Co/Pd 人工格子スパッタ膜の垂直磁気異方性

Perpendicular Magnetic Anisotropy of Sputtered Co/Pd Superlattices

竹内健史・縄手雅彦・本多茂男

広島大学工学部, 東広島市鏡山 1-4-1 (〒724)

T. Takeuchi, M. Nawate and S. Honda

Faculty of Engng., Hiroshima Univ., 1-4-1, Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 724

Co/Pd superlattices were prepared by rf magnetron sputtering onto glass substrates with Ar gas pressure (P_{Ar}) of 40 mTorr and 5 mTorr. A substrate bias voltage (V_B) was applied for the films in which $P_{Ar}=40$ mTorr. In-plane compressive stress was induced in the 40 mTorr films with negative V_B , and the surface anisotropy energy (K_s) decreased owing to the magnetoelastic effect of the CoPd alloy formed at the interface. On the other hand, the 0 V, 5 mTorr films show the good quality of the interface and high value of K_s .

Key words: Co/Pd superlattice, perpendicular magnetic anisotropy, surface anisotropy, stress, magnetoelastic anisotropy

1. はじめに

Co/Pd 人工格子膜は, Co 層厚 (t_{Co}) が数 Å のとき大きな垂直磁気異方性を示す¹⁾. その垂直磁気異方性の起源として, Neel 表面異方性²⁾, 層界面に形成された合金層による磁気歪み効果^{3), 4)}, Co 層の結晶磁気異方性⁵⁾などが考えられているが, 作製方法や作製条件に依存してそれらの効果が組み合わさって働いているため, 定量的に異方性の起源を論じることが困難にしている. スパッタ膜作製中, 低い Ar ガス圧力 (P_{Ar}) または負の基板バイアス電圧 ($-V_B$) を印加したとき, 膜面内に圧縮応力が生じることが知られている^{4), 6)}. ここでは, 磁気歪み効果が Co/Pd の垂直磁気異方性エネルギー (K_u) に与える寄与を探ることを目的として, K_u および格子歪みの V_B または P_{Ar} 依存性について調べ, 両者の関係について考察した.

2. 実験方法

基板回転二元高周波マグネトロンスパッタ法を用いて, 水冷ガラス基板上に Co/Pd 人工格子膜を作製した. 投入電力は Co 150 W, Pd 50 W で, 堆積速度は Co, Pd 共に約 2 Å/S である. スパッタ装置の真空槽を 5×10^{-7}

Torr 以下に排気した後, Ar ガスを導入し, $P_{Ar}=40$ mTorr または 5 mTorr でスパッタを行った. $P_{Ar}=40$ mTorr のとき, 基板バイアス電圧 (V_B) を +20.0, -10, -30 または -50 V 印加し, 5 mTorr のとき $V_B=0$ V とした. 全膜厚は約 800 Å, Pd 層厚は 12 Å 一定として, Co 層厚を約 1~28 Å まで変化させた.

膜構造の解析および膜の応力測定には X 線回折法 (Cu-K α) を用いた. 磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) を用いて最大印加磁場 15 kOe で測定した.

3. 実験結果と考察

3.1 磁気特性

Fig. 1 に積層周期 (Λ) と K_u との積 $\Lambda \cdot K_u$ の t_{Co} 依存性を示す. 実験値は

$$\Lambda \cdot K_u = 2K_s + t_{Co} \cdot K_v \quad (1)$$

に従っている. ここで, K_s は界面異方性エネルギー, K_v は体積異方性エネルギーを示す. 図中の直線は, 最小自乗法を用いて求めた. Fig. 1 より求めた K_s, K_v を Table 1 に示す. $-V_B$ の増加とともに K_s は小さくなり, K_v の

Fig. 1 t_{Co} dependence of $\Lambda \cdot K_u$.

