

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360016

研究課題名(和文)放射光ナノビームによるビットパターン媒体の単一素子磁気解析

研究課題名(英文) Nano X-ray magnetometry in a single magnetic dot in bit-patterned media

研究代表者

鈴木 基寛 (Suzuki, Motohiro)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員

研究者番号：60443553

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,500,000円、(間接経費) 4,350,000円

研究成果の概要(和文)：次世代の超高密度磁気記録材料であるビットパターン媒体を原子レベルで解析することを目的とし、放射光X線ナノビームを用いた顕微磁気測定法の開発を行った。100 nm ビームサイズでのX線磁気円二色性分光測定と元素別磁気解析を可能とした。本手法をCoPtビットパターン媒体に適用することで、直径200 nmの単一磁気ドットの磁化反転過程を直接観測し、実媒体の特性を左右する反転磁界分布を個々のドットの特長から議論した。より微細な直径36 nmのドットの単一素子観察にも成功しており、今後テラビット媒体の解析に向けて研究を進めている。

研究成果の概要(英文)：A nano X-ray magnetometry technique was developed to analyze the magnetic properties of bit-patterned media, a candidate for the next-generation high-density magnetic storage, in an atomic level. A brilliant synchrotron radiation X-ray beam was successfully focused to a spot of 100 nm in diameter and enabled X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy and element-specific magnetic analysis with this beam size. The technique has been applied to CoPt bit-patterned media sample. Magnetization reversal processes of a single magnetic dot of a 200 nm diameter were elucidated and the microscopic origin of the switching field distribution was discussed. Towards ultimate analysis of real terabit media, a preliminary result in a smaller 36 nm diameter dot has recently been obtained.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：磁性体 磁気記録 放射線、X線

### 1. 研究開始当初の背景

大容量かつ高速な情報蓄積・伝達を可能とする磁気記録媒体材料は、現代社会に欠かせない技術基盤である。今後数年間のうちに 1Tbit/in<sup>2</sup> (切手サイズの中に一兆ビットの情報) という超高密度記録を達成するためのブレイクスルーとして、連続膜からビットパターン媒体への移行が進められている。ビットパターン媒体では、数 10 nm の大きさの単一の磁性体ドットの磁化方向によって 1 ビットの情報記録する。しかし、現状のビットパターン媒体では、個々のドットの形状や大きさのばらつきが存在する。また、ドット形状に加工した際のダメージによる結晶構造や化学状態の変化も起こっていると推察される。そのためドットごとの磁気特性に違いが生じ、ひいては記憶素子全体の性能が左右される。これらの構造、化学状態と磁気特性との関係を明らかにすることで、より高性能な磁気記録媒体の開発に役立てられる。したがって、磁気記録媒体の開発には、適切な磁気特性の評価手法の開発が同じく重要であり、ナノスケールの空間分解能と原子レベルでの材料解析を可能とする磁気プローブが求められる。究極的には、テラビット密度に相当する 20 nm のサイズの個々の磁気ドットに関して、材料解析を行う手法が必要となる。

### 2. 研究の目的

そこで、本研究では、放射光リングから得られる高輝度 X 線によるナノスケールの顕微磁気観察手法の開発、およびビットパターン媒体の単一素子ごとの磁気解析を目的とした。測定は放射光リングから得られる高輝度 X 線を集光ミラーにより試料上で 100 nm サイズのスポットに集光し、その光束による磁気円二色性 (X-ray magnetic circular dichroism: XMCD) 分光を行うことで実現する。いわば、ナノ XMCD 法と呼ぶ方法である。低エミッタンス特性、波長可変性、偏光特性という高輝度放射光の特性をフルに活用し、元素選択性および、バルク感性という特色を有している。これまでわれわれが開発してきたマイクロ XMCD 法の分解能を 10 倍以上に高め、100 nm の空間分解をもつ磁気プローブとなる。強磁場下での磁気飽和過程 (ヒステリシスループ) の観測も可能である。上述の性能は、他の磁気顕微である MFM やカー顕微鏡、マイクロ SQUID、光電子顕微鏡、ローレンツ透過電顕等では得られない特色である。

### 3. 研究の方法

本研究では、「I. ナノ XMCD 装置の開発」、「II. ビットパターン媒体のナノ磁気解析」という 2 つのサブテーマを柱として実施した。(I) に関しては、大型放射光施設 SPring-8 磁性材料ビームライン BL39XU において、ナノ XMCD 法の開発を行った。ナ

