

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月11日現在

機関番号：11401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05518

研究課題名(和文)イオン注入で3nm未満の反強磁性ナノ構造を誘起する新規な超高密度記録媒体の開発

研究課題名(英文)Development of high-density magnetic recording media involving 3nm-antiferromagnetic structure induced by ion irradiation

研究代表者

長谷川 崇 (Hasegawa, Takashi)

秋田大学・理工学研究科・講師

研究者番号：10564742

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,900,000円

研究成果の概要(和文)：超高密度磁気記録媒体の開発は、大きな省エネ効果につながると期待されるが、既存技術の組合せでは課題が山積しているため、新規技術の開発が必要である。本研究では新規なフラット方式という技術を開発し、その方式に最適な材料開発を行った。その結果、鉄と白金をベースとした合金と、鉄とコバルトをベースとした合金の2種類で、適切な第三元素添加により、最適な磁気特性(強磁性-反強磁性相変化)が得られることを明らかにした。次いで本材料系を新方式へ適用することで、終始膜表面の平坦性(フラットさ)を維持しながら3nm未満の反強磁性ナノ構造を形成できる可能性を示し、製造工程が簡素化されることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果の社会的意義としては、省エネへの貢献が大きいと考える。本成果は次世代の超高密度磁気記録が可能なハードディスクへの応用が想定され、向こう10年間で期待される電力削減量は数十億kWhと見積もられる。次に学術的意義としては、大きな磁気異方性を有する強磁性相と反強磁性相が磁気相図上で隣接しており、極僅かな組成変化で転移する興味深い新材料を発見した点が挙げられる。磁気異方性の小さな材料系における強磁性と反強磁性の混在した系に関する研究は過去に多く見られるが、大きな磁気異方性の系における研究は少ない。大きな磁気異方性は永久磁石応用等においても必須の特性であるため、今後の応用研究が期待される。

研究成果の概要(英文)：The increasing power consumption in data centers is a serious drawback with respect to their energy efficiency. Development of high-density magnetic recording media can be a possible solution for overcoming the energy efficiency. In this study, a new fabrication method (flat-patterning) and materials which can be applied to the flat-patterning method were investigated. FePt-based alloys and FeCo-based alloys showed an antiferromagnetic - ferromagnetic phase change, which is required for the flat-patterning method. It was revealed that the flat-patterning method can make the flat and smooth surface after irradiating ions, therefore, backfilling and polishing steps can be replaced by only the ion irradiation step.

研究分野：磁性薄膜工学

キーワード：強磁性 反強磁性 磁気異方性 磁性薄膜 イオン注入 高密度磁気記録 ビット・パターンド・メディア

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

#### (1) 高密度磁気記録が可能な次世代 HDD による大きな省エネ効果

近年の IT 社会の発展により、Google 等では世界数十ヶ所に巨大なデータセンターを保有し、数十万台のハードディスクドライブ (HDD) を、昼夜を問わず連続稼働させている。グリーン IT 協議会では、国内における全てのデータセンターの総消費電力量は、2025 年には約 240 億 kWh に達すると予測している。この膨大な消費電力を抑制するには、メディアの記録密度を向上し、HDD の必要台数を減らすことが非常に有効な手段である。例えば記録密度が 10 テラビット/inch<sup>2</sup> を超える HDD の実現による省エネ効果は、現行 HDD が約 0.8 テラビット/inch<sup>2</sup>、かつ HDD がデータセンターの総消費電力量に占める割合が 20% と仮定すると、向こう 10 年間の電力削減量は約 40 億 kWh (原油 3.4 億 L 相当) と非常に大きな値が見積もられる。

