

氏名	吉村 哲
所属機関	秋田大学 大学院工学資源学研究科・附属理工学研究センター・准教授
研究題目	強磁性・強誘電薄膜のスパッタリングによる低温・高品位合成法及び相制御による磁気・電氣的パターン化法の確立とそれを用いた低消費電力型情報記録装置の開発

1. 研究の目的

エネルギー政策の見直しおよび省エネルギー化が求められている今日、世界で10億台以上が稼働している磁気記録装置(ハードディスクドライブ:HDD)においても、低消費電力化が求められている。現行の HDD は、大きな電流磁界を発生させなければならない書込み時に、極めて大きな電力を要する。また、発生可能な磁界はコアの飽和磁束密度で上限が決まり、書込みが困難になってきている。よって、根本的な電力消費量の削減、容易な書込みを実現するためには、全く新しい書込み方式を確立し、かつそれに適した新材料を用いる必要がある。

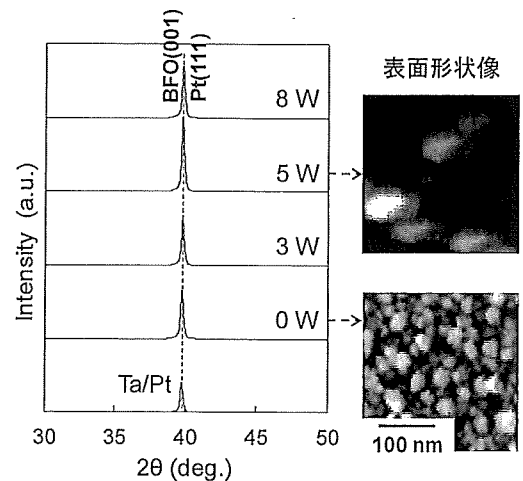
本研究では、近年、室温で強磁性・強誘電特性を発現することが確認された材料に注目し、その薄膜作製において、成膜中に高周波プラズマを照射する新たな手法を用いること、及びグラニューラ構造下地層上にエピタキシャル成長させることで、これまで実現不可能であった、スパッタリング法による低温・高品位合成、及びアイディアさえ皆無な、相制御による磁気・電氣的パターン化を行うものである。そして、本薄膜を用いて、これまで実現例の無い、ナノスケールでの磁化の電界駆動を検証することを最終目的としている。

本薄膜を記録媒体に用いた情報記録装置では、これまでに無い全く新しい電界書込み磁気記録(電界により磁化方向を制御)が可能となり、現行方式の磁気記録装置に比較して、書込み限界が実質的に無かつ書込み時の消費電力を飛躍的に低減できる特長を有する。

2. 研究の内容(手法、経過、評価など)

高品位な強磁性・強誘電薄膜の作製

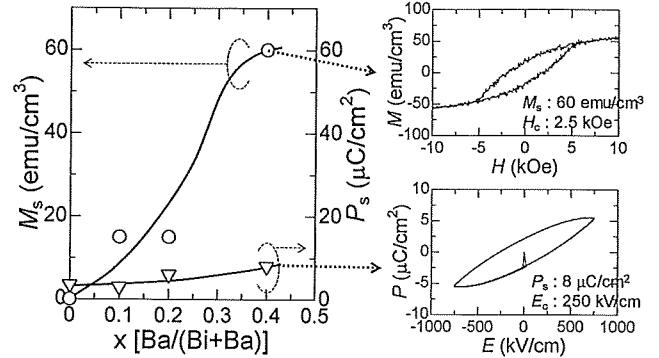
右図に、Ta/Pt/BiFeO₃ 積層膜の BiFeO₃ (BFO) の成膜条件を変えた際の XRD パターンを示す。Ta/Pt バッファ層の XRD パターンも合わせて示した。ここで、Pt バッファ層は、(111)高配向する条件で作製されており、(111)ピークのロッキングカーブの半値幅は約2°を実現している。BFO 薄膜の結晶性は、Pt および BFO の(001)回折ピークが共に $2\theta = 39^\circ$ 付近に現れるため、Ta/Pt 下地層の Pt(111)ピーク強度と Ta/Pt/BFO 積層膜の Pt(111)・BFO(001)ピーク強度を比較することで評価できる。BiFeO₃ 化合物は 400°C で加熱成膜することにより生成して(001)配向し、さらに 5 W (0.1 W/cm²) の微弱な VHF プラズマ照射を施しながら成膜を行うことで BiFeO₃ 化合物の生成量が増大することを確認した。この変化は、表面形状像から観察される結晶粒径成長の促進からも確認される。この化合物形成の促進は、薄膜を構成する原子に運動エネルギーを付与してマイグレーションを誘発させたことによる結晶化の促進によるものと考えられる。



