スピン SEM による Co-CoO 斜め蒸着膜の記録状態の高分解能観察

Direct Observation of High-Density Recorded Bits in Co-CoO Obliquely Evaporated Media with a Spin-Polarized Scanning Electron Microscope

松山秀生・孝橋照生・小池和幸・高山孝信*†

(株)日立製作所基礎研究所, 埼玉県比企郡鳩山町赤沼 2520 (☎350-03)

*(株)日立製作所中央研究所, 国分寺市東恋ヶ窪 1-280 (☎185)

H. Matsuyama, T. Kohashi, K. Koike, and T. Takayama*†

Advanced Research Lab., Hitachi, Ltd., Hatoyama, Saitama 350-03

*Central Research Lab., Hitachi, Ltd., Kokubunji, Tokyo 185

We observed the recorded bit structures (in the 10-300 kFCI range) and the magnetization distribution in the remanent state of Co-CoO obliquely evaporated films by using a spin-polarized scanning electron microscope. Uniformly distributed fine island domains (80-90 nm in diameter) were evident in the recorded bit region, but there were only a few island domains (about 130 nm wide) on the bit boundary. Similar island domains observed in the remanent state decrease the magnetostatic energy of the film. This leads to the creation of island domains in the recorded bits in the same way as in the remanent state.

Key words: obliquely evaporated film, island domain, recording medium, spin polarization, scanning electron microscope, domain observation

1. はじめに

現在 VTR, ハードディスク, フロッピーディスク装置などでは, 面内磁気記録が主流であるが, 記録磁化の自己減磁が高密度化の妨げとなる。一方, 高密度時に自己減磁が低減される垂直磁気記録は高密度記録に有利であるが, スペーシング損失のため飽和記録が面内記録よりもむずかしい。記録磁化方向が媒体面から傾いた斜め磁気記録方式は面内, 垂直両記録方式の長所を合わせ持ち, その自己減磁作用は面内記録より抑えられ, そのスペーシング損失は垂直記録より小さい。また面内記録用のリングヘッドを使用するので, 現行の面内記録媒体の代替が可能である。この方式の記録媒体である ME テープは磁化容易軸が媒体面から 30 度ほど傾いており, 高密度時の優れた記録再生特性を持ち, ハイバンド 8 mm VTR, 民生用デジタル VTR 用としてすでに実用化されている。しかし, 将来のコンピュータ用大容量記録テープ, 高精細テレビジョン用記録テープなどを実現するためには, 高密度時において ME テープよりいっそう高い再生出力, 低ノイズ特性が要求される。

Co-CoO 系材料はすでに ME テープに使用されているが, 容易軸方向を法線方向から 30 度傾けた垂直磁気記録膜に近い

Co-CoO 斜め蒸着膜は ME テープ以上の高密度時の再生出力, 低ノイズ特性が報告されている^{1)~3)}。またこの斜め蒸着膜は基板温度を室温にして成膜できることも大きな長所となっている。しかし, ME テープを含め斜め磁気記録媒体のノイズ発生機構には未だ不明な点が多い。今後いっそうの特性改善を図るには, 微視的に記録状態を観察し, 磁化分布状態からノイズの原因を解明することが不可欠である。これまで磁性微粒子をスパッタリング法で試料にコーティングし SEM で観察する方法で 300 kFCI の記録ビットを観察した例があるが⁴⁾, 記録ビット内の磁化分布状態を詳細に観察した例はない。

スピン偏極走査電子顕微鏡 (スピン SEM) は, 2 次電子のスピン偏極度を検出する磁区観察装置であり⁵⁾, 原理的に高分解能が期待できる。筆者らは電子銃, スピン偏極度検出器の最適化により分解能 20 nm を達成し⁶⁾, 面内記録媒体などの観察に応用してきた⁷⁾。本報告では, ノイズ発生の原因を実験的に明らかにすることを目的として, スピン SEM を Co-CoO 斜め蒸着膜の観察に応用した。観察は 10~300 kFCI までの記録状態と, 残留磁化状態での媒体上面および断面の磁化状態に対して行った。

