低保磁力 Co-Cr スパッタ膜の磁区パターン

Domain Patterns of Co-Cr Sputtered Films with Low Coercivity

高橋健一・本多茂男・楠田哲三

広島大学工学部, 広島市西条町下見 (〒724)

K. Takahashi, S. Honda and T. Kusuda

Faculty of Engng., Hiroshima Univ., Shitami, Saijo-cho, Higashi-Hiroshima, 724

Co-Cr films were prepared on polyimide substrates with a temperature of $T_s=27^\circ\text{C}$ by rf sputtering method. Film thickness was varied from $0.2\mu\text{m}$ to $2\mu\text{m}$. These films have low coercivity. When the c -axis orientation was good, the reentrant perpendicular hysteresis loops could be obtained. In these films, we observed domain patterns as a function of the thickness h and the c -axis orientation $\Delta\theta_{50}$ by the Bitter method. The stripe domain and wall motion could be observed clearly in thick films with good c -axis orientation. The relations between the period of stripe domain D and h could be explained by wall motion. The dependence of h and $\Delta\theta_{50}$ on the squareness ratio of in-plane hysteresis loop $M_{r//}/M_s$ was studied. We calculated $M_{r//}/M_s$ versus $\Delta\theta_{50}$ and h based on a model assuming the μ^* effect. Good agreement between the experimental and calculated values was obtained.

1. はじめに

Co-Cr 膜の磁化過程については、これまでも詳細に検討されてきた^{1)~5)}。高保磁力の Co-Cr 膜ではその磁化反転は回転磁化によるものとされている。一方、低保磁力の Co-Cr 膜では明りょうなストライプ磁区が観察でき^{6)~8)}、磁壁移動モデルが実験とよく一致することが報告されている。高保磁力の Co-Cr 膜においても磁壁移動の関与は無視できないことを磁区観察結果は示している^{7),9)}。

本研究では基板温度 27°C で作成した種々の膜厚や種々の c 軸分散をもつ低保磁力 Co-Cr 膜についてビッター法を用いて磁区観察を行い、磁区構造と膜厚及び結晶配向性との関係について考察する。また、面内ヒステリシスループの残留磁化成分に着目し、その膜厚及び結晶配向性との関係についても述べる。

2. 実験方法

RF 二極スパッタ法により、厚さ $50\mu\text{m}$ のポリイミド基板上に Co-Cr 膜を作成した⁷⁾。スパッタには直径 100

mm の Co ディスク上に Cr チップを配置した複合ターゲットを用いた。作成条件は、到達真空度 $1\times 10^{-7}\text{Torr}$ 以下、Ar 圧力 10 m Torr, 投入電力 100 W であり堆積速度は $170\text{\AA}/\text{min}$ であった。膜厚はスパッタ時間を変えて制御し、 $0.2\sim 2\mu\text{m}$ とした。

磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) で測定した。飽和磁化 M_s には 15 kOe での値を用いた。膜の c 軸配向性は $\text{CuK}\alpha$ -X 線を用いた X 線回折による $\text{hcp}(002)$ 面のロッキング曲線の半値幅 $\Delta\theta_{50}$ により評価した。磁区観察はビッター法を用いて行った。観察時の外部磁場は膜面垂直方向に最大 7 kOe まで印加することが可能である。

3. 実験結果と考察

Fig. 1 に基板温度 27°C で作成した膜厚 $2000\text{\AA}$ の試料のヒステリシスループを示す。この試料の磁気特性、すなわち飽和磁化 M_s 、垂直磁気異方性エネルギー K_u 、垂直保磁力 $H_{c(\perp)}$ 及び面内保磁力 $H_{c(\parallel)}$ は図中に示すとおりである。 $\Delta\theta_{50}$ は 4.3° で c 軸配向性は良好である。基板温度 27°C で作成した試料において c 軸配向性が良いとき、このような磁化特性を示す。つまり低保磁力であり垂直方向のヒステリシスループの肩の部分がリエントラントとなる。

Fig. 1 の試料において、印加磁場方向を変えたときの

Fig. 1 M-H loop of Co-Cr film sputtered at $T_s=27^\circ\text{C}$.

Fig. 2 Angular dependences of H_c .

