

目次

第1章 序論	4
1.1 はじめに	4
1.2 磁気記録媒体の種類	7
1.3 次世代記録方式	12
1.4 高磁気異方性材料	14
1.4.1 L ₁ 型 FePt 規則合金	14
1.4.2 Mn-Ga 系合金	14
1.5 微細加工技術	19
1.5.1 微細加工技術の現状と展望	19
1.5.2 リソグラフィ技術	19
1.5.3 レジスト	26
1.5.4 エッチング技術	27
1.6 本研究の目的	29
参考文献	30
第2章 FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層薄膜の作製と磁気特性	33
2.1 実験方法	33
2.1.1 成膜方法	33
2.1.2 結晶構造評価	38
2.1.3 磁気特性評価	41
2.2 結果と考察	44
2.2.1 FePt 単層薄膜の結晶構造と磁気特性	44
2.2.2 FePt/MgO/FePt 薄膜の結晶構造と磁気特性	46
2.3 小括	51
参考文献	52
第3章 FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層円形ドットの作製と磁気特性	53
3.1 実験方法	53
3.1.1 電子線リソグラフィ	53
3.1.2 Ar イオンエッチング	54
3.1.3 微細加工手順	54

3.1.4	ドット試料形状観察	55
3.1.5	磁気特性評価	56
3.2	結果と考察	63
3.2.1	FePt 単層ドットの磁気特性	63
3.2.2	FePt/MgO/FePt 多層ドットの磁気特性	70
3.3	小括	79
第 4 章 L1₀-Mn_xGa_(100-x)単層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性		80
4.1	実験方法	80
4.1.1	成膜方法	80
4.1.2	微細加工手順	81
4.2.3	磁区構造観察	81
4.2	結果と考察	83
4.2.1	T_s の変化に対する Mn _x Ga _(100-x) の磁気特性	83
4.2.2	T_a の変化に対する Mn _x Ga _(100-x) の磁気特性	88
4.2.3	t_{buffer} の変化に対する Mn _x Ga _(100-x) の磁気特性	93
4.2.4	x の変化に対する Mn _x Ga _(100-x) の結晶構造と磁気特性 ($x = 48-60$)	98
4.2.5	n の変化に対する Mn ₅₈ Ga ₄₂ 薄膜の結晶構造と磁気特性	103
4.2.6	Mn ₅₈ Ga ₄₂ 円形ドットパターンにおける磁気特性	109
4.3	小括	117
第 5 章 L1₀-Mn_xGa_(100-x)/Cr/D0₂₂-Mn_xGa_(100-x)多層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性		118
5.1	実験方法	118
5.1.1	成膜方法	118
5.2	結果と考察	119
5.2.1	x の変化に対する Mn _x Ga _(100-x) の結晶構造と磁気特性 ($x = 70-74$)	119
5.2.2	t_{spacer} の変化に対する L1 ₀ -Mn ₅₈ Ga ₄₂ /Cr/D0 ₂₂ -Mn ₇₃ Ga ₂₇ 多層薄膜の結晶構造と磁気特性	126
5.2.3	D の変化に対する L1 ₀ -Mn ₅₈ Ga ₄₂ /Cr/D0 ₂₂ -Mn ₇₃ Ga ₂₇ 多層ドットの磁気特性	129
5.3	小括	132
第 6 章 結論		133
謝辞		135

業績一覽 136

第 1 章 序論

1.1 はじめに

情報処理、情報通信技術が急速に進歩するとともに、記録容量と価格に優位性があるハードディスクドライブ(HDD)はますます重要な役割を担うようになった。International data corporation (IDC)によれば、2016年に全世界で生成された情報量は 16.1 Zbytes であり、2025年には 163 Zbytes にまで急激に増加すると予測されている¹⁾。しかしながら、このような膨大な情報量を記録できるほどのストレージメディアの開発が追いついておらず、HDDの記録密度の増加が強く求められている。図 1.1 に近年の HDD の面記録密度の推移を示す²⁾。1990年代以降は記録媒体と記録、再生ヘッドの高性能化により急速な高密度化を続けている。現在の記録密度は 1 Tbit/inch²に達しており、近い将来 2 Tbit/inch²に到達するものと考えられる。

磁気記録には面内記録方式が採用されてきたが、この方式の場合、隣接した磁区同士の反発により減磁界が作用し、記録分解能が劣化するという問題があった。この減磁界の制約を逃れるため、記録層を薄くして減磁界強度を低減させ、保磁力を高めて減磁界による磁化減衰を防ぐ必要があったことから、記録媒体の薄膜化、高保磁力化が進んだ。しかし、それだけでは磁化転移する際にジグザグ状の磁壁が現れてしまい、これがノイズの原因となったため、磁壁の生じない微粒子型の薄膜構造を持つ記録媒体が導入された。一方、記録媒体の薄膜化が進んだ結果、著しい再生磁束の減少を引き起こした。これを補うために Giant magneto resistive (GMR)ヘッドや Tunneling magneto resistive (TMR)ヘッドといった磁気抵抗効果を利用した高感度のヘッドが搭載されるようになり、記録媒体の高密度化に大きく寄与してきた。これらの磁気抵抗効果型ヘッドは再生専用であるために記録ヘッドを別途装備する必要があったが、これもまた、磁極材料の選択や構造の最適化など、2つのヘッドをそれぞれに最適化できる利点を生み出している。書き込みヘッドについては、高保磁力化された記録媒体を飽和記録できる強い磁界強度を持つ磁気ヘッドの開発が続いている。

磁気記録媒体において安定的に磁気記録を行うための条件は、

$$K_u V / k_B T > 60 \quad (1)$$

で与えられている³⁾。ここで K_u は一軸結晶磁気異方性定数、 V は磁性粒子の体積、 k_B は Boltzmann 定数、 T は温度である。

記録媒体を高密度化するために、記録ビットを構成する磁性粒子の V を縮小する必要があるが、ここで磁化の熱揺らぎという問題が出てくる。これは V が小さくなるに従い外部からの熱エネルギーの影響を受けやすくなり、磁性軸を一方向に保つことがで

きなくなる現象である。これにより磁性粒子の磁化が不安定になるとノイズが増加し、記録の消滅につながる。これは超常磁性限界と呼ばれている³⁾。磁化の熱安定性を確保するためには V を大きくする必要があるが、面記録密度を維持するには小さい磁性粒子が望まれるので、高磁気異方性化が必須となる。しかし、磁気異方性エネルギーの大きい微粒子の場合、異方性磁界が増加し、飽和記録するためのヘッド記録磁界が大きくなってしまふ。従って、粒子サイズ、磁気異方性エネルギー、ヘッド磁界強度の3つのトレードオフの制限を受け、記録密度がある程度以上高められなくなってしまう。

これを克服するための方法として、FePt 系合金など高磁気異方性材料を用い、熱やマイクロ波でエネルギーを与えることで一時的に磁気異方性を低下させ、記録を行う方式、他には、磁気記録層をビットパターン化し、これに記録、再生を行う方式が考案、開発されている。

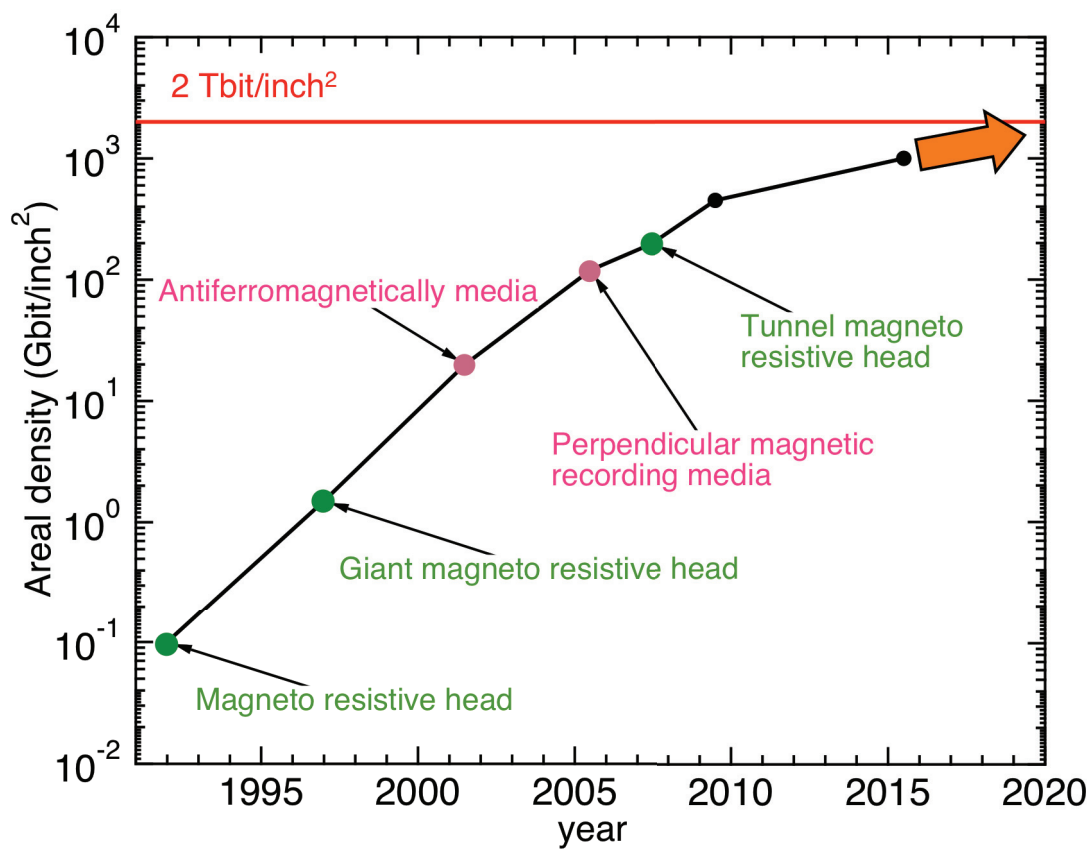


図 1.1 HDD の面記録密度の推移 2)

1.2 磁気記録媒体の種類

磁気記録媒体には面内磁気記録媒体 (図 1.2)、垂直磁気記録媒体 (図. 1.3)、グラニューラー構造媒体(図. 1.4)、ビットパターンドメディア (図. 1.5)、磁気多値記録媒体 (図. 1.6, 1.7) 等の種類がある。

(1) 面内磁気記録媒体

磁化が磁気記録面に沿って水平 (長手) 方向に向くように磁性粒子を配列させる方式。磁気ディスクの実用化以来、長年使われてきた記録方式である。この磁気記録媒体は記録層の種類によって塗布媒体と薄膜媒体に大別される。塗布媒体では、酸化鉄などの磁性粉と有機樹脂等を混ぜ合わせた磁性塗料を基板に塗布し、硬化した層が記録層として用いられる。薄膜媒体では、スパッタリング法やめっき法によって形成した磁性薄膜を用いる。記録層には、一般に Co 合金が用いられる。当初、塗布媒体がハードディスクや磁気テープの媒体として用いられたが、高記録密度化の要請から薄膜媒体への移行が進んだ。前説で説明したように、記録ビットである磁性粒子間の減磁界の影響による記録分解能劣化という欠点があり、磁性粒子縮小による磁化の熱揺らぎの問題に対して弱く、記録密度の向上には限界あり、後述の垂直磁気記録媒体に取って代わられた。

(2) 垂直磁気記録媒体

面内磁気記録媒体の弱点を克服したのが垂直磁気記録媒体である。この記録方式は磁化が磁気記録面に対して垂直に向くように磁性粒子を配列させる方式であり、1970 年代後半に東北大学の岩崎俊一教授により原理が提唱され⁴⁾、2005 年に HDD として製品化された。磁化が垂直になっているので磁性粒子同士の磁化が反発せず、磁化転移部で磁力を高め合うように働き、記録密度が高くなるほど熱安定性が増すのが特長である。記録層には、硬質磁性材料が用いられる。現在は、CoPtCrO や CoPtCr-SiO₂ など酸化物を含む Co-Pt-Cr 系材料が主流である。

(3) グラニューラー構造媒体

記録層の磁性結晶粒間に 1 nm 程度の非磁性結晶粒界を均一に偏析させ、磁性結晶粒間の交換相互作用を断ち切ることにより高い S/N 比を実現できる媒体である。磁性結晶の結晶性、配向性が高く、粒径およびその分布を小さくすることが重要である。高い S/N 比を得るためには記録ビットの境界の凹凸を減らす必要があり、ビット内に存在する磁性結晶粒を増やすことが望ましい。このため、結晶粒の体積を小さくすることが求められるが、先述の超常磁性化の問題があるため、磁気異方性の大きな材料を用いるこ

とが必要である。例えば、FePt 系合金でのグラニューラ構造媒体の研究が盛んに行われている⁵⁾⁻¹¹⁾。

(4) ビットパターンメディア

ビットパターンメディアは、規則的に配列した微小な磁性ドットを基板上に作製し、それらを記録ビットに対応させた記録媒体である¹²⁾⁻¹⁴⁾。グラニューラ構造媒体では、高い S/N 比を得るためにビットを構成する磁性粒子のサイズを小さくすることが求められるが、ビットパターン化されたドットの場合、ビットの境界が明瞭であるため高 S/N 比を確保しやすい。そのため、磁性粒子の体積を大きくできる。

ビットパターンの作製には円柱状に自己組織化するブロックコポリマーなどの材料とリソグラフィ技術を用いる。

(5) 磁気多値記録媒体

磁気多値記録媒体は、中間層を挿入することによって磁氣的に分断された複数の記録層を有する。これらは異なる外部磁場でそれぞれ独立して磁化反転を起こすように設計されており、書き込み印加磁場を変化させることで磁性層の磁化配列を変化させ、複数の磁化状態を作り出すことができる。このため、1 ビットに 3 値以上の記録を書き込むことができ、記録媒体高密度化が期待できる。本方式においては、2 層の垂直磁化膜を積層した磁性ドットに対して、マイクロ波アシスト磁化反転（図 1.7）により選択的に磁性層を反転できることが確認されている¹⁵⁾。

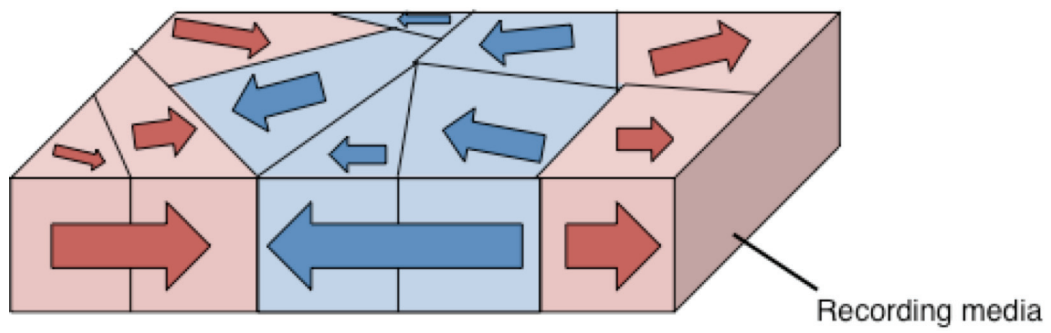


図 1.2 面内磁気記録方式の模式図

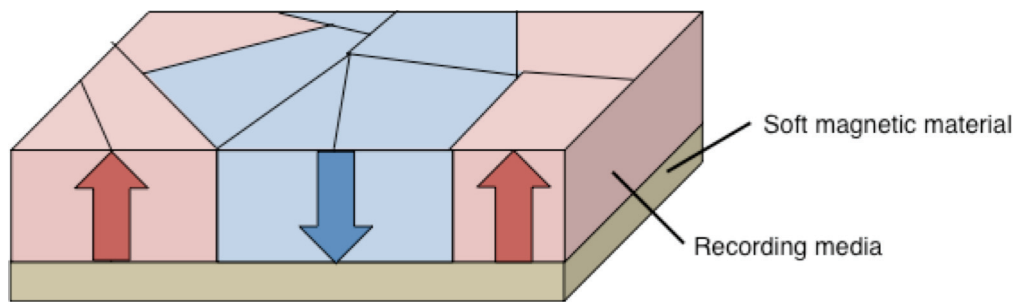


図 1.3 垂直磁気記録方式の模式図

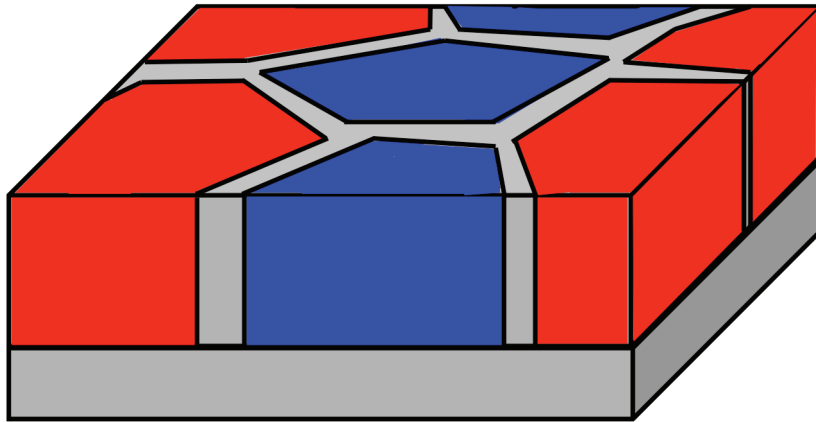


図 1.4 グラニューラー媒体の模式図

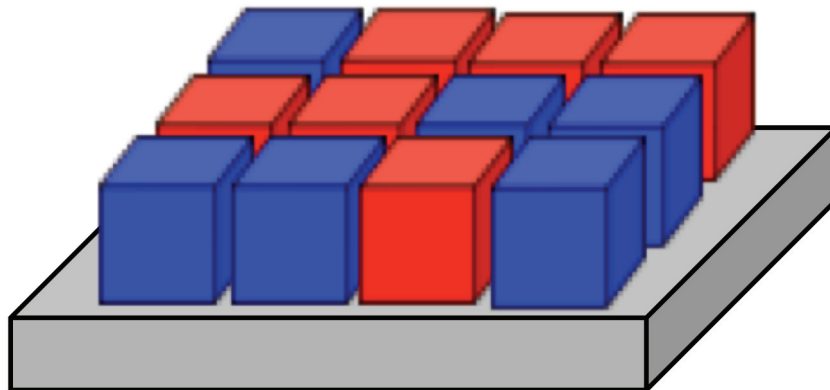


図 1.5 ビットパターンドメディアの模式図

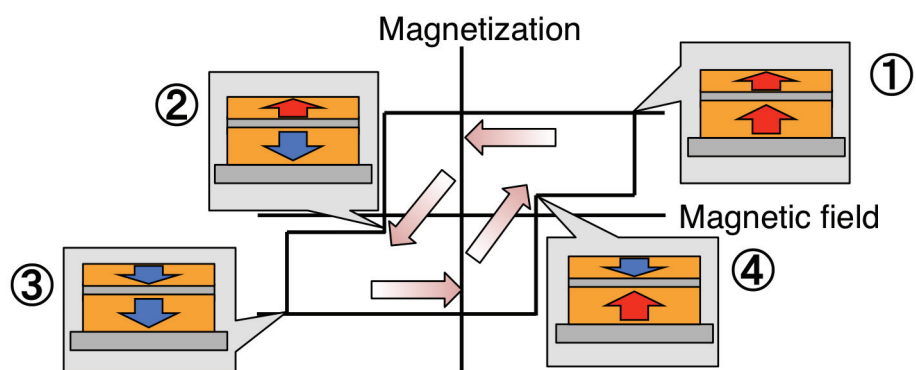


図 1.6 磁気多値記録の模式図

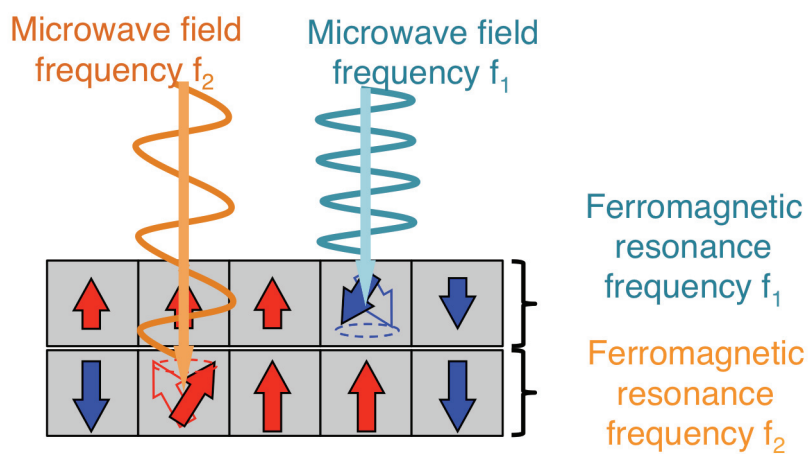


図 1.7 マイクロ波アシストによる多値記録

1.3 次世代記録方式

高密度磁気記録の実現のために、高い磁気異方性を有する材料を用いることが強いられるが、これに書き込みを行う技術が開発されてきた。一つは熱アシスト磁気記録方式（図 1.8）である^{16), 17)}。磁気記録媒体にレーザーを照射し、局所的に加熱し、記録したい領域の温度を瞬間的にキュリー温度程度に高めて保磁力を一時的に低下させ、磁気ヘッドで書き込みを行う方式である。これまでに、FePt 系グラニューラー媒体において 1.4 Tb/in²での記録、再生が確認されている¹⁸⁾。しかしながら、レーザーダイオードを磁気ヘッドに組み込む量産設備、プロセスの開発、コストの増加などが課題となっている。

このほかには、マイクロ波アシスト磁気記録方式（図 1.9）が挙げられる¹⁹⁾。磁気記録媒体が直反転するときの歳差運動の周波数と同程度のマイクロ波を記録時に与え、磁気記録をアシストする方式である。マイクロ波の生成にはスピントルクオシレータが用いられる^{20), 21)}。これは磁気ヘッドの記録ギャップ内に設置され、直流電源で駆動される。この方式は熱アシストに比べ、キュリー温度など媒体の特性に関わる制限が少なく、製造に関しても特別な投資がほぼ必要ないことが利点とされている。

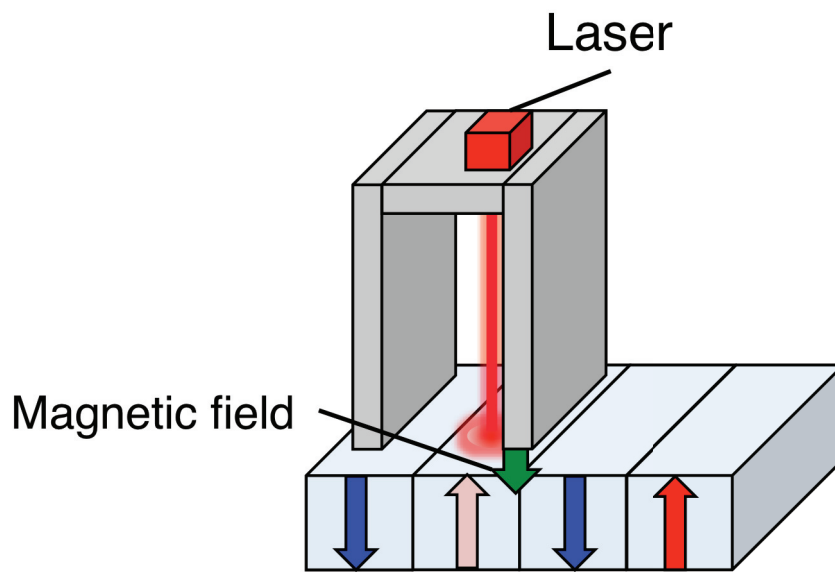


図 1.8 熱アシスト磁気記録方式

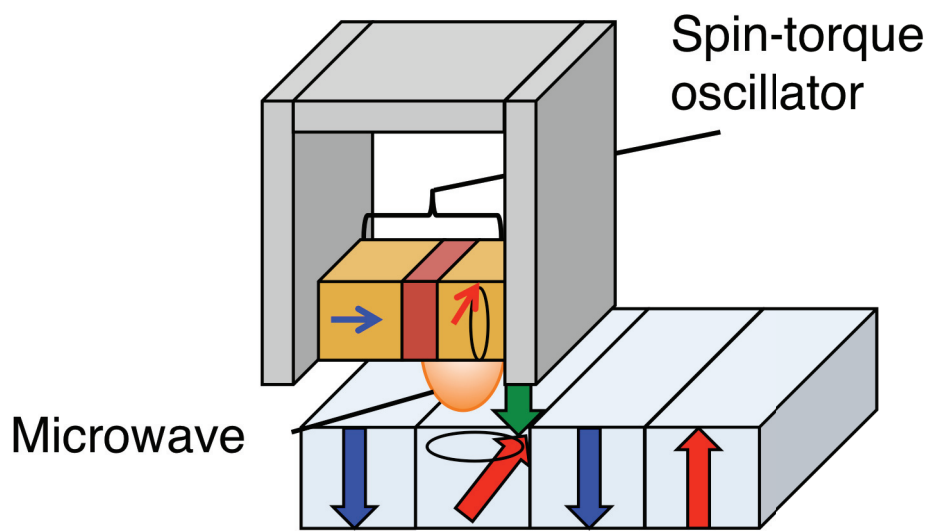


図 1.9 マイクロ波アシスト磁気記録方式

1.4 高磁気異方性材料

1.4.1 L1₀型 FePt 規則合金

L1₀型 FePt 規則合金は Fe 層と Pt 層が交互に積層した結晶構造 (図 1.10) を持ち、表 1.3 に示すように *c* 軸方向に約 7.0×10^{-7} erg/cm³ もの大きな K_u を有する²²⁾。さらに、熱的に安定したおよそ 1140 emu/cm³ の適度な飽和磁化 M_s や、優れた耐食性、耐酸化性といった特徴から、次世代の高密度磁気記録材料として注目されており、盛んに研究が行われてきた。FePt 垂直磁気記録媒体を汎用のハードディスク用ガラス基板上に作製するためには、FePt 薄膜の磁化容易軸 (*c* 軸) を膜面に対して垂直方向に配向させることが求められる。その際、FePt の規則相や膜微細構造の形成も行わなければならない。ガラス基板を用いた FePt 規則合金薄膜の *c* 軸結晶配向は、いくつかの組み合わせの下地層/シード層上へのヘテロエピタキシャル成長で実現する²³⁾⁻²⁵⁾。大きな一軸磁気異方性を有する L1₀ 型規則構造の形成には一般的に 500°C を超える高温プロセスが必要とされているが、これは現行のガラス基板の耐熱温度である 400°C を超えるため、低温での規則化が必要である。これについては、高ガス圧スパッタ法²⁶⁾、下地膜²⁷⁾、第三元素添加²⁸⁾、²⁹⁾、Fe/Pt 多層膜の熱処理³⁰⁾、非化学量論組成³¹⁾、He 照射³²⁾などの方法が提案されている。これらは、歪み、組織勾配、濃度勾配、結晶欠陥を利用した原子の拡散促進が意図されている。膜微細構造の形成については、二段成膜法を用いた、FePt 垂直磁化膜への結晶欠陥導入による磁壁ピンニングが提案されている。二段成膜法は、室温で成膜した FePt 極薄膜を昇温し、さらに FePt 膜を成膜する方法であり、昇温過程で生じる双晶欠陥を二回目の成膜により成長する FePt に導入する。この面欠陥に起因する磁壁ピンニングは保磁力の増加と磁区のサイズの低減を生み出す。

このほか、ビットパターンドメディアに FePt 薄膜を応用するために様々な微細加工の研究が行われてきた³³⁾⁻³⁷⁾。その結果、電子ビームリソグラフィ装置、Ar イオンエッチング装置を用いた微細加工により作製した FePt 円形ドット配列試料において、粒子サイズの減少により保磁力が上昇することが報告されている³⁸⁾。

また、FePt/MgO/FePt 多層構造薄膜において 2 層の FePt 層がそれぞれ異なる印加磁場で独立して磁化反転することが確認されており、磁気多値記録媒体への応用が期待される³⁹⁾。

1.4.2 Mn-Ga 系合金

L1₀ 構造(図 1.11 (a))や D0₂₂ 構造(図 1.11 (b))を有する Mn-Ga 合金が、貴金属やレアアースを含まずに高い結晶磁気異方性を示すことから、新しい材料として近年注目を集

めている。Mn-Ga 2 元系平衡状態図⁴⁰⁾を図 1.12 に示す。 γ_1 、 γ_2 相は $L1_0$ 構造を有し、 η 相は $D0_{22}$ 構造を有している。理論値において、 $L1_0$ -MnGa では 845 emu/cm^3 の M_s と 26 Merg/cm^3 の K_u を⁴¹⁾、 $D0_{22}$ - Mn_3Ga では 305 emu/cm^3 の M_s と⁴²⁾ 20 Merg/cm^3 の K_u を示すことが報告されている⁴³⁾。また、 $L1_0$ -MnGa 薄膜においておよそ 600 emu/cm^3 の M_s と 15 Merg/cm^3 の K_u が達成されている⁴⁴⁾。これら材料は、高いスピン分極率や小さなダンピング定数も持つことから、TMR 素子を中心としたスピントロニクス分野で研究が行われているが^{45), 46)}、図 1.13⁴⁷⁾に示すように飽和磁化、磁気異方性が他の Mn 系合金と比べて高く、記録媒体への応用に向けた研究もされている⁴⁸⁾。

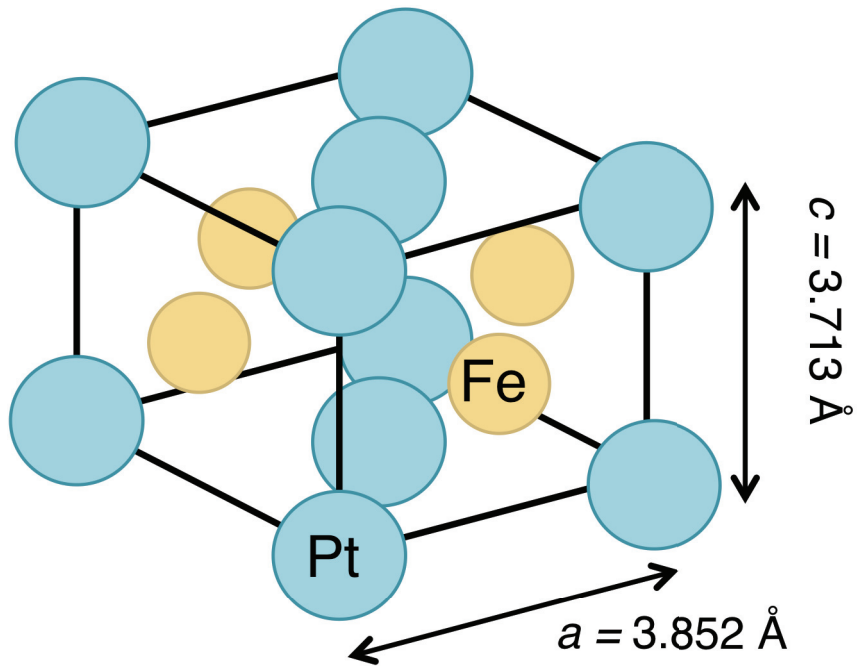


図 1.10 L1₀-FePt の結晶構造

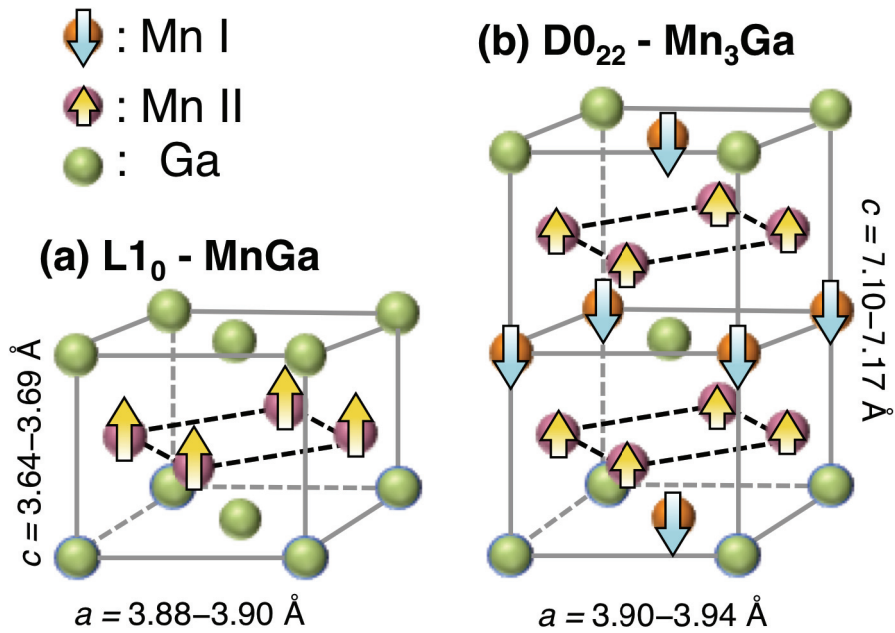


図 1.11 (a) L1₀-MnGa の結晶構造 (b) D0₂₂-Mn₃Ga の結晶構造

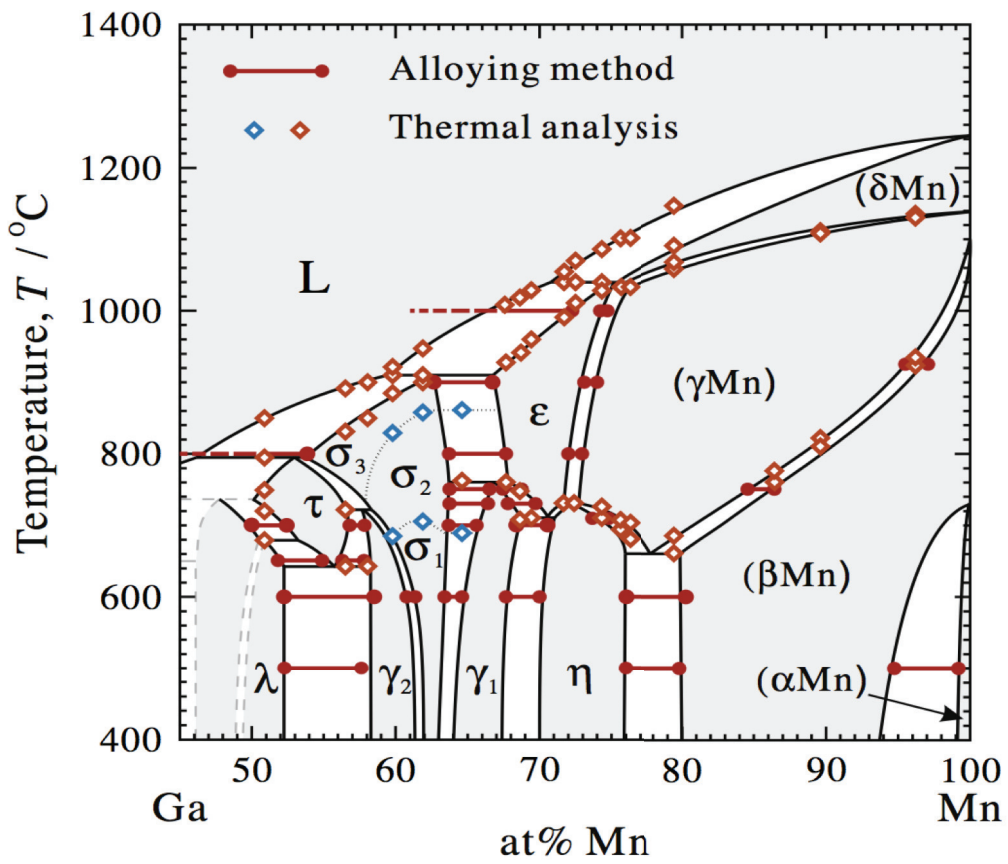


图 1.12 Mn-Ga 2 元系平衡状态图⁴⁰⁾

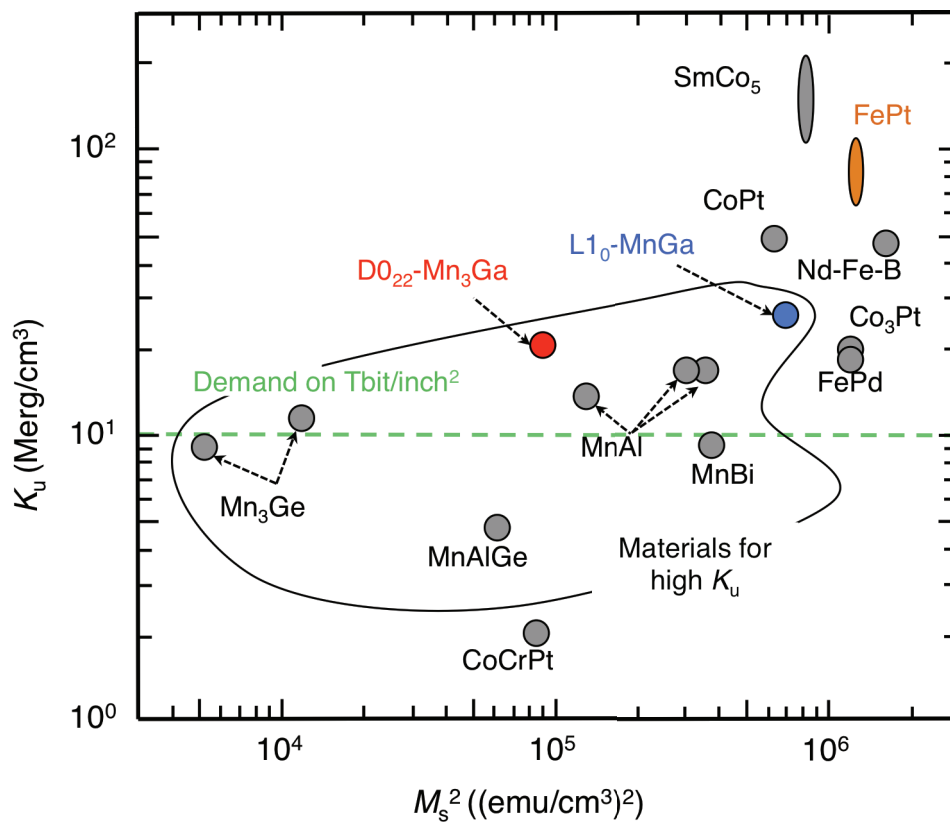


図 1.13 主な高磁気異方性材料の磁気特性⁴⁷⁾

1.5 微細加工技術

1.5.1 微細加工技術の現状と展望

現在、各種デバイスの小型・軽量化が進むなかで材料の微細加工技術が発達し、産業全般におけるナノテクノロジーの根幹をなしている。その要素技術は半導体集積回路を中心に様々な素子製造工程に関連しており、それらの基礎となる学問分野も、電子工学はもちろん、光学、電子光学、高分子化学、プラズマ化学、真空工学、コンピュータ工学などの多岐にわたっている。

微細加工には大別してトップダウン法とボトムアップ法の2種類が存在する。トップダウン法は、材料を細かく削り小さくする加工技術で、代表的な方法として紫外線を用いるフォトリソグラフィ、さらに100 nm以下のサイズに対応できる電子線やX線リソグラフィがある。ボトムアップ法は材料の原子や分子を積み上げてナノサイズの構造を作製する新しい加工技術で、自己組織化技術による10 nm以下の微細パターン形成が期待されている。

半導体分野では、半導体デバイスの高密度集積化に対応するため、次世代の微細加工技術の開発が課題となっている。また、HDDや光ディスクの記録密度・容量も増加を続けており、高度なナノ加工技術が求められている。HDDにおいては1ビット当たりの記録面積が10 nm²のオーダーに達しているため、パターンドメディアの加工サイズや精度は半導体の先端レベル以上が必要とされ、光ディスクの分野においても、高密度化にともない基板を形成するためのスタンパーに高精度な微細加工の適用が望まれている。微細加工技術は磁気ディスク、光ディスクともに大きな進展をもたらし、さらに、他の産業分野においてもますます注目され、需要が高まっている。

1.5.2 リソグラフィ技術

微細加工の手法として現在主に用いられているのがリソグラフィである。リソグラフィはもともと石版刷を意味している言葉だが、電子工業では光や放射線に感応する物質を利用して微細なデバイスや回路のパターンを複製、量産する技術を呼ぶのに使われる。リソグラフィによって作られる代表的な製品は半導体集積回路であるが、その他にもプリント回路、制御部品、回折格子や導波路などの光デバイス、トランスデューサやフィルタなどの超音波デバイス、ジョセフソン素子などの極低温デバイスのような様々な電子部品にとってリソグラフィ技術は欠かせないものとなっている。

リソグラフィのプロセスについて簡単に説明する。まず、パターンを施したい平面基板や薄膜の表面に感光性を有するフォトレジストを塗布し、被膜を形成する。このレジ

スト膜を、感光を防ぐマスクを通して露光することでレジストパターンを得る。レジストにはネガ型とポジ型があり、現像した際に感光したレジストが溶けずに残るのがネガ型、溶けだすのがポジ型である。現像した後、エッチングを行うとレジストパターンに覆われていない部分が削り取られ、最後に残ったレジストパターンを除去することによってパターンニングされた試料を得る。レジストパターンを形成する方法にもトップダウン法、ボトムアップ法があり、前者には光、電子線、イオンビームによるリソグラフィ、後者にはナノインプリントリソグラフィ、自己組織化リソグラフィが挙げられる。

光リソグラフィにおいて、パターンが微細になるにつれて光源の波長やマスク製造技術の問題で解像度が低下していくため、45 nm サイズ以下の加工が困難になっている。この限界を突破する技術として、波長の短い電子線等を用いたリソグラフィ技術が開発され、ナノデバイスの製造に利用されている。

以下に、いくつかのリソグラフィ法について記述する。

(1) フォトリソグラフィ

光源に光(紫外線)とフォトマスクを用いるリソグラフィであり、現在、半導体素子をはじめ多くのナノデバイス製造に用いられている方法である。露光法には、密着露光法(図 1.14 (a))、等倍露光法(図 1.14 (b))、縮小投影露光法(図 1.14 (c))の各露光法がある。微小電気機械システム(MEMS)やマイクロマシンの加工に用いられる LIGA(Lithographie galvanoformung abformung) プロセス(ドイツで開発された高アスペクト比のパターンを形成した後めっきにより鋳型を形成する技術)⁴⁹⁾では、100 μm 程度の高さの加工が必要であり、この場合には 3 keV から 6 keV のエネルギーを持つ X 線(放射光)による等倍露光法が用いられる。この露光方式ではマスクとウェーハ間の距離は約 10 ~ 100 μm 程度である。一方、半導体の量産用のリソグラフィ技術では、マスク製作技術に負担が少ない縮小投影露光法が主に用いられる。また、パターンの微細化が進むにつれ、解像度の向上のために波長の短い ArF エキシマレーザー(193 nm)や F₂ レーザー(157 nm)、EUV(13 nm)を用いるリソグラフィや、光の回折パターンを用いる高解像度の露光技術が開発されている。

(2) 電子ビームリソグラフィ

電子ビームリソグラフィ技術は走査型電子顕微鏡の技術を応用したもので、半導体集積回路に代表される基板ウェーハへの直接描画や露光マスク製作にとって不可欠なものである。電子銃から出た電子を電子レンズ、絞りなどによって所望の形状に集束し、それを直接レジストに照射して走査させ微細なパターンを画く電子線描画は、フォトリ

ソグラフィのようにマスクを必要としない露光技術である。光露光で短波長とされるF₂レーザー (157 nm) や EUV (13 nm) と比較すると電子線の波長は加速電圧 50 kV で 0.00535 nm と三桁以上短く、ビーム径を 1 nm 以下にすることも可能であり、解像度の良いパターン描画を行えることから最先端のナノデバイス開発を支える微細加工技術として発展した。

(4) イオンビームリソグラフィ

イオンビームリソグラフィは、イオンビームによって化学変化を生じさせることで微細加工を行うリソグラフィ法である。回折効果、近接効果がなく露光感度が高い。また、レジスト露光のみでなく直接エッチングやイオン注入が可能である等の特徴を持つことから、高精度、高スループットの露光法として期待されている。露光法としては、電子ビームリソグラフィと同様に 1:1 マスク転写、縮小投影法および走査方式が検討されている。また、レジスト露光だけでなくレジストプロセス無しで直接エッチングやドーピングする方法も研究されている。