#### (2) 次世代 HDD を作製する従来技術 (トップダウン方式) によるナノ構造形成と問題点

次世代 HDD としては、図 1 のような寸法が数 nm の強磁性体 (ドット) を非磁性媒質中に規則配列させたナノ構造体 (ビット・パターンド・メディア; BPM) が有望視されている。現在における BPM 作製手法の主流はイオンミリングを用いるトップダウン方式である。イオンミリングでは母材と不活性イオンとの衝突現象を利用して切削加工を行う。そのため多種多様な固体材料の加工が可能であるという利点をもつ。しかし加工の際には母材に対して多量のイオンをぶつけるため、加工領域付近の原子配列が乱れたりして結晶がダメージを受ける問題がある。ダメージは強磁性ドットの実効的な磁気エネルギーを減少させ、記録情報の熱安定性を低下させるおそれがある。またミリング後の BPM に対して現行の磁気ヘッドを適用するには、ディスク上で磁気ヘッドを安定浮上させるために、ドット間の溝を非磁性体で埋め戻す工程が必須となる。この埋め戻し工程では成膜、表面研磨、洗浄等の複数のプロセスを経るため、製造プロセスが複雑化し、半導体の例を引くまでもなく、歩留り低下とコスト増大が避けられない。

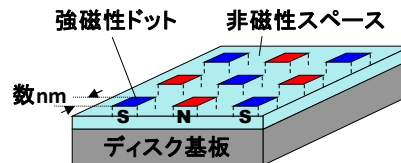


図 1 ビット・パターンド・メディア (BPM) の模式図

### 2. 研究の目的

上述のように、高密度磁気記録が可能な次世代 HDD (ビット・パターンド・メディア; BPM) は大きな省エネ効果が期待されるが、その実現のためには結晶ダメージの低減と製造工程の簡素化を実現する必要がある。この背景を受けて、本研究では薄膜を物理的に削ることなく、終始膜表面の平坦性 (フラットさ) を維持しながらナノ構造形成を行う新方式 (フラット方式) の開発を行う。同時に本方式に適用可能な材料開発を並行して行う。

### 3. 研究の方法

本研究ではフラット方式に適用可能な材料開発とプロセス開発を行う。本研究で開発するフラット方式では、ドット間のスペース部に極微量 (1at% 未満) の高エネルギーイオンを打ち込み、そこを部分的にアモルファス化あるいは組成変化させることで非磁性化することを想定している。この方式の利点としては、従来技術に比べてイオン注入量を極めて微量にできるため、膜表面が削れない点、結晶ダメージの低減が期待される点、ドット形成後の埋め戻し工程を要しないことから製造工程数を簡素化できる点が挙げられる。しかし本方式を適用するには、注入イオンのエネルギー (衝撃) あるいは組成変化によって強磁性 非磁性 (常磁性または反強磁性) の相変化が容易に生じる材料を開発する必要がある。そこで本研究では、まず次世代 HDD の BPM 用材料として有望視されている FePt をベースとした材料開発から始めた。しかし国際情勢を考慮に入れると貴金属である Pt を使用しない代替材料開発への要望が高まった。その後研究を進めるにつれて、当初は予定していなかった Pt フリーの FeCo をベースとした材料でも有望な磁気特性が得られることがわかったことから、これをベースとした強磁性 反強磁性の相変化が生じる材料開発も合わせて行った。

### 4. 研究成果

当初の研究実施計画に従って以下の 3 項目を実施した。

#### (1) 強磁性 非磁性 (常磁性または反強磁性) 相変化を生じる薄膜材料の開発

次世代 HDD (ビット・パターンド・メディア; BPM) の実現のためには、高い磁化と磁気異方性を有し、かつイオン注入 (衝撃または組成変化) で強磁性 非磁性 (常磁性または反強磁性) の相変化が生じる新規薄膜材料の開発が必須となる。本研究ではまず、L10 型 FePt-X 薄膜に注