保磁力の変化を Fig. 2 の実線で示す。ここに横軸は印加磁場方向と膜面に垂直な軸とのなす角である。 H_c は 30° 付近で最大値を示し、 30° 以下では磁壁移動が支配的であることを暗示している。しかし、 90° での保磁力は 0° のときと同程度であり面内磁化層の寄与が無視できない。低磁界のヒステリシス曲線には面内磁化層の寄与が重畳されているものと考えられるので挿入図に示すように、高磁場側のヒステリシス曲線から低磁場側に内挿することにより垂直磁化層の保磁力 H_c' を決定した。これを破線で示す。 H_c' は 50° 付近まで一定で、それ以上の角度では減少する。このような変化は磁壁移動と磁化回転が同時に起こることを仮定したモデル⁴⁾により説明できる。

Fig. 1 のような磁化特性をもつ試料についてビッター法で磁区観察を行った結果を Fig. 3 に示す。(a), (b), (c) の膜厚はそれぞれ、 $2.0\ \mu\text{m}$, $0.87\ \mu\text{m}$, $0.37\ \mu\text{m}$ で、 M_s はほぼ同じ値 $330\ \text{emu/cm}^3$ (Cr 23 at.%) である。これらの写真は試料を一度飽和させた後、外部磁場 H_{ex} を減少させていく過程で観察したものであり、逆磁区（白い部分）の伸びる様子が観察される。(a) 及び (b) の試料では 0 磁場においても明りょうなストライプ磁区が観察される。しかし、(c) の試料の場合 $H_{\text{ex}} = 1.0\ \text{kOe}$ 以下になると白黒がぼやけ、 $H_{\text{ex}} = 0.2\ \text{kOe}$ では写真のようにコントラストがほとんどつかなくなる。これは磁区幅が小さくなりコロイド吸引力が弱くなるためと考えられる。

$H_{\text{ex}} = 2\ \text{kOe}$ 及び $H_{\text{ex}} = 0$ のときの白及び黒のストライプの周期 D と膜厚 h の関係を Fig. 4 にそれぞれ白丸 (○) 及び黒丸 (●) で示す。 $H_{\text{ex}} = 2\ \text{kOe}$, $H_{\text{ex}} = 0$ のいずれの場合も D は h の減少とともに減少する。実線及び破線は、磁壁移動モードに対する Kooy-Enz の式¹⁰⁾を用いて計算したストライプ磁区の周期 D である。計算には使用した試料の実測平均値 $M_s = 330\ \text{emu/cm}^3$ 及び $K_u = 6 \times 10^5\ \text{erg/cm}^3$ を用い、磁壁エネルギー密度を $\sigma_w = 2.8\ \text{erg/cm}^2$ と選んだ。実験とよく一致していることがわかる。文献⁸⁾の (2) 式に $M_s = 330\ \text{emu/cm}^3$ を代入すると、 $\sigma_w = 2.2\ \text{erg/cm}^2$ が得られ、ここに用いた値は若干大きいがこの理由については現時点では明らかではない。

Fig. 5 は c 軸配向性の異なる試料のビッターパターン

Fig. 3 Bitter patterns of Co-Cr films of $h = 2.0\ \mu\text{m}$ (a), $0.87\ \mu\text{m}$ (b) and $0.37\ \mu\text{m}$ (c).

Fig. 4 Period of strip domain D versus h .

Fig. 5 Bitter patterns of Co-Cr films of $\Delta\theta_{50} = 3.5^\circ$ (a) and 8.0° (b).

である。(a),(b)はそれぞれ $\Delta\theta_{50}$ が 3.5° 及び 8.0° の試料である。(a)の試料では滑らかな磁区伸長過程が観察され写真のように連続したストライプ磁区を形成する。一方(b)の試料では(a)のような明らかな磁区伸長過程ではなく、反転磁区が次々とつながっていき、ストライプ磁区を形成している。 $\Delta\theta_{50}$ を変えて観察を行ったところ、磁区の形状は $\Delta\theta_{50}$ が大きくなると(b)のような磁区を形成する。しかし、これは $\Delta\theta_{50}$ に依存するというより、ヒステリシスループの形状に依存するようである。つまり Fig. 1 に示すような磁化特性を示せば(a)のような磁区を示し、ヒステリシスループの角型特性が悪化し、ヒステリシスの肩の部分が滑らかになると(b)のようになる。

