7aB - 6

Surface segregation of Pt in L1₀-FePt nano-grains

H. Sepehri-Amin¹, H. Iwama², T. Shima², and K. Hono¹ ¹National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan ²Faculty of Engineering, Tohoku Gakuin University, Tagajo 985-8537, Japan

Heat assisted magnetic recording (HAMR) is the most promising candidate for the next generation high-density hard disk drives (HDDs). To increase the areal density to higher than 2 Tbit/in², L1₀-FePt granular media with a grain size of 4-6 nm is needed. However, the reduction of FePt grain size results in the reduction of the degree of L1₀ order [1], which causes the distribution of K_u in the FePt-C granular media with 4-6 nm grain size. This has been attributed to the existence of surface segregation of Pt, which deviates the stoichiometry composition of core region of L1₀-FePt grains [2,3]. A question raises here whether or not the chemical compositions of films can influence the surface segregation of L1₀-FePt grains. In this work, we have studied the influence of Fe concentration of L1₀-FePt grains to the surface segregation and the degree of L1₀ order.

FePt films with thickness of 8 nm was DC magnetron sputtered on single-crystalline MgO (001) substrate at the substrate temperature of 725°C. The input power for Pt target was kept constant at 16 W while the input powder of Fe target was varied from 30 W to 32 W to fabricate samples with Fe-lean, stoichiometric, and Fe-rich compositions. The magnetic properties of the samples were measured using a SQUID-VSM and the microstructures were characterized using an aberration corrected TEM (Titan G2 80-200)).

The Fe-lean sample showed a coercivity of 5.9 T while the Fe-rich sample showed slightly lower coercivity of 5.6 T. Figure 1 (a) and (b) show high resolution STEM-HAADF images obtained from the L10-FePt grains of the films with Fe-lean and Fe-rich compositions. In the STEM-HAADF images, the atomic columns with a brighter contrast correspond to Pt rich columns. Figure 1 (c) and (d) show STEM-EDS maps of Fe (green) and Pt (red) obtained from the surface of FePt grains for the Fe-rich and Fe-lean samples. The composition profiles obtained from line scans from the surface to the center of the grains are shown in Fig. 1 (e) and (f). STEM-EDS results show that Pt atoms enriches at the surface of L1₀-FePt grains which is due to surface segregation of Pt regardless of the composition of the film. The segregation of Pt to the surface region is to reduce the surface energy of the grains. How to suppress the surface segregation of Pt will be addressed.

Fe-lean Fe-rich

Fig. 1. (a) and (b) STEM-HAADF image, (c) and (d) STEM-EDS maps of Fe (green) and Pt (red), (e) and (f) EDS line profile calculated from selected lines shown in (c) and (d) obtained from the $L1_0$ -FePt grains with Fe-lean and Fe-rich comp

[1] Y. K. Takahashi et al. J. Appl. Phys. 95 (2004) 2690.

[2] B. Yang et al. Scripta Mater. 53 (2005) 417. [3] T. Seki et al. Appl. Phys. Letters 82 (2003) 2461.

ナノ構造下地上への高密度 L10-FePt 孤立磁性微粒子群形成

における下地ナノシリカ粒子径分散依存性

牧野哲也1), 平賀俊光1), 塚本新2) 日本大学大学院理工学研究科 1), 日本大学理工学部 2) Silica particle diameter deviation dependency of high density isolated *L*1₀-FePt grains on nano structured under layer Tetsuya Makino¹⁾, Toshimitsu Hiraga, Arata Tsukamoto²⁾ Graduate School of Science and Technology Nihon Univ.¹), College of Science and Technology, Nihon Univ.²)

1. はじめに

超高密度磁気記録媒体等への応用を想定し, 我々は熱酸化 Si 基板上へ製膜した Pt / Fe 薄膜への急速昇降温 熱処理による孤立 L1₀-FePt ナノ磁性微粒子群の形成¹⁾を報告している.また,FePt 粒子数密度の向上,平均 粒径の減少の方法としてシリカ粒子(平均粒径約18 nm)の自己集積化現象を利用し作製したナノ凹凸基板 (Self-Assembled Silica Particle: SASP)を用いる手法²⁾を提案している.更なる高密度化を目的とし,大量化学合 成により作製された平均粒径約10nmの典型的シリカ粒子からなるSASP 基板利用において粒径分散を評価 した結果約 2.4 nm と比較的大きく FePt 粒子形成過程への影響が懸念された.本報告では SASP 構造の不均一 性に注目しシリカ粒径分散を意図的に変え形成した FePt 粒子群の評価からシリカ粒径分散の寄与を検討した.

