

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 5 月 30 日現在

機関番号：12201

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560348

研究課題名（和文） 次世代ナノパーティクル FePt 磁気記録媒体の新規作製

研究課題名（英文） Preparation of nanoparticle recording media for next-generation magnetic recording

研究代表者

石井 清 (ISHII KIYOSHI)

宇都宮大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30134258

研究成果の概要（和文）：

本研究では、次世代磁気記録媒体として考えられているナノパーティクル媒体の開発を目指した。具体的には、CVD 領域の新しいスパッタ法を用いることにより、 $L1_0$ 構造を有したナノ粒子構造の FePt 合金薄膜を作製することである。その結果、基板温度を 300°C 程度に高めることにより、目的とする微粒子化した $L1_0$ FePt 薄膜が得られることを見出した。それらの薄膜はナノパーティクル媒体としての可能性を有するものであり、下地の付加などによる実用磁気記録媒体の試作研究の段階に達したものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：

In this study, we aimed at the development of nanoparticle magnetic recording media for next-generation recording media. For the purpose, a new sputtering method was used to prepare a FePt alloy thin film having the structures of $L1_0$ crystal phase and nanoparticle-assembly. As a result, we found that the FePt thin films with aimed structures and magnetic properties have been grown at the substrate temperature of about 300°C . They are considered as a thin film having very high potential as a nanoparticle magnetic recording medium.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2010 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：磁気記録媒体、垂直磁気記録媒体、スパッタ膜、ガスフロースパッタ法、FePt

1. 研究開始当初の背景
近年、スピントネル素子を用いた高性能磁

気ヘッドと垂直磁気記録の実用化により、ハードディスク（HDD）における記録密度は 1

Tb/in² (現在の約 10 倍) という驚異的な密度が視野に入ってきた。しかしながら、その媒体は現状の相分離型薄膜では対応できず、“パターン媒体”や究極の“ナノパーティクル媒体”が不可欠と考えられている。そして、“ナノパーティクル媒体 (図 1 に構造概念図を示す)”の実現には、次の二つの革新が必要であるとされている。すなわち、(1) 図 1 のように、ナノ磁性粒子 (次世代では太さが 10nm、次次世代では 5nm 程度の縦長粒子または球形粒子) を敷き詰めた構造のナノ粒子薄膜の作製、(2) 磁性粒子が小さくなくても磁化の熱揺らぎが起きない大きな磁気異方性を持つ材料またはその付加機構の開発という二つの点である。

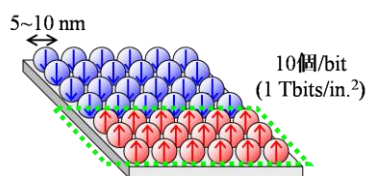


図 1 ナノパーティクル磁気記録媒体の概念図。(磁性粒子の磁氣的結合していないことが必要)

ところで、本学で考案された高い圧力で成膜が可能なスパッタ法 (ガスフロースパッタ法) によると、図 1 に示す微粒子構造の薄膜が成長し易いことが明らかになっており、以前よりその成長メカニズムの解明と制御について研究を行っていた。そのような背景のもと、ガスフロースパッタ法がナノパーティクル媒体の作製を可能にすることが期待され、Co-Pt 合金について媒体化の研究を進めてきた。その結果、10nm 程度の粒子を敷き詰めたような構造の微粒子構造膜が直接成長し、しかも垂直磁化膜となることが明らかになった。一方、次世代のナノパーティクル媒体としてはより微細な粒子構造薄膜が求められるので、その要求を満たす高い結晶磁気異方性を有した L1₀ 構造の FePt 合金について微粒子構造垂直磁化膜の作製が望まれた。ガスフロースパッタ法を用いることによりその実現を目指し、本研究を開始した。

2. 研究の目的

前項に述べたように、L1₀ 構造を有した FePt の微粒子構造膜を作製する条件を見出し、またその磁気特性を明らかにすることが本研究の具体的な目的であり、そのことから次世代の磁気記録媒体実現の可能性を示すことを目指した。

3. 研究の方法

本研究では、Fe-Pt 系合金について、ナノ粒子薄膜成長技術の確立と、記録媒体としての

磁気特性導出を目指している。すでに、Co-Pt 系について 10nm ほどの粒子構造の薄膜が得られ、その垂直方向の保磁力は 7 kOe ほどの非常に高い値を実現している。他の材料系含めて、低温形成による微結晶薄膜では保磁力が高々 2 kOe 程度であり、磁氣的に分離された微粒子構造が形成し易いことが証明されている。

