

## 自己集積化ナノシリカ粒子層上に形成した FePt 孤立微粒子の粒子数密度増大の検討 Examination about increase in areal density of particles for FePt grains on Self-Assembled nano Silica Particles

○片野貴文<sup>1</sup>, 塚本新<sup>2</sup>\*Takafumi Katano<sup>1</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

Abstract: We already reported that isolated FePt grains were fabricated by RTA and in the case of fabrication of isolated FePt grains on self-assembled silica particles having 18 nm diameter, the grains were increased  $N_p$ , decreased  $D_a$  and  $StD$ . Furthermore isolated FePt grains were fabricated on the middle of few silica particles. In this report, we fabricated Self-Assembled nano Silica particles of average diameter 10 nm on thermally oxidized Si substrate. And we fabricated isolated FePt grains on the substrate. As a result, it couldn't increase in  $N_p$  because nano silica particles structure couldn't maintain after RTA. Thus, we found condition that nano silica particles structure was maintained after RTA for increase in  $N_p$ .

### 1.はじめに

我々は超高密度磁気記録媒体の作製を目指し研究を行っている。FePt 多層膜に対して急速昇温熱処理 (Rapid Thermal Annealing: RTA)を行うことで FePt 孤立微粒子を形成すること<sup>[1]</sup>, および下地に平均粒径 18 nm のシリカ粒子の自己集積化現象を利用した周期的な凸部を有する自己集積化シリカ粒子層 ( Self-Assembled Silica Particles: SASP )を用いることによりシリカ粒子間の凹部に FePt 孤立微粒子が形成され, FePt 孤立微粒子の粒子数密度  $N_p$  の向上, 粒径の標準偏差  $StD$  の低下, 平均粒径  $D_a$  の減少<sup>[2]</sup>を報告している。本報告では平均粒径 10 nm のシリカ粒子を用いて単位面積当たりの凹部数を増やした SASP 基板を作製し, その基板上に FePt 孤立微粒子を形成することで  $N_p$  の増大を図る。

### 2.実験方法

#### 2.1 SASP 基板の作製方法

トルエン溶液中にシリカ粒子を分散させたシリカ溶液を作製し, ディップコート法により熱酸化 Si 基板上にシリカ粒子を塗布する。シリカ粒子の自己集積化現象を利用し粒径 10 nm のシリカ粒子を基板上に単層配列させるための条件として, シリカ粒子濃度を  $5.8 \times 10^{-3}$  wt.% とした<sup>[3]</sup>。ディップコート条件は環境温度 25 °C, 湿度 50 %, 基板引き上げ速度 10  $\mu\text{m}/\text{sec}$ , 熱酸化 Si 基板表面を液面に対し 80° 傾けた状態で引きあげた。

#### 2.2 FePt 孤立微粒子の作製方法

DC マグネトロンスパッタ法により組成比が Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> となるように, Pt (1.05 nm) / Fe (0.82 nm) 多層膜を熱酸化 Si 基板, SASP 基板に成膜した。成膜条件は到達真空度  $8.0 \times 10^{-5}$  Pa, ArH ガス(H<sub>2</sub>:3 vol%)圧  $1.8 \times 10^{-1}$  Pa, である。成膜後, 赤外線ランプ真空炉において FePt 膜に RTA を施し, 目標温度到達後に窒素を真空炉内へ投入して急速冷却を行った。RTA 条件は真空炉内の真空度  $6.3 \times 10^{-2}$  Pa, 昇温速度約 115 °C/ sec, 目標到達温度 600 °C, 初期降温速度約 -85 °C/ sec (300°Cあたり冷却速度)である。

### 3.SASP 基板上での FePt 孤立微粒子の形成

表面形状は走査型電子顕微鏡 ( Scanning Electron Microscope: SEM )を用いて評価した。Figure 1. に(a)SASP 基板, (b)SASP 基板上への FePt 成膜後, (c)RTA 処理後の膜表面の SEM 像を示す。Figure 1. (a)では熱酸化 Si 基板上に粒径 10 nm のシリカ粒子が配列しており, (b)では粒状のシリカ粒子の上に FePt 薄膜が成膜されていることが確認できる。しかし(c)においては(a), (b)で粒状だったシリカ粒子が結合し集合体を形成している。また, シリカ粒子の集合体の上に FePt 孤立微粒子が多く形成されているが, 集合体以外の部分においても FePt 孤立微粒子を形成している。この結果から, RTA の過程においてシリカ粒子による凹凸構造が崩れたと考えられ, シリカ粒子層を下地として用いることで期待される凹部に FePt 孤立微粒子が形成される効果は得られなかった。

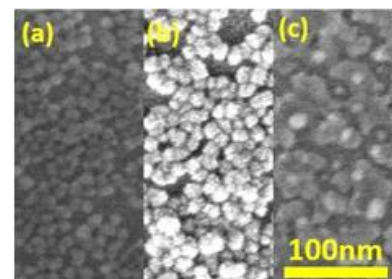


Figure 1. Comparison of the surface substructure, (a)SASP (b)as deposited (c)after RTA

FePt 孤立微粒子を形成する下地を(a) 熱酸化 Si 基板, (b) 粒径 18 nm シリカ粒子を用いた SASP 基板, (c) 粒径 10 nm シリカ粒子を用いた SASP 基板, とそれぞれ場合の SEM 像を Figure 2.に示す.

(a) 熱酸化 Si 上の FePt 孤立微粒子と, (b) 粒径 18 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子<sup>[2]</sup>を比較すると, (a)では FePt 孤立微粒子の粒径や形成位置が不揃いであるが, (b)では粒径が小さく粒子分散はより均一でありシリカ粒子の凹部に FePt 孤立微粒子を形成されている.