2. 実験内容

SASP 基板は粒径 10 nm シリカ粒子(粒径分散約 2.4 nm)のみ用いた 基板(I)と、シリカ粒径分散による寄与を検討するため粒径 10 nm シ リカに粒径 4.5 nm シリカ粒子を混合(質量比 1:1, 想定粒径分散約 4.1 nm)させた基板(Ⅱ)をディップコート法により作製した. これらの SASP 基板上へ DC マグネトロンスパッタリング法により、Pt₆₂(0.83 nm) / Fe₃₈(1.05 nm) / sub.にて成膜した. これらの薄膜に対し,昇温速 度約 20 ℃/sec, 目標到達温度 600 ℃の熱処理を行い, その後窒素導 入による急速冷却を行った. 作製した FePt 粒子の形状観察に走査型 電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM),結晶構造解析にX線 回折装置(X-Ray Diffraction: XRD),磁気特性評価に超伝導量子干渉素 子型磁束計(Superconducting Quantum Interference Device Vibrating Sample Magnetometer: SQUID VSM)を用いた. 基板(I), (II), 表面平 坦熱酸化 Si 基板上³⁾の FePt 粒子群における XRD プロファイルを Fig.1 に、膜面垂直方向の磁化特性および保磁力(H_C)を Fig.2 に、粒子数密 度(N_P), 平均粒径(D_a), 粒径偏差(StD)を Table 1 に, 示す. Fig. 1 より(I) のみ24°付近のL10構造由来の超格子ピークを観察し, Fig.2より, (I), (Ⅱ)共に保磁力が 20 kOe であるため, 主として高保磁力特性を有する FePt 微粒子群の形成を確認した. Table 1 より熱酸化 Si 基板に対して SASP 基板(I),(II)上ではいずれも N_p 向上, D_a 減少を確認し,(II)に 対しシリカ粒径分散の少ない(I)では Np向上, Da減少を確認した.よ って, SASP 基板に用いるシリカ粒子径を低分散化することで高粒子 数密度かつ高保磁力のL10-FePt磁性微粒子群の作製が期待できる.

<u>3. 謝辞</u>

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構及び文部科学省私立大 学戦略的研究基盤形成支援事業(S1311020)の助成により行った.

参考文献

Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys. 43, 12, 8040 (2004) 1)

2) 3) A. Itoh, A. Tsukamoto, J. Magn. Soc. Jpn., 33, 507 (2009) M. Imazato, A. Ogasawara, A. Tsukamoto, "Book of Abstract -20th ICM.", p. 1493(2015)



Fig.1 XRD profiles for FePt grains with (I), (II), and Flat SIO_x.



- Fig.2 Magnetization curves FePt grains with (I), (II), and Flat SiO_x, measured by SQUID VSM at room-temperature.
- Table 1 Average FePt grain diameter (D_a) , areal density of grains (N_P) , standard deviation of D_a (StD) on (I), (II), and Flat SiO_x.

	N _P (T bpsi)	$D_{\rm a}({\rm nm})$	StD (nm)
(I)	0.40	14.1	2.5
(II)	0.29	17.3	2.5
Flat SiO _x ³⁾	0.22	18.4	3.0

ランプ加熱高速 FeCuPt 微粒子形成における Si 基板の加熱寄与

田中万裕¹⁾, 塚本新²⁾

日本大学大学院理工学研究科¹⁾,日本大学理工学部²⁾

The role of heating of Si substrate in rapid fabrication FeCuPt nano grains by lamp annealing

Masahiro Tanaka¹⁾, Arata Tsukamoto²⁾

Graduate School of Science and Technology Nihon University, Japan¹⁾

College of Science and Technology, Nihon University, Japan²⁾

<u>はじめに</u>

高密度磁気記録媒体の作製には磁性粒子の微細化と高密度化が重要である.我々はこれまで,数nm厚のPt/Fe,Pt/Cu/Fe多層薄膜にハロゲンランプ光を用いた急速昇降温熱処理(Rapid Thermal Annealing & Rapid Cooling Process: RTA)のみによる孤立ナノ微粒子の形成につき報告してきた^{1),2)}.初期積層膜厚の減少(1~4nm)により,微粒子化は可能であるが粒子形成と RTA 条件の相関が大きく変化することが課題であった.微粒子化に寄与する加熱要素として金属薄膜自身の加熱および熱酸化 Si 基板の光吸収による熱効果が考えられる.本報告では,これらの熱寄与度の膜厚依存性に注目し,総積層膜厚 1.88nm の FeCuPt 薄膜を成膜した熱酸化 Si 基板に対し,熱処理面のみを変えて FeCuPt 微粒子群形成における RTA プロセス依存性の検討を行った.**実験方法**

