シリコン埋め込みナノ磁性ドット配列の磁気的,光学的評価

佐藤勝昭¹,石橋隆幸¹,森下義隆¹,町田賢司^{1,2},手塚智之¹,水澤愛子¹,山本尚弘¹ (¹東京農工大学,²NHK 放送技研)

Magnetic and optical characterization of nano-scale magnetic dots buried in Silicon

Katsuaki Sato, Takayuki Ishibashi, Yoshitaka Morishita, Kenji Machida, Tomoyuki Tezuka, Takahiro Yamamoto (Tokyo University of Agriculture and Technology)

Abstract

Patterned permalloy arrays of nanometer dimension embedded in silicon substrate have been prepared using Damascene technique with a help of an electron beam lithography. Arrays of square, rectangular, circular and cross-shaped patterns of sub-micrometer size are prepared. The patterned array was characterized using MFM measurement. The result was compared with the spin structure obtained by LLG simulation, showing significant effect of magnetostatic interaction between dots. Azimuthal dependence of second harmonic generation (SHG) showed symmetry patterns reflecting symmetry of the structured materials.

キーワード:磁性体微細構造,ダマシン法,電子線リソグラフィ,パーマロイ,LLG シミュレーション,非線形光学効果 (Magnetic nano structures, damascene technique, electron beam lithography, permalloy, LLG simulation, nonlinear magneto-optical effect)

1. はじめに

最近,パターンドメディア,MRAM など高密度の磁気 ストレージ開発の進展に伴い,サブミクロン,ナノメート ル領域の微細磁性体に関心が寄せられている.微小磁性体 のスピン構造は単純ではなく,磁性体の種類,形状,アス ペクト比などによっても変化することが知られている¹. 特に微細な磁気パターンが高密度に集積された構造にお いては,隣接するパターンからの静磁界の効果を評価する ことが重要になる.

サブミクロン領域の磁性体の微細加工技術としては, 集束イオンビーム(FIB)を用いた加工,電子ビーム(EB)を 援用したリフトオフ技術、電子ビームを援用したダマシン 法などが知られている .集束イオンビームによる直接エッ チングは数 μm の範囲の比較的小規模な加工に適してい る.VSM による磁気評価や光学的評価などのためには, 数 mm におよぶ広い範囲にわたって多数の磁性体微細構 造を作ることが要請されるが,この目的に FIB は適して いない.mm サイズの広範囲の加工技術としては,EB 描 画で作成したマスクを用いて磁性体を直接エッチング加 工するリフトオフ法と, EB 描画によるマスクを用いて微 細加工した基板に磁性体を埋め込むダマシン法が知られ ている.磁性体微細加工にはリフトオフ法が最もよく用い られているが,加工できる磁性体の厚さに制限があり,せ いぜい 20nm とされている.また, MFM による磁気イメ ージングにおいて、凹凸によるトポ像が重畳することによ るアーティファクトが問題にされる.

我々は,これまで電子線描画法を用いたダマシン法に より,さまざまな形状の磁性ドット配列を形成し²,その 磁気的,光学的な評価を行い³, Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)方程式によるスピン構造のシミュレーション結果 と比較して議論を進めてきた^{4,5,6}.

この小稿では, 微細構造作製手順を簡単に紹介すると ともに,磁気的評価および LLG シミュレーションについ て記述し, 最後に SHG を用いた光学的評価に触れる.

2. 試料作製

Si(100)基板に EB レジスト(日本ゼオン製,ZEP-520) を塗布し,160 ,20 min のベーキングをした後,加速 電圧 50kV,ビーム電流 20 pA で電子線描画を行った.レ ジスト厚は約 320 nm である.描画パターンは,幅 1 μ m の正方形(ドット間距離:300 nm),幅 100 nm × 高さ 300 nm の長方形(ドット間距離 300 nm),および十字形状(長 さ3 μ m 幅 200 nm のバーを十字に組み合わせた CROSS 1 と長さ 1.5 μ m,幅 100 nm のバーを組み合わせた CROSS 2 の 2 種類.CROSS 1 のドット間距離:3 μ m, CROSS 2 の 2 種類.CROSS 1 のドット間距離:3 μ m, CROSS 2 のドット間距離:1.5 μ m)の規則ドット配列と し,電子ビーム描画装置(日本電子製,JBX-5000LS)を 用いて EB 露光を行い,描画パターン(図 1)を形成した. 次に、EB レジストで形成した描画パターンをマスクとし, CF4 ガスを用いて 400 W の RF プラズマ源によるドライ エッチングを行い,深さ 150 nm 程度のピットを形成した.

