Co-Cr スパッタ膜の磁気異方性

Magnetic Anisotropy of Sputtered Co-Cr Thin Films

河内山彰・住田勲勇*・中山靖彦*・浅沼 満

玉川大学工学部, 町田市玉川学園 6-1-1 (☎194)

*松下技研(株), 川崎市多摩区東三田 3-10-1 (☎214)

A. Kouchiyama, I. Sumita*, Y. Nakayama* and M. Asanuma

Faculty of Engng., Tamagawa Univ., 1-1, Tamagawa Gakuen 6-chome, Machida, Tokyo, 194

*Matsushita Res. Inst. Tokyo, Inc., 10-1, Higashimita 3-chome, Tama-ku, Kawasaki, 214

Co-Cr and Co-Cr-W films were prepared by DC magnetron sputtering equipment on PET film. The dependence of magnetic anisotropy constants K_{u1} and K_{u2} on film thickness was determined from the torque curve measurement. When the film thickness is thin, the K_{u1} is very small, and it increases rapidly as the thickness increases. On the other hand, the K_{u2} is extremely large for thin films but as the thickness is increased, it decreases rapidly and approaches a nearly constant value. K_{u1}/K_{u2} values are not constant. The dependences of ϕ_2 and ϕ_4 on film thickness were measured, where ϕ_2 and ϕ_4 were tilt angles of the easy magnetization axis from film normal for K_{u1} and K_{u2} . The value of ϕ_2 was not equal to that of ϕ_4 . These results suggest that there is another four-fold symmetry besides that of uniaxial anisotropy.

1. はじめに

垂直磁気記録媒体に用いられる Co-Cr 膜の磁気特性は、膜の成長に伴い変化することが知られており^{1),2)}、また膜の初期形成層とその上に堆積する層との二層構造をとることなども報告されている³⁾。この初期形成層は、結晶配向性の悪い、面内容易な膜となっており、膜厚が増すにつれ垂直異方性が優越することが指摘されている³⁾。しかし、磁気異方性定数が膜の成長とともにどのように変化して行くかを系統的に調べた研究はほとんどない。

そこで本研究では、膜厚 0.02~0.5 μm の Co-Cr 膜と実用上適した膜質を得るために第 3 元素として W を添加した Co-Cr-W 膜について、磁気異方性定数 (K_{u1} , K_{u2}) の膜厚依存性ならびに、磁化容易方向の膜面に垂直な方向からの傾きについて調べた。

2. 薄膜作製および実験方法

Co-Cr 膜と Co-Cr-W 膜は、DC マグネトロンスパッタ法により、それぞれ Cr 量が 20 wt% の Co-Cr 合金

Table 1 Sputtering condition.

Substrate temp.	130°C
Ar pressure	1×10^{-3} Torr
Sputtering power	0.7~2.8 kW
Film speed	5~30 cm/min

ターゲットと Cr 量が 15.5 wt%, W 量が 4.8 wt% の Co-Cr-W 合金ターゲットを用いて、50 μm 厚の長尺 PET フィルム上に Table 1 の条件のもとで連続的に作製した。膜厚の制御はスパッタ電力とフィルム送り速度を調整することにより行い、各試料の膜厚は触針式段差計 (タリステップ) により測定した。

磁気異方性定数 (K_{u1} , K_{u2}) は、次のような手順により決定した。磁気トルクメータにより測定したトルク曲線を

$$L(\phi) = A_2 \sin 2(\phi - \xi_2) + A_4 \sin 4(\phi - \xi_4) + \dots \quad (1)$$

の形にフーリエ展開する。ここで ξ_2 , ξ_4 はそれぞれ 2 回および 4 回対称成分の垂直方向からの位相ずれである。このとき外部磁界 (H) が、十分強くないと Fig. 1 のように、磁化 (M_s) の方向は H の方向から容易軸の方向へ $\phi - \theta$ だけ傾く。このため、(1) 式には見掛けの高次成分が含まれる。この影響をさけるために、磁気異方性によって生ずるトルクは、 H が M_s に及ぼすトルク $M_s H \times \sin(\phi - \theta)$ に等しいという関係から、 $\phi - \theta$ を算出し、(1) 式を $L(\theta)$ の形に変換した⁴⁾。その後、B-H ループから求めた反磁界係数 (N) により反磁界を補正し、一軸異方性を仮定し次式の形に変形して磁気異方性定数 K_{u1} , K_{u2} ならびに、磁化容易方向の膜面に垂直な方向からの傾き ϕ_2 , ϕ_4 を決定した。

$$L(\theta) = -(K_{u1} + K_{u2}) \sin 2(\theta - \phi_2) + 2\pi M_s^2 N \sin 2\theta + 1/2 K_{u2} \sin 4(\theta - \phi_4) + \dots \quad (2)$$

通常一軸異方性の場合、 ϕ_2 と ϕ_4 は一致するはずであるが、後で述べるように本実験では一致しなかったので特

Fig. 1 Directions of easy magnetization axis K_u , H and M_s .