(5) ナノインプリントリソグラフィ

ナノインプリントリソグラフィ (図 1.15) とは、微細な凹凸の刻まれた型 (モールド) を基板上に塗布された樹脂に押し付けて、モールドの反転形状を樹脂に形成する手法であり、1995 年に Princeton 大学の Chou らによって提案された⁵⁰⁾。高温で樹脂が軟化した状態でモールドを押し付けることによりパターンを形成する熱ナノインプリント、液体の光硬化樹脂に透明のモールドを押し付けて光照射により樹脂を硬化させる光ナノインプリントのほか、モールドの凸部のみに材料を付着させて、対象となる被加工物にその材料を転写するソフトリソグラフィ、モールドの凹凸全てを覆うように樹脂を塗布し固化させた後に樹脂全体を被加工物に付着させるリバーサブルインプリントなどがある。ナノインプリントリソグラフィが一般的なリソグラフィと異なる点は、ナノインプリントにより形成された樹脂はモールドの凸部によって押し込まれた部分であっても、基板が露出することがないために、ナノインプリントを行っただけではリソグラフィとしては利用できないことである。このため、この部分 (残膜やベース層と呼ばれる) を反応性イオンエッチングなどにより除去しなければならない。

ナノインプリントは安価にナノメートルオーダーのパターンを大量複写する技術であるので、リソグラフィのみならず、MEMS、マイクロ光学素子およびパターン化磁気記録素子等、様々な製造工程の応用に広がっていく技術であるといえる。

(6) ディップペンリソグラフィ

ディップペンリソグラフィ (図 1.16) は、1999 年に Northwestern 大学の Chad Mirkin が新たに開発した微細パターン形成プロセスである⁵¹⁾。コンタクトモードの原子間力顕微鏡 (AFM) の構成において、プローブをあたかもペンの様に利用して固体の基板上に基板と化学的親和性の良い分子材料で極微細のパターンを作製するものである。大気環境中において、プローブ先端部とその近傍の基板間に存在する吸着水 (メニスカス) を介して、ディップペンであるプローブからインク分子が基板上に移動し、局所的な分子層からなるパターンが形成される。分子層の形成には、インク分子の基板上自己組織化現象を利用する。ディップペンリソグラフィは基板に直接パターンニングできること、走査型プローブ顕微鏡 (SPM) をベースにした手法であることから、低コストで保守も容易である。しかも、15 nm の線幅分解能を持つ非常に高分解能かつ高精度のパターンニングが可能であると考えられている。

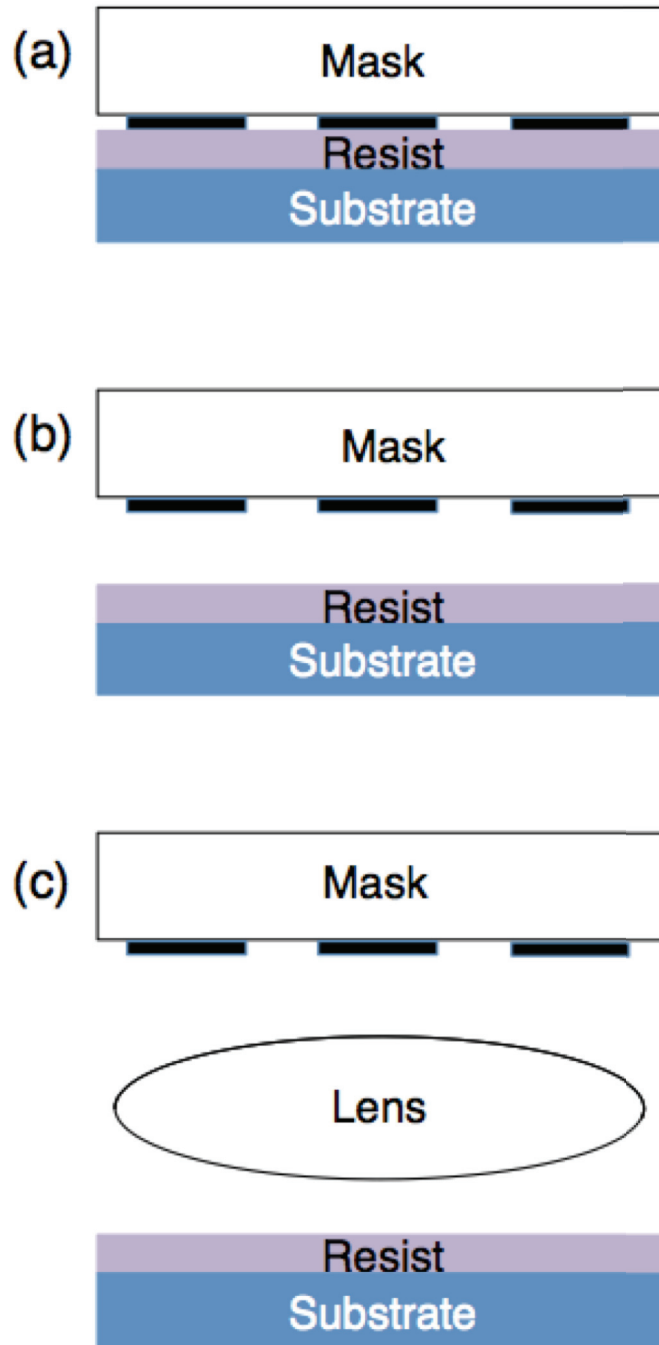


图 1. 14 (a) 密着露光法 (b) 等倍露光法 (c) 縮小投影露光法

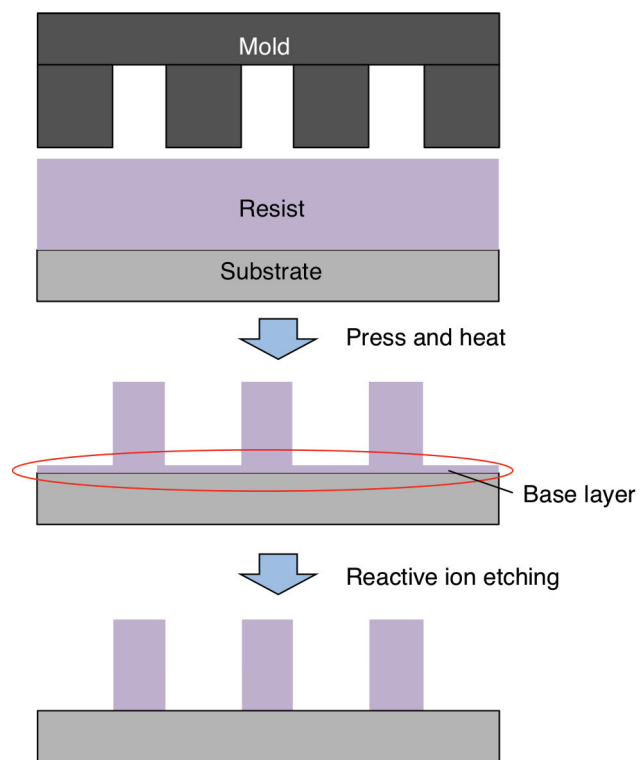


図 1.15 ナノインプリントリソグラフィ

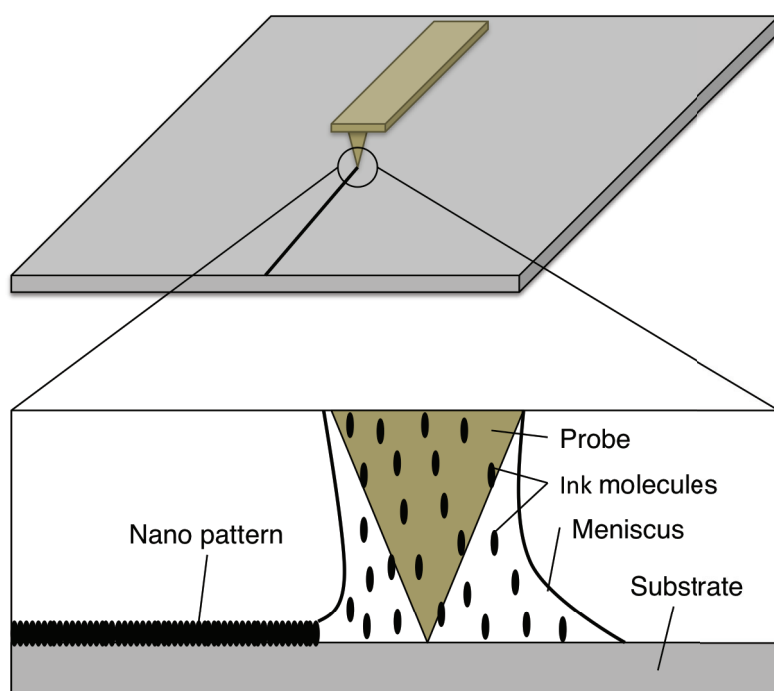


図 1.16 ディップペンリソグラフィ

1.5.3 レジスト

リソグラフィ技術の発展に伴い、レジスト材料も急激な進歩を遂げている。ここでは、レジストの仕様方法を説明する。

まず、前処理として被加工基板の表面を疎水化してレジストとの密着性を向上させることや、反射防止膜を塗布して露光時の光の干渉やハレーションによる解像性の悪化を防ぐことが必要である。この上にフォトリジストを滴下し、スピンコーターなどで 3000 ~ 6000 rpm と高速回転させて均一な厚さの膜を作製する。塗布後のレジスト膜中に残留している溶媒を 80~130°C 程度の温度で露光前加熱（プレバーク）して揮発させ、所望の膜厚にする。この膜厚はレジストの粘度、高分子の分子量、各成分の濃度などに依存し、さらに塗布回転数、温度、湿度などにも依存する。プレバーク後でも 2~5% の溶媒が残り、レジスト特性に影響を与える。露光後、さらに 90~150°C 程度の温度で加熱処理する。この露光後加熱（ポストバーク）により、露光時に生じた光の干渉の影響が低減される。ポストバーク後のレジストをテトラメチルアンモニウムヒドロキシドなどの有機アルカリ水溶液で現像する。レジストは、露光部分が酸性に変化するなどして現像液に溶解しやすくなるタイプをポジ型、露光部分が疎水性になるなどして現像液に溶けにくくなるタイプをネガ型と分類している。

ポジ型レジストの感光機構は、

- 溶解抑制剤により現像液に不溶化させたレジストを露光によりアルカリ可溶性にするもの
- 極性変化を利用するもの
- 分子量低下による溶解度の変化を利用するもの

などがある。ネガ型レジストの感光機構は、極性変化に加え、

- 架橋による分子量増加による溶解度の変化を利用するもの

などがある。これらの化学反応を起こさせるために、感光剤や官能基を分子設計し、必要に応じた増感剤を用いる。現像後にリンスし、回転乾燥することによりレジストの微細パターンを得る。現像後加熱は、レジストパターンの耐熱性向上、耐エッチングの向上、接着性の改善、ピンホールの低減、脱ガスなどの目的で行われる。エッチング後に不要になったレジストを酸素プラズマによる灰化（アッシング）や、90~130°C に加熱した剥離液に浸漬させて除去する。微細加工では膜厚が 1 μm 以下のレジストが用いられ、特に電子ビームリソグラフィの場合は高い解像性が要求されるため、主鎖切断反応を用いるポジ型レジストである PMMA や ZEP のような高解像度のレジストがよく使用される。

1.5.4 エッチング技術

微細加工技術は、一般にリソグラフィ技術とエッチング技術の 2 つのプロセスから構成される。エッチングとは物理・化学的に削ることを意味し、薬品やイオンとの反応を利用して被加工基板にパターンを形成する工程である。エッチング技術はガスやプラズマを衝突させて物理的に削るドライエッチングと、薬品や電解液に浸漬して金属等を腐食溶解させるウェットエッチングに大別される。数あるエッチング技術の中でもプラズマエッチングは等方性から異方性まで加工形状を制御でき、実用的な速度で被加工物をエッチングできることから、超大規模集積回路 (ULSI) や薄膜トランジスタ (TFT) などのデバイス製作に必要不可欠の微細加工技術となっている。しかし、プラズマエッチングによって生じるダメージによってデバイスが動作しなくなるという問題もある。また、ドライエッチングの根幹を支える物理化学の 1 つにエッチング生成物の蒸気圧が挙げられる。エッチング生成物の蒸気圧が低く揮発しにくい Pt や Cu などは形状を制御しながら微細加工を実現することが困難である。一方、ウェットエッチングは電気化学的な反応で等方的にエッチングが進行するため、一般的には微細な加工が困難となっているが、特殊な被加工材料では結晶方位を利用して異方性加工が可能である。また、ドライエッチングでは加工できない材料に対してダメージフリーで高速加工できる場合もあり、MEMS などの作製に用いられる。

(1) ウェットエッチング

ウェットエッチングは目的とする金属等を腐食溶解する性質を持つ液体の薬品を使ったエッチングで、主にプリント配線基板製造や、金属銘板製造、半導体素子製造の分野において使われる。ドライエッチングと比較して、1 度に大量の基板が処理できる、必要な装置や薬品が安価である、ほぼ純粋な化学プロセスのためエッチングマスクの選択の幅が広く、被加工基板に与える損傷が少ない等の点が長所に挙げられる。一方、短所としては、深くエッチングが進行するとマスクの真下にも腐食が進む (アンダーカット) ため精度の高い微細加工が難しく、薬品の温度や攪拌速度によってエッチングレートが変化するため、エッチングの再現性に乏しいという点が挙げられる。

ウェットエッチングの処理方法としては、エッチング液を満たした容器内で浸食するディップ式が簡便であるが、金属を腐食溶解した薬品を流し去り、処理面に新鮮な薬品を供給するため、薬品を攪拌する必要がある。その点を改良したものとして、処理対象に薬品を吹き付けるスプレー式、回転台に基板を取り付けて薬品を滴下するスピン式等がある。

(2) プラズマエッチング

プラズマ中では、ガスは電子との衝突によって電離および解離し、反応性の高い正負イオンとラジカルが形成される。電子の移動度はイオンのそれよりはるかに大きいので、プラズマ中に設置された被加工基板は負に帯電し、プラズマと基板の間には負の電位差が生じる。したがって、正イオンはプラズマから基板へ加速されて衝突する。イオンの方向と速度は基板に印可する電位によって制御することができる。一方ラジカルはプラズマ中で加熱された熱速度でランダムに拡散し、基板に入射する。プラズマエッチングは、このようなイオンとラジカルによる基板表面の反応によってエッチングが進行する。

(1) 反応性イオンエッチング

反応性イオンエッチングは、ラジカルの吸着と入射するイオン衝撃との相乗効果によるエッチングである。ラジカルが固体表面で吸着すると室温においても自発的に反応が生じる。例えば、フッ素ベースの Si エッチングの場合、F 原子と Si 表面とのエッチング反応は自発的に起こり、 SiF_4 または SiF_x が生じる。塩素ベースにおいても Cl 原子と Si 表面で反応が生じるが F 原子に比べて自発的なエッチング速度は低い。イオン衝撃によって Si 表面に吸着した F や Cl 原子が Si のバックボンドを効率的に切断して揮発性の高い SiF_4 や SiCl_4 分子を形成してエッチング速度が増加する。

(2) 中性粒子ビームエッチング

中性粒子ビームエッチングは、ナノメートルオーダーの極微細デバイスの加工に、プラズマ中のイオンを電氣的に中性にして加工面に照射するエッチングである。中性粒子ビームは荷電粒子や放射光の基板への入射を抑制し、運動エネルギーを持った中性粒子のみを照射できるので、プラズマから放射される電子やイオンによる電荷蓄積や紫外光などの放射光によるデバイス特性を劣化させるダメージの発生を回避でき、高精度加工が可能である。

1.6 本研究の目的

多値磁気記録媒体への応用の可能性を議論するために、FePt/MgO/FePt 多層薄膜、および MnGa/Cr/MnGa 多層薄膜の磁気特性について検討した。近々到達されるべき 2 Tbit/inch² のビットパターンドメディアを考えた場合、およそ 15 nm サイズのドットが 18 nm ピッチ程度で配列するものと思われ、大幅な記録密度の増加が期待される磁気多値記録媒体においても、この程度のドットサイズにおける記録をクリアできなければ実用化の見通しが立ちにくい。15 nm サイズの FePt/MgO/FeP 多層薄膜、MnGa/Cr/MnGa 多層薄膜ドットにおいて多値記録可能かどうかを検討した。

第 2 章

多値磁気記録媒体への応用にむけ、膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を作製し、結晶構造と磁気特性を評価した。

第 3 章

ビットパターン化した多値磁気記録媒体への応用にむけ、膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を円形ドットに微細加工し、磁気特性を評価した。

第 4 章

磁気記録媒体応用の可能性を探るために、交互積層法により $Mn_xGa_{(100-x)}$ 単層薄膜を作製し、その結晶構造と磁気特性を評価した。さらに、基礎的な物性を知るために円形ドットパターンに微細加工し、磁区構造観察を行うことにより臨界単磁区粒径と交換スティーフネス定数を明らかにした。

第 5 章

ビットパターン化した多値磁気記録媒体への応用の可能性を探るために、 $L1_0$ -Mn₅₈Ga₄₂/Cr/D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 多層薄膜を作製し、Cr 中間層厚 t_{spacer} を変化させた時の結晶構造と磁気特性について検討した。

参考文献

- 1) IDC White paper “Data Age 2025: The Evolution of Data to Life-Critical Don’t Focus on Big Data; Focus on the Data That’s Big” Sponsored by Seagate © 2017 IDC. www.Idc.com.
- 2) E. Grochoski, Future Technology Challenges for NAND Flash and HDD Products, Flash Memory Summit, (2012)
- 3) P. L. Lu and S. H. Charap, *IEEE Trans. Magn.*, **30**, 4230 (1994)
- 4) S. Iwasaki and Y. Nakamura, *IEEE Trans. Magn.*, **13**, 1272 (1977)
- 5) M. Watanabe, and T. Matsumoto, *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 3971 (2000)
- 6) Y. K. Takahashi, T. Ohkubo, M. Ohnuma, and K. Hono, *J. Appl. Phys.*, **93**, 7166 (2003)
- 7) T. Miyazaki, O. Kitakami, S. Okamoto, and Y. Shimada, *Phys. Rev. B*, **72**, 144419 (2005)
- 8) T. O. Seki, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *J. Appl. Phys.*, **103**, 023910 (2008)
- 9) A. Perumal, Y. K. Takahashi, T. O. Seki, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 132508 (2008)
- 10) D. Babonneau, G. Abadias, J. Toudert, T. Girardeau, E. Fonda, J. S. Micha, and F. Petroff, *J. Phys.: Condens. Matter*, **20**, 035218 (2008)
- 11) O. Hovorka, S. Devos, Q. Coopman, W. J. Fan, C. J. Aas, R. F. L. Evans, Xi, Chen, G. Ju, and R. W. Chantrell, *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 052406 (2012)
- 12) R. L. White, R. M. H. New, and R. F. W. Pease, *IEEE Trans. Magn.*, **33**, 990 (1997)
- 13) T. R. Albrecht, *IEEE Trans. Magn.*, **51**, 08040342 (2015)
- 14) T. R. Albrecht *et al*, *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 773 (2013)
- 15) H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, T. Kanao, K. Mizushima, and R. Sato. *Phys. Rev. Applied* **5**, 014003 (2016)
- 16) M. H. Kryder, E. C. Gage, T. W. McDaniel, W. A. Challener, R. E. Rottmayer, G. Ju, Y. T. Hsia, and M. F. Erden, *Proc. IEEE*, **96**, 1810 (2008)
- 17) T. Matsumoto, F. Akagi, M. Mochizuki, H. Miyamoto, and B. Stipe, *Opt. Express*, **20**, 18946 (2012)
- 18) G. Ju *et al*, *IEEE Trans. Magn.*, **51**, 3201709 (2015)
- 19) J. G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang, *IEEE Trans. Magn.*, **44**, 125 (2008)
- 20) X. Zhu and J-G Zhu, USP 7616412 B2 (Filed data: jul. 21, 2006)
- 21) M. Matsubara, M. Shiimoto, K. Nagasaka, Y. Sato, Y. Udo, K. Sugiura, M. Hattori, M. Igarashi, Y. Nishida, H. Hoshiya, K. Nakamoto, and I. Tagawa, *J. Appl. Phys.*, **109**, 07B741 (2011)

- 22) O. A. Ovanov, L. V. Solina, V. A. Demshina, and J. M. Magat, *Phys. Met. Metall.* **35**, 81 (1973)
- 23) Y. F. Ding, J.S. Chen, E. Liu and L. Li, *J. Magn. Magn. Mater.* **303**, 238 (2006)
- 24) An-Cheng Sun, P. C. Kuo, Jen-Hwa Hsu, H. L. Huang and Jui-Ming Sun, *J. Appl. Phys.* **98**, 076109 (2005)
- 25) T. Suzuki, K. Harada, N. Honda and K. Ouchi, *J. Magn. Magn. Mater.* **193**, 85 (1999)
- 26) Y. -N. Hsu, S. Jeong, D. E. Laughlin and D. N. Lambeth, *J. Appl. Phys.* **89**, 7068 (2001)
- 27) T. Maeda, T. Kai, A. Kikitsu, T. Nagase and J. Akiyama, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2147 (2002)
- 28) Y. K. Takahashi, M. Ohnuma and K. Hono, *J. Magn. Magn. Mater.* **246**, 259 (2002)
- 29) Y. Endo, N. Kikuchi, O. Kitakami and Y. Shimada, *J. Appl. Phys.* **89**, 7065 (2001)
- 30) T. Shima, T. Moriguchi, S. Mitani, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 288 (2002)
- 31) T. Seki, T. Shima, K. Takanashi, Y. Takahashi, E. Matsubara, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2461 (2003)
- 32) D. Ravelosona, C. Chappert, V. Mathet and H. Bernas, *J. Appl. Phys.* **87**, 5771(2000)
- 33) O. Kazakova, M. Hanson, and E. B. Svedberg, *IEEE Trans. Magn.* **39**, 2747 (2003)
- 34) T. Seki, T. Shima, K. Yakushiji, K. Takanashi, G. Q. Li, and S. Ishio, *IEEE Trans. Magn.* **41**, 3604 (2005)
- 35) N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Shimada, and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4313 (2003)
- 36) T. Seki, T. Shima, K. Yakushiji, K. Takanashi, G. Q. Li, and S. Ishio, *J. Appl. Phys.* **100**, 043915 (2006)
- 37) T. Seki, H. Iwama, T. Shima, and K. Takanashi, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 335001 (2011)
- 38) D. Wang, T. Seki, K. Takanashi, T. Shima, G. Li, H. Saito, and S. Ishio, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 3464 (2008)
- 39) S. Matsumoto, H. Iwama, and T. Shima, *J. Magn. Soc. Jpn.* **36**, 86 (2012)
- 40) K. Minakuchi, R. Y. Umetsu, K. Ishida, and R. Kainuma, *J. Alloy. Compod.*, **537**, 332-337 (2012)
- 41) A. Sakuma, *J. Magn. Magn. Mater.* **23**, 821 (1998)
- 42) J. Winterlik, B. Balke, G. H. Fecher, C. Felser, M. C. M. Alves, F. Bernardi, and J. Morais, *Phys. Rev. B* **77**, 054406 (2008).
- 43) S. Mizukami, F. Wu, A. Sakuma, J. Walowski, D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 117201 (2011)

- 44) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, and T. Miyazaki, *Phys. Rev. B*, **85**, 014416 (2012)
- 45) Q. L. Ma, T. Kubota, S. Mizukami, X. M. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 032402 (2012)
- 46) Q. L. Ma, S. Mizukami, T. Kubota, X. M. Zhang, Y. Ando, and T. Miyazaki, *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 157202 (2014)
- 47) A. Sugihara, K. Suzuki, T. Miyazaki, and S. Mizukami, *Metals* 2015, 2, 910-919
- 48) D. Oshima, T. Kato, S. Iwata, and S. Tsunashima, *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 3608 (2013)
- 49) Becker EW *et al.*, *Naturwissenschaften* **69**, 520 (1982)
- 50) Chou *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **14**, 6, 4129 (1996)
- 51) Richard D. Piner *et al.*, *Science* **283**, 661 (1999)

第 2 章 FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層薄膜の作製と磁気特性

2.1 実験方法

2.1.1 成膜方法

薄膜試料の作製にはマグネトロンスパッタリング法⁵²⁾を用いた。マグネトロンスパッタリングの模式図を図 2.1 に示す。原理は次のとおりである。Ar 等のガス中にターゲットと呼ばれる薄膜材料と基板を設置し、前者を陰極、後者を陽極として電極間に電圧を加えてグロー放電を起こすと、ガス分子がイオン化すると同時に生じた陽イオンが加速され、大きな運動エネルギーをもってターゲット表面を衝撃し、表面原子をたたき出す。これをスパッタリング現象という。マグネトロンスパッタリング法では、ターゲット裏面に磁石を設置して電界に直交する磁界を発生させることでスパッタと同時に放出される二次電子をローレンツ力で捕らえ、そのサイクロトロン運動によりガスのイオン化が促進し、効率よくスパッタリングを起こすことができる。スパッタされた原子が基板に体積することにより薄膜が得られる。直流電源を用いる場合は DC スパッタリングと呼ばれ、高周波電源を用いる場合は RF スパッタリングと呼ばれる。DC スパッタリングは RF スパッタリングと比較して成膜速度が速いが、RF スパッタリングは絶縁物のスパッタが可能であるという特徴を持つ。蒸着法と比較したときのマグネトロンスパッタリング法の利点には高融点材料でも容易に薄膜化が可能であること、成膜速度はスパッタ電力にほぼ比例しているため、時間制御のみで精度の高い厚さの薄膜が得られること、プロセス圧力が高いことから平均自由行程が短く、スパッタ原子に散乱が起こるため、段差被膜性に優れていることが挙げられる。

本実験では ULVAC 社製の超高真空多元スパッタ装置を使用した。装置の構成を図 2.2 および 2.3 に示す。この装置は、マグネトロン方式のスパッタカソードを 8 基 (DC 電源 5 基、RF 電源 3 基) 搭載しており、任意の順番による多層膜の作製や、同時成膜により組成を制御した合金薄膜の作製が可能である。スパッタカソードが斜入射配置になっており、4 元までの同時スパッタができる。試料交換室は、ロータリーポンプで予備排気した後、ターボ分子ポンプで排気することにより 5×10^{-5} Pa 以下の真空度に到達する。成膜室はロータリーポンプで予備排気した後、ターボ分子ポンプで排気しながら真空チャンバーを加熱することで内壁に吸着しているガス分子を追い出し超高真空を得る。さらに、チタンサブリーションポンプを使用することで冷却後は 3×10^{-7} Pa 以下の真空度に到達するため、成膜中の不純物の混入を抑えられる。真空度の確認には、

超高真空領域(10^{-5} Pa 以下)では電離真空計、Ar ガス流入後はダイアフラム真空計を用いる。試料交換室および成膜室の 2 室構造になっており、成膜室を大気暴露することなく試料ホルダ搬送が可能である。ランプ式の基板加熱機構を装備しており、最高 800°C まで加熱可能である。

また、成膜室は試料交換室を介してミリング室と連結しており、試料を大気暴露せずに成膜とミリングを交互に行うことが可能である。

FePt 単層薄膜の成膜手順は次のとおりである。到達真空度 1×10^{-7} Pa 以下の成膜室で、MgO (100)単結晶基板上に Fe シード層 1 nm、Au バッファ層 40 nm を室温で積層し、450°C で 60 分間の熱処理を施し Au を結晶化させた。Fe シード層は Au を(100)配向させるために用いた。Au バッファ層上に FePt 層 5 - 30 nm を基板温度 225°C で成膜し、最後に 575°C で 60 分間の熱処理を施し FePt の規則化を促進させた。多層薄膜の場合は、単層薄膜と同様の手順で Fe シード層から FePt 層 10 nm まで積層し、次に基板温度を室温まで降下させ、MgO 中間層 3 - 20 nm を積層した。さらに基板温度 225°C で FePt 層 5 nm を積層し、最後に 575°C で 60 分間の熱処理を施した。

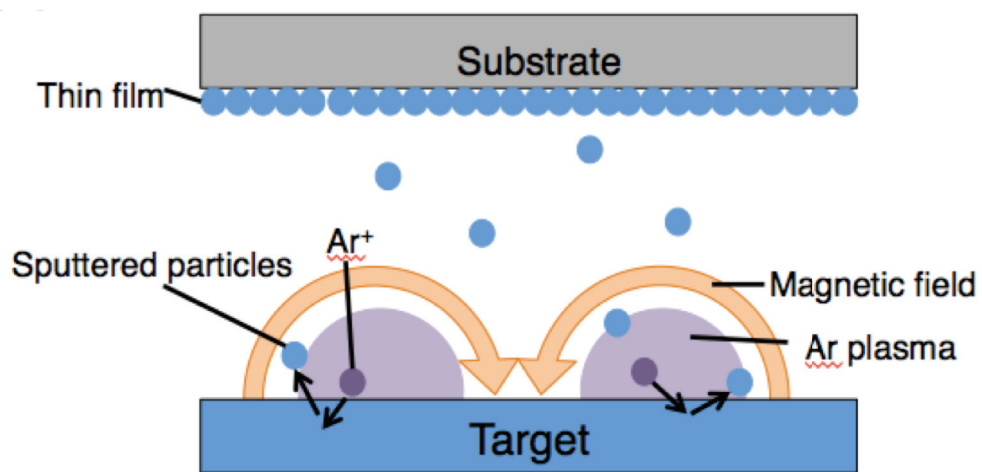


図 2.1 マグネトロンスパッタリングの原理

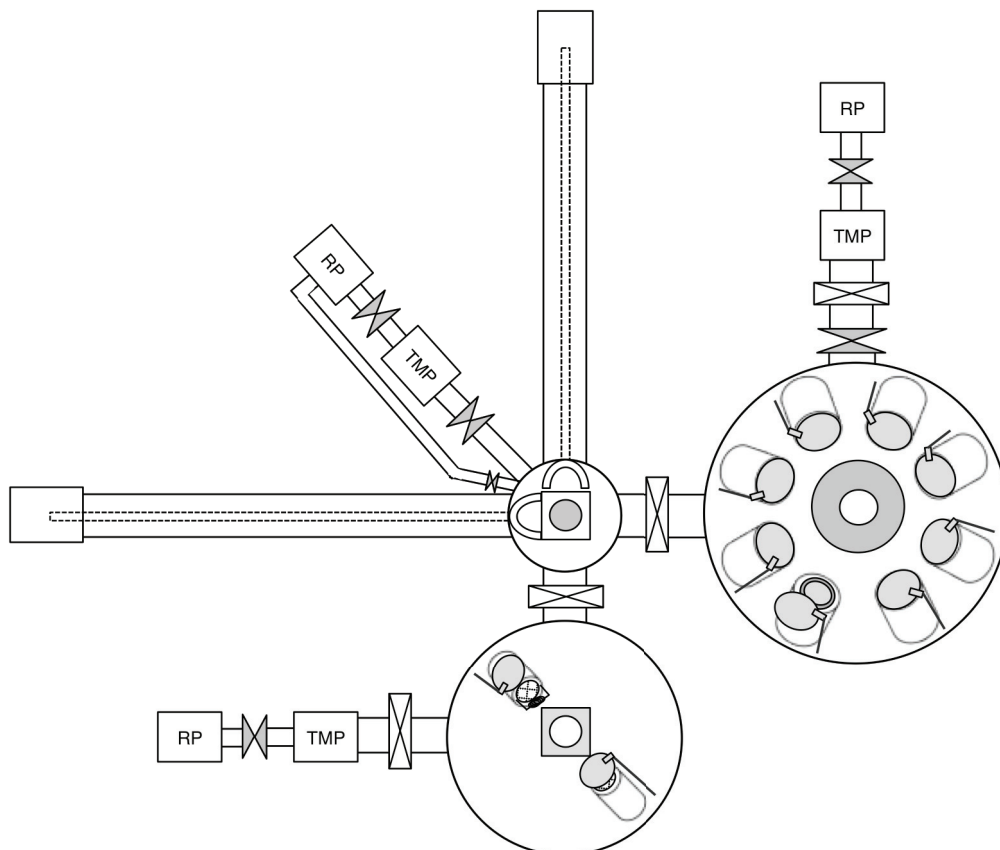


図 2.2 超高真空多元スパッタ装置の構成

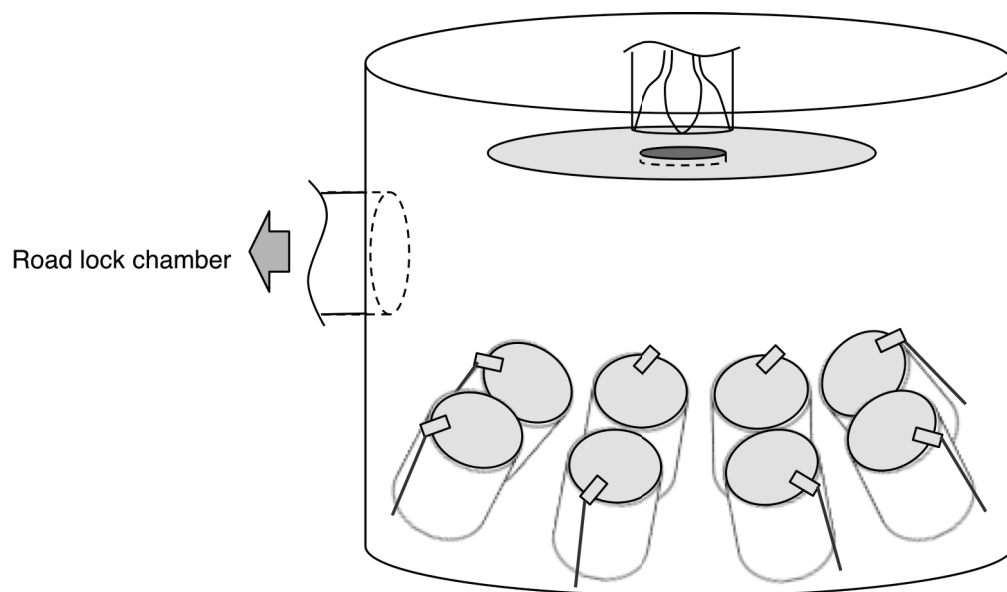


図 2.3 スパッタチャンバーの模式図

2.1.2 結晶構造評価

試料の結晶構造評価には X 線回折(X-ray diffraction: XRD)装置を用いた。原理は次のとおりである。波長 λ の X 線が、面間隔 d の平行な格子面に入射角 θ で入射したとき(図 2.4)、Bragg の法則

$$n\lambda = 2d\sin\theta$$

を満たす場合、格子を形成する原子によって散乱された射線の位相が一致してその強度を強め合い、回折線を形成する。回折が起こる格子面や回折線は反射面や反射線とも呼ばれる。 n は整数であり、 n 番目の(hkl)面からの n 次反射があることを意味する。

X 線回折現象を利用し、既知の λ の X 線を入射させ、回折線が検出される θ を調べることで d を決めることができる。 d が明らかになれば、格子定数、結晶系、含まれる元素、薄膜であれば結晶の配向方向など、様々な情報が得られる。

本実験では BRUKER 社製 Bruker D8 を用いて試料の構造特性を評価した。特性 X 線は Cu-K α (1.5418 Å) を用いた。この装置は、試料に対する X 線の入射角 θ 、試料に対する受光器の角度 2θ 、試料ステージの回転 φ 、試料ステージの煽り角 ψ 、試料ステージ移動 x 、 y 、 z 軸を有しており、様々な角度からのスキャンが可能である。

$\theta - 2\theta$ スキャンの概略⁵³⁾を図 2.5 に示す。X 線管から出てくる X 線は試料へと入射する。試料は O 回りに回転できるようになっており、入射 X 線に対して θ を連続的に変化させることが可能である。回折線を検出する計数管もまた O 回りに回転し、任意の角度をとることができ、 θ に対して 2θ となる位置を維持しながら円上を移動する。薄膜面垂直方向の結晶構造解析は $\theta - 2\theta$ スキャンによって行った。

薄膜面内方向の結晶構造解析は In-plane 測定により行なった。In-plane 測定は X 線を薄膜面内方向に入射し、面内方向に向いた結晶面からの回折パターンを測定する方法である。これにより面内方向の格子定数の算出が可能である。 c 軸方向に配向した薄膜に対して In-plane 測定を行い、格子定数 a と軸比 ca の評価を行った。

L1₀-FePt 薄膜の場合を例に測定手順を説明する。測定は、試料への X 線の入射角 θ 、入射 X 線と回折 X 線のなす角度 2θ に加え、X 線の入射に対して垂直方向のあおり角 ψ 、試料の面内回転角 φ を調節して行った。測定したい結晶面からの回折ピークと基板やバッファ層などからの他の回折ピークが近い角度に現れると判別が難しくなるため、近くに回折ピークが存在しない(002)面を選んだ。まず、(002)面よりも面出しを行いやすい(201)面の回折ピークの測定を φ スキャンにより行った。(201)回折ピークが現れた角度を φ に設定し、次に(002)回折ピークの測定を行った。(002)回折ピークは、原理的には面内方向($\psi = 90^\circ$)に X 線を入射すれば測定できるが、実際は試料をステージに取り付けるときに生じるわずかな角度誤差があるため、 ψ スキャンを行うことで最も強い回折

強度が得られる角度を調べる必要があることから、 $\psi = 85^\circ \sim 91^\circ$ の範囲でスキャンを行った。回折強度が最も強く測定された角度を ψ に設定し、この後再び φ スキャンを行いより正確に(002)回折ピークの現れる φ に調整した。さらに、 $2\theta = 44^\circ \sim 51^\circ$ の範囲で 2θ スキャンを行い検出器の角度を最適化した。最後に、 $2\theta - \theta$ スキャンを行い、(002)回折ピークの現れる 2θ から Bragg の法則を用いて格子状数 a を決定した。

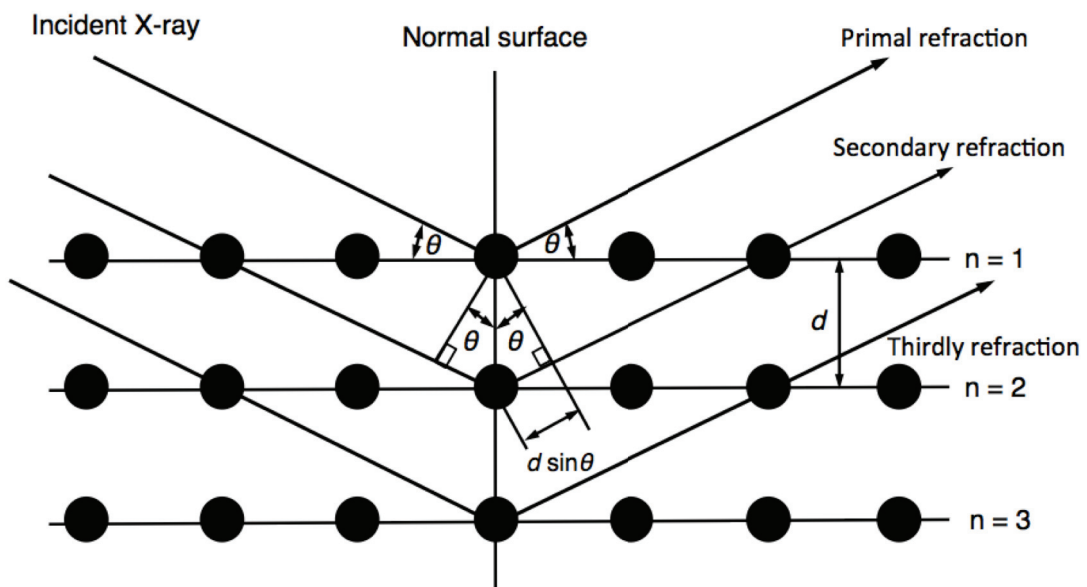


図 2.4 X線回折

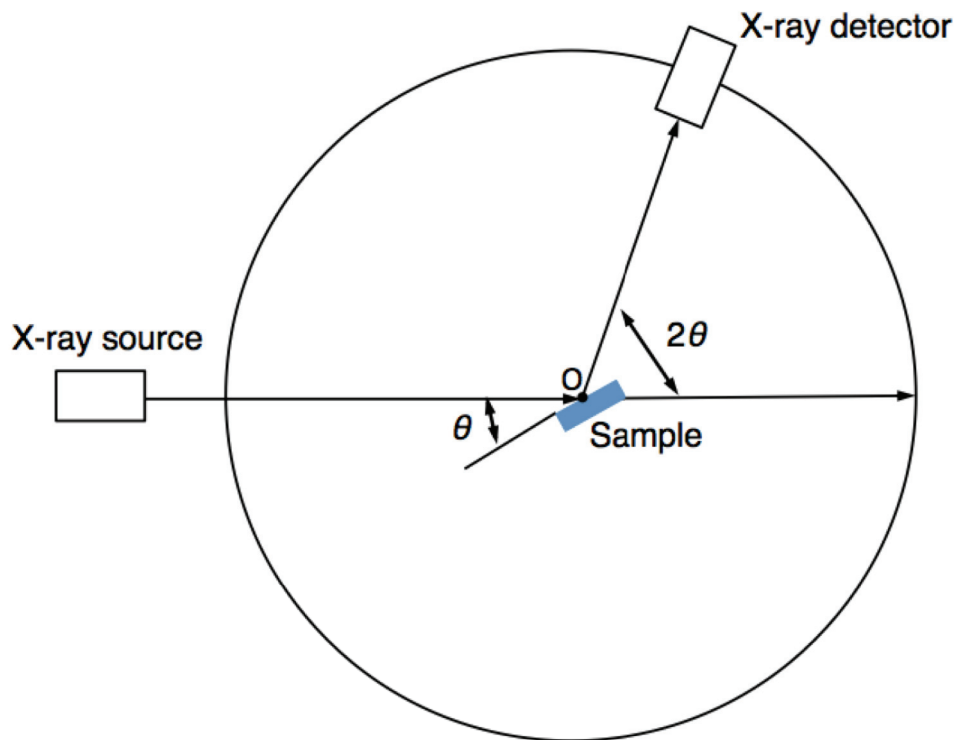


図 2.5 X線回折装置の概略

2.1.3 磁気特性評価

試料の磁気特性評価には超伝導量子干渉型磁束計(Superconducting quantum interference device: SQUID)を用いた。原理は次のとおりである。2つの超伝導体の間に薄い絶縁層を設けたトンネル接合において、超伝導体間の波動関数の位相をそろえようとする効果が働き、超伝導電流が流れる。この現象を Josephson 効果と呼ぶ。また、この接合は Josephson 接合と呼ばれ、Josephson 効果によって流れる電流は Josephson 電流と呼ばれる。Josephson 効果は磁場に対して敏感であることが特徴として知られ、SQUID のような微小な磁束を検出する装置などに応用されている。

SQUID には rf-SQUID と dc-SQUID がある。rf-SQUID には図 2.6 (a)⁵⁴⁾に示すような Josephson 接合1つを有する超伝導リングが用いられる。これにある臨界以上の外部磁場が印加されると、超伝導状態が崩れて接合部で電圧が発生する。リングに臨界近傍の直流磁場を印加し、さらに RF 回路を用いて高周波磁場を印加することにより、リングの超伝導状態の変化、すなわち接合部の電圧変化と交流磁場の共鳴状態を作ることができる。ここに磁化を持った試料を近づけるとリングを貫く磁束が変化するため、このときの共鳴条件の変化を検出することで磁化の測定を行う。一方、dc-SQUID には特性のそろった2つの Josephson 接合を有するリングを用いる(図 2.6 (b))⁵⁴⁾。このリングに超伝導状態が崩れる程度の直流電流を流し、ここに印加される外部磁場の変化を接合部の電圧変化として検出する。一般に、rf-SQUID は外乱に強いが感度が低く、dc-SQUID は外乱に弱いが高感度という特性を持つ。また、試料を素早く正弦的に動かすことにより感度を高めた Reciprocating sample option (RSO) 測定法が存在する。

本実験では、dc-SQUID を用いた磁束計 Quantum Design 社製 MPMS XL7 を使用し、RSO 測定を行なった。本装置は磁束トランスに2次微分型のコイルを用いており、試料に隣接した1次コイルからの磁場の2次勾配直接検出することができる。Josephson 接合を有する超伝導リングに隣接した2次コイルには、1次コイルを貫く磁束に比例した磁束が発生する。

