高密度磁気記録媒体用 NdFeB/W 薄膜の B 組成依存性

Effects of B percentage in NdFeB/W Thin Film for High-Density Magnetic Recording Media

高村幸良・松本光功・森迫昭光・片山信宏

信州大学工学部, 長野市若里 4-17-1 (〒380-8553)

Y. Takamura, M. Matsumoto, A. Morisako, and N. Katayama

Faculty of Engineering, Shinshu University, 4-17-1 Wakasato, Nagano 380-8553

NdFeB thin films with perpendicular c-axis orientation texture have been studied as promising candidates for ultrahigh-density recording media because of their high magneto crystalline anisotropy and large saturation magnetization. Films with composition of $\text{Nd}_{18}\text{Fe}_{76}\text{B}_6$ and a thickness of 15 nm exhibited perpendicular coercivity as high as 6.0 kOe. The grain size for this film is about 70 nm, as evaluated by SEM surface images. It was found that an increase in B percentage can decrease the grain size to 20 nm with B content up to 15 at.%. The perpendicular coercivity, nucleation field, and grain size for NdFeB films with 12.3 at.% of B and a thickness of 15 nm are 5 kOe, -2.5 kOe, and about 40 nm, respectively.

Key words: ultrahigh-density recording media, magneto crystalline anisotropy, perpendicular coercivity, nucleation field, NdFeB film

1. はじめに

我々は、高い磁気異方性エネルギーを持つ $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 合金に着目し、磁気記録媒体への応用を目指して研究を行ってきた。これまでの研究では熱酸化シリコン基板上やガラス基板上に基板加熱しながら NdFeB 薄膜を直接成膜すると、300 nm 程度の層厚においても 1.8 kOe 以下の保磁力しか得られない。この低保磁力の原因は NdFeB 薄膜が基板から酸素を吸収し、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相よりも容易に NdO 相を形成するためであることが分かった。そこで NdFeB 薄膜中の NdO 相の生成を抑制し高保磁力を得るため Ta 基板を用いた。その結果、NdFeB 薄膜の磁化容易軸を膜面に対して垂直方向に向けられることが明らかになり、磁性層厚 300 nm で垂直方向の保磁力は 5.2 kOe の値を示した^[1]。しかしながら Ta 基板上に作製した NdFeB 薄膜において、NdFeB 層厚を 100 nm 以下に減少させると垂直方向の保磁力が著しく減少した。

次に我々は様々な下地層材料を用いて、NdFeB 薄膜を作製した^[2]。その結果下地層材料に W を用いた $\text{Nd}_{18}\text{Fe}_{76}\text{B}_6/\text{W}$ 薄膜において、NdFeB 層厚 15 nm でも垂直方向の保磁力及び磁化反転開始磁界はそれぞれ 6.0 kOe 及び -4.5 kOe の値が得られた。しかしながら SEM によって観察された粒子サイズは 60 - 70 nm の値であった。高密度磁気記録媒体を実現させるためには高保磁力、高角形比を保ちながら、粒子サイズを減少させることが強く要求されている。また磁性層の B 増加が粒子サイズの微細化に大きく効果があると報告されている^[3]。本研究では NdFeB 層内の B 組成を 6.0 at.% から 15.0 at.% まで変化させたときの NdFeB/W 薄膜