EB レジストを剥離した試料上に,Ni₈₀Fe₂₀を埋め込み 磁性材料として電子ビーム蒸着法により堆積した. Ni₈₀Fe₂₀の膜厚は,ピット深さより約 30 nm 厚くした.

次に,化学機械研磨(Chemical mechanical polishing, CMP)法により試料表面を研磨し,ピットの外側に堆積 された NisoFe20 を研磨して平坦化させることにより,Si 基板内に埋め込んだ微細な磁性ドットの規則構造を形成 した.



(c) Cross-shaped arrays

図 1. 作製した規則ドット配列

3. MFM による磁気状態の評価

作製した磁性ドット配列の磁化状態を磁気力顕微鏡 (MFM)によって観察した.MFM としては Co-Pt-Cr を 50 nm 被覆した高モーメント探針を備えた SII ナノテクノロ ジ SPI-3800N, および, 探針に Co-Pt-Cr を 24 nm 被覆 した低モーメント探針を備えた SII ナノテクノロジ SPI4000/SPA300HV を用いた.なお,低モーメント探針 を用いた場合,大気中における MFM 測定では,探針が試 料に近づくと空気による粘性抵抗が増加することによっ て探針を振動させるカンチレバーの共振点(Q値)が低下 し感度が低下するので,測定は真空中で行った⁷.試料の 表面粗さを測定する AFM 測定では,探針と試料間距離を 2~3 nm に維持した.MFM 測定は Tapping モードで行 った.

図2に,正方形ドット配列のAFM像とMFM像を示 す.AFM測定の結果,作製した磁性ドットとSi基板との 境界にはリセスはほとんど発生していない.図3に高モー メント探針と低モーメント探針を用いたMFM像を示す. 同図(a)は正方形ドット,同図(b)は長方形ドットの測定結 果である.

その結果,正方形ドットについては低モーメント探針 を用いた場合,高モーメント探針で見られた磁壁の湾曲が 強調され風車状の MFM 像が得られた⁸.この構造は Garcia らが報告した磁気構造に類似している.また,高 モーメント探針と低モーメント探針の両方において,1つ のドット内で観察されるコントラストの明暗の順序が,隣 接ドット間で逆転している部分も観測された.これは,



(a) AFM Image

(b) MFM Image

図 2 高モーメント探針を用いて観測した正方形 ドットの(a)AFM 像と(b)MFM 像



図 3 高モーメント探針と低モーメント探針を用い て観測した(a)正方形,(b)長方形ドットの MFM像

Vortex の回転方向が異なることを示唆しているが,隣接 ドット間に静磁気的な作用が働いているためではないか と考えられる.これについては,理論解析の項で改めて議 論する.

長方形ドットについては,高モーメント探針を用いて 測定した場合ドットの短辺方向両側に明るいパターンが 観測されるのに対し,低モーメント探針の場合では,ドッ ト内に2対の明暗が見られた.これは,高モーメント探針 による測定では,探針からの磁界の影響でドットの磁気構 造が影響を受けた結果であると考えられる.長方形ドット において低モーメント探針で見られた2対の明暗につい ても,正方形ドットの場合と同様に隣接ドット間で,順序 が逆転している箇所が見られる.この場合にもドット間に 静磁気的な作用が働いているものと考えている.