2. 実験方法

試料基板にはポリイミドフィルム, Si ウェハの 2 種類を用意し, 媒体面上の記録状態の観察には前者を, 残留磁化状態での媒体上面および断面の磁化状態の観察には後者を使用した。成膜は両基板ともバッチ式の蒸着装置を使用し, 室温にて酸素雰囲気中で Co を基板法線方向に対して約 60 度の角度で蒸着することで Co-CoO を成膜し, 膜厚を 200 nm とした²⁾。トルクメータにより求めた反磁場補正後の磁化容易軸は法線方向から約 30 度の角度となり, 蒸着粒子の入射方向より膜面法線方向に傾く。容易軸方向の飽和磁化 M_s , 保磁力 H_c は試料振動型磁力計で測定し, 各々両基板で同一であり, $M_s = 700 \text{ kA/m}$, $H_c = 63 \text{ kA/m}$ であった。

記録再生特性はドラムテストにより, ギャップ長 $0.27 \mu\text{m}$, トラック幅 $26 \mu\text{m}$, 巻線数 17 ターンの MIG ヘッドを用いて測定した。媒体は耐摺動用保護膜を必要とせず, 液体潤滑剤のみ塗布している。ヘッド-媒体間相対速度は 2.5 m/s とした。

† 現在: 日立マクセル(株)技術研究所, 茨城県筑波郡谷和原村絹の台 6-20-1 (☎300-24)

† Present address: Engineering Research Lab., Hitachi Maxell, Ltd., 6-20-1 Kinunodai, Yawara, Tsukuba, Ibaraki 300-24.

また記録時の媒体の容易軸は膜面法線方向からヘッド進行方向側に傾くようにセットし、ヘッドのリーディング側磁場で記録するようにした。記録時のヘッド電流は再生信号が最大となる値とし、記録密度は 10, 50, 100, 300 kFCI とした。

残留磁化状態は、膜面垂直方向に磁場を 1074 kA/m 印加して試料磁化を飽和させたのち、徐々に磁場を減少させ形成した。残留磁化 M_r は 175 kA/m であった。また Si 基板の劈開を利用して膜表面にはほぼ垂直な断面を得た。

磁区観察は試料表面を Ar^+ でスパッタクリーニングをしたのち、 10^{-7} Pa 以下の真空圧力で行った。プローブ電子線の加速電圧は 15 kV、プローブ電流は約 1 nA とした。

3. 結果および考察

3.1 媒体表面の記録状態

Fig. 1(a), (b) に低倍率で観察した 10~300 kFCI の記録状態を示す。これらの像は磁化ベクトルの膜面内成分（図の左方向成分）を画像化したもので、磁化の左向き成分が大きいほど白く、右向き成分が大きいほど黒く表されている。スケールの縦横比は 1:2 となっている。これは膜面法線方向に対しプローブ電子線が 60 度の方向（図の下側）から入射しているためである。ヘッドの進行方向（トラック方向）は水平左向きであり、磁化容易軸は膜面法線方向から左に 30 度傾いている。

Fig. 1(a) の上側の 10 kFCI のトラックエッジ付近では白黒のコントラストが不明瞭になっており、その部分で微細な磁区がトラック方向に形成される傾向がある。300 kFCI のトラックエッジ近傍も同様な磁区が形成され、トラック方向により長く連なる傾向が見られる。これは磁気ヘッドからの漏洩磁場がヘッド端部でトラックに垂直な方向へ磁場が拡がり、トラックエッジ近傍の媒体には飽和記録するのに十分な磁場が供給されないことが原因と考えられる。

Fig. 1(b) の 100, 50 kFCI の各トラックの下側にはトラック方向に沿って記録状態が乱れている部分がある。(a) の 10 kFCI でも同様な位置にビット境界の若干の湾曲が見られる。これらはヘッドのポールピース近傍の傷などによりその部分で記録磁場が弱まったため、あるいは媒体のトラック方向に傷などがありその部分で磁気特性が変化したため正常に記録できなかったと考えられる。

