

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23656592

研究課題名(和文) イオンビームを利用したフォトレジストレス磁性ナノパターンニング法の開発

研究課題名(英文) Development of photoresistless magnetic nano-patterning methods by using energetic ion beam

研究代表者

岩瀬 彰宏 (Iwase, Akihiro)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60343919

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円、(間接経費) 870,000円

研究成果の概要(和文)：鉄ロジウム合金に、いろいろな形状の高エネルギーイオンマイクロビームを照射して、その後、放射光電子顕微鏡(PEEM)や磁気力顕微鏡(MFM)により、試料表面の磁性構造を観察した。その結果、マイクロメートルスケールの強磁性、反強磁性、常磁性状態からなる2次元微細磁気パターンの作製に成功したことがわかった。また、クラスターイオンビームを用いることにより、鉄ロジウム合金の、より効率的な磁性改質ができることが、XMCDやSQUID測定により明らかになった。

研究成果の概要(英文)：By using the energetic ion-microbeam irradiation to FeRh alloy, we successfully made two-dimensional magnetic patterns on FeRh surfaces. The magnetic patterns consisted of micrometer-scale ferromagnetic, anti-ferromagnetic and paramagnetic regions. The micrometer-scaled magnetic patterns could be observed by means of XMCD-PEEM and MFM methods. We used the cluster ion beam irradiation to perform more effective modification of magnetic properties of FeRh alloy. The SQUID and XMCD measurements showed that the magnetization induced by the cluster ion beam was larger than that induced by single ion beam.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：イオンビーム 磁性パターンニング 鉄ロジウム合金 マイクロビーム

1. 研究開始当初の背景

情報通信の基礎技術として、記録媒体の記録密度増大に向けての技術開発がなされている。そのための磁性パターニングの方法として一般的なのは、フォトレジスト法によるものである。しかし、この方法では、大量の有機溶媒を使用するため環境への負荷が大きい。我々は、鉄ロジウム合金をイオンビーム照射することにより、室温で本来の反強磁性状態を強磁性に、あるいは、常磁性になることを見出した。また、その状態を高温で熱処理することによって、強磁性、反強磁性に戻ることも見出した。そこで、鉄ロジウムをマイクロスケールの大きさを持つイオンビーム照射したり、局所加熱することで、微細磁気構造の創製を試みるという発想に至った。

2. 研究の目的

マイクロイオンビームによるミクロン領域への局所的照射などを利用して、合金薄膜中にミクロンからナノメートルスケールの強磁性領域作成を試みる。これは、フォトマスク、フォトレジスト膜を用いずに、直接、微細磁性変調構造を合金薄膜中に付加するものであり、効率的かつ環境に負担をかけずに磁性パターンドメディア創製を行う画期的な技術につながるものである。

3. 研究の方法

実験に用いる鉄ロジウム試料は、厚さ50-100nmの薄膜である。試料の構造、磁性をX線回折、SQUID磁束計により評価した。また、放射光分光(XMCD)により詳細な磁性評価も行った。評価された試料を、マイクロイオンビームにより照射した。ビーム形状は約 $1 \times 1 \mu\text{m}$ から $10 \times 10 \mu\text{m}$ である。マイクロイオンビームで照射した磁気パターンの2次元分布を磁気力顕微鏡(MFM)や放射光顕微鏡(PEEM)により評価した。照射によって得られた磁気パターンの熱処理による変化も観測した。より効果的な照射手法として、クラスターイオンビームによる磁気改質も試みた。

4. 研究成果

イオンビームスパッタ法で作製したFeRh薄膜試料のXRDスペクトルを図1に示す。試料の大部分は、BCC的な規則構造であるB2構造をとることがわかる。また、この試料をSQUID磁束計で磁化測定を行ったところ、室温では小さな磁化を示すことから、ほぼ反強磁性状態であることが分かった。次に、結晶構造や磁性を評価したFeRh薄膜試料に対して、マイクロビームの照射を行った、図2は、 $1.4 \times 1.5 \mu\text{m}$ の大きさの2 MeV Hイオンマイクロビームを等間隔にFeRhに照射した後、SPRING-8 BL25SUにおいて行ったPEEM観察像である。照射量は 1cm^2 あたりに換算して 2×10^{17} である。