測定試料は約 $3 \times 3 \text{ mm}^2$ に切り出し、体積磁化率が小さいポリエチレンストロー内に充填した。測定は膜面垂直方向と膜面内方向で行った(図 2.7 (a), (b))。測定は室温で行い、 $\pm 70 \text{ kOe}$ の範囲で磁界を印加した。測定データ解析の際は、ストローと基板の反磁性成分を差し引いた。

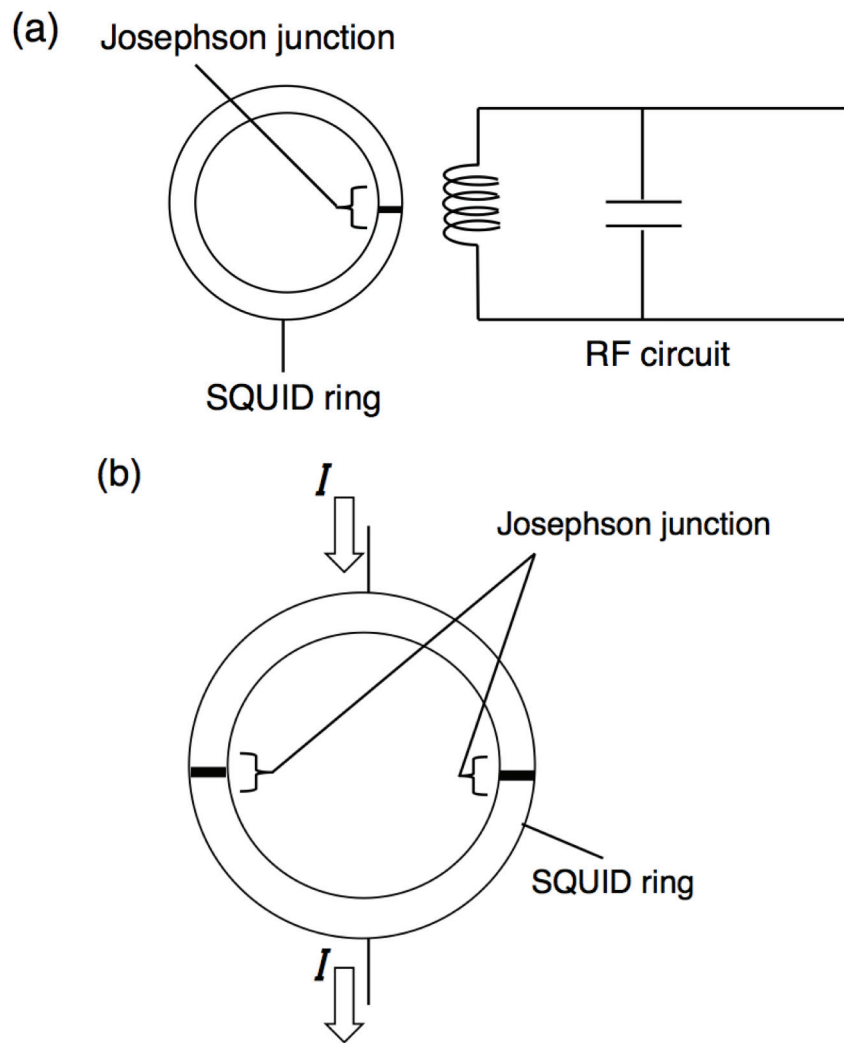


図 2.6 (a) rf-SQUID と (b) dc-SQUID

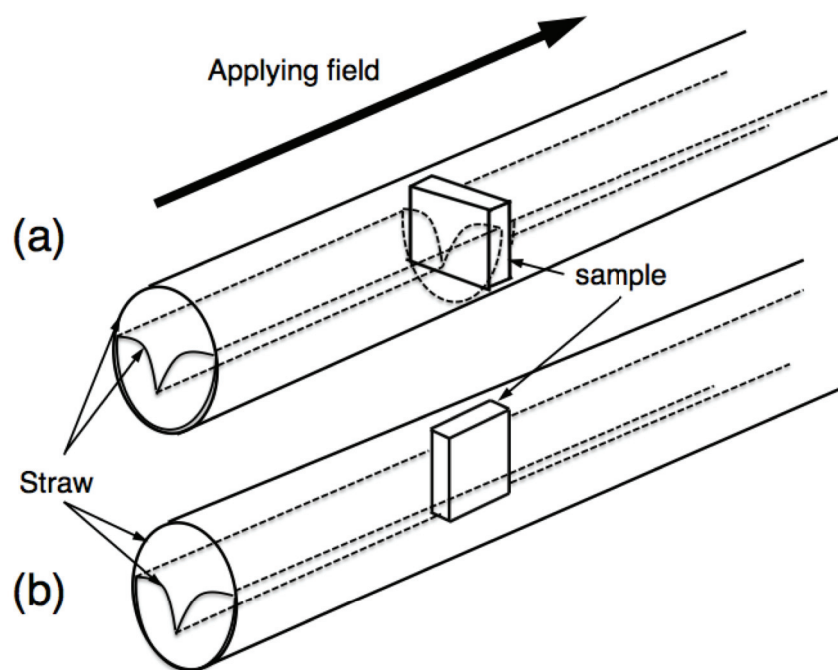


図 2.7 試料をストロー内に充填した様子 (a) 膜面垂直方向での測定
(b) 膜面内方向での測定

2.2 結果と考察

2.2.1 FePt 単層薄膜の結晶構造と磁気特性

膜厚 $t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ の FePt 薄膜の XRD パターンを図 2.8(a), (b), (c)にそれぞれ示す。いずれの試料からも L1₀-FePt (002)基本反射ピークおよび(001)、(003)超格子反射ピークが観察された。このことから、FePt 層が L1₀構造に規則化していること、薄膜面に対して垂直方向に(001)配向していることが確認された。

これら FePt 薄膜の磁化曲線を図 2.9(a), (b), (c)にそれぞれ示す。いずれの試料も 1000 emu/cm^3 程度の飽和磁化を示し、 $t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ においてそれぞれ 2.5、2.6、1.2 kOe の保磁力を示した。 $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ の試料では 30 nm の試料と比較して良好な角形性を有する磁化曲線が確認された。

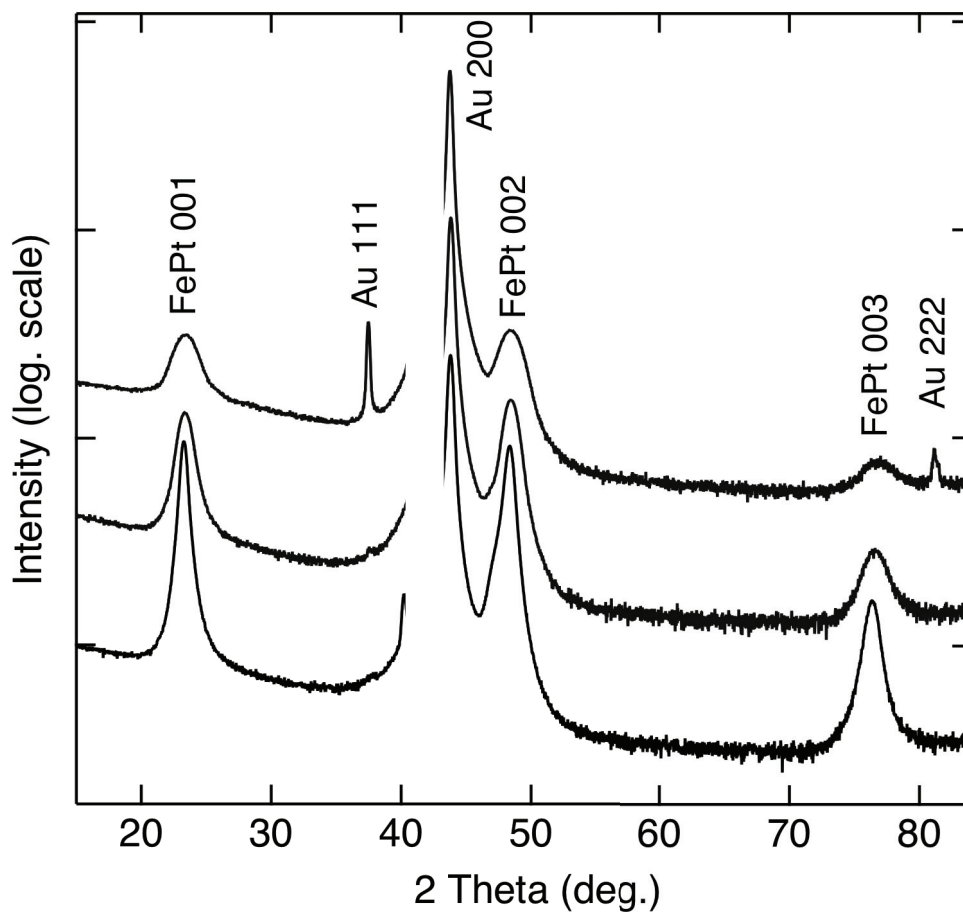


図 2.8 FePt 薄膜の XRD パターン。(a) $t_{\text{FePt}} = 5$ 、(b) 10、(c) 30 nm

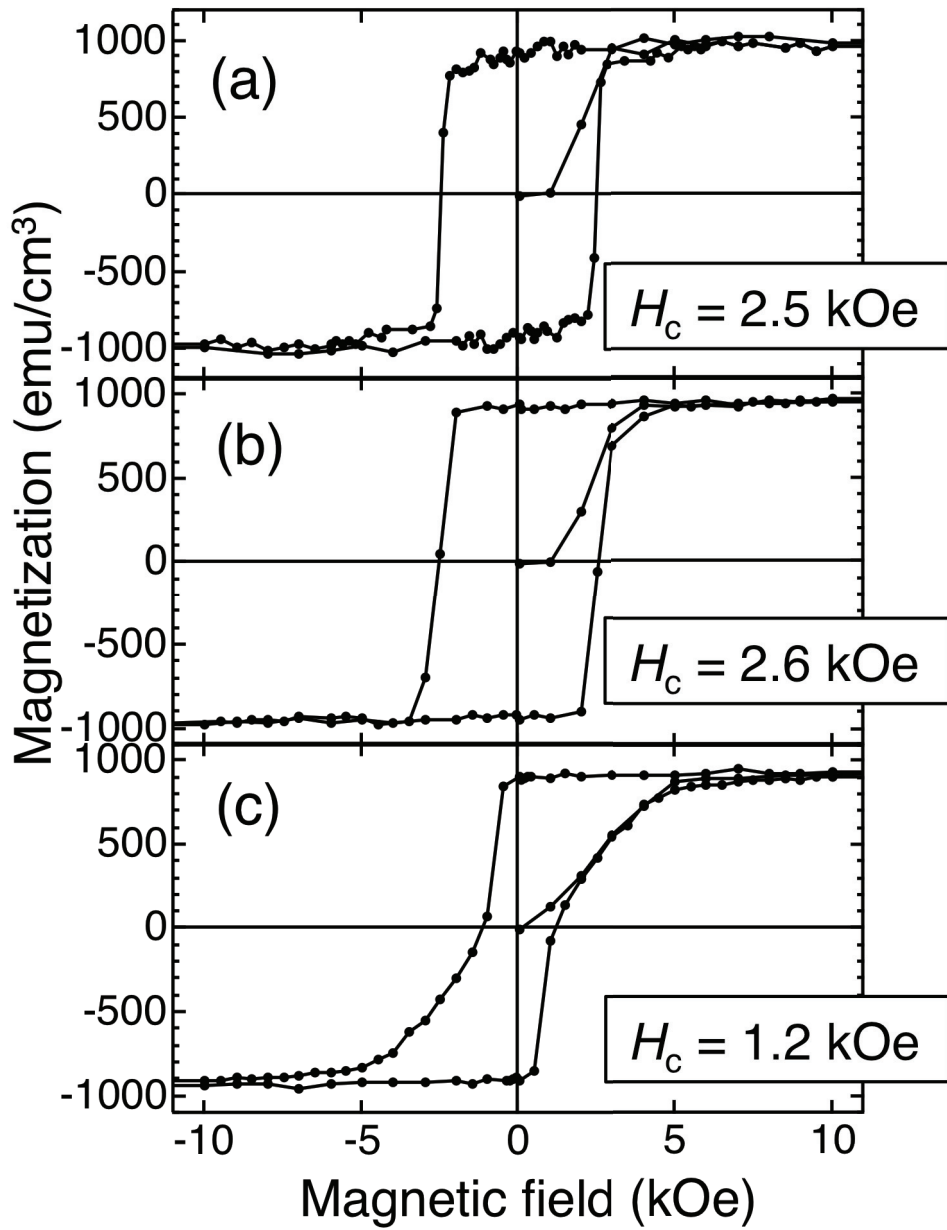


図 2.9 FePt 薄膜の磁化曲線。(a) $t_{\text{FePt}} = 5$ 、(b) 10、(c) 30 nm

2.2.2 FePt/MgO/FePt 薄膜の結晶構造と磁気特性

多値磁気記録媒体には明瞭なステップ形状を有する磁化曲線を示す磁性薄膜が望ましいことから、良好な角形性を有する磁化曲線が確認された膜厚 5、10 nm の FePt 層をもとに FePt/MgO/FePt 多層薄膜を作製した。

$t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の FePt 単層薄膜および MgO 中間層厚 $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}20 \text{ nm}$ とした FePt/MgO/FePt 多層薄膜の XRD パターンを図 2.10(a)および(b)–(f)にそれぞれ示す。いずれの試料からも $L1_0\text{-FePt}$ (002)基本反射ピークおよび(001)、(003)超格子反射ピークが確認された。このことから、単層薄膜のみならず多層薄膜においても FePt 層が $L1_0$ 構造に規則化していること、薄膜面に対して垂直方向に(001)配向していることが確認された。また、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ では $L1_0\text{-FePt}$ (001)ピークが明らかに低角にシフトしていることが確認された。

これら XRD パターンをもとに、次の式から FePt 単層薄膜および多層薄膜の長距離規則度 S を算出した。

$$S = \sqrt{\frac{(I_{001}/I_{002})_{\text{meas.}}}{(I_{001}/I_{002})_{\text{calc.}}}} \quad (2)$$

ここで $(I_{001}/I_{002})_{\text{meas.}}$ は XRD パターンから求めた $L1_0\text{-FePt}$ (001)ピークと(002)ピークの積分強度比、 $(I_{001}/I_{002})_{\text{calc.}}$ はその計算値である。FePt 単層薄膜と $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の多層薄膜においては、 S は 0.85 程度であったが、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ では 0.63 に低下していた。なお、ここで求められる多層薄膜の S は上下の FePt 層の平均値であることを意味する。

t_{MgO} の変化に対する格子定数 a 、 c と軸比 a/c を図 2.11(a)から(c)に示す。 t_{MgO} が増加するにつれ、 a はわずかに上昇する傾向が確認された。一方 c は、 $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の範囲では a の変化とよく似た傾向が確認されたが、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ では大きく増加した。これに伴い、 a/c は $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の範囲ではわずかに変化し、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ で大きく増加した。

この格子定数の変化は、MgO 中間層上に成膜されている上層 FePt に起こっているものと考えられる。MgO の a のバルク値 $a_{\text{MgO}} = 0.4211 \text{ nm}^{55)}$ と $L1_0\text{-FePt}$ の a のバルク値 $a_{\text{FePt}} = 0.3842 \text{ nm}^{56)}$ から、以下の式を用いて格子間不整合 $\Delta a/a$ を算出すると、MgO に対する $L1_0\text{-FePt}$ の格子間不整合はおよそ 10.4% である。

$$\Delta a/a = \frac{a_{\text{FePt}} - a_{\text{MgO}}}{a_{\text{MgO}}} \quad (3)$$

この格子間不整合により MgO 中間層上に成長した上層 FePt に格子歪みが導入されたものと考えられる。さらに、 t_{MgO} が増加したとき MgO 中間層の a も変化した可能性があり、これにより t_{MgO} に対して上層 FePt の格子定数が変化したものと推察される。ま

た、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ の場合は $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の試料よりも低い S が確認されたが、これは上層 FePt の S が低下しており、立方晶に近い構造になっていることが考えられ、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ における大きな c および a/c の増加に起因しているものと思われる。

FePt 単層薄膜および $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}20 \text{ nm}$ の FePt 多層薄膜の磁化曲線を図 2.12(a) および (b)–(f) にそれぞれ示す。塗りつぶしプロットと白抜きプロットは、それぞれ膜面垂直方向と膜面内方向の磁化曲線である。これら磁化曲線から、多層薄膜の下層および上層 FePt の磁化容易軸がどちらも薄膜面に対して垂直であることが確認された。薄膜の一軸磁気異方性定数 K_u を次の式から求めた。

$$K_u = \frac{M_s \times H_k}{2} + 2\pi M_s^2 \quad (4)$$

ここで M_s は飽和磁化、 H_k は異方性磁界、 $2\pi M_s^2$ は反磁界補正の項である。 H_k は膜面垂直方向と膜面内方向の磁化曲線が共に飽和に達する磁界であるが、測定装置の最大印加磁界 $\pm 70 \text{ kOe}$ では膜面内方向の磁化曲線が飽和しなかったため、両磁化曲線を外挿し、その交点を H_k とした。単層薄膜と $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の多層薄膜ではおよそ $4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 、 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ の多層薄膜では $3 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ の K_u が確認された。 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ における K_u の低下は上層 FePt の S が低いことが起因しており、上層 FePt の K_u が低下しているものと考えられる。

$t_{\text{MgO}} = 3\text{--}10 \text{ nm}$ の多層薄膜の磁化曲線からは第 1 象限と第 3 象限に明瞭なステップが確認された。これは下層および上層 FePt の独立した磁化反転を示しており、それぞれの FePt 層が異なる保磁力を有していること、MgO 中間層が FePt 層間の磁気双極子結合を弱めていることを意味する。1 度目と 2 度目に反転した磁化の絶対値の比はおよそ 2 : 1 であり、これは下層、上層 FePt のそれぞれの層厚 10 nm、5 nm に対応している。つまり、下層 FePt が最初に、そして上層 FePt が次に磁化反転していると考えられる。 $t_{\text{MgO}} = 20 \text{ nm}$ では、上層 FePt の減磁曲線がなだらかな形状をしており、ステップが確認されなかった。これは K_u の上層 FePt の低下によるものと思われる。

2 つの FePt 層が異なる保磁力を有している理由として、下地層との格子間不整合の差が考えられる。下層 FePt は Au バッファ層上に、上層 FePt は MgO 中間層上に積層されている。Au の a は FePt との間に % の格子間不整合がある。一方、MgO と FePt の間の格子間不整合は上述の通りおよそ -10.4% である。この格子間不整合の差によりそれぞれの FePt 層に導入される格子歪みに違いが生じ、異なる保磁力が現れたものと推察される。

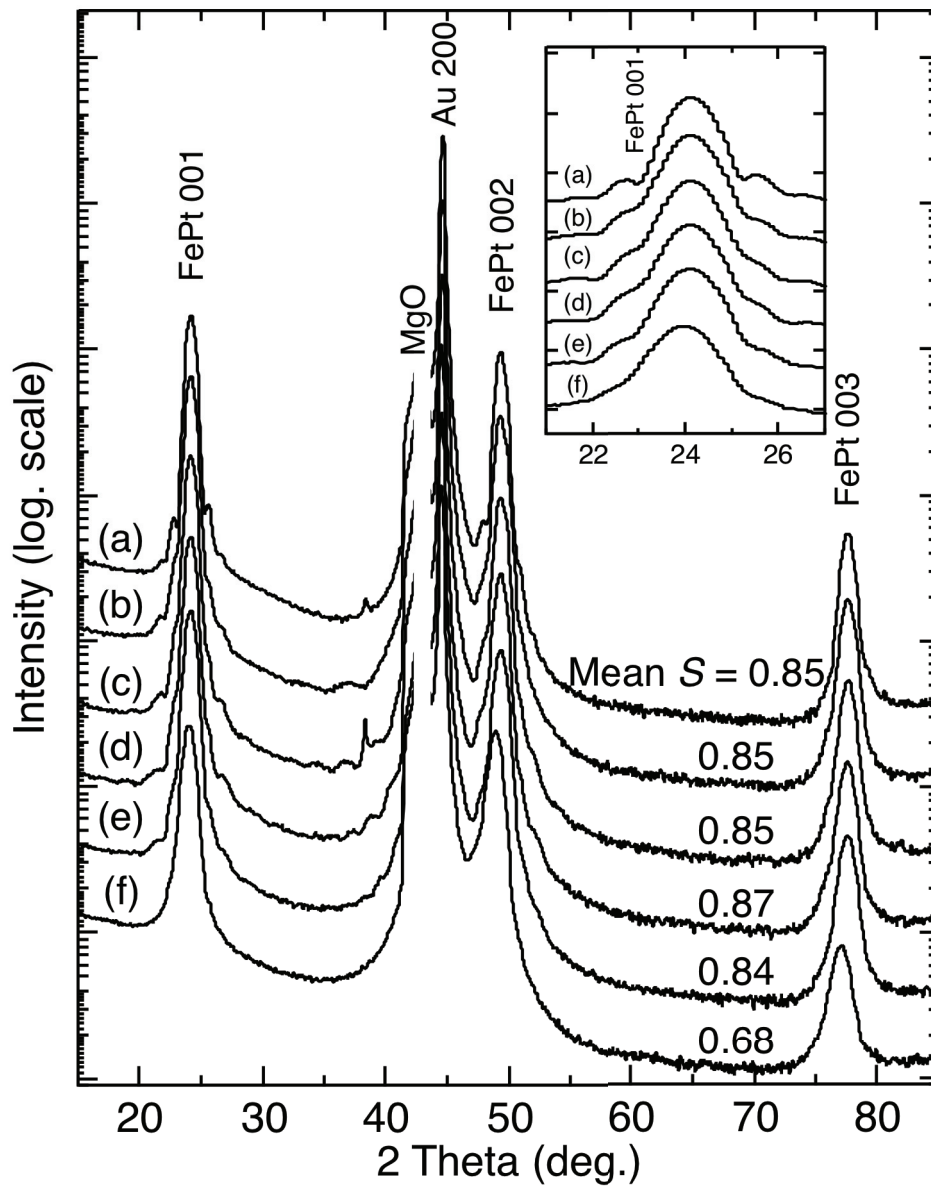


図 2.10 $t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の FePt 単層薄膜および MgO 中間層厚 $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}20 \text{ nm}$ とした FePt/MgO/FePt 多層薄膜の XRD パターン。(a) 単層薄膜、(b) $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ 、(c) 5 nm 、(d) 8 nm 、(e) 10 nm 、(f) 20 nm 。

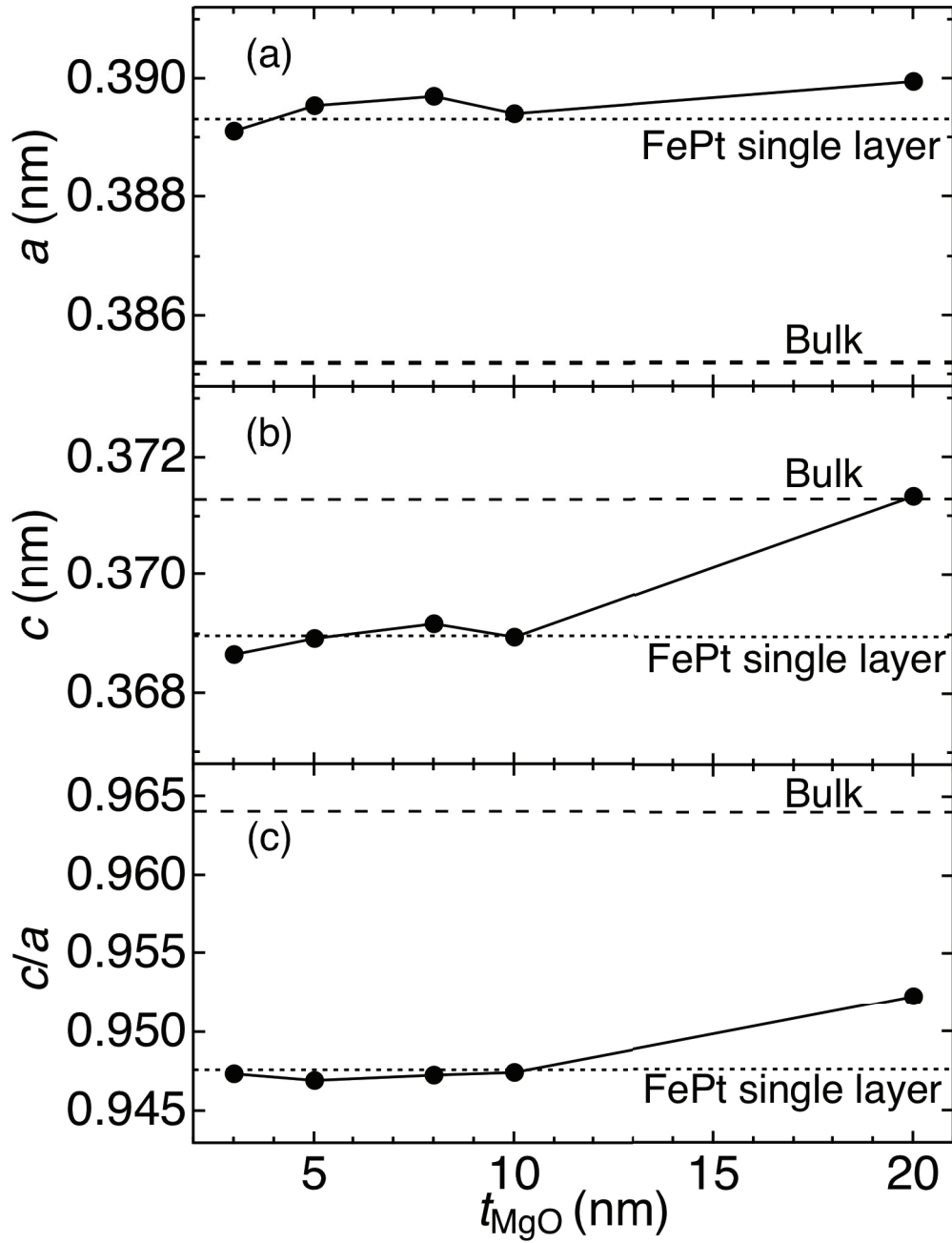


図 2.11 FePt/MgO/FePt 多層薄膜における a 、 c と軸比 a/c の t_{MgO} 依存性。

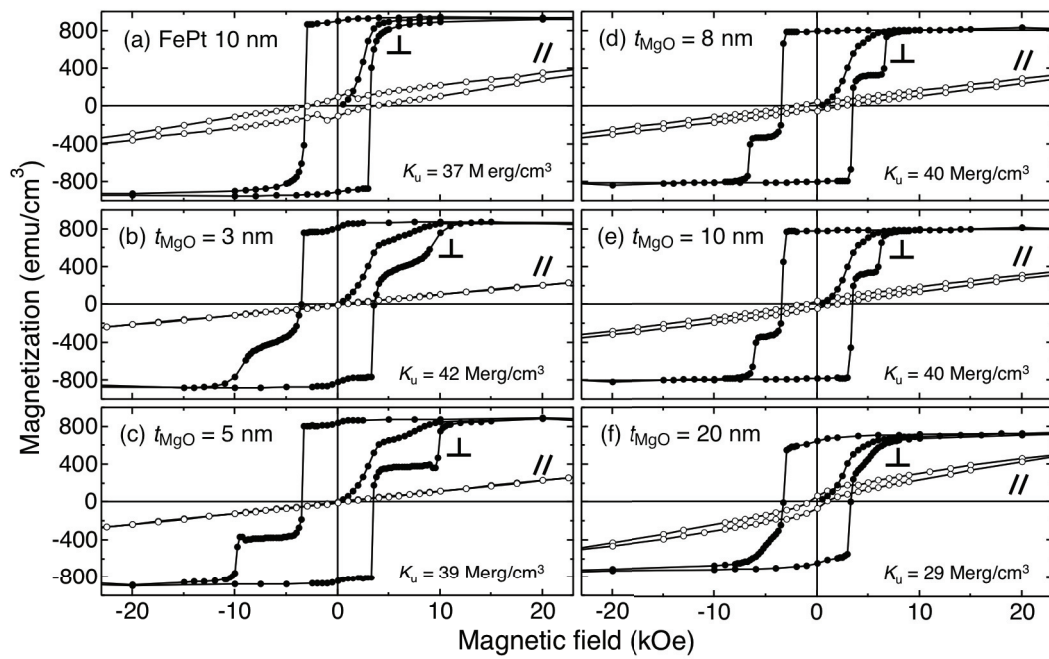


図 2.12 $t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の FePt 単層薄膜および MgO 中間層厚 $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}20 \text{ nm}$ とした FePt/MgO/FePt 多層薄膜の磁化曲線。(a) 単層薄膜、(b) $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ 、(c) 5 nm 、(d) 8 nm 、(e) 10 nm 、(f) 20 nm 。

2.3 小括

膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を作製し、結晶構造と磁気特性を評価した。

- $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ においては良好な角形性を持つ磁化曲線が観察された。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}20 \text{ nm}$ において、(001)配向した FePt 10 nm/MgO/FePt 5 nm 多層薄膜が得られた。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}10 \text{ nm}$ において、磁化曲線から磁性層の独立した磁化反転を示すステップが確認された。

参考文献

- 52) 日本学術振興会薄膜第 131 委員会編、「薄膜ハンドブック(第 2 版)」、オーム社 (2008)
- 53) B. D. CULLITY、松村源太郎 訳、「新版 X 線回折要論」、アグネ社 (1988)
- 54) JC GALLOP, “SQUIDS, the Josephson Effects and Superconducting Electronics”, Adam Hilger (1991)
- 55) N. G. Schmahl, J. Barthel, and G. F. Eikerling *Z. Anorg. Allg. Chem.*, 322, 230 (1964)
- 56) A. Menshikov, T. Tarnoczi, and E. Kren, *Phys. Status Solidi A*, **28**, K85 (1975)

第 3 章 FePt 単層薄膜および FePt/MgO/FePt 多層円形ドットの作製と磁気特性

微小サイズにおける FePt 単層および FePt/MgO/FePt 多層円形ドットの磁気特性を明らかにするために、これら薄膜を電子線リソグラフィ装置および Ar イオンエッチング装置を用いて円形ドット配列パターンに微細加工し、ドットの形状評価、磁気特性評価を行った。

3.1 実験方法

FePt 単層および FePt/MgO/FePt 多層円形ドットの微細加工方法、評価方法について説明する。

3.1.1 電子線リソグラフィ

電子ビームによる描画は、パターンの位置と形状を表すデータをもとに、収束されたビームの位置、形状、電子ビーム強度などをコンピュータで制御してパターンを作り出す。収束したビームでパターンを描画する基本的な方法は、テレビで使われているように二次元像を一次元像片の逐次描画によって描き出すことである。この方法で全てのパターンを描画できるが、二次元情報を一次元情報で伝達するため、パターンの数が多くなると時間がかかる。描画時間を短縮する方法として、描画すべき所のみを描画に適した方向に走査するベクタ走査方式や、矩形成形したビームスポットをパターンによって様々な大きさに変えることによりパターン情報を多くの割合で並列に描画面上に伝える可変形状方式がある。現在、解像性とスループットを考慮して 50 kV の加速電圧を有する可変形状方式、ベクタ走査方式の描画装置が一般的に使用されている。

リソグラフィとしては、基本的に基板上に塗布されたレジストに電子ビームを照射してから現像することによりなされる。レジストには通過する際に生じる 2 次電子が主として露光反応（感光）に関与する。

本実験では、パターンの描画に ELIONIX 社製の ELS-7500 を使用した。構成の概略を図 3.1 に示す。本装置は極細線描画、高精度高安定位置決め、高速広域描画等の特徴を備えている。電子ビーム径を最小に収束させることで最小線幅 10 nm のパターンの描画が可能であり、18 ビット DAC により最高 0.31 nm のビーム位置決め精度とレーザー干渉計により 0.6 nm のステージ位置読み取り精度を実現している。高精度の描画を実現するため、本装置はクラス 100 以下のクリーンブース内に設置されている。また、建物には免震床構造が導入されており、さらに装置に組み込まれたアクティブ除

震台及びパーマロイの磁気シールドにより振動・騒音・磁場等の外部環境の影響を低減させるよう配慮した。また、紫外線に敏感なレジストの感光を防ぐため、照明には紫外線吸収膜貼付け蛍光灯を使用し、窓ガラスには紫外線カットフィルムを装着した。

3.1.2 Ar イオンエッチング

描画されたパターンのエッチングには ULVAC 社製の Ar イオンエッチング装置を用いた。構成を図 3.2 に示す。

本装置は Kauffmann 型イオンソースを搭載している。Kauffmann 型イオンソースは高熱加熱された陰極フィラメントから放出された熱電子が Ar 等の原子・分子に衝突すると電離し、プラズマが発生する。これに電位勾配をつけると正に停電したイオンのみを引き出すことができ、それがイオンビームとなる。イオンが試料表面に衝突することでエッチング反応が起こる。

本装置は試料ステージ回転機構を有しており、さらに任意のイオン入射角度を付けることが可能である。

本研究では、エッチングにおけるビーム電圧は 400 V、ビーム電流は 0.21 ~ 0.24 mA とした。エッチングの際、Ar イオンビームを薄膜面に対して垂直方向 (0°) に入射して 30 ~ 90 秒間、その後、エッチングされた物質のドット側面への再付着を軽減するため、入射角度を 20° に変化させ、10 ~ 30 秒間エッチングを行った。

3.1.3 微細加工手順

本実験における微細加工手順を以下に示す(図 3.3)。

1. 薄膜試料をアセトンに浸し、周波数 100 Hz で 3 分間の超音波洗浄を行った。
2. 試料をスピンドーターに設置し、OAP 60 μ l を回転速度 1000 rpm で 30 秒間回転させて塗布した。
3. 次にネガレジスト TGMR 3.6 cp を回転速度 6000 rpm で 60 秒間回転させて塗布した。
4. 120°C で 90 秒間のプレバークを行った。
4. 電子ビームリソグラフィ装置でドットパターンの描画を行った。試料をステージに設置するとき、試料のチャージアップを防ぐためにカーボン製の導電テープで接地した。
5. TGMR 3.6 cp の場合、描画後、120°C で 90 秒間のポストバークを行った。
6. NMD 溶液に 30 - 60 秒間曝し現像を行い、イオン交換水で 1 分間すすいで自然乾燥させレジストマスクを形成させた。
7. Ar イオンエッチング装置でエッチングを行った。試料をステージに設置する際、チ

ャージアップを防ぐために導電テープで接地した。

8. 試料をピロリドン溶液に浸し、超音波洗浄によりレジストを除去した。

Mn-Ga 薄膜の場合は、酸化防止層がエッチングによって除去されてしまうため、エッチング後に試料を大気暴露せずに成膜室に搬送し、新たな酸化防止層として Au または Cr を 5 nm 成膜した。その後再びエッチング室に搬送し、レジストを覆った酸化防止層を除去するためにイオンビーム入射角 85°でエッチングを行なった。

3.1.4 ドット試料形状観察

本実験では、微細加工によって作製されたドット試料の形状観察に原子間力顕微鏡 (Atomic force microscope: AFM) を用いた。

AFM は、探針先端と試料表面との間に働く原子間力をカンチレバーと呼ばれる板ばねの変位から測定し、探針を試料表面に沿って走査することで表面形状を観察する装置である。一般に、近接する 2 つの物体間には原子間力が作用するため、AFM には測定する試料に対する制約が存在しない。そのため、走査型トンネル顕微鏡 (Scanning tunneling microscope: STM) では測定が困難な絶縁体の表面形状、液中試料等の観察が可能である。

AFM には、探針を試料表面に直接接触させて観察するコンタクトモードと、カンチレバーを共振させて観察するダイナミックフォースモード (DFM) がある。

(1) コンタクトモード

探針と試料を微小な力で接触させると、探針と試料の間に力が作用しカンチレバーが上下にたわむ。このたわみ量が一定になるように、探針と試料間の距離をフィードバック制御しながら走査することで試料の表面形状を観察する手法がコンタクトモードである。

カンチレバーのたわみ信号は光てこ方式により検出される。カンチレバー背面に照射した半導体レーザーの反射光を、4 または 2 分割のフォトダイオードで検出する。カンチレバーがたわむと反射光の角度が変化し、フォトダイオードの上下の領域光起電力に差が生じる。この起電力の差が無くなるように試料ステージを上下させることで、試料表面の形状を観察することができる。

コンタクトモードは測定が容易に行えるという利点があるが、測定試料が柔らかい場合などは接触時の力や摩擦などが原因となり試料が損傷する可能性がある。

(2) ダイナミックフォースモード (DFM)

接触型のコンタクトモード AFM に対して、カンチレバーを共振させることから、DFM は共振モード AFM とも呼ばれる。DFM には探針を試料表面に周期的に接触させるサイクリックコンタクトモードと、探針を試料表面に接触させないノンコンタクトモードの 2 種類がある。サイクリックコンタクトモードは主に表面形状観察や位相測定に使用され、ノンコンタクトモードは磁気力顕微鏡 (Magnetic force microscope: MFM) 等に応用されている。コンタクトモードとは異なり、試料表面へのダメージを最小限に抑えられるため、柔らかな試料表面を観察することができる。

DFM では、カンチレバーを機械共振周波数で上下方向に共振させる。探針と試料の間に力が作用するとカンチレバーの振幅が変化する。この振幅の変化量を光てこ方式で検出し、振幅が一定になるように探針と試料間の距離をフィードバック制御しながら走査することで、表面形状を得ることが可能である。

本実験では、SII テクノロジー社製、SPA-400 を使用して観察を行った。AFM は観察する試料表面の静電気に敏感であり、ノイズまたはアプローチができていないなどの問題が生じる場合がある。そのため、測定前に静電気除去装置により試料表面の静電気を取り除く作業を行い、コンタクトモードで測定を行った。

3.1.5 磁気特性評価

本実験では、微細加工によって作製されたドット試料の磁気特性評価に Kerr 効果測定装置 (μ -Magneto-optical Kerr effect: μ -MOKE) を用いた。

一般に、物質に直線偏光を斜めに入射すると反射光は楕円偏光になり、その主軸の方向が入射光の偏光の方向から回転する。等方性の物質に光を垂直に入射した場合はこのような現象は起きないが、物質が磁化を持っていると直線偏光を垂直入射したとき主軸の向きが入射直線偏光の向きから傾いた楕円偏光が反射してくる。これが磁気光学 Kerr 効果である。この場合の磁気旋光角をカー回転角、楕円偏光の短軸と長軸の比をカー楕円率という。この 2 つの符号は、磁化の方を逆にすると逆転する。磁気光学カー効果は、強磁性体やフェリ磁性体のように巨視的な磁化を持つ物質においてのみ観測される。これは、光と磁化の相互作用の距離が光の侵入長程度なので磁化の大きな物質でないと観測できないためである。室温で磁化を持つ磁性体のカー回転角は、一般にはせいぜい 1° 程度である。

磁気光学 Kerr 効果には図. 2.14 に示すように 3 種類のものがある。

(1) 極 Kerr 効果 (Polar Kerr effect)

反射面の法線方向に平行に磁化がある場合に観測される。この効果は光の波数ベクトルと磁化ベクトルのスカラー積に比例するので、垂直入射の場合に最も大きな値を示す。光磁気ディスクの再生に用いられる。

(2) Kerr 効果 (Longitudinal Kerr effect)

子午線 Kerr 効果 (Meridian Kerr effect) とも呼ばれる。磁化が反射面内にあつて、かつ、入射光と反射光の反射面への射影に対して平行に磁化がある場合に観測される。この効果は入射角に強く依存し、垂直入射では観測されない。超薄膜の表面磁化のその場観察に用いられる SMOKE (Surface magneto-optical Kerr effect) はこの効果を利用している。

(3) 横 Kerr 効果 (Transverse Kerr effect)

赤道 Kerr 効果 (Equatorial Kerr effect) とも呼ばれる。磁化が反斜面内にあつて、かつ、入射光と反射光の反射面への射影に対して垂直に磁化がある場合、磁気旋光や磁気円二色性などの偏光の変化を伴わず、反射光強度が磁化の向きと大きさに応じて変化する。そのため、検光子なしに磁気光学効果の測定ができるという特徴を持つ。

本実験では、ネオアーク社製の磁気光学 Kerr 効果測定装置本装置を使用した。本装置は極 Kerr 効果を利用し磁性薄膜試料の膜面垂直方向の磁化過程を検出・測定するものである。1.5~2.0 μm の最小測定スポット径を持ち、マイクロオーダーの微小な領域での測定が可能である。

