Sm-Co/Cr 薄膜における磁気特性の Sm-Co 層の作製条件依存性 Magnetic Properties and Preparation Conditions for the Sm-Co Layer in Sm-Co/Cr Films

武井重人・小田切頼広・森迫昭光・松本光功

信州大学工学部, 長野市若里500 (〒380-8553)

S. Takei, Y. Otagiri, A. Morisako, and M. Matsumoto

Faculty of Engineering, Shinshu University, 500 Wakasato, Nagano 380-8553

(1998年10月12日受理, 1999年1月21日採録)

In this study, Sm-Co layers with various thickness were prepared at various Ar pressures and substrate temperatures on Cr underlayers and their magnetic properties and surface morphology were studied. Sm-Co layers with coercivity higher than 3 kOe can be prepared at room temperature and at Ar pressures of around 8 mTorr. The grain size, which was evaluated with AFM, is almost same as that of the Cr under layer where the thickness of the Sm-Co layer is below 100 nm. Sm-Co/Cr films with coercivity higher than 3 kOe can be prepared at thickness in the range of 15 to 100 nm. These films exhibited squareness ratios greater than 0.83 and coercive squareness ratios greater than 0.95. The experimental results suggest that Sm-Co/Cr films are suitable for use as a high density longitudinal recording medium.

Key words: magnetic recording media, Sm-Co/Cr film, high coercivity, magnetic switching volume

1. はじめに

磁気記録媒体の記録密度をより高密度化するためには、媒体の磁気特性を高保磁力・高角形性にするとともに粒子サイズの微小化が必要である。我々は高い結晶磁気異方性 ($10.5 \times 10^6 \text{ J/m}^3$)¹⁾ をもち永久磁石として用いられている SmCo 系合金に着目し、SmCo 系合金薄膜を用いた磁気記録媒体の開発を試みている。Co 系合金薄膜の下地層として、一般に Cr 下地層が用いられている。これは bcc 結晶構造の Cr と hcp 結晶構造の Co 系合金の格子間隔が非常に近いので、Cr 下地層が Co 系合金層に対してエピタキシャル的な結晶成長を促すためである²⁾。我々はこれまでに Cr 下地層を作製するための Ar スパッタガス圧や基板温度を変化させ、Cr 下地層の配向性の変化に伴って Sm-Co/Cr 薄膜の磁気特性が変化することを明らかにしてきた³⁾⁻⁵⁾。そこで本研究では Sm-Co/Cr 薄膜の磁気特性の改善を目的に、Cr 下地層を一定条件で作製し、Sm-Co 層の作製条件を変化したときの磁気特性について検討を行った。

2. 実験方法

本研究では Cr 下地層および Sm-Co 層を、それぞれ対向ターゲット式スパッタリング (FTS) 法と DC マグネトロンスパッタリング法を用いて同一チャンバー内で作製した。

基板には、試料作製時に基板加熱なしの場合にはスライドガラス基板を用い、基板加熱時にはコーニング#7059 ガラス基板を用いた。Cr 下地層を室温 (基板加熱なし) で Ar スパッタガス圧を 2 mTorr として作製し、Cr 下地層厚はいずれの薄膜においても 100 nm 一定とした。Sm-Co 層を作製するためのターゲットには Co 板上に Sm チップを配した複合型ターゲットを用い、Sm チップ数を調整して薄膜中の Sm 組成比が約 20 at.% になるようにした。この Sm 組成比は EDX (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) を用いて確認した。本研究では、まず Sm-Co 層作製時のスパッタガス圧の磁気特性に及ぼす影響について検討するために、Sm-Co 層を作製するための Ar スパッタガス圧を 1~22.5 mTorr の範囲で変化させて室温で薄膜を作製した。次に Sm-Co 層作製中の基板温度の影響を検討するために、Ar スパッタガス圧を一定 (8 mTorr) として、基板温度を室温 (基板加熱なし) から 300 °C の範囲で変化させて薄膜を作製した。これら薄膜の Sm-Co 層厚は 40 nm 一定とした。また Sm-Co 層厚の効果を検討するために、作製条件を Ar スパッタガス圧 8 mTorr、基板加熱なしとして、スパッタ時間を変えることにより Sm-Co 層厚を 1~400 nm の範囲で変化させた薄膜を作製した。

結晶構造は X 線回折装置を用いて測定した。また表面形態は AFM (Atomic Force Microscope) を用いて観察した。磁気特性は最大印加磁界 10 kOe の振動試料型磁力計を用いて測定した。

3. 実験結果

3. 1 スパッタガス圧依存性

本研究で作製した全ての Sm-Co/Cr 薄膜の X 線回折ダイアグラムには、Cr (110) 面からの回折線のみが観察され、SmCo 合金相からの回折線は観察できなかった。Y. Liu らは HREM (High Resolution Electron Microscopy) および TEM (Transmission Electron Microscopy) を用いて、Sm-Co/Cr 薄膜内の結晶構造について観察し、Sm-Co 層の 1 つのクラスター中に、アモルファス相に囲まれた約 5 nm の大きさをもつ結晶子があることを報告している^{6), 7)}。我々が作製した Sm-Co/Cr 薄膜の Sm-Co 層内の結晶構造もアモルファス相と微小な結晶子の混合相であるために、X 線回折ダイアグラムには SmCo 合金相からの回折線が現れなかったと推測される。基板加熱を行わずに Sm-Co 層を作製時の Ar スパッ

