Co/Pd 多層膜の膜厚方向特性分布の評価

Evaluation of Characteristic Distribution in the Direction of Film Thickness in Co/Pd Multilayers

吉川 裕紀・孔 碩賢・中川 茂樹

東京工業大学大学院理工学研究科電子物理工学専攻, 東京都目黒区大岡山 2-12-1 (〒152-8552)

H. Yoshikawa, S. H. Kong, and S. Nakagawa

Department of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology

2-12-1 O-okayama, Meguro, Tokyo 152-8552

The Ar gas pressure P_{Ar} , the thicknesses of Co and Pd layers, and the number of layers were optimized in Co/Pd multilayers for perpendicular magnetic recording media. A high squareness ratio S and high coercivity H_c were obtained in a [Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]₂₀ film prepared at P_{Ar} of 30 mTorr. The relationship between the surface roughness R_a and H_c was examined. It was concluded that the top region of the multilayers exhibited higher H_c , while the bottom region revealed degraded H_c . Large R_a and smaller grain size are essential for attaining high H_c in Co/Pd multilayers.

Key words: Co/Pd multilayers, Pd underlayer, surface roughness, high coercivity

1. はじめに

Co/Pd 多層膜は現在、高保磁力、大角形比を持つ多層膜系垂直磁気記録媒体として注目されている。特に、この多層膜は Co 合金系媒体の中でも大きな垂直磁気異方性を有し、その起源は Co 層と Pd 層での界面磁気異方性が主であると考えられている^{1)~3)}。一方で粒子間の磁気的交換相互作用が強く媒体ノイズが大きくなりやすいことが課題とされている。本研究ではスパッタ Ar ガス圧⁴⁾ならびに各膜厚を最適化し、次いで粒子の微細構造制御のため Pd を下地層として付与⁵⁾したのち、表面粗さと保磁力との関係に注目し、記録層中の粗さの異なる上部と下部とで保磁力の違いを確認した。上部層のみの特性を調べる際には下部に Co/Pd 層の Co に代えて常磁性の Co₆₇Cr₃₃を用いた。

2. 実験方法

多層膜の作製には対向ターゲット式スパッタ装置を用い、すべて室温で作製した。背圧は 7.0×10^{-7} Torr 以下で基板には自然酸化 Si を用いた。スパッタ Ar ガス圧 P_{Ar} を 1~50 mTorr で変化させた後、 $P_{Ar} = 30$ mTorr として垂直保磁力 H_c が 3 kOe 以上、角形比 S がほぼ 1 となるように Co 層

厚、Pd 層厚、周期層数を最適化させた。その結果得られた [Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]₂₀ に Pd 下地層を 0~10 nm 付与した。表面粗さ R_a と保磁力 H_c との関係を明らかにするための実験として、[Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]₂₀/Pd (3 nm) の記録層 20 層の上部あるいは下部を非磁性化することを試みた。下部層のみの場合は 15 層、10 層と層数を減らし、また上部層のみの場合は下部の 5 層および 10 層分の Co を常磁性の Co₆₇Cr₃₃ で置き換えた。膜の構造解析には X 線回折 (XRD) を用い、膜の表面状態は原子間力顕微鏡 (AFM) で観察した。また、磁気特性は振動試料式磁力計 (VSM) で、表面磁区構造は磁気力顕微鏡 (MFM) を用いてそれぞれ評価した。

3. 実験結果

3.1 Co/Pd 多層膜の Ar ガス圧依存性

Table 1 に [Co (0.2 nm)/Pd (0.8 nm)]₂₀⁶⁾ のスパッタ Ar ガス圧 P_{Ar} を 1~50 mTorr とした時の垂直方向磁気特性の変化を示す。 $P_{Ar} = 1$ mTorr の時には垂直方向が磁化容易軸とはならなかったが、10 mTorr へとガス圧が上がることにより角形比 S が大幅に向上し、 H_c も増加した。さらに $P_{Ar} = 30$ mTorr になるとそれに加えて磁化ループの傾き α ($=4\pi(dM/dH)_{H=H_c}$) も低下した。また P_{Ar} が低くなるにしたがい飽和磁化 M_s が増加していることがわかる。これは低ガス圧での膜作製時の方が Co/Pd 界面での Pd 層の分極とみられる M_s の増大が観測されたものと考えられる。 P_{Ar} を上げるにつれ Fig. 1(b) の低角 XRD で観測されるように界面の乱れが起り、分極が減少して M_s が小さくなったと考えられる。なお $P_{Ar} = 50$ mTorr の膜は膜の付着力が弱いという問題があったため、今回の検討には含めなかった。

Fig. 2 は比較的高い垂直保磁力が発現した $P_{Ar} = 10$ mTorr と 30 mTorr の膜の AFM および MFM 観測結果である。AFM 像においては 10 mTorr から 30 mTorr へとガス圧が増加することで表面粗さ R_a が増加していることがわかる。また MFM 像では 30 mTorr にすることで磁区サイズが減少していることがわかる。これは高ガス圧で製膜したことにより結晶粒の分離が進み、形態的には表面が粗くなり、磁性粒子間の交換相互作用が抑制されたものと考えら