に区別した。(1),(2)式では4回対称までしか記していないが実際の展開は、より高次項まで行って、2回対称と4回対称以外はほとんど含まれていないことを確認している。本研究では、外部磁界 $H=20$ kOe でトルク測定を行っているが、この条件下では、以上述べたような $\phi \rightarrow \theta$ の角度補正を行わないで直接 $\phi = \theta$ として、 K_{u1} , K_{u2} , ϕ_2 , ϕ_4 を求めても、補正を行った場合とほぼかわらないことを確認している。

また、X線回折装置により測定されたロッギング曲線から $\Delta\theta_{50}$ を求め結晶配向性の尺度とした。

3. 実験結果および考察

Fig. 2 は、Co-Cr-W 膜の K_{u1} と K_{u2} のトルク曲線測定時の外部磁界依存性の一例を示したものである。このときの K_{u1} および K_{u2} は、前に述べたような $\phi - \theta$ の角度補正を行った場合と行わなかった場合の両方の値が示してある。 K_{u1} は、磁界強度によらずほぼ一定であるが、 K_{u2} は、磁界強度を増すに従って、減少する傾向がみられる。この原因としては、2回対称成分によって作られる見掛けの4回対称成分の影響が考えられるが、 $\phi \rightarrow \theta$ の角度補正を行った場合にも同様な磁界依存性が現れており、磁界不足による ϕ と θ のずれをこの磁界依存性の原因と考えることは、困難である。むしろこの場合は、4回対称成分自身がこのような磁界依存性を示すと考える方が妥当であろう。この他の条件で作製された膜についても同様な磁界依存性が確認されたが、以下の実験結果については、外部磁界 20 kOe の場合について述べることにする。また、我々の膜では上坂ら⁵⁾が指摘しているような磁界依存性は確認されなかった。

Fig. 2 Dependence of K_{u1} and K_{u2} determined from $L(\phi)$ and $L(\theta)$ on $1/H$.

Fig. 3 は Co-Cr-W 膜と Co-Cr 膜の K_{u1} の膜厚依存性を示したものである。 K_{u1} は両者の膜とも膜厚の増加とともに急激に増加し、その後徐々に減少する。Co-Cr 膜に関しては、膜厚 $0.017 \mu\text{m}$ の膜で K_{u1} は負の値を取り、磁化容易方向が膜厚が減少するにつれて、面内に移り変わっていくことを示している。従来指摘されていた面内容易な初期形成層の膜厚が $0.1 \mu\text{m}$ 程度であるのに対して³⁾, K_{u1} をトルク計を用いて測定した結果、我々の膜ではそれよりかなり薄いことが明らかとなった。

一方、 K_{u2} は Fig. 4 に示されるように、膜厚の増加とともに減少し一定値になる。この結果は、Fig. 2 の K_{u1} の場合と対照的であり、一般に膜厚による結晶構造の変化がなければ、 K_{u1} と K_{u2} の比率は常に一定であるはずで、これは興味深い結果である。

Fig. 5 は X 線回折装置により測定した Co-Cr-W 膜の $\Delta\theta_{50}$ の膜厚依存性を示したものである。 $\Delta\theta_{50}$ は膜厚の増加とともに単調に減少する。この傾向は、他の多くの報告とも一致している^{1), 2)}。

Fig. 3, Fig. 5 の結果より、結晶配向性の向上とともに K_{u1} が大きくなる傾向がみられる。しかし、 K_{u1} の膜厚の薄い領域での急激な増加を単に c 軸の分布の変化だけから説明することはできない。同様な現象として、 $\Delta\theta_{50}$ が 5 度以下のとき、異方性磁界 H_k はほぼ一定であるが、それ以上になると H_k が急激に減少する結果が報告されている⁶⁾。膜の成長初期には、微細な乱れた結晶が形成されていると考えられ、膜の成長とともに結晶性の優れた膜に変わっていくことが予想される。このようなことから、膜の成長初期において急激に結晶性が良くなり、 K_{u1} が急激に増加したのと考えられる。すなわち、これらの膜の磁気異方性は従来からの指摘どおり結晶磁気異方

Fig. 3 Dependence of K_{u1} on thickness of Co-Cr and Co-Cr-W thin films.

