垂直磁気異方性を有する Sm-Co/Cu 薄膜の作製と磁気特性

Structural and magnetic properties of Sm-Co/Cu film with perpendicular magnetic anisotropy

武井重人・上水孝徳・森迫昭光・松本光功

信州大学工学部, 長野市若里 4-17-1 (〒380-8553)

S. Takei, T. Uemizu, A. Morisako, and M. Matsumoto

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

In order to prepare Sm-Co films with perpendicular magnetic anisotropy, effects of the substrate temperatures during the preparations of both the Cu underlayer and the Sm-Co layer were studied. The Cu underlayer was varied from (111) preferred-oriented structure to (200) structure due to the substrate temperature. When the Sm-Co layer was prepared at 300 °C onto the Cu underlayer with (111) preferred-oriented structure, the X-ray diffraction line from SmCo₅ (002) plane was observed and the magnetic easy axis was in the perpendicular direction. The coercivity in the perpendicular direction was about 9.6 kOe and the coercivity in the in-plane direction was about 1.4 kOe.

Key words: perpendicular magnetic recording, Sm-Co/Cu film, perpendicular magnetic anisotropy, substrate temperature

1. はじめに

磁気記録媒体は粒子サイズの微細化と結晶粒間の交換相互作用を低減する製膜プロセスの改善により、低ノイズ化と高分解を実現してきた。この結果、記録密度が 130 Gb/in² に達したとの報告が現れた¹⁾。記録磁性層中の粒子の微細化は磁気エネルギーを減少させるため磁化が不安定になる。この熱揺らぎの影響を低減するには高い結晶磁気異方性を有する磁性材料を記録媒体として用いなければならない²⁾。この観点から我々はSmCo合金に着目してきた。SmCo合金の中でも特にSmCo₅合金は 10⁷ J/m³以上の結晶磁気異方性をもつことが知られている³⁾。

これまで多くの研究者が高密度長手磁気記録媒体の作製を目標に、特に基板加熱なしで作製したSm-Co/Cr薄膜の結晶構造と磁気特性を検討してきた⁴⁾。このときCr下地層の作製条件によって磁気特性が変化したが、XRDダイアグラムではSm-Co層からの回折線は観察されなかった。そこでY. LiuらはHREMを用いてSm-Co層内の結晶構造は観察を行い、アモルファス相と微結晶子からなる構造であることを明らかにした⁵⁾。この薄膜ではSm-Co層厚を 10 nm以下とすると保磁力は約 2 kOe以下であった⁶⁾。そこで保磁力の増加を目的に基板温度を 250 °CとしてSm-Co/Cr薄膜を作製した⁷⁾。このときCr (200) 面上へSmCo₅ (110) 面をもつSm-Co層がエピタキシャル成長し、Sm-Co層厚が 5

nm以下でも保磁力が 3 kOe以上であることがわかった。

一方、記録密度限界は長手方向記録方式よりも垂直方向記録方式のほうが高いと言われ、近年、非常に注目されている。そこで我々はSm-Co薄膜を用いた垂直磁気異方性薄膜の作製を試みた。このため下地層材料としてCuを試みた。これはバルクのCu ($a = 0.3615$ nm) とSmCo₅ ($a = 0.4995$ nm, $c = 0.3978$ nm) において、Cu (111) 面上にSmCo₅ (001) 面がエピタキシャル成長すると仮定するとミスフィット比が約 2 %と小さいからである。本研究ではCu下地層およびSm-Co層作製時の基板温度依存性について検討を行った。

2. 実験方法

Sm-Co層及びCu下地層を同一チャンバー内で大気に晒さず連続して作製した。基板にはガラス基板 (コーニング #7059) を用いた。チャンバー内の初期真空を 2×10^{-6} Torr 以下とした。Cu下地層の作製には対向ターゲット式スパッタリング (FTS) 装置を用いた。下地層作製時のスパッタリングガス圧を 1 mTorr, スパッタリング電力を 60 Wとし、下地層厚を 200 nmとした。このとき基板温度 (T_s (Cu)) は基板加熱なし (約 50 °C) から 400 °Cの範囲とした。堆積速度は基板温度を基板加熱なしから 400 °Cに変化させると約 0.21 nm/sec.から約 0.31 nm/sec.に変化した。一方、Sm-Co層の作製にはDCマグネトロンスパッタリング装置を用いた。SmCoターゲットにはCoターゲット板上に 5 mm×5 mmのSmチップを配した複合ターゲットを用いた。Smチップ数は薄膜中のSm組成がSmCo₅合金のSm組成とほぼ等しい約 17 at.%になるように調整した。Sm-Co層作製時のスパッタリングガス圧を 1 mTorr, スパッタリング電力を 30 Wとし、層厚を 40 nmとした。このとき基板温度 (T_s (Sm-Co)) は基板加熱なしから 400 °Cの範囲とした。堆積速度は基板温度にほとんど依存せず約 0.23 nm/sec.であった。

3. 実験結果

3.1 Cu 下地層作製時の基板温度依存性

まずCu下地層がSm-Co層の結晶構造および磁気特性に

Fig. 1 XRD diagrams of Sm-Co/Cu films prepared at various substrate temperature T_s (Cu).