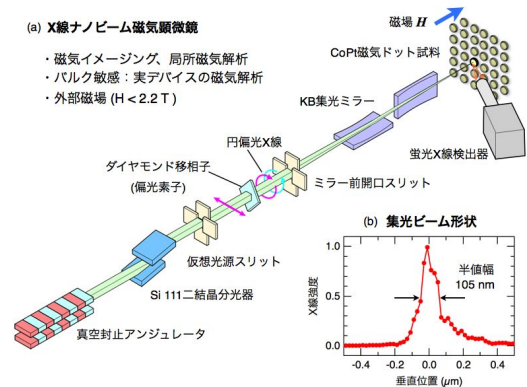


図 1. (a) ナノ XMCD 装置の概要。(b) 集光ビーム形状。

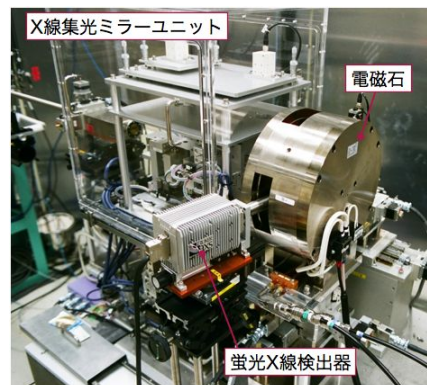


図 2. ナノ XMCD 装置の外観。

ノビームを形成するための X 線集光光学系、および高磁場の試料環境を整備することで、磁気記録媒体の磁気解析に適した測定系を構築した。なお、ナノ集光ミラー本体は、文部科学省「低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワーク整備事業」によって、2010 年度中に整備された装置を用いた。(II) に関して、ナノ XMCD 装置の整備後、CoPt ビットパターン媒体の解析を行った。1 Tbit/in<sup>2</sup> の記録密度を実現するための 25 nm ピッチの媒体に関して磁気異方性、保磁力、磁気ダメージ、元素分布解析を行うことを最終目標とした。

### 4. 研究成果

#### (1) ナノ XMCD 装置の開発

図 1(a) にナノ XMCD 装置の概要を、図 2 に装置の外観写真を示す。放射光リングに設置されたアンジュレータ光源からの高輝度 X 線を、Si モノクロメータで単色化し、ダイヤモンド移相子により円偏光を生成する。その後、二枚の円筒面鏡を組み合わせた集光ミラーによって試料上に X 線を集光する。これら全ての光学素子を最適に調整することで、水平方向 120 nm × 垂直方向 100 nm の集光ビームサイズを達成した。集光ビームが利用可能な X 線エネルギー範囲は 5 から 15 keV であり、Fe, Co, Ni といった 3d 遷移金属元素や希土類元素、Pt などの 5d 遷移金属とい

った代表的な磁性元素の測定が行える。図1(b)にX線エネルギー11.56 keVにおける垂直方向の集光ビーム形状を示す。このスポット中に  $6 \times 10^9$  photons/s のX線光子数が得られた。仮想光源スリットの条件を変えることで、 $300 \times 250$  nm の集光スポット中に  $1.7 \times 10^{12}$  photons/s という大強度の集光X線ビームが得られた。この明るい集光ビームでは最小の集光条件よりも集光サイズが3倍ほど広がるものの、強度が2桁以上増加する。そのため、高い統計精度が要求される XMCD によるナノ磁気解析に効果的に利用することができた。さらに、X線ナノ集光ミラーとともに用いる専用の電磁石を開発・導入した。電磁石磁気回路の設計を工夫することで、集光ミラーの作動距離である10 cm以内に電磁石磁極を設置するという条件を満たしながら、最大22 kOeという強磁場を得ることができた。本研究で開発したナノXMCD装置により、ビットパターン媒体の解析を行った。また、本装置は焼結磁石等の他の磁性体試料の顕微磁気観察にも広く応用が可能となっている。

## (2) CoPt ビットパターン媒体の磁気解析

200 nm 径単一磁気ドットにおけるX線分光および磁気解析

装置開発の後、直径200 nmのビットパターン媒体のX線分光および磁気解析を行った。シリコン基板上に蒸着した厚さ15 nmの  $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$  合金膜を電子ビームリソグラフィおよびArビームミリングにより円盤状に加工し、間隔1ミクロンで格子状に配置した試料を用いた。本試料は秋田県産業技術センターから提供いただいた。200 nmというドットサイズは、開発の最先端であるテラビット媒体よりも10倍ほど大きい。装置の性能評価の意味を含めて試行した。試料位置に垂直  $320 \text{ nm} \times$  水平  $290 \text{ nm}$  の集光X線ビームを形成し、目的の磁気ドット1個にX線ビームを照射して測定を行った。