Table 1 Surface anisotropy (K_s), volume anisotropy (K_v) and magnetization (M_{Co}) prepared at various conditions

P_{Ar} (mTorr)	V_B (V)	K_s (erg/cm ²)	K_v (erg/cm ³)	M_{Co} (emu/cm ³)
40	+20	0.21	-6.1×10^6	974
	0	0.30	-7.0×10^6	1076
	-10	0.29	-8.4×10^6	1019
	-30	0.14	-13.2×10^6	1376
	-50	0.12	-14.3×10^6	1386
5	0	0.50	-16.3×10^6	1396

Fig. 2 t_{Co} dependence of $\Delta \cdot M_s$.

絶対値, すなわち $-K_v$ は大きくなる. また, 0 V, 5 mTorr 膜は 0 V, 40 mTorr 膜に比べて, K_s , $-K_v$ 共にかなり大きいことが分かる.

Δ と飽和磁化 (M_s) の積, $\Delta \cdot M_s$ の t_{Co} 依存性を Fig. 2 に示す. 実験値は

$$\Delta \cdot M_s = t_{Co} \cdot M_{Co} + m_{Pd} \quad (2)$$

に従っている. ここで, M_{Co} は Co 層の磁化, m_{Pd} は定数である. 直線は最小自乗法により求めた. $t_{Co}=0$ の切片の値は作製条件に依存せず, すべて正の値, すなわち, $m_{Pd} \sim 2 \times 10^{-5}$ emu/cm² で, 界面近傍の Pd が磁気分極したことを示している. 直線の傾きから求めた M_{Co} の値を Table 1 に示す. -30 V, -50 V, 40 mTorr 膜および 0 V, 5 mTorr 膜の値はバルク値 (1422 emu/cm³) とほぼ一致している. 0 V, 40 mTorr 膜の値はバルク値の約 70% と小さい. これは, 柱状構造の形成により, 膜の密度 (RBS から 5 mTorr 膜の約 75~90%) が低下したためである^{7), 8)}.

3.2 膜構造

小角 X 線回折の一次ピーク強度と Δ の関係を Fig. 3

Fig. 3 Δ dependence of the first-order diffraction peak intensity in the small angle XRD.

に示す. -30 V, -50 V, 40 mTorr 膜および 0 V, 5 mTorr 膜の場合, Δ とともにピーク強度は急峻に増加しており, 他の膜に比べて積層界面の平坦性が良好であることを示している.

積層界面の合金層厚を見積るために, X 線回折 (111) ピーク強度 ($I_{(111)}^0$) に対する -1 次のサテライトピーク強度 ($I_{(111)}^{-1}$) の比を一次元台形モデル⁹⁾を用いて計算し, 実験値と比較した. Co 層および Pd 層の面間隔に対し, それぞれ同一条件で作製した単層膜の値を用い, Pd 層を 5 原子層一定とし, 合金層厚を 0~5 原子層まで変化させたときのピーク強度比を計算した. 0 V, 5 mTorr 膜および -30 V, 40 mTorr 膜の計算結果と実験値をそれぞれ Fig. 4(a), (b) に示す. 実線は計算値, プロット点は実験値である. 0 V, 5 mTorr 膜では約 3 原子層, -30 V, 40 mTorr 膜では約 4 原子層の合金層が積層界面に形成されていることを示している. 他の条件で作製した膜は (111) ピーク, (111) サテライトピーク共に回折強度が弱く, 信頼のあるデータを得ることができなかった.

薄膜用 X 線回折装置を用いて膜の格子歪みを測定した^{10), 11)}. X 線の入射角 θ_i を固定し, 回折角 2θ を変化させたときのピーク位置より, 膜面から角度 ϕ ($\phi = \theta - \theta_i$) だけ傾いた面の面間隔 d_ϕ が求まる. 膜に垂直方向および面内方向の面間隔をそれぞれ $d_\perp$, $d_\parallel$ とすると d_ϕ は

$$d_\phi = d_\perp + (d_\parallel - d_\perp) \cdot \sin^2 \phi \quad (3)$$

で表される. $\phi = 8 \sim 20^\circ$ の範囲で d_ϕ を求め, $\sin^2 \phi = 0$ と $\sin^2 \phi = 1$ へ外挿することにより, $d_\perp$ と $d_\parallel$ を求めた. 得られた $d_\perp$, $d_\parallel$ の値は t_{Co}/Δ に対して直線的に変化

Fig. 4 t_{Co}/Λ dependence of $I_{(111)}^1/I_{(111)}^0$ for (a) 0 V, 5 mTorr films and (b) -30 V, 40 mTorr films.