DC マグネトロンスパッタ法を用いて,14 m四方の熱酸化 Si 基板 上に Cu(0.41 nm), Fe(0.67 nm), Pt(0.87 nm)の順で成膜を行った. 高真空チャンバー中で集光したハロゲンランプ光により,500℃以 上まで約 120℃/sec.にて昇温し,直後窒素導入にて急速冷却を行っ た.複数の熱酸化片面研磨 Si 基板に対し,研磨面側に成膜を行い, Fig.1 に示すように(a)成膜面側に RTA, (b)基板背面から RTA を施 した[以後,条件(a),(b)とする]. 作製した FeCuPt 微粒子の観察には 走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope : SEM)を用いた. 結構造解析に X線回折装置(X-Ray diffraction : XRD)を用いた. 結果

Fig. 2(a)~(b-1,2)に形成した微粒子の表面 SEM 像を示す.いずれ の熱処理条件においても FeCuPt 微粒子群の形成を確認した[Fig. 2 (a),(b-1)]. 条件(b)の基板では端部より約2mmの領域で粒子が結合し た様相も確認した[Fig. 2 (b-2)]. Table 1 に SEM 像より得られた基 板中央付近における形成粒子の平均粒径(D_a),形成粒子数密度(N_b), 粒形分散(S,D)を示す. (a),(b)の基板においても,平均粒形 20nm 以 下の孤立したナノ微粒子群の形成を確認した. Fig. 3 に XRD プロフ ァイルを示す.いずれの熱処理面においても L10-FePt(111)ピークが 観測された.上記の結果より,Si基板の光吸収による熱効果のみに よる(b)の加熱条件でも(a)条件と同様な微粒子群の作製および規則 合金化が可能であることを示している.また,光照射時の背面温度 測定より(a).(b)はほぼ同等の加熱プロファイルであった. ハロゲン ランプ光を用いた熱処理において、本実験に用いた膜構成(1.88 nm 厚)では、Si 基板の光吸収による熱効果が主加熱要因であることを 明らかとした.当日は金属膜厚を変化して同様の実験を行った結果 の報告も行う.

謝辞

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

参考文献

- Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys., 43, 8040-8043 (2004).
- J. Tsukioka, T. Ubana, A. Tsukamoto, and A. Itoh: J. Magn. Soc. Jpn., 38, 143-146 (2014).





Fig..2 SEM planer view of FeCuPt grains on SiOx/Si substrate.

Table 1 Average grain diameter(D_a), Standard deviation of diameter(S_tD),areal density of grains(N_p) for isolated FeCuPt grains.

-				
	D_{a}	$S_{\rm t}D$	N₀(T p ∕in	particle ch ²)
		(1117)	/ 11011 /	
Condition (a)	19.5	2.4	0.38	
Condition (b)	13.1	1.9	0.66	
Intensity Intensity		L1((a) (b)	L10-FePt(001)
20 25 30	³⁵ 20	[deg] 40	45	50 55

Fig..3 XRD Profile for isolated FeCuPt grains with condition (a) and (b).

単結晶基板上に形成した FePt 合金膜の構造に及ぼすキャップ層の影響

中村将大¹·落合亮真¹·大竹充^{1,2}·二本正昭¹·桐野文良³·稲葉信幸⁴

Influence of Cap-Layer on the Structure of FePt Alloy Thin Films Formed on Single-Crystal Substrates

Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masaaki Futamoto¹,

Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに $L1_0$ 構造を持つ FePt 規則合金は 6.6×10^7 erg/cm³の K_u を持つため、この薄膜は磁気記録媒体 や MRAM などの応用に向けて研究されている. 薄 膜応用では磁化容易軸である c 軸を膜面垂直方向に 制御する必要がある. FePt 膜より大きな格子定数を 持つ(001)基板との格子不整合により生ずる面内方 向の引張応力を利用することが有効であると考え られている $^{1.3}$. これまで、我々は MgO(001)基板と の格子不整合による応力に加え、MgO キャップ層を 導入して界面で発生する応力を重畳させて FePt 膜 の結晶配向制御を試みてきた ³⁾. 本研究では、格子 定数の異なる複数種の単結晶基板上に FePt 膜を形 成し、MgO キャップ層の有無が $L1_0$ -FePt 合金膜の結 晶配向と規則度に及ぼす影響を調べた.