得られたX線吸収スペクトル(XAS)とXMCDスペクトルを図3に示す。測定に用いたX線エネルギー範囲において、磁気ドットに含まれるPtの  $L_3$  吸収端(11.566 keV)によるXASおよびXMCDスペクトルが明瞭に観測された。試料のCoPt合金に含まれるPtが持つ磁気モーメントを元素選択的に測定可能であることを実証した。

図4に示すのは、Ptの元素選択的磁化曲線である。X線エネルギーをPtのXMCD信号が最大となるエネルギー(11.565 keV)において、XMCD信号の磁場依存性を測定することで得られた。青線が、ナノ集光ビームを用いて測定した磁化曲線であり、単一磁気ドットの特性を表している。この結果から、一斉磁化回転型の急峻な磁化反転が起きていることを直接に明らかにした。一方、図4の赤線は、同様にドット格子試料を、従来のマイクロビーム(集光ビームサイズ  $2 \mu\text{m}$ )で観察し

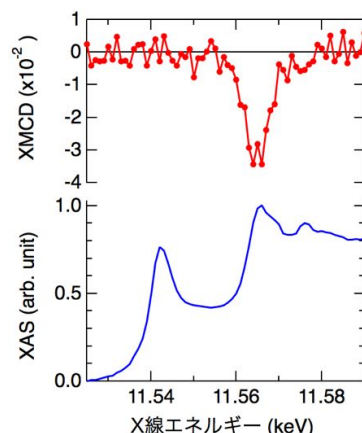


図3. 直径200 nmのCo80Pt20単一磁気ドットのXMCD(上)およびXAS(下)スペクトル。

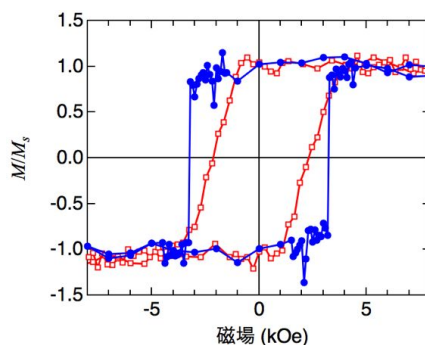


図4. 直径200 nmのCo80Pt20単一磁気ドットの元素選択的磁化曲線(青)。従来のマイクロビームを用いて得られた同試料の元素選択的磁化曲線(赤)。

た結果である。マイクロビーム観察では集光サイズが大きいため、集光スポット中に複数の磁気ドットが含まれ、得られる磁化曲線は複数の磁気ドットの特性の平均となる。個々の磁気ドットの反転磁界には最大で数kOeのばらつきがあるため、マイクロビームでの磁化曲線は磁化反転が緩やかな変化として観測される。一方で、ナノビームでは単一のドットを測定しているため、個々のドットの磁気特性を直接評価することが可能となった。

## スイッチング磁場分散の起源解明：ドット毎の反転磁界の統計解析

ビットパターン媒体において、スイッチング磁場分散(Switching field distribution: SFD)という値が磁気記録媒体としての実用的な性能を左右する。SFDはドット毎での反転磁界のばらつきを表す指標であり、この値をいかに小さくするかが現在の媒体開発の大きな目標である。ドット毎に反転磁界を測定することで、ドットサイズや形状等との相関を明らかにできれば、SFDの値を決める主要な原因を特定できる。そこで、同一基板上に作製した多数のドットに対して統計的な測定を行った。

図5(a)に示すのは、102個の直径200 nmのドットに対するドット位置と反転磁界との関係である。反転磁界は0.65 kOeから3.8 kOe



の範囲で分布しており、ドット位置との相関は見られない。図 5(b)の度数分布によれば、反転磁界の平均値は 1.86 kOe, 分布の標準偏差は 0.67 kOe であった。これらの値は、多数のドットの平均の磁化曲線を一度に測定したマイクロビームでの結果(図 4)と一致している。すなわち X 線顕微磁気測定によって、SFD の起源となるドット毎の反転磁界のばらつきを直接評価することができた。

