

ナノタイル状 Pt/Fe における急速昇降温熱処理による
形態変化および磁化状態の初期形状依存性
Morphological Change and Initial Shape Dependence of Magnetic States
in Nanotile Pt/Fe by Rapid Thermal Annealing

○清水雄太¹, 村田朋洋², 吉川大貴³, 塚本新³

*Yuta Shimizu¹, Tomohiro Murata², Hiroki Yoshikawa³, Arata Tsukamoto³

Abstract : In this study, we investigate the morphological change and magnetization state of particles formed after RTA by changing the initial shape of nanotile-shaped Pt/Fe thin films. Two types of initial morphologies are intended, which differ greatly in the tendency of the separation and agglomeration mechanism to appear when particle formation occurs in RTA. In particular, particles formed from a single nanotile are considered to be capable of forming particles in accordance with the stacking atomic weight ratio (film thickness ratio). These samples will be evaluated and discussed using scanning electron microscopy and magnetic force microscopy.

1.はじめに

次世代の高密度磁気記録媒体として $L1_0$ -FePt ナノ磁性微粒子群が注目されている^[1]. 我々は熱酸化 Si 基板上に積層した Pt/Fe 連続二層膜への短時間の急速昇降温熱処理 (RTA : Rapid Thermal Annealing) による短時間での粒子群への形態変化と $L1_0$ 規則合金化を同時に行う手法を提案し長く検討してきた^{[2],[3]}. 更にナノタイル状 Pt/Fe 薄膜の形成後に RTA を行うことで同等の粒径を持つ微粒子群作製手法を新たに提案・報告 (Fig.1) してきた^{[4],[5]}. 本検討ではナノタイル状に加工した Pt/Fe 薄膜の初期加工形状と, RTA 後に形成される粒子形態, 磁化状態との相関関係につき検討を行う. Pt/Fe の加工形状は RTA により①正形状で凝集し, 単一粒子のみが形成される条件, ②長形状で1次元的に分離・凝集形成を生じる条件, の2種類を作製する. 特に①は加工パターン毎に構成する素材から単一ナノ粒子が形成されるため, 粒子毎の体積, 形状, 組成の変動抑制に有利であるものと考え, 2種の試料を走査型電子顕微鏡 (SEM), 磁気力顕微鏡 (MFM) を用いた形状・磁気像観察によって評価・議論する.

2.実験方法

微細加工にて熱酸化 Si 基板上に2種の形状からなるタイル状の Pt/Fe 薄膜を作製し RTA を施し観察した. タイル形状は Fig.1 に示す一辺 (Tile Length : L) 50 nm の正方形, 短辺 (Short Length : L_{sh}) 50 nm, 長辺 (Long Length : L_{lo}) 1250 nm の長方形の2種類を設計し, 電子線描画装置にてパターン形状をレジスト膜に描画し, 現像した. 現像後のレジスト膜上に総積層膜厚 3.75 nm (Pt : 2.11 nm, Fe : 1.64 nm) の Pt/Fe 連続膜を DC マグネトロンスパッタリングにて成膜した後, リフトオフによりパターン形状のナノタイル化 (孤立微小化) を施した. その後, 到達真空度 $<1.0 \times 10^{-3}$ Pa の雰囲気下で, 最高到達温度 >590 °C の RTA を施した. この試料を走査型電子顕微鏡 (SEM) での粒子形状観察, 磁気力顕微鏡 (Magnetic Force Microscope : MFM) での形状・磁気像観察により検討・評価した.

3.1 結果 : SEM による形態変化観察

リフトオフしたナノタイル状 Pt/Fe 薄膜に RTA を施し SEM による微粒子観察した際の像を Fig.3 に示す. 正方形タイルでは平均粒径約 34 nm, 設計パターン周期 (150 nm) を保ち, 1つのタイルから単一・低分散な粒子が形成されていることを確認した. 長方形タイルでは平均粒径約 59 nm の粒子が形成され, タイルの長辺方向に離散化した平均 7.7 個の粒子が配列し形成 (平均粒子間隔 162 nm) されていることを確認した.