Fig. 6 は面内ヒステリシスループの残留磁化と飽和磁化の比 $M_{r(//)}/M_s$ の $\Delta\theta_{50}$ に対する変化を示す。図中のプロットは $T_s = 27^\circ\text{C}$ で作成した $h = 0.2\mu\text{m}$ の試料のものである。破線及び一点鎖線は以前に報告した $h = 1\mu\text{m}$ のもので⁷⁾、それぞれ $T_s = 27^\circ\text{C}$ 及び $150\sim 180^\circ\text{C}$ の試料のものである。 $h = 1\mu\text{m}$ の試料で $T_s = 27^\circ\text{C}$ のものは原点を通る直線であり、これを平行移動させたものが $T_s = 150\sim 180^\circ\text{C}$ のものとなっている。 $T_s = 150\sim 180^\circ\text{C}$ の試料における平行移動成分は初期面内磁化層¹¹⁾

Fig. 6 $M_{r(//)}/M_s$ versus $\Delta\theta_{50}$. The solid line indicates the calculations using $\delta = 100\text{\AA}$.

の寄与によるものと考えられ、同じ $\Delta\theta_{50}$ でも高温で作成した試料の方が $M_{r(//)}/M_s$ は大きくなっている。

$T_s = 27^\circ\text{C}$ で作成した薄い試料 ($h = 0.2\mu\text{m}$) における $M_{r(//)}/M_s$ と $\Delta\theta_{50}$ の関係は破線及び一点鎖線のような直線関係にはならず、 $M_{r(//)}/M_s$ は $\Delta\theta_{50} = 3\sim 6^\circ$ では破線よりも高くなっており、 $\Delta\theta_{50} = 6\sim 10^\circ$ 以上でしだいに破線に近づく。さらに c 軸配向性が悪化してくると破線に乗ってくる。このようなふるまいは初期面内磁化層と垂直磁化層からなる二層膜モデルでは説明できない。

ここでは、Fig. 7 のようなモデルを用いて考察する。この図は一度面内の矢印の方向に大きな磁場を印加した後、外部磁場を 0 に戻したときの状態を示す。 μ^* 効果によって、表面の磁化は垂直方向から面内方向に ϕ_0 の角度だけ傾き、膜の内部に行くに従って、磁化の向きは容易軸方向すなわち θ_0 に近づいていく。 ϕ_0 から θ_0 に変化する遷移層の厚さは、交換スティフネスと異方性定数 K_u によって決定され、ブロッホ磁壁幅 ($\approx 210\text{\AA}$)⁸⁾ と同程度と考えられる。したがって膜厚 h が $1\mu\text{m}$ のとき遷移層は約 2% で遷移層の影響は無視でき

$$M_{r(//)}/M_s \approx \theta_0 \quad [\text{rad}] \quad (1)$$

となる。Fig. 6 の破線の傾きから

$$\theta_0 = 0.73 \Delta\theta_{50} \quad [\text{rad}] \quad (2)$$

なる関係が成立する。他方、 $h = 0.2\mu\text{m}$ の場合、遷移層厚は膜厚の約 10% となり遷移層の影響が無視できなくなる。

文献¹⁰⁾の(6)式より μ^* 効果 ($\mu^* = 1 + 2\pi M_s^2/K_u$) のため静磁エネルギーは $2/(1 + \sqrt{\mu^*})$ の因子で減少するので、 $z = 0, h$ での表面磁荷密度 ρ は

$$|\rho| = \{2/(1 + \sqrt{\mu^*})\} M_s \cos \theta_0 \quad (3)$$

と近似でき、 $|\rho| = M_s \cos \phi_0$ より

$$\phi_0 = \cos^{-1} \left[\{2/(1 + \sqrt{\mu^*})\} \cos \theta_0 \right] \quad (4)$$

と求まる。表面付近での磁化の傾き角 ϕ の変化は磁壁内

Fig. 7 Assumption of magnetization direction.