Fig. 2(a), (b), (c) に 10, 50, 300 kFCI の記録状態の高倍率像を示す。画像信号は Fig. 1 と同様磁化ベクトルの膜面内成分（図の左方向成分）である。(a) はビット境界付近の拡大像である。左のビット内では白地に黒、右のビット内では黒地に白の島状の磁区が散在しており、その分布はビット内部と境界近傍で大きな違いはない。スケールの縦横比が 1:2 であることを考慮すると、島状磁区は縦方向に若干長い。その横方向と縦方向の長さから得られる平均値は約 90 nm である。またビットの境界には幅約 130 nm の黒い帯状領域が現れており、ここでは島状磁区の出現頻度が少ない。この帯状領域の左右の縁はランダムに揺らいでおり、その揺らぎの平均的な振幅及び周期は島状磁区サイズとほぼ同じである。

Fig. 1 Recorded bit images: (a) 10 and 300 kFCI; (b) 50 and 100 kFCI.

Fig. 2(b) の 50 kFCI ではビット内と境界領域は Fig. 2(a) と同様の磁区構造を取っている。島状磁区は (a) と同様に縦方向に若干長く、そのサイズは (a) と比べて多少小さく 80 nm 程度である。帯状領域の幅は (a) とほぼ同じである。(a), (b) とともに白と黒の帯状領域のコントラストが交互に現れ、ビットコントラストの間に一定の関係がある。すなわち、ヘッド進行方向側のビット境界は、ビットが黒（白）色であれば黒（白）色の帯状領域が現れる。ここで示した 10 k, 50 kFCI の試料については様々な領域を観察しているが、この関係はすべてのビットについて例外なく観察される。

Fig. 2(c) の 300 kFCI では島状磁区を伴ったビット領域は消失し、(a), (b) の帯状領域と類似の幅 85 nm の磁区構造が周期的に現れている。ビット境界は乱れており、ビット間の干渉が多数見られる。ビット長 85 nm は (a), (b) の帯状領域幅 130 nm より小さく、帯状領域の境界の揺らぎ幅に近づいてきたため、ビット間の干渉が生じたと考えられる。

Fig. 2(c) の中央付近トラック方向に沿って幅広く特に記録状態が乱れている。この乱れはトラック方向に続いており、トラック内に数本以上存在することも低倍率像で確認している。ただし、Fig. 1 で記録状態の乱れが観察されたトラック下側部分とは対応せず、100 kFCI 以下の記録密度ではビット間の干渉が生じていない場所に対応する。これも Fig. 1 で述べたヘッドあるいは媒体の傷などが原因で生じた記録状態の乱れと思われる。

Fig. 2 Recorded bit images: (a) 10 kFCI; (b) 50 kFCI; (c) 300 kFCI.

3.2 残留磁化状態の膜面および断面の磁化状態の観察

Fig. 2 で観察された島状磁区は、媒体の容易軸が膜面垂直方向に近いことから、自己減磁によって生じた逆磁区である可能性がある。しかし、記録時のヘッド磁場は、媒体上でその大きさ、方向が大きく変化するので、その成因を自己減磁と断定することはむずかしい。そこで、磁場の印加過程が単純な残留磁化状態と記録磁化状態を比較してその成因を調べることとした。

Fig. 3(a) に媒体上面の残留磁化状態を示す。画像信号は磁化ベクトルの膜面内成分 (図の左方向成分) である。容易軸は Fig. 1, 2 と同様に膜面法線方向から左に 30 度傾いている。残留磁化状態は記録ビット内の磁区構造と類似しており、白く一様に磁化した領域内に黒色の島状磁区が散在している。磁区の

Fig. 3 Zero-field domain images after the magnetization has reached saturation: (a) top view; (b) cross-sectional view.