目し、添加元素 X として V, Cr, Mn, Ru, Rh, Ir 等の多数の組み合わせを調べ、その結果 X = Mn, Ru, Rh, Ir において所望の磁気特性が得られることを明らかにした。一例として X = Mn の結果を図 2 (a) に示す。臨界 Mn 組成  $C_0$  を境に強磁性相 (FM) と非磁性相 (NM) が接していることが分かる。次いで代替材料として、極めて高い磁化と磁気異方性と交換定数を有する正方晶 FeCo 薄膜の開発に成功したことから、本材料をベースとした強磁性-非磁性の相変化が生じる材料開発へと進んだ。FeCo への添加元素 X としては、磁気記録媒体として必要とされる磁気特性 (磁化と磁気異方性と保磁力) の向上と、非磁性 (反強磁性) 相の室温での安定化 (負の交換定数の向上) を目的として、V, Nb 等を試し、その結果 X = Nb において所望の磁気特性が得られることを明らかにした。図 2 (b) は正方晶 FeCo-Nb 薄膜の磁化の Nb 添加量 ( $x$ ) 依存性である。磁化は  $C_0$  を境に急激に減少している。またここには示していないが磁化の温度履歴曲線の測定結果からは反強磁性成分の存在が示唆された。よって本材料系を用いれば、例えば母材の組成を初めは  $C_0$  未満 (FM) としておき、そこに Nb イオンをナノスケールで局所的に注入して部分的に組成を  $C_0$  以上に増加させれば、その領域のみの磁性を FM から NM へと変化させることができ、新方式に適用可能となる。

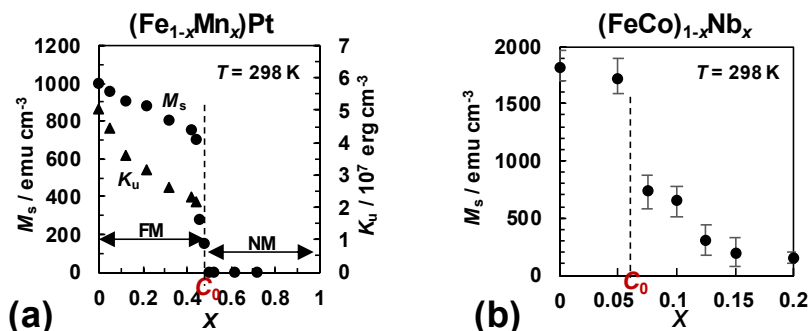


図 2 (a)  $(Fe_{1-x}Mn_x)Pt$  と (b)  $(FeCo)_{1-x}Nb_x$  薄膜の磁化と磁気異方性の第三元素組成 ( $x$ ) 依存性

### (2) イオン注入による非磁性 (常磁性または反強磁性) ナノ構造の形成

本研究で開発した材料に対して実際にイオン注入を行うことによって、ナノ構造の形成実験を行った。図 3 (a) に本研究で開発したナノ構造形成プロセス (フラット方式) の一例を示す。検証の結果、図 3 (b) のように局所的なイオン注入後の膜表面は平坦性が維持され ( $R_a \sim 0.1 - 0.3$  nm) イオン注入された領域 (臨界組成  $C_0$  を超えた領域) の磁区 (磁性相) のみが FM (強磁性) から NM (非磁性) へと変化することが分かった。また膜面に対して (001) 面が垂直方向に配向した L10 型 FeMnPt 薄膜では、注入イオンの膜面内方向への拡散幅はおおむね膜厚の半分程度であることを明らかにした。次いで正方晶 FeCo-X 薄膜では、X = Nb において、膜厚が 3 nm 未満でも非磁性相 (反強磁性相) が室温で安定に存在することが分かった。正方晶 FeCo-X も L10 型 FeMnPt と同様に (001) 面が膜面に対して垂直方向に配向した膜構造であるので、この場合にも注入イオンの拡散幅は 3 nm 未満となる可能性が高いことが分かった。