れる。

Fig. 3 に $P_{Ar} = 30$ mTorr として, Co 層と Pd 層の各膜厚 (d_{Co} および d_{Pd}) を変化させたときの保磁力 H_c および角形比 S の特性を示す. まず d_{Co} を $0.15 \sim 0.5$ nm と変化させ, 最も H_c の高かった 0.2 nm を最適値とした. 次いで d_{Pd} を $0.5 \sim 1.5$ nm までそれぞれ変化させ, 同様にして 0.6 nm を最適値とした. 媒体の薄膜化を考え同程度の特性であれば薄い膜を選択した. Co 層厚の増加により H_c が低下するのは磁性粒子間の交換相互作用が強くなるためであると考えられる.

Table 1 Magnetic properties of [Co (0.2 nm)/Pd (0.8 nm)]₂₀ deposited at various P_{Ar} .

P_{Ar} [mTorr]	M_s [emu/cc]	$S_{\perp}$	$H_{c\perp}$ [kOe]	α
1	610	0.16	0.56	2.1
10	400	0.82	3.2	13.0
30	330	0.85	3.6	2.9
50	290	0.76	2.5	3.1

Fig. 1 XRD diagrams of [Co (0.2 nm)/Pd (0.8 nm)]₂₀ multilayers deposited at various P_{Ar} : (a) 2θ scan, (b) low-angle.

Fig. 2 AFM and MFM images of [Co (0.2 nm)/Pd (0.8 nm)]₂₀ deposited at various P_{Ar} .

Fig.3 $H_{c\perp}$ and S of [Co/Pd]₂₀ multilayers for various thicknesses of Co (d_{Co}) and Pd (d_{Pd}): (a) [Co (d_{Co} nm)/Pd (0.8 nm)]₂₀, (b) [Co (0.2 nm)/Pd (d_{Pd} nm)]₂₀.

3.2 層数の増加に伴う変化

Fig. 4 に前節で得られた最適設計値である[Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]の層数 N を $10 \sim 50$ 層で変化させたときの H_c および S の変化を示す. また Fig. 5 にそのときの AFM 像および MFM 像を示す. 10 層から 20 層にかけて H_c, S ともに大幅に増加していくが, 一方 20 層以上ではあまり変化がみられない. また Fig. 5 より層数の増加に伴い表面粗さ R_a , 粒子サイズ D が増加していく. ガス圧を変えたときの効果 (Fig. 1) と同様, H_c の増加にはある程度表面をあらすことが有効ではないかと考えられる. 一方 20 層以上に層数を増やしても磁気特性に明確な変化は見られなかった.

なお, Table 2 に [Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]₂₀ の諸特性を示した.

Fig. 4 H_c and S of $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_N$ with various numbers N of bilayers.

Table 2 Magnetic properties of $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_{20}$ multilayers.

M_s [emu/cc]	340
$S_{\perp}$	0.90
$H_{c\perp}$ [kOe]	3.5
$\alpha_{\perp}$	2.5
K_u [erg/cc]	2.1×10^6
R_a [nm]	0.44
D [nm]	23

Fig. 5 AFM and MFM images of $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]$ multilayers with various numbers N of bilayers.

3.3 下地層の付与に伴う変化

Fig. 6 に $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_{20}$ に Pd 下地層 (厚さを t_{Pd} と表す) を 1~10 nm 付与した時の H_c および α の変化を示す. Fig. 4 および Table 2 との比較より, H_c は数 nm の下地層により大幅に増加し, また α も理想とされる 1 に近づいていった. 特に H_c については, 下地層なしの記録層 20 層のときの 3.5 kOe から Pd 下地層を 3 nm 付与したことにより 6.4 kOe にまで増加した. 下地層の付与が H_c の増加にきわめて有効であることがわかる.

Fig. 7 に $t_{\text{Pd}} = 0, 3, 10$ nm の AFM 像を示す. Fig. 5 との比較より, 下地層の付与は粒子サイズ D の大きさをあまり変化させずに表面粗さ R_a を増加させる効果があるものと思われる. Fig. 8 ではそのことを確認するため総膜厚 T に対する R_a と D の変化の様子を下地層付与時と付与しなかった場合とで比較した. これらの結果から, 特に R_a を大きくすることが H_c の増加には有効ではないかと考えられる. ただ, 下地層なしのときと Pd 下地層を 3 nm 付与したときとでは R_a にあまり大きな変化がみられないものの H_c は大幅に増加した. これには更なる検討を要するものと思われる.

なお, Table 3 に $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_{20}/\text{Pd (3 nm)}$ の諸特性を示した.

Fig. 6 H_c and α of $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_{20}$ multilayers for various thicknesses of Pd underlayers (t_{Pd}).