3.2 結果 : MFM による形成微粒子の磁化状態観察

試料に対して磁場印可を施すことなく MFM での形状像, 磁気像を観

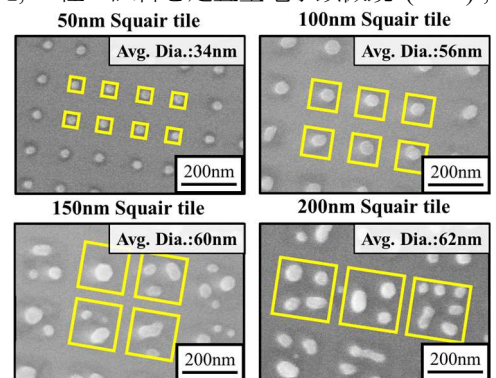


Figure 1 Particle image formed by the combined method^[5].

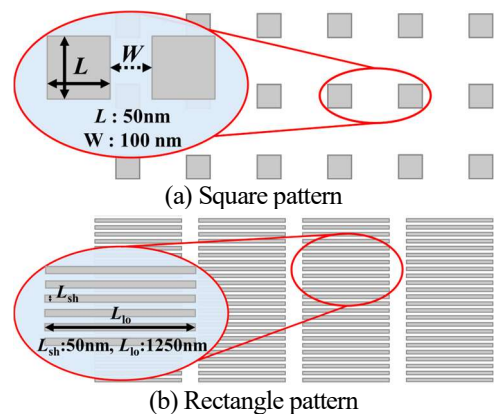


Figure 2 Various microfabrication geometry patterns

1 : 日大理工・院 (前)・電子 2 : 日大理工・研究生・電子 3 : 日大理工・教員・電子

察した。結果を Fig.3 に示す。双方のタイル形状にて SEM と MFM を同位置で観察し、SEM、形状、磁気像を比較した。正方形タイルでは SEM 像と同様な周期の粒子形状像を確認し、多くの粒子位置にて濃淡部が二値化し、粒子位置毎の濃淡部の濃淡部の明瞭度が低分散な磁気像を確認した。長方形タイルでも SEM 像と同様な位置に粒子形成がされている形状像を確認し、濃淡部の形成から磁気力を持つ粒子の形成を確認した。しかし、長方形タイルでは濃淡の濃さ、明瞭度、サイズに分散があること。また 1 つの粒子中に濃部と淡部の領域が並び、この濃淡が概ね長方形タイルの長辺方向に配列していることを確認した。

4.1 考察：タイル形状の変化による粒子形成

正方形パターンではタイルが分離せずに粒子化し形状・粒径が低分散な粒子形成が行われたと考える。このことから成膜時の積層原子量比に対応した組成を有する粒子を形成したと考えられる。長方形パターンではタイルの長辺方向に粒子が配列し、その粒子の間隔、形状、数、粒径が異なる事を確認した。また形成された粒子の平均粒径は 59 nm である。これは通常の総積層膜厚 3.75 nm の Pt / Fe 連続膜での RTA のみで形成した粒子と同程度の平均粒径である。従って正方形タイルとは明らかに異なり、長方形タイルでは mm オーダー Pt/Fe 薄膜の RTA による形態変化に近い粒子形成が行われたと考える。

4.2 考察：粒子形成の違いによる形状・磁気像観察

正方形パターンでは多くの粒子位置で二値化した濃淡部が磁気像から観察されたことから単磁区化及び膜面垂直方向に磁化し形成した粒子は 1 つずつが磁性体であることが示された。長方形パターンでも概ねの粒子位置にて磁気像に濃淡部が確認され粒子が強磁性を有することを確認した。しかし、粒子の位置毎に MFM 像を確認すると 1 つの粒子中に濃淡部が並ぶもの、粒子位置で磁気像が曖昧になり濃淡が確認されないものが確認された。このことから膜面内方向に磁化した粒子の存在や、他の粒子と比較して弱い磁気力を持つ粒子の存在が示唆された。