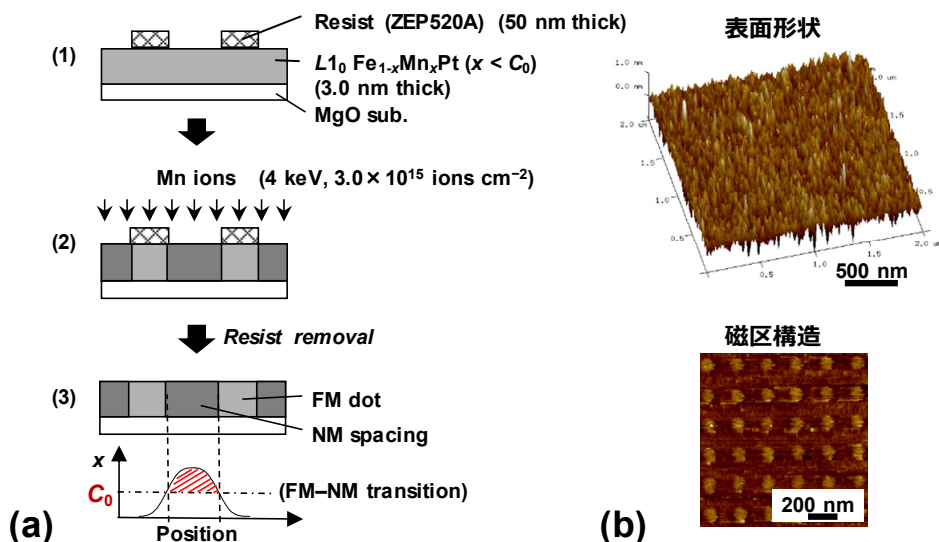


図 3 (a) イオン注入によるナノ構造形成プロセスと (b) 作製したナノ構造体の一例

### (3) 強磁性相と反強磁性相との間働く磁氣的相互作用の解明

本研究で開発した新材料に対してイオン注入を行ってナノ構造を形成した場合には、強磁性相と反強磁性相とが接するため、その間に磁氣的相互作用が働く可能性があり、これを磁気記

録媒体へと応用するには、その相互作用を解明しておく必要がある。一般的には、反強磁性相と強磁性相とが接した界面では、電子的な交換結合に起因した磁氣的相互作用である交換バイアスが検出されることがある。これは記録ビットの反転磁場分布を上げることが懸念される。本研究で開発した新材料の薄膜についても、磁化の温度履歴曲線や磁化曲線の測定、微細磁区構造の観察によって交換バイアスの有無を詳細に調べた。その結果、反強磁性を示す L10 型 (FeMn)Pt 薄膜、L10 型 Fe(PtRh) 薄膜、正方晶 FeCoNb 薄膜と、強磁性を示す L10 型 FePt 薄膜、正方晶 FeCo 薄膜との間には、交換バイアスは検出されなかった。一例として反強磁性を示す Fe(PtRh) 薄膜と強磁性を示す正方晶 FeCo 薄膜の組み合わせの結果を図 4 に示す。交換バイアスは保磁力のシフト量で評価されるが、図を見ると、Field cooling (磁場中冷却) 後の磁化曲線においても保磁力のシフトは観察されない。これは膜厚が数ナノメートルと極薄であることが要因の一つと考えられる。フラット方式で形成されるナノ構造体においても強磁性相と反強磁性相は数 nm オーダーで混在することから、その場合にも交換バイアスは働かないと考える。以上より、本材料系を新方式に適用した際には、強磁性相と反強磁性相との間には記録特性を乱すような顕著な磁氣的相互作用は存在しない可能性が高い。

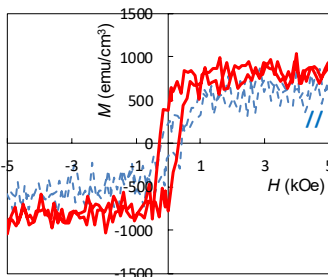


図 4 反強磁性を示す Fe(Pt<sub>0.62</sub>Rh<sub>0.38</sub>) 薄膜 (10 nm) と強磁性を示す正方晶 FeCo 薄膜 (2 nm) を積層させた二層膜における Field cooling (磁場中冷却) 後の磁化曲線