実験方法 膜形成には、超高真空 RF マグネトロン スパッタリング装置を用いた. 基板として、MgO、 MgAl₂O₄、SrTiO₃(001)単結晶を用いた. 基板温度 200 ℃ で 10 nm 厚の FePt 膜を堆積させ、不規則構造 (A1)の FePt(001)単結晶膜を形成した. このとき、 各基板格子に対する A1-FePt(001)の不整合は、それ ぞれ、-9.8%、-5.5%、-2.0%となる. A1-FePt 膜上に 基板温度 200 ℃ で 2 nm 厚の MgO キャップ層をへ テロエピタキシャル成長させ、その後、L1₀相への 規則化促進のため、600 ℃ での熱処理を施した. ま た、同様な方法で、キャップ層無しの試料も作製し た. 構造評価には RHEED、XRD、AFM、磁気特性 評価には VSM を用いた.

実験結果 MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃基板上に形成し たキャップ層が無いFePt膜の面外および面内XRDパ ターンをFig. 1(a)-(c)に示す. いずれの膜に対しても,



Fig. 1 (a-1)–(f-1) Out-of-plane and (a-2)–(f-2) in-plane XRD patterns of FePt films (a)–(c) without and (d)–(f) with MgO cap-layers deposited on [(a), (d)] MgO, [(b), (e)] MgAl₂O₄, and [(c), (f)] SrTiO₃ substrates.



Fig. 2 Effects of lattice mismatch on (a) c/a and (b) order degree of FePt film with and without MgO cap-layer.

面外パターンでは、FePt膜からの基本反射に加え、FePt(001)超格子反射が観察されており、L1₀相へ規則化している ことが分かる.また、面内パターンにおいても、低強度ではあるがFePt(001)超格子反射が現れており、膜中にc軸が 面内に向いたL1₀(100)および(010)バリアントが僅かに混在していることが分かる.Fig.1(d)-(e)にキャップ層有りの試 料のXRDパターンを示す.格子不整合が最大のMgO基板の場合、面内FePt(001)反射が観察されておらず、c軸が面直 に向いたL1₀(001)結晶のみになるような配向制御が実現されている.また、MgAl₂O₄およびSrTiO₃基板の場合、面内 FePt(001)反射が現れているが、キャップ層無しの試料に比べ、反射強度が低下しており、面内バリアントの体積比 率が減少していることが分かる.Fig.2に格子定数比c/aおよび規則度Sの格子不整合依存性を示す.不整合の絶対値 の増加に伴い、正方晶のc/aが減少傾向になり、規則化も促進されていることが分かる.また、キャップ層の導入に より、不整合の効果がより顕著になっていることが分かる.

参考文献

1) K. F. Dong, H. H. Li, and J. S. Chen: J. Appl. Phys., 113, 233904 (2013).

A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: J. Appl. Phys., 115, 17B712 (2014).
M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. kirino, and N. Inaba: J. Magn. Soc. Jpn., 39, 167 (2015).

FePd 合金薄膜の構造に及ぼす基板との格子不整合の影響

中村将大¹・落合亮真¹・大竹充^{1,2}・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴ (¹中央大,²工学院大,³東京藝大,⁴山形大)

Influence of Lattice Mismatch with Substrate on the Structure of FePd Alloy Thin Film Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masaaki Futamoto¹,

Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに FePt や FePd 合金は立方晶(A1)および正方 晶($L1_0$)構造をとり、 $L1_0$ 構造の状態で 10^7 erg/cm^3 オー ダーの K_u を示す.そのため,膜面垂直に磁化容易軸([001] 方位)が向くように規則化させた合金膜は磁気記録媒体 や MRAM などへの応用に向けて研究されている.立方 晶(001)基板に対する $L1_0(001)$ 膜の格子不整合(ミスマッ チ)は[$(a_{L10} - a_{sub})/a_{sub}$]×100で表される.負のミスマッ チを持つ基板上にエピタキシャル薄膜成長すると,膜に は面内方向に引張応力が働き、その結果、面内格子が膨 張し、正方晶膜が形成されやすくなることが推察される. 最近、MgO、MgAl₂O₄、SrTiO₃(001)基板を用いることに より、格子不整合が FePt 膜の構造や磁気特性に及ぼす影 響が報告されつつある¹⁻³.本研究では、種々の立方晶 (001)単結晶基板上に FePd 膜を形成し、格子不整合が膜 構造に及ぼす影響について調べた.

実験方法 膜形成には超高真空 RF マグネトロンスパッ タリング装置を用いた. 基板材料として, MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃, (LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂AlTaO₃)_{0.7}, LaAlO₃を用い, それぞ れの基板に対する L1₀-FePd(001)格子のミスマッチは, -9.1%, -4.9%, -1.4%, -0.4%, +1.6%である. 基板上に RT~600 ℃の基板温度で10 nm厚のFePd 膜を形成した. 構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁気特性評価には VSM を用いた.

