

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15日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560368

研究課題名（和文） 自己組織型ナノ凹凸基板上の超高密度熱アシスト記録用複合媒体

研究課題名（英文） Ultra high density magnetic recording media with self-assembly prepared nano-structured substrate for thermally assisted recording

研究代表者

伊藤 彰義（ITOHI AKIYOSHI）

日本大学・理工学部・教授

研究者番号：60059962

研究成果の概要（和文）：FePt 孤立微粒子媒体につき、近接場光アシスト記録過程のモデル計算を行い単一微粒子の磁化反転条件を明らかにした。また、2種のナノ構造基板上へ、高速昇温加熱法により FePt、FeCuPt 微粒子を形成した。自己組織化法により作成した配列周期 14nm の表面ナノ凹部を有する基板、ディップコートにより粒径 18nm のナノシリカ球を単層相当塗布した基板である。いずれも、磁性微粒子の平均径の減少、面内粒子数密度の増大に寄与した。

研究成果の概要（英文）：We performed model simulations of FePt isolated grains, for estimating recording process in thermally assisted recording with near field optical head. We could verify the magnetization of one FePt grain was reversed. FePt or FeCuPt particles were fabricated by rapid thermal annealing method on two kinds of nano-structured substrates. Nano-Dent Array substrate with periodicity of 14 nm was prepared by the polymer micelles technique. The other is Self-Assembled spherical small Silica Particles with diameter of 18 nm which was fabricated by the dip coating method. By utilizing those substrates, average diameter of FeCuPt particles was successfully reduced and areal density of particles was drastically increased.

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	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

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：データストレージ、自己組織化、ナノスケール凹凸、複合材料・物性、熱アシスト記録

1. 研究開始当初の背景

磁気、光磁気記録とも 1Tb/in² を大きく超える媒体実現が緊急課題である。磁気記録では、熱安定性の確保、光磁気記録連続膜で

は磁壁収縮による不安定化という重大問題がある。我々は先の科研費の研究[1]、[2]で、FePt 微粒子下地による磁壁ピンニングにより後者の問題の回避に成功した。磁区構造シ

ミュレーションから 22nm 径磁区(1.3Tb/in²)が熱的にも安定であり、下地 FePt の Ku、界面結合の変化に対するピンニング効果も明確にした。

FePt では急速昇温熱処理(RTA)が微粒子化に有効、自己配列凹凸を有する SiO₂膜が充填率大幅増加に効果的、Cu、Ni 添加により Tc を低下し市販 LD での記録に成功するなど成果をあげ、複合膜が超高密度ハイブリッド記録媒体として有望であることを示した。

克服すべき残された問題は、FePt の微粒子化に伴う配向性、結晶性の低下、これが自己組織凹凸下地上で顕著であること、複合膜上部に耐酸化性の高いものが望まれることである。

[1]平成 16~17 年度、伊藤彰義他 3 名、基盤(B)16360182

[2]平成 18~19 年度、伊藤彰義他 3 名、基盤(C)18560347

2. 研究の目的

記録密度 1 平方インチ当り 2 テラビット(2Tb/in²)以上の超高密度磁気・光・ハイブリッド記録媒体のための交換結合型孤立粒・連続膜の複合媒体技術、BPM (Bit Patterned Media) 用高 Ku 孤立微粒子およびその高充填率・規則配列化のための自己組織型凹凸下地基板の実現により超高密度磁気記録媒体実現を目的とする。具体的には、

- (1) FePt 等微小粒と希土類遷移金属 (RE-TM) 等による複合膜および BPM 用孤立微粒子の光アシスト磁気記録シミュレーションにより 2Tb/in²以上の記録条件の探索
- (2) 自己配列した 10nm 以下の凹凸を有する SiO₂ 基板、および微小 SiO₂ 球を配列した凹凸基板の作製。
- (3) 高い Ku を有する FePt 等の微小粒を高充填率、高配向で作製する。
- (4) 高 Ku の連続膜、あるいは(5) Ku の異なる孤立粒子、を積層した複合膜を実現する。

高 Ku 微粒子を凹凸の異なる 2 種の自己配列型基板に配列し、その上に連続膜等を形成した複数の複合膜による、超高密度光磁気ハイブリッド記録媒体をシミュレーションと実験の両面から追求する。

3. 研究の方法

上記の課題を解決し、2Tb/in²を超える高密度ハイブリッド記録用媒体の実現を早期に図るため、レーザー照射下のハイブリッド記録過程のマイクロマグネティック(LLG)シミュ

レーションおよび自己組織凹凸基板作製技術の確立、その上への FePt 系微粒子作製における問題点の解決等緊急を有する課題に傾注して研究を実施する。その具体的手法は以下の通りである。