タガス圧を変えた場合、Sm-Co/Cr 薄膜の飽和磁化はほぼ一定で約 500 emu/cc であった。スパッタガス圧 10 mTorr 以下では、角形比が約 0.8~0.9、保磁力角形比が 0.9 以上という角形性の良好なヒステリシス曲線が薄膜の面内方向で観察された (Fig.1 参照)。Fig.2 に示すように保磁力は Ar スパッタガス圧に大きく依存し、8 mTorr のときに最大値約 3.3kOe となった。堆積速度に対する保磁力の関係をプロットすると Fig.3 に示すようになり、堆積速度が速いほど高保磁力化する傾向にある。Sm ならびに Co スパッタ粒子の輸送過程に関する詳細な検討は行っていないが、Ar スパッタガス圧の増加に伴ってプラズマ中のイオン密度も増加し、これがスパッタ粒子すなわち薄膜形成速度が増加をもたらしている。一方、10 mTorr 以上では平均自由行程が短くなりスパッタ粒子と放電ガスの衝突回数の増加するため粒子による散乱等によって薄膜形成速度が減少する。すなわち輸送衝突過程から拡散過程への変化が薄膜形成速度に反映し、これに伴って Sm-Co 層内の微細構造が変化し磁気特性に影響を及ぼしていると推察される。しかしながら本研究では SmCo 合金層の層内構造を明白にすることができなかったため、今後の研究において TEM を用いた Sm-Co 層内の構造解析が必要である。

3. 2 基板温度依存性

Cr 下地層上に基板加熱を行いながら Sm-Co 層を形成し

Fig. 1 M-H loop of an Sm-Co film with a magnetic layer thickness of 40 nm prepared at an Ar gas pressure of 8 mTorr without substrate heating.

Fig. 2 Dependence of the coercivity on the Ar sputtering gas pressure ($P_{Ar}(\text{SmCo})$).

Fig. 3 Relationship between the coercivity and the Sm-Co deposition rate.

た場合、Sm-Co/Cr 薄膜の X 線回折ダイアグラムでは Cr (110) 面からの回折線のみが観察され、しかも回折線強度はほぼ一定であった。また飽和磁化 (約 500 emu/cc) や角形比 (約 0.90)、保磁力角形比 (約 0.95) もほぼ一定であった。一方、Fig.4 に示すように基板温度を高温にするにつれて保磁力が減少することが明らかになった。基板加熱を施して作製した Cr 下地層上に、室温で Sm-Co 層を積層した場合にも、基板温度の上昇とともに保磁力の低下が認められた³⁾。これらから Sm-Co/Cr 薄膜の高保磁力化には、基板加熱を行わずに、Cr および Sm-Co 層をより低温で作製すべきであることがわかった。

3. 3 Sm-Co 層厚依存性

以上の結果から、Sm-Co 層を Ar スパッタガス圧 8mTorr、基板加熱なしで作製することによって Sm-Co/Cr 薄膜の保磁力が最大となることがわかった。一方、長手方向の高密度磁気記録媒体を設計するための重要なパラメータの一つとして磁性層厚が挙げられる。そこで Sm-Co 層厚を 1~400 nm としたときの Sm-Co 層厚依存性について検討した。

Fig. 4 Dependence of the coercivity on the substrate temperature for Sm-Co layer deposition.

Fig. 5 AFM images of the surface of the Cr underlayer and Sm-Co/Cr films with various Sm-Co layer thicknesses (t_{SmCo}).

Fig. 5 に AFM を用いて観察した Cr 下地層および Sm-Co/Cr 薄膜の表面形状を示す。測定範囲は $500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$ とした。Cr 下地層表面の粒子はほぼ円形で、Sm-Co 層厚 6 nm 以上の Sm-Co/Cr 薄膜の表面の粒子もほぼ円形であることがわかった。Fig. 6 に AFM で観察した表面の粒子サイズの Sm-Co 層厚依存性を示す。Cr 下地層表面の粒子サイズは約 50 nm であり、Sm-Co 層厚 100 nm 以下における Sm-Co 層表面の粒子サイズと Cr 下地層表面の粒子サイズがほぼ等しい大きさであることがわかった。さらに Sm-Co 層厚を増加すると粒子サイズの増加傾向が見られた。AFM で測定した表面粗さ (R_a) の Sm-Co 層厚依存性を Fig. 7 に示す。Cr 下地層の R_a と Sm-Co 層厚 100 nm 以下の R_a はほぼ等しく、約 6 nm であることがわかった。また Sm-Co 層厚 200 nm 以上では R_a が増加する傾向にあった。AFM による表面観察から、Sm-Co 層厚 100 nm 以下の場合には Sm-Co/Cr 層表面形状が Cr の表面形状によく似ていることがわかり、Cr 下地層の表面形状

Fig. 6 Dependence of the grain size evaluated from AFM images on the thickness of the Sm-Co layer (t_{SmCo}).