5.まとめ

本検討では、2 種のタイル状加工を施した Fe / Pt 薄膜を作成、RTA 処理により、概ね同等の粒子数密度にて、粒子直径および粒子間隔の分散が異なる 2 パターンの粒子群を作成し、SEM、MFM を用いて粒子形態変化・磁化状態の評価を行った。その結果、加工パターン毎に構成する素材から単一ナノ粒子が形成されるため、粒子毎の体積、形状、組成の変動抑制に有利な、正方形形状で作成した粒子群では、磁気特性も均一性が高く、これらの分散がナノ磁性微粒子の磁気特性へ大きく影響する指標である事が確認された。

謝辞

本研究は情報ストレージ研究推進機構の助成により行った。また本学研究員の笠谷雄一氏にご協力頂いた。

6.参考文献

[1] 高橋有紀子：「磁気記録の材料と物理—現状と展望」, 日本物理学会誌, Vol.75, No.12 pp.736-745, 2020
 [2] 三吉啓介, 田中万裕, 今里真之, 小笠原亜紀, 小林廉, 苗木俊樹, 二川康宏, 塚本新：「ランプ光急速熱処理による FePt 系合金の形成および熱処理・微粒子化過程の検討」, 電気学会研究会資料. MAG., Vol.18, No.6 pp.27-32, 2017
 [3] 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., Vol.36, No.1-2, pp.62-65, 2012
 [4] T. Naeki, K. Miyoshi, H. Yoshikawa, and A. Tsukamoto : “L10 ordering of microfabricated Pt/Fe stacked dots by rapid thermal annealing” , T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues), Vol.3, No.1, pp.1-6, 2019
 [5] 清水雄太, 吉川大貴, 塚本新：「L10 - FePt ナノ微粒子化における形態変化の急速熱処理前 Fe / Pt 薄膜微細加工面積依存性」, 電気学会研究会資料. MAG., pp9-14, 2022

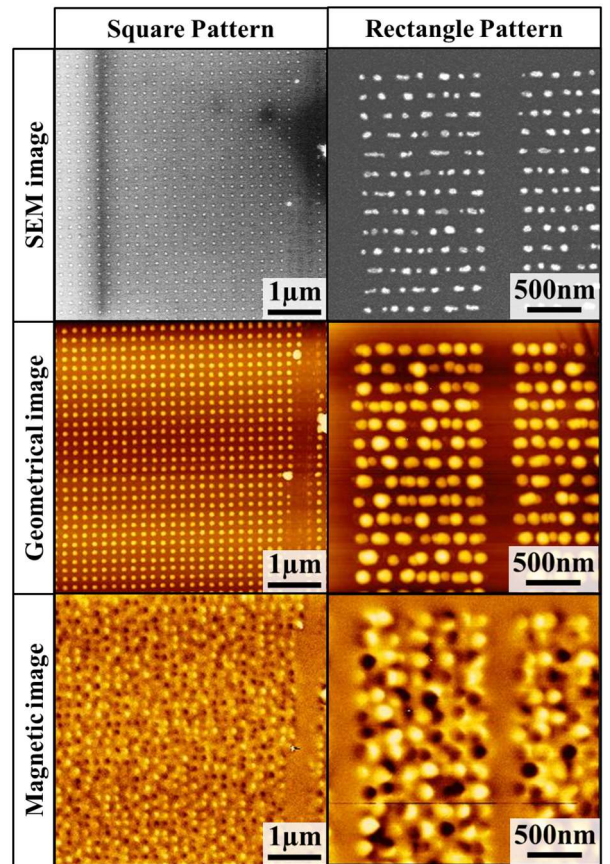


Figure 3 Particle image observed by SEM and MFM