しかし将来的にはより小さな微粒子構造が要求され、また粒子間の磁氣的な結合が十分に分離されていることが必要である。そこで、より磁気異方性が大きな Fe-Pt 系についても同様の構造とより高い保磁力を導出することが本研究全体の目標である。要約すると、次のとおりである。

(1) Fe-Pt 系合金について、ナノ粒子構造薄膜の成長条件を実験的に明らかにすること。

(2) Fe-Pt 系合金においては、高い結晶磁気異方性を示すためには組成が 1 : 1 であり、また結晶相が Fe と Pt が規則配列した L1₀ 構造を取らなければならない。L1₀ 相は低温相であるため、低エネルギー成膜プロセスであるガスフロースパッタ法では低温においても規則化が進むことが期待される。その点を実験的に明らかにすること。

(3) 得られる L1₀ FePt 微粒子構造膜の磁気特性を明らかにすること。

これらの実験を通して、超高密度のナノパーティクル磁気記録媒体を実現する指針を得る。

4. 研究成果

まず、ガスフロースパッタ法により様々な条件において FePt 薄膜を作製し、作製条件パラメータと薄膜特性の関連性を詳細に調べた。作製条件のパラメータは、基板温度、膜厚、真空中のポストアニール、基板の種類 (ガラス基板と MgO 単結晶基板) であり、薄膜の特性としては、粒子構造 (形態)、結晶構造 (L1₀ 相への規則度)、磁気特性である。

表 1 にガラス基板上に作製した代表的な試料の加熱温度、膜厚及び組成を示す。

表 1 代表的な試料薄膜

Axx は基板加熱、Bxx はポストアニールによる試料

Sample name	Heating (°C)	Thickness (nm)	x in Fe _x Pt _{1-x}
ACH	300	130	0.51
ACL	250	162	0.64
ANH	300	66	0.43
ANL	250	49	0.44
BCH	300	144	0.55
BCL	250	146	0.54
BNH	300	52	0.61
BNL	250	63	0.56

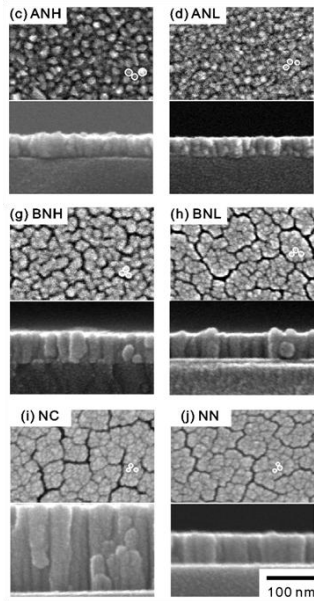


図2 代表的な試料の構造(表面及び断面 SEM 写真). (i), (j)は基板加熱しない(基板温度は80°C)で成膜した試料.

図2に表1に示す試料の表面及び断面 SEM 写真を示す。図のように、基板加熱及びポストアニールにより構造は大きく変化することが分かった。このことは、薄膜作製において観測される一般的な傾向であるが、本研究において見出された特徴として以下の点が重要である。

(1) 膜厚が薄い場合、成膜中に適度な基板加熱を行うとグレインが微細化した微粒子薄膜が成長する。

すなわち、図2に見られるように、基板温度が80°Cの試料(j)では小さな結晶粒子が凝集してボイドを伴う大きな2次レインを形成しているが、成長温度が250°Cの試料(d)では結晶粒子が独立して微細化したグレインになり、さらに成長温度が上昇し300°Cの試料(c)においては、グレインが大きくなっているが、それらは分離しているように見える。(2) ポストアニールでは、膜厚が薄い試料(h)でも厚い試料(g)でも結晶粒子の凝集によるグレインがより成長し、クラックが顕著になってしまい、微粒子構造は形成されない。

(1)及び(2)の傾向から、微粒子構造を形成するためには、適度な基板加熱が有効であり、FePtの場合には250~300°Cが適していることが明らかになった。このような結果は初めて得られたものであり、微粒子構造膜の作製において、ガスフロースパッタ法の有用性とともに非常に有用な知見である。

