スパッタリングプロセス中の不純物制御による 機能性磁性薄膜の微細組織制御*

高橋 研^{*1}・角田 匡清^{*1}・D.D. ジャヤプラウィラ^{*1}

(受理2000年7月5日, 掲載決定2000年9月2日)

Realization of Desirable Microstructure in Functional Magnetic
Thin Films by Controlling the Impurities in Sputtering Process

Migaku TAKAHASHI^{*1}, Masakiyo TSUNODA^{*1} and David D. DJAYAPRAWIRA^{*1}

Department of Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University,
Aoba-yama 05, Sendai 980-8579

(Received July 5, 2000, Accepted September 2, 2000)

1. はじめに

磁気ハードディスク装置の高密度化・高性能化は、パーソナルコンピュータの加速的な普及、ならびに、昨今におけるハードディスク搭載の録画装置等、情報家電製品の開発を促し、高度情報化社会進展の大きな原動力の一つとなっている。ハードディスク装置の記録密度は、驚嘆すべき勢いで向上し、最近では年率100%程度のスピードで伸び続けている。このような超高密度磁気記録に対応するために、薄膜記録媒体ならびに再生用磁気ヘッドに用いられるGMR(巨大磁気抵抗効果)薄膜には、その性能の向上が、材料物性上極限に近いところまで要求されてきている。これら機能性磁性薄膜の特性は、結晶粒界の構造や極薄磁性層間での磁氣的相互作用、ならびに薄膜表面や異種金属間の積層界面での電子散乱現象等により大きく左右されるため、性能向上を実現するためには、薄膜微細組織の高度制御技術が必要不可欠である。図1に示すように、磁気記録媒体ならびにGMR薄膜は、単一材料による成膜ではなく非常に薄い異なる材質からなる多数の層の薄膜の組み合わせ構造をとり、一般にスパッタリング法により作製される。この

ため、薄膜が作製されるベースとなる真空の質と磁氣的特性との相関性を、薄膜微細組織の変化を通じて理解することが、極めて重要である。本解説では、その典型例として、図1に示した3種類の磁性薄膜(①長手媒体記録層用CoCrPt系合金膜、②再生ヘッドGMR薄膜用Co/Cu/Co多層膜、③同Ni-Fe/Mn-Ir積層膜)の場合について、具体的に説明する。

薄膜媒体(ハードディスク、磁気テープ等)において必要とされる、媒体の高保磁力化および低ノイズ化を実現するためには、図2(a)に示すように、記録層中の各磁性結晶粒が非磁性粒界層で包みこまれ、磁氣的孤立性が高められた組織を維持しながら、更なる磁性結晶粒の微細化を通して、磁気クラスターの微細化を図ることが肝要である¹⁾。また、巨大磁気抵抗(GMR)効果を利用した磁気再生ヘッドにおいては、再生感度の向上ならびに再生ノイズの低減を図るために、図2(b)に示すように、強磁性層/非磁性層積層界面のマクロな平坦化と原子レベルでのミキシング状態の実現²⁾、ならびに強磁性層/反強磁性層積層界面での清浄界面の確保³⁾、さらに欠陥・結晶粒界等の低減によるスピン非依存性散乱の減少と熱安定性の確保が必要となる。

このような機能性磁性薄膜の性能向上を実現するための薄膜微細組織制御の新たな一手法として、筆者らはこれまでに、超清浄雰囲気下でのスパッタリングプロセス

* 平成12年3月29日 春季第47回応用物理学関係連合講演会で講演

^{*1} 東北大学大学院工学研究科電子工学専攻(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉05)

図1 ハードディスクに用いられる機能性磁性薄膜 (積層構造, 材料は一例)