の磁気特性及び構造特性について検討した。

2. 実験方法

薄膜作製には対向ターゲット式スパッタリング装置を用い、チャンバーの背圧は 1.0×10^{-6} Torr 以下で成膜した。NdFeB/W 薄膜の構成を Fig.1 に示す。W 下地層作製時には、スパッタガス圧 5 mTorr, 投入電力 30 W, 層厚 60 nm とし、基板温度を 280 °C とした。スパッタターゲットには Fe 板上に Nd チップと B チップを配列したものをを用いた。薄膜の組成比が $\text{Nd}:\text{Fe}:\text{B} = 18:(82-x):x$ となるようにチップ数を選定し、B 組成 (x) を 6 から 15 at.% まで変化させた。NdFeB 層作製時には、スパッタガス圧 3 mTorr, 投入電力 100 W, 層厚 15 nm, 基板温度 440 °C とした。W 上部層作製時には、スパッタガス圧を 5 mTorr, 投入電力 30 W, 層厚を 5 nm とし、基板加熱はしていない。基板にはコーニング #7059 を用いた。膜の構造回折には X 線回折を用い、膜の表面状態は原子間力顕微鏡 (AFM) 及び走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した。また磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) を用いてそれぞれ評価した。磁化反転体積 (V^*) は、次式に示す印加磁界速度と保磁力の依存性から求めた。

$$H_c = (kT / (V^* M_s)) \ln (dH/dt) + \text{const.} \quad (1)$$

ここで k はボルツマン定数, T は絶対温度, M_s は飽和磁化である。また印加磁界速度 (dH/dt) は 4, 8, 16, 27, 77 ($\times 10^3$ A/ms) の各値とした。

Fig. 1 Thin film structure.

Fig. 2 XRD diagrams of NdFeB (15 nm)/W (60 nm) thin films with various B compositions.

3. 実験結果

3.1 結晶配向及び磁気特性

Fig. 2 に各 B 組成における NdFeB/W 薄膜の X 線回折ダイアグラムを示す。いずれの B 組成においても、下地層 W (110) 面からの回折線が観察されたが磁性層からの回折線は観察されなかった。

Fig. 3 に各 B 組成に対する垂直方向及び面内方向の磁化曲線を示す。X 線回折ダイアグラムでは磁性層からの回折線が現われていないものの、薄膜は強い磁気異方性を示し、特に B 組成 6.0 at.% から 10.5 at.% において垂直方向に顕著な磁化容易軸があることが分かる。NdFeB の膜厚が 30 nm 以上の時は、Nd₂Fe₁₄B(006)面からの回折線が観察されたことから、膜厚 15 nm の NdFeB 膜は微結晶からなり、その c 軸が膜面と垂直方向に優先的に配向していると考えられる。

Fig. 4 に B 組成 6.0 at.% から 15.0 at.% の時の飽和磁化を示す。B 組成 6.0 at.% の時、飽和磁化は 680 emu/cm³ の値を示すが、B 組成を増加させると飽和磁化は線形的に減少する。B 組成 15.0 at.% の薄膜の Fe 組成は B 組成 6.0 at.% の薄膜よりも 12 % 減少しているに過ぎないが、飽和磁化の減少は 29 % に到っている。

Fig. 5 に B 組成 6.0 at.% から 15.0 at.% における保磁力及び垂直方向の磁化反転開始磁界(H_n)を示す。面内方向の保磁力は B 組成の増加にかかわらず 1.0 kOe 以下のほぼ一定の値を示す。B 組成 8.0 at.% の時、垂直方向の保磁力は 7.0 kOe の値を示すが、B 組成を増加させると垂直方向の保磁力は減少し、B 組成 15.0 at.% の時 4.0 kOe の値を示す。よって B 組成の増加に伴い、垂直磁気異方性は弱くなると考えられる。また垂直方向の磁化反転開始磁界(H_n)は、B 組成 12.3 at.% 以下でマイナスの値を示し高い角形比を示すが、B 組成 15.0 at.% まで増加すると H_n はプラスの値になり、角形比は減少する。

Fig. 3 M-H loops of NdFeB (15 nm)/W (60 nm) thin films with various B compositions.

Fig. 4 Dependence of saturation magnetization (M_s) on B composition.

Fig. 5 Dependence of coercivity (H_c) and nucleation field (H_n) on B composition.

Fig. 6 SEM images of NdFeB thin films with various B compositions.