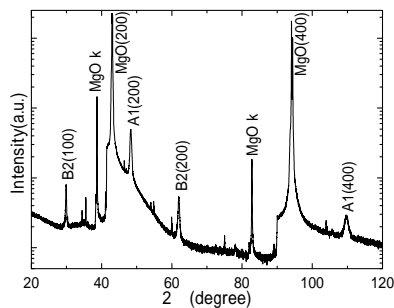


図1. イオンスパッタ法で作製したFeRh薄膜のXRDスペクトル。(イオン照射前に測定)

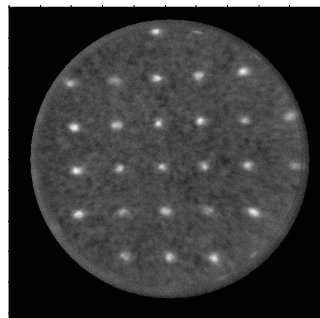


図2. $1.4 \times 1.5 \mu\text{m}$ の大きさの2 MeV Hイオンマイクロビームを等間隔で照射した試料のPEEM像

放射光は、試料面に対してほぼ平行に入射している。像の明るく見える領域は強磁性領域、暗く見える領域は、照射前と同じく反強磁性領域を示している。PEEM像からわかるように、マイクロビームが照射されたところだけが強磁性に変化していることが分かった。図2に示す結果から、マイクロビームの形状と同じ形状の強磁性パターンがFeRh表面に作成できることが明らかとなった。

さて、今までは、同じ照射量のビームによる磁気パターンを示したが、次に、各スポット($10 \times 10 \mu\text{m}$)ごとに異なった照射量でパターンニングした場合のPEEM像を図3に示す。

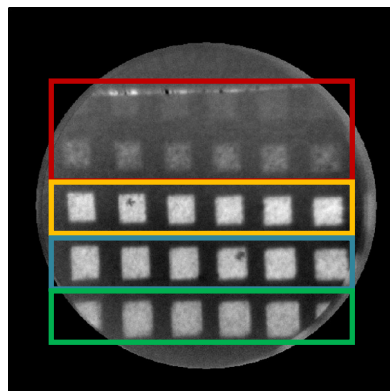


図3. $10 \times 10 \mu\text{m}$ の領域を等間隔でHイオン照射したPEEM像。照射量は上から 1cm^2 あたりに換算して、 2×10^{16} , 6×10^{16} , 2×10^{17} , 6×10^{17} , 2×10^{18} .

図3は、照射量の少ないときは、のパターンは明確に見えるものの、あまり明るく見えない(赤線で囲んだ部分)。すなわち、強磁性に変化しているものの、発現した磁化は小さいと考えられる。それに対して、照射量が大きくなっていくと(黄線、青線で囲んだ部分)は明るく見え、磁化が大きくなっていったことを示している。SQUID 測定の結果とも併せ、イオン照射によって発現する磁化は、エネルギー付与密度と良い関係を持ち、微細パターンにおける磁化の大きさも、付与エネルギー密度を変えることにより定量的に制御できることがわかった。