なお、この現象は薄膜成長における堆積原子の表面移動の見地から現象論的にある程

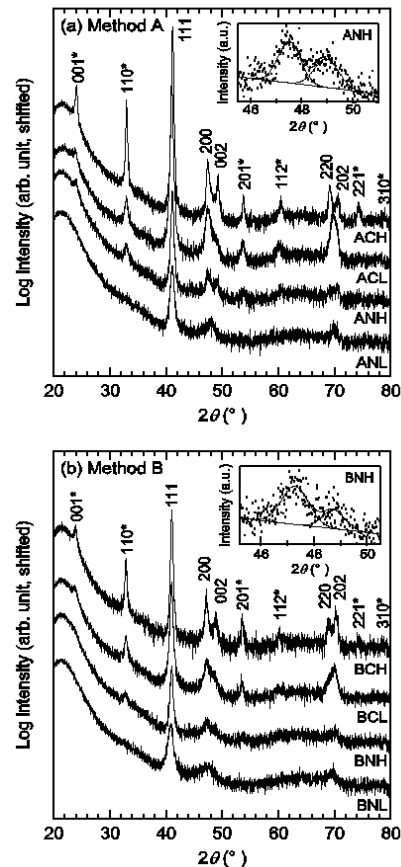


図3 表1に示す試料のX線回折パターン. 上図が基板加熱による場合、下図がポストアニールによる場合の薄膜試料に対するものである。

度は説明できるものであるが、薄膜工学の分野では非常に貴重な知見であり、ナノ構造構築の面で他の分野へも大きな波及効果があるものといえる。

一方、 $L1_0$ 規則化については、基板加熱もポストアニールもほぼ同様な効果を示すことが明らかになった。すなわち、図3に示すX線回折(XRD)パターンに見られるように、80°Cの成長温度において $L1_0$ への規則化は起きず、 $L1_0$ への規則化を進めるためには300°C以上の基板加熱またはポストアニールが必要であることが分かった。なお、図3において110*回折ピークのように*印が付いているピークが $L1_0$ 規則構造による反射であり規則化が起きていることを示している。

XRDの結果から算出された規則度の加熱温度依存性は2つの加熱方法で傾向が類似しており、加熱温度250°Cにおいて膜厚の薄い試料は規則度が0であるのに対し、厚い試料では約0.6を示した。これは、一般に規則度は膜厚に依存するためである。さらに、加熱温度300°Cにおいてはすべての試料の規則度が0.6から0.8の間の大きな値を示した。

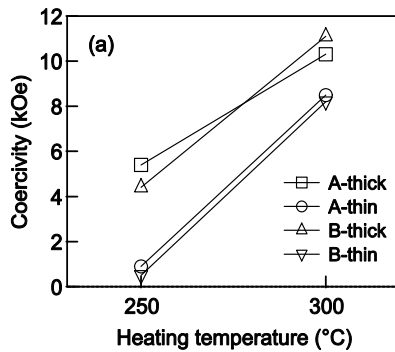


図4 保磁力の加熱温度依存性の例.

図4に保磁力の加熱温度依存性を示す。すべての試料において保磁力は温度の上昇に伴い増加していることが分かる。300°C加熱試料では、基板加熱(A-)、ポストアニール(B-)のいずれの場合も8 kOe以上の高い保磁力を示しており記録媒体の要件の一つを満たしている。これは、規則化の進行により磁気異方性が増加すること、及び、粒子間の磁氣的結合が弱くなることに起因している。

以上のように、ガスフロースパッタ法において堆積中の基板加熱および堆積後のポストアニールによりFePt薄膜を作製し、次世代磁気記録媒体への応用について検討した。

その結果、300°Cの加熱温度において約60 nmの膜厚では規則度0.6を超える膜を得ることができ、それらの薄膜は8 kOe以上の大きな保磁力を示すこと明らかにした。また、堆積中の基板加熱によって作製された膜は15 nm程度の繊維状の粒子が緻密になっているのに対して、ポストアニールによって加熱された膜はボイドが見られる構造であり、成膜時の300°C程度の適度な基板加熱が微粒子構造を形成するために必要であることを明らかにした。

これらの基礎的な膜特性に関する知見から、ガスフロースパッタ法によるFePt微粒子膜は磁気記録媒体への展開が期待できるポテンシャルを十分に有していると考えられる。すなわち、現在ハードディスクの記録媒体は相分離型の微粒子化が採用されているが、本研究で目指したグレイン分離型媒体も実用化の可能性のあるものといえる。その実現のためには、下地の付加による微細化と結晶配向制御が不可欠であり、記録再生特性の実験を含めた媒体試作研究を進めることが必要である。今後の課題である。

一方、その実用化研究において、かつてのフロッピーディスクに類似した、安価で使い捨ての高密度磁気記録方式が検討されてよいのではないかと考えられる。

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8件)