形は縦方向すなわち容易軸に対して膜面内垂直方向に長い異方的なものが多く、島状磁区の横方向の平均的な幅は 90 nm 程度である。磁区像内の島状磁区の総数と総面積をもとに各磁区を一定の大きさの円形としたとき、得られる直径は約 130 nm である。この大きさは Fig. 2 の 80~90 nm 程度の島状磁区と比べ、1.5 倍程度大きい。

Fig. 3(b) に媒体断面の磁区像を示す。膜断面は像の中央付近水平右上がり位置しており、その下部は Si 基板部分である。スケールの縦横比は 2:1 である。容易軸は図中右上 (左下) 方向である。磁区撮影中試料が左下方向に若干移動したため磁区像は多少歪み、像中の膜法線方向から測った容易軸の角度は実際の角度より右に傾いている。

膜断面位置に白地の磁区の中に右上 (左下) 方向に膜を貫く黒色の磁区が多数現れている。各々の磁区の幅には分散があり、また膜中で黒色の磁区の幅が変化しているものもある。ただし、この磁区幅の変化は見かけ上のものである可能性がある。すなわち、劈開によって断面を得る際、劈開面が部分的に隣接する磁区にまで及ぶと断面上での磁区幅が変化するからである。膜上面位置での磁区サイズは (a) の磁区幅と同程度であり、(b) の膜を貫いた磁区が (a) の膜面上で観察された島状磁区に対応すると考えられる。上記像の歪みを考慮して求めた磁区の長手方向は、膜面法線方向から約 35 度傾く。磁区コントラストは磁化検出方向が 25 度から 40 度付近で最大となり、黒色の磁区内の磁化は白色の磁区内の磁化とほぼ逆向きになっている。

以上より、(a)の島状磁区は膜中の磁化と逆向きの磁化方向を持つ逆磁区と判断できる。逆磁区は自己減磁によって現れた磁区であり、膜表面での磁極密度を緩和し、静磁エネルギーを低く保っている。同様に、Fig. 2の記録ビット内に見られた島状磁区も逆磁区と考えることができる。ここで、膜表面に残った磁極による反磁場の影響を考えてみる。(a)では逆磁区とその他の部分の面積比は3対7である。このとき反磁場による静磁エネルギーと異方性エネルギーの和を最小にする条件から、磁化の回転角を計算すると逆磁区以外の部分では磁化は約12度膜面内方向へ倒れ、逆磁区では約7度法線方向へ近づく。ここで磁極の総和から計算される反磁場は膜内で一様とし、異方性定数は同様の試料で得られた $2.5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ を採用した。また磁壁のエネルギーは無視した。このとき残留磁化は飽和磁化の24.5%、172 kA/mとなり、実測値175 kA/mとよい一致を示す。膜全体の平均の磁化方向は膜面法線方向から約55度の角度になる。逆磁区の方法は、磁化の磁壁上での法線方向成分を連続にする条件では、膜面法線方向から32.5度傾き、(b)で得られた磁区の方法35度に近づく。また、逆磁区内の磁化が隣接する磁化と弱い交換相互作用しかせず、単磁区的に振舞う場合、逆磁区は磁化の回転で変化せず、もともと膜面法線方向から35度傾いていたことになる。現状、断面磁区像の検出磁化成分のS/N比が低いので、上記二つの可能性を特定することはできない。

Fig. 2に示した記録状態の逆磁区がFig. 3に示した残留磁化状態のそれと比べサイズが小さいのは、記録ビットがヘッドのトレーニング側の磁場の影響を受け、より消磁状態に近づいたためと解釈できる。これは媒体上のある位置でリングヘッドの作り出す磁場が容易軸方向のみに印加されるのではなく、ヘッドの進行に伴ってその大きさと方向が変化することによる。さらに、飽和磁化、保磁力は両基板で同一であるが、基板の違いが媒体のミクロな磁気特性に影響を与えた可能性もある。