Fig. 7 Dependence of the surface roughness (R_a) on the thickness of the Sm-Co layer (t_{SmCo}).

が Sm-Co 層の表面形状に影響を及ぼしていると考えられる。故に Sm-Co/Cr 薄膜の表面の粒子サイズや R_a を小さくするためには、Cr 下地層の表面性の改善が必要である。

飽和磁化は Sm-Co 層厚に依存せず約 500 emu/cc であった。Sm-Co 層厚が増加するにつれて角形比および保磁力角形比はわずかに増加傾向を示し、Sm-Co 層厚が 15 nm 以上では角形比および保磁力角形比はそれぞれ $0.83, 0.95$ 以上になった。Fig. 8 に保磁力の Sm-Co 層厚依存性を示す。Sm-Co 層厚 40 nm において保磁力が最大値となり、約 3.3 kOe であった。このときの角形比および保磁力角形比はそれぞれ約 $0.91, 0.97$ であった。Sm-Co 層厚を 15 nm に減少させても保磁力は約 3 kOe であり、さらに磁性層厚の薄膜化の可能性があると考えられる。これらの結果は Sm-Co/Cr 薄膜が高密度磁気記録媒体として有望であることを示唆している。

Fig. 9 に magnetic switching volume (V^*) を示す⁹⁾。Sm-Co 層厚 200 nm 以下ではほぼ一定の約 $4 \times 10^{-24} \text{ m}^3$ の大きさであり、Sm-Co 層厚 400 nm ではほぼ 2 倍の約 $8 \times 10^{-24} \text{ m}^3$ であった。この体積 V^* の形状が Sm-Co 層厚を高さとする円柱であると仮定したときの直径 (d) を Sm-Co 層厚にして

Fig. 8 Dependence of the coercivity (H_c) on the thickness of the Sm-Co layer (t_{SmCo}).

Fig. 9 Dependence of V^* on the thickness of the Sm-Co layer (t_{SmCo}).

プロットすると Fig. 10 になる。この直径は 30 nm 以下であり、AFM で観察した表面粒子の直径 (約 49 nm) よりも小さい。これは AFM で観察した表面粒子の中に Y. Liu らの観察したような微小結晶子が分散していて、このために磁化が incoherent rotation を生じている可能性を示している⁷⁾。

4. まとめ

本研究では Cr 下地層を一定の条件で作製し、Sm-Co 層形成時の Ar スパッタガス圧、基板温度、層厚を変化させたときの磁気特性について検討を行った。この結果、高保磁力をもつ Sm-Co/Cr 薄膜を作製するためには Sm-Co 層を Ar スパッタガス圧 8 mTorr、室温 (基板加熱なし) で作製すべきであることがわかった。Sm-Co 層厚が 100 nm 以下では Cr 下地層の表面形状と Sm-Co 層の表面形状が似ており、層厚 100 nm 以下の Sm-Co 層表面の表面形状の改善には Cr 下地層の表面形状の改善が必要であると考えられる。厚さ 15 nm 以上の Sm-Co 層の面内方向の角形比と保磁力角形比はそれぞれ約 0.83, 0.95 以上であり、角形性の良好なヒステリシス曲線が得られた。保磁力は Sm-Co 層厚 40 nm において最

Fig. 10 Dependence of the diameter (d) of the switching unit calculated from V^* on the thickness of the Sm-Co layer (t_{SmCo}).

大値約 3.3 kOe であった。また Sm-Co 層厚 15 nm の Sm-Co/Cr 薄膜でも保磁力が約 3 kOe であることから、Sm-Co/Cr 薄膜は磁気記録媒体として有力な材料であると考えられる。

文 献

- 1) 近角聰信; 強磁性体の物理 (下), p. 37 (裳華房, 東京, 1991).
- 2) D. E. Laughlin and B. Y. Wong; *IEEE Trans. Magn.*, 27, 4713 (1991).
- 3) 松本光功, 森迫昭光, 武井重人, 庄村聡; 日本応用磁気学会誌, 21, 237 (1997).
- 4) S. Takei, S. Shomura, A. Morisako, M. Matsumoto, and T. Haeiwa; *J. Appl. Phys.*, 81, 4647 (1997).
- 5) S. Takei, A. Morisako, and M. Matsumoto; *J. Magn. Soc. Jpn.*, 22, S1, 230 (1998).
- 6) Y. Liu, D. J. Sellmyer, B. W. Robertson, Z. S. Shan, and S. H. Liou, *IEEE Trans. Magn.*, 31, 2740 (1995).
- 7) Y. Liu, B. W. Robertson, Z. S. Shan, S. H. Liou, and D. J. Sellmyer, *J. Appl. Phys.*, 77, 3831 (1995).
- 8) E. W. Singleton, Z. S. Shan, Y. S. Jeong and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.*, 31, 2743 (1995).