3.2 表面形態

Fig. 6に各B組成におけるNdFeB薄膜のSEM像を示す。B組成によりNdFeB薄膜の表面形態や粒径は大きく変化し、B組成を15.0 at.%まで増加させるとNdFeB薄膜表面の凸凹が小さくなるが観察される。このことはFig. 7に示すAFM像から測定したNdFeB薄膜の表面粗さの値(R_a)において、B組成6.0 at.%の時 R_a が7.4 nmであったのに対し、B組成15.0 at.%の時 R_a の値が3.9 nmと減少していることから裏づけられる。

SEM像で観察される表面の凹凸が粒子の大きさに相当すると仮定し、Fig. 8にはこの粒子の大きさと磁化反転体積(V^*)の値をB組成に対して示した。B組成を6.0 at.%から15.0 at.%まで増加させると、この粒子の平均的な大きさは70 nmから24 nmまで減少し微細化された。これは過剰なBが、粒子の成長を抑制したためと考えられる。また磁化反転体積はB組成にほとんど依存せず、 $(0.5 \sim 0.6) \times 10^{-24} \text{ m}^3$ 程度のほぼ一定の値を示す。このことは磁気的な粒子サイズは変化していないことを示している。以上よりSEMで観察された粒子を円柱(円柱の高さを膜厚15 nmと仮定)と見なす時、これらの粒子の体積は $(0.6 \sim 5.4) \times 10^{-24} \text{ m}^3$ となる。よってSEMで観察される粒子は、より微少な磁化反転体積を持つ粒子のクラスタとして形成されていると予想される。

4. まとめ

本研究では、(110)面に配向しているW下地層に440 °Cで基板加熱しながらNdFeB層を成膜させ、B組成を6.0 at.%から15.0 at.%まで変化させた時の構造及び磁気特性のB組成依存性について検討した。いずれのB組成においても、X線回折ダイアグラムには磁性層からの回折線は観察されない。しかし薄膜は強い磁気異方性を示し、特にB組成6.0 at.%から10.5 at.%において垂直方向に顕著な磁化容易軸を有するナノサイズの微結晶子からなる構造と考えられる。

Fig. 7 AFM images of NdFeB thin films with various B compositions.

Fig. 8 Dependence of grain size and switching volume (V^*) of NdFeB thin films on B composition.

B組成の増加に伴い垂直方向の保磁力は減少するが、B組成15.0 at.%の時4.0 kOeの値を示した。垂直方向の磁化反転開始磁界はB組成12.3 at.%までは負の値であり、垂直方向の磁化曲線の角形比は大きい。

またSEM像及びAFM像におけるNdFeB薄膜の表面形態はB組成の増加に伴い表面の凹凸が小さくなり表面粗さは減少する。SEMの凸凹から推定した粒子の平均的な大きさはB組成6.0 at.%から15.0 at.%まで増加させると、70 nmから24 nmまで減少し微細化された。これは過剰なBが粒子の成長を抑制したためと考えられる。またSEMで観察された粒子を円柱と見なす時、これらの粒子の体積は、 $(0.6 \sim 5.4) \times 10^{-24} \text{ m}^3$ となる。よってSEMで観察された粒子は、磁化反転体積を持つ粒子のクラスタとして形成されていると予想される。今後の課題としては薄膜の高保磁力、高角形比を維持しながら更なる粒子群の微細化が必要である。

文献

- 1) S.N. Piramanayagam, M. Matsumoto, and A. Morisako: *J. Magn. Mater.*, 85, 5898 (1999).
- 2) 福岡智久,松本光功,森迫昭光:平成 12 年度電子情報通信学会信越支部大会講演論文集, N4, 303 (2000).
- 3) 片山信宏,松本光功,森迫昭光,武井重人:平成 12 年度電子情報通信学会信越支部大会講演論文集, G6,161 (2001).

2002 年 10 月 7 日受理, 2003 年 1 月 17 日採録