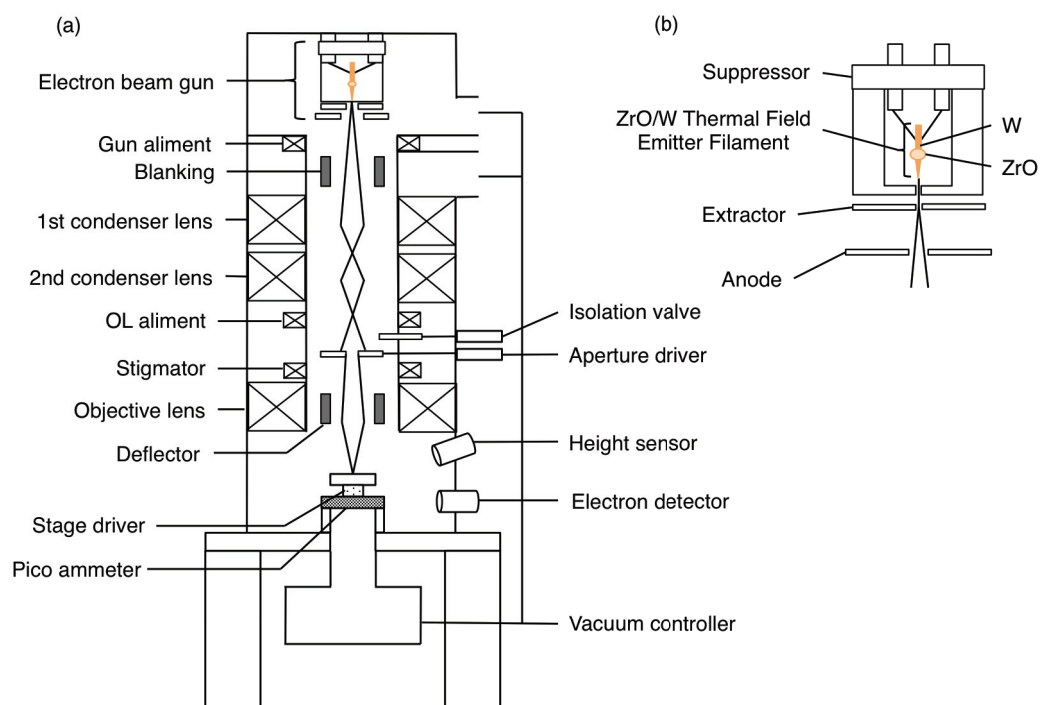


図 3.1 電子線描画装置の構成。(a)全体の構成、(b)電子銃。

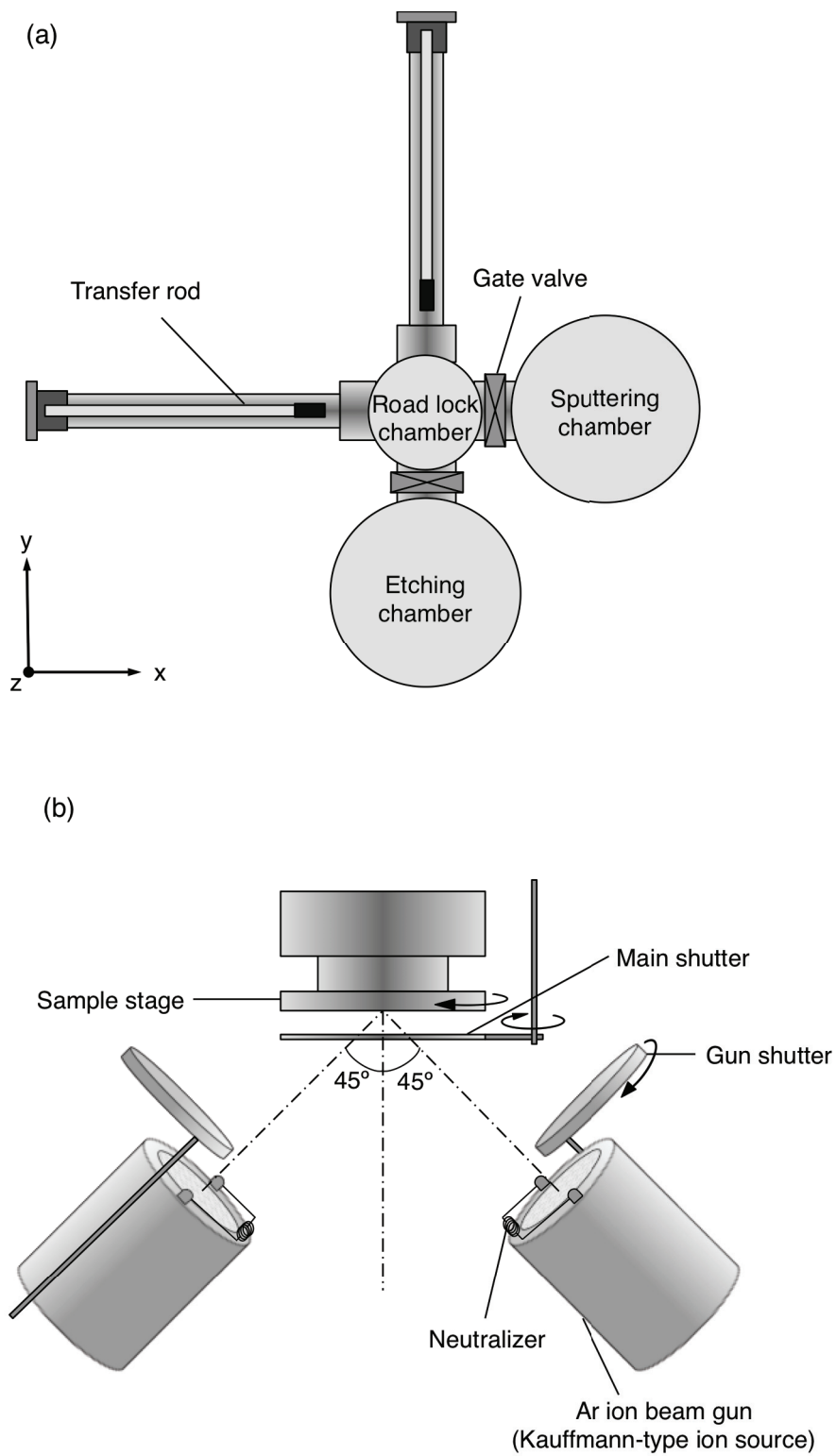


図 3.2 Ar イオンエッチング装置の構成。(a)チャンバーの構成、(b)ステージとイオンガンの構成。

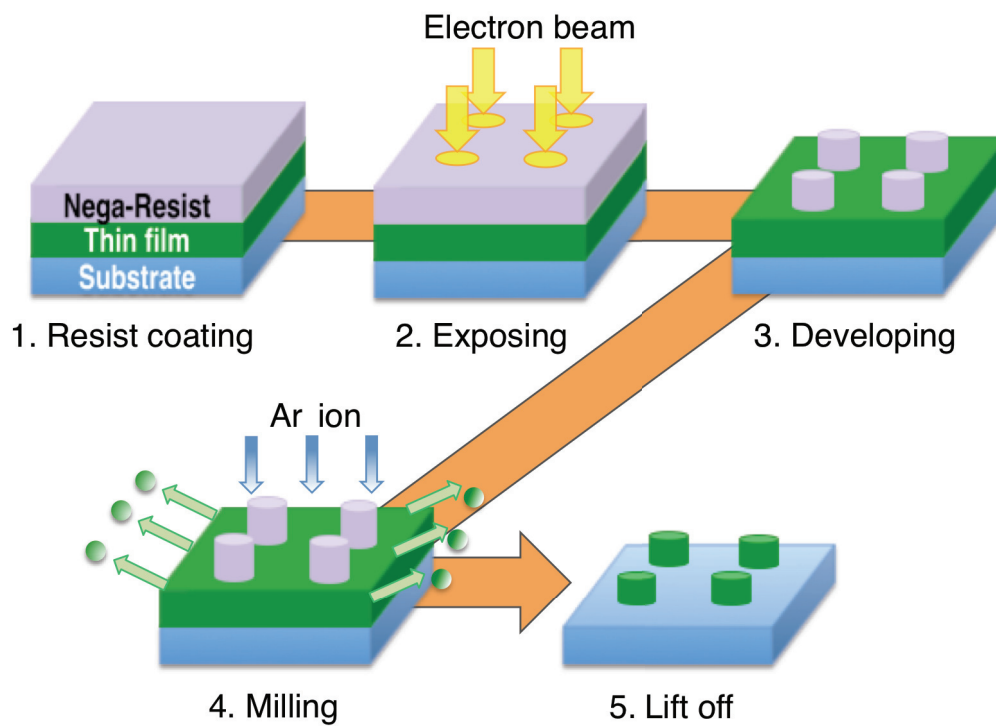


図 3.3 ドットパターンの微細加工手順

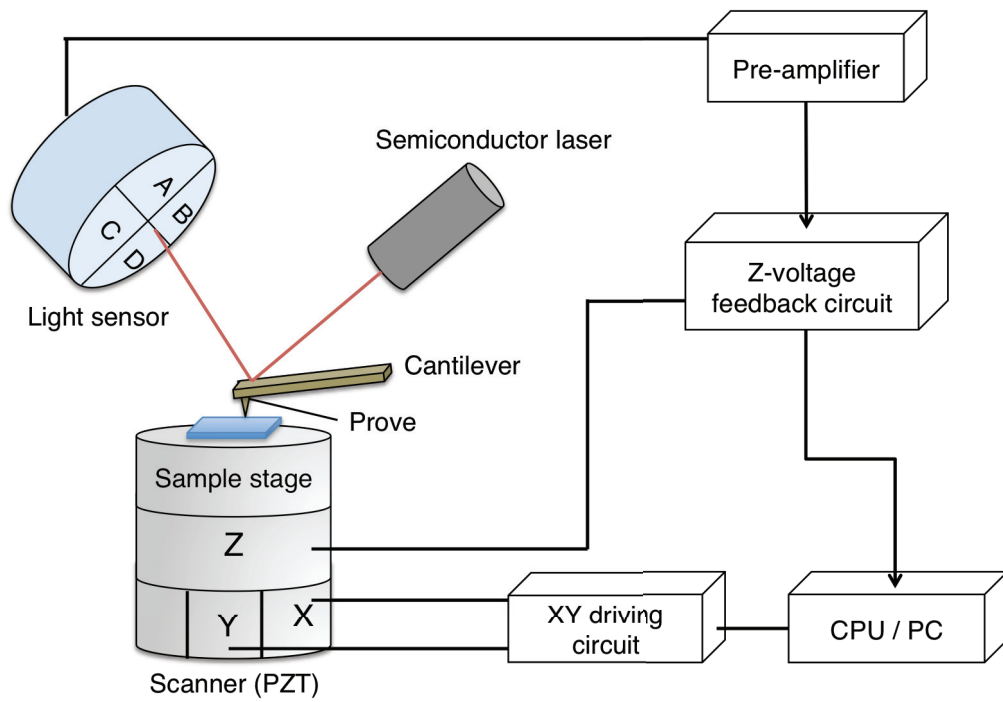


図 3.4 AFM の構成

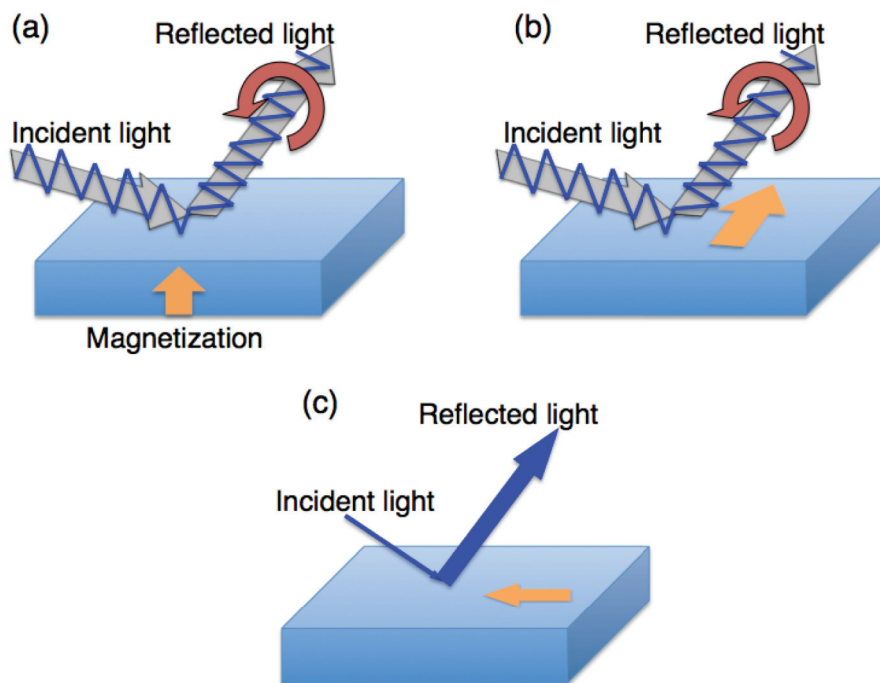


図 3.5 MOKE の原理 (a)極 Kerr 効果、(b)縦 Kerr 効果、(c)横 Kerr 効果

3.2 結果と考察

3.2.1 FePt 単層ドットの磁気特性

$t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ の FePt 薄膜を、それぞれ直径 $D = 2-0.1 \mu\text{m}^\phi$ 、 $D = 2-0.4 \mu\text{m}^\phi$ 、 $D = 2-0.4 \mu\text{m}^\phi$ のドットパターンに微細加工した。その中から、AFM により観察した代表的なドットの形状像を図 3.6 に示す。(a)、(b)、(c)、(d) はそれぞれ $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ の $D = 2 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ の $D = 1 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の $D = 0.5 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ のドットを示している。全ての t_{FePt} 、 D において良好な円形の形状が観察された。断面図からは FePt 層を分断する深さまでエッチングされていることが確認された。

$t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線を図 3.7(a)-(g) に示す。 $H_c = 3.3 \text{ kOe}$ の連続薄膜を $D = 2 \mu\text{m}^\phi$ のドットに微細加工することにより $H_c = 7.6 \text{ kOe}$ まで増加し、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ まで減少させるにつれ H_c はさらに上昇した。 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ では 12.6 kOe の H_c が確認された。しかしながら、 $D = 0.2, 0.1 \mu\text{m}^\phi$ に減少させると H_c が低下する結果となった。これは微細加工におけるエッチングによるドットへのダメージが磁気異方性を低下させ、小さな体積のドットの場合はこれが大きく影響したことから H_c の低下につながったものと考えられる。 $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ (図 3.8(a)-(e))、 10 nm (図 3.9(a)-(e)) の場合も連続薄膜ドットパターンの微細加工および D の減少により H_c の増加が認められた。

エッチングによるダメージを回復させることを狙いとし、 $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ のドットに熱処理を施した結果を図 3.10(a)-(g) に示す。 $D = 2-0.3 \mu\text{m}^\phi$ では H_c に大きな変化が見られなかったが、 $D = 0.2 \mu\text{m}^\phi$ では、 H_c が 8.1 kOe から 10.3 kOe に、 $D = 0.1 \mu\text{m}^\phi$ では、 10.2 kOe から 12.2 kOe にそれぞれ増加した。この結果から、ドットの熱処理によりエッチングのダメージが回復することが確認された。

H_c の D 依存性を図 3.11 に示す。赤、青、黒の塗りつぶしプロットはそれぞれ $t_{\text{FePt}} = 5, 10, 30 \text{ nm}$ のドット、赤の白抜きプロットは $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の熱処理後のドット、赤、青、黒の点線は微細加工前の連続薄膜の H_c を示している。どの t_{FePt} においても連続薄膜から微細加工することにより、特に $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ で大幅な H_c の増加が見られた。 $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ においては、 $D = 0.5 \mu\text{m}^\phi$ 付近から H_c が急激に上昇し、両者とも $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ で 12 kOe 以上の同程度の H_c まで増加した。 $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の熱処理後の H_c は、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ 以下からは増加が確認されなかった。L1₀-FePt の臨界単磁区粒径が 340 nm であることを考えると、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ で H_c の増加が止まったのはドットが単磁区構造を有しているからであると考えられる。

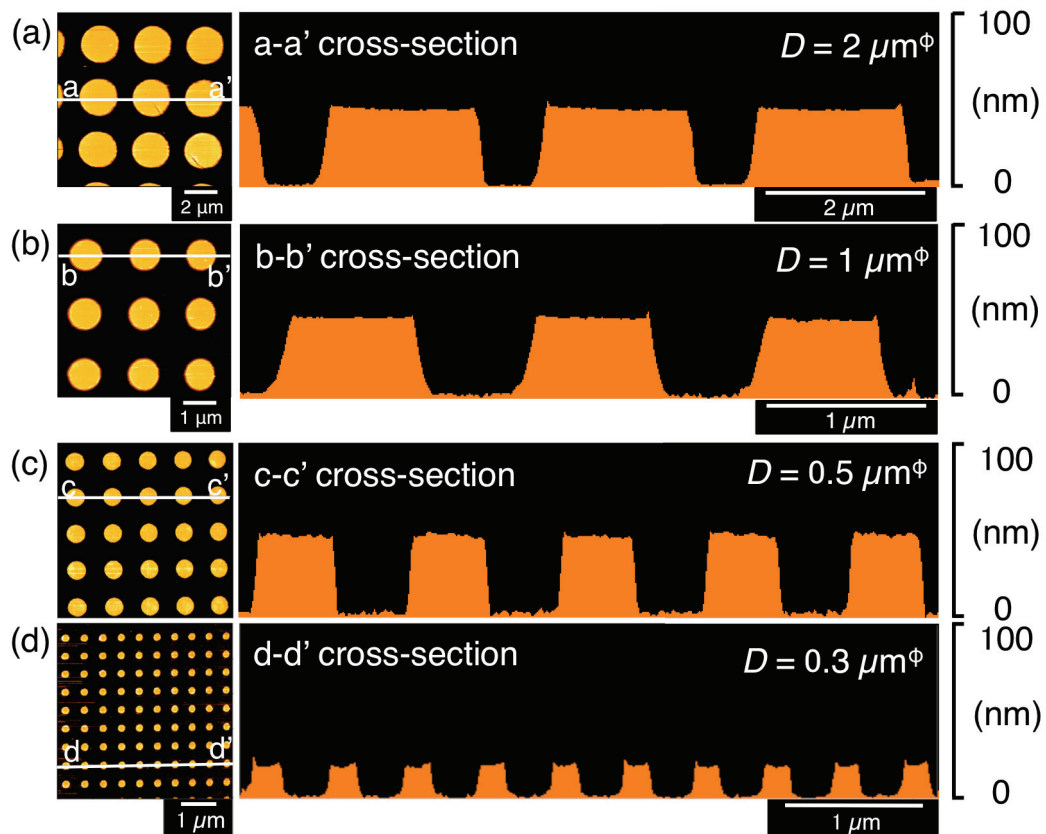


図 3.6 FePt 単層ドットの AFM 像。(a) $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ の $D = 2 \mu\text{m}^\phi$ 、(b) $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ の $D = 1 \mu\text{m}^\phi$ 、(c) $t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の $D = 0.5 \mu\text{m}^\phi$ 、(d) $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ 。

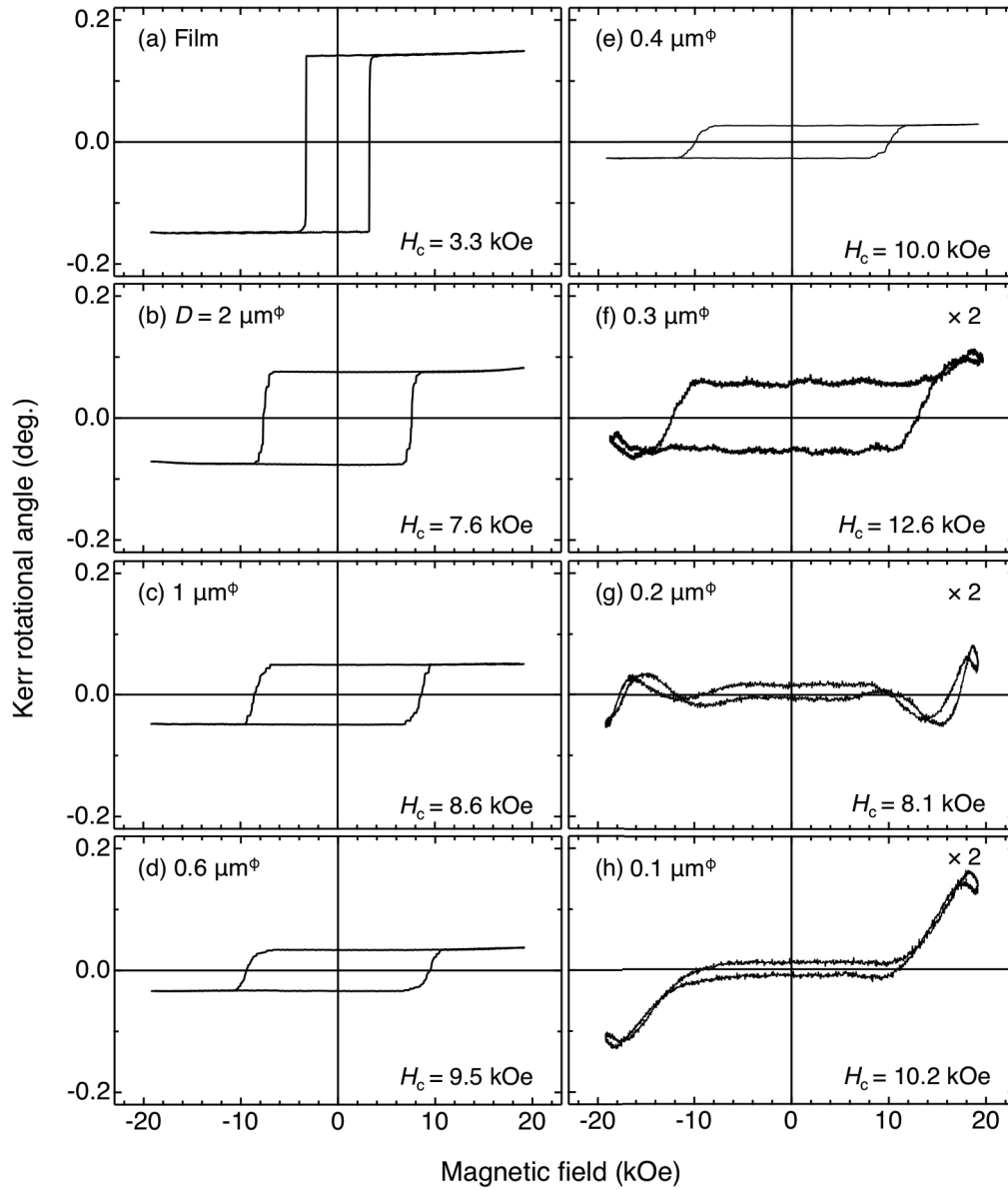


図 3.7 $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 2 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $0.6 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.4 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.2 \mu\text{m}\phi$ 、(h) $0.1 \mu\text{m}\phi$

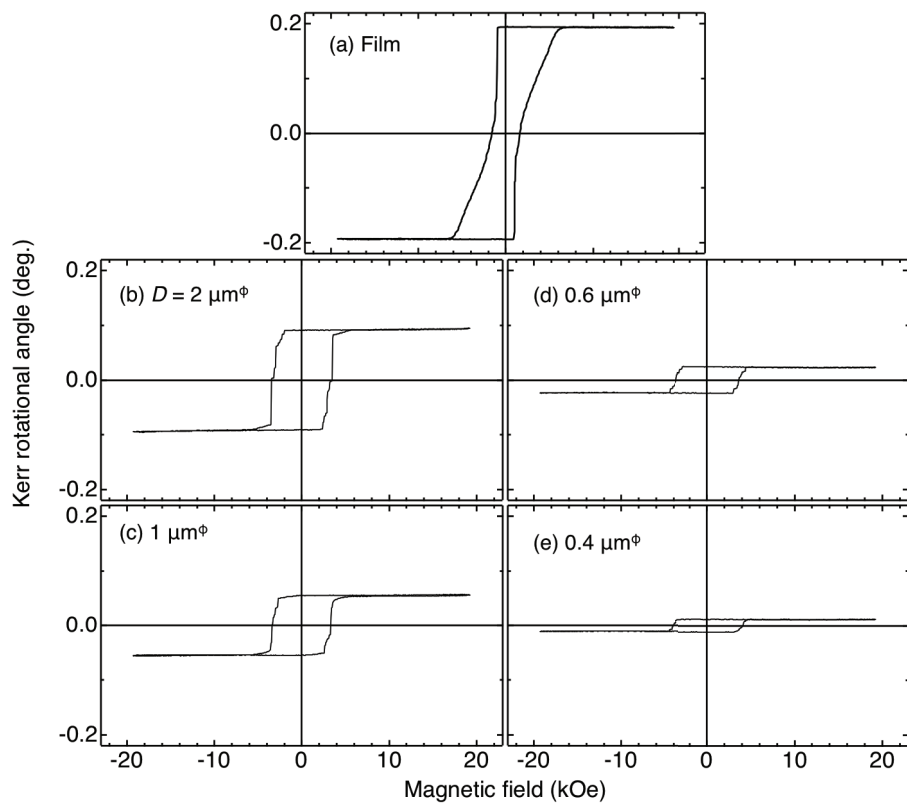


図 3.8 $t_{\text{FePt}} = 30 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 2 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $0.6 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.4 \mu\text{m}\phi$ 。

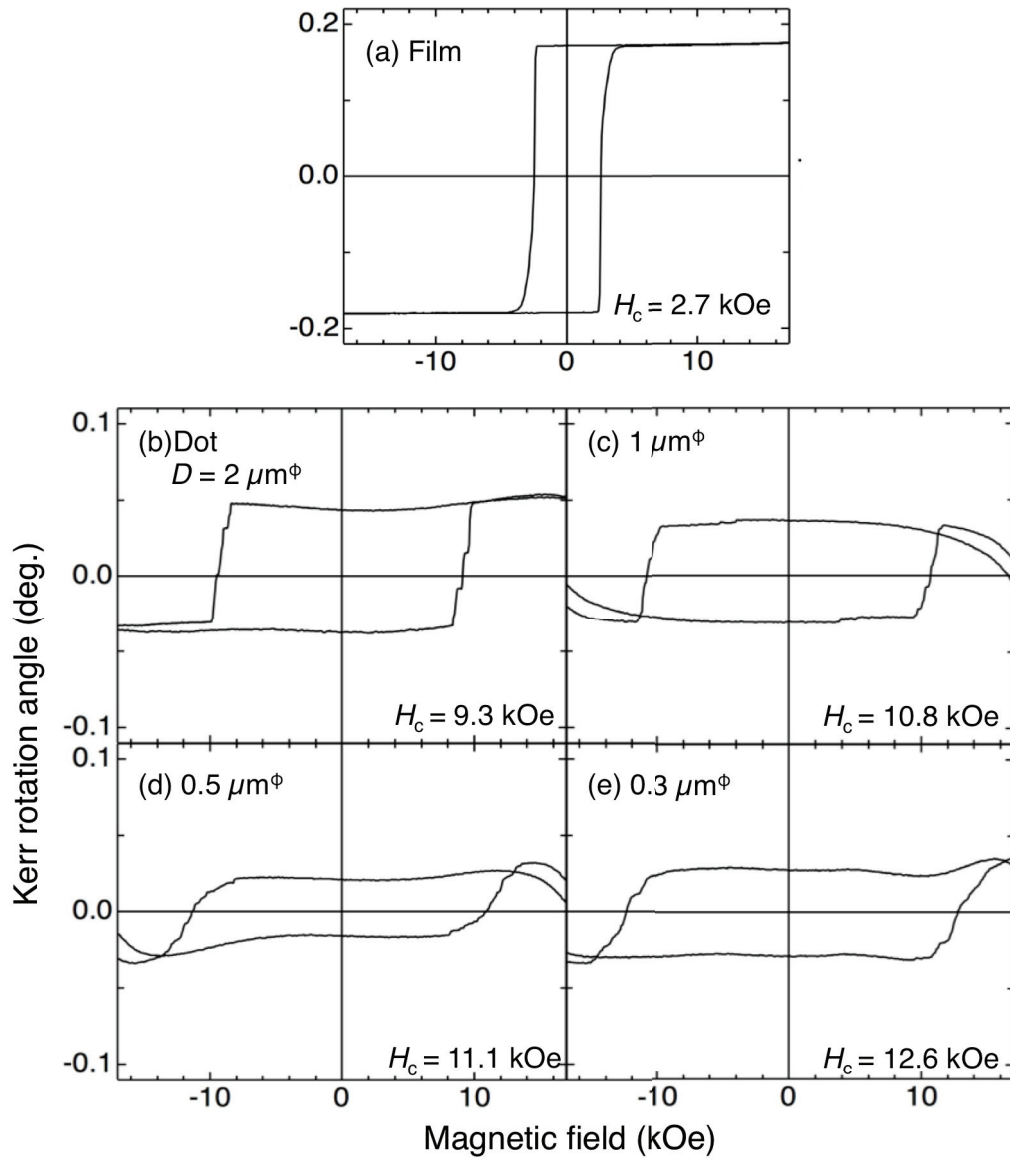


図 3.9 $t_{\text{FePt}} = 10 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 2 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $0.5 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 。

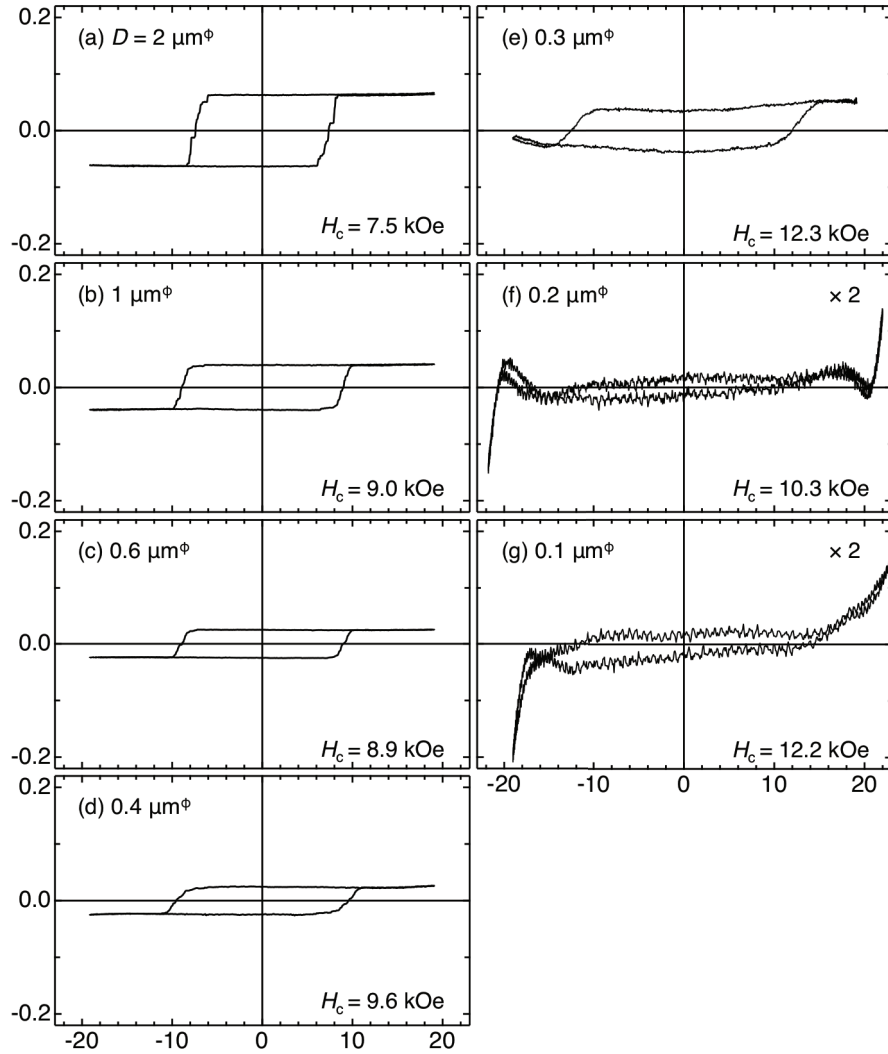


図 3.10 熱処理後の $t_{\text{FePt}} = 5 \text{ nm}$ のドットパターンの MOKE 曲線。(a) $D = 2 \mu\text{m}\phi$ 、(b) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $0.6 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $0.4 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.2 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.1 \mu\text{m}\phi$

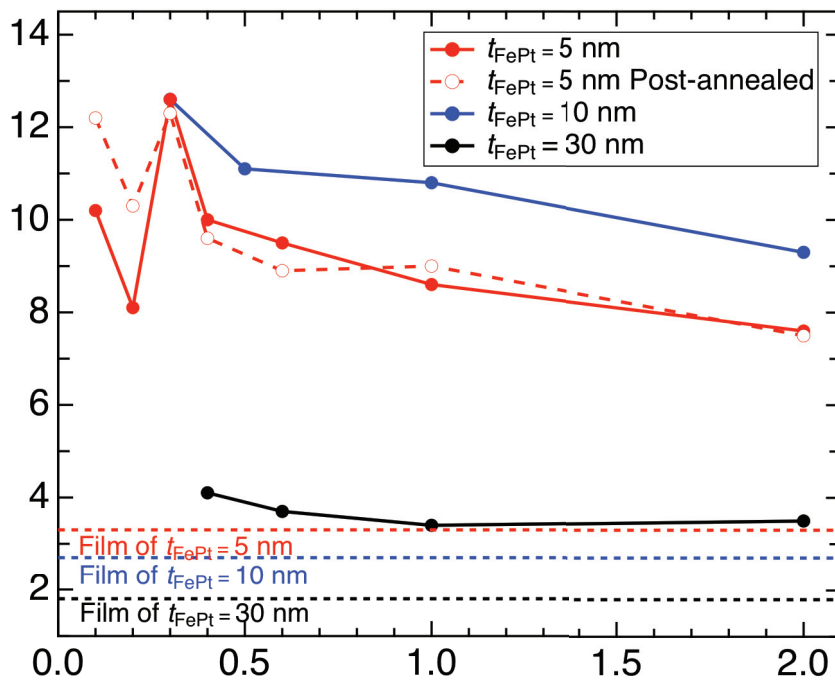


図 3.11 FePt 単層ドットにおける H_c の D 依存性。

3.2.1 FePt/MgO/FePt 多層ドットの磁気特性

$t_{\text{MgO}} = 3, 5, 8, 10 \text{ nm}$ の FePt/MgO/FePt 多層薄膜を微細加工し、 $D = 3, 2, 1, 0.8, 0.7, 0.5, 0.3 \mu\text{m}^\phi$ のドットパターンを作製した。その中から、AFM により観察した代表的なドットの形状像を図 3.12 に示す。(a)、(b)、(c)、(d)はそれぞれ $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の $D = 1 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{MgO}} = 5 \text{ nm}$ の $D = 0.7 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ nm}$ の $D = 0.5 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ の $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ のドットを示している。全ての t_{MgO} 、 D において良好な円形の形状が観察された。断面図からは 50 nm 程度のドット高が観察され、下層 FePt を完全に分断する深さまでエッチングされていることが確認された。

$t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線を図 3.13(a)–(h)に示す。連続薄膜では SQUID で測定した磁化曲線と同様に、上下の FePt 層の独立した磁化反転を示すステップが現れた。ドットパターンに微細加工後、 $D = 1 \mu\text{m}^\phi$ を除くドットにおいてはステップが確認されなかった。これは上下の FePt 層が同時に磁化反転を示している。 $t_{\text{MgO}} = 5, 8 \text{ nm}$ の場合(図 3.14, 3.15)は $D = 3\text{--}0.5 \mu\text{m}^\phi$ においてステップが見られたが、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ まで減少させるとステップは消失した。 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ に増加させると(図 3.16)、 $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ においてもステップが現れた。

膜厚 10 nm の FePt 単層および $t_{\text{MgO}} = 3, 5, 8, 10 \text{ nm}$ の FePt/MgO/FePt 多層ドットそれぞれの D に対する H_c の変化を図 3.17 に示す。ここで、多層ドットにおいては上層 FePt と下層 FePt それぞれの保磁力を議論するために H_c^{top} と H_c^{bottom} を定義し、それぞれプロットした。図 3.18 に示すように、MOKE 曲線の磁化反転領域における、Kerr 回転角の絶対値の半分の点から伸ばした接線と Kerr 回転角 0 との交点を H_c^{top} および H_c^{bottom} と定義した。MOKE 曲線にステップが見られなかった場合は H_c^{top} と H_c^{bottom} を同値とした。FePt 単層薄膜を $D = 3 \mu\text{m}^\phi$ のドットに微細加工すると、 H_c が 3.2 kOe から 10.6 kOe に大きく増加し、 D の減少にともない H_c はさらに上昇した。 $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の多層ドットにおいては、 H_c^{top} と H_c^{bottom} がほぼ重なり、 D に対する変化は単層ドットと似た傾向を示した。 $t_{\text{MgO}} = 5 \text{ nm}$ に増加させると、 D の減少にともなう H_c^{top} 、 H_c^{bottom} の上昇の他に、 $D = 3\text{--}0.5 \mu\text{m}^\phi$ の範囲で H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が明瞭に現れ、 $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ nm}$ ではこの差がさらに大きくなった。これは、 t_{MgO} が増加したことにより FePt 層間のダイポールカップリングが弱まったことを意味している。また、 $t_{\text{MgO}} = 3\text{--}8 \text{ nm}$ では $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ のドットにおいて H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が生まれなかったが、これは D の減少により H_c^{top} と H_c^{bottom} が近い値まで上昇したためであると考えられ、それゆえに、 t_{MgO} の増加によりダイポールカップリングが弱まっても上下の FePt 層が同時に磁化反転したものと思われる。 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ まで増加させダイポールカップリングがさらに弱くなると、 $D = 3\text{--}0.5 \mu\text{m}^\phi$ だけでなく $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ でも H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が確認さ

れた。

これらの結果から、ナノメートルサイズの FePt/MgO/FePt 多層ドットにおいて上下の FePt 層が独立して磁化反転するためには、厚い中間層を設けて FePt 層間のダイポールカップリングを弱める必要があることが明らかとなった。また、FePt よりも飽和磁化の低い磁性材料を用いること、ドットサイズを減少させても上下の磁性層の保磁力差を保つためにそれぞれ K_u が異なる材料を用いることも有効であると考えられ、この二つが高密度多値磁気記録媒体実現のための指針だと言える。

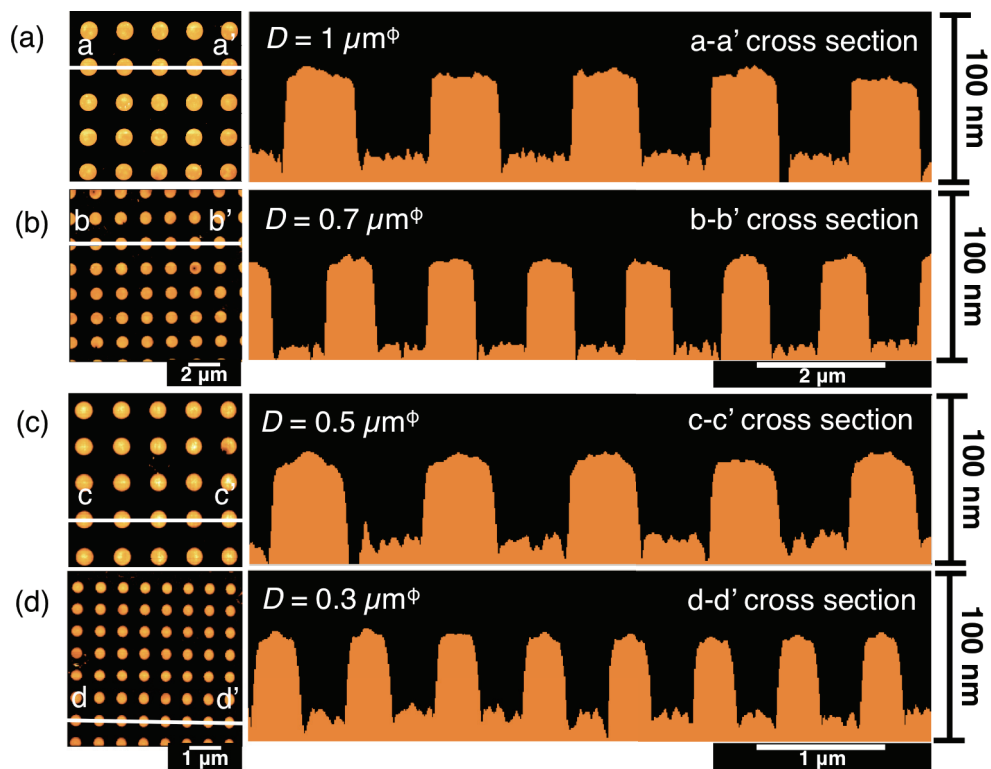


図 3.12 FePt/MgO/FePt 多層薄膜ドットの AFM 像。(a) $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の $D = 1 \mu\text{m}^\phi$ 、(b) $t_{\text{MgO}} = 5 \text{ nm}$ の $D = 0.7 \mu\text{m}^\phi$ 、(c) $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ nm}$ の $D = 0.5 \mu\text{m}^\phi$ 、 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ の $D = 0.3 \mu\text{m}^\phi$ 。

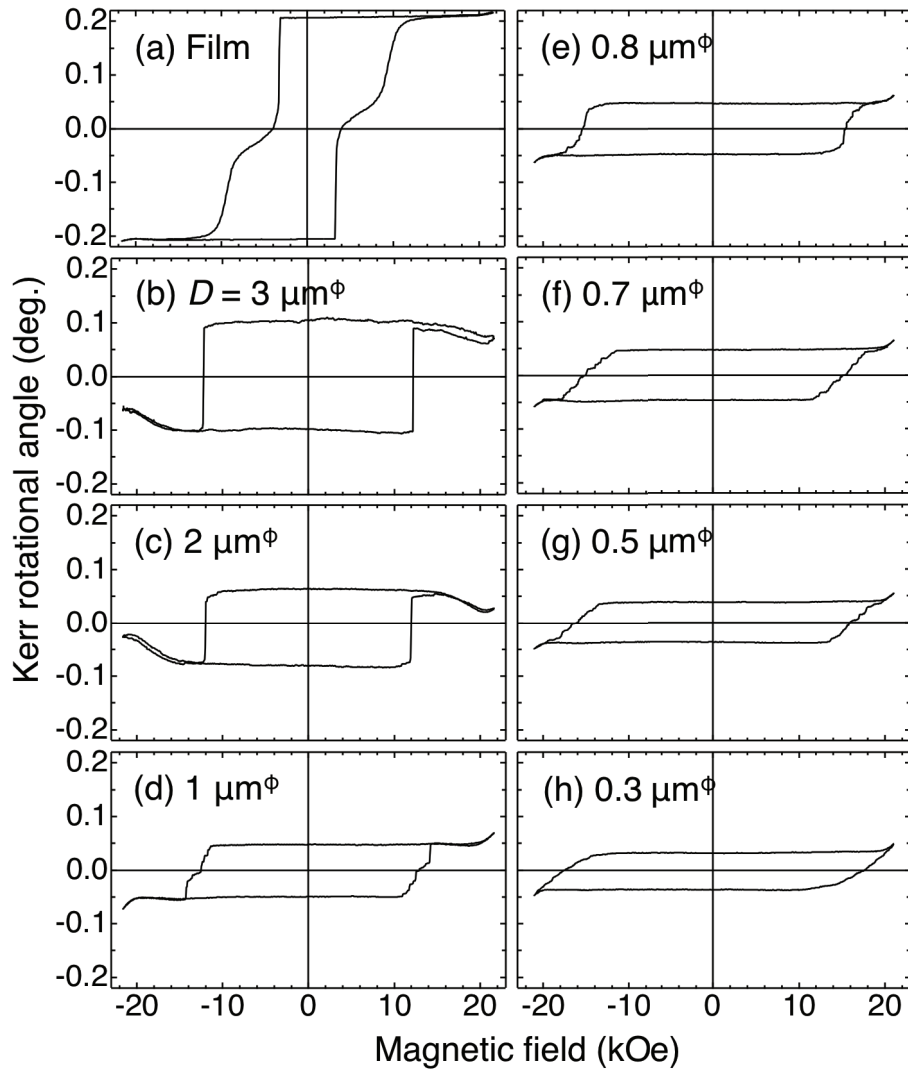


図 3.13 $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 3 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $2 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.8 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.7 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.5 \mu\text{m}\phi$ 、(h) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 。

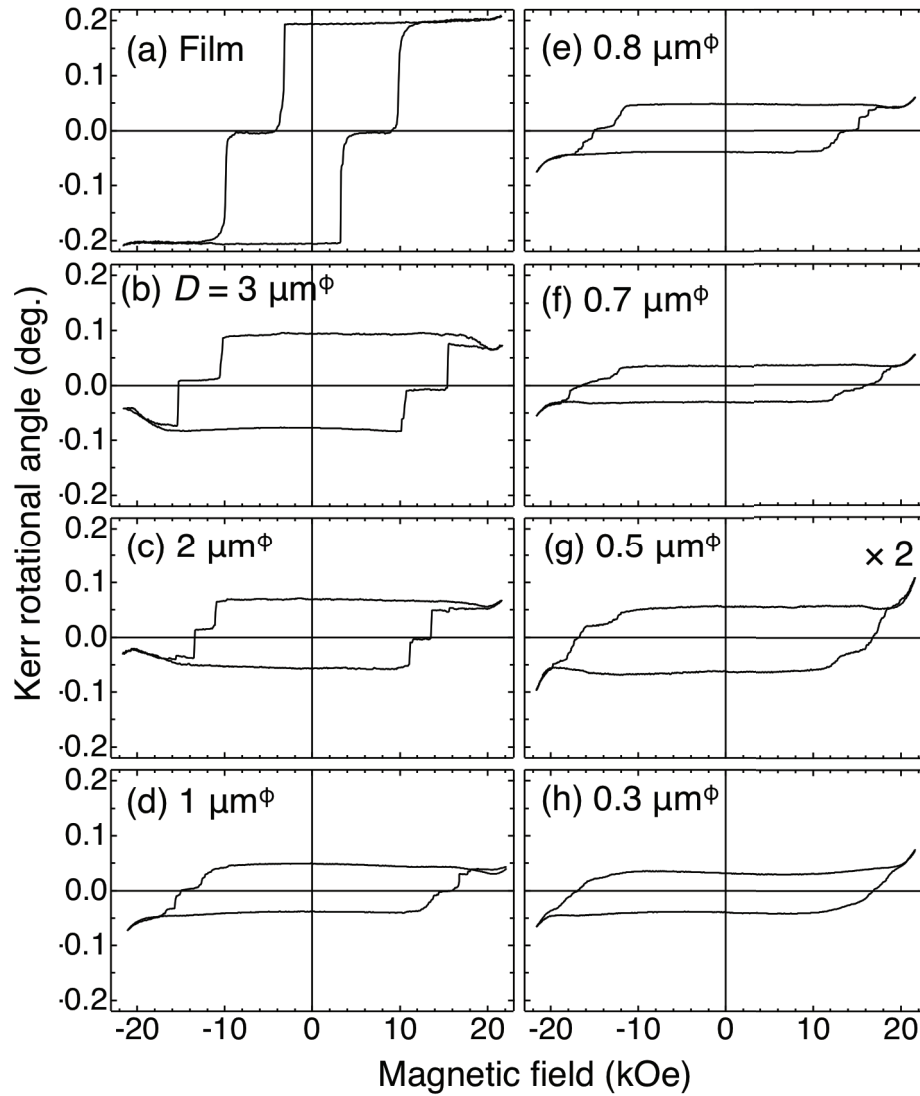


図 3.14 $t_{\text{MgO}} = 5 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 3 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $2 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.8 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.7 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.5 \mu\text{m}\phi$ 、(h) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 。