つぎに、イオンビームで発現した微細磁気パターンが、高温での熱処理によってどう変化するかを見てみる。図4には、マイクロビーム照射で得られた微細磁性パターンが、その後の高温熱処理によってどう変化するかを示している。図4(a)は、150 の温度で熱処理したあとの PEEM 像である。照射量の一番小さなパターンはほぼ見えなくなっている。これは、この温度の熱処理によって強磁性が反強磁性状態に回復することを示す。図4(b)は200 での熱処理後の、また図4(c)は、250 での熱処理後の PEEM 像である。上から2 段目までのパターンはほぼ消滅し、3 段目のパターンも暗くなりつつある。さらに温度を300 に上げて熱処理を行った後の PEEM 像が、図4(d)である。3 段目のパターンの色はさらにはっきりと薄くなっている。しかし、一方、一番照射量の大きなパターン(一番下の段)は、熱処理前に比べて明るくなっている。以上で示した、イオン照射と、その後の熱処理による PEEM 像の変化から次のことが分かった。まず照射によって強磁性になった領域は高温熱処理で元の反強磁性に戻る。一方、照射量が多い領域では、結晶構造が乱れるため、磁性秩序も壊れ、強磁性から常磁性へ変化する。この常磁性状態は、熱処理によりいったん強磁性状態へと変化する。なお、ここで示した PEEM 像では示されていないが、さらに高温で熱処理すると、常磁性から強磁性となった領域も、やがては、一番最初の状態である反強磁性に回復することが、SQUID 磁束計による測定から明らかになっている。

以上の結果から、いろいろな照射量(エネルギー付与密度)を与えるマイクロビームと、そのあとの熱処理温度により、FeRh 中にマイクロメートルスケールの反強磁性、強磁性、そして常磁性の微細構造を自由にかつ定量的に作成できることがわかった。

さて、我々は、より効率の良いイオンビーム誘起磁気相変態を目指して、クラスターイオンビームによる実験も試みた。クラスターイオンビームとは数個以上の原子の塊からなるイオンビームのことである。クラスターイオンビーム照射は、単原子イオンビーム照射に比べて、ターゲットに与えるエネルギー密度が大きくなるため、同じ個数のイオンを照射した

場合でも、より大きな照射効果が期待できる。そこで本研究では、Au(金)の単原子イオン照射と Au 原子3 個からなる Au₃ クラスターイオン照射を行い、FeRh の磁性誘起に対するクラスター効果を評価した。図5に、Au 単原子イオンと Au₃ クラスターイオンを同じ Au 原子数だけ照射した FeRh の磁場 磁化曲線(M-H カーブ)を示す。これは SQUID 磁束計で測定したものである。

