熱磁気記録した Tb-Fe 膜の透過電子顕微鏡観察

Transmission Electron Microscopy of Amorphous Tb-Fe Films after Thermo-Magnetic Recording

塚原園子・横山侑子・田中敏雄・国分明男

電子技術総合研究所, 茨城県新治郡桜村梅園 1-1-4 (〒305)

S. Tsukahara, Y. Yokoyama, T. Tanaka, and A. Kokubu

Electrotechnical Laboratory,

1-4, Umezono 1 chome, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki, 305

Amorphous Tb-Fe films were prepared on thin carbon film and glass substrates by RF sputtering method. The films were irradiated with pulsed Ar laser beam, the energy range of which was that commonly adopted for thermo-magnetic recording. Thermal effects were studied mainly by transmission electron microscopy.

The thermally influenced area depended largely on the film thickness over the range from 200 to 2000 Å. The structure of the irradiated areas changed from amorphous to crystalline, while magnetization of the corresponding areas turned from perpendicular to in-plane orientation. In a 500 Å Tb₃₀Fe₇₀ film on a carbon film substrate a circular area of 2.5 μm in diameter was crystallized by one 4 mW pulse of 1 μs. The damage was more evident in thinner films.

1. はじめに

希土類金属-遷移金属合金の非晶質薄膜を光熱磁気記録媒体として用いる試みが強力に進められている。光熱磁気記録を光ディスク記録と比較する時挙げられる特徴の一つは、同一媒体を繰り返し使用できる可逆性である。しかし、実用経験のない非晶質合金材料を、熱に対してはバルク状態より活性であることが従来より知られている薄膜状態で、熱的に動作させて使用するためには媒体材料の安定性の確認が必要であろう。

非晶質膜の構造と磁性の安定性を実験的に調べるために非晶質 Tb-Fe 膜をとりあげて、光熱磁気記録の実行条件に近い熱的入力によって膜に生じた変化を、透過電子顕微鏡観察を中心として報告する。なお、微視的観察が、一般に行われている光熱磁気記録にどこまで対応させられるかが実用的に重要であるので、可能な限り両者の比較を試みる。

2. 実験

2.1 膜の作製

非晶質 Tb-Fe 膜はすべて零バイアスの高周波スパッタリング法で作製した。下地には 0.8 mm 厚のガラスと、電子顕微鏡用の銅グリッドにあらかじめ張った厚さ 300~500 Å のカーボン膜を常に並べて用いた。

膜の作製条件は下記のとおりである。80 mmφ×5 mm の Fe 上に 25~100 mm²×2 mm の Tb チップを分散させた複合ターゲットを用いた。系は 3×10⁻⁷ torr に予備排気し、3.5×10⁻² torr の Ar ガス流中で高周波入力 180 W を印加した。膜の堆積速度は 140~190 Å/min であった。

200~2,000 Å の膜厚は堆積時間を変えて得た。膜組成は 23~30 at% Tb-Fe とした。いったん大気中でターゲットを交換し、厚さ約 100 Å の SiO₂ 膜で Tb-Fe 膜を被覆した。

2.2 測定・観察

膜厚は光の多重干渉法で、膜の組成は He イオンの背面散乱法で測定した。ガラス上の Tb-Fe 膜の垂直磁化状態と保磁力は極カー効果ヒステリシスループで調べた。あらかじめ正の垂直磁場 16 kOe よりの残留状態にした膜に、光チョッパーでパルス化した Ar レーザー光を照射して記録を行った。この時 95 Oe の負の外部垂直磁場を印加し、試料は 0.28 mm/s の速さで一方向に移動させた。レーザー光のパルス幅は 1 μs から 100 μs, 入力は 1 mW から 36 mW の間で変化させた。記録部分の状態と寸法は Xe ランプ使用の偏光顕微鏡で観測した。

カーボン膜上の Tb-Fe 膜は、いったん 200 kV の透過電子顕微鏡で膜構造と磁区を観察した。試料は銅グリ

ッドごとガラス板に貼り付けてレーザー光照射を行った後、再び電顕観察を行った。電顕用試料は径 100~150 μm の穴に合計でも厚さ 2,500 $\text{\AA}$ 以下の膜が張られた構造であって、平面性がよくない。したがって、入射レーザー光は必ずしも膜に垂直ではなく、実効の入力は表記の値以下となる。

3. 結果と検討

3.1 ガラス板上の Tb-Fe 膜

ガラス上の Tb-Fe 膜は径 1 μm までの記録が可能な垂直磁化膜になった。

過剰なレーザー光入力によって磁化反転部の中央に生じた損傷の著しいものは偏光顕微鏡で識別された。しかし、Tb-Fe 膜の小さいカー回転角と顕微鏡の分解能があいまって、記録部分の寸法は約 1 μm まで確認できても損傷の有無が判別できない場合の方が多い。例えば、パルス幅 100 μs 、入力 3 mW で厚さ 450 $\text{\AA}$ の Tb₂₄Fe₇₆ 膜を照射した部分の中央部に周囲の記録部分に対して微妙なコントラストの変化がうかがえるが細部は不明であ