Fig. 4 Dependence of K_{u2} on thickness of Co-Cr and Co-Cr-W thin films.

性に起因しているものと思われる⁷⁾.

Fig. 6 に Fig. 1 に示した、磁化容易軸方向の膜面に垂直な方向からの傾きである (2) 式の ϕ_2 と 4 回対称成分の垂直方向からの位相ずれ ϕ_4 の膜厚依存性を Co-Cr-W 膜に対して示す。 ϕ_2 は、膜厚が薄いときは大きい、0.06 μm 以上では 2° 以下と小さくなっている。 ϕ_4 は、 5° から 8° 程度で特に膜厚に対する変化は確認されない。 ϕ_2 の大きさを決定する要因として、 c 軸の膜面に垂直な方向からの傾きが考えられるが、本実験に用いた膜の場合 X 線回折により求めた c 軸の傾きはすべて 1 度以内であった。この結果は、石橋らの⁹⁾、容易軸の傾きが c 軸

Fig. 5 Dependence of $\Delta\theta_{50}$ on thickness of Co-Cr-W thin films.

Fig. 6 Dependence of ϕ_2 and ϕ_4 on thickness of Co-Cr-W thin films.

の傾きに依存するという結果と異なるが、これは膜作製条件が両者の実験で異なるためだと考えられる。また、 ϕ_2 、 ϕ_4 のトルク測定時の磁界強度依存性を調べたところ、10 kOe 以上では一定であることが確認された。

以上の実験結果から、Fig. 4 における K_{u2} の発生の原因を推察すると、まず、この K_{u2} が一軸異方性のみから生じていれば、膜厚の違いにより格子定数の変化がなければ、結晶配向性が異なっても、 K_{u1} と K_{u2} の比率は一定であるはずである。また、完全な一軸異方性であれば、Fig. 6 の ϕ_2 と ϕ_4 は一致するはずである。このようなことから、この K_{u2} には一軸異方性以外のものが含まれていると考えられる。この原因としては、Co-Cr 膜の場合、膜の作製条件により fcc 相が形成されることが報告されており^{9), 10)}、立方磁気異方性による 4 回対称成

分が含まれている可能性もあるが、このことに関して、今後さらに詳細な研究を進める必要がある。

4. ま と め

Co-Cr-W 膜と Co-Cr 膜の磁気異方性をトルク曲線から解析し、 K_{u1} , K_{u2} の膜厚依存性について調べた。

その結果、両者の膜ともに同様な傾向を示し、 K_{u1} は、膜厚が極めて薄い膜では極端に小さく膜厚の増加とともに急激に増大することが確かめられた。この原因は、膜の成長とともに結晶性が急激に良くなることによるものと考えられ、やはりこれらの膜の磁気異方性は、結晶磁気異方性に起因しているものと思われる。

一方、 K_{u2} は、膜厚が薄いとき大きい値を示すがその後減少して一定値になる。

また、磁化容易方向の膜面に垂直な方向からの傾きの変化を膜厚に対して調べたところ、2 回対称成分と 4 回対称成分の傾き角にずれがあることが明かとなった。この結果と K_{u1} と K_{u2} の比率が常に一定でないことから、今回測定された K_{u2} には、一軸異方性以外のものが含まれていると考えられ、その解明が今後の課題である。

最後に、磁気トルク計を使用させて頂いた東北電子産業(株)ならびに、住友金属鉱山(株)中央研究所磁性グループの皆様に感謝する。

文 献

- 1) 大内, 岩崎: 東北大通研シンポジウム「垂直磁気記録」, 131 (1982).
- 2) 河内山, 坂井, 住田, 中山, 浅沼: 日本応用磁気学会誌, **10** (2), 55 (1986).
- 3) C. Byun, J. M. Sivertsen and J. H. Judy: *J. Appl. Phys.*, **57**, 3997 (1985).
- 4) 近角: 強磁性体の物理 (下), 裳華房, 16 (1984).
- 5) 上坂, 鈴木, 近角: 第 11 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 198 (1987).
- 6) 大内, 岩崎: 日本応用磁気学会第 39 回研究会資料, 31 (1985).
- 7) 岩崎, 大内: 電子通信学会論文誌 J63-C, **4**, 238 (1980).
- 8) 石橋, 内山, 黄, 鈴木: 第 11 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 199 (1987).
- 9) T. M. Coughlin, E. R. Wuori and J. H. Judy: *J. Vac. Sci. Technol.*, **20** (2), 171 (1982).
- 10) 岩崎, 大内, 木村, 斎木: 日本応用磁気学会誌, **10** (2), 61 (1986).

1987 年 12 月 7 日受理, 1988 年 2 月 12 日採録