を提案してきている⁴⁾。本解説では、超清浄プロセスを基本インフラとし、そのプロセス不純物に対する制御性の高さを利用した新たな成膜プロセスを導入することによって、機能性磁性薄膜に求められる理想的な微細組織が実現可能となることを述べる。具体的には、超高真空のバックグラウンドの上に、各薄膜層形成毎に適切な不純物制御を行うことによって、磁気特性の優れた薄膜形成が可能となった。CoCrPt 系合金記録媒体の場合には、小分散・微細結晶粒子を成長させるために、その下地としての WCr シード作製において、不純物ガスの吸脱着制御が望ましい。Co/Cu/Co の GMR 膜では、大きな磁気抵抗変化比 (MR 比) 得るために、成膜中の酸素あるいは水を $10^{-6} \sim 10^{-5}$ Pa レベルの適切な分圧に設定するのが望ましい。Ni-Fe/Mn-Ir のパイアス磁界発生膜では、大きな交換磁気異方性を得るために、 10^{-9} Pa レベルの成膜のバックグラウンドが望ましい。以下には、これらについて具体的に述べる。

2. 薄膜磁気記録媒体

長手磁気記録媒体のノイズを低減するためには、磁氣的に孤立した強磁性結晶粒子の粒径微細化が有効である^{1,5)}。しかしながら、粒径の微細化に伴う一々の結晶

図2 長手記録媒体(a)ならびにスピนวルブ GMR 薄膜(b)としての理想的な組織の概略図

粒の磁気異方性エネルギーの低下は、熱磁気緩和現象による磁化情報の消失を引き起こす。そのため、平均粒径の微細化と同時に粒径分布を狭鋭化して、熱磁気緩和時間が短い、過度に微細化した粒子を混在させないことが重要となる。従来、粒径微細化の手法として、磁性層の下地となる Cr 層の膜厚の低減が行われてきたが、それに伴う結晶配向性の低下と媒体保磁力の低下が問題となっていた⁶⁾。本項ではこれら問題を解決するための新しいプロセス技術として、高融点金属シード層と不純物吸脱着を利用した薄膜組織制御技術^{7,8)}について述べる。本手法の基本的なコンセプトは、極薄膜厚の高融点金属シード層を組織制御膜として用い、均一分散した島状組織を有するシード層上に下地 Cr 合金層/磁性合金層を形成しようとするものであり、基板上への不純物吸脱着によって、島状組織の核生成密度を変化させることを意図している。

成膜は、超清浄プロセス対応 DC マグネトロンスパッタ装置⁷⁾で行い、超平滑 NiP/Al 基板上に、WCr 合金シード層、Cr 合金下地層、CoCrPt 系合金磁性層の順に積層した。プロセスガスには、ユースポイントにおける不純物濃度が 1 ppb 以下の超高純度 Ar ガス (UC-Ar) を用いた⁷⁾。基板上に吸着している不純物は、主に大気中から真空チャンバー内に、基板に吸着したまま持ち込まれたものであり、UC-Ar を用いた逆スパッタ法 (ドライエッチング) により除去した。図3に示すように、シード層形成とドライエッチングの順序を変化させ、吸着不純物が媒体微細組織に及ぼす影響について検討し

図3 基板吸着不純物と島状シード層を利用した薄膜媒体の作製手順の模式図

た。

図4に、シード層厚を0 (Media A) ならびに0.5 nm (Media B, C) とし、①シード層、②下地層ならびに③磁性層の組成をそれぞれ① $W_{54}Cr_{46}$ 、② Cr、③ $Co_{64}Cr_{15}Ta_{3.5}Ni_{12.5}Pt_5$ として作製した薄膜媒体の透過電子顕微鏡 (TEM) 像を示す。図5には、図4に示した TEM 像の解析によって求めた磁性結晶粒径の分布を示す。比較の為に市販の 6 Gb/in² 対応媒体の粒径分布をあわせて示した。Media B, C は、それぞれ図3における成膜プロセス B, C に対応し、シード層形成とドライエッチングの順序が異なる。

シード層を形成していない Media A の平均結晶粒径 10.8 nm に比較してシード層を形成した Media B ならびに C の平均結晶粒径は、9.7 nm ならびに 7.6 nm と小さくなっていることが判る。特に、Media C の結晶粒径の減少は著しく、粒径の分散も極めて小さい。Media A に対して Media B, C の粒径が減少したことは、 $W_{54}Cr_{46}$ シード層の形成が薄膜媒体の微細組織制御に有効であることを示し、さらに、Media B と C との差異は、島状のシード層の基板上での分散状態が、吸着不純物の存在によって影響を受けることを示し、不純物の存在によって島状のシード層の核形成密度が増大したことを意味している。