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 24 件)

- (1) 長谷川崇, 情報ストレージの大容量化に資する超高密度磁気記録媒体 (特集: 磁気技術の将来展望 ~ 超スマート社会 Society5.0 に向けて ~), 日本電気学会誌, 査読無, Vol. 139, No. 1, p.p. 14 ~ 17 (2019). (解説記事)
- (2) T. Hasegawa, T. Niibori, Y. Takemasa, M. Oikawa, Stabilisation of tetragonal FeCo structure with high magnetic anisotropy by the addition of V and N elements, Scientific Reports, 査読有, Vol. 9, p.p. 1 ~ 9 (Article number: 5248) (2019). (doi:10.1038/s41598-019-41825-7)
- (3) K. Takahashi, M. Sakamoto, K. Kumagai, T. Hasegawa, and S. Ishio, Uniaxial magnetic anisotropy of tetragonal FeCoV and FeCoV films, Journal of Physics D: Applied Physics, 査読有, Vol. 51, No. 6, p.p. 065005-1 ~ 065005-9 (2018).
- (4) T. Hasegawa, K. Sasaki, C. W. Barton, and T. Thomson, Fabrication and magnetization reversal of L10 FeMnPt dots surrounded by paramagnetic A1 phase formed by ion irradiation, Scripta Materialia, 査読有, Vol. 142, p.p. 6 ~ 9 (2018).
- (5) T. Hasegawa, S. Kanatani, M. Kazaana, K. Takahashi, K. Kumagai, M. Hirao, and S. Ishio, Conversion of FeCo from soft to hard magnetic material by lattice engineering and nanopatterning, Scientific Reports, 査読有, Vol. 7, p.p. 1 ~ 7 (Article number: 13215) (2017). (doi:10.1038/s41598-017-13602-x)
- (6) Y. Nakamura and T. Hasegawa, Magnetic phase change in Co/Pd multilayers caused by ion irradiation, Proceedings of the 8th International Conference on Materials Engineering for Resources, 査読有, p.p. 486 ~ 489 (BP-32) (2017).
- (7) H. Nakane and T. Hasegawa, Effects of lattice distortion on magnetic anisotropy in Fe films, Proceedings of the 8th International Conference on Materials Engineering for Resources, 査読有, p.p. 483 ~ 485 (BP-31) (2017).
- (8) T. Hasegawa and K. Sasaki, Lateral distribution of irradiated ions in L10 FeMnPt films, Proceedings of the 8th International Conference on Materials Engineering for Resources, 査読有, p.p. 479 ~ 482 (BP-30) (2017).
- (9) T. Hasegawa and K. Ito, Structural dependent ferromagnetic-nonmagnetic phase change

in FePtRu films, *Advances in Materials Science and Engineering*, 査読有, Vol. 2017, p.p. 8949458-1 ~ 8949458-7 (2017). (Invited paper)

(10) S. Wodarz, T. Hasegawa, S. Ishio, and T. Homma, Structural control of ultra-fine CoPt nanodot arrays via electrodeposition process, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 査読有, Vol. 430, p.p. 52 ~ 58 (2017).

(11) T. Hasegawa, T. Yamazaki, and S. Ishio, Correlation between crystal planes and disordering of ordered L10 FePt structure caused by ion irradiation, *Materials Letters*, 査読有, Vol. 178, p.p. 243 ~ 247 (2016).

(12) T. Hasegawa, R. Kasahara, K. Sasaki, and S. Ishio, Microfabrication of FeMnPt films involving magnetic phase change due to structural transformation caused by ion irradiation, *Physica Status Solidi - Rapid Research Letters*, 査読有, Vol. 10, No. 6, p.p. 498 ~ 502 (2016).