Fig. 2 Dependence of relative intensity of Cu (111) diffraction line to Cu (200) line and intensity of SmCo₅ (002) line on substrate temperature T_s (Cu).

及ぼす影響について検討した。Cu 下地層を基板加熱なしから 400 °C の範囲で作製し, Sm-Co 層を 300 °C で作製した。

Fig. 1 に X 線回折ダイアグラムを示す。Cu 下地層からは基板温度が 200 °C 以上で多数の回折線が観察され, 基板温度が 100 °C 以下で (111) 面と (200) 面からの回折線のみが観察された。Fig. 2 に Cu (200) 面の回折線強度に対する Cu (111) 面の回折線強度を示す。これから Cu 粉末試料における (111) 面と (200) 面の回折線強度比が約 0.5 であるので下地層は (111) 面に優先配向していることがわかった。特に基板温度が 100 °C 以下では Cu (111) 面の相対強度比が 15 以上の値になり, 配向度が向上することがわかった。一方, Sm-Co 層からは SmCo₅ (002) 面の回折線が観察され

Fig. 3 Hysteresis loops of Sm-Co/Cu films prepared at various substrate temperature T_s (Cu).

Fig. 4 Dependence of remanent squareness ratio OR on substrate temperature T_s (Cu).

た。Fig. 2 に示すように, 基板温度が 200 °C 以下では基板温度の低下とともに SmCo₅ (002) 面の回折線強度が増加した。したがって Cu 下地層の (111) 面への配向度が向上するにつれ SmCo₅ (002) 面への配向度が向上したと推察され, Cu 下地層上に Sm-Co 層がエピタキシャル成長したと考えられる。

Fig. 3 に Sm-Co/Cu 薄膜のヒステリシス曲線を示す。最大印加磁界 15 kOe の VSM を用いたため, 面内方向および垂直方向ともに磁化を十分に飽和させられなかった。Fig. 4 に残留磁化比 (面内方向の残留磁化に対する垂直方向の残留磁化) を示す。基板温度を低下させると残留磁化比が増加し, 基板加熱が 200 °C 以下では 1 以上の値であった。よって残留磁化比とヒステリシス曲線の形状から, 基板温度が 200 °C 以下では垂直磁化膜が形成されていることがわかった。Fig. 5 に基板温度に対する保磁力を示す。面内方向の保磁力は基板温度の上昇とともに約 1.4 kOe から約 4 kOe に増加したが, 垂直方向の保磁力は約 9.6 kOe から約

Fig. 5 Dependence of coercivity H_{c15k} on substrate temperature T_s (Cu).

3 kOe に減少した。したがって Cu 下地層作製時の基板温度が低いほど垂直方向の保磁力と面内方向の保磁力の差が大きくなることがわかった。

3.2 Sm-Co 層作製時の基板温度依存性

ここでは Sm-Co 層作製時の基板温度を変化させたときの結晶構造ならびに磁気特性について検討した。Cu 下地層は前節の結果から基板加熱なしで作製した。

Fig. 6 に Sm-Co 層作製時の基板温度を変化させたときの XRD ダイアグラムを示す。基板温度の上昇とともに Cu 下地層からの回折線強度が増加した。これは Cu 下地層は Sm-Co 層堆積中に熱処理されることになるので、これにより回折線強度が変化したと推察している。Cu (200) 面に対する (111) 面の回折線強度比は基板加熱なしで作製された場合を除いて 10 以上であり、下地層は (111) 面に優先配向していることがわかった。一方、Sm-Co 層からの回折線は基板温度が 250 °C 以下では観察されなかった。基板温度を 275 °C とした場合、Cu (111) 面からの回折線の高角側にショルダーが観察された。この位置は SmCo_5 (002) 面の回折線位置にほぼ等しいため Sm-Co 層内の結晶化が開始したと考えられる。この結晶化開始温度は Sm-Co/Cr 薄膜の場合には 250 °C であったので⁶⁾、作製条件の最適化によって結晶化温度が低温化する可能性がある。また基板温度が 300 °C 以上では SmCo_5 (002) 面の回折線が明確に観察された。この回折線位置は約 45.2 deg. であり、格子定数 c を算出すると約 0.402 nm であった。この格子間隔はバルクの格子間隔よりもわずかに広がっていることがわかった。また SmCo_5 (002) 面のロッギングカーブを測定すると、この半値幅 ($\Delta \theta_{50}$) は約 10~13 deg. であった。これは Cu (111) 面の $\Delta \theta_{50}$ が約 8 deg. と分散が大きかったため上部層である Sm-Co 層の $\Delta \theta_{50}$ が大きくなったと考えられる。

Fig. 7 に Sm-Co/Cu 薄膜のヒステリシス曲線を示す。基板温度を 275 °C として作製した Sm-Co/Cu 薄膜の磁化容易軸は面内方向であった。基板温度が 300 °C から 350 °C の範囲では、残留磁化比が 1 以上の値を示し、最大印加磁

Fig. 6 XRD diagrams of Sm-Co/Cu films prepared at various substrate temperature T_s (Sm-Co).