- (1) レーザ照射ハイブリッド記録過程マイクロマグネティックシミュレーション
- (2) 自己配列微小空孔凹凸を持つ SiO₂ 下地の高配列化とナノテンプレートへの応用、SiO₂ 微小球の自己配列下地の作製とナノテンプレートへの応用
- (3) 上記 2 種基板上の FePt 孤立粒の結晶解析、磁気特性解析と微小化のための界面制御
- (4) 上記の膜と交換結合した RE-TM 膜に代る耐酸化性のある連続膜の積層
- (5) 上記(3)の膜と交換結合した耐酸化性のある孤立膜の積層

その詳細は次の通りである。

(1)では、TbFeCo/孤立 FePt 微粒子複合膜の安定磁区形状の LLG シミュレーションをレーザー照射過程を含む動的なものへ発展させ、特に媒体磁性の温度特性による記録特性への影響を記録磁区形状から詳細に検討しハイブリッド記録の有効性を検証する。

(2)では、孤立 FePt 微粒子の高密度化に有効なことを示した下地である。その単層化と更なる高配列化の作製条件を明確にし、応用を図る。また、凹凸の関係が逆となる下地基板として(1)と同様の試行をする。申請当時、インプリント用マスター構造への応用を目的とした自己配列シリカ粒子形成に関する報告が存在したが、本研究では目的が異なり、直接テンプレート基板として FePt 等の作製を可能とするため基板への付着性の高いものを追求している。

(3)は、(2)の基板上で成功した FePt 孤立結晶粒の微小化に伴う異方性低減等の特性改善を図るため SiO₂ 下地と FeXPt (X=Cu、Ni 他)間の中間層の検討、ならびに透過型電子顕微鏡(TEM)による詳細な観察により高い配向性を得る条件を明確にする。

(4)は、既に成功したピンニング型複合膜(TbFeCo/FePt 微粒子)の上部連続膜を耐酸化性が高く磁気異方性の高いもの例えば FeXPt (X=Cu、Ni 他)へと変更しその製膜法の確立と性能評価を行う。

(5)は、(4)と並行し(3)の FePt 微粒子上に交換結合した中程度の Ku の例えば FeXPt 粒を形成し、ECG タイプの高密度磁気記録用孤立粒薄膜の作製を目指す。

4. 研究成果

前述の通り、レーザ照射下のハイブリッド記録過程のマイクロマグネティック (LLG) シミュレーションおよび自己組織凹凸基板作製技術の確立、その上への FePt 系微粒子作製における問題点の解決等緊急を有する課題に傾注して研究を実施した。その主な成果は以下の通りである。

(1) レーザ照射下でのハイブリッド動的記録過程のLLGシミュレーション

記録媒体として、図1に示すよう六方格子状に規則配列した $L1_0$ -FePt孤立ナノ微粒子(直径15nm)からなるものとし、熱アシスト磁気記録の方式として一様磁界中で急峻な熱勾配を利用し記録を行うものとし、近接場光による局所過熱による磁性微粒子の磁化反転の可否について検討した。

図2に示すよう、1ns間のレーザ照射により注目粒子の温度が770K(キュリー温度)に達した後、冷却とともに、図3に示すよう1粒子のみの磁化反転が時定数260ps程度で形成し得る事が明らかとなった。

上記記録過程を総合的に取り扱うため、

- ・FDTD法により近接場光による媒体内部の光エネルギー密度分布を計算、
- ・熱伝導解析による温度分布を求め、
- ・その温度分布の時間依存性を用いたマイクロマグネティックシミュレーション、

を統合した手法を開発した。

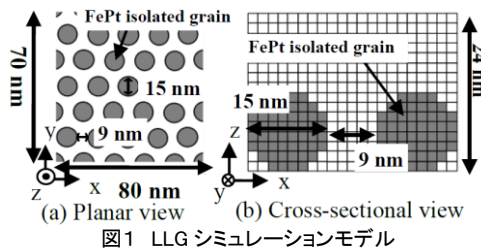


図1 LLGシミュレーションモデル

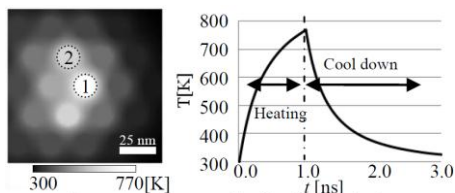


図2 レーザ照射後1nsにおける面内温度分布と、粒子(図中番号1)温度の時間依存性

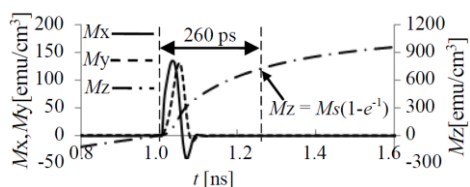


図3 単一粒子中磁化成分の時間依存性

(2) 自己配列微小空孔凹凸を持つ SiO_2 下地基板の作成とナノテンプレートへの応用、

① ナノ凹部を有する下地基板の作成

高分子の自己組織化現象により生じる球状ミセルを利用し、自己集積作用により形成した多孔質 SiO_2 表面をArエッチングすることにより、周期約14nmの凹部を有する基板(NDA)を作成した。図4に示すよう、面内に稠密構造を形成し、平均凹部密度は、3.7T dents/inch²である。