(13) L. Liu, L. Zhang, L. Liang, K. Ohsasa, T. Koyama, Q. Sheng, T. Hasegawa, and S. Ishio, Microstructure of L10 FePt thin films with anisotropic interfacial energy coefficients and anisotropic atomic mobilities, *Journal of Alloys and Compounds*, 査読有, Vol. 682, p.p. 176 ~ 179 (2016).

(14) A. A. Valiullin, A. S. Kamzin, S. Ishio, T. Hasegawa, V. R. Ganeev, L. R. Tagirov, and L. D. Zaripova, Studying the ferromagnetic-paramagnetic phase transition in thin films of L10 FePt1-xRh<sub>x</sub>, *Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics*, 査読有, Vol. 79, No. 8, p.p. 999 ~ 1001 (2015).

(15) H. Oomiya, B. Wang, S. Yoshida, T. Kataguchi, K. Takahashi, S. Kanatani, L. Zhang, L. Liu, T. Hasegawa, K. Hayasaka, S. Saito, N. Inami, T. Ueno, K. Ono, and S. Ishio, Tetragonally distorted structure and uniaxial magnetic anisotropy of Fe<sub>100-x</sub>Cox/Rh/MgO epitaxial films, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 査読有, Vol. 48, No. 47, p.p. 475003-1 ~ 475003-6 (2015).

(16) 長谷川崇, 木村詩織, 虻川卓憲, A. A. Valiullin, A. S. Kamzin, C. Barton, T. Thomson, 石尾俊二, L10 型 FePtRh 規則合金薄膜の磁気相転移と格子歪みとの相関, *日本金属学会誌*, 査読有, Vol. 79, No. 9, p.p. 423 ~ 428 (2015). (H27 年度若手講演論文賞)

(17) B. Wang, H. Oomiya, A. Arakawa, T. Hasegawa, H. Sasaki, and S. Ishio, Investigation of magnetic anisotropy and magnetic moments of tetragonal distorted Fe<sub>1-x</sub>Cox films on L10 FePt underlayer, *Journal of Applied Physics*, 査読有, Vol. 117, No. 17, p.p. 17C709-1 ~ 17C709-4 (2015).

他 7 件

〔学会発表〕(計 57 件)

(1) 長谷川崇, ネオジウム磁石をしのぐ世界最強磁石になりうる正方晶 FeCo, 平成 30 年度 JST 新技術説明会 (主催: 科学技術振興機構, 秋田産学官共同研究拠点センター), (JST 東京本部別館 1F ホール, 発表日 2018 年 12 月 6 日)

(2) 長谷川崇, 新堀拓哉, 中村靖子, 武政友佑, 及川光彬, 白井千尋, 関勇希, 中川颯太, FeCo への VN 添加による正方晶構造の安定化と一軸磁気異方性, 第 42 回日本磁気学会学術講演概要集, p. 264 (14pC-10) (2018). (日本大学 2018 年 9 月 11 日 ~ 9 月 14 日, 発表日 2018 年 9 月 14 日)

(3) T. Hasegawa, M. Sakamoto, T. Niibori, Y. Nakamura, M. Oikawa, Y. Takemasa, D. Yamamoto, Uniaxial Magnetic Anisotropy of bct FeCo-based Alloy Films, 21th International conference on magnetism (ICM2018) (主催 International Union of Pure Applied Physics), Book of Abstracts, p. 353 (L2-05) (2018). (CA, USA, 2018 年 7 月 15 日 ~ 7 月 20 日, 発表日 2018 年 7 月 17 日)

(4) T. Hasegawa, M. Sakamoto, T. Niibori, Y. Nakamura, M. Oikawa, Y. Takemasa, D. Yamamoto, Uniaxial magnetic anisotropy of tetragonal FeCo based alloy films, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (IcAUMS 2018) (主催 the Magnetic Society of Japan (MSJ), the Korean Magnetism Society (KMS), the Taiwan Association for Magnetic Technology (TAMT), and the Chinese Society of Magnetic Materials and Applications (CSMMA)), IcAUMS 2018 Abstracts, p. 329-330 (G7-0791) (2018). (Jeju, Korea, 2018 年 6 月 3 日 ~ 6