Fig. 7 AFM images of $[\text{Co (0.2 nm)}/\text{Pd (0.6 nm)}]_{20}$ multilayers for various thicknesses of underlayers (t_{Pd}).

Fig. 8 Changes in the surface roughness R_a and grain size D of $[\text{Co} (0.2 \text{ nm})/\text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_N$ and $[\text{Co} (0.2 \text{ nm}) / \text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_{20}/\text{Pd} (t_{\text{Pd}} \text{ nm})$ multilayers as a function of the total thickness: (a) roughness R_a , (b) grain size D .

Table 3 Magnetic properties of $[\text{Co} (0.2 \text{ nm})/\text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_{20}/\text{Pd} (3 \text{ nm})$.

M_s [emu/cc]	330
$S_{\perp}$	0.92
$H_{c\perp}$ [kOe]	6.4
α	1.9
K_u [erg/cc]	3.6×10^6
R_a [nm]	0.55
D [nm]	24

3.4 記録層上部と下部との特性の比較

Fig. 10 に $[\text{Co} (0.2 \text{ nm})/\text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_{20}/\text{Pd} (3 \text{ nm})$ の上部層および下部層のみの垂直 M-H ループならびに H_c の変化の様子を示す (膜構成は Fig. 9). また Fig. 11 にそれぞれの場合の AFM 像を示す. このとき下部層のみの特性を調べるのには記録層の層数 N を 20 層から $N = 15, 10$ と減らすことで対応し, 上部層のみの場合には 20 層のうち下部 x 層の Co を常磁性の $\text{Co}_{67}\text{Cr}_{33}$ で置き換え $\text{Co}_{67}\text{Cr}_{33}/\text{Pd}$ とし, $x = 5, 10$ と増やすことで対応させた. 10 層の Co/Pd 多層膜に相当する膜の特性を比較した場合, 上部に位置させた方が保磁力が大きくなっている. このことより R_a の大きい上部層の方が同じ層数の下部層よりも高保磁力を発現していると考えられる.

Fig. 9 Film structures of samples to confirm the magnetic properties of the bottom and top regions of $[\text{Co} (0.2 \text{ nm})/\text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_{20}$: (a) bottom region, (b) top region.

なお, Fig. 10(b) で $x = 5, 10$ と増加するにつれ飽和磁化 M_s が若干増加しているが, これは $\text{Co}_{67}\text{Cr}_{33}$ と Pd の界面で磁化が発生しているためであると考えられる. よって $\text{Co}_{67}\text{Cr}_{33}$ を用いた多層膜の上部層の特性からは α の判断は難しいが, α についての変化は小さいといえる.

Fig. 10 Perpendicular M-H loops and H_c of the top and bottom regions of $[\text{Co} (0.2 \text{ nm})/\text{Pd} (0.6 \text{ nm})]_{20}$ multilayers: (a) bottom layers, (b) top layers, (c) H_c as a function of N .

Fig. 11 AFM images of the $[\text{Co}/\text{Pd}]_{20}$ multilayers shown in Fig. 10.

4. まとめ

Co/Pd 多層膜の保磁力 H_c の増加には 30 mTorr 程度の高 Ar ガス圧 (P_{Ar}) 化ならびに Pd 下地層の付与が有効であることがわかった. 高 H_c の起源として膜の表面状態に注目したところ, ガス圧の増加, 多層膜層数の増加, および下地層の付与は表面粗さ R_a の増加を促すことがわかった. 特に下地層の付与は多層膜層数を増加させたときよりも R_a の増加に効果があり, 粒子サイズ D の大きさを抑制しつつ表面粗さ R_a を増加させることが H_c の大幅な増加に有効であると考えられた. また [Co (0.2 nm)/Pd (0.6 nm)]₂₀/Pd (3 nm) の記録層上部と下部とで特性の比較を行ったところ, R_a の大きい上部層の方が下部層を上回る H_c を有していることが確認できた.

参考文献

- 1) H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge, and F. J. A. den Broeder: *J. Magn. Magn. Mat.*, **66**, 351-355 (1987).
- 2) F. J. A. den Broeder, W. Hoving, and P. J. H. Bloemen: *J. Magn. Magn. Mat.*, **93**, 562-570 (1991).
- 3) F. Lopez-Urias, J. Dorantes-Davila, and H. Dreyse: *J. Magn. Magn. Mat.*, **165**, 262-264 (1997).
- 4) L. Wu, S. Yanase, N. Honda, and K. Ouchi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **21**, 301-304 (1997).
- 5) Hoon-Sang Oh, Seung-Ki Joo: *IEEE Trans. on Magn.*, **32**, 4061-4063 (1996).
- 6) T. Asahi, K. Kuramochi, J. Kawaji, T. Onoue, and T. Osaka: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **25**, 575-578 (2001).

2002 年 10 月 4 日受理, 2003 年 1 月 17 日採録