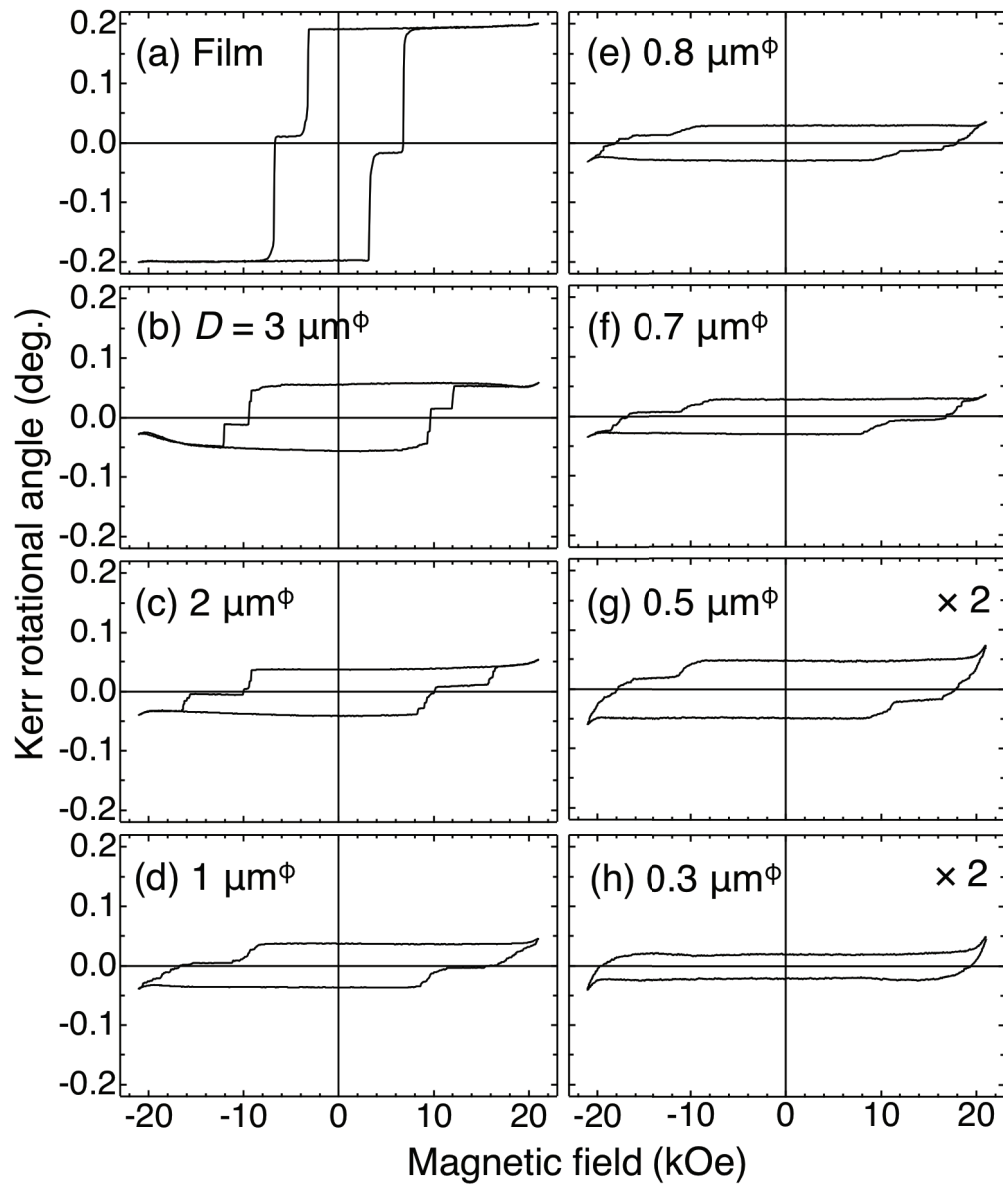


図 3.15 $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 3 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $2 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.8 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.7 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.5 \mu\text{m}\phi$ 、(h) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 。

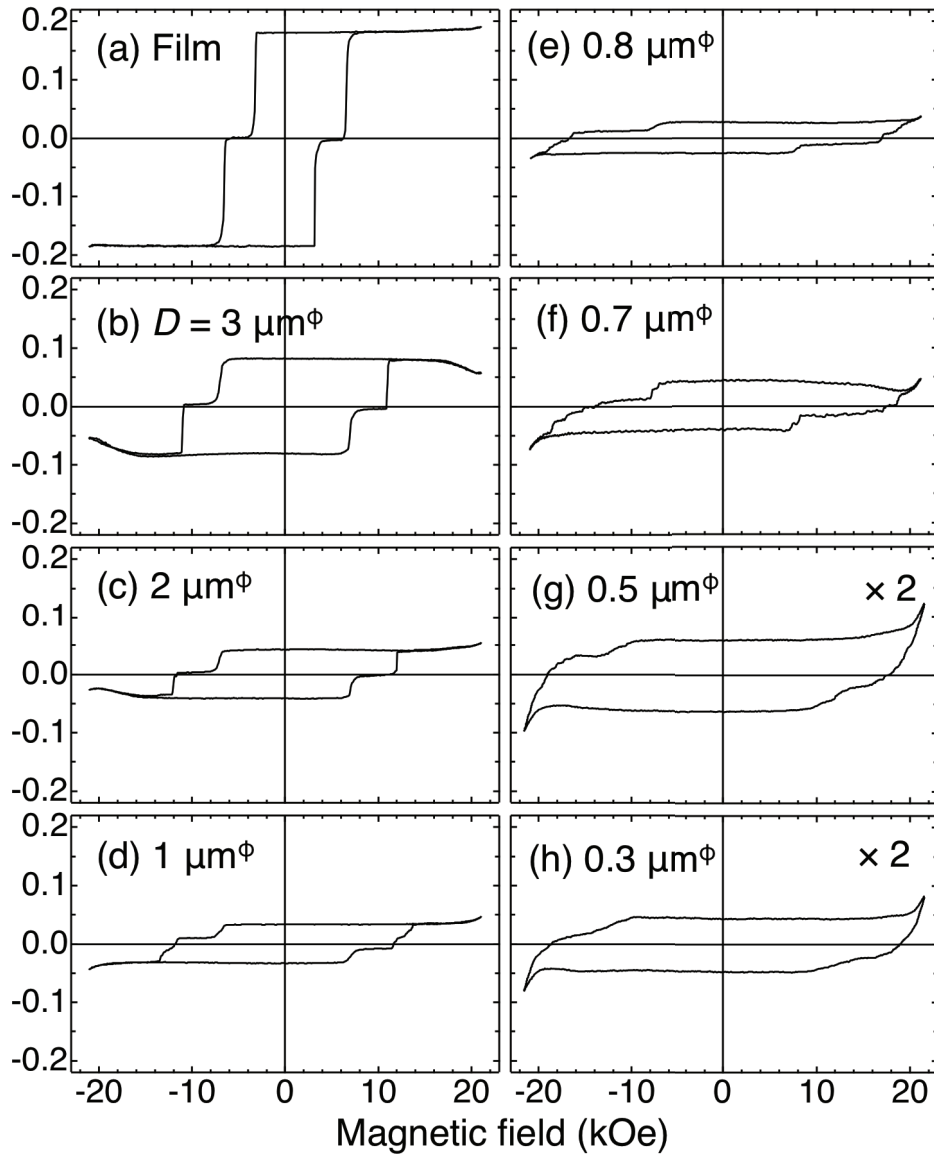


図 3.16 $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ の連続薄膜とドットパターンの MOKE 曲線。(a)連続薄膜、(b) $D = 3 \mu\text{m}\phi$ 、(c) $2 \mu\text{m}\phi$ 、(d) $1 \mu\text{m}\phi$ 、(e) $0.8 \mu\text{m}\phi$ 、(f) $0.7 \mu\text{m}\phi$ 、(g) $0.5 \mu\text{m}\phi$ 、(h) $0.3 \mu\text{m}\phi$ 。

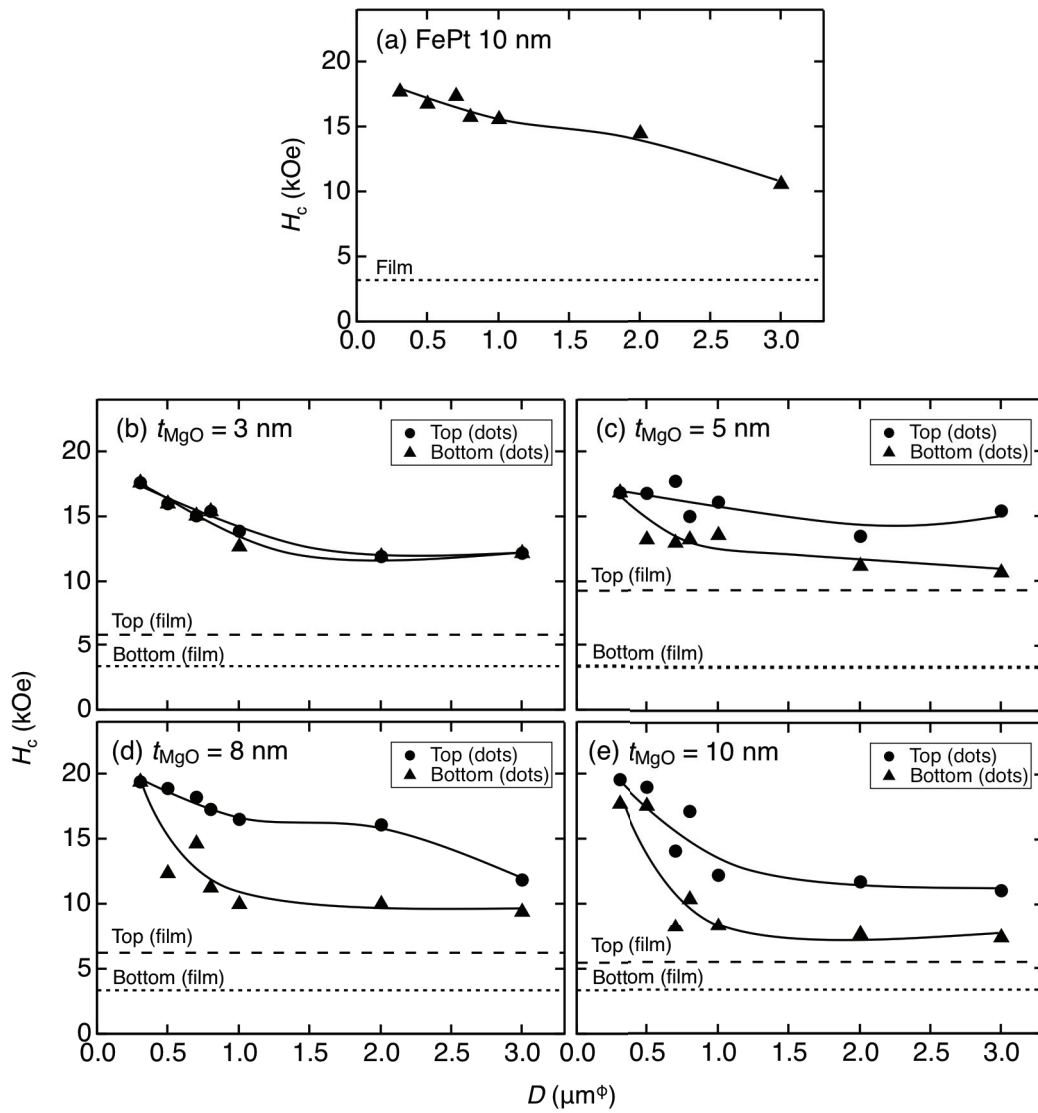


図 3.17 (a)FePt 単層および $t_{\text{MgO}} =$ (b) 3、(c) 5、(d) 8、(e) 10 nm の FePt/MgO/FePt 多層ドットそれぞれの D に対する H_c の変化。

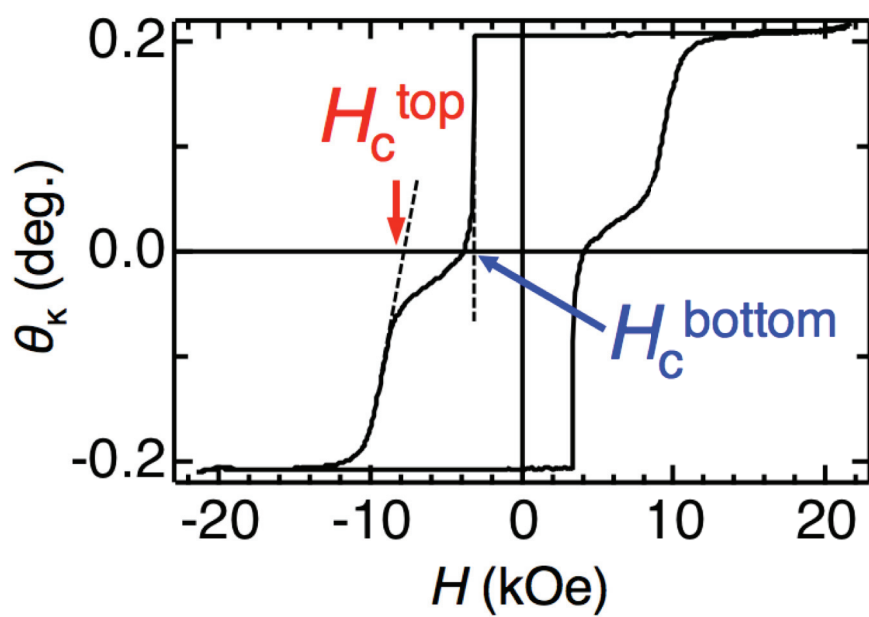


図 3.18 H_c^{top} と H_c^{bottom} の定義。

3.3 小括

膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を円形ドットに微細加工し、磁気特性を評価した。

- FePt 単層ドットにおいては、 D の減少とともに H_c が確認された。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}8\text{ nm}$ の多層ドットにおいて、 $D = 0.3\text{ }\mu\text{m}$ まで減少させると、それらの MOKE 曲線からステップが消失した。
- $t_{\text{MgO}} = 10\text{ nm}$ の多層ドットの場合は $D = 0.3\text{ }\mu\text{m}$ でもステップが現れた。
- t_{MgO} が増加すると H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が広がった。
- D の減少とともに H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が縮まった。

これらの結果から、ナノメートルサイズの FePt/MgO/FePt 多層ドットにおいて上下の FePt 層が独立して磁化反転するためには、厚い中間層を設けて FePt 層間のダイポールカップリングを弱める必要があることが明らかとなった。また、FePt よりも飽和磁化の低い磁性材料を用いること、ドットサイズを減少させても上下の磁性層の保磁力差を保つためにそれぞれ K_u が異なる材料を用いることも有効であると考えられ、この二つが高密度多値磁気記録媒体実現のための指針だと言える。

第 4 章 $L1_0$ - $Mn_xGa_{(100-x)}$ 単層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性

前章では、FePt/MgO/FePt 多層ドットにおいて上下の FePt 層が独立して磁化反転するためにダイポールカップリングを弱める必要があることを明らかにした。本章では $L1_0$ -FePt よりも飽和磁化の低い $L1_0$ -MnGa を多値磁気記録媒体に適した材料として選び、その基礎的な物性を明らかとするために、薄膜試料および円形ドット試料を作製し、結晶構造、磁気特性評価を行った。さらに、磁区構造観察から臨界単磁区粒径を決定し、その結果を用いて交換スティフネス定数を見積もった。

4.1 実験方法

$Mn_xGa_{(100-x)}$ 単層薄膜の成膜方法と円形ドットの微細加工手順について説明する。結晶構造評価、磁気特性評価については第 2、3 章で述べた方法と同様に行った。

4.1.1 薄膜作製

薄膜試料の作製にはマグネトロンスパッタリング法を用いた。本実験では ULVAC 社製の 3 元スパッタ装置を用いた。装置の構成図を図 4.1 に示す。この装置はマグネトロ方式の RF スパッタカソードを 3 基搭載しており、任意の順番による多層膜の作製が可能である。試料交換室は、ロータリーポンプで予備排気した後、ターボ分子ポンプで排気することにより 1.3×10^{-4} Pa 以下の真空度に到達する。成膜室はロータリーポンプで予備排気した後、ターボ分子ポンプで排気しながら真空チャンバーを加熱し内壁に吸着しているガス分子を追い出すことで 1.3×10^{-5} Pa 以下の真空度に到達する。ランプ式の基板加熱機構を装備しており、最高 700°C まで加熱可能である。

成膜方法を以下に示す。 700°C で 30 分間加熱して表面をクリーニングした MgO (100) 単結晶基板の上に Cr バッファ層 ($t_{\text{buffer}} = 5\text{--}40$ nm) を室温で成膜し、 700°C で 30 分間の熱処理を行い、Cr バッファ層表面を平坦化させた。 $Mn_xGa_{(100-x)}$ 層は交互積層法によって成膜した。基板温度 $T_s = 50\text{--}200^\circ\text{C}$ で Mn 層、MnGa 層の順に交互積層数 $n = 4\text{--}20$ として積層し、合計 20 nm 成膜した。交互積層における MnGa 層の成膜には MnGa (40:60 at. %) 合金ターゲットを用いた。組成は Mn、MnGa 層の体積比を変化させ、Mn 組成 $x = 48\text{--}60$ at. % となるように交互積層した。この組成は $L1_0$ 構造を得ることを狙いとしている。後熱処理は $T_a = 300\text{--}500^\circ\text{C}$ で 60 分間行い、交互積層した Mn、MnGa 層を $L1_0$ -MnGa へと規則化させた。最後に酸化防止層として Cr を 10 nm 成膜した。

4.1.2 微細加工手順

現像後のエッチング工程までは第3章に示した方法で行った。その後大気暴露させることなく、L1₀-MnGa 層が剥き出しになったドット側面を酸化から保護するための Cr または Au キャップ層を 5 nm 成膜した。さらに、レジストの上に成膜されたキャップ層を除去するために 85°で 30 秒間のエッチングを行い、最後にレジストを除去してドットパターンを得た。

4.2.3 磁区構造観察

薄膜およびドットパターンの磁区構造観察を磁気力顕微鏡(MFM: Magnetic Force Microscopy)により行なった。MFM は非接触原子間力顕微鏡の一種である。原子間力は原子近傍の相互作用で、試料と探針間距離が離れると急激に減衰するが、これに対して磁気クーロン相互作用や双極子相互作用は距離依存性が緩やかであり、原子間力と大きく異なっている。MFM はこのことを利用して試料と探針間の距離を変えて測定することによって、形状像と磁気像を分離して測定する。磁気像は磁気モーメントの配列をコントラストの変化として表した像である。探針の先端には磁性薄膜がコートされており、これによって試料の漏洩磁場を検出する。

MFM の走査方法を図 4.2 に示す。まず始めに、試料の表面形状を DFM(Dynamic force mode)で測定する。次に、探針を一定距離離し、DFM 測定で記憶させた表面形状をトレースしながら磁気力による位相変化を測定する。こうして、表面形状から常に同じ高さにおける磁気力の分布が分かる。

本研究では、SII ナノテクノロジー社製の SPA300HV を使用した。本装置には電磁石が付属されており、試料に±6 kOe の垂直磁場を印加した状態で MFM 観察を行うことが可能である。カンチレバーに関しては、Si 探針に厚さ約 80 nm の CoPtCr/Cr 磁性コートを施したものを使用した。

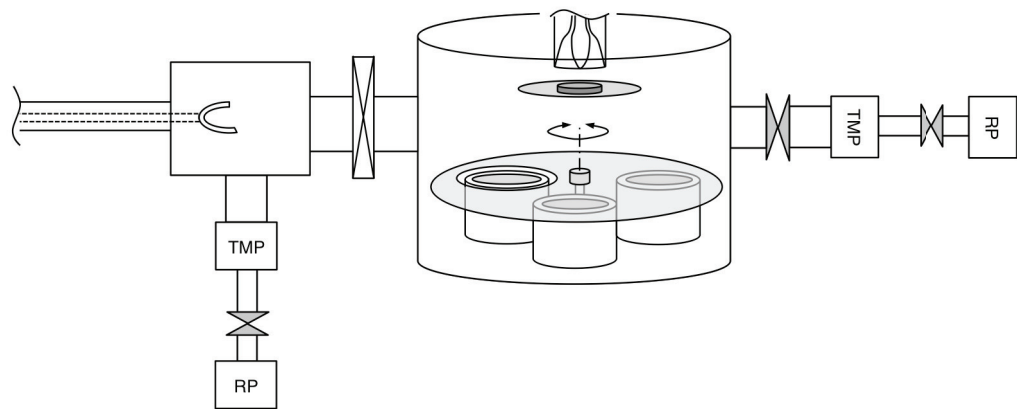


図 4.1 三元スパッタ装置の構成。

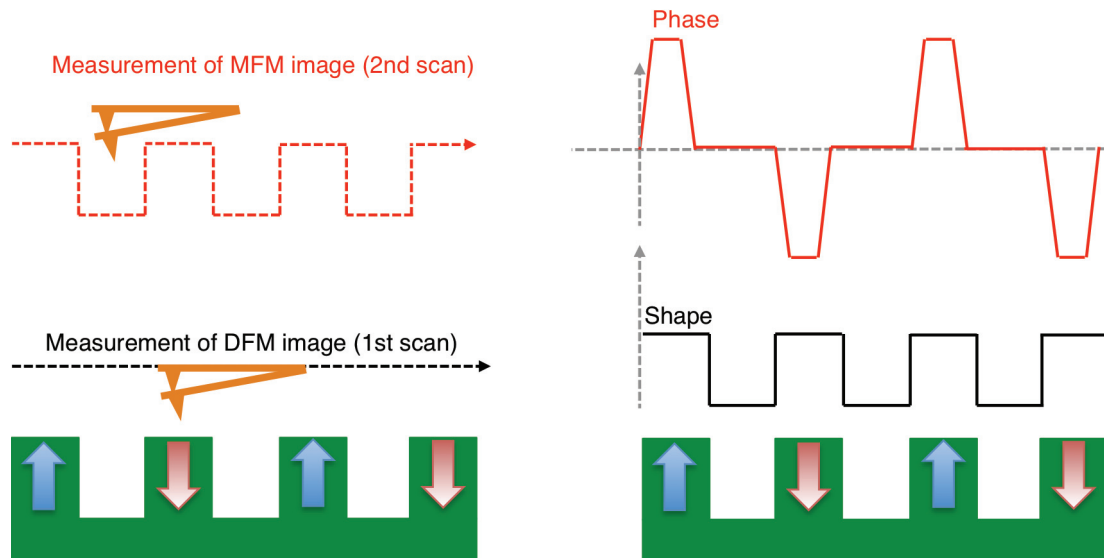


図 4.2 MFM の走査方法。

4.2 結果と考察

4.2.1 T_s の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の磁気特性

まず、成膜時の T_s に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の磁気特性の変化を検討した $t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ 、 $x = 50$ 、 $n = 5$ 、 $T_a = 300^\circ\text{C}$ とし、 $T_s = 50\text{--}300^\circ\text{C}$ と変化させた薄膜の XRD パターンを図 4.3(a)–(d) に示す。 $T_s = 40^\circ\text{C}$ では $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ からの回折ピークはほぼ観察されなかったが、 100°C では $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001) 超格子反射ピーク、(002) 規則反射ピークが観察された。このことから、交互積層 Mn 、 MnGa 層が $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ に規則化し、薄膜面垂直方向に (001) 配向していることが確認された。 200°C では (001) 超格子反射ピーク強度が大きく減少した。また、 $T_s = 100\text{--}300^\circ\text{C}$ においては σ 相のピークが確認され、 T_s の増加に伴いこれが鋭くなった。

a および c 、 c/a 、 S の T_s 依存性を図 4.4(a)–(c) に示す。格子定数は、 a よりも c の方が長い結果となった。 $T_s = 300^\circ\text{C}$ で最も高い $S = 0.78$ が得られた。

これら薄膜の磁化曲線と M_s 、 K_u の T_s 依存性を図 4.5(a)–(d) および図 4.6(a)、(b) に示す。 $T_s = 50^\circ\text{C}$ では $M_s = 27 \text{ emu/cm}^3$ の著しく低い飽和磁化が確認されたが、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ に上昇させると $M_s = 290 \text{ emu/cm}^3$ まで増加し、さらに T_s を上昇させると M_s は低下した。 $T_s = 100\text{--}300^\circ\text{C}$ の薄膜の K_u を第 2 章に示した式から求めた結果、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ では 9.0 Merg/cm^3 、 $T_s = 200^\circ\text{C}$ では 1.6 Merg/cm^3 、 $T_s = 300^\circ\text{C}$ では 3.4 Merg/cm^3 の K_u が確認された。 $T_s = 300^\circ\text{C}$ で最も高い S が得られたものの、XRD パターンからは σ 相の鋭い回折ピークが観察されたことから、結晶性の良い σ 相が得られている可能性があり、 M_s の低下につながったものと推察される。

これらの結果から、高い K_u が得られた $T_s = 100^\circ\text{C}$ を $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の成長に適した基板温度とし、 T_a の検討に移った。

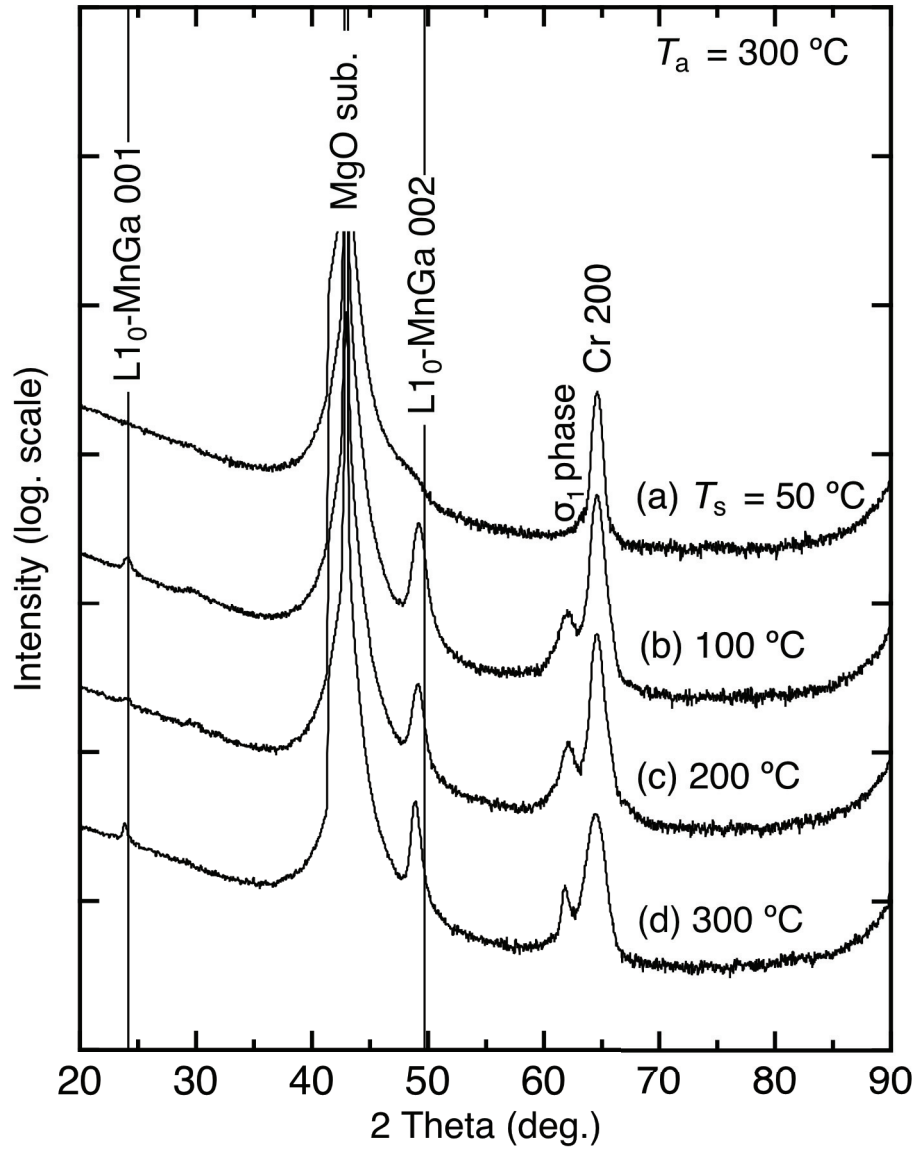


図 4.3 T_s を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $T_s = 50^\circ\text{C}$ 、(b) 100°C 、(c) 200°C 、(d) 300°C 。

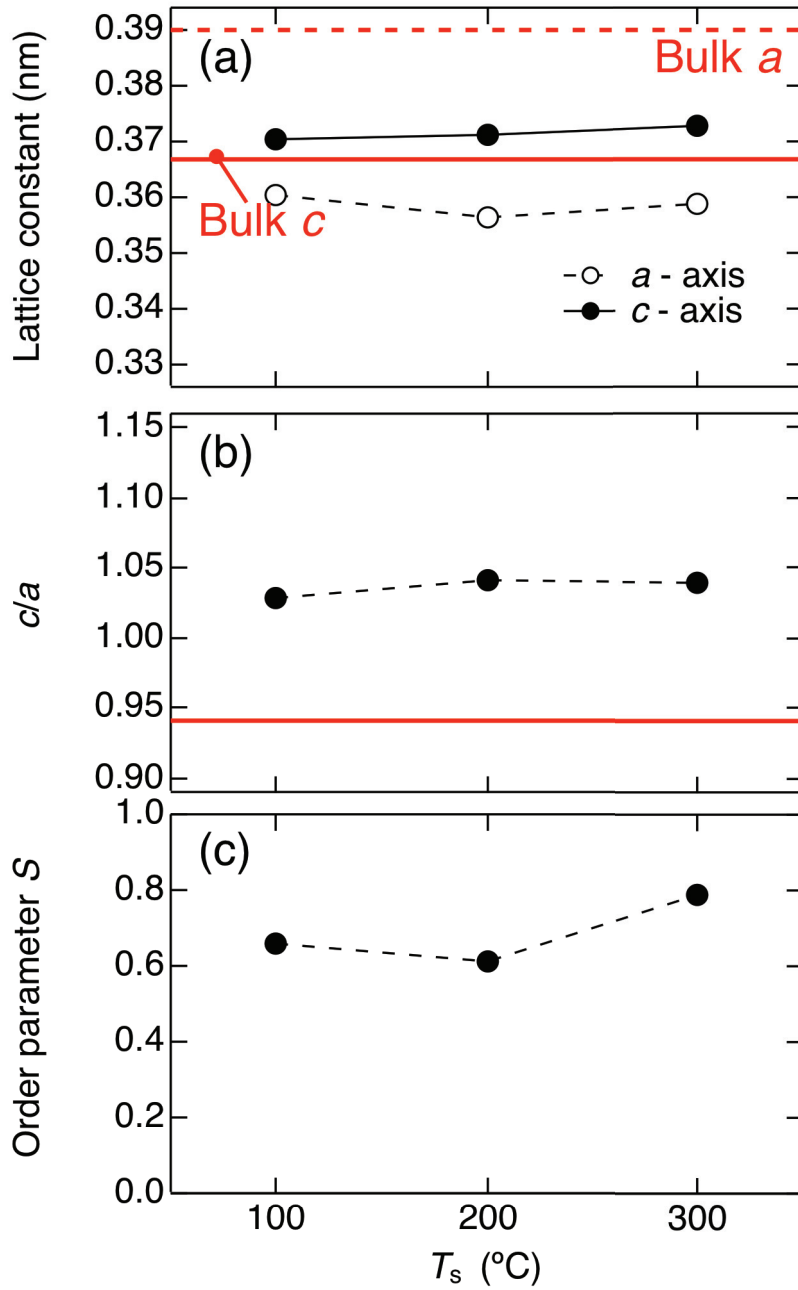


図 4.4 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の(a) a および c 、(b) c/a 、(c) S の T_s 依存性。

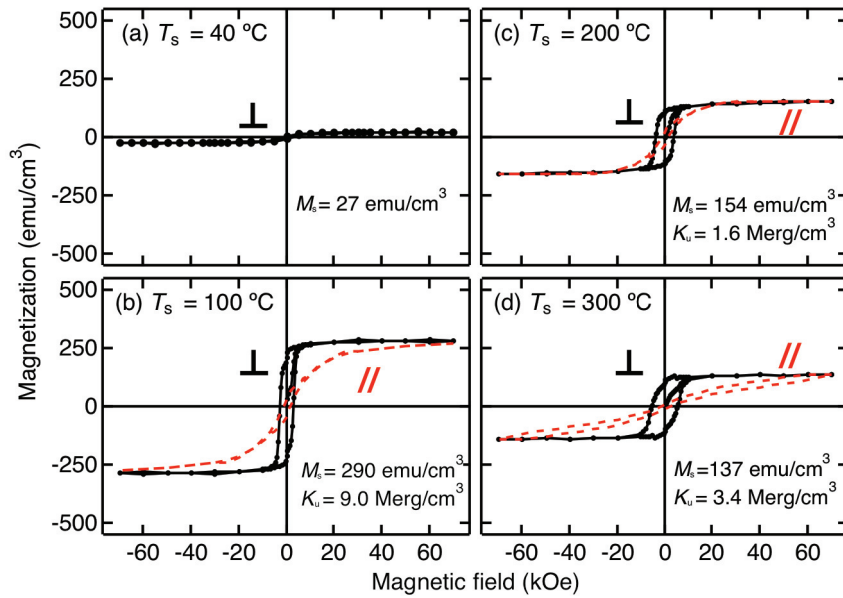


図 4.5 T_s を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $T_s = 50^\circ\text{C}$ 、(b) 100°C 、(c) 200°C 、(d) 300°C 。

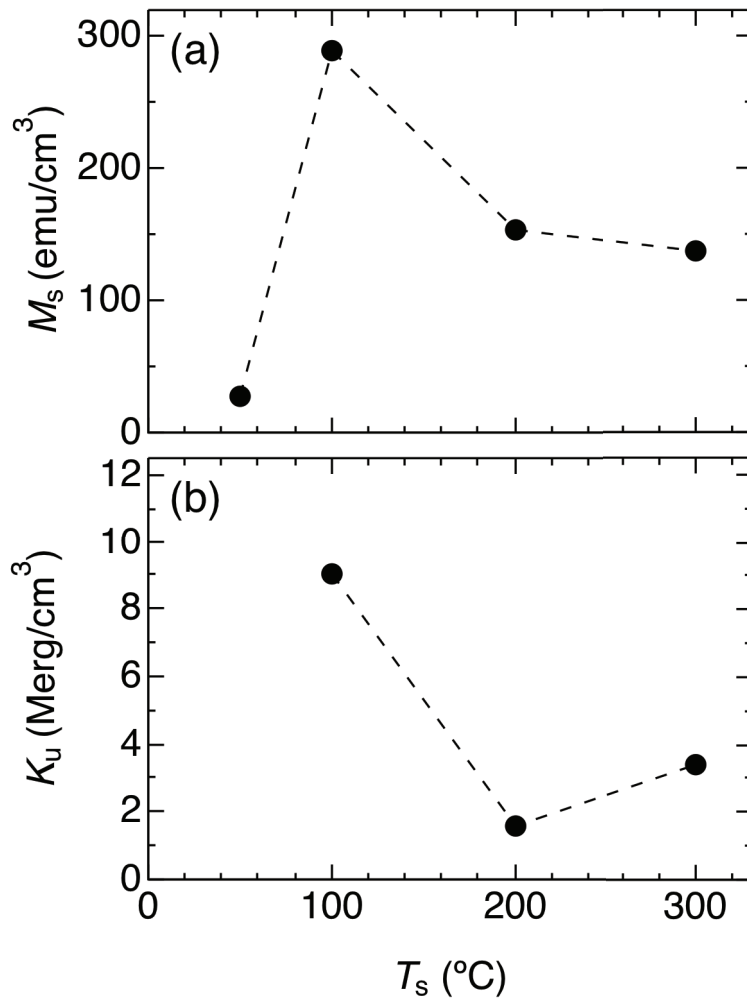


図 4.6 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜における (a) M_s 、(b) K_u の T_s 依存性。

4.2.2 T_a の変化に対する $Mn_xGa_{(100-x)}$ の磁気特性

T_a に対する $Mn_xGa_{(100-x)}$ の磁気特性の変化を検討した。 $t_{buffer} = 5 \text{ nm}$ 、 $x = 50$ 、 $n = 5$ 、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ とし、 $T_a = 300, 350, 400, 450, 500^\circ\text{C}$ と変化させた薄膜のXRDパターンと a および $c, c/a, S$ の T_a 依存性を図 4.7(a)–(e) および図 4.8(a)–(c) に示す。 $T_a = 300^\circ\text{C}$ と比較して 350°C 、 400°C では $L1_0$ - $MnGa$ の(001)超格子反射ピーク、(002)規則反射ピーク強度が増加していることが確認された。 450°C ではこれらピーク強度が大きく減少し、異相からの回折ピークが強く現れた。 500°C では $L1_0$ - $MnGa$ からの回折ピークは観察されず、 450°C で見られた異相からの回折ピークがより強く現れた。この結果から、 $T_a = 450^\circ\text{C}$ 以上では $L1_0$ 構造が得られにくいことが分かった。 $L1_0$ - $MnGa$ の(001)ピークが明瞭に現れた $T_a = 300, 350, 400^\circ\text{C}$ の S を第 2 章に示した式から算出した結果、 $T_a = 300^\circ\text{C}$ では $S = 0.66$ であったが、 $T_a = 350, 400^\circ\text{C}$ で $S = 0.79$ に上昇した。

これら薄膜の磁化曲線と M_s 、 K_u の T_a 依存性を図 4.9(a)–(e) および図 4.10(a)、(b) に示す。 T_a を 300°C から 400°C まで変化させるにつれ M_s は 286 emu/cm^3 から 345 emu/cm^3 まで上昇したが、 $L1_0$ - $MnGa$ からのピーク強度が大きく減少した $450, 500^\circ\text{C}$ では M_s が急激に低下した。磁化曲線から磁気異方性が確認できた $T_a = 300\text{--}450^\circ\text{C}$ において K_u を求めた結果、 M_s と同様に、 $T_a = 300\text{--}400^\circ\text{C}$ では T_a とともに K_u が上昇し、 $T_a = 400^\circ\text{C}$ では最大の 15 Merg/cm^3 の K_u が確認された。 $T_a = 450^\circ\text{C}$ では 0.3 Merg/cm^3 に低下した。

これらの結果から、最も高い $K_u = 15 \text{ Merg/cm}^3$ が得られた $T_a = 400^\circ\text{C}$ を最適な熱処理条件とし、次に Cr バッファ層厚の検討に移った。

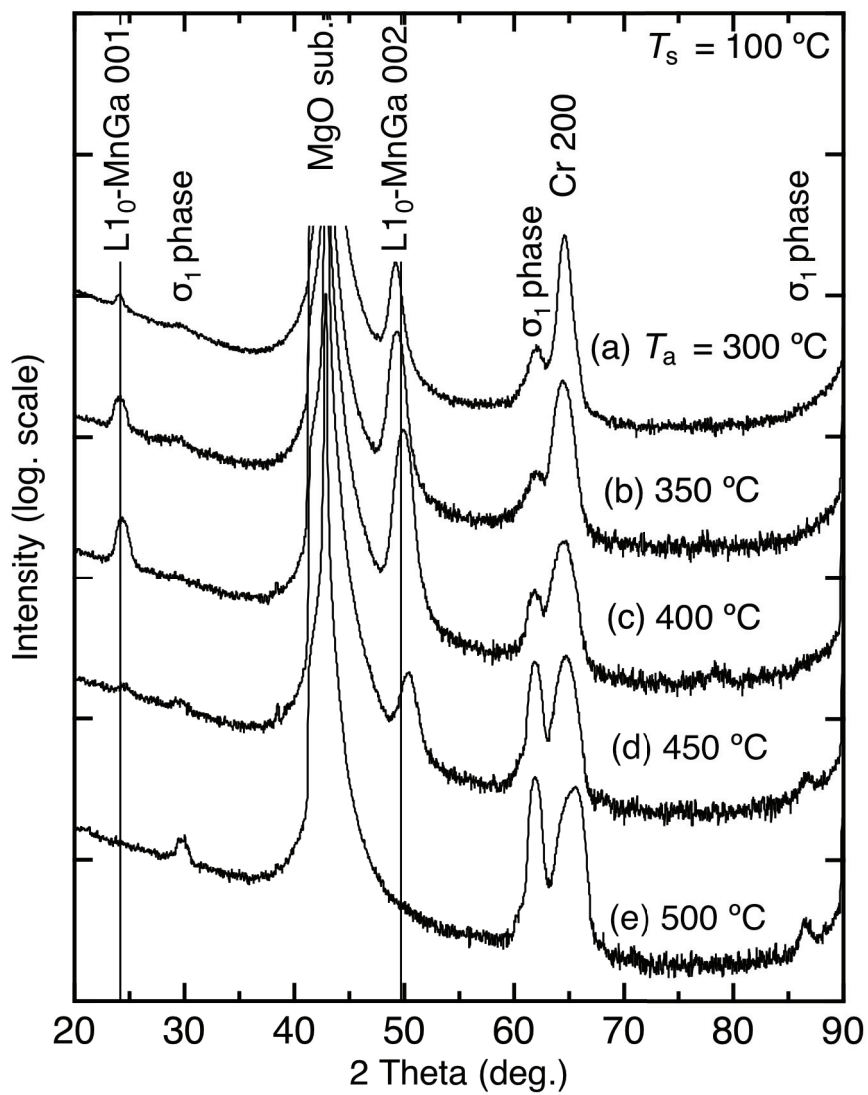


図 4.7 T_a を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $T_a = 300^\circ\text{C}$ 、
 (b) 350°C 、(c) 400°C 、(d) 450°C 、(e) 500°C 。

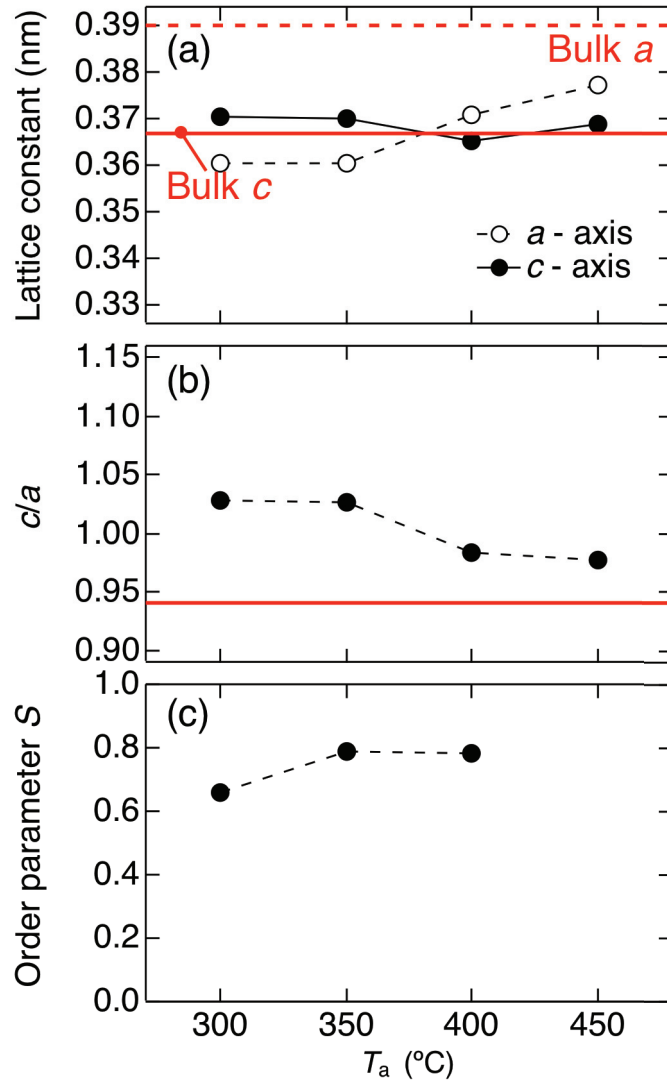


図 4.8 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の(a) a および c 、(b) c/a 、(c) S の T_a 依存性。