島状磁区が膜面内で容易軸と垂直方向に連なる傾向は、斜め蒸着の機構から定性的に説明できる。成膜時蒸着粒子は膜面法線から約60度傾いた方向から入射し、結晶粒は膜面法線から約30度傾いた方向に成長する。このため、結晶粒がある程度成長すると、結晶粒の片側に蒸着粒子が入射しない影の部分が生じる。これにより各結晶粒間の磁氣的相互作用が異方的になることが期待される⁹⁾。つまり、蒸着粒子の入射方向と膜面内で平行な方向では相互作用が小さく、垂直な方向では相互作用が大きくなる。この結果、逆磁区は磁氣的相互作用の大きい方向(図中垂直方向)に成長する傾向を持つことになる。

3.3 記録状態の磁化分布モデル

以上の結果から予想される50 kFCI以下の記録状態の磁化分布モデルをFig. 4に示す。矢印は磁化を示し、媒体上面、断面の配色は磁区像と対応させている。左右の記録ビット内には膜を貫く多数の逆磁区が存在し、その径は約80~90 nmである。逆磁区内の磁化は容易軸方向より法線方向へ若干立ち上がり、それ以外のビット内の磁化は容易軸方向から若干膜面内に倒れる。同種の試料での膜断面の透過電顕像から、容易軸方向

Fig. 4 Schematic model of magnetization distribution.

とほぼ平行に結晶粒が柱状に並んだ組織が存在し、結晶粒サイズが10 nm以下であることを確認した。これより逆磁区は結晶粒数十個が集まり形成されたものと判断できる。

ビット境界部分では一方向に磁化した幅130 nmの帯状の領域が形成されている。ビット境界方向への磁化の平均値は帯状部分で大きく、ビット内部では逆磁区のため小さくなっている。これは田河らがすでにシミュレーションで見いだした結果と一致し⁹⁾、その成因は以下のように考えることができる。まずリングヘッドの作る磁場を考えると、その容易軸方向(媒体法線方向より30度)成分はリーディング側で正の極大となり、トレーニング側で負の極大となる。その磁場の絶対値は負の極大より正の極大の方が大きい。記録過程ではリーディング側の磁場成分で容易軸方向に飽和された磁化は、その直後トレーニング側の負の磁場成分と自己減磁作用によって消磁される(3.2節参照)。一方、ヘッド磁場が逆転し、ビット境界が形成される過程ではトレーニング側の負の磁場成分が正となり、ビット境界近傍の磁化分布を強調する向きに磁場が加わる。したがってビット境界部分の磁化成分がビット内の成分より大きくなるのである。ただし、シミュレーションでは逆磁区が現れておらず、また膜の最表面でビット内の磁化が極小になっており、その方向も複雑である。最表面の磁化分布は我々のモデルとは相容れないが、膜内部の磁化分布は我々のモデルで解釈することができる。今回の実験では、Ar⁺スパッタクリーニングで表面を数~数十nm程度削っているため、シミュレーションで見られる最表面を削除した可能性がある。

100 kFCI以上の磁化分布はFig. 4の記録ビット部分が減少したものと解釈でき、300 kFCIに達するとビット境界部分のみが残ったものとなる。ただし、Fig. 2(c)の300 kFCIで見たとおり、記録密度が増加するとトラック方向の自己減磁作用のためビットを超えてトラック方向に磁化が伸張し、ビット間の干渉が起こり始める。

3.4 媒体ノイズ

Fig. 5にポリイミドフィルム基板試料の媒体ノイズの記録密度依存性を示す。DC消去(0 kFCI)状態では媒体ノイズは若干大きな値をとるが、200 kFCIまで記録密度の増加に対して徐々に減少する。この減少傾向は同様のCo-CoO斜め蒸着膜での結果と定性的に一致する¹⁾。

媒体ノイズは、媒体から漏洩する磁場のランダムな揺らぎに

Fig. 5 Media noise vs. recording density of a Co-CoO film on a polyimide substrate.