次頁右図に、上記の検討から得られた最適条件で成膜した(Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ 薄膜の飽和磁化(M_s)および飽和分極(P_s)の Ba 置換量(x)依存性を示す。x = 0.4 の試料における磁気特性および誘電特性を示す M-H 曲線および P-E 曲線もあわせて示す。x の増大に伴い M_s が増加し、x = 0.4 において、PLD 法等で単結晶基板上に高温で作製された薄膜の値と同程度の 60 emu/cm³ が得られ、膜面垂直方向の保磁力(Hc)も情報記録が可能な 2.5 kOe が得

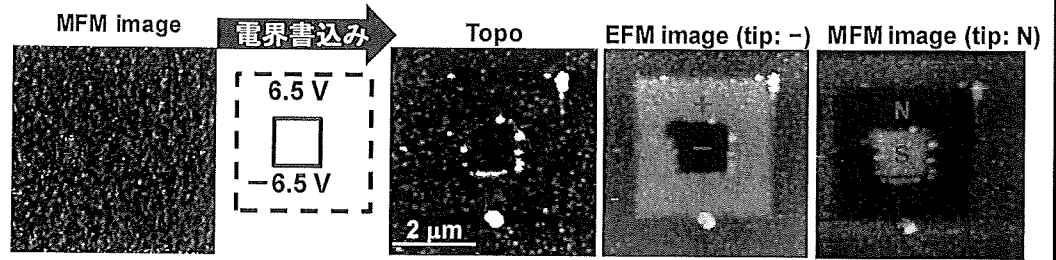
2. 研究の内容(続き)(書ききれない場合には、同一形態のページを追加しても結構です)

られた。また、 P_s は、PLD 法等で単結晶基板上に高温で作製された薄膜の値に比較して10分の1程度ではあるが、明らかな残留分極(P_r)が得られた。このように、M-H および P-E 曲線において明瞭なヒステリシスを示すことから、本薄膜は強磁性・強誘電特性を有していることが判る。



電界書き込み磁気記録の検証

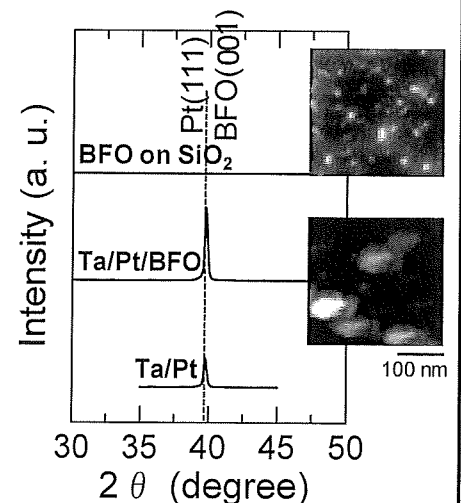
右図に、強磁性・強誘電特性を有する $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$ 薄膜における、走査型プローブ顕微鏡および導電性磁性探針を用



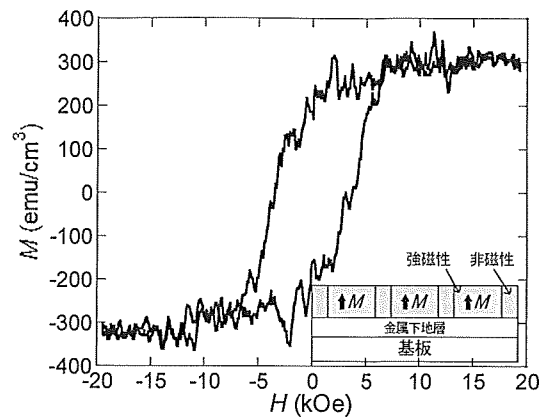
いて観察した各種像を示す。作製後に電界も磁界も印加していない薄膜においては、表面に N 極と S 極がランダム存在する消磁状態が観察される。同装置および探針を用いて、 $3 \times 3 \mu\text{m}$ の青色点線内領域に $+6.5 \text{ V}$ 、その後、 $1 \times 1 \mu\text{m}$ の緑色点線内領域に -6.5 V 、の局所電界印加を施した。その部分の表面形状像、電気力顕微鏡像、磁気力顕微鏡像、をそれぞれ示す。局所電界印加に伴い、それに応じた分域構造が観察された。本現象は強誘電体の場合には当然の結果である。それに対し、強誘電性に加え強磁性も併せ持っている本薄膜の場合には、局所電界印加に対応した磁区構造も観察された。本結果は、本薄膜において、局所電界印加により磁気ビットの記録に相当する強磁性ドメインの誘起に成功したことを示すものであり、電界書き込み磁気記録を検証したと言える。