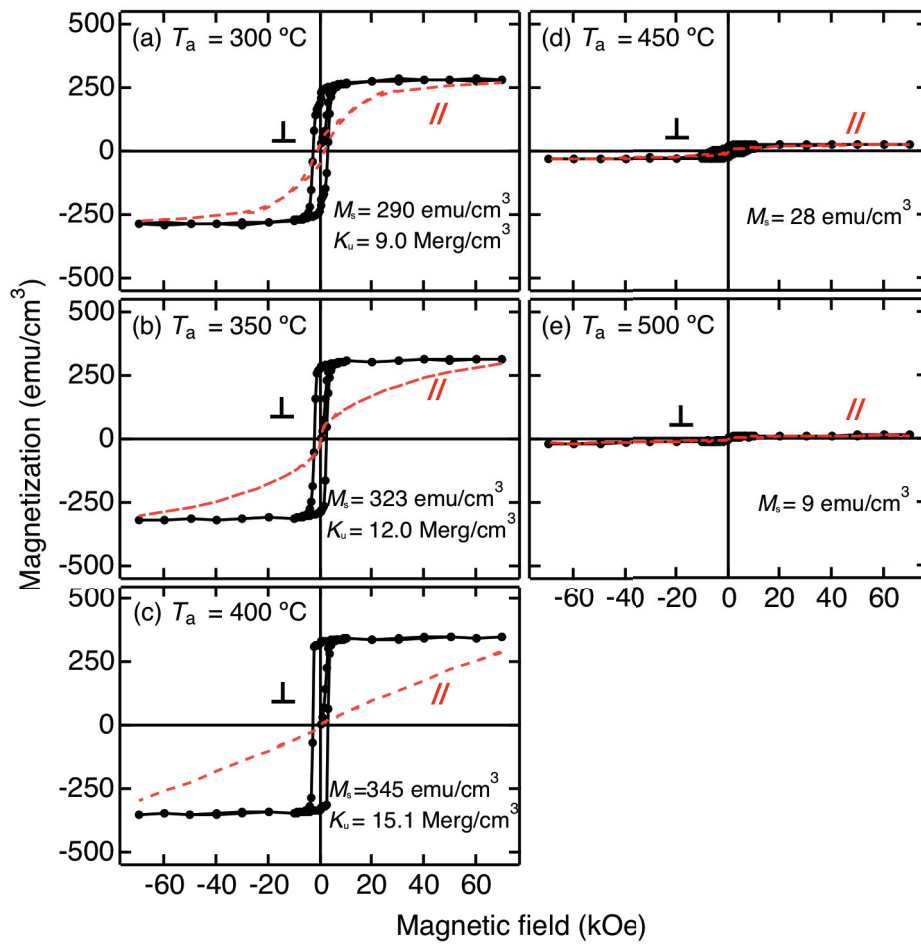


図 4.9 T_a を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $T_a = 300^\circ\text{C}$ 、(b) 350°C 、(c) 400°C 、(d) 450°C 、(e) 500°C 。

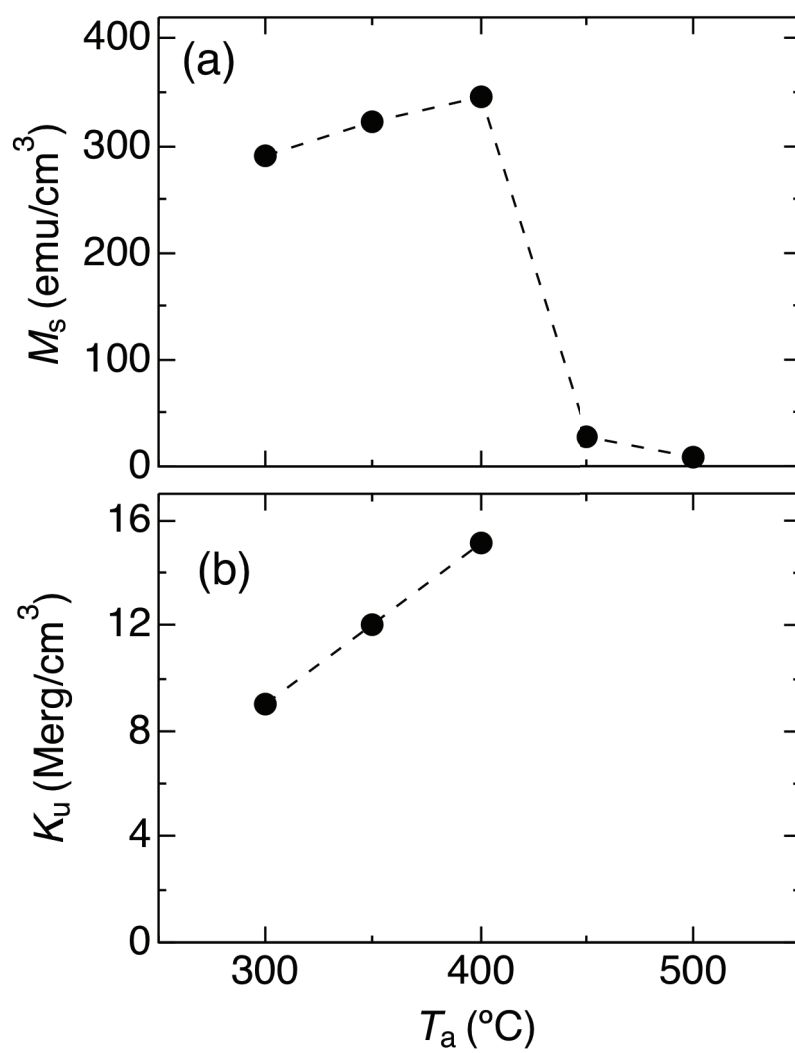


図 4.10 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜における(a) M_s 、(b) K_u の T_a 依存性。

4.2.3 t_{buffer} の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の磁気特性

t_{buffer} に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の磁気特性の変化を検討した。 $x = 50$ 、 $n = 5$ 、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ 、 $T_a = 400^\circ\text{C}$ とし、 $t_{\text{buffer}} = 5, 10, 20, 30, 40 \text{ nm}$ と変化させた薄膜の XRD パターンを図 4.11(a)–(e) に示す。いずれの試料からも $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001) 超格子反射ピーク、(002) 規則反射ピークが確認されたが、 $t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ と比較すると 10、20、30、40 nm ではピーク強度の減少が見られた。格子定数 (図 4.12(a)) については、 t_{buffer} の増加に伴い、 a がわずかに増加、 c がわずかに減少する傾向が得られた。これにより、 c/a (図 4.12(b)) は t_{buffer} の増加に伴いわずかに減少する結果となった。 S (図 4.12(c)) は t_{buffer} の増加とともに、 $t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ の 0.79 からわずかに減少する傾向が確認された。

これら薄膜の磁化曲線と M_s 、 K_u の t_{buffer} 依存性を図 4.13(a)–(e) および図 4.14(a)–(b) に示す。 M_s 、 K_u ともに t_{buffer} の増加に伴い減少する傾向が得られた。これは t_{buffer} の増加に対する S の変化を反映しているものと思われる。

$t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ のときに最も高い $S = 0.79$ 、 $M_s = 345 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 15.1 \text{ Merg/cm}^3$ が得られた。これを最適条件とし、次に Mn 組成 x の検討に移った。

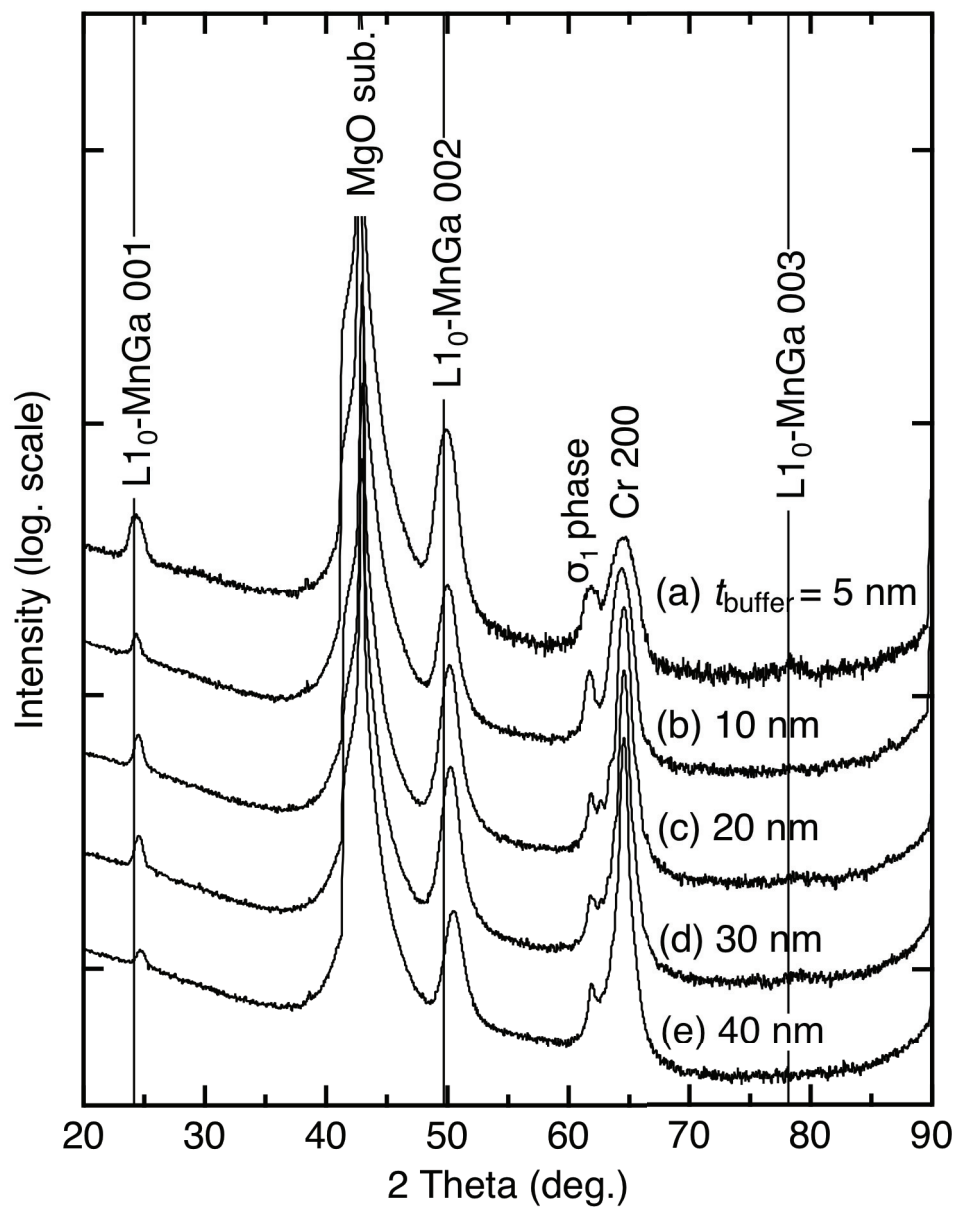


図 4.11 t_{buffer} を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $t_{\text{buffer}} = 5$ nm、(b) 10 nm、(c) 20 nm、(d) 30 nm、(e) 40 nm。

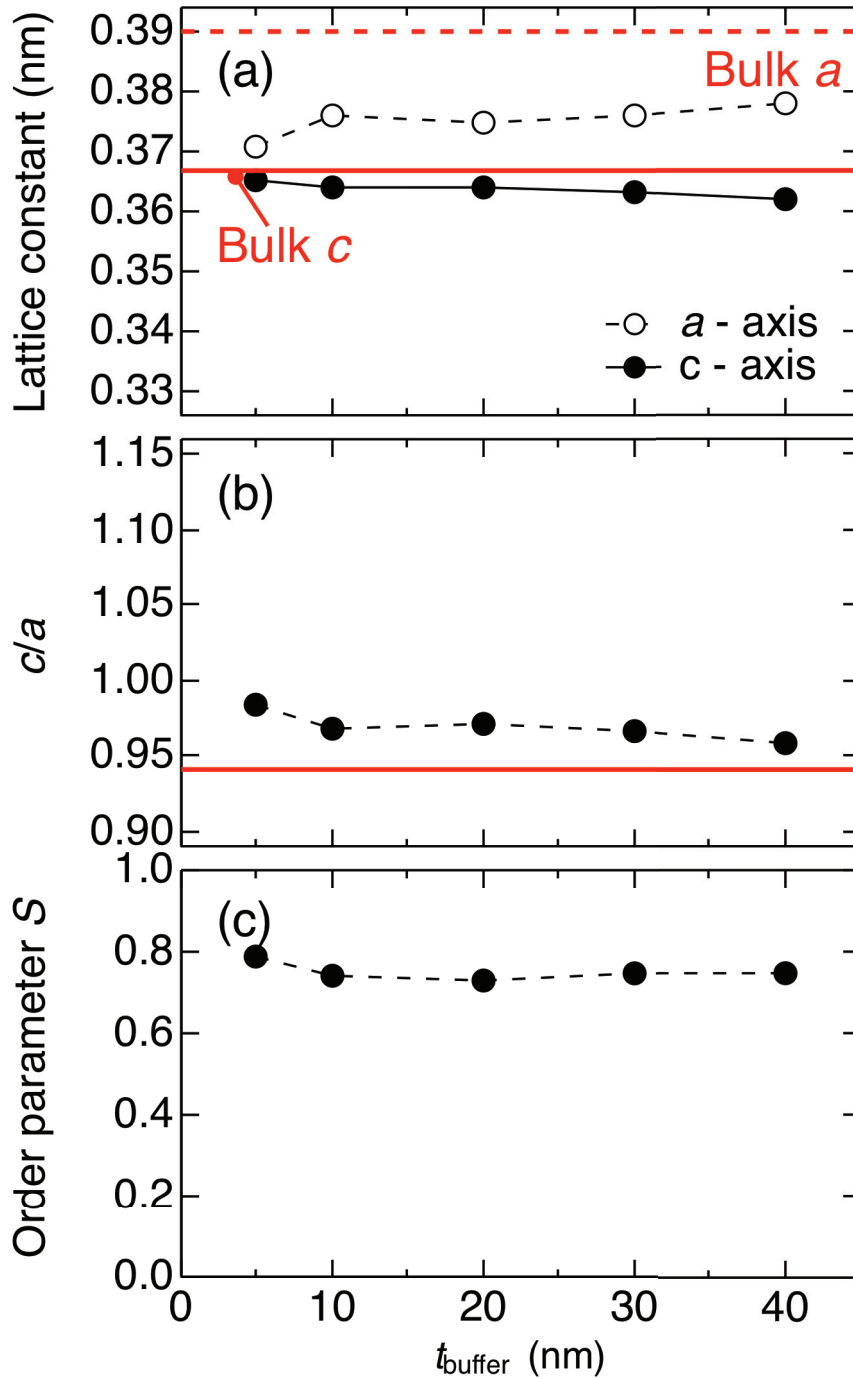


図 4.12 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の(a) a および c 、(b) c/a 、(c) S の t_{buffer} 依存性。

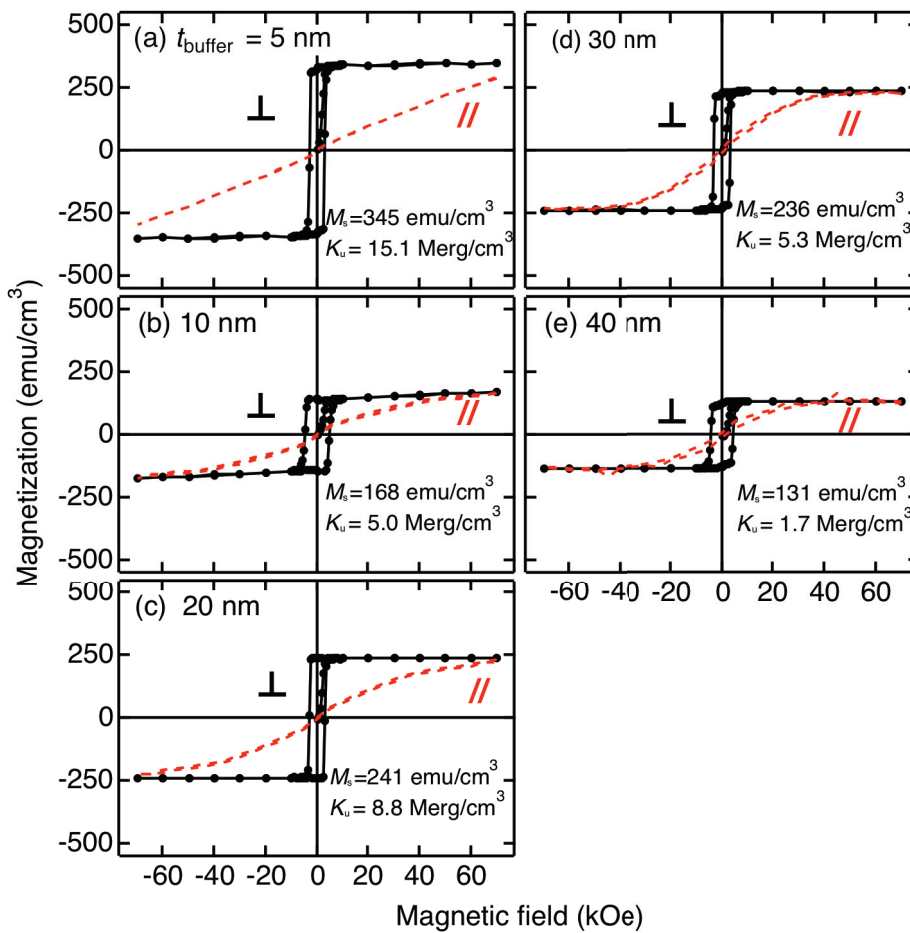


図 4.13 t_{buffer} を変化させた $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $t_{\text{buffer}} = 5$ nm、(b) 10 nm、(c) 20 nm、(d) 30 nm、(e) 40 nm。

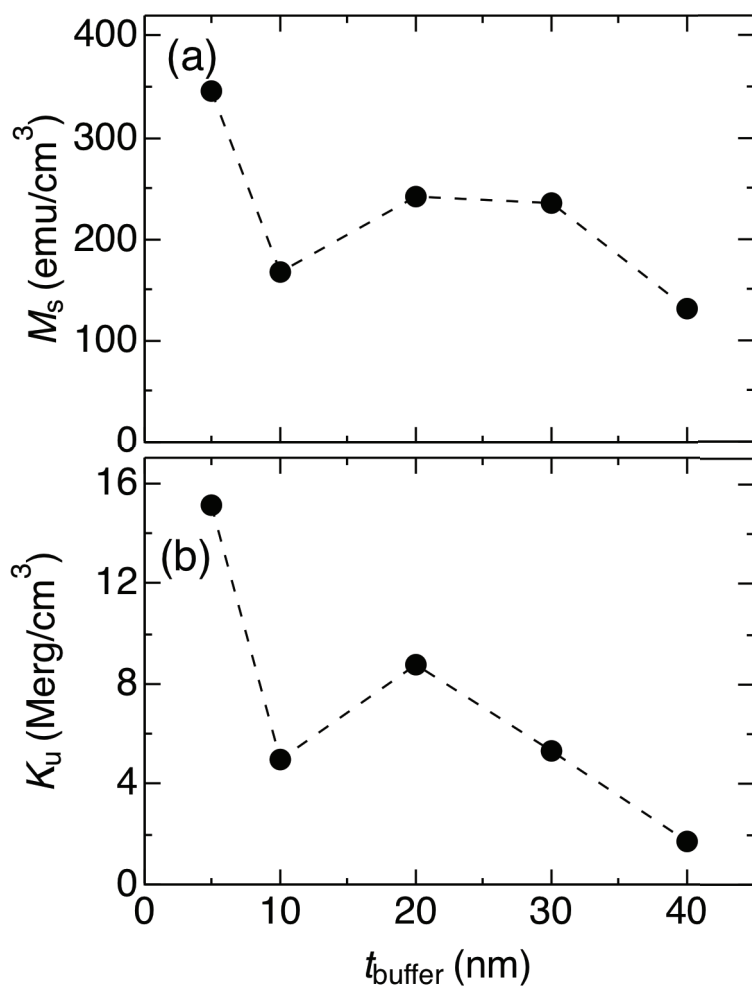


図 4.14 $M_{50}Ga_{50}$ 薄膜における(a) M_s 、(b) K_u の t_{buffer} 依存性。

4.2.4 x の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の結晶構造と磁気特性 ($x = 48-60$)

x の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の結晶構造と磁気特性の変化を検討した。 $t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ 、 $n = 5$ 、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ 、 $T_a = 400^\circ\text{C}$ とし、 $x = 48, 50, 52, 54, 56, 58, 60$ と変化させた薄膜の XRD パターンと a および $c, c/a, S$ の T_a 依存性を図 4.15(a)-(g) および図 4.16(a)-(c) に示す。 $x = 48$ では $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001) 超格子反射ピークがほぼ観察されなかったが、 $x = 50-60$ では明瞭に観察された。 $x = 58$ では、他の試料と比較すると 63° 付近に見られる異相のピーク強度が小さく、最も $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ 単層に近い薄膜が得られていると考えられる。 $x = 60$ では 63° 付近および 30° 付近にもはっきりと異相のピークが確認されたことから、他の試料に比べ、薄膜中に異相が多く存在しているものと考えられる。 $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001) 超格子反射ピークが明瞭に観察された $x = 50-60$ において S を算出した結果、 $x = 50-58$ の範囲では大きな変化は見られなかったが、 $x = 60$ ではやや低下した。 $x = 56, 58$ で最大の $S = 0.8$ が確認された。格子定数については、 c 軸は x の増加とともにわずかに縮小し、 a 軸は $x = 50-54$ で伸長し、 $x = 54-60$ で大きな変化が見られなくなった。 $x = 48-60$ の範囲で c 軸はバルク値よりも短く、 a 軸は $x = 52-60$ の範囲でバルク値よりも長いことが確認された。 c/a は $x = 52-60$ の範囲でバルク値よりも小さいことが確認され、より a 軸が広がった結晶構造であることが分かった。

これら薄膜の磁化曲線と M_s 、 K_u の t_{buffer} 依存性を図 4.17(a)-(g) および図 4.18(a)-(b) に示す。 $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001) 超格子反射ピークがほぼ観察されなかった $x = 48$ では $M_s = 100 \text{ emu/cm}^3$ と比較的低い飽和磁化が確認されたが、 $x = 50$ で大きく上昇し、そこから $x = 54$ までは減少、 $x = 54-58$ では上昇し、異相が多く確認された $x = 60$ では大きく減少した。 K_u も M_s とよく似た変化の傾向を示した。 $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ 単層に近い薄膜が得られていると考えられる $x = 58$ で最も高い $M_s = 433 \text{ emu/cm}^3$ と $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ が得られた。また、 H_c は x の増加に対して上昇する傾向が見られた。

Mn-Ga_2 元系状態図と $x = 48-60$ の組成領域を照らし合わせると、 $x = 58, 60$ が L1_0 構造を有する γ_2 相の Mn 組成領域に入っている。このことから、 $x = 58$ で高い S 、 K_u 、 M_s が得られたものと考えられる。 γ_2 相の Mn リッチ側には σ_1 相が隣接しており、 $x = 60$ では γ_2 相とともに σ_1 相も現れやすいものと推察される。

これらの結果から、良好な磁気特性が得られた $x = 58$ において n を変化させたときの、結晶構造と磁気特性について検討した。

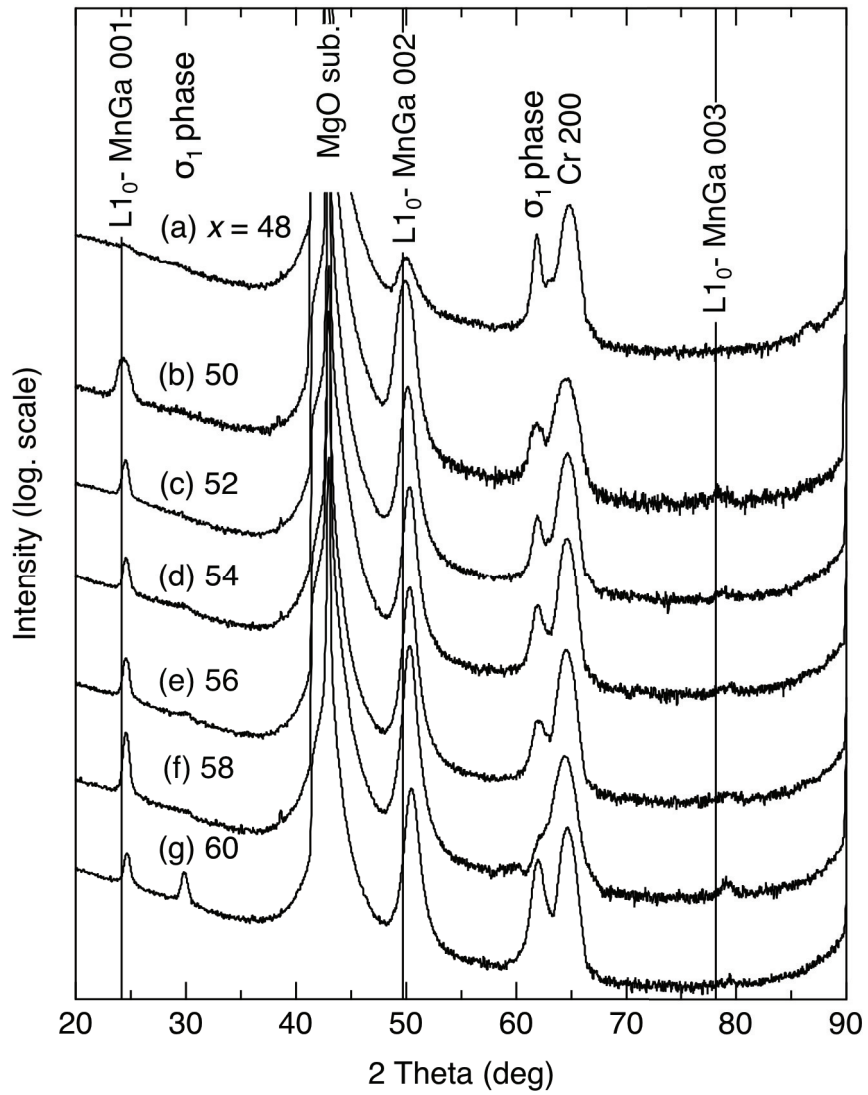


図 4.15 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $x=48$ 、(b) 50、(c) 52、(d) 54 nm、(e) 56 nm (f) 58 nm (g) 60。

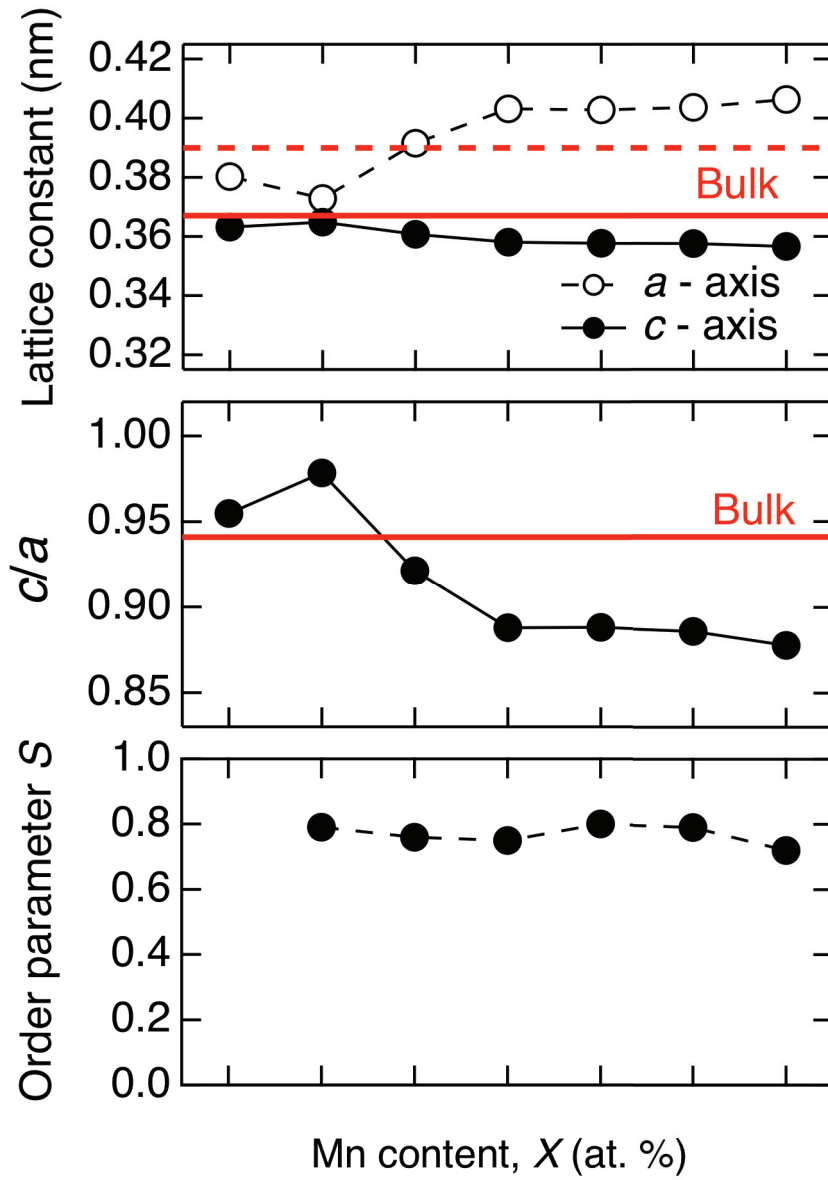


図 4.16 $Mn_xGa_{(100-x)}$ 薄膜の(a) a および c 、(b) c/a 、(c) S の x 依存性。

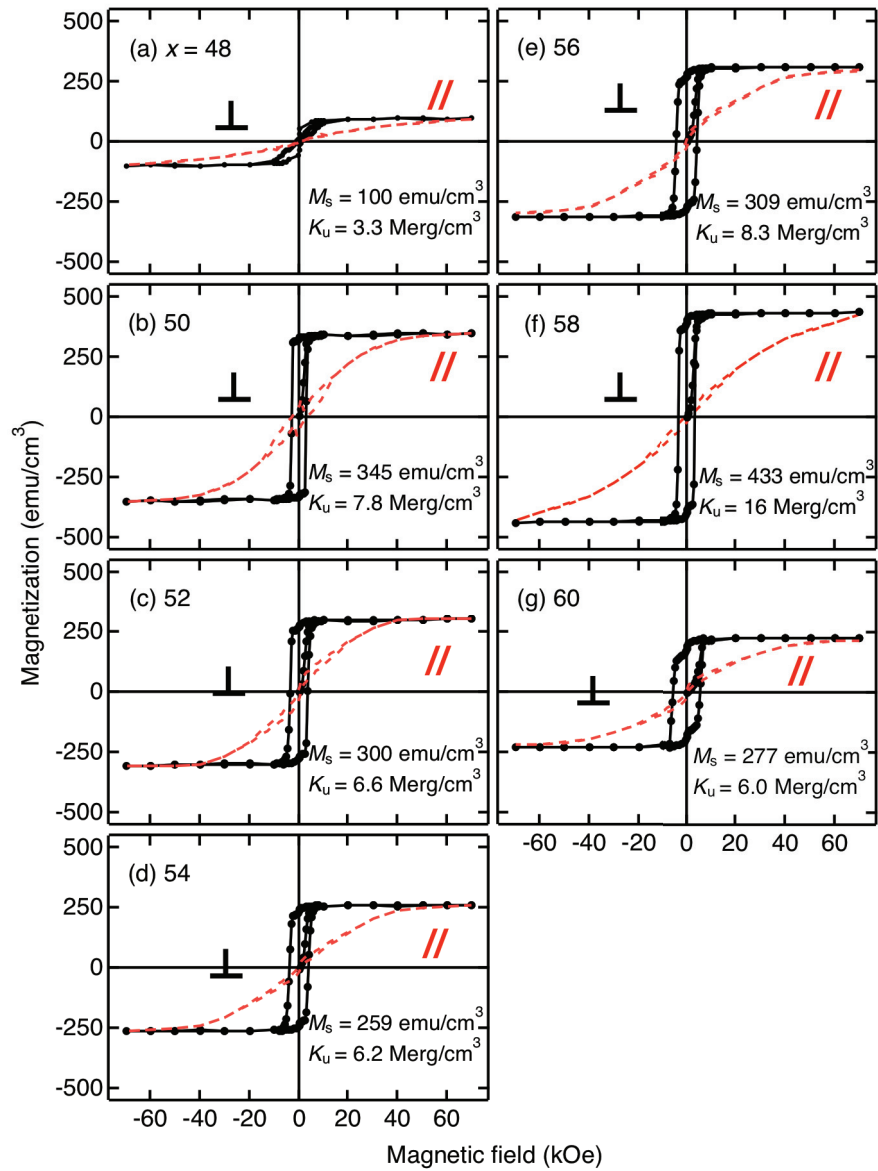


図 4.17 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $x=48$ 、(b) 50、(c) 52、(d) 54 nm、(e) 56 nm (f) 58 nm (g) 60。

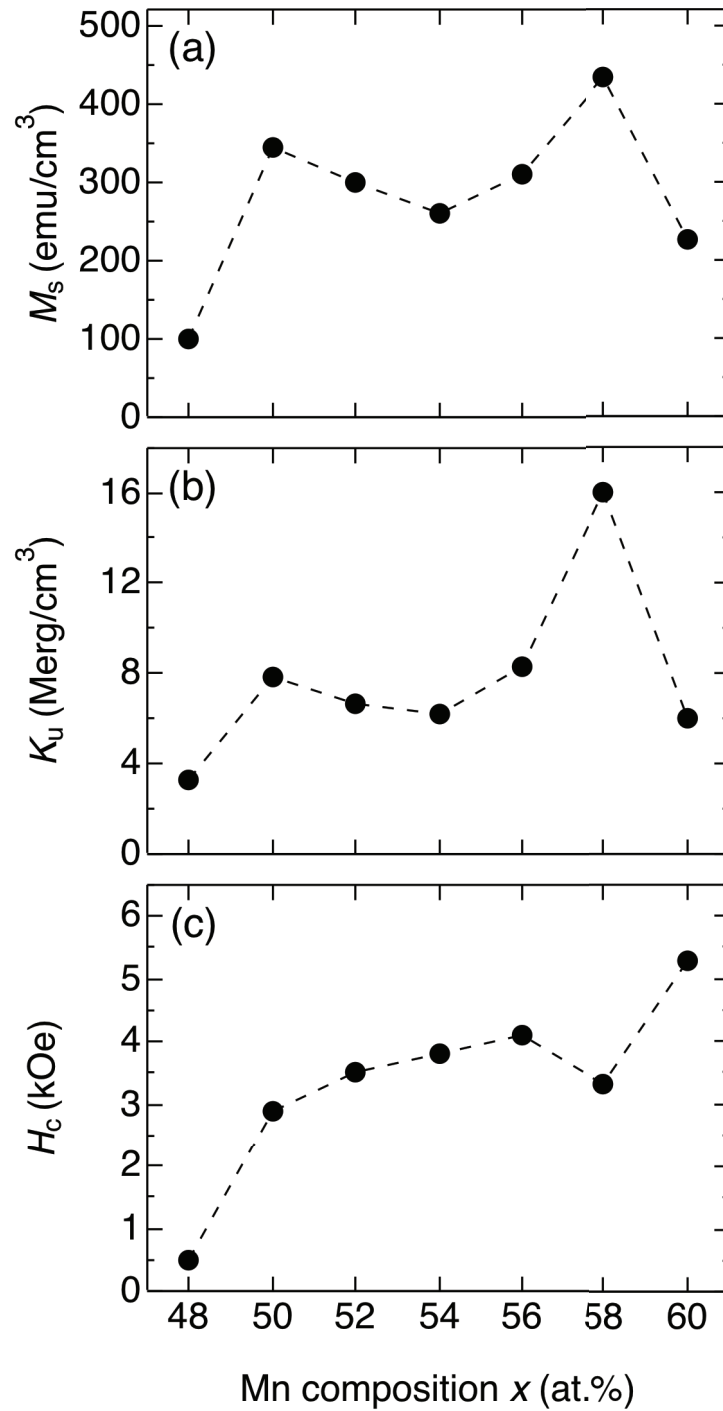


図 4.18 $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜における (a) M_s 、(b) K_u および (c) H_c の x 依存性。

4.2.5 n の変化に対する $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜の結晶構造と磁気特性

n の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の結晶構造と磁気特性の変化を検討した。 $t_{\text{buffer}} = 5 \text{ nm}$ 、 $T_s = 100^\circ\text{C}$ 、 $T_a = 400^\circ\text{C}$ 、 $x = 58$ とし、 $n = 4, 5, 7, 10, 12, 15$ と変化させた薄膜の XRD パターンと a および c 、 c/a 、 S の T_a 依存性を図 4.19(a)-(f) および図 4.20(a)-(c) に示す。を図に示す。 $n = 4$ では $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001)、(003) 超格子反射ピークおよび (002) 基本反射ピークの他に、 σ_1 相からの回折ピークが観察されたが、 $n = 5-15$ では σ_1 相がほぼ見られなくなった。このことから、 $n = 5-15$ ではほぼ単相の $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ 薄膜が得られたことが確認された。長距離規則度について、 $n = 4-15$ では S の大きな変化は認められず、 $S = 0.72-0.79$ の値が確認された。格子定数について、 a 、 c は n に対してほぼ変化しなかった。Bulk 値と比較すると、薄膜の a は Bulk 値より大きく、 c は小さいことが分かった。 c/a は Bulk 値より小さく、このことから、これら全ての薄膜において Bulk よりも c 軸が縮み、 a 軸が伸長した歪んだ結晶構造を持つことが確認された。

これら薄膜の磁化曲線と M_s 、 K_u の t_{buffer} 依存性を図 4.21(a)-(f) および図 4.22(a)-(b) に示す。を図に示す。 $n = 4$ のとき、飽和磁化 $M_s = 328 \text{ emu/cm}^3$ が確認され、 $n = 10$ で $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ まで上昇した。さらに $n = 15$ まで増加させると M_s はわずかに減少した。 K_u は n に対して不規則な変化を示したが、いずれの試料においても $1.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 以上の高い K_u が得られた。 $n = 5, 10$ で特に大きな $1.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ の K_u が確認された。 H_c については、 $n = 4$ で 5.7 kOe の H_c が確認され、 n の増加に伴い H_c が減少する傾向が得られた。

n の増加は、Mn および $\text{Mn}_{40}\text{Ga}_{60}$ 層の 1 回積層あたりの厚さが薄くなることを意味し、ポストアニールによるミキシングと結晶化がより促進されたものと思われ、これにより M_s の増加が確認されたものと考えられる。しかしながら、 n を増加させると積層時間が長くなることから成膜室内に残留したガス不純物が多く混入したことが考えられ、 $n = 12, 15$ での M_s の低下の原因となった可能性がある。

これらの結果から、最も高い M_s 、 K_u が得られた $n = 10$ の $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜を微細加工し、微小ドットにおける磁気特性について検討した。

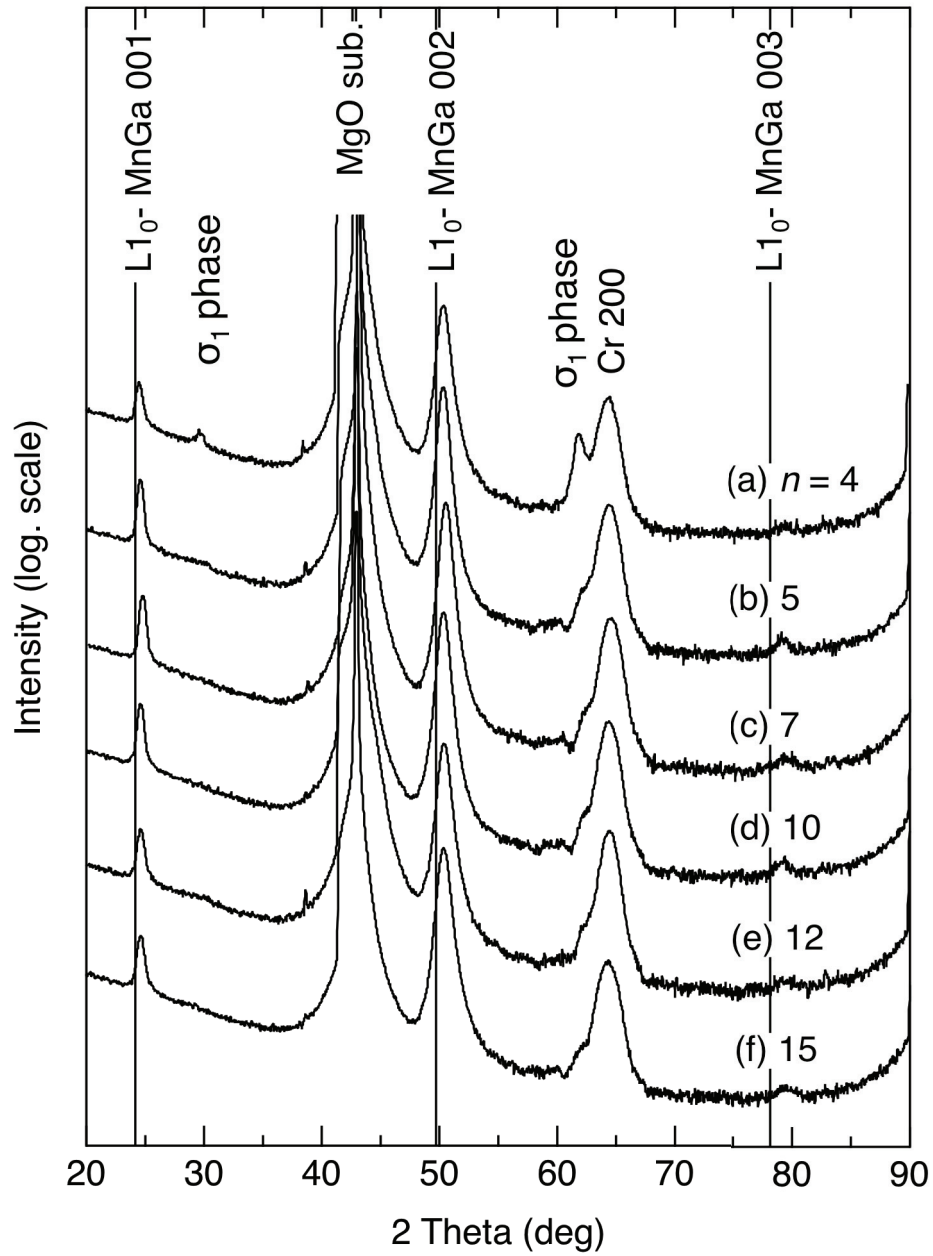


図 4.19 n を変化させた $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $n = 4$ 、(b) 5、(c) 7、(d) 10、(e) 12、(f) 15 nm。

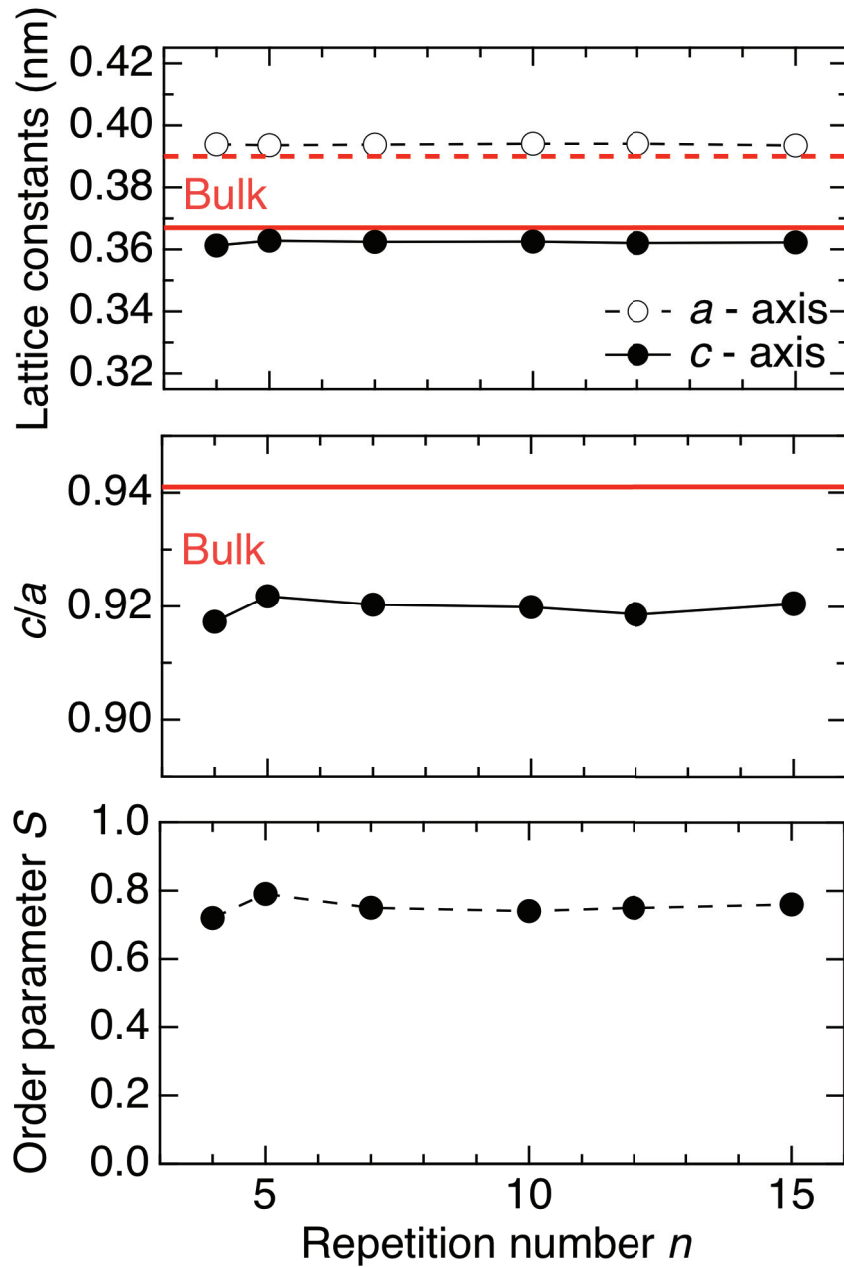


図 4.20 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜の (a) a および c , (b) c/a , (c) S の n 依存性