(b) 粒径 18 nm シリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子と, (c) 粒径 10 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子を比較すると, (b)ではシリカ粒子が粒状を維持し凹部に FePt 孤立微粒子を形成しているが, (c)ではシリカ粒子が 10 nm より大きい集合体を形成しその上に多くの FePt 孤立微粒子を形成している. よって十数 nm のシリカ粒子が粒形状を維持することで FePt 孤立微粒子が微細化し高密度化すると考えられる.

Fig.2(a), (b), (c) の FePt 孤立微粒子の平均粒径  $D_a$ , 標準偏差  $StD$ , 粒子数密度  $N_p$  を比較した結果を Figure 3. , Table.1 に示す. 粒径 18 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子は, 熱酸化 Si 基板上的 FePt 孤立微粒子と比較すると, シリカ粒子によるナノ凹凸構造の凹部に FePt 孤立微粒子が形成されており, それにより  $D_a$ ,  $StD$ ,  $N_p$  の値が向上している. 一方粒径 10 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子は, シリカ粒子が結合し 10 nm より大きい集合体となったことにより密度の高い凹部が形成できなかったため粒径 10nm のシリカ粒子を下地に用いることで期待される  $N_p$  の増大は得られなかった. 結果として 10nm のシリカ粒子を下地に用いる場合  $D_a$ ,  $StD$ ,  $N_p$  の値は熱酸化 Si 基板上的 FePt 孤立微粒子の場合と同等の値になった.

以上より, 粒子数密度増大のためには RTA 後まで十数 nm の凹凸構造を保持する必要があると考えられる.

#### 4.10 nm シリカ粒子の結合条件の検討

Figure 1.(c)において, 粒径 10 nm のシリカ粒子が RTA 後まで粒形状の維持ができなかった. 熱処理プロセスにおけるシリカ粒子結合の条件につき検討を進めるため, 2.2 と同等の条件で RTA を SASP 基板に行った. SEM 像を Figure 4. に示す. シリカ粒子が粒状を維持しているため, 光吸収率の高い FePt 金属薄膜がシリカ粒子上を被覆した状態で RTA を行うことでより高温に加熱されシリカ粒子が集合体を形成したものと考えられる.

#### 5.まとめ

粒子数密度の増大のために粒径 10 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板の上に FePt 孤立微粒子を形成した. その場合熱処理を行うことでシリカ粒子が集合体を形成し, 熱酸化 Si 基板の上に形成した場合と比べ期待する粒子数密度の増大は得られなかった. また粒径 18 nm のシリカ粒子を用いた SASP 基板上的 FePt 孤立微粒子は熱処理後までシリカ粒子は粒形状を維持していたため期待する効果が得られ粒子数密度が熱酸化 Si 基板の上に形成した場合と比べ明らかに増大した. つまり FePt 孤立微粒子の  $N_p$  を増大させる条件として, 熱処理後まで数十 nm の凹凸構造を保持することが必要であると考えられる.

#### 6.謝辞

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構, 文部科学省私立大学戦略的研究基盤支援事業(S1311020)の助成により行ったものである.

#### 7. 参考文献

- [1] A. Itoh, A. Tsukamoto, J. Magn. Soc. Jpn., 33, 507 (2009).
- [2] Kenta Mizuhara, Arata Tsukamoto, Journal Materials Research, Vol. 26, No. 2, 2011 (2010)
- [3] 藤井翔太, 超高密度磁気記録媒体のための自己集積ナノシリカを利用した金属・誘電体ナノ構造基板, 修士論文(2012)

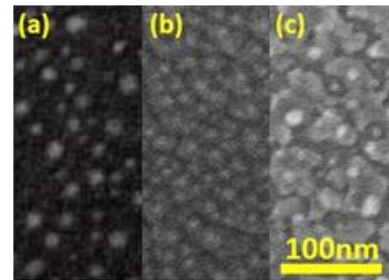


Figure 2. Comparison of base structure (a) thermally oxidized Si (b)FePt on silica particles of 18 nm diameter(c)FePt on silica particles of 10 nm diameter

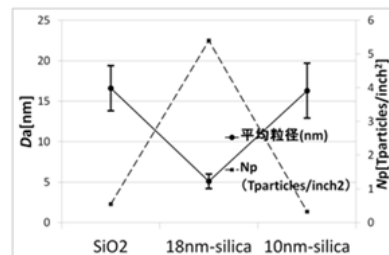


Figure 3. Result of variation in  $D_a$ ,  $StD$ ,  $N_p$

Table.1 Result of variation in  $D_a$ ,  $StD$ ,  $N_p$

substrate	$D_a$ (nm)	$StD$ (nm)	$N_p$ (Tparticles/inch <sup>2</sup> )
SiO <sub>2</sub> /Si	16.6	2.8	0.55
SASP(18)/SiO <sub>2</sub>	5.1	0.9	5.4
SASP(10)/SiO <sub>2</sub>	16.3	3.4	0.32

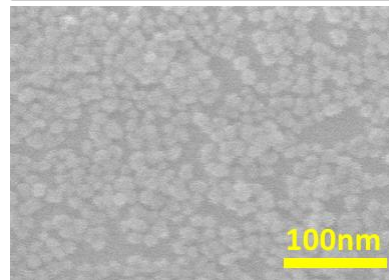


Figure 4. SEM Images of silica particles having the average 10nm diameter after RTA