強磁性・強誘電薄膜の磁気・電氣的パターン化に向けた取り組み

右図に、先に示した高品位な BFO 薄膜が得られる成膜条件を用いて、熱酸化膜付き Si 基板(表面は非晶質の Si-O 膜)上に BFO を直接成膜した場合の XRD パターンを、および走査型プローブ顕微鏡を用いて測定した薄膜の表面形状像を示す。比較のため、Ta/Pt バッファ層上に成膜した BFO 薄膜の XRD パターンおよび表面形状像も合わせて示した。BFO 薄膜は、(111)高配向バッファ層上では、成膜温度 400°C および VHF プラズマ照射電力密度 0.1 W/cm^2 の条件下において明瞭な結晶を形成するが、非晶質の Si-O 膜上では、同条件で成膜しても(001)回折ピークも明瞭な結晶粒も見られなかったことから、非晶質を形成することが判る。ここで、ペロブスカイト構造の強磁性・強誘電材料は、その結晶構造が形成されて初めてその機能が発現する。よって、強磁性・強誘電薄膜の薄膜平面内の機能性分布は、下地層の結晶構造の平面分布に対応することが予想され、結晶相と非晶質マトリックス相からなるグラニューラ構造下地層を用いることにより、強磁性・強誘電相が非磁性・常誘電マトリックス相により磁気・電氣的に分離したパターン構造の実現が期待できる。



右図に、熱酸化膜付き Si 基板上に、Cr 基および Ni 基合金(30 nm) / Ru(25 nm)下地層を成膜した後、SiO₂ マトリックスを有する Co 基強磁性グラニューラー構造薄膜(15 nm)を積層した試料の磁化曲線を示す。Ni 基合金薄膜上に hcp 構造の Ru を成膜することによりそれを(001)配向させ、かつその成膜時のガス圧を高くすることにより結晶粒と結晶粒界との凹凸の差を大きくした結果、hcp 構造の Co 基結晶粒が(001)配向して膜面垂直方向が磁化容易方向となり、かつグラニューラー構造が顕著化したことで、膜面垂直方向に 3 kOe 以上の保磁力を有する強磁性層の形成に成功した。本結果は、本薄膜を下地層として用いることで、強磁性・強誘電薄膜の磁気・電氣的パターン構造化を実現し得るのみならず、ペロブスカイト構造の強磁性・強誘電結晶粒をエピタキシャル成長により(001)配向化させながら、強磁性下地層と強磁性・強誘電薄膜との磁氣的交換結合により表面の漏えい磁場を増大させて再生信号を高強度化させることができることを示唆している。



3. 研究の結論、今後の課題

結論

(111)高配向のバッファ層上に、微弱な高周波(VHF)プラズマを照射しながらスパッタリング成膜を行うことにより、400°Cの低温でも、分極方向が膜面垂直である(001)配向の $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ba}_x)\text{FeO}_3$ 強磁性・強誘電薄膜を非単結晶基板上に作製することに成功した。また、本薄膜において、局所電界印加により強磁性ドメインを誘起させることに成功し、電界書込み磁気記録方式の実現可能性を示した。そして、本薄膜を用いた記録媒体における高信号出力化や高密度記録化を実現する磁気・電氣的パターン構造化を提案し、それを実現する可能性のある強磁性グラニューラー構造下地層の作製にも成功した。

課題

これまでに実現例がほとんど報告されていない電界書込み磁気記録の実証、アイデアさえ皆無な磁気・電氣的パターン構造化に向けた検証、には成功したが、強磁性・強誘電薄膜の磁気・電氣的パターンの形成には至っていない。その理由として、強磁性グラニューラー構造下地層上に強磁性・強誘電薄膜を成膜する際、基板温度は400°Cに達しており、成膜に用いるプロセスガスには酸素を混合したアルゴンを用いていることから、強磁性グラニューラー構造下地層のCo基結晶粒の表面が酸化し、その上の強磁性・強誘電薄膜がエピタキシャル成長できないことが考えられる。Co基結晶粒の表面酸化を抑制するためには、強磁性・強誘電薄膜の初期成長過程においてのみ、純アルゴンを用いて成膜し、膜厚が数ナノメートルに達した(強磁性・強誘電薄膜が連続化した)時点で酸素の混合を開始するなどの、プロセスの最適化が必要であると考えている。