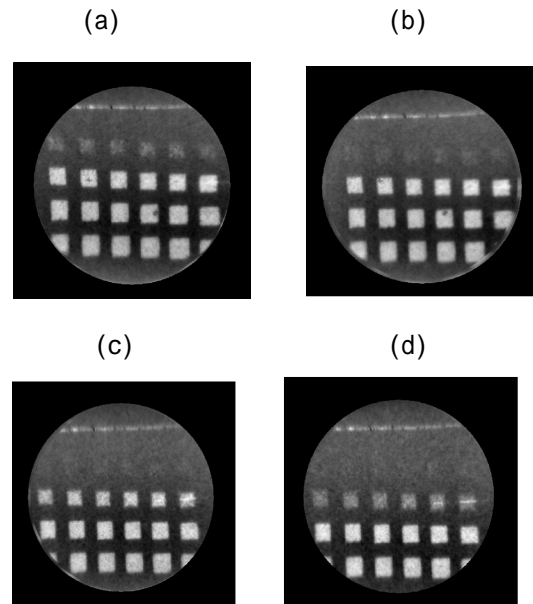


図4 PEEM 像の熱処理による変化。(a)150 熱処理後、(b)200 熱処理後、(c)250 熱処理後、(d)300 熱処理後

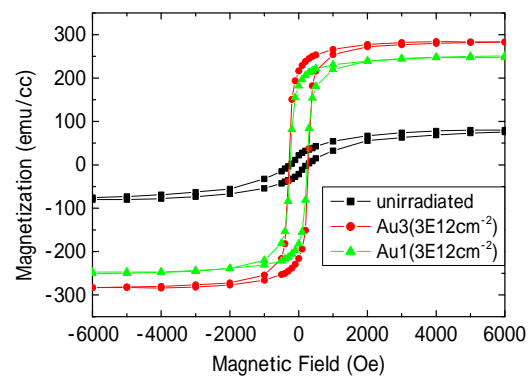


図5 Au 単原子イオン、および Au₃ クラスターイオンを照射した FeRh の M-H カーブ。

図5から明らかなように、同じ個数の Au 原子を照射したにも関わらず、クラスターイオン照射による発現磁化のほうが大きいことがわかる。クラスターイオン照射のほうが大きな磁化をもたらすことは、放射光 XMCD 測定によっても確認されている。図6は、鉄

L2, L3吸収端近傍におけるXMCDスペクトルである。たしかに、Au₃クラスターイオン照射のほうがシグナルは大きく、より大きな磁気モーメントがクラスターイオンによって生じていることが確認できた。

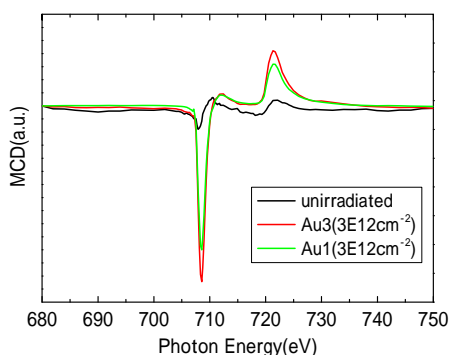


図6 Au単原子イオンおよびAu₃クラスターイオンを照射したFeRhの鉄L2, L3吸収端近傍のXMCDスペクトル

最後に、高速重イオンの熱スパイクを利用した1次元微細磁性領域作製の試みについて触れる。数MeVのエネルギーの弾性的相互作用を利用してまず試料全体を常磁性化し、その後、ドイツGSI研究所のUNILAC加速器でGeV領域の重イオンを照射して、高密度電子励起に伴う局所加熱により、イオンビームに沿った1次元強磁性領域の生成を試みた。しかし、高速重イオンビームに沿った局所加熱が十分に得られず、明確な1次元強磁性領域の発現は、残念ながら認められなかった。

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14件、すべて査読有)

1. T.Koide, T.Satoh, M.Kohka, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Kinoshita, T.Nakamura, A.Iwase, T.Matsui, Magnetic patterning of FeRh thin films by energetic ion microbeam irradiation, *Jpn. J. Appl. Phys.* 53(2014) 05FC06(1-4), DOI:10.7567/JJAP.53.05FC06.
2. A.Hashimoto, Y.Kaneno, S.Semboshi, H.Yoshizaki, Y.Saitoh, A.Iwase, Effect of high temperature annealing on non-equilibrium phases induced by energetic ion irradiation in FeRh and Ni₃V intermetallic compounds, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 53(2014) 05FC08(1-4), DOI:10.7567/JJAP.53.05FC08.
3. T.Koide, Y.Saitoh, M.Sakamaki, K.Amemiya, A.Iwase, T.Matsui, Change in magnetic and structural properties of FeRh thin films by gold cluster ion beam irradiation with the energy of 1.67MeV/atom, *J. Appl. Phys.* 115(2014) 17B722(1-4),

DOI:10.1063/1.4864745.