によって生じる。前節のモデルでは逆磁区とビット境界部の揺らぎが漏洩磁束の揺らぎを引き起こしており、媒体ノイズの記録密度依存性は面内媒体からの類推より次のように解釈できる。記録密度の増加に伴いビット境界部の単位長さ当たりのトラック中に占る面積は線形に増加し、逆に境界部分を除いたビットの面積は線形に減少する。このため、ビット境界部由来のノイズは線形にノイズを増加し、ビット内の逆磁区由来のノイズは線形に減少し、その大小関係により媒体ノイズの記録密度に対する振舞が決まる。したがって Fig. 5 の媒体ノイズの振舞は逆磁区由来のノイズの記録密度に対する減少率がビット境界部の揺らぎによるノイズの増加率と同程度、あるいは若干大きいと考えることで定性的に理解できる。

以上より、媒体の低ノイズ化には逆磁区とビット境界部から漏洩する磁場のランダムな揺らぎを抑えることで可能になると思われる。これには逆磁区とビット境界部の揺らぎを抑えること、つまり保磁力を維持した状態で各結晶粒間の磁氣的相互作用を微小化し、各結晶粒の磁化が隣接する磁化の影響をできるだけ受けないようにすることが必要である。

4. ま と め

スピン偏極走査電子顕微鏡を Co-CoO 斜め蒸着膜の 10 か

ら 300 kFCI の記録状態、および残留磁化状態の観察に応用し、以下の結果を得た。

(1) ビット内に散在している平均 80~90 nm の島状磁区を初めて観察した。残留磁化状態の観察結果との類推により、島状磁区は自己減磁作用とヘッドのトレーリング側の磁場の影響によって発生した逆磁区と考えられる。この逆磁区は数十の結晶粒で構成されている。

(2) ビット境界部で磁化が一方向に揃った帯状の領域（逆磁区の少ない領域）を初めて観察した。その帯状領域の幅は 130 nm 程度であり、その幅は逆磁区のサイズ程度で揺らいでいる。

(3) 記録密度の増加に伴い逆磁区が散在するビット領域が減少するが、ビット境界部の帯状領域の幅は変化しない。ただし、ビット長が帯状領域の幅に達すると帯状領域のみが残り、記録限界に近づく。

(4) 媒体ノイズは、逆磁区のサイズおよび帯状領域の幅の揺らぎが原因と考えられる。

文 献

- 1) T. Takayama, K. Yoshida, Y. Ogawa, A. Yano, and O. Kitakami: Proc. of the Sixth International Conference on Ferrites (ICF 6), Tokyo and Kyoto, 1992, p. 1440 (The Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 1992).
- 2) T. Takayama and K. Yoshida: *J. Mag. Soc. Jpn.*, **17**(Suppl. No. S2), 18 (1993).
- 3) Y. Ogawa, A. Yano, and N. Kitagaki: Proc. of the Sixth International Conference on Ferrites (ICF 6), Tokyo and Kyoto, 1992, p. 1448 (The Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 1992).
- 4) 桜井伴明, 北上 修, 武野幸雄, 島田 寛, 高山孝信, 栗野博之, H. Ohlsen: 日本応用磁気学会誌, **19**, 89 (1995).
- 5) H. Matsuyama and K. Koike: *Rev. Sci. Instrum.*, **60**, 970 (1991).
- 6) H. Matsuyama and K. Koike: *J. Electron Microsc.*, **43**, 157 (1994).
- 7) H. Matsuyama, K. Koike, F. Tomiyama, Y. Shiroishi, A. Ishikawa, and H. Aoi: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-30**, 1327 (1994).
- 8) J. A. Thornton: *J. Vac. Sci. & Technol.*, **11**, 666 (1974).
- 9) I. Tagawa, Y. Shimizu, and Y. Nakamura: *J. Mag. Soc. Jpn.*, **15** (Suppl. No. S2), 827 (1991).

1996 年 1 月 26 日受理, 1996 年 3 月 14 日採録