図6には、プロセス C を用いて、①シード層、②下地層ならびに③磁性層組成をそれぞれ① $W_{50}Cr_{50}$ 、② $Cr_{90}Mo_{10}$ 、③ $Co_{66}Cr_{24}Pt_8B_2$ として、シード層厚を変化させて作製した薄膜媒体の磁気特性 (H_k^{grain} , GD_{act}/GD) ならびに媒体ノイズの指標として、41.7 kfc i で測定した孤立信号出力と 500 kfc i で測定した媒体ノイズの比 (Signal to Noise ratio: S/N) を示す⁸⁾。シード層厚 0 は、プ

図4 Cr/CoCrTaNiPt 媒体の TEM 像。WCr シード層厚 0 (Media A), 0.5 nm (Media B, C)。

図5 TEM 像から求めた Cr/CoCrTaNiPt 媒体の結晶粒径分布。

ロセス A に相当する。 H_k^{grain} は、磁性結晶粒の真性的な異方性磁界であり、この値の低下は磁性結晶粒内部の欠陥増加等、結晶性の低下を意味する⁴⁾。 GD_{act}/GD は、熱磁気緩和過程における活性化粒径と物理粒径との比で

図6 プロセスCで作製したCrMo/CoCrPtB媒体の異方性磁界 (H_k^{grain}), 規格化活性化粒径 (GD_{act}/GD), および媒体ノイズ (S/N) のWCrシード層厚依存性。

あり, この値の増大は, 結晶粒の磁氣的孤立性の低下, すなわち結晶粒界における非磁性Cr偏析層の不完全形成を意味する⁹⁾。

H_k^{grain} ならびに GD_{act}/GD は, シード層厚に対してはほぼ一定の値を示し, シード層形成による結晶粒径の微細化に際して, 磁性粒の結晶性ならびに結晶粒界の非磁性偏析層が, 良く保たれていることを示している。一方 S/N 比には, シード層厚0の場合に比較して, シード層厚0.5 nm~1.0 nmの範囲では, およそ2 dBの向上が見られ, 磁性粒径の微細化によって媒体ノイズの低減が実現できたことを示している。

大気中から成膜装置に導入されたNiP/Al基板の表面には, 水分を始め, 酸素, 炭化水素などの不純物が吸着していると考えられる。このような不純物は, Cr合金下地層ならびに磁性層内に拡散して粒界非磁性偏析層の形成を妨げ, 媒体の磁気特性を劣化させるため, 従来排除されてきた¹⁰⁾。しかしながら, プロセスCに示すように, 例えばシード層の組織制御のみにピンポイント的にこの様な不純物ガスを用いることで極めて有用なプロセス制御が可能となることが判った。

3. 磁気再生ヘッド用薄膜

スピントラップ型GMR薄膜¹¹⁾は基本的に4層から成り, 非磁性層(Cu層)を挟んで形成された2枚の強磁性層の一方に, 反強磁性層が積層されている(図2b)。反強磁性層が積層されていない側の強磁性層(フリー層)は記録信号の検出を担い, 媒体からの漏れ磁束により磁

図7 Co/Cu多層膜の磁気抵抗変化率(MR比)と飽和抵抗率(ρ_s)の成膜前チャンバー圧力(P_b)依存性。

化回転を起こす。また, 反強磁性層を積層した強磁性層(ピン層)の磁化は, 常に一方方向に固定され, フリー層の磁化反転に際して, フリー層とピン層の磁化方向に相対的な角度差を生ぜしめる。両層の磁化の相対角度の変化は, 伝導電子のスピン依存散乱を生じ²⁾, スピントラップGMR薄膜素子の電気抵抗の変化として記録信号の再生が行われる¹²⁾。このように, スピントラップGMR薄膜を機能させる為には, 磁化の相対角度変化による強磁性層/非磁性層界面における伝導電子のスピン依存散乱と, ピン層の磁化を一方方向に固定するための強磁性層/反強磁性層界面における交換磁気異方性¹³⁾が, 二つの重要な物理的因子である。そこで, 1)Co/Cu多層膜¹⁴⁾を例にとり, 成膜雰囲気中の不純物量を変化させた雰囲気中で多層膜を作製し, 不純物が薄膜の微細組織変化を介して, 強磁性層/非磁性層界面におけるスピン依存散乱に及ぼす影響を検討してみた¹⁵⁾。さらに, 2)強磁性層/反強磁性層積層膜の交換磁気異方性に及ぼす成膜雰囲気中の残留不純物の影響を, 積層膜の微細構造, 特に反強磁性粒子の結晶粒径の観点から検討を行った。