4. A.Hashimoto, Y.Kaneno, T.Matsui, Y.Saitoh, A.Iwase, Non-thermal equilibrium crystal structure and Vickers hardness of FeRh intermetallic compound irradiated with energetic heavy ions, *Trans. MRSJ*, 38(2013)329-331.
5. K.Aikoh, A.Tohki, S.Okuda, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Nakamura, T.Kinoshita, A.Iwase, T.Matsui, Study on ferromagnetic ordering of FeRh thin films induced by energetic heavy ion irradiation by means of x-ray magnetic circular dichroism, *Nucl. Instrum. Meth.* B314(2013) 99-102, DOI:10.1016/j.nimb.2013.05.031.
6. A.Tohki, K.Aikoh, R.Shinoda, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Nakamura, T.Kinoshita, A.Iwase, T.Matsui, X-ray magnetic circular dichroism photoemission electron microscopy of focused ion beam-induced magnetic patterns on iron-rhodium surfaces, *Nucl. Instrum. Meth.* B302(2013) 51-54, DOI:10.1016/j.nimb.2013.03.028.
7. K.Aikoh, A.Tohki, T.Matsui, A.Iwase, T.Satoh, K.Takano, M.Kohka, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Nakamura, T.Kinoshita, MFM and PEEM observation of micrometer-sized magnetic dot arrays fabricated by ion-microbeam irradiation in FeRh films, *J. Synchrotron Rad.*, 19(2013)223-226, DOI:10.1107/S0909049511054057.
8. A.Tohki, K.Aikoh, A.Iwase, K.Yoneda, S.Kosugi, K.Kume, T.Batchuluun, R.Ishigami, T.Matsui, Effect of high temperature annealing on ion-irradiation induced magnetization in FeRh thin films, *J. Appl. Phys.* 111(2012) 07A742, DOI:10.1063/1.3687133.
9. S.Kosugi, T.Matsui, N.Ishikawa, M.Itou, Y.Sakurai, K.Aikoh, K.Shimizu, Y.Tahara, F.Hori, A.Iwase, Study on ion-irradiation induced ferromagnetism in FeRh intermetallic compound by means of magnetic Compton scattering, *J. Appl. Phys.* 109(2011) 07B737(1-3), DOI:10.1063/1.3559469.
10. K.Aikoh, S.Kosugi, T.Matsui, A.Iwase, Quantitative control of magnetic ordering in FeRh thin films using 30keV Ga ion irradiation from focused ion beam system, *J. Appl. Phys.* 109(2011) 07E311(1-3), DOI:10.1063/1.3549440.
11. S.Kosugi, Nao Fujita, T.Matsui, F.Hori, Y.Saitoh, N.Ishikawa, Y.Okamoto, A.Iwase, Effect of high temperature annealing on ferromagnetism induced by energetic ion irradiation in FeRh alloy, *Nucl. Instr. Meth.* B269(2011) 869-872, DOI:10.1016/j.nimb.2010.12061.

12. S.Kosugi, N.Ishikawa, Y.Saitoh, F.Hori, A.Iwase, Determination of threshold energies for displacements of Fe and Rh atoms in Fe-50at.%Rh intermetallic compound by using energetic electron irradiation at low temperatures, *J. Nucl. Mater.* 411(2011) 171-173, DOI:10.1016/j.jnuclmat.2011.01.116.
13. Y.Kaneta, S.Ishino, Y.Chen, S.Iwata, A.Iwase, Theoretical calculations for magnetic property of FeRh intermetallic compound with site-exchange defects, *Jpn. J. Appl. Phys.* 50(2011) 105803(1-5), DOI:10.1143/JJAP.50.105803.
14. 岩瀬彰宏、松井利之、堀 史説、鉄ロジウム合金の高エネルギーイオンビームによる磁性改質、金属学会報「まてりあ」 50 卷(2011) 27-253.

〔学会発表〕(計 26 件)