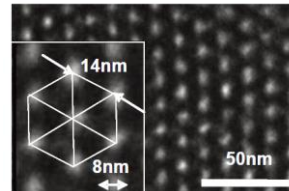


図4 多孔質基板の面内TEM観察像

② ナノ凸部を有する下地基板の作成

上記NDAと凹凸が双対な基板として、ディッピング法により溶液中に分散したナノシリカ粒子を熱酸化Si基板上へ自己集積したシリカ粒子層(SASP)を表面に有するテンプレート基板作成プロセスの検討、作成を行った。図5に示すよう、平均粒径18nmのナノシリカ球を1~2粒子層厚で形成可能なプロセスを明らかにした。このとき、ナノ粒子の平均面粒子密度は2.2T particles/inch²である。

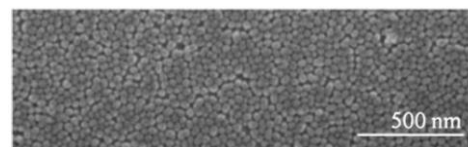


図5 自己集積したシリカ粒子層の面内SEM観察像

③ 熱酸化Si基板へのナノスケールマスクパターン転写構造形成

ナノ凹凸構造の高強度化、均質化、表面残留物除去を図り、②で検討した平均直径18nmの自己集積シリカ粒子層(SASP)をマスクパターンとし、エッチング(ICP-RIE)処理による熱酸化Si基板へのナノスケール転写構造形成につき作成を行い、図6に示すよう、作成が可能であることを確認した。

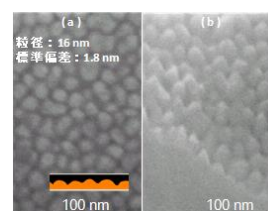


図6 ナノスケールパターン転写構造 (a)面内SEM像 (b)鳥瞰SEM像

(3) ナノ凹凸下地基板への磁性微粒子形成
 ① ナノ凹凸下地基板利用による磁性微粒子形成密度の増大

(2) で述べたナノ表面構造を有する下地基板を用いる事による磁性微粒子形成密度の増大効果につき検証を行った。SASP上へFe/Pt多層膜製膜し、その後急速昇温結晶化法を用いることで作製したFePtナノ磁性微粒子形状は、図7(a)、(b)に示すよう、平坦な熱酸化Si基板上へ作製した場合に比べ、平均粒子直径は29.6nmから14.8nmへ減少し、粒子数密度は0.16から0.74T particles/inch²へと著しく増加する事を確認した。さらに、初期積層厚を3.75nmから1.88nmへ減少する事により、図7(c)に示すよう、平均粒子直径5.1nm、粒子数密度は5.4T particles/inch²の高粒子密度の微粒子膜が得られた。

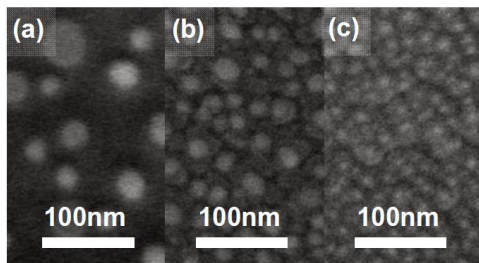


図7 FePt微粒子の面内SEM観察像
 (a) 平坦 SiO₂/Si (Pt/Fe膜厚: 3.75 nm)
 (b) SASP (Pt/Fe膜厚: 3.75 nm)
 (c) SASP (Pt/Fe膜厚: 1.88 nm)

② 凹凸基板上でのFePt孤立粒子の結晶解析

前述の自己集積したシリカ粒子層 (SASP) を表面に有するテンプレート基板上へ、実際にFe/Pt多層膜を製膜、その後急速昇温結晶化法を用い形成した完全孤立ナノ磁性微粒子の結晶構造が、(001)優先配向したL1₀-FePt構造である事をXRDプロファイルより確認した。また、最少の直径5.1nmの微粒子についても、電子線回折パターン観察より(001)優先配向したものが存在する事を確認した。