ばらつきの原因となる要素を特定するため、走査型電子顕微鏡 (SEM) で測定したドット直径と反転磁界の関係を調べた。図 5(c)の結果では、磁気ドットの直径と反転磁界の間には明確な相関は見られなかった。この試料においてはドットの直径のばらつきは  $\pm 5\%$ 程度であり、反転磁界に大きな影響を与えていないといえる。ドット直径の分布が SFD の要因のひとつとして考えられるが、その可能性を排除することができた。それ以外に考えられる要因としては、磁性膜自体の c 軸配向性の膜面内方向のばらつき、およびそれに関連する結晶磁気異方性の分布が挙げられる。これらは、ナノビームを用いた X 線回折測定によって単一ドットの構造や配向性を観察することで明らかになると考えられる。X 線回折の顕微測定への拡張はナノ X 線顕微装置の開発における今後の課題である。

テラビット媒体に向けた微小単一ドットの観察

さらに、より小さなドットサイズの媒体に対して X 線顕微磁気解析を行った。最終的な目標は  $1 \text{ Tbit/in}^2$  の記録密度に相当する 20 nm 径のドットである。研究期間内に直径 36 nm の  $\text{Co}_{30}\text{Pt}_{70}$  合金ドットに対して Pt 吸収端での XMCD 信号による磁化曲線が得られている。この結果は、われわれの知る限り硬 X 線測定において最も小さな磁気ドットに対するものである。同一組成、同一条件で加工した直径 200 nm ドットでは反転磁界が 2.5 kOe であるのに対して、36 nm のドットでは 6 kOe に向上した。磁化反転の様子は 200 nm、36 nm ドットともに一斉磁化回転型の急峻な磁化反転過程を示した。ただし、36 nm ドットでは反転磁界の直前で一度磁化が減少する、二段階の反転過程を示した。マイクロマグネティックシミュレーションとの比較により、このような二段階の磁化反転はドット周囲の加工ダメージに起因している可能性が示唆されている。現在、詳細を論文として準備している。

## 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)

S. Ishio, S. Takahashi, T. Hasegawa, A. Arakawa, H. Sasaki, Z. Yan, X. Liu, Y.

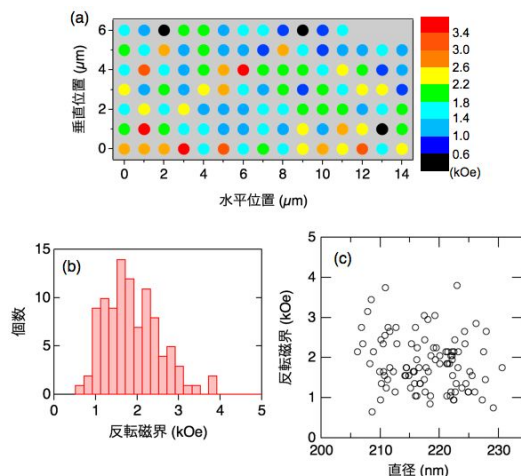


図 5. (a) ビットパターン媒体の格子上に並んだ個々のドットの反転磁界の分布。(b)反転磁界の度数分布。(c) ドット直径と反転磁界との相関。

Kondo, H. Yamane, J. Ariake, M. Suzuki, N. Kawamura, and M. Mizumaki, "Switching field distribution and magnetization reversal process of FePt dot patterns", *J. Magn. Magn. Mater.* 360, 205 (2014). 査読有. DOI: 10.1016/j.jmmm.2014.02.049  
 S. Hosaka, Z. Bin MOHAMAD, Y. Yin, H. Sakurai, Y. Kondo, J. Ariake, N. Honda, and M. Suzuki, "Measurement of Coercive Force Enhanced by Nanometer-Sizing of Magnetic Dot by X-Ray Magnetic Circular Dichroism (XMCD)", *Key Engineering Materials* 534, 122 (2013). 査読有. DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.534.122  
 T. Nakamura and M. Suzuki, "Recent Progress of the X-ray Magnetic Circular Dichroism Technique for Element-Specific Magnetic Analysis", *J. Phys. Soc. Jpn.* 82, 021006 (2013). 査読有. DOI: 10.1143/JPSJ.82.021006  
M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, Y. Terada, T. Uruga, A. Fujiwara, H. Yamazaki, H. Yumoto, T. Koyama, Y. Senba, T. Takeuchi, H. Ohashi, N. Nariyama, K. Takeshita, H. Kimura, T. Matsushita, Y. Furukawa, T. Ohata, Y. Kondo, J. Ariake, J. Richter, P. Fons, O. Sekizawa, N. Ishiguro, M. Tada, S. Goto, M. Yamamoto, M. Takata, and T. Ishikawa, "A hard X-ray nanospectroscopy station at SPring-8 BL39XU", *J. Phys.: Conf.* 430, 012017 (2013). 査読有. DOI:10.1088/1742-6596/430/1/012017  
 S. Hosaka, Z. Mohamad, T. Akahane, Y. Yin, H. Sakurai, Y. Kondo, J. Ariake, N. Honda, and M. Suzuki, "Coercive Force Enhanced by Nanometer-Sizing of Magnetic Column and Measured by X-Ray