1. 小出哲也、岩瀬彰宏、松井利之、酒巻真粧、斉藤勇一、雨宮健太、クラスターイオン照射を用いた FeRh 合金薄膜の磁性改質、日本金属学会 2013 春季大会 (3 月 21 - 23 日 2014、東京)
2. H.Yoshizaki, A.Hashimoto, A.Iwase, Y.Saitoh, Y.Kaneo, S.Semboshi, F.Hori, T.Matsui, Effects of energetic ion irradiation on lattice structures and mechanical properties of intermetallic compounds, 23rd Japan MRS Annual Meeting (Dec.9-12, 2013, Yokohama, Japan).
3. T.Koide, Y.Saito, M.Sakamai, K.Amemiya, A.Iwase, T.Matsui, Change in magnetic and structural properties of FeRh thin films by energetic cluster ion beam irradiation, 58th Cof. On Magnetism and Magnetic Materials (Nov. 4-8, 2013, Denver, USA).
4. T.Koide, T.Satoh, M.Kohka, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Kinoshita, T.Nakamura, A.Iwase, T.Matsui, Magnetic patterning of FeRh thin films by energetic light ion microbeam irradiation and their XMCD-PEEM observation, The 2013 JSAP-MRS Joint Symposium (Sept. 16-20, 2013, Kyoto, Japan)
5. A.Hashimoto, Y.Kaneno, S.Semboshi, H.Yoshizaki, Y.Saitoh, A.Iwase, Effect of high temperature annealing on non-thermal equilibrium phases induced by energetic ion irradiation in FeRh and Ni₃V intermetallic compounds, The 2013 JSAP-MRS Joint Symposium (Sept. 16-20, 2013, Kyoto, Japan).
6. 岩瀬彰宏、高エネルギービームによる材料の照射効果研究と材料改質への応用 (招待講演) 金属学会 2013 秋期講演大会 (9 月 17 日、2013 年、金沢)
7. A.Iwase, K.Aikoh, R.Ishigami, S.Okuda, T.Matsui, Magnetic property modification of FeRh alloy by the combination of energetic ion beam irradiation and subsequent thermal annealing, European-MRS 2013 Spring Meeting (May 27-31, 2013, Strasbourg, France).
8. 小出哲也、唐木淳志、岩瀬彰宏、松井利之、佐藤隆博、江夏昌志、斉藤勇一、神谷富裕、大河内拓雄、小嗣真人、中村哲也、木下豊彦、軽イオンマイクロビーム照射による FeRh 合金薄膜への面内微細磁気構造の作成と PEEM 観察、金属学会春季大会 (3 月 27 - 29 日、2013、東京)
9. A.Tohki, K.Aikoh, R.Shinoda, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Nakamura, T.Kinoshita, A.Iwase, T.Matsui, In-situ observation of annealing effect on irradiation-induced magnetic domain structure by XMCD-PEEM, 12th Joint MMM/Intermag Conference (Jan. 14-18, 2013, Chicago, USA).
10. K.Aikoh, A.Tohki, M.Sakamaki, K.Amemiya, A.Iwase, T.Matsui, In-situ evaluation of annealing effect on ion-irradiation induced ferromagnetism at FeRh thin film surface by means of XMCD, 12th Joint MMM/Intermag Conference (Jan. 14-18, 2013, Chicago, USA).
11. K.Aikoh, A.Tohki, S.Okuda, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Nakamura, T.Kinoshita, A.Iwase, T.Matsui, Study on ferromagnetic ordering of FeRh thin films induced by energetic heavy ion irradiation by means of x-ray magnetic circular dichroism, 8th international Symposium on Swift Heavy Ions in Matter, (Oct. 24-27, 2012, Kyoto, Japan)
12. A.Tohki, K.Aikoh, R.Shinoda, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Nakamura, T.Kinoshita, A.Iwase, T.Matsui, XMCD-PEEM observation of focused ion beam induced magnetic patterns on FeRh surfaces, 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids, (Oct. 21-15, 2013, Kyoto, Japan).
13. A.Iwase, T.Matsui, Modification of magnetic properties and lattice structure of FeRh intermetallic compound by high energy ion irradiation (invited talk), International Conference on Swift Heavy Ions in Materials and Characterization (Oct. 9-12, 2012, Delhi, India)
14. 唐木淳志、愛甲一馬、松井利之、岩瀬彰宏、大河内拓雄、小嗣真人、中村哲也、木下豊彦、FeRh 合金薄膜状にけるイオンビーム照射誘起面内磁気構造の XMCD-PEEM 観察、金属学会秋季大会 (9 月 17 - 19 日、2012 年、松山)
15. 米田和弘、唐木淳志、岩瀬彰宏、石神龍哉、松井利之、FeRh 薄膜におけるイオンビーム照射誘起強磁性の熱的回復挙動、