次に, 十字パターン(CROSS 1, CROSS 2)の MFM 測定について述べる.磁界印加の制約から,測定は磁界を ある方向に印加した後,残留磁化状態で行った.図4に, 高モーメント探針を用いた場合のMFM像を示す.同図(a) と(d)は As-prepared,同図(b)と(e)は,試料面に対し垂直 な方向で下向きの磁界(-H)を印加した後のMFM像であ り,同図(c)と(f)は,ともに試料面に対して上向きの磁界(+ H)を印加した後のMFM像である.磁界の印加はVSM の電磁石で行った.磁界の大きさHは20kOeである. 探針は,それぞれの測定前に,-H方向に磁化させた.な お,磁界Hの符号は,試料面に垂直で探針へ向かう方向 を正としている.



図 4 十字パターン配列における印加磁界による磁化状 態の変化(高モーメント探針を使用)



(a)High-moment

(b)Low-moment

図 5 CROSS 1 配列における(a)高モーメント探針および (b)低モーメント探針を用いて観測した MFM 像 (磁界印加後)

図 4(a)および(d)から, As-prepared では, CROSS 1, CROSS 2 のどちらの試料も, 十字を構成する縦横バー先 端に磁極と思われる明暗部が観測された.この場合は,正 方形ドットや長方形ドットに見られたような隣接ドット での明暗部の逆転は見られず, すべてのドットにおいて, それぞれ左端と上端に明るい部分が,右端と下端にはそれ ぞれ暗い部分が観測された.磁化方向を反転したとき, CROSS 1, CROSS 2 ともに縦バーの明暗だけが反転する という現象が見られた.この磁極の反転現象は,すべての ドットについて同じ向きで観測されており,常に隣接ドッ トの最近接バーの先端と対をなすように形成されること から,ドット間の静磁気的な結合による影響があると考え られる.

図 5(a)および(b)に、磁界印加後の CROSS1 について, 高モーメント探針と低モーメント探針を用いて測定した MFM 像をそれぞれ示す.高モーメント探針で見られた縦 横バーの先端磁極は,低モーメント探針を用いても同様に 観測された.このことから,十字パターンのバー先端に形 成される磁極は,MFM 探針の影響をほとんど受けていな いものと考えられる.また,同図下に縦横バーの交差した 部分を拡大した MFM 像を示す、左上から右下に向かった 斜線を境に明暗が形成されているのがわかる、縦横バーの 交差部には複雑な磁区構造が形成されていると考えられ る.

4. マイクロマグネティクスによる理論解析

これまで示したように,ダマシン法により作製した NisoFe20ドット配列の磁化状態を MFM 観察した結果,正 方形ドットや長方形ドットには隣接ドット間での Vortex の回転方向の反転が観測されたほか,十字パターン配列に おいては整然とした磁極の並びが観測され,隣接ドット間 に静磁気的な相互作用が働いていることが示唆された.こ の実験結果を解析するために,Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)方程式を数値的に解く手法⁹を用いた.以下に, 解析手法と仮定したモデルを紹介しておく.

LLG 方程式は,磁気モーメントの歳差運動を記述する 運動方程式に Landau-Lifshitz 型のダンピング項を追加 したものであり,次式で示される.

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = |\gamma| \left(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}\right) + \frac{\alpha}{M_s} \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}$$
(1)

 γ : Gyromagnetic constant

 α : Damping constant

 H_{eff} : Effective field

 M_s : Saturation magnetization

$$M_s = |\boldsymbol{M}|, \ \boldsymbol{M} \cdot \frac{\partial \boldsymbol{M}}{\partial t} = 0$$

ここで,有効磁界 **H**eff は,交換磁界 H^A,異方性磁界 H^K, 反磁界 H^D,外部磁界 H^Eの和である.