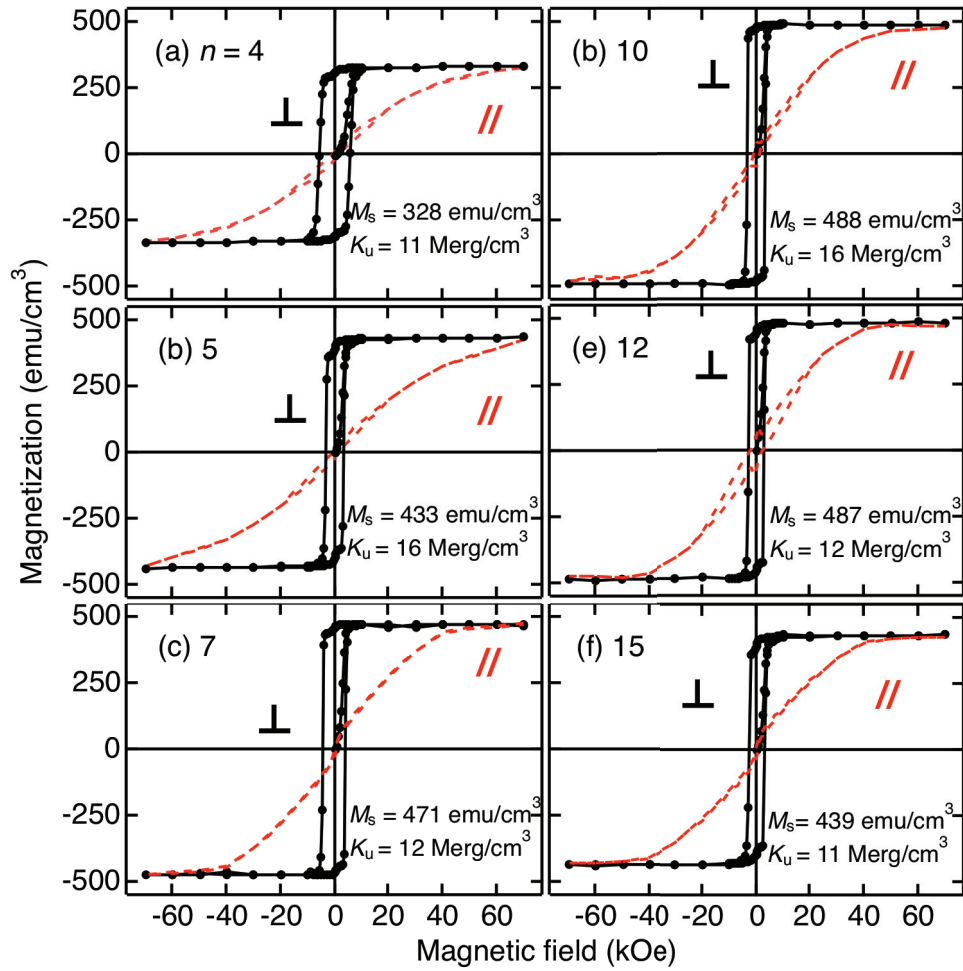


図 4.21 n を変化させた $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $n = 4$ 、(b) 5、(c) 7、(d) 10、(e) 12、(f) 15 nm。

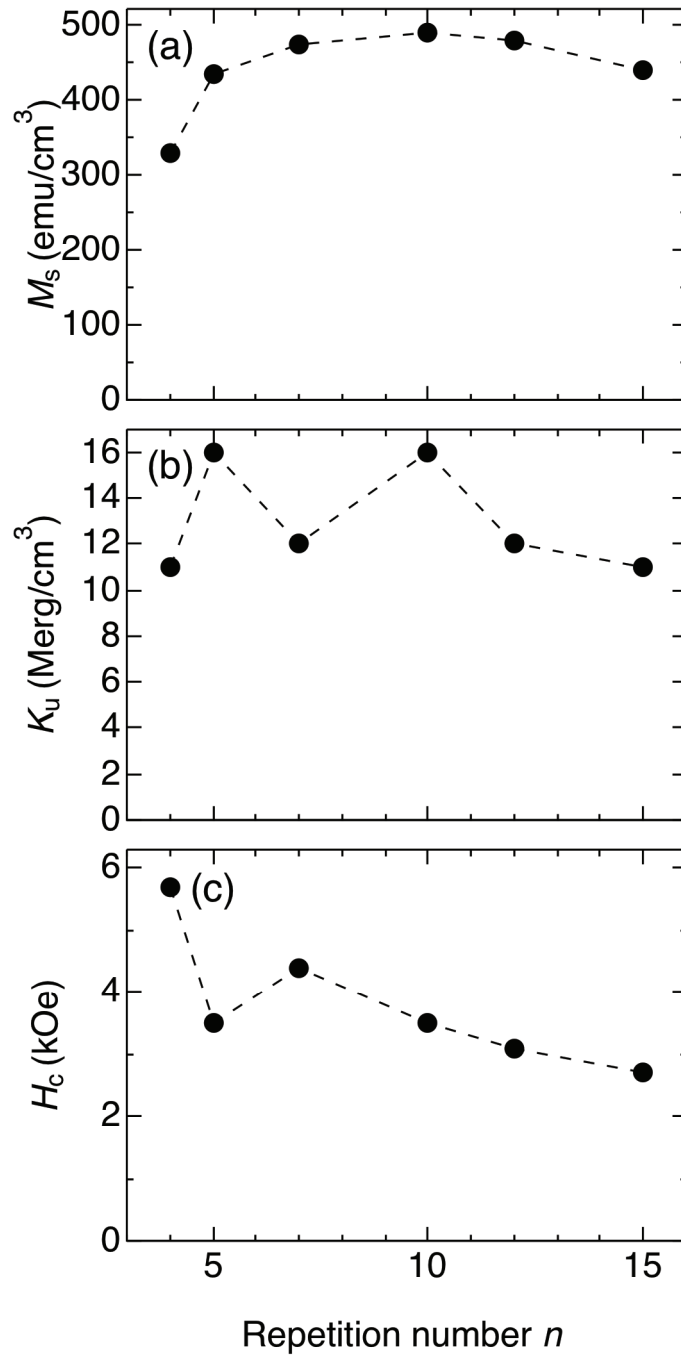


図 4.22 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜における (a) M_s 、(b) K_u および (c) H_c の n 依存性。

4.2.6 Mn₅₈Ga₄₂ 円形ドットパターンにおける磁気特性

Mn₅₈Ga₄₂ 薄膜を微細加工することによって直径 $D = 1000, 700, 500, 300, 200, 140$ nm^φ の円形ドットパターンを作製した。AFM によって観察した円形ドットパターンの形状像を図 4.23 に示す。(a)–(c)はそれぞれ $D = 1000, 500, 140$ nm^φ のドットである。これら AFM 像から、良好な円形の形状を有するドットが得られていることが確認された。

$D = 1000, 700, 500, 300, 200, 140$ nm^φ の Mn₅₈Ga₄₂ ドットにおける MOKE 曲線と、 H_c の D 依存性を図 4.24(a)–(g)及び図 4.25 に示す。 $H_c = 3.2$ kOe の連続薄膜を $D = 1000$ nm^φ の円形ドットに微細加工することにより $H_c = 4.1$ kOe に増加した。さらに D を減少させるにつれ H_c は増加し、 $D = 140$ nm^φ では 7.4 kOe の H_c が確認された。

Mn₅₈Ga₄₂ 薄膜の臨界単磁区粒径を決定するために、MFM による磁区構造観察を行った。連続薄膜およびドットパターンの、初期状態における磁気像を図 4.26(a)–(e)に示す。明るいコントラストの領域が薄膜面に対して垂直上方向、暗いコントラストが下方向を向く磁気モーメントを表している。連続薄膜、 $D = 1000, 500$ nm^φ では多磁区構造が観察されたが、 $D = 200$ nm^φ まで縮小させると二磁区構造が見られた。さらに $D = 140$ nm^φ まで縮小させると、半数以上のドットで単磁区構造が確認された。

微細加工におけるエッチングによりドット側面にダメージが入り、 K_u が低下していることを考慮し、ドットに 300°C で 30 分間、さらにその後 400°C で 30 分間の熱処理を加え K_u の回復を図った。 $D = 300, 200, 140$ nm^φ のドットの DFM による形状像、MFM による磁気像、 H_c の D 依存性をそれぞれ図 4.27, 4.28 に示す。形状観察の結果、 $D = 140$ nm^φ のドットでは熱処理の影響か円形の形状に崩れが見られた。磁気像からは、 $D = 300, 200$ nm^φ では二磁区構造と単磁区構造が観察されたが、 $D = 140$ nm^φ では二磁区構造のドットは見られなかった。磁気像に円形の欠け、消失があるドットも確認されたが、これは熱処理によりキャップ層やバッファ層とミキシングが起り磁性を失ったことが原因であると考えられる。熱処理後のドットの H_c については、 300°C で 30 分間の熱処理後 $D = 300, 200, 140$ nm^φ において H_c の増加が認められた。これは熱処理によりエッチングのダメージが回復し、 K_u が上昇したためであると考えられる。さらに 400°C で 30 分間の熱処理を加え 400°C で 30 分間の熱処理を加えたが、 $D = 200, 140$ nm^φ では H_c が変化しなかった。したがって、熱処理によりエッチングのダメージはほぼ回復したものである。

これらの結果から、二磁区構造が見られなくなった $D = 140$ nm^φ が臨界単磁区粒径であると考えられる。

磁気像観察から決定した臨界単磁区粒径をもとに、交換スティフネス定数 A を見積

もった。二磁区構造を持つ円形ドットの模式図を図 4.29 に示す。二磁区構造の場合、磁壁がドットの中央に存在していることを考えると、磁壁エネルギー γ は臨界単磁区半径 r_c 、ドット厚さ t 、 A 、 K_u を用いて

$$\gamma = 2r_c t \pi \sqrt{AK_u} \quad (5)$$

と表される。一方、このドットが単磁区構造を有している場合、その静磁エネルギー U_m は M_s 、反磁界定数 N を用いて

$$U_m = 2\pi M_s N r_c t \quad (6)$$

と表される。このドットの半径が r_c であれば、

$$\gamma = U_m \quad (7)$$

を満たすことから、

$$A = \frac{\pi^2 r_c^2 N^2 M_s^4}{K_u} \quad (8)$$

と記述することができる。薄膜の磁気特性評価から得られた $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ 、ドットの磁区構造観察から決定した $r_c = 70 \text{ nm}$ 、 $N = 0.81$ を用いると、 $A = 1.1 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ と見積もられた。表 4.1 に代表的な強磁性物質の磁気特性をまとめた。Fe、Co、L1₀-FePt、Nd₂Fe₁₄B の A と比較すると、L1₀-MnGa の A はそれらに匹敵する値であることが分かった。

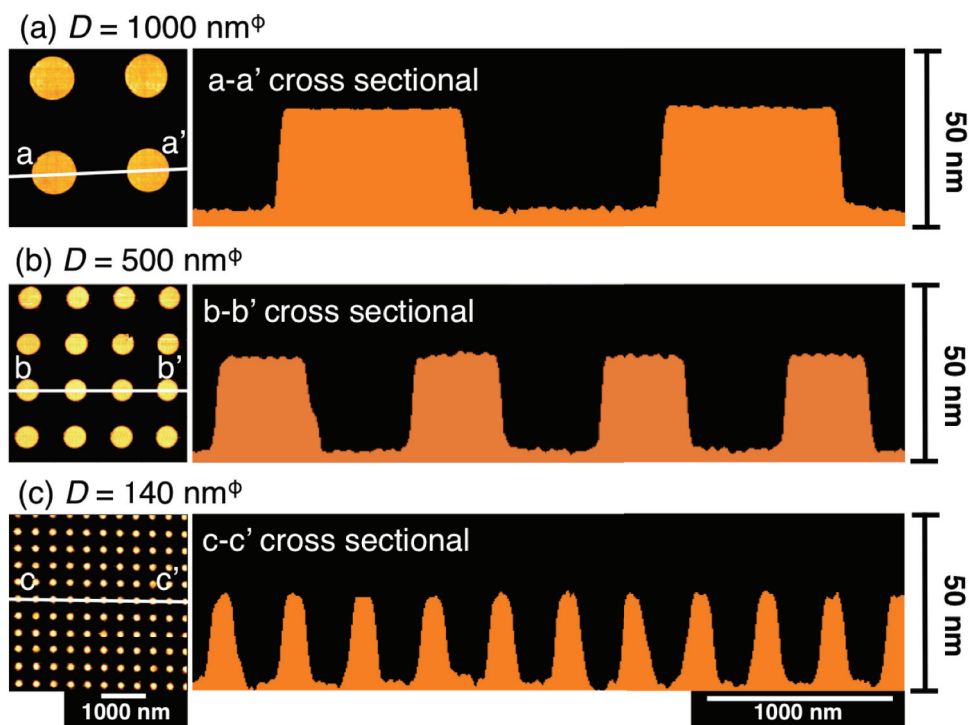


図 4.23 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ ドットの AFM 像。(a) $D = 1000 \text{ nm}$ 、(b) 500 nm (c) 140 nm 。

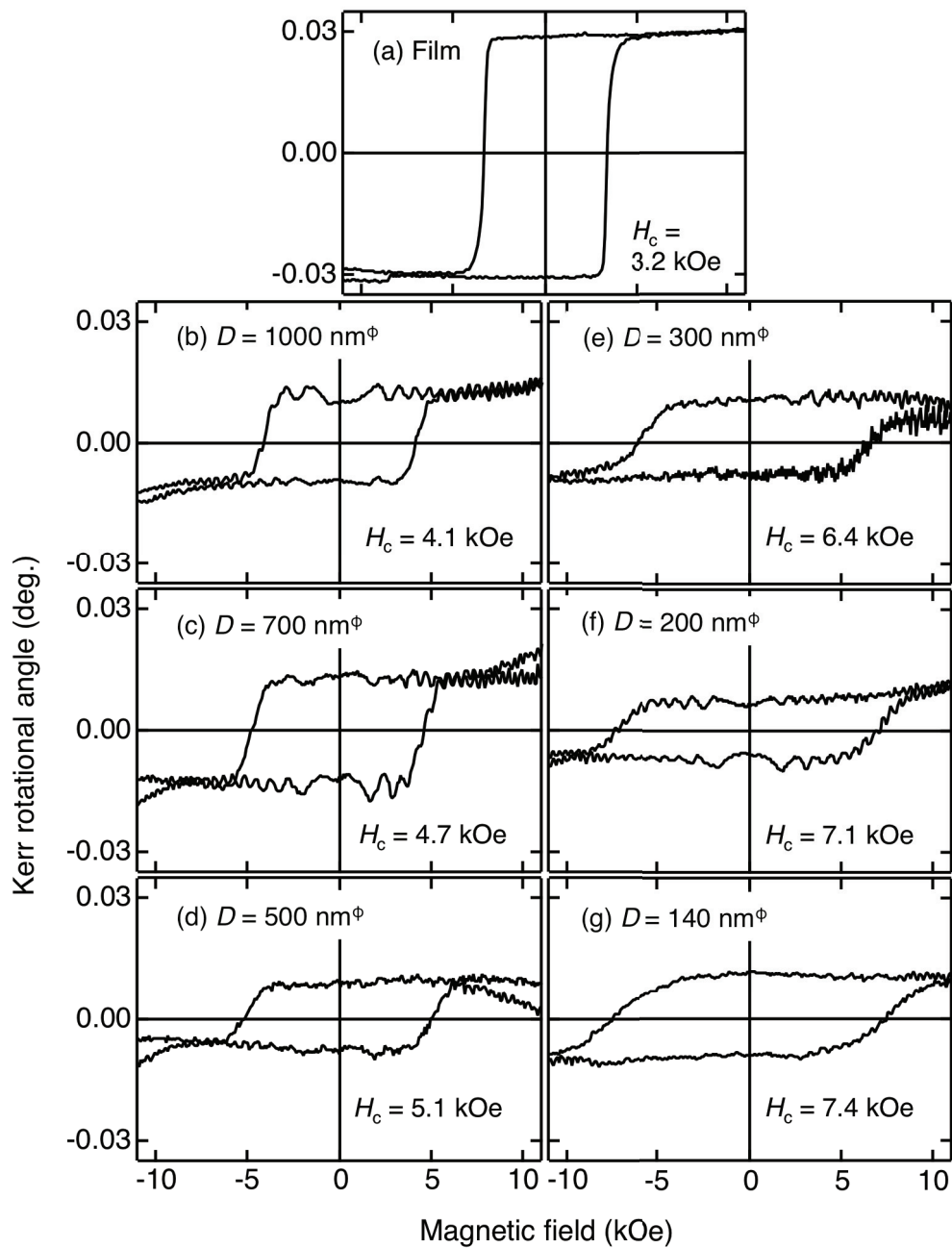


図 4.24 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ ドットの MOKE 曲線。(a) 連続薄膜、(b) $D = 1000 \text{ nm}$ 、(c) 700 nm 、(d) 500 nm 、(e) 300 nm 、(f) 200 nm 、(g) 140 nm 。

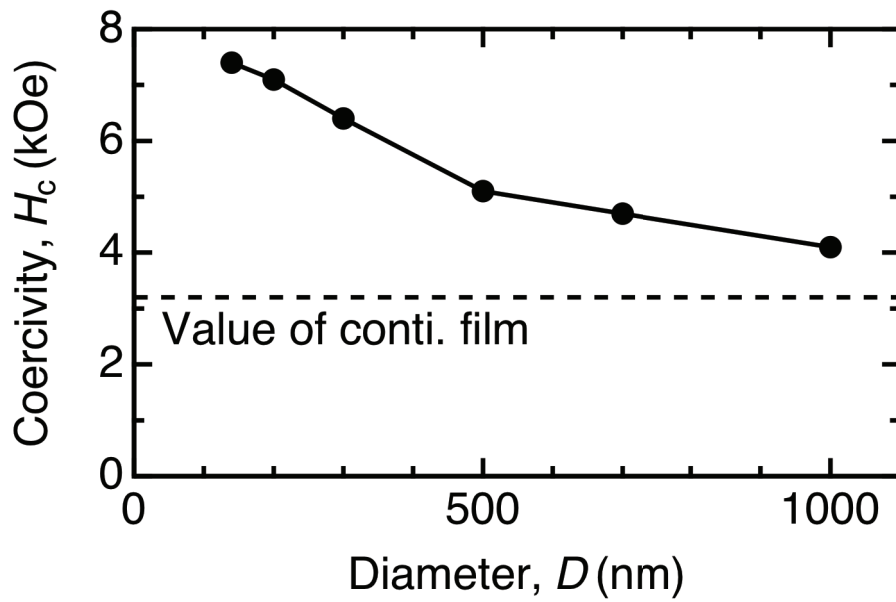


図 4.25 $Mn_{58}Ga_{42}$ ドットにおける H_c の D 依存性。

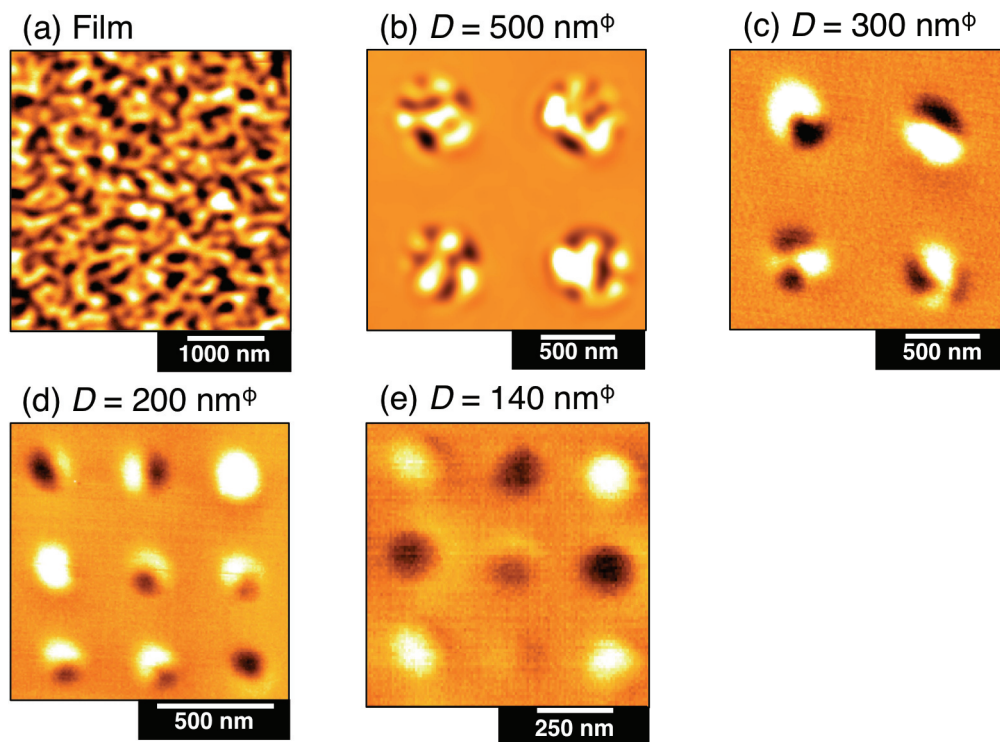


図 4.26 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ ドットの MFM 像。(a)連続薄膜、(b) $D = 500 \text{ nm}$ 、(c) 300 nm 、(d) 200 nm 、(e) 140 nm 。

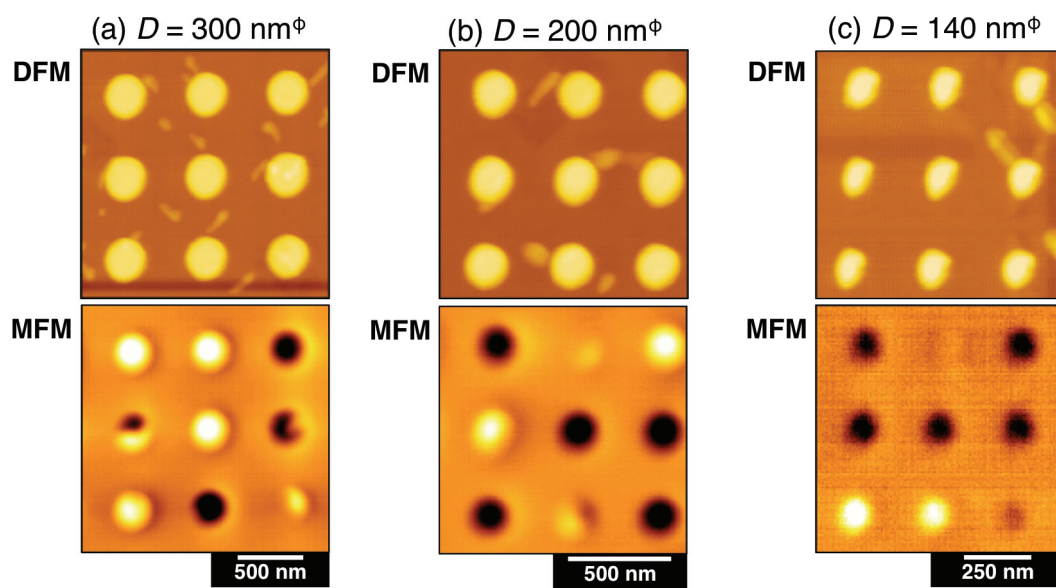


図 4.27 熱処理後の $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ ドットの DFM 像および MFM 像。(a) $D = 300 \text{ nm}$ 、(b) 200 nm 、(c) 140 nm 。

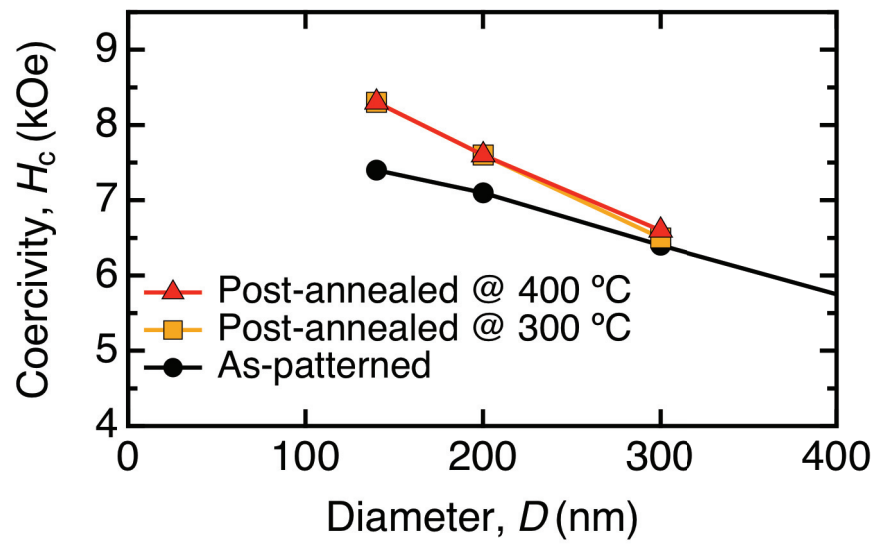


図 4.28 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ ドットにおける熱処理後の H_c の D 依存性。

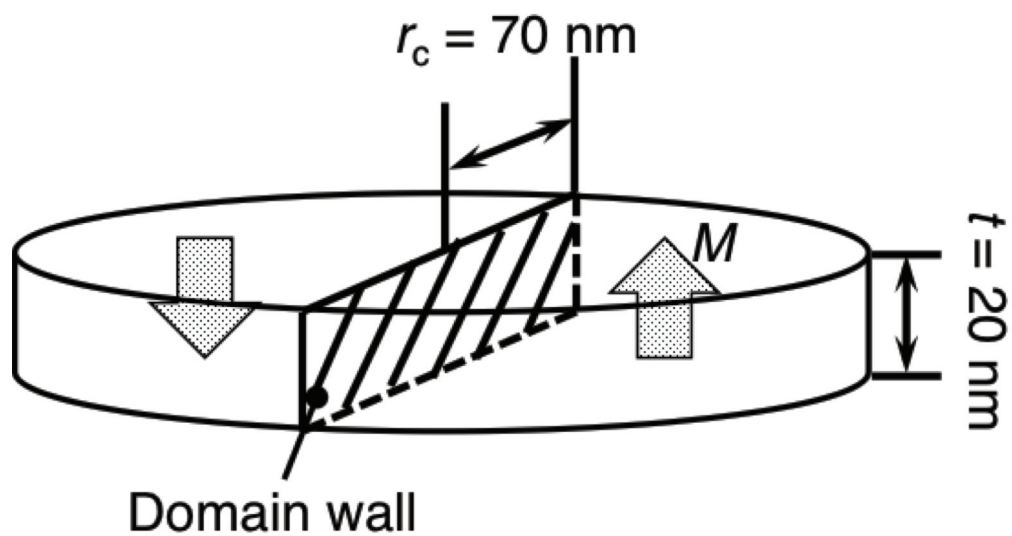


図 4.29 二磁区構造を持つ円形ドットの模式図

表 4.1 代表的な強磁性物質の磁気特性

	M_s (emu/cm ³)	K_u (erg/cm ³)	$2r_c$ (nm)	T_c (K)	A (erg/cm)
Fe	1720	$\sim 4.2 \times 10^5$	12	1043	2.0×10^{-6}
Co	1400	$\sim 5.3 \times 10^6$	70	1388	1.3×10^{-6}
$L1_0$ -FePt	1140	$\sim 6.6 \times 10^7$	340	723	1.6×10^{-6}
$Nd_2Fe_{14}B$	1260	$\sim 4.5 \times 10^7$	210	585	0.8×10^{-6}
$L1_0$ -MnGa	488	$\sim 1.6 \times 10^7$	140	595	1.1×10^{-6}

4.3 小括

交互積層法により $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 単層薄膜を作製し、その結晶構造と磁気特性を評価した。さらに、それを円形ドットパターンに微細加工し、磁区構造観察を行うことにより臨界単磁区粒径と交換スティフネス定数を明らかにした。

- $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 単層薄膜においては、 L1_0 構造が得られ、最大で $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ が確認された。
- 円形ドットに微細加工し、 D を減少させることにより H_c の増加が確認された。
- 磁区構造観察から臨界単磁区粒径は 140 nm であることが明らかとなった。
- 交換スティフネス定数は $1.1 \times 10^6 \text{ erg/cm}$ と見積もられた。この値は他の主な強磁性物質に匹敵している。

第 5 章 $L1_0\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 多層薄膜および円形ドットの作製と磁気特性

本章では Mn-Ga 系合金の多値磁気記録媒体への応用に向け、 $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 単層薄膜、 $L1_0\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 多層薄膜およびその円形ドットを作製し、結晶構造評価、磁気特性評価を行なった。

5.1 実験方法

$\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 単層薄膜、 $L1_0\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 多層薄膜およびその円形ドットの作製方法について説明する。成膜装置は第 4 章と同じものを用いた。微細加工は第 4 章で述べた通りに行った。結晶構造評価、磁気特性評価については第 2、3 章で述べた方法と同様に行った。

4.1.1 成膜方法

$\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 単層薄膜の成膜方法について説明する。成膜装置は第 4 章と同じものを用いた。700°C で 30 分間加熱して表面をクリーニングした MgO (100) 単結晶基板の上に Cr バッファ層 5 nm を室温で成膜し、700°C で 30 分間の熱処理を行い、Cr バッファ層表面を平坦化させた。次に、 $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 層は交互積層法によって成膜した。基板温度 $T_s = 100, 300^\circ\text{C}$ で Mn 層、MnGa 層の順に交互積層数 $n = 10$ として積層し、合計 20 nm 成膜した。交互積層における MnGa 層の成膜には MnGa (40:60 at. %) 合金ターゲットを用いた。組成は Mn、MnGa 層の体積比を変化させ、Mn 組成 $x = 70\text{--}74$ at. % となるように交互積層した。この組成は D0_{22} 構造を得ることを狙いとしている。後熱処理は $T_a = 400^\circ\text{C}$ で 60 分間行った。最後に酸化防止層として Cr を 10 nm 成膜した。

次に多層薄膜の成膜方法について説明する。Cr バッファ層まで単層薄膜と同様に成膜した後、下層 $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ として $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層を $T_s = 100^\circ\text{C}$ で交互積層法によって 20 nm 成膜した。この次に、室温で中間層として Cr 層を $t_{\text{spacer}} = 0\text{--}40$ nm 成膜した。さらに、上層 $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ として $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層を $T_s = 300^\circ\text{C}$ で交互積層法によって 20 nm 成膜した。後熱処理は $T_a = 400^\circ\text{C}$ で 60 分間行った。最後に酸化防止層として Cr を 10 nm 成膜した。

5.2 結果と考察

5.2.1 x の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の結晶構造と磁気特性 ($x = 70-74$)

x の変化に対する $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ の結晶構造と磁気特性の変化を検討した。 $T_s = 100^\circ\text{C}$ で成膜し、 $x = 70, 71, 72, 73, 74$ と変化させた薄膜の XRD パターンと、 $c, a, c/a, S$ の x 依存性をそれぞれ図 5.1(a)-(e) および図 5.2(a)-(c) に示す。 $x = 70$ では D0_{22} 相の他に σ_1 相からの回折ピークが顕著に現れた。 $x = 71-74$ では σ_1 相からの回折ピーク強度が減少したが、完全には消失しなかったことから D0_{22} 単相は得られていないと思われる。格子定数については、 x の増加に対して a はほぼ変化しなかったが、 c は縮小した。Bulk 値に対して a は一定して大きく、 c は小さかった。 c/a は x の増加に対して減少し、Bulk よりも小さい値を示した。これらのことから、Bulk よりも c 軸方向に縮んだ結晶構造が得られていることが確認された。 S は x の増加に対しておよそ 0.59 で一定だった。

これら薄膜の磁化曲線と、 M_s, K_u, H_c の x 依存性をそれぞれ図 5.3(a)-(e) および図 5.4(a)-(c) に示す。 $x = 70$ から 71 に増加させると M_s および K_u は大きく上昇したが、さらに x を増加させると M_s, K_u 共に減少した。 $x = 71$ ではどちらも最大の $M_s = 283 \text{ emu/cm}^3, K_u = 11 \text{ Merg/cm}^3$ が得られたが、磁化曲線における 0 磁場付近に σ_1 相が起因すると思われるステップが確認された。 H_c は、 $x = 71$ を除く試料において 10 kOe 以上の値が確認された。

σ_1 相が存在しない、 D0_{22} 単相薄膜を得るために、 $T_s = 300^\circ\text{C}$ に上昇させて薄膜作製を行った。 $x = 71, 72, 73, 74$ と変化させた薄膜の XRD パターンと磁化曲線をそれぞれ図に示す。全ての x において σ_1 相からの回折ピークは確認されず、 D0_{22} 相の (002)、(004) ピークが明瞭に観察された。このことから、 c 軸方向に配向した D0_{22} 単相薄膜が得られていることが確認された。磁気特性については、 M_s は $x = 71$ の 298 emu/cm^3 から x の増加に対して減少し、反対に H_c は 10.1 kOe から緩やかに上層した。 K_u に大きな変化は見られず、10 から 11 Merg/cm^3 の K_u が得られた。

これら薄膜は、 L1_0 構造を持つ $x = 48-60$ における薄膜と比較して H_c が高く、 $\text{L1}_0\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ と $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ により多層薄膜とすれば、それぞれの $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 層が異なる印加磁場で磁化反転することが期待される。

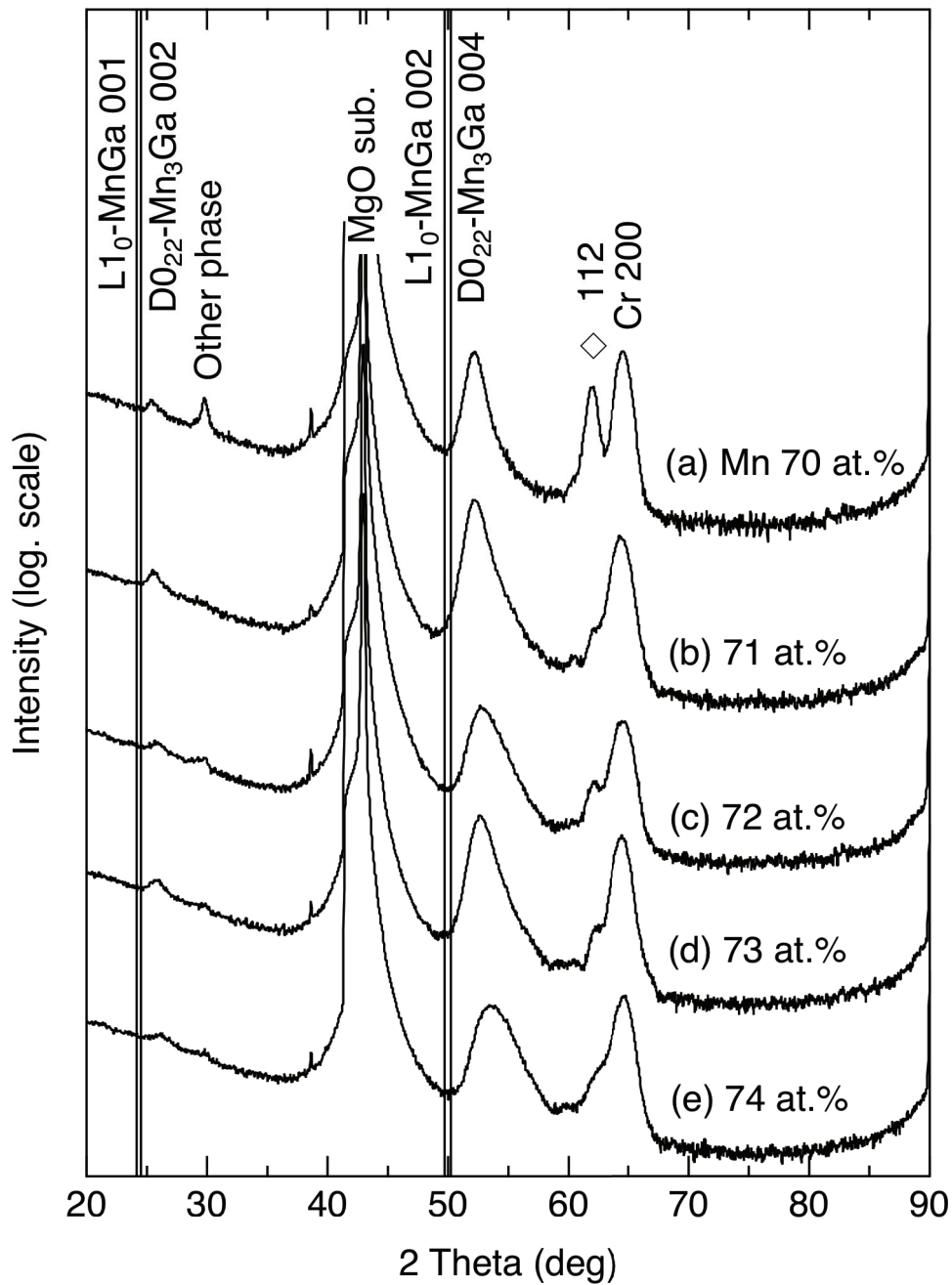


図 5.1 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $x=70$ 、(b) 71、(c) 72、(d) 73、(e) 74。 $T_s=100^\circ\text{C}$ 。

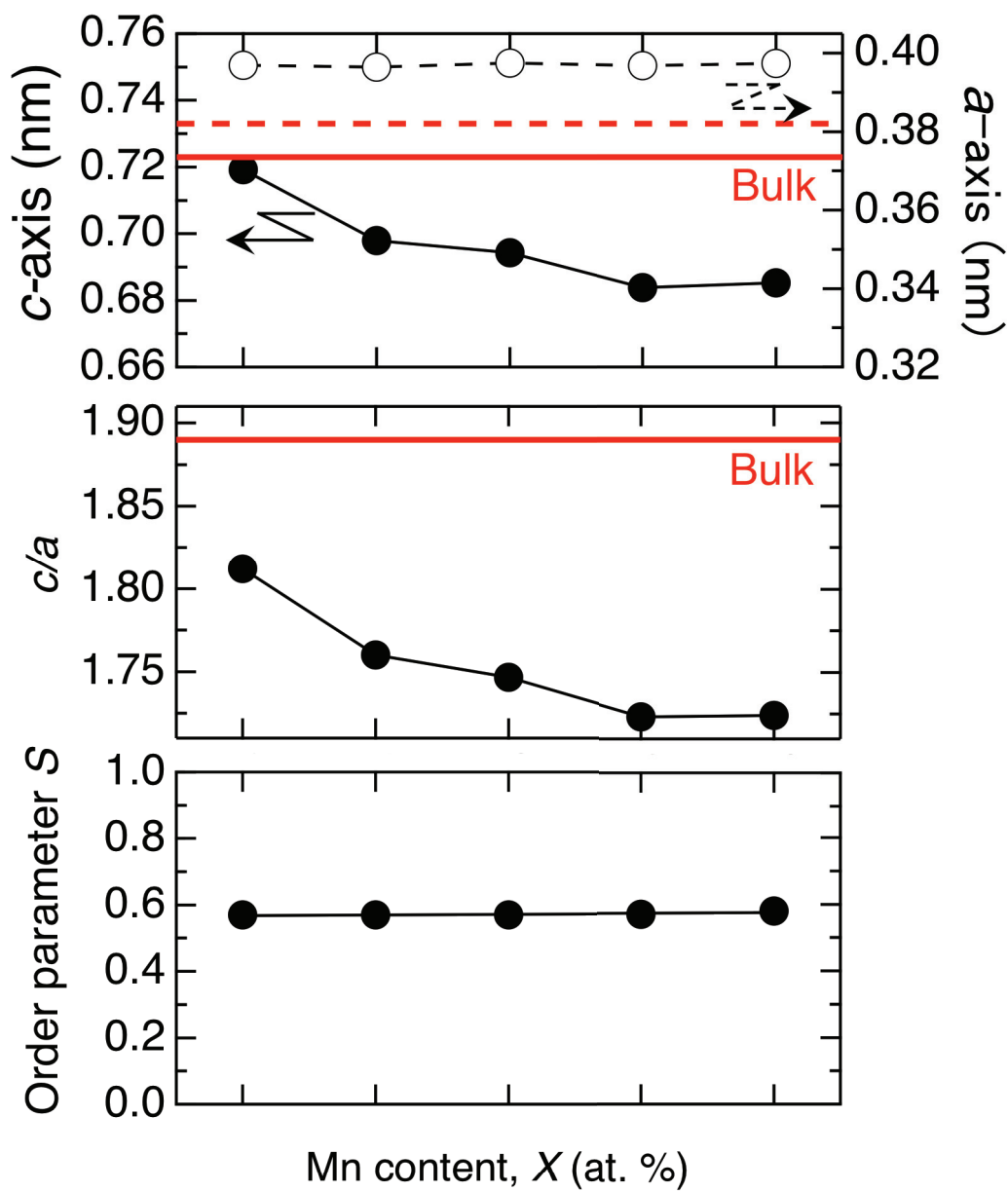


図 5.2 $Mn_xGa_{(100-x)}$ 薄膜の (a) a および c , (b) c/a , (c) S の x 依存性。

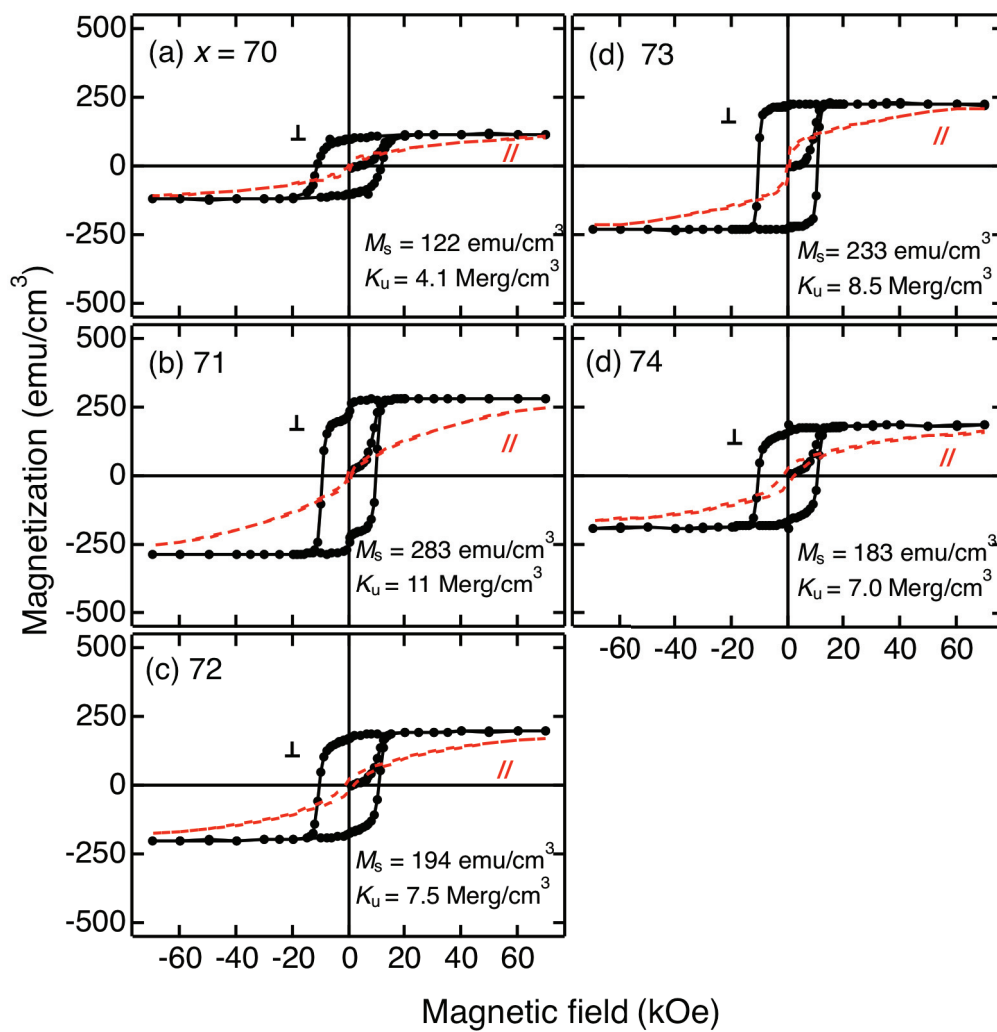


図 5.3 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $x=70$ 、(b) 71、(c) 72、(d) 73、(e) 74。 $T_s=100^\circ\text{C}$ 。