月 7 日, 発表日 2018 年 6 月 7 日) (招待講演)

(5) T. Hasegawa, K. Sasaki, Lateral distribution of irradiated ions in L10 FeMnPt films, The 8th International Conference on Materials Engineering for Resources (ICMR 2017) (主催 The Society of Materials Engineering for Resources of JAPAN), ICMR 2017 Abstracts, p. 55 (BP-30) (2017). (Akita, Japan, 2017 年 10 月 25 日 ~ 10 月 27 日, 発表日 2017 年 10 月 27 日)

(6) T. Hasegawa, S. Kanatani, M. Kazaana, K. Takahashi, K. Kumagai, S. Yoshida, M. Hirao, S. Ishio, Magnetic properties of bct FeCo dot pattern, IEEE International Magnetics Conference (INTERMAG Europe 2017) (主催 IEEE; Institute of Electronics and Electrical Engineers), Intermag 2017 Digest book, p. 211 (AR-09) (2017). (Dublin, Ireland, 2017 年 4 月 24 日 ~ 4 月 28 日, 発表日 2017 年 4 月 25 日)

(7) T. Hasegawa, T. Yamazaki, S. Ishio, Correlation between crystal planes and disordering of ordered L10 FePt structure caused by ion irradiation, The 8th Joint European Magnetic Symposia (JEMS 2016) (主催 European Community of Magnetism), Book of Abstracts, p. 585 (PS.2.115) (2016). (Glasgow, UK, 2016 年 8 月 21 日 ~ 8 月 26 日, 発表日 2016 年 8 月 23 日)

(8) 長谷川崇, イオン照射により FePt 系薄膜で誘起される磁性相変化を利用した微細加工技術, イノベーション・ジャパン 2015 ~ 大学見本市 & ビジネスマッチング ~ (展示番号 MN-08, 発表番号 NMN7301) (東京ビッグサイト, 展示日 2015 年 8 月 27 ~ 8 月 28 日)

(9) T. Hasegawa, S. Kimura, K. Ito, S. Ishio, A. S. Kamzin, A. A. Valiullin, C. Barton, T. Thomson, Ferromagnetic-antiferromagnetic transition in [001]-oriented L10 FeMnPt films, 20th International conference on magnetism (ICM2015) (主催者 International Union of Pure Applied Physics), Book of Abstracts, p. 924 (Mo.H-P51) (2015). (Barcelona, Spain, 2015 年 7 月 5 日 ~ 7 月 10 日, 発表日 2015 年 7 月 7 日)

他 48 件

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 2 件)

名称: 硬質磁性材料  
発明者: 長谷川崇, 石尾俊二  
権利者: 国立大学法人秋田大学  
種類: 特許  
番号: 特願 2017-73008  
出願年: 2017 年 3 月 31 日  
国内外の別: 国内

名称: 硬質磁性材料  
発明者: 石尾俊二, 長谷川崇, 佐久間昭正, バラチャンドラン ジャヤデワン, 新宅一彦  
権利者: 国立大学法人秋田大学, 公立大学法人滋賀県立大学, 秋田県  
種類: 特許  
番号: 特願 2016-044907, 特開 2017-162934  
出願年: 出願日 2016 年 3 月 8 日, 公開日 2017 年 9 月 14 日  
国内外の別: 国内

取得状況 (計 1 件)

名称: FePt 系合金における強磁性 - 常磁性相変化を利用した磁気記録媒体  
発明者: 長谷川崇, 石尾俊二  
権利者: 国立大学法人秋田大学  
種類: 特許  
番号: 特許第 6296243 号  
取得年: 2018 年 3 月 2 日  
国内外の別: 国内