図6 正方形ドットと十字ドットの計算モデル

磁性ドット配列の磁化状態を解析するツールとして, 汎用の三次元 CAD で作成した任意の立体構造を入力し, 磁化状態を解析できる LLG シミュレータを開発し解析を 行った.図6に,解析に用いた Ni-Fe ドットの計算モデ ルを示す.正方形ドット(幅 200 nm,ドット間距離 50 nm)4ドットの配列と,十字パターン(CROSS 2 に相当)1 ドットである.計算で使用したパラメータは,

$$M_{s} = 800 emu / cm^{3}$$

Exchange stiffness = $1.3 \times 10^{-6} erg / cm^{3}$
Anisotropic const. = $1000 erg / cm^{3}$
 $\gamma = -1.76 \times 10^{7} rad/(s \cdot Oe)$
 $\alpha = 0.1$

である.磁化容易軸は x 軸方向にとった.計算セルの大き さは,正方形モデルについては12.5×12.5×12.5 nm,十 字パターンについては20×20×20 nm とした.また,い ずれのドットパターンついても厚さを100 nm とした.



(a) Single square dot



(b) Matrix of 4 square

図7正方形ドットにおける磁化状態の計算結果

正方形ドットについて緩和計算を行った後の磁化状態 分布を図7に示す.(a)は1ドットのみを計算した結果で, (b)は4ドットを一度に計算した結果である.

緩和計算は,すべてのセルの磁化を紙面に垂直な方向 に向けた後,ステップ時間1 psec で計算した.また,同 図の矢印は各セルにおける磁化の向きを示しており,背景 のグラデーションは,-div*M*を描画したものである.

いずれにおいても,渦(Vortex)状の還流磁区が形成 される.正方形1ドットのみの場合,Vortexの回転軸中 心がほぼ中央に位置しているのに対し,4ドットを一度に 計算したものは,Vortexの回転軸中心にずれが生じてい る.さらに,隣接ドット間において,その回転方向が対称 的に反転しているのがわかる.

図 7(b)に示す解析結果は,図3に示した正方形ドット や長方形ドットの MFM 観察における隣接ドット間での 明暗部の逆転現象をよく再現している.サブミクロンサイ ズにおける磁性体の Vortex 磁区構造において,渦の回転 方向を決めるトポロジーは,磁性体の大きさや形状,交換 エネルギー,静磁エネルギーなどの競合によって決まると 考えられるが,正方形4ドットのシミューションでは,隣 接ドットからの静磁エネルギーの影響により,各ドットに おける渦の回転方向が決まったものと解釈できる.

+字パターンにおける緩和計算の結果を図 8 に示す. 形状磁気異方性によって矢印の向きに磁化が揃い,バーの 先端にだけ磁極が形成されているのがわかる.右図は,バ ー先端を側面から見た斜視図であるが,膜厚方向に Vortex 磁区構造を形成している.これが,試作した十字 パターンの MFM 測定で得られた先端磁極の像として観 測されたのではないかと考えられる.また,十字が交差し た付近には,縦バー上側から横バー左側へ,横バー右側か ら縦バー下側へ向かうようなスピン構造が現れることが わかった.



図8十字パターン1ドットにおける磁化状態の計算結果

計算で得られた - div *M* のグラデーション像において も,先端に磁極が見られ,縦横バーの交差した部分には, 斜め方向の明暗が見られるが,実験で得られた MFM 像と 必ずしも一致したとは言えない.MFM 探針を考慮したシ ミュレーションが必要と考えられ,現在探針に作用する力 を画像化する計算をすすめている.

5. 非線形光学効果による評価

ここからは多少観点を変えて,非線形光学光学効果を 用いて微細構造を観察した結果について述べる.我々は, 以前に,MgO単結晶上にエピタキシャル成長した Fe/Au 人工格子において,非線形光学効果の1種である第2高調 波発生(SHG)の研究を行い,試料を回転したときの SHG パターンが Fe/Au 試料の結晶配列を反映した明瞭な4回 対称を示すこと,磁気飽和に十分な面内磁界の符号を変化 させると,SHG 強度の4回対称パターンが回転すること などを報告し¹⁰,この現象が非線形感受率テンソルの結晶 対称性による成分と磁気対称性にもとづく成分の交差項 によって説明できることを明らかにした.¹¹

我々は,前項までに述べたような手法で得られたメゾ スコピックな人工配列構造の対称性が,原子レベルの結晶





対称性と同様の効果をもたらすのではないかと考え,作製した磁性微細構造の SHG を測定した.