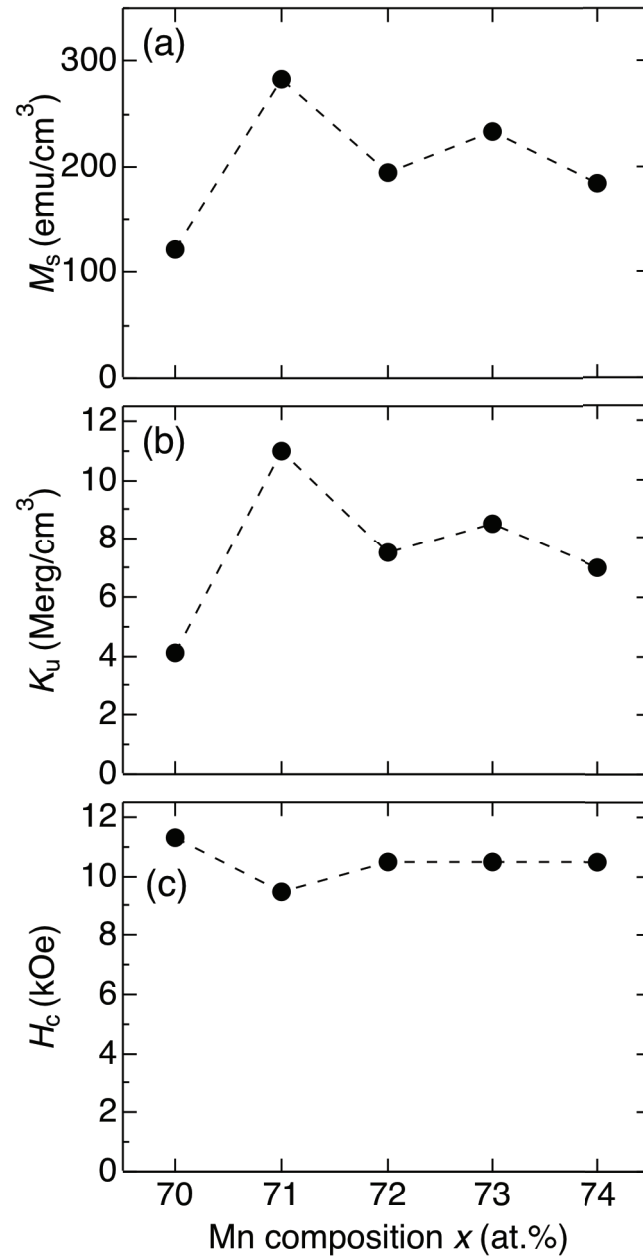


図 5.4 $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜における (a) M_s 、(b) K_u および (c) H_c の x 依存性。

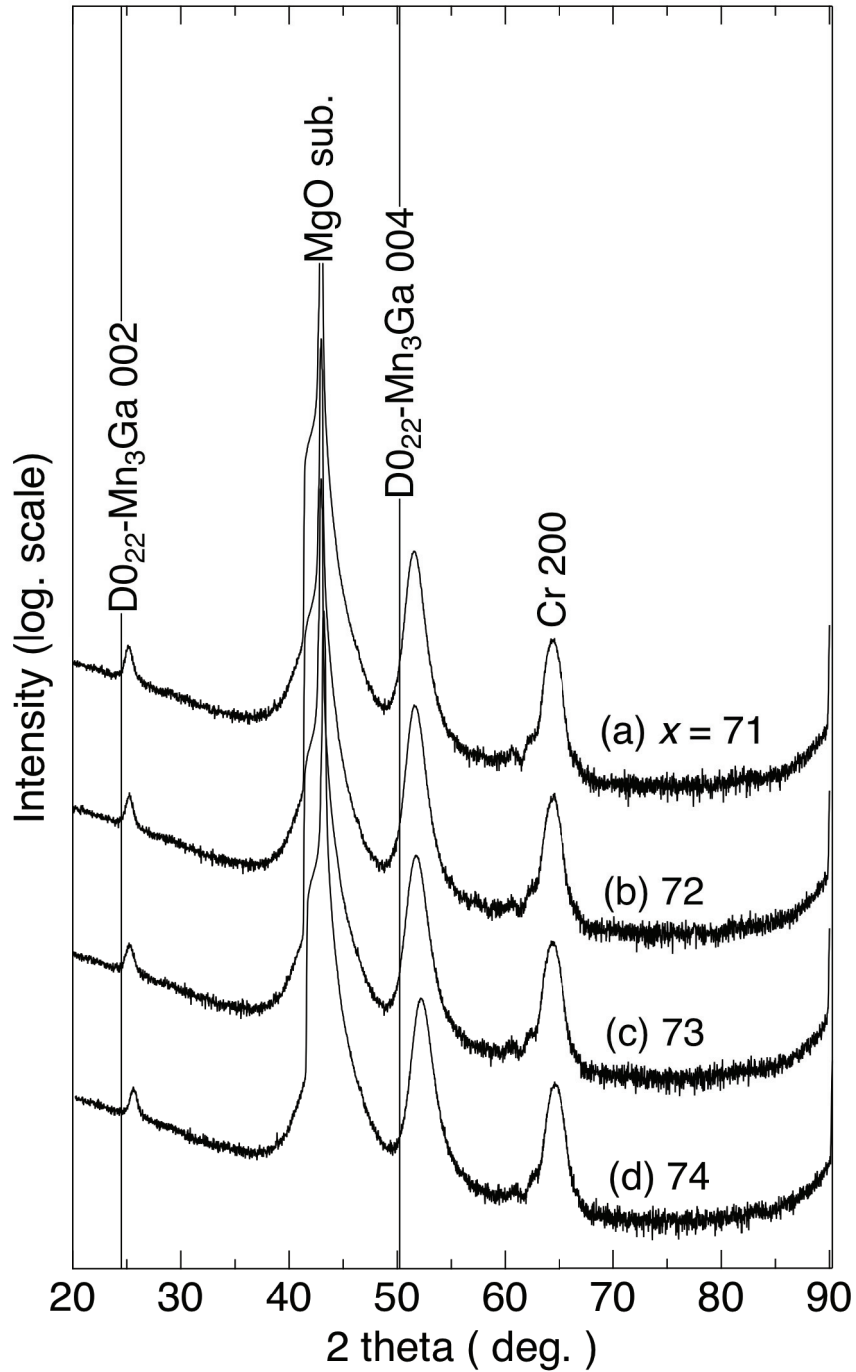


図 5.5 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の XRD パターン。(a) $x = 71$ 、(b) 72、(c) 73、(d) 74。 $T_s = 300^\circ\text{C}$ 。

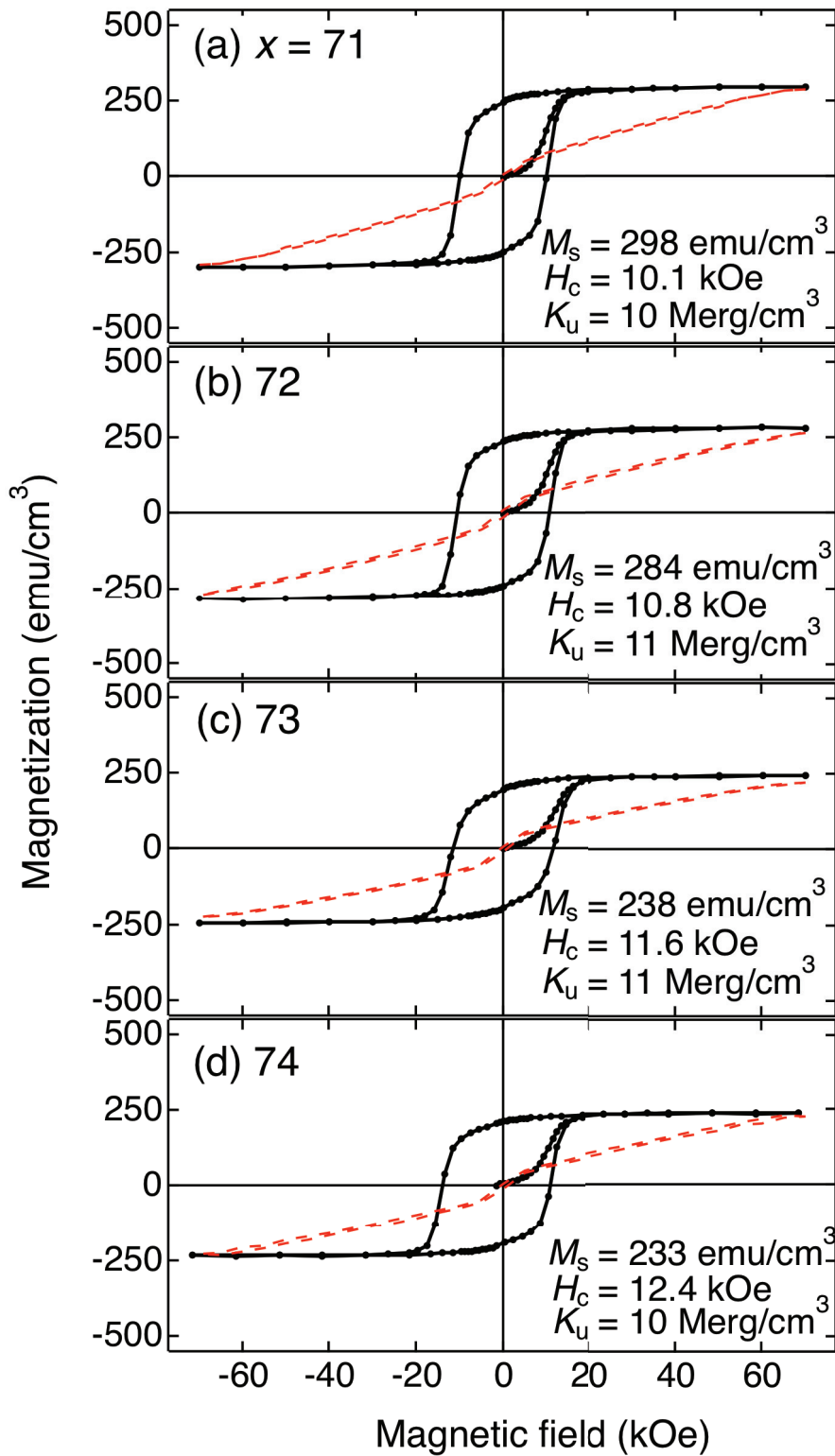


図 5.5 x を変化させた $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 薄膜の磁化曲線。(a) $x = 71$ 、(b) 72、(c) 73、(d) 74。 $T_s = 300^\circ\text{C}$ 。

5.2.2 t_{spacer} の変化に対する $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層薄膜の結晶構造と磁気特性

第4章で示した通り、 $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ の良好な磁気特性が得られ、比較的小さな $H_c = 3.2 \text{ kOe}$ が確認された $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 薄膜、そして、比較的高い $K_u = 11 \text{ Merg/cm}^3$ および $H_c = 11.1 \text{ kOe}$ が得られた $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 薄膜をもとに、 $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層薄膜を作製し、Cr 中間層厚 t_{spacer} を変化させた時の結晶構造と磁気特性について検討した。 $t_{\text{spacer}} = 0, 1, 5, 10, 20, 30, 40 \text{ nm}$ と変化させた時の多層薄膜の XRD パターンを図 5.6(a)–(g) に示す。 $t_{\text{spacer}} = 0 \text{ nm}$ を除く試料において、 $\text{L1}_0\text{-MnGa}$ の (001)、(002) および $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_3\text{Ga}$ の (002)、(004) ピークが明瞭に別れて観察され、 $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層と $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層がそれぞれ c 軸方向に配向していることが確認された。

これら薄膜の磁化曲線を図 5.7(a)–(g) に示す。 $t_{\text{spacer}} = 5 \text{ nm}$ 以上から、上下の Mn-Ga 層がそれぞれ独立して磁化反転していることを示すステップが観察された。低磁場で磁化反転しているのが、 H_c が低い $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層、高磁場で磁化反転しているのが、 H_c が高い $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層であると考えられる。また、単層薄膜においては、 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ で $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ で $M_s = 238 \text{ emu/cm}^3$ が確認され、 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ の M_s が $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ のおよそ 2 倍程度であったが、これは多層薄膜の 1 度目と 2 度目に反転した磁化の絶対値の比はおよそ 2 : 1 に対応しており、このことから低磁場で磁化反転しているのが $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層であると考えられる。

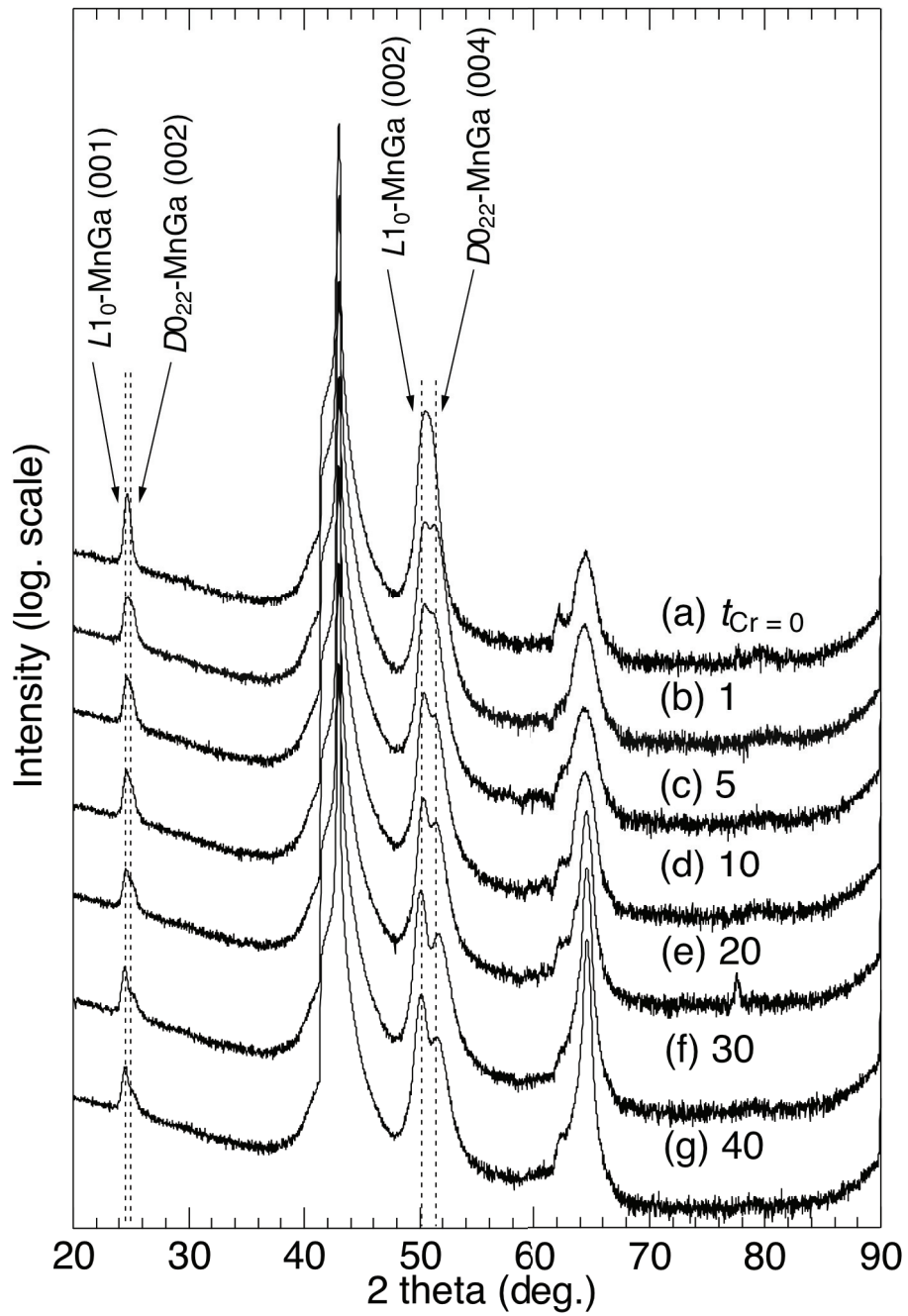


図 5.6 t_{spacer} を変化させた $L1_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/D0_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層薄膜の XRD パターン。(a) $t_{\text{spacer}} = 0$ 、(b) 1、(c) 5、(d) 10、(e) 20、(f) 30、(g) 40。

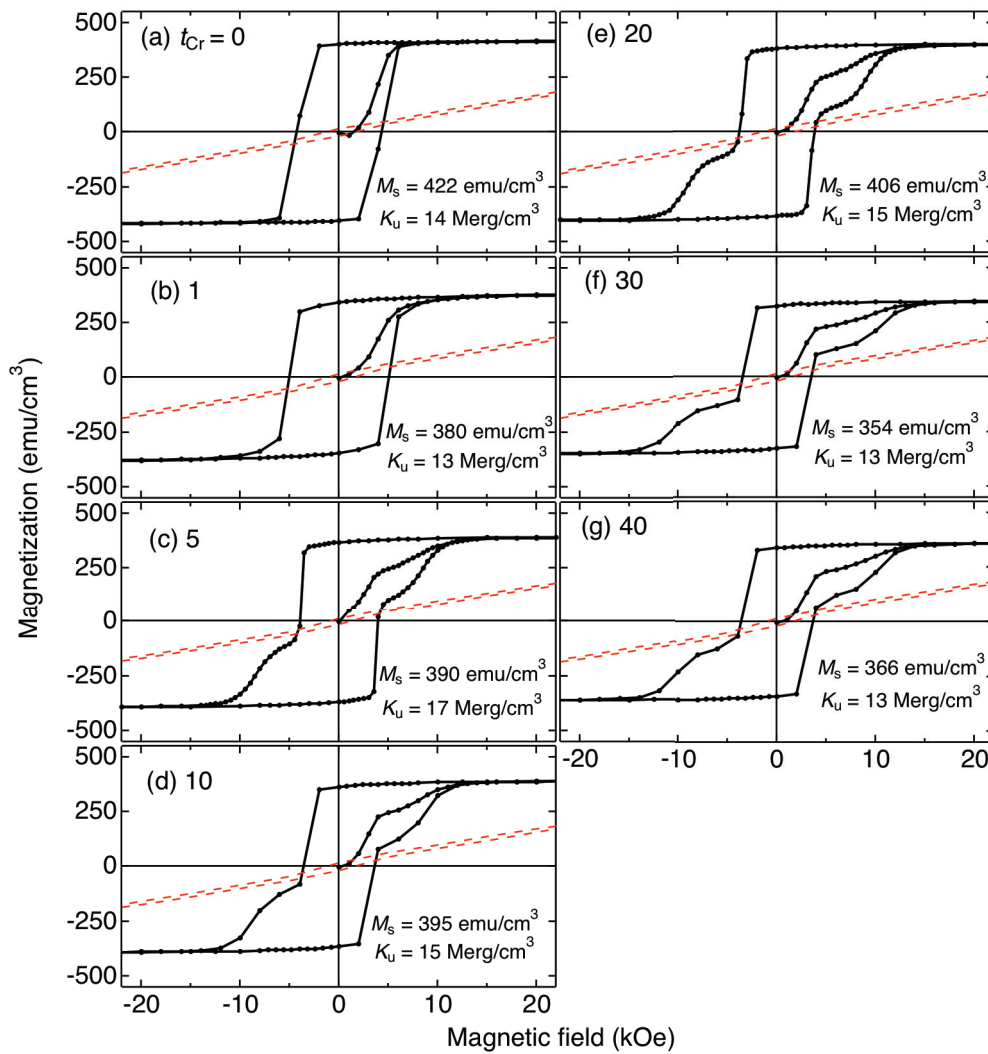


図 5.7 t_{spacer} を変化させた L10-Mn₅₈Ga₄₂/Cr/D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 多層薄膜の磁化曲線。
 (a) $t_{\text{spacer}} = 0$ 、(b) 1、(c) 5、(d) 10、(e) 20、(f) 30、(g) 40。

5.2.3 D の変化に対する $L1_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/\text{D}0_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層ドットの磁気特性

磁化曲線に明瞭にステップが観察された薄膜の中で、最も総膜厚が薄い $t_{\text{spacer}} = 5 \text{ nm}$ の試料を $D = 2, 1, 0.3, 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ の円形ドットパターンに微細加工した。薄い試料を選んだのはエッチング時間を短縮できる利点からである。

微細加工により得られたドットの MOKE 曲線および、 H_c の D 依存性をそれぞれ図 5.8(a)–(e) および図 5.9 に示す。レーザーが下層の $L1_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層まで侵入しなかったためか測定が行えなかったため、薄膜の表面、裏面(基板側)それぞれからレーザーを照射して測定を行なった。MgO 基板はレーザーを透過させるため、これが可能である。黒線が表面、赤線が裏面から測定した MOKE 曲線を示している。連続薄膜において、表面から測定した MOKE 曲線の方が大きな H_c を示していることから、表面からの MOKE 曲線は上にある $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層、裏面からの MOKE 曲線は下にある $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の磁気特性をそれぞれ表していることが確認された。 $D = 0.3 \text{ }\mu\text{m}$ まではこれら Mn-Ga 層の H_c に差が見られたが、 $D = 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ ではほぼ同値となった。 H_c の D 依存性を見ると、 D の減少に伴い、 $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層の H_c は緩やかに、 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の H_c は急激に上昇する様子が確認された。 $L1_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の K_u が $\text{D}0_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層よりも大きいため、さらなる D の減少によって、 $L1_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の H_c が大きく上昇し、ビットサイズ 15 nm において $\text{D}0_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層の H_c と差が生まれる可能性がある。

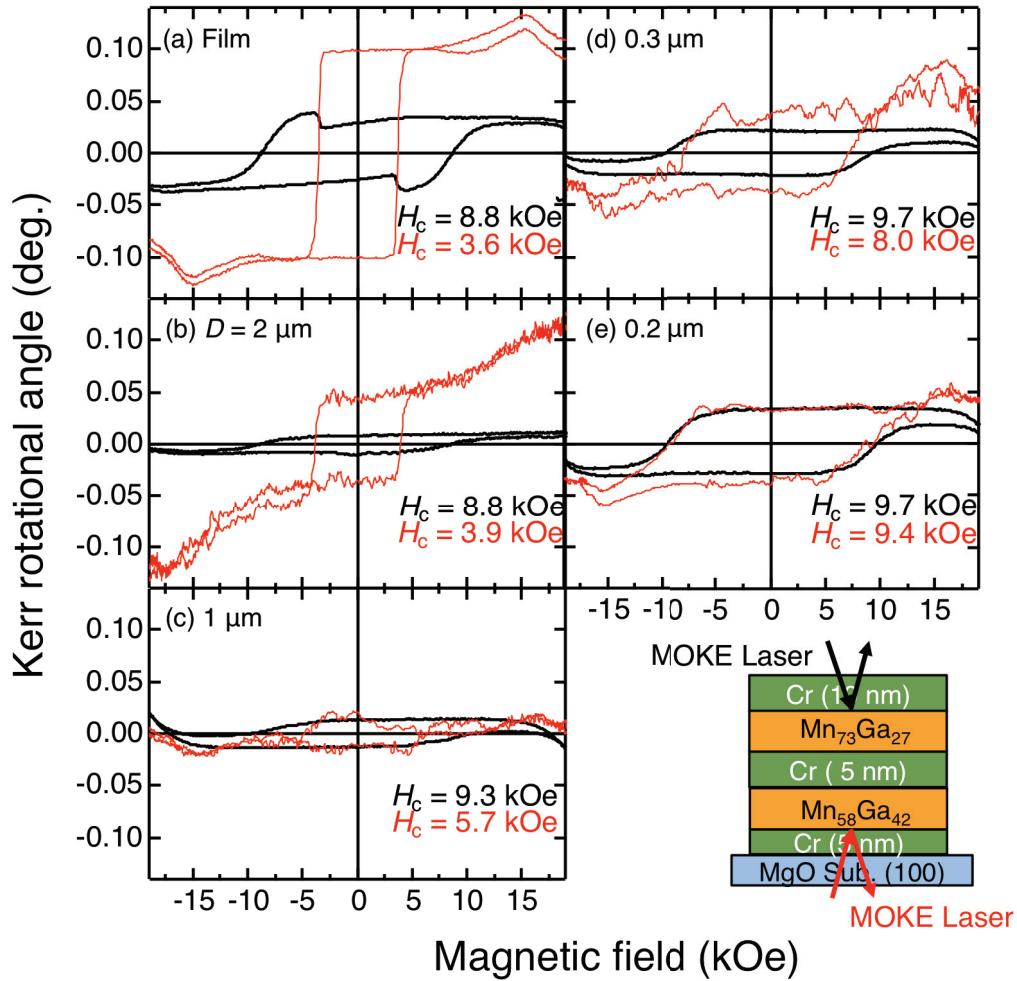


図 5.8 $\text{L}_{10}\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr } 5\text{nm}/\text{D}_{022}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層ドットの MOKE 曲線。(a) 連続薄膜、(b) $D = 2 \mu\text{m}$ 、(c) $1 \mu\text{m}$ 、(d) $0.3 \mu\text{m}$ 、(e) $0.2 \mu\text{m}$ 。

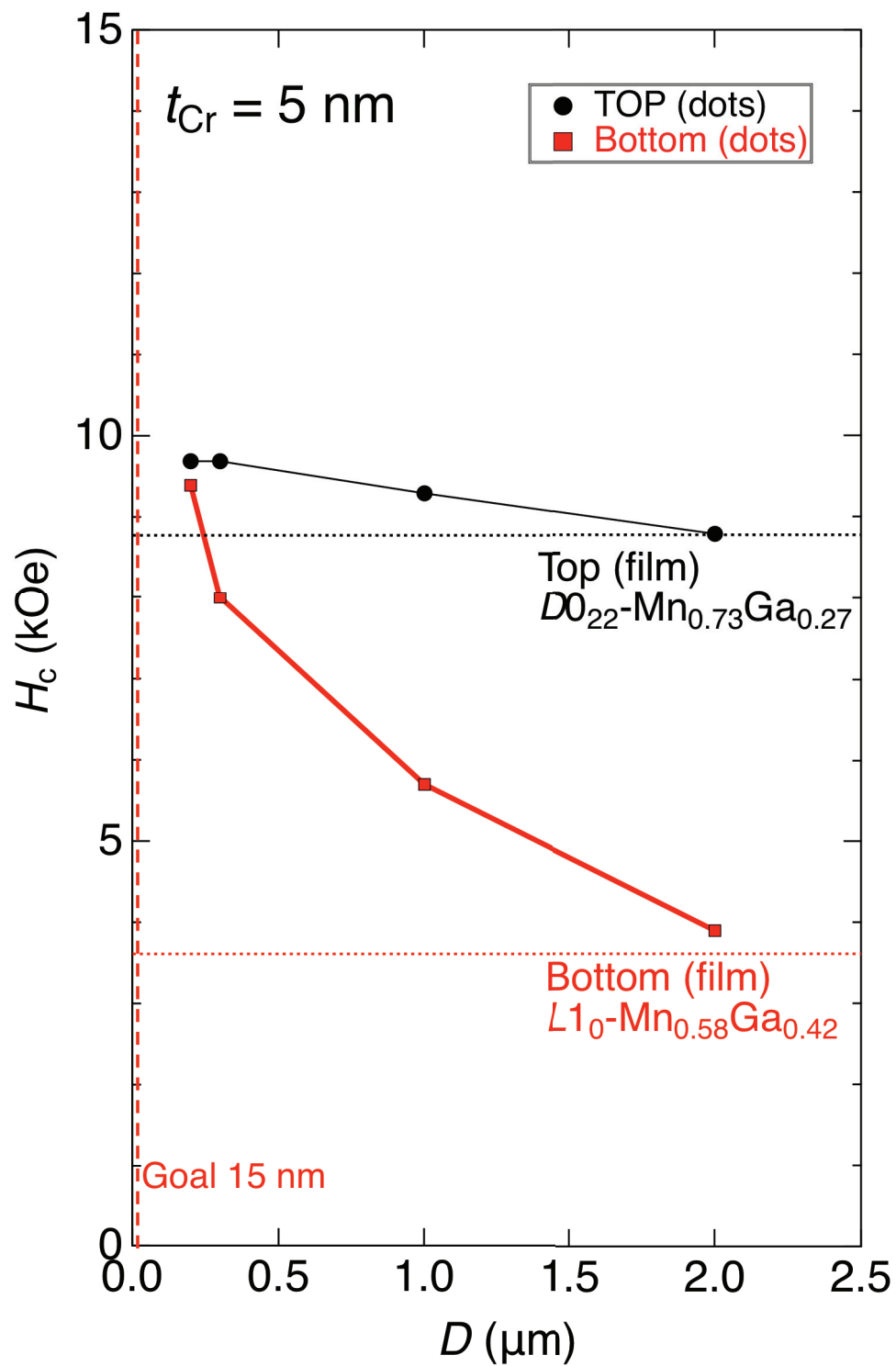


図 5.9 $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr } 5\text{nm}/\text{DO}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層ドットにおける H_c の D 依存性。

5.3 小括

L1₀-Mn₅₈Ga₄₂/Cr/D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 多層薄膜を作製し、Cr 中間層厚 t_{spacer} を変化させた時の結晶構造と磁気特性について検討した。

- $t_{\text{spacer}} = 5\text{-}40\text{ nm}$ の多層薄膜の磁化曲線から磁性層の独立した磁化反転を示すステップが確認された。
- ドット加工後、サイズを減少させ、 $D = 0.3\text{ }\mu\text{m}$ まではこれら Mn-Ga 層の H_c に差が見られたが、 $D = 0.2\text{ }\mu\text{m}$ ではほぼ同値となった。
- D の減少に伴い、Mn₇₃Ga₂₇ 層の H_c は緩やかに、Mn₅₈Ga₄₂ 層の H_c は急激に上昇する様子が確認された。

L1₀-Mn₅₈Ga₄₂ 層の K_u が D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 層よりも大きいため、さらなる D の減少によって、L1₀-Mn₅₈Ga₄₂ 層の H_c が大きく上昇し、ビットサイズ 15 nm において D0₂₂-Mn₇₃Ga₂₇ 層の H_c と差が生まれる可能性がある。

第 6 章 結論

多値磁気記録媒体への応用の可能性を議論するために、FePt/MgO/FePt 多層薄膜、および MnGa/Cr/MnGa 多層薄膜の磁気特性について検討した。

第 2 章

膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を作製し、結晶構造と磁気特性を評価した。

- $t_{\text{FePt}} = 5, 10 \text{ nm}$ においては良好な角形性を持つ磁化曲線が観察された。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}20 \text{ nm}$ において、(001)配向した FePt 10 nm/MgO/FePt 5 nm 多層薄膜が得られた。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}10 \text{ nm}$ において、磁化曲線から磁性層の独立した磁化反転を示すステップが確認された。

第 3 章

膜厚を変化させた FePt 単層薄膜および、MgO 中間層厚を変化させた FePt/MgO/FePt 多層薄膜を円形ドットに微細加工し、磁気特性を評価した。

- FePt 単層ドットにおいては、 D の減少とともに H_c が確認された。
- $t_{\text{MgO}} = 3\text{-}8 \text{ nm}$ の多層ドットにおいて、 $D = 0.3 \mu\text{m}$ まで減少させると、それらの MOKE 曲線からステップが消失した。
- $t_{\text{MgO}} = 10 \text{ nm}$ の多層ドットの場合は $D = 0.3 \mu\text{m}$ でもステップが現れた。
- t_{MgO} が増加すると H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が広がった。
- D の減少とともに H_c^{top} と H_c^{bottom} の差が縮まった。

これらの結果から、ナノメートルサイズの FePt/MgO/FePt 多層ドットにおいて上下の FePt 層が独立して磁化反転するためには、厚い中間層を設けて FePt 層間のダイポールカップリングを弱める必要があることが明らかとなった。また、FePt よりも飽和磁化の低い磁性材料を用いること、ドットサイズを減少させても上下の磁性層の保磁力差を保つためにそれぞれ K_u が異なる材料を用いることも有効であると考えられ、この二つが高密度多値磁気記録媒体実現のための指針だと言える。

第 4 章

交互積層法により $\text{Mn}_x\text{Ga}_{(100-x)}$ 単層薄膜を作製し、その結晶構造と磁気特性を評価した。さらに、それを円形ドットパターンに微細加工し、磁区構造観察を行うことにより臨界単磁区粒径と交換ステイフネス定数を明らかにした。

- $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 単層薄膜においては、 L1_0 構造が得られ、最大で $M_s = 488 \text{ emu/cm}^3$ 、 $K_u = 16 \text{ Merg/cm}^3$ が確認された。
- 円形ドットに微細加工し、 D を減少させることにより H_c の増加が確認された。
- 磁区構造観察から臨界単磁区粒径は 140 nm であることが明らかとなった。
- 交換スティフネス定数は $1.1 \times 10^6 \text{ erg/cm}$ と見積もられた。この値は他の主な強磁性物質に匹敵している。

第 5 章

$\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層薄膜を作製し、Cr 中間層厚 t_{spacer} を変化させた時の結晶構造と磁気特性について検討した。

- $t_{\text{spacer}} = 5\text{-}40 \text{ nm}$ の多層薄膜の磁化曲線から磁性層の独立した磁化反転を示すステップが確認された。
- ドット加工後、サイズを減少させ、 $D = 0.3 \text{ }\mu\text{m}$ まではこれら Mn-Ga 層の H_c に差が見られたが、 $D = 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ ではほぼ同値となった。
- D の減少に伴い、 $\text{Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層の H_c は緩やかに、 $\text{Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の H_c は急激に上昇する様子が確認された。

$\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の K_u が $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層よりも大きいため、さらなる D の減少によって、 $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}$ 層の H_c が大きく上昇し、ビットサイズ 15 nm において $\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 層の H_c と差が生まれる可能性がある。したがって、 $\text{FePt}/\text{MgO}/\text{FePt}$ 多層薄膜よりも $\text{L1}_0\text{-Mn}_{58}\text{Ga}_{42}/\text{Cr}/\text{D0}_{22}\text{-Mn}_{73}\text{Ga}_{27}$ 多層薄膜のほうが高記録密度多値記録媒体へ応用できる可能性が高い。

謝辞

本研究遂行にあたり、終始懇切丁寧なご指導、ご教示を賜りました、東北学院大学大学院工学研究科電子工学専攻・土井正晶教授に厚く御礼申し上げます。

副査となることをご快諾いただき、また、貴重なご指導、ご教示を賜りました、東北学院大学大学院工学研究科電子工学専攻・嶋敏之教授、東北大学電気通信研究所・白井正文教授に心より感謝申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、貴重なご討論とご助言を賜りました東北学院大学電子工学専攻・諸先生方に厚く御礼申し上げます。

本研究遂行にあたり、親切なご助言をいただきました嶋研究室・研究員 矢子ひとみ氏に深く感謝申し上げます。

本研究遂行にあたり、ご助力いただきました土井研究室・M2 高橋勇圭氏、鈴木琢巳氏、高橋啓一氏、M1 佐藤啓氏、B4 菊地優祐氏に深く感謝致します。

最後に、大学院博士後期課程までの進学を許可していただき、経済面、精神面で支えてくださった両親に深く感謝致します。

業績一覧

論文

1. “Magnetic coupling dependence on MgO interlayer thickness of FePt multilayer dots”, **H. Makuta**, H. Iwama, T. Shima, and M. Doi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.56, No. 5, 055504, 5 pages, 2017.4.
2. “Size dependence of magnetic properties for L1₀-MnGa circular dots”, **H. Makuta**, Y. Takahashi, T. Shima, and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.(Special Issues)*., 1, pp. 26-29, 4 pages, 2017.5. MSJ 論文賞、学術奨励賞（内山賞）受賞
3. “Magnetization reversal behavior of FePt/ MgO/ FePt circular dot arrays”, H. Iwama, **H. Makuta**, S. Takeyama, K. Yusa, M. Doi, and T. Shima, *Proc. of The 23rd International Workshop on Rare-Earth and Future Permanent Magnets and their Applications (RPEM2014)*, pp108-110.
4. “Fabrication and magnetic properties of L1₀-Mn_xGa highly oriented thin films”, Y. Takahashi, **H. Makuta**, T. Shima, and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.(Special Issues)*., 1, pp. 30-33, 4 pages, 2017.5.
5. “Thickness dependence of Fe buffer layer on magnetic properties for Mn_xGa thin films”, K. Sato, Y. Takahashi, **H. Makuta**, T. Shima, and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.* (accepted)
6. “Fabrication of D0₂₂-Mn₃Ga Thin Films by Alternate Sputtering Method”, Kenta Watanabe, **Hirokazu Makuta**, Masaaki Doi, and Toshiyuki Shima, *T. Magn. Soc. Jpn.* (submitted)

国内学会

1. 「FePt 薄膜の微細加工と磁気特性」、**幕田裕和**、岩間弘樹、高橋一法、佐々木歩、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2013 年秋期講演大会、2013 年 9 月、金沢大学
2. 「Nd-Fe-B/Nd-Cu 薄膜及び円形配列試料の磁区構造観察」、岩間弘樹、二階堂友東、**幕田裕和**、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2013 年秋期講演大会、2013 年 9 月、金沢大学

3. 「多層構造を有する FePt 薄膜の微細加工と磁気特性」、**幕田裕和**、岩間弘樹、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2014 年春期講演大会、2014 年 3 月、東京工業大学
4. 「異なるバッファ層上へ作製した FePt 薄膜の磁化過程」、岩間弘樹、**幕田裕和**、武山翔平、遊佐和輝、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2014 年春期講演大会、2014 年 3 月、東京工業大学
5. 「ナノ複相磁石薄膜の作製と磁化過程」(シンポジウム)、嶋敏之、土井正晶、岩間弘樹、**幕田裕和**、出崎晶、二階堂友東、溝井博昭、武山翔平、岸本秀史、鷺尾宏太、日本金属学会 2014 年春期講演大会、2014 年 3 月、東京工業大学
6. 「FePt/MgO/FePt 微細加工薄膜の磁気特性のサイズ効果」、**幕田裕和**、岩間弘樹、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2014 年秋期講演大会、2014 年 9 月、名古屋大学
7. 「MgAl₂O₄ 及び MgO 基板上に作製した FePt 薄膜の構造と磁気特性」、岩間弘樹、**幕田裕和**、栗田大地郎、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2014 年秋期講演大会、2014 年 9 月、名古屋大学
8. 「ラテラルナノコンポジット磁石薄膜の磁気特性」(シンポジウム)、嶋敏之、土井正晶、黒須李沙、**幕田裕和**、岩間弘樹、貴田譲、栗田大地郎、加藤晃、佐久間紀次、岸本秀史、鷺尾宏太、矢野正雄、日本金属学会 2015 年春期講演大会、2015 年 3 月、東京大学
9. 「FePt/MgO/FePt ドットにおける独立磁化反転の中間層厚依存性」、**幕田裕和**、岩間弘樹、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2015 年秋期講演大会、2015 年 9 月、福岡大学
10. 「微細加工による Mn_xGa 円形ドットの作製と磁気特性」、**幕田裕和**、高橋勇圭、佐藤稜、岩間弘樹、土井正晶、嶋敏之、日本金属学会 2016 年春期講演大会、2016 年 3 月、東京理科大学
11. 「L1₀-MnGa 円形ドットにおける磁気特性のサイズ依存性」、**幕田裕和**、高橋勇圭、嶋敏之、土井正晶、第 40 回日本磁気学会学術講演大会、2016 年 9 月、金沢大学
12. 「L1₀-MnGa 円形ドットの磁気特性のサイズ依存性」、**幕田裕和**、高橋勇圭、嶋敏之、土井正晶、日本金属学会 2016 年秋期講演大会、2016 年 9 月、大阪大学
13. 「交互積層法により作製された L1₀-MnGa 薄膜における表面粗さの積層数依存性」、**幕田裕和**、嶋敏之、土井正晶、日本金属学会 2017 年春期講演大会、2017 年 3 月、首都大学東京

14. 「Cr スペーサー層を有する Mn-Ga 合金多層薄膜の磁気抵抗効果」、**幕田裕和**、嶋敏之、土井正晶、日本金属学会 2017 年秋期講演大会、2017 年 9 月、北海道大学

国際学会

1. “Effect of non-magnetic layer on the magnetization process for Nd-Fe-B thin films and circular dots”, H. Iwama, S. Suzuki, T. Sato, **H. Makuta**, M. Doi, and T. Shima, 12th Joint MMM/ Intermag Conference, USA, January, 2013
2. “Effect of non-magnetic layer on the magnetization process for Nd-Fe-B thin films and circular dots”, H. Iwama, Y. Nikaido, S. Suzuki, T. Sato, **H. Makuta**, M. Doi, and T. Shima, The 3rd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2013), Taiwan, July, 2013
3. ”Magnetic properties of microfabricated FePt magnetic thin films”, **H. Makuta**, K. Takahashi, H. Iwama, A. Sasaki, M. Doi, and T. Shima, The 3rd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2013), Taiwan, July, 2013
4. “Magnetization reversal behavior of FePt/MgO/FePt circular dot arrays”, H. Iwama, S. Takeyama, **H. Makuta**, M. Doi, and T. Shima, 6th Workshop on Amorphous and Nanostructured Magnetic Materials (ANMM 2013), Japan, September-October, 2013
5. ”Magnetic properties of microfabricated FePt multilayered thin films”, **H. Makuta**, H. Iwama, M. Doi, and T. Shima, IEEE International Magnetism Conference, (Intermag 2014), Germany, May, 2014
6. “Magnetic domain observation of FePt/MgO/FePt multilayered circular dot arrays”, H. Iwama, **H. Makuta**, S. Takeyama, K. Yusa, M. Doi, and T. Shima, IEEE International Magnetism Conference, (Intermag 2014), Germany, May, 2014
7. “Magnetization reversal behavior of FePt/MgO/FePt circular dot arrays”, H. Iwama, **H. Makuta**, S. Takeyama, K. Yusa, M. Doi, and T. Shima, The 23rd International Workshop on Rare-Earth and Future Permanent Magnets and their Applications (RPEM 2014), USA, August, 2014
8. ”Interlayer magnetic coupling behavior of microfabricated FePt/MgO/FePt circular dot arrays”, **H. Makuta**, H. Iwama, M. Doi, and T. Shima, 2014

Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM) conference, USA, November, 2014

9. "Magnetic coupling dependence on interlayer thickness of FePt multilayered dots", **H. Makuta**, H. Iwama, M. Doi, and T. Shima, The 20th International Conference on Magnetism (ICM 2015), Spain, July, 2015
10. "Magnetic properties of microfabricated Mn_xGa circular dots", **H. Makuta**, Y. Takahashi, R. Sato, T. Shima, and M. Doi, The 4th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS 2016), Taiwan, August, 2016
11. "Magnetic properties of Mn-Ga multilayered thin films", **H. Makuta**, T. Shima, and M. Doi, 2017 Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM) conference, USA, November, 2017