. 7, (2011) p.p. 07B705-1 ~ 07B705-3.

③T. Hasegawa, H. Kawato, H. Yamane, and S. Ishio, Fabrication of nanodot array using ferro-antiferromagnetic transition in $L1_0$ FePtRh film, Journal of the society of materials engineering for resources of Japan, 査読有, Vol. 23, No. 2, (2011) p.p. 43~47. (若手論文賞受賞)

④長谷川 崇, 石尾 俊二, $L1_0$ FePtRh薄膜における強磁性-反強磁性相変化を利用したパターンニング, 電子情報通信学会技術研究報告; 信学技報 (IEICE Technical Report), 査読無, Vol. 110, No. 225, (2010) p.p. 19-23.

[学会発表] (計7件)

①長谷川崇, 富岡達也, 近藤祐二, 山根治起, 石尾俊二, 原子拡散を利用したフラット・パターンニング法による[001] $L1_0$ -FePtRh強磁性-反強磁性パターン作製, 第35回日本磁気学会, 2011年9月30日, 新潟コンベ

ンションセンター朱鷺メッセ（新潟）

②川戸宏紀, 長谷川崇, 長町信治, 石尾俊二, Feイオン照射を利用したフラット・パターンニング法による $L1_0$ -FePtRh 強磁性-常磁性パターンの作製, 第35回日本磁気学会, 2011年9月28日, 新潟コンベンションセンター朱鷺メッセ（新潟）

③富岡達也, 長谷川崇, 高橋信吾, 近藤祐治, 石尾俊二, 原子拡散を利用したフラット・パターンニング法による[001] $L1_0$ -FePtRhドット間交換結合パターンの作製と磁化過程, 第35回日本磁気学会, 2011年9月28日, 新潟コンベンションセンター朱鷺メッセ（新潟）

④長谷川崇, 石尾俊二, $Fe_{1-x-y}Mn_xPt_y$ 薄膜の結晶構造と磁気相図, 第21回日本素材物性学会, 2011年6月28日, 秋田ビューホテル（秋田）

⑤T. Hasegawa, T. Tomioka, Y. Kondo, H. Yamane, and S. Ishio, Study on nanoscale patterning using ferro-antiferromagnetic transition in [001]-oriented $L1_0$ FePtRh film, The 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2010年11月15日, Atlanta (USA)

⑥長谷川 崇, 石尾 俊二, $L1_0$ FePtRh薄膜における強磁性-反強磁性相変化を利用したパターンニング, 電子情報通信学会, 2010年10月14日, 秋田県産業技術総合研究センター（秋田）

⑦長谷川崇, 川戸宏紀, 山根治起, 石尾俊二, $L1_0$ 型FePtRh規則合金薄膜における強磁性-反強磁性相変化とナノ構造体の作製, 第20回日本素材物性学会, 2010年6月22日, 秋田ビューホテル（秋田）

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

〔その他〕

①秋田さきがけ新聞, 2011年6月29日, 朝刊27面

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長谷川 崇 (Hasegawa Takashi)

秋田大学・工学資源学研究科・助教

研究者番号：10564742

(2) 研究分担者
なし

(3) 連携研究者
なし