装置の模式図を図 9 に示す¹².光源としては,半導体 レーザ励起固体 SHG レーザをポンプ光とするモードロッ クチタンサファイアレーザを用いた.ベレック補償子と偏 光子を通して試料に入射角 45°で照射し,出射光は青色フ ィルタを通して SHG 光を選択し,フォトマルに導いた. 信号はフォトンカウンティング法でカウントした.

はじめに,埋め込みに使用したSi(001)ウェハー自身の SHG 応答を測定した.Si は中心対称があるため,電気双 極子起源のSHG はバルクにおいては期待できない.実際, 観測されたSHG 信号は,中心対称性のないGaAsの8000 分の1程度の小さな値しか示さなかった.





図 1(a)に示した 1µm 平方の磁性体正方パターン埋め 込み配列構造において,磁界中で SHG の測定を行った結 果,図 10 に示すように Pin-Pout 配置で明瞭な4回対称 の方位依存性が見られたほか,SHG 強度の磁界依存性が 見られた.

SHG 強度の方位角依存パターンの磁界依存性は,しば しばレーザ光強度の時間的変動や試料の加熱による変動 などが加わるため,再現性に乏しいことがある.これに対



図 11 磁性体正方パターン(1µm 平方)配列における 磁気 SHG 強度の検光子角依存性(S偏光入射の場合)

して,検光子角を回転したときのSHG強度変化は,レー ザ光変動などの影響を受けにくいので,非線形磁気光学効 果を確認する手段として信頼性がある.図11は1µm平 方の正方形ドット配列における正負の磁界に対するSHG 強度の検光子角依存性である.この曲線を正弦波でフィッ トし,位相差の1/2から非線形カー回転角を求めることが できる.この結果正方形ドットの非線形カー回転角として 6°という値が得られた.

次に、Si(001)ウェハーにダマシン法で作製した図 1(b) に示すような長方形ドット配列の SHG パターンの方位角 依存性を図 12 に示す.SHG 信号強度は加工前の信号に 比べ4桁近く大きい.試料回転の際の方位角の基準として は長方形パターンの長手(以下,便宜上x軸と称す)方向 を 0°にとっている. Pin, Sin の記号は入射偏光がそれぞ れ P, S であることを示す. 一方, Pout, Sout は検出側の 偏光がそれぞれ P,S であることを示す.どの偏光配置に おいても明瞭な2回対称パターンが観測されている. Pin-Pout 配置では, SHG 方位角依存パターンの対称軸は 長方形ドットの x 軸方向にあるが,他の偏光配置では x 軸 あるいは y 軸(長方形の短軸方向)から傾いている.磁界に 対する 3kOe の磁界を面内に印加しその向きを変化させ てもパターンに全く変化がなかった. すなわち MSHG は 観測できなかった . 検光子角依存性を測定し , 非線形カー 回転角の測定も試みたが,有意な結果は得られなかった

レーザスポットの径は 50µm 程度あるので,8000 個 程度のドットが含まれ,巨視的構造の対称性が非線形感受 率テンソルに反映して,正方ドットの配列では4回対称パ ターン,長方形ドット配列では2回対称パターンが生じた ものと考えられる.なお,予備実験ではあるが,三角配列 した円形ドットのパターンからのSHGには3回対称の方 位角依存性が観測された.

磁気誘起 SHG(=MSHG)効果は,磁化が面内にある場合にのみ大きい値をもつことが知られる.一辺1µmの正



信号の方位角依存性と磁界依存性

方形パターンの場合,磁化の面内成分が大きいため MSHG が観測されたが,これより小さな長方形や円形の パターンにおいては微細磁性体のスピン構造が大変複雑 で,面内に印加した2kOeの磁界では表面の磁化を完全 に面内に配向できなかったのではないかと考えている.も っと浅いピットに磁性体を埋め込めば,面内磁化をもつた め,MSHG が強くなるのではないかと予想している.ま た,CMP研磨による磁性体最表面の損傷や酸化などによ っても磁気誘起効果が抑制される可能性がある.