の磁化の変化と同様に計算でき磁壁中心から離れた点では、

$$\phi = \phi_0 e^{-z/\delta}, \quad \delta = \sqrt{A/K_u} \quad (5)$$

で表されるので、ここでは

$$\phi = \begin{cases} \phi_0 e^{-z/\delta} & (0 \leq z \leq z_0) \\ \theta_0 & (z_0 \leq z \leq h - z_0) \\ \phi_0 e^{-(h-z)/\delta} & (h - z_0 \leq z \leq h) \end{cases} \quad (6)$$

と仮定する。ただし

$$z_0 = \delta \ln(\phi_0/\theta_0) \quad (7)$$

である。(6)式より面内残留磁化 $M_{r//}/M_s$ は

$$M_{r//}/M_s = (2/h)[(\phi_0 - \theta_0)\delta + (2/h - z_0)\theta_0] \quad (8)$$

となる。しかし、 $h < 2z_0$ では上式は成立しなくなる。この場合は

$$\phi = \frac{\phi_0}{1 + e^{-h/\delta}} [e^{-z/\delta} + e^{-(h-z)/\delta}] \quad (9)$$

を仮定し、(4)式は

$$\cos \phi_0 = \{2/(1 + \sqrt{\mu^*})\} \cos^2 \theta_0 / \int_0^h \cos \phi \, dz \quad (10)$$

に修正される。このとき、

$$M_{r//}/M_s = (1/h) \int_0^h \sin \phi \, dz \quad (11)$$

となる。Fig. 6の実線は $\delta = 100 \text{ \AA}$ として(8)式を用いて計算した値である。文献⁸⁾から求めた値 $\sqrt{A/K_u} = 67 \text{ \AA}$ の約1.5倍になっている。これは表面付近の体積磁荷による反磁場効果のため、異方性エネルギー K_u が実効的に小さくなっていることに起因するものと考えられる。

Fig. 8に膜厚 h に対する $M_{r//}/M_s$ の関係を示す。白丸(○)は $\Delta\theta_{50} = 5 \sim 7^\circ$ の膜であり、黒丸(●)は文献¹²⁾の実測値($\Delta\theta_{50} = 3 \sim 5^\circ$)である。実線は前述のモデルで $\Delta\theta_{50} = 5^\circ$, $\delta = 100 \text{ \AA}$ を用いて(8)式及び(11)式を計算した値である。実験値とのよい一致を示している。

Fig. 8 h dependence of $M_{r//}/M_s$. The solid line indicates the calculations using $\delta = 100 \text{ \AA}$ and $\Delta\theta_{50} = 5^\circ$.

4. まとめ

$T_s = 27^\circ\text{C}$ で作成した低保磁力で c 軸配向性が良い Co-Cr 膜の磁化過程は磁区観察結果より磁壁移動であり、膜厚の変化に対するストライプ磁区のふるまいは磁壁を考慮した磁壁理論により説明できる。

$T_s = 27^\circ\text{C}$ で作成した Co-Cr 膜のヒステリシスループの面内残留磁化成分の挙動は μ^* 効果を考慮したモデルによる計算とよく一致する。

文 献

- 1) S. Iwasaki, K. Ouchi and N. Honda: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-16**, 1111 (1980).
- 2) Y. Nakamura and S. Iwasaki: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 153 (1987).
- 3) T. Wielinga, J. C. Lodder and J. Worst: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-18**, 1107 (1982).
- 4) S. Honda, T. Yamakawa and T. Kusuda: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-21**, 1468 (1985).
- 5) F. Schmidt and A. Hubert: *J. Magn. Magn. Mat.*, **61**, 307 (1986).
- 6) F. Schmidt, W. Rave and A. Hubert: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-21**, 1596 (1985).
- 7) 高橋, 本多, 楠田: 日本応用磁気学会誌, **11**, 77 (1987).
- 8) S. Honda, K. Takahashi and T. Kusuda: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **26**, L593 (1987).
- 9) 粟野, 樹屋: 第11回日本応用磁気学会学術講演概要集, 191 (1987).
- 10) C. Kooy and U. Enz: *Philips. Res. Rep.*, **15**, 7 (1960).
- 11) C. Byun, J. M. Sivertsen and J. H. Judy: *J. Appl. Phys.*, **57**, 3997 (1985).
- 12) Y. Niimura, S. Nakagawa, Y. Hoshi and M. Naoe: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 2461 (1987).

1987年12月7日受理, 1988年2月12日採録