実験結果 Fig. 1に一連の基板上に600 ℃で形成した FePd膜のRHEEDパターンを示す.全ての基板で,ストリ ーク状の回折パターンが観察されており,FePd膜がエピ タキシャル成長していることが分かる.面外XRDパター ンにおけるFePd(001)超格子とFePd(002)基本反射の強度



Fig. 1 RHEED patterns observed for FePd films deposited on (a) MgO, (b) MgAl₂O₄, (c) SrTiO₃, (d) $(LaAlO_3)_{0.3}(Sr_2AlTaO_3)_{0.7}$, and (e) LaAlO₃ substrates at 600 °C.



Fig. 2 Lattice mismatch dependence of order degree of FePd film.

比から算出した規則度と格子不整合の関係をFig. 2に示す.格子不整合が増大するほどFePd膜の規則度が増大する傾向がある.負のミスマッチの値が最も大きなMgO(-9.1%)で規則度0.53となっており,飽和傾向も認められる.以上のことから,負の格子不整合によりLl₀相への規則化が促進されていることが分かる.

参考文献

1) K. F. Dong, H. H. Li, and J. S. Chen: J. Appl. Phys., 113, 233904 (2013).

A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B712 (2014).
M. Nakamura, R. Ochiai, M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: 8th Joint European Magnetics Symposia (JEMS 2016).

Effect of CrB insertion on the (001) texture of MgO seed layer

and magnetic properties of FePt-C HAMR media

J. Wang¹, Y.K. Takahashi¹, K. Yakushiji², H. Sepehri-Amin¹, H. Kubota², K. Hono¹

¹ National Institute for Materials Science, 1-2-1, Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan

² National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

L1₀-ordered FePt-C granular films are considered to be the most promising candidates for heat-assisted magnetic recording (HAMR) media for the recording density higher than 1.5 Tbit/in². For practical applications as HAMR media, the FePt-C granular structure has to be optimized with excellent alignment of the c-axis normal to the film plane on polycrystalline MgO seed layer. Therefore it is essential to have a strong (001)-texture in the MgO seed layer with a smooth surface. In our previous work¹, we demonstrated well-isolated FePt-C granular films with high $\mu_0 H_c$ on polycrystalline MgO underlayers. However, poor (001)-textures of polycrystalline MgO seed layers result in serious mis-orientations of FePt grains, causing large in-plane components in the magnetization curve, which will lead poor SNR². Here, we show that with the insertion of a 2-nm-thick CrB layer between a heat sink and a MgO seed layer, the texture and the surface roughness of the MgO seed layer are significantly improved, thereby reducing the in-plane component in a subsequently deposited FePt-C granular layer.

6-nm-thick FePt-28vol.% C films were deposited by DC co-sputtering using FePt and C targets at 600°C under 0.48Pa Ar on a MgO (100) substrate (Sample A), glass/ NiTa (100 nm)/ MgO (10 nm) seed layer (Sample B), and glass/ NiTa (100 nm)/ CrB (2 nm)/MgO (10 nm) seed layer with a CrB insertion (Sample C). The MgO seed layers were RF sputter deposited under an Ar pressure of 5.2 Pa at room temperature (RT) using a MgO target.

Figure 1 shows the MgO (002) rocking curves of sample B and C. The insertion of a CrB layer obviously improved the (001)-texture of the MgO layer, which is indicated by the smaller FWHM value of the MgO (002) rocking curve (5.6° to 3.9°). The insertion of a CrB layer improves the roughness of the MgO seed layer from R_a value of 0.28 to 0.14 nm. The MH curves of the FePt-C layers grown on these two kinds of seed layers are shown in Fig. 2. Without the CrB layer (Fig. 2 a), the loops show small kink at zero field, and an open in-plane loop, indicating large in-plane components. In our previous work², such large in-plane components were due to significant mis-orientation of FePt grains originated from mis-aligned MgO grains in a seed layer. With much improved (001)-texture and surface roughness of the MgO seed layer by the insertion of the CrB layer, sample C (Fig. 2 b) presents loops without kink, narrowed in-plane loop and reduced remanence ratio ($Mr_{//}/Mr_{\perp}$) which are critical for signal-to-noise ratio of magnetic recording. In summary, the insertion of a thin CrB buffer layer on amorphous NiTa heat sink layer improves the (001)-texture and roughness of the MgO seed layer, which lead to the reduction in the in-plane component of the FePt-C recording layer.

Reference

1) A. Perumal, Y. K. Takahashi, and K. Hono, Appl. Phys. Express 1, (2008) 101301.



-196-