6. まとめと今後の課題

本研究では,電子線リソグラフィと CMP を用いたダ マシン法により,正方形,長方形,十字形の微細な Ni₈₀Fe₂₀ 磁性ドット規則配列埋め込み構造を Si 基板に作製し, MFM を用いてそれらの磁化状態を観測した.十字形ドッ トにおいては十字を構成するバーの両端に磁極が現れた. その極性の現れ方はすべてのドットについて同一な方向 で,縦横のバーが交差する部分には正負の磁極が観測され た.

また,微細な磁性ドット配列の磁化状態を理論的に解 析するために,マイクロマグネティックシミュレーション を行った.その結果,正方形4ドットの同時計算では,隣 接ドットの Vortex の回転方向が反転するという現象が見 られた.これは,試作した正方形ドットや長方形ドットに ついての MFM 観測結果と対応しており,隣接ドットから の静磁気的な影響によるためと結論づけられた.また,十 字パターンについては,先端に磁極が現れ,膜厚方向に Vortex 構造を形成することがわかり実験が説明された. また,バーの交差する付近に複雑なスピン構造が現れると いう実験結果も説明された.

これらの微細構造配列について SHG の方位角依存性 が測定された.正方形ドットの正方配列においては4回対 称,長方形ドットの配列においては2回対称のパターンが 見られ,SHG に関与する電気感受率テンソルが人工的配 列の対称性を反映していることを示した.正方ドットにつ いては磁気誘起SHG が観測され,非線形カー回転角とし て 6°という値が得られた.長方形ドットは,複雑なスピ ン構造を示し,磁気誘起SHG は観測できなかった.

謝辞

本研究は,東京農工大学21世紀COEプログラム「ナ ノ未来材料」プロジェクトの一環として行っている.低モ ーメントチップによる MFM 像観測をご指導頂いたエス アイアイ・ナノテクノロジーの山岡武博様に感謝する.

参考文献

- 1 K. Hubert, R. Schäfer: Magnetic Domains The Analysis of Magnetic Microstructures-, Springer, New York, 1998.
- 2 T. Matsumoto, T. Tezuka, T. Ishibashi, Y. Morishita, A. Koukitu and K. Sato, Trans. Magn. Soc. Jpn. **3** (2003) 103.
- 3 佐藤勝昭,清水伸一郎,手塚智之,石橋隆幸,森下義隆, 纐纈明伯:電気学会マグネティックス研究会資料 MAG-03-131 (2004) p.21
- 4 T. Tezuka, T. Yamamoto, K. Machida, S. Shimizu, T. Ishibashi, Y. Morishita, A. Koukitu and K. Sato: Trans. Magn. Soc. Jpn. **4** (2004) 241.
- 5 町田賢司, 手塚智之, 山本尚弘, 石橋隆幸, 森下義隆, 纐纈明伯, 佐藤勝昭: 信学技報 **103** MR2003-56 (2004) 25.
- 6 K. Machida, T. Tezuka, T. Yamamoto, T. Ishibashi, Y. Morishita, A. Koukitu, K. Sato: J. Magn. Magn. Mater. (in press).
- 7 山岡武博,渡辺和俊,白川部喜春,芽根一夫:日本応用 磁気学会誌 27 (2003) 429.
- ⁸ J.M. Garcia, A. Thiaville, J. Miltat,K.J. Kirk, J.N.Chapman and F. Alouges: J. Appl. Phys. **79** (2001) 656.
- 9 . Nakatani, Y. Uesaka, and N. Hayashi: Jpn. J. Appl. Phys., 28 (1989) 2485.
- 10 K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing: Nonlinear magneto-optical effect in Fe/Au superlattices: J. Magn. Soc. Jpn. 23 (1999) 352.
- 11 K. Sato, A. Kodama, M. Miyamoto, A.V. Petukhov, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, A. Kirilyuk and Th. Rasing: Phys. Rev. **B64** (2001) 184427.
- 12 児玉彰弘・宮本大成・佐藤勝昭・三谷誠司・高梨弘毅・ 藤森啓安:日本応用磁気学会誌 24 (2000) 383.