成膜には, 極高真空対応マルチスパッタ装置¹⁶⁾を用い, UC-Arをプロセスガスとして用いた。成膜時のArガス圧は特に断らない限りおよそ0.1 Paである。成膜雰囲気中の残留不純物濃度は, UC-Ar導入前のチャンパーの圧力(P_b)を大気解放後の排気時間を調整することによって行った。基板には熱酸化膜付Siウエハを用いた。

3.1 Co/Cu 多層膜の GMR 効果に及ぼす不純物の影響

図 7 に, Sub./ (Co 1 nm/Cu 0.9~1 nm)₃₀/Cu 2 nm の積層構造を有する多層膜の磁気抵抗変化率 (MR 比) と, 飽和抵抗率 (ρ_s) を成膜前チャンパー圧力 (P_0) の関数として示す. 測定時の最大印加磁界は 1 MA/m とし, 印加方向は, 膜面内で測定電流と直交する方向とした.

MR 比は, 零印加磁界における抵抗率 (ρ_0) を用いて, $(\rho_0 - \rho_s) / \rho_s$ と定義した. ρ_s は, 最大印加磁界下での抵抗率であり, このとき各 Co 層の磁化は, 印加磁界方向へ飽和していることから, スピンに依存しない電子散乱の大きさの指標となる. 一方, 磁気抵抗変化 ($\rho_0 - \rho_s \equiv \Delta\rho$) は, 零印加磁界における隣接磁性層磁化の配列状態によって変化し, 完全な反平行配列が実現しているときに最大となる²⁾. したがって, MR 比は, 多層膜中の強磁性層/非磁性層界面における伝導電子のスピン依存散乱と, スピン非依存散乱の大きさの割合を示し, スピンバルブ型磁気再生ヘッドの再生感度を増すためには, その増大が極めて重要な要因となる.

図 7 において, P_0 を 4×10^{-5} Pa から 1×10^{-5} Pa まで低下させると, MR 比は 39% から 48% まで増大する. しかし, P_0 を 4×10^{-6} Pa まで下げ, わずかに成膜雰囲気中の残留不純物ガスを減少させるだけで, MR 比は 14% まで急激に減少することが判る. 更に P_0 を低下させ 1×10^{-8} Pa とすると, GMR 効果はほとんど観測されず, MR 比は 1% 程度となる. 一方 ρ_s は, $P_0 = 1 \times 10^{-8}$ Pa ~ 4×10^{-5} Pa の範囲で, ほとんど一定値 $22 \mu\Omega\text{cm}$ を示しており, MR 比の P_0 に対する変化が, $\Delta\rho$ の変化によるものであることが判る.

$\Delta\rho$ の減少は, 零磁界における隣接磁性層磁化の反平行配列の割合が減少していることに対応する. 一般に, Co/Cu 多層膜の場合, 隣接 Co 層同士には, RKKY 相互作用もしくは量子井戸効果による磁氣的層間相互作用が, 両層を隔てる非磁性 (Cu) 層厚の関数として減衰振動的に働き, $d_{\text{Cu}} \sim 0.9$ nm では, 零磁界において隣接磁性層磁化を反平行に配列させる様に作用する²⁾. このことを考慮すると, 図 7 の 1×10^{-5} Pa 以下の領域における MR 比 ($\Delta\rho$) の変化は, 成膜雰囲気中の残留不純物の低減によって, 上記の層間相互作用に反して隣接磁性層磁化の反平行配列が阻害されたことを意味している.