る。

3.2 カーボン薄膜上の Tb-Fe 膜の透過電顕像

一般に非晶質膜であると一括して呼ばれている合金膜には、電子回折像で区別すると、Fig. 1a のように幅広いハロー環が一つの完全な非晶質膜から、Fig. 1b のようにハロー環が二重になった非晶質膜までが含まれる。光照射によって前者から後者へ移行することを本論中では非晶質構造の変化ということにする。

カーボン膜上の Tb-Fe 膜に誘起される垂直異方性は膜を垂直磁化させるには不足の場合が多かった。得られた垂直磁化膜の保磁力は小さく、角型性が悪かった。零バイアスのスパッタリング法で作製した Tb-Fe 膜の垂直磁化特性は、ガラスなどの下地に固定された状態が大きい役割を果たしていることが推察される。

ここではレーザー光照射による膜構造変化の膜厚依存性に注目するので、垂直磁化膜が得られない薄い膜の場合は、面内磁化膜を用いた。

一定パルス幅 1 μs で入力を変えた光で照射した 3 種類の厚さの Tb₃₀Fe₇₀ 膜の磁区像を Fig. 2 に示す。いずれでも照射部分は周囲から区別できる。320 $\text{\AA}$ 膜は照射前から面内磁化膜であったが、記録部分は膜を消磁した後も周囲と異なる磁区を形成した。照射前には垂直磁化膜であった 500 $\text{\AA}$ および 700 $\text{\AA}$ の膜は、照射部分の熱的变化に加えて、損傷による変形と面内応用分布の変化によって、広い面積で面内磁化成分と面内異方性が現れた。各照射部中央の強いコントラストはこの部分が面内磁化膜になったことを意味する。どの膜においても、1 μs 、1 mW の照射部は周囲と異なる磁区として認められなかった。

Fig. 2 で磁区観察をした 3 種類の膜について、1 μs 、5 mW 照射による記録部分の正焦点像を Fig. 3 に示

Fig. 1 Two types of halo patterns by electron diffraction due to different amorphous structure in Tb₂₄Fe₇₆ films.

Fig. 2 Transmission Lorentz micrographs of irradiated areas by 1 μs pulses.

Fig. 3 Focused electron micrographs of irradiated areas by $1\mu\text{s}$ laser pulses of 5 mW.

す。厚さ 320 Å と 500 Å の膜では照射の中心部が結晶化している。750 Å の膜では被覆の SiO_2 膜が破れて径 1,000 Å 以下の結晶になっている。電子回折像で調べると、この部分の磁性膜は周囲から構造が変化した非晶質であった。以上の結果は、膜厚が小さい時膜構造の熱的変化が著しいことを定性的に示すものである。

照射のエネルギーはパルス幅と電力の積で決まるが、両者の熱的効果が異なることを例を用いて示す。厚さ 500 Å の $\text{Tb}_{30}\text{Fe}_{70}$ 膜を $1\mu\text{s}$, 10 mW で照射した部分は、Fig. 4 に示すように中央部の径約 $5\mu\text{m}$ が結晶化し、その外周の幅約 $2\mu\text{m}$ の部分では非晶質の構造が変化した。一方、膜厚 450 Å の $\text{Tb}_{29}\text{Fe}_{71}$ 膜を $100\mu\text{s}$ パルス光で照射した時、1 mW では構造と磁区の変化の痕跡は検出できなかった。入力を 2 mW に増すと径約 $3\mu\text{m}$ 部分に非晶質構造の変化と磁区の不可逆的な変化とが観察された。入力が 5 mW の場合は Fig. 5 に示すように、中央の径約 $9\mu\text{m}$ 部分が結晶化し、その外側の幅約 $10\sim 15\mu\text{m}$ の部分で非晶質構造が変化していた。Fig. 5a と同一部分の磁区像を 5b に示す。ここで非晶質構造が変化した範囲の磁区構造が、熱的影響を受けていない垂直磁区部分と矢印のような境界を成して異なることがみられる。上述のガラス上膜の照射部分中央にみられるコントラストの異常は、照射条件を比べてみると、このような非晶質構造の変化または結晶化の初期に相当する現象であろうと解釈される。

ほぼ同一厚さの膜の例として Fig. 3b と 5a を比べるとパルス電力が一定であれば、パルス幅が大きい時に照射部分はより高く昇温し、昇温面積がより広いことは明らかである。また、以上の結果より照射エネルギーを一定として比較するなら、パルスの幅より入力の方が強い熱的効果に有効であることがわかる。

3.3 観察結果のまとめと検討

カーボン膜上の Tb-Fe 膜において、結晶化部分およ

Fig. 4 A focused electron micrograph of irradiated area by a laser pulse.