Fig. 7 Hysteresis loops of Sm-Co/Cu films prepared at various substrate temperature T_s (Sm-Co).

界 15 kOe における垂直方向の磁化値が面内方向の磁化値よりも 10 % 以上大きくなっていることがわかった。よってこの範囲で作製された薄膜の磁化容易軸は垂直方向である

Fig. 8 Dependence of coercivity H_{c15k} of Sm-Co/Cu films on substrate temperature T_s (Sm-Co).

ことがわかった。またこれら薄膜の初期磁化曲線はニュークリエーション型と推定される磁化過程を示していた。Fig. 8 に基板温度に対する保磁力を示す。垂直方向の保磁力は基板温度の上昇とともに増加し、基板温度が 300 °C から 325 °C の範囲で約 10 kOe であった。一方、面内方向の保磁力は分布が大きいが 6 kOe 以下の値であった。面内方向のヒステリシス曲線を完全に閉じさせ残留磁化や保磁力をゼロにするには Sm-Co 層内の c 軸分散角を低下させなければならず、このため Cu 下地層の配向度を向上させる必要があると考えられる。

SEM を用いて、基板加熱なしで作製した Cu 下地層表面を観察すると粒子サイズは約 35 nm であった。ところで Cu 下地層は Sm-Co 層作製中に熱処理されることになる。そこで Ar 雰囲気中で熱処理温度を 300 °C、熱処理時間を 10 分間として熱処理を行うと、Cu 下地層表面の粒子サイズが約 270 nm になることがわかった。また Cu 下地層上に基板温度を 300 °C で作製した Sm-Co 層内を TEM を用いて観察した。これを Fig. 9 に示す。制限視野電子線回折では主に c 軸が膜面に対して垂直であることを示す (100) と (110) 面からのデバイリングが観察された。しかしながら同時に他の面からのデバイリングも観察されたので Sm-Co 層内の配向度を向上させる必要があることがわかった。また TEM 写真より平均粒子サイズを測定すると約 46 nm であった。これは磁気記録媒体として用いるには大きすぎるので、第三元素の添加などによる微細化が必要であることがわかった。

4. まとめ

本研究では垂直磁気異方性をもつ Sm-Co 薄膜を作製するため Cu 下地層および Sm-Co 層作製時の基板温度依存性について検討を行った。この結果、(111) 面に優先配向し

Fig. 9 Plane-view TEM image and selected-area electron diffraction pattern of Sm-Co layer.

た Cu 下地層上に基板温度を 300 °C から 325 °C の範囲で Sm-Co 層を積層すると、XRD ダイアグラムでは SmCo₅ (002) 面の回折線が観察され垂直方向の保磁力が約 10 kOe になった。このとき面内方向のヒステリシス曲線が閉じなかったため Sm-Co 層の配向度を向上させる必要があり、このため十分に (111) 面へ配向した Cu 下地層を作製しなければならないことがわかった。

謝辞

本研究の一部は日本学術振興会の科研費 (14350162 および 14750259) の助成を得た。

文 献

- 1) K. Stoev, F. Liu, Y. Chen, X. Dang, P. Luo, J. Chen, K. Kung, M. Lederman, M. Re, G. Choe, and M. Zheng: Abs. 47th MMM Conf., AG-08, p. 35, (2002).
- 2) D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J.-U. Thiele, and M. F. Doerner: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, p. 10 (2000).
- 3) T. Nagashima: Handbook of Magnetism, S. Chikazumi, K. Ota, K. Adachi, N. Tsuya, and Y. Ishikawa eds., p. 1121 (Asakura, Tokyo, 1982). (in Japanese)
- 4) E. M. T. Velu and D. N. Lambeth: *J. Appl. Phys.*, **69**, 5175 (1991).
- 5) Y. Liu, B. W. Robertson, Z. S. Shan, S. Malhotra, M. J. Yu, S. K. Renukunta, S. H. Liou, and D. J. Sellmyer: *IEEE Trans. Magn.*, **30**, 4035 (1994).
- 6) S. Takei, Y. Otagiri, A. Morisako, and M. Matsumoto: *J. Appl. Phys.*, **85**, 6145 (1999).
- 7) S. Takei, A. Morisako, and M. Matsumoto: *J. Appl. Phys.*, **93**, 7762 (2003).

2003 年 10 月 23 日受理, 2004 年 1 月 15 日採録