する。ここでは、 $t_{Co}/\Lambda = 0, 0.5, 1$ のときの値をそれぞれ Pd 層、CoPd 合金層、Co 層の面間隔であると仮定し、各層の垂直歪み ($\varepsilon_{\perp}$) および内面歪み ($\varepsilon_{\parallel}$) を

$$\varepsilon_{\perp}^i = \frac{d_{\perp}^i - d_0^i}{d_0^i}, \varepsilon_{\parallel}^i = \frac{d_{\parallel}^i - d_0^i}{d_0^i} \quad (4)$$

により見積った。ここで、 $i = \text{Pd, CoPd, Co}$ で d_0^i は歪みのない状態における面間隔である。薄膜における d_0^i が未知であるため、

$$\varepsilon_{\parallel}^i = \frac{\nu - 1}{2\nu} \varepsilon_{\perp}^i \quad (5)$$

の関係より d_0^i を求めた。ポアソン比 (ν) は、Co および Pd の値 $0.4^{51, 12)}$ を用いた。 $\varepsilon_{\parallel}$ の値を Fig. 5 に示す。 $-V_B$ の増加とともに各層の $\varepsilon_{\parallel}$ の値は負になり、その絶対値は増加する。すなわち、 $-V_B$ とともに膜面内方向に圧縮応力が増加する。0 V, 5 mTorr 膜の $\varepsilon_{\parallel}$ は 0 V, 40 mTorr 膜の値よりわずかに負の方向に移動している。

3.3 磁気歪み効果の K_v , K_v^{me} への寄与

Co 層内の磁気歪み異方性エネルギー (K_v^{me}) は

Fig. 5 In-plane strain as a function of V_B .

Fig. 6 Volume anisotropy energy (K_v), volume magnetoelastic anisotropy (K_v^{me}) and demagnetizing energy ($2\pi M_{Co}^2$) as functions of V_B .

$$K_v^{me} = -\frac{3}{2} \lambda_{Co} \cdot E_{Co} \cdot \varepsilon_{\parallel}^{Co} \quad (6)$$

で与えられる。ここに、 $\lambda_{Co} = -5 \times 10^{-5}$, $E_{Co} = 2.1 \times 10^{12}$ dyn/cm² は、それぞれ Co の磁気歪み定数とヤング率である⁴⁾。Fig. 5 に求めた $\varepsilon_{\parallel}^{Co}$ を用いて、 K_v^{me} を算出した。Fig. 6 に K_v , K_v^{me} , $-2\pi M_{Co}^2$ および $K_v^{me} - 2\pi M_{Co}^2$ を示す。40 mTorr 膜の K_v は $K_v^{me} - 2\pi M_{Co}^2$ と良く一致し、 K_v の大きな V_B 依存性は主に M_{Co} の変化によることが分かる。一方、0 V, 5 mTorr 膜の場合、 K_v と $K_v^{me} - 2\pi M_{Co}^2$ との差は大きく、他の効果の寄与が考えられる。X 線回折の結果は、0 V, -5 mTorr 膜の (111) 配向が最も良いことを示しており、結晶磁気異方性エネルギー (5.1×10^6 erg/cm³)⁴⁾ はむしろ差を大きくする方向に働いており、この大きな差については現時点では不明である。

界面における CoPd 合金層の内部応力に起因する磁気歪み異方性エネルギー (K_s^{me}) は

Fig. 7 Variation in the surface anisotropy energy (ΔK_s) and magnetostriction anisotropy energy (ΔK_s^{me}) as a function of V_B .

$$K_s^{me} = -\frac{3}{2} \lambda_{CoPd} \cdot E_{CoPd} \cdot \epsilon_{CoPd} \cdot t_{CoPd} \quad (7)$$