Magnetic Circular Dichroism (XMCD)”, Advanced Materials Research 490-495, 292 (2012). 査読有.  
DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.490-495.292

M. Suzuki, Y. Terada, and H. Ohashi, “The SR nanobeam analysis center for green/nanotechnologies at BL37XU and BL39XU”, SPring-8 Research Frontiers 2011, 151 (2012). 査読無.  
[http://www.spring8.or.jp/pdf/en/res\\_fro/11/151-152.pdf](http://www.spring8.or.jp/pdf/en/res_fro/11/151-152.pdf)

M. Suzuki, N. Kawamura, H. Miyagawa, J. S. Garitaonandia, Y. Yamamoto, and H. Hori, “Measurement of a Pauli and Orbital Paramagnetic State in Bulk Gold Using X-Ray Magnetic Circular Dichroism Spectroscopy”, Phys. Rev. Lett. 108, 47201 (2012). 査読有. DOI:

10.1103/PhysRevLett.108.047201  
鈴木基寛, 寺田靖子, 大橋治彦, 他 25 名, “グリーン・ナノテク研究支援のための放射光分析基盤の整備 (BL37XU, BL39XU)”, SPring-8 利用者情報 16, 201 (2011). 査読無. URL:

<http://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=20925>

〔学会発表〕(計 8 件)

鈴木基寛, “硬 X 線 100nm ビームがリードする SPring-8 ナノビームアプリケーション”, 平成 24 年度 GIGNO 研究創生支援プロジェクト研究会, 2013 年 3 月 12 日, 連合会館.

鈴木基寛, “SPring-8 BL39XU におけるナノビーム X 線磁気解析”, SPring-8 利用推進協議会 先端磁性材料研究会, 2013 年 3 月 11 日, 連合会館.

鈴木基寛, “放射光ナノプローブ: 顕微・時分割 X 線分光による機能材料解析”, 日本学術振興会マイクロビームアナリシス第 141 委員会 第 151 回研究会, 2013 年 2 月 7 日, 京都大学東京オフィス.

鈴木基寛, “X 線ナノビームによる顕微磁気解析と磁気イメージング”, 第 45 回化合物新磁性材料研究会, 2012 年 12 月 27 日, 東京大学本郷キャンパス.

M. Suzuki, “Development of Hard X-ray Nanospectroscopy Experiments at SPring-8”, The 24th Synchrotron Radiation User's Workshop & KOUSA Meeting, 2012 年 11 月 22 日, POSTEC International Center, Korea.

鈴木基寛, “SPring-8 BL39XU 硬 X 線ナノ分光ステーション”, 第 15 回 XAFS 討論会, 2012 年 9 月 12 日, 鳥取市白兔会館.

M. Suzuki, “Hard X-ray nano-spectroscopy station at SPring-8 BL39XU”, XAFS-XV: 15th International Conference on X-ray Absorption Fine

Structure, 2012 年 7 月 23 日, Beijing, China.

鈴木基寛, “BL39XU ナノビーム X 線分光分析ステーション”, 第 25 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2012 年 1 月 9 日, 鳥栖市民文化会館・中央公民館.

〔その他〕

ホームページ等

「SPring-8 BL39XU におけるナノビーム磁気解析」

[http://www.spring8.or.jp/ext/ja/iuss/htm/text/12file/adv\\_mag\\_mat/6th/130311-6\\_suzuki.pdf](http://www.spring8.or.jp/ext/ja/iuss/htm/text/12file/adv_mag_mat/6th/130311-6_suzuki.pdf)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 基寛 (SUZUKI MOTOHIRO)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員  
研究者番号: 60443553

(2) 研究協力者

近藤 祐治 (KONDO YUJI)

秋田県産業技術センター・先端機能素子開発部・主任研究員  
研究者番号: 70390903