また、実用可能レベルの書込み可能回数を確保するためには、強磁性・強誘電薄膜において、リーク特性を改善する必要がある。その手法の一つとして、強磁性・強誘電薄膜中の酸素欠損を抑制することが効果的である。通常、強磁性・強誘電薄膜の成膜には、酸素を混合したアルゴンをプロセスガスとして用いているが、酸素欠損を抑制するためには、酸化活性の高い酸化種を生成することが重要であり、アルゴンに代えて、エネルギー準位の高い酸化種(酸素イオンや酸素ラジカル)を生成することが可能なクリプトンやヘリウムを用いることが有効であると考えている。

そして、強磁性・強誘電薄膜において「電界書込み磁気記録」を行うにあたり、その特性評価において最も重要な測定は、電界に対する磁化応答、である。しかしながら、電界に対する電荷応答、磁界に対する磁化応答、を測定する装置は古くから存在するものの、電界に対する磁化応答を測定できる装置は、今現在無い。そのような特性を評価する需要が無かった(電界書込み磁気記録の発想が無かった)からである。本研究を継続していくにあたり、それ用の特性評価装置を新規に構築していくことも必要であると考えている。

4. 成果の価値(とくに判りやすく書いて下さい)

4. 1. 社会的価値

現行およびその改良型である次世代の磁気記録媒体が、本研究で提案している強磁性・強誘電薄膜を用いた記録媒体に置き換わるとすると、ほとんど電力を消費せずに書込みが可能になる結果、磁気記録装置が全世界で10億台以上が稼働していることを考慮すると、それによる電力エネルギー削減効果は非常に大きい。これに加え、貴金属元素使用量が増大する一方の現行および次世代の磁気記録媒体に対して、本記録媒体では貴金属使用量がゼロになることから、材料コストの削減効果に加え、資源枯渇による生産量や性能の低下の心配もない。更に、書込み素子においても、コア・コイル・絶縁シールドなどで構成される数十ナノメートルスケールの超微細な立体的構造体から10ナノメートル程度の曲率半径を有する先端先鋭な導電性金属針状端子へと極めて単純な構造になることから、その製造コストを大きく削減できる。

以上より、現行磁気記録装置およびその改良型である次世代磁気記録装置に対して、強磁性・強誘電薄膜を用いた電界書込み型の磁気記録装置は、情報化社会・省エネルギー社会・省資源社会、に大きく貢献できることが期待される。

4. 2. 学術的価値

・通常、パルスレーザーデポジション法を用いて高温加熱した単結晶基板上に作製される強磁性・強誘電薄膜を、工業的に優れたスパッタリング法を用いて非単結晶基板上に成膜する場合でも、高配向下地層や成膜中の薄膜への高周波(VHF)プラズマ照射を用いることで、生産工程に適用可能な400°C程度の低温でも、高品位に作製できるプロセスを確立した。尚、本プロセスの有効性は、規則合金薄膜や窒化物薄膜の形成においても、過去の実験結果から確認されている。よって本プロセスは、他の高機能薄膜の形成およびデバイス化にも、大いに役立つと思われる。

・「2. 研究の内容」の「電界書込み磁気記録の検証」の部分において、磁気力顕微鏡像と電気力顕微鏡像を示した。本測定以外にも、走査型プローブ顕微鏡に、周波数の異なる、交流磁界(70 Hz)および交流電界(300 Hz)印加機構を取り付け、金属磁性探針と強磁性・強誘電薄膜試料間の交番力により誘起される探針振動の周波数変調を検出して同期検波することにより、強磁性・強誘電薄膜表面の磁気力と静電気力を分光して同時に計測し、分域と磁区を個々に検出した結果もある。本観察手法は、今後の強磁性・強誘電薄膜の物性評価に大いに役立つ、その結果、新規な強磁性・強誘電材料の開発につながることを期待される。

4. 3. 成果論文(本研究で得られた論文等を年代順に書いて下さい。未発表のものは公表予定を書いて下さい)

研究発表

・2nd ISAMMA (RE-08) Taiwan July 2013 “Low-temperature fabrication of BiFeO₃ based multiferroic thin films with (111) orientation by sputtering deposition process with VHF plasma irradiation”

・The 58th MMM Conference (FS-15) Denver November 2013 “Low-temperature fabrication of BiFeO₃ based multiferroic thin films with (111) orientation and formation of composite ferro-magnetic and ferroelectric domain structure by local electric field”

・Intermag 2015 (EQ-09) Beijing May 2015 “Fabrication of multiferroic (Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ thin films with (001) orientation for novel perpendicular magnetic recording media by electric-field writing”

* その他、国内の学会・研究会で4件発表している。また、論文は現在執筆中で、近いうちに投稿する予定。