- ① H. Sakuma, T. Taniyama, K. Ishii, Anomalous relaxation in magnetoresistance of Fe/Fe-O granular system, 電気学会論文誌A, 査読あり (印刷中)
- ② H. Sakuma, R. Odashima, S. Shidara and K. Ishii, Formation of closely packed grains with L10 ordering in gas-flow-sputtered FePt thin films, Transactions of the Materials Research Society of Japan, vol.36, pp.599-602 (2011). 査読あり
- ③ 設楽修平, 小田嶋亮, 佐藤芳樹, 佐久間洋志, 石井清, ガスフロースパッタ法によるL10規則化したFePt薄膜における粒子の微細化, 電気学会マグネティクス研究会資料, vol. MAG-10-211, pp.65-69 (2010). 査読なし
- ④ 佐久間洋志, 青戸敦, 石井清, STMによる磁性ナノ粒子の磁化反転検出の試み, 電気学会マグネティクス研究会資料, vol. MAG-09-172, pp.21-24 (2009). 査読なし
- ⑤ H. Sakuma, H. Kawano, K. Ishii, and T. Taniyama, Low-temperature Ordering in FePt Films Deposited by Gas Flow Sputtering, Journal of the Magnetism Society of Japan, vol.33, pp.167-170 (2009). 査読あり
- ⑥ H. Aoshima, H. Suzuki, H. Sakuma, and K. Ishii, Fabrication of Fe nanoparticles with sizes ranging from 30 to 170 nm by gas flow sputtering, Journal of Applied Physics, vol.105, pp.07B519-07B521 (2009). 査読あり
- ⑦ H. Sakuma and K. Ishii, Gas Flow Sputtering: Versatile Process for The Growth of Nanopillars, Nanoparticles, and Epitaxial Thin Films, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, vol.321, pp.872-875 (2009). 査読あり
- ⑧ H. Sakuma, K. Nishiguchi, S. Mifuji, and K. Ishii, Magnetic Properties of Co-Pt Nanopillars as Function of Lattice Parameter and Morphology of Pt Underlayer, Transactions of the Materials Research Society of Japan, vol.34, pp.133-136 (2009). 査読あり

[学会発表] (計9件)

- ① 佐藤芳樹, 佐久間洋志, 石井清, 結晶配向したFePt薄膜の規則度に関する研究, 第2回電気学会東京支部栃木・群馬支所合同研究発表会, 2012年2月29日, 桐生市市民文化会館
- ② 佐久間洋志, 石井清, ナノプローブによるFeナノ粒子の局所磁気伝導測定, 第35回

日本磁気学会学術講演会, 2011年9月27日, 朱鷺メッセ

- ③坂本真一, 直井亮征, 齋藤勇介, 佐久間洋志, 石井清, ガスフロースパッタ法による新奇形状 Fe 微粒子の作製と粒径制御, 電気学会マグネティックス研究会, 2011年8月3日, 高知県県立県民センター
- ④齋藤勇介, 坂本真一, 佐久間洋志, 石井清, ガスフロースパッタ法による新奇形状 Fe 微粒子の作製, 第34回日本磁気学会学術講演会, 2010年9月7日, つくば国際会議場
- ⑤設楽修平, 小田嶋亮, 佐藤芳樹, 佐久間洋志, 石井清, ガスフロースパッタ法によるL10規則化したFePt薄膜における粒子の微細化, 電気学会マグネティックス研究会, 2010年12月17日, 崇城大学
- ⑥H. Sakuma, R. Odashima, S. Shidara, and K. Ishii, Fabrication of Close-Grained and L10 Ordered FePt Thin Films by Gas Flow Sputtering, The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications, 2010年7月13日, Sendai International Center
- ⑦H. Sakuma, Y. Sato and K. Ishii, FMR study of Fe nanoparticle chains, 7th International Conference on Fine Particle Magnetism, 2010年6月23日, Uppsala University
- ⑧小田嶋亮, 河野仁志, 設楽修平, 佐久間洋志, 石井清, FePt薄膜の低温規則化に及ぼす熱処理条件の影響, 第33回日本磁気学会学術講演会, 2009年9月12日, 長崎大学
- ⑨石井清, 佐久間洋志, ガスフロースパッタ法による低ダメージ薄膜堆積とナノ粒子作製, 日本真空協会スパッタリングおよびプラズマプロセス技術部会第114回定例会, 2009年7月24日, 機械振興会館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石井 清 (ISHII KIYOSHI)
宇都宮大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 30134258

(2) 研究分担者

佐久間 洋志 (SAKUMA HIOSHI)
宇都宮大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 40375522

齋藤 和史 (SAITOU YOSHIFUMI)
宇都宮大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 70251080