- 日本金属学会春季大会(3月30日、2012年、横浜)
16. 唐木淳志、愛甲一馬、松井利之、岩瀬彰宏、FeRh 合金薄膜上におけるイオンビーム照射誘起面内微細磁気構造作製、日本金属学会春季大会(3月30日、2012年、横浜)
 17. 岩瀬彰宏、高エネルギーイオンビーム励起反応場を利用した材料改質・創製、日本金属学会春季大会(招待講演)(3月29日、2012年、横浜)
 18. 唐木淳志、岩瀬彰宏、松井利之、イオンビーム照射による FeRh 合金薄膜の面内微細磁気構造作製、材料物性談話会(1月16日、2012年、大阪)
 19. 米田和弘、唐木淳志、石神龍哉、松井利之、岩瀬彰宏、FeRh 薄膜におけるイオンビーム照射誘起強磁性の熱的回復挙動、材料物性談話会(1月16日、2012年、大阪)
 20. 松井利之、岩瀬彰宏、酒巻真粧子、雨宮健太、1-3keVAr イオンビーム照射により FeR 薄膜に誘起された表面強磁性のその場 XMCD 観察と熱処理効果、KEK/物構研 CMRC 全体会議(招待講演)(1月12日、2012年、つくば)
 21. A.Iwase, Modification of magnetic properties of FeRh alloys by using energetic ion beam, 21st MRSJ Academic Symposium(Invited talk) (Dec. 20, 2011, Yokohama)
 22. 松井利之、愛甲一馬、唐木淳志、岩瀬彰宏、酒巻真粧子、雨宮健太、1-3keVAr イオンビーム照射により FeRh 薄膜に誘起された表面磁性のその場 XMCD 観察、第12回イオンビームによる表面界面解析特別研究会(12月10日、2011年、東京)
 23. 米田和弘、唐木淳志、石神龍哉、岩瀬彰宏、松井利之、FeRh 薄膜におけるイオンビーム照射誘起強磁性の熱的回復挙動、第7回ナノプロセス研究会(11月1日、2011年、堺市)
 24. A.Tohki, K.Aikoh, S.Kosugi, K.Kume, T.Batchuluun, N.Ishigami, A.Iwase, T.Matsui, Effect of high temperature annealing on ion-irradiation induced magnetization in FeRh thin films, 56th Conference on Magnetism and Magnetic Materials (Nov.1, 2011, Scottsdale, USA)
 25. 岩瀬彰宏、松井利之、FeRh 合金の高エネルギーイオン照射による構造・磁性変態 放射光 MCP,XMCD(PEEM),EXAFS を用いた研究、スピン・電子運動量密度研究会(招待講演)(9月23日、2011年、富山)
 26. K.Aikoh, Nao Fujita, T.Matsui, A.Iwase, T.Satoh, K.Takano, M.Kohka, Y.Saitoh, T.Kamiya, T.Nakamura, T.Ohkouchi, M.Kotsugi, T.Kinoshita, Fabrication of

lateral magnetic structures on FeRh thin films by means of ion micro-beam irradiation, European MRS Spring Meeting(May 9, 2011, Nice, France)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕
出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕
ホームページ等なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩瀬 彰宏 (IWASE AKIHIRO)
大阪府立大学・工学研究科・教授
研究者番号：60343919

(2) 研究分担者

松井 利之 (MATSUI TOSHIYUKI)
大阪府立大学・21世紀科学研究機構・教授
研究者番号：20219372

(2) 研究分担者

佐藤 隆博 (SATOH TAKAHIRO)
独立法人日本原子力研究開発機構・放射線高度利用施設部・研究副主幹
研究者番号：10370404