で与えられる。ここに、 t_{CoPd} は合金層厚、 $\lambda_{CoPd} = -1.0 \times 10^{-4}$ 、 $E_{CoPd} = 1.6 \times 10^{12}$ dyn/cm² はそれぞれ 50 at% Co-Pd 合金の磁気歪み定数とヤング率である⁴⁾。 t_{CoPd} は Fig. 4 から 0 V, 5 mTorr 膜では 3 原子層、-30 V, 40 mTorr 膜では 4 原子層とした。また、他の膜については 4 原子層以上であると考えられるが、ここでは 4 原子層を仮定した。 ϵ_{CoPd} には Fig. 5 の結果を用いて K_s^{me} を計算した。 0 V, 40 mTorr 膜からの K_s , K_s^{me} の変化分 ΔK_s および ΔK_s^{me} を Fig. 7 に示す。 -30 V, -50 V, 40 mTorr 膜の ΔK_s と ΔK_s^{me} は誤差の範囲内で一致しており、 K_s の減少は圧縮応力による磁気歪み効果に起因することを示している。しかし、-10 V, 20 V, 40 mTorr 膜における ΔK_s と ΔK_s^{me} の相違の原因については明らかでない。一方、0 V, 5 mTorr 膜の場合、 ΔK_s は正で ΔK_s^{me} との差 (0.23 erg/cm²) はかなり大きい。 ΔK_s が大きな正の値をとる原因として、0 V, 5 mTorr 膜の界面の平坦性 (Fig. 3) および組成の急峻性 (Fig. 4) が他の膜と比較して良好であることから、Neel 表面異方性が大きく寄与しているものと考えている。

4. まとめ

Co/Pd 人工格子膜の垂直磁気異方性の V_B 依存性および P_{Ar} 依存性を調べ、以下の結果を得た。

- 反磁界エネルギーおよび磁気歪み異方性エネルギーの寄与により、 $-V_B$ とともに $-K_v$ が増加した。
- CoPd 合金層の膜面内方向への圧縮応力による磁気歪み効果により、 $-V_B$ とともに K_s が減少した。
- 0 V, -5 mTorr 膜の場合、40 mTorr 膜に比べて、 K_s および $-K_v$ が非常に大きな値を示した。 K_s については Neel 表面異方性の効果であると考えているが、 K_v については不明である。

文 献

- P. F. Garcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna: *Appl. Phys. Lett.*, **47**, 178 (1985).
- C. J. Chien, B. M. Clemens, S. B. Hagstrom, R. F. C. Farrow, C. H. Lee, E. E. Marinero and C. J. Lin: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **231**, 465 (1992).
- H. Takahashi, S. Fukatsu, S. Tsunashima and S. Uchiyama: *J. Magn. Magn. Mat.*, **104-107**, 1831 (1992).
- S. Hashimoto, Y. Ochiai and K. Aso: *J. Appl. Phys.*, **66**, 4909 (1989).
- B. N. Engel, C. D. England, R. A. Van Leeuwen, M. H. Wiedmann and C. M. Falco: *J. Appl. Phys.*, **70**, 5873 (1991).
- S. Honda, J. Ago, M. Nawate and N. Morita: *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 2677 (1992).
- S. Honda, H. Tanimoto and T. Kusuda: *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 2730 (1990).
- S. Honda, H. Tanimoto, J. Ago, M. Nawate and T. Kusuda: *J. Appl. Phys.*, **70**, 6047 (1991).
- 藤井保彦: 日本金属学会会報, **27**, 173 (1988).
- 日本材料学会編: X 線応力測定法, p. 54 (養賢堂, 東京, 1981).
- S. Honda, N. Morita, J. Ago, Y. Tamura and M. Nawate: *J. Magn. Magn. Mat.*, **121**, 506 (1993).
- 東京天文台編纂: 理科年表, p. 444 (丸善, 東京, 1992).

1993 年 10 月 14 日受理, 1994 年 1 月 28 日採録