Fig. 5 A focused electron micrograph of an irradiated area, the Lorentz micrograph and the electron diffraction patterns of the marked parts, 1 and 2, and an unirradiated part 3.

び穴があいた部分の径を照射入力で整理した。Fig. 6 にその一例を示す。ただし、これらの熱的影響の範囲を求めるにあたっては、2.2 に述べた理由で同一照射条件で各部分の寸法は必ずしも同一にならなっていないので同一条件で照射した数 10 部分の中での最大値を示す場合に、実効的な入力が表記の値に等しいものとした。図面中で横軸に対して曲線を外挿すると、そのような効果を生じるに必要な照射入力の最小値が見積もれる。例えば膜厚 750 Å の膜は 6 mW 以下の $1\mu\text{s}$ パルスでは結晶化しないと推定される。

パルス幅 $1\mu\text{s}$ の場合についてこの最小入力と膜厚の関係を図 7 に示す。膜厚の減少とともに構造変化が起こりやすく、特に $700\sim 800\text{Å}$ 以下では熱に対する感

Fig. 6 Laser power dependence of thermally influenced areas for films on carbon film substrates.

度が高いことがわかる。結晶化の境界線以下の照射入力であっても、熱的に生じた非晶質構造変化の領域がある。非晶質構造変化の境界線を示すためには、照射前後の非晶質構造を定量的に定義したより精密な実験が必要である。ここでは斜線でその存在を示すに留める。また、希土類金属-鉄合金の非晶質膜を 200 kV の電頭で観察できる膜厚は約 1,000 Å が上限であった。

以上の結果がガラス上の膜にどこまで適用できるかは重要な問題である。過剰な入力によってガラス板およびカーボン膜上の Tb-Fe 膜にあいた穴の径を比較するとパルス幅が大きい時は両者はほぼ等しかったが、パルス幅の小さい時にはガラス板上膜の穴の方がより小さかった。これを下地による膜の温度上昇範囲の異同を示す一つと目安と考えると、照射条件によっては、光学顕微鏡で検知し難い構造変化がガラス上膜でも生じている可能性を否定できない。Fig. 6 の厚さ 750 Å の膜で一例を示すように、照射入力対ガラス板上の膜に熱磁気記録された部分の径、および照射入力対カーボン膜上の膜で結晶化した部分の径、の 2 曲線を同一座標上に並べた時、前者が後者より上になる照射入力範囲がある。各膜厚についてこのような領域の照射条件を求めて、実際の記録はその範囲で行うのが安全な方法であると考えられる。

照射条件を一定として比べると、ガラス上膜の記録部分の径は膜厚が大きいほど小さくなったが、この傾向は実験した最大値 2,000 Å まで続いた。カーボン膜上膜の結晶化部分の径の膜厚依存は Fig. 6 のとおりである。以前の実験²⁾では 0.6~3 μm 厚の Dy-Fe 膜では記録マージンの膜厚依存がみられなかったことを考えると、Dy-Fe 膜と Tb-Fe 膜の熱伝導が違わないと仮定すれば、非晶質 Tb-Fe 膜の熱的感度の厚さ依存の上限

Fig. 7 Film thickness dependence of critical laser power for damages.

は 2,000 Å と 6,000 Å の間にあることになる。

以上で、普通の光熱磁気記録に用いられる程度のエネルギーのレーザー光パルスをただ 1 回照射しただけで非晶質膜の構造と磁区が不可逆的变化をする場合があることを示した。特に膜厚が小さい時に熱的感度が高いことは実用的見地から注意すべきことである。下地の種類や層状の膜構造の組合せによって、限界エネルギーをどこまで大きくできるか、また変質なしに記録可能なパルス幅と振幅の組合せ条件はどうか、記録・消去を繰り返した時の変化、さらに膜の非晶質状態が後の変化にどこまで影響するかなど、安定な記録媒体を保証するために今後検討されるべく残された課題は多い。

5. 結 論

2,000 Å 以下の膜厚範囲で、膜厚が小さいほど非晶質の Tb-Fe 膜の熱的感度は高くなった。これはガラス下地上の膜では記録部分の径として、カーボン膜下地上の膜では構造および磁区変化部分の径として観測した。

カーボン膜上の厚さ 500 Å の Tb-Fe 膜は 1 μs の Ar レーザーパルスでは 3 mW 以上の入力で結晶化した。薄い非晶質膜の光熱磁気記録への応用に際しては過剰な温度上昇を避けるための構造を考える必要がある。

文 献

- 1) 田中, 国分, 黒沢: 電絶研彙報, **41**, 502 (1977).
- 2) 塚原, 片山, 田中, 国分, 対馬: 第 1 回日本応用磁気学会研究会資料, **9** (1979).

1983 年 12 月 13 日受理, 1984 年 2 月 14 日採録