(4) 急速昇温結晶化 (RTA) 法によるFePtCu磁性孤立粒子の形成過程解明と結晶構造解析

前述の通り、多層構造形成後にRTA処理を行う事によりナノ磁性微粒子の形成が可能である事を示したが、その詳細形成プロセスは不明であった。そこで、RTA直後に急冷プロセスを導入しRTA後の残留熱効果による結晶粒同士の結合を抑制することで、孤立微結晶粒形成過程の構造と熱処理条件との相関につき検討した。Fe/Cu/Pt三層膜を出発構造とし、種々の最高到達温度 T_m、昇温速度 Tr

における微粒子形成および析を実施した結果、Tr = 150 °C/s、T_m = 460 °C付近において、孤立微粒子が得られ、図8に示すXRDプロファイルより主にL1₀規則合金相に相当する(001)超格子ピークが見られるが、(002)ピーク周辺部に不規則相によると思われる分布が出現した。詳細構造検討として、図9に示すよう単一微粒子に対する面内TEM観察及び電子線回折より、微粒子の核となる大部分は規則相となり、周辺部に不規則相が出現している事が明らかとなった。以上より、約3sの急速熱処理及び時定数4.4sの冷却プロセスで、L1₀規則相を主成分としたFeCuPt微粒子を形成した。

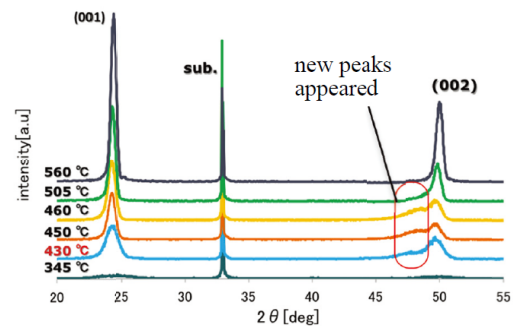


図8 急速昇温後に急速冷却処理を実施し作成したFeCuPt微粒子膜のXRDプロファイル。急速昇温時の最高到達温度依存性を示す。

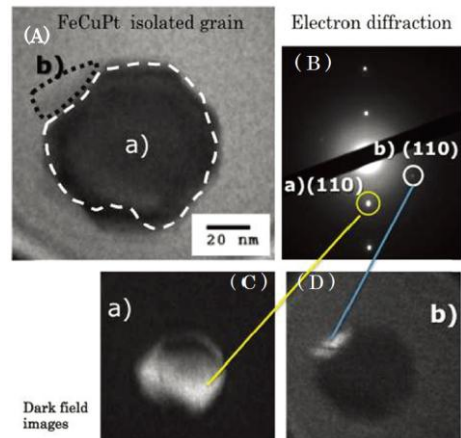


図9 FeCuPt単一微粒子の各種観察像 (T_m=460°C、Tr=150°C/s)、(A)面内TEM明視野観察像。(B)電子線回折像。L1₀-FeCuPtの(110)超格子解説点が存在する。(C)、(D)それぞれ(B)中a)、b)スポットに対応する暗視野観察像

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3件)

- ① A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame, and K. Mizusawa, A Role of Rapid Thermal Annealing (RTA) for Achieving Fine Isolated Grains of FeCuPt, J. Magn. Soc Jpn., 査読有, Vol. 36, No. 1-2, 2011, pp. 62-65
- ② K. Mizusawa, A. Tsukamoto, and A. Itoh, FePt grains for magnetic storage on layer of self-assembled silica Nanoparticles, J. Mater. Res., 査読有, Vol. 26, No. 2, 2011, pp. 205-208
- ③ A. Itoh, and A. Tsukamoto, Hybrid magnetic recording media on FePt grains and self-assembled nano-structured layers, J. Magn. Soc. Jpn., 査読有, Vol. 33, No. 6-2, 2009, pp. 507-512

[学会発表] (計14件)

- ① A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame, and K. Mizusawa, A role of rapid thermal annealing (RTA) for achieving fine isolated grains of FeCuPt, MORIS 2011 (Magnetics and Optics Research International Symposium 2011) (招待講演)、2011年6月24日、Nijmegen, The Netherlands
- ② A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame, K. Mizusawa, FeCuPt isolated grains prepared by rapid thermal annealing on nano-structured substrates, Moscow International Symposium on Magnetism (MISM) 2011 (招待講演)、2011年8月23日、Moscow, Russia
- ③ A. Itoh, J. Yeh, and A. Tsukamoto, Nano convex pattern substrate prepared by self-assembled silica particles and dry etching process for high-density magnetic recording media, 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, 2010年11月16日、Atlanta, Georgia, USA

[その他]

研究代表者ホームページ:

<http://inl.ecs.cst.nihon-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伊藤 彰義 (ITOHI AKIYOSHI)

日本大学・理工学部・教授

研究者番号: 60059962

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

塚本 新 (TSUKAMOTO ARATA)

日本大学・理工学部・講師

研究者番号: 30318365