MR 比に影響を及ぼした成膜雰囲気中の残留不純物を特定するために, 一旦成膜装置を超高真空 (1×10^{-8} Pa 以下) まで排気した後所定の分圧まで, 酸素, 水分, 窒素を導入し, その上で UC-Ar を用いて先と同様

図 8 不純物添加雰囲気中で作製した Co/Cu 多層膜の磁気抵抗変化率 (MR 比) と飽和抵抗率 (ρ_s) の不純物添加分圧依存性.

の膜構成を有する Co/Cu 多層膜を作製した¹⁷⁾.

図 8 に, 作製した多層膜の MR 比ならびに ρ_s の添加不純物分圧依存性を示す. 酸素ガスを添加した場合の MR 比は, 1×10^{-7} Pa の分圧では 1% 程度と, 酸素を添加しない場合とほとんど変わらない. ところが, 酸素分圧 1×10^{-6} Pa 以上では, MR 比が急激に上昇し, 7×10^{-6} Pa では, 50% 以上にまで増大する. 更に酸素分圧を増大させると, 逆に MR 比は減少し始め, 1×10^{-4} Pa において, GMR 効果は消失した. すなわち, 酸素分圧 1×10^{-6} Pa ~ 2×10^{-5} Pa の非常に狭い範囲でのみ GMR 効果が観測されることが明らかとなった. 水分を添加した場合は, MR 比が観測される分圧範囲が, 3×10^{-6} Pa ~ 1×10^{-4} Pa となる以外は, 酸素添加の場合とほぼ同様の变化を示した. 一方で, 窒素ガスを添加した場合の MR 比は, 1×10^{-5} Pa までの分圧では, 不純物を添加しない場合とほとんど変化がなく, GMR 効果を示さないことが判った.

以上の結果より, 成膜雰囲気中の残留不純物として, 酸素及び水分が Co/Cu 多層膜の GMR 効果に多大な影響を及ぼしていることが明らかとなった. 更に, 酸素および水分添加の場合の結果を比較すると, MR 比が極大値を示す添加分圧が, おおよそ 2 倍異なっている. このことから, 多層膜の GMR 効果に影響を及ぼす不純物因子は, プラズマ中で解離した酸素原子 (イオンまたはラジカル) であることが示唆される.

一方, 各不純物ガスを添加した場合の ρ_s の変化は,

図9 不純物酸素添加雰囲気中で作製した Co/Cu 多層膜の表面の AFM 像と、AFM 像から求めた表面粗さ (R_a)。P は添加酸素分圧。

どの不純物に対しても、およそ 1×10^{-5} Pa までの分圧では、ほぼ一定値 $22 \mu\Omega\text{cm}$ を示す。しかし、 1×10^{-5} Pa 以上の添加の場合には抵抗率の上昇が見られ、特に酸素分圧 1×10^{-4} Pa では、2 倍以上の増大が認められる。このことは、過剰の不純物添加雰囲気中で作製した Co/Cu 多層膜においては、多層膜の酸化が進行していることを意味し、添加不純物分圧が高い領域での、分圧増大に伴う MR 比の減少は、多層膜の酸化によるものと推察される。一方、酸素ならびに水分添加によって MR 比が極大値を示した分圧以下の範囲においては、 ρ_s の変化はほとんどなく、この範囲における添加不純物分圧の低下に伴う MR の急激な低下が $\Delta\rho$ の変化によるものであり、先に述べたように、零印加磁界での隣接磁性層磁化の反平行配列の割合が低下していることが判る。このような、Cu 層を通しての磁性層間相互作用に関係した、隣接磁性層磁化の反平行配列の阻害原因を調べるために、多層膜の積層構造の平坦性を、表面の AFM 観察によって評価してみた。

図9には、酸素を添加して作製した Co/Cu 多層膜最表面の AFM 像を示す。添加分圧 (P) の増加に伴って、膜面内の結晶粒径に相当する凹凸の径が減少する。また、表面粗さ R_a も P の増大に伴って減少し、MR 比が極大を示した $P = 7 \times 10^{-6}$ Pa 以上では、 $P = 1 \times 10^{-6}$ Pa

図10 Ni-Fe/Mn-Ir 積層膜の一方向異方性定数 (J_k) の強磁性層厚 (d_F) ならびに反強磁性層厚 (d_{AF}) 依存性。P_b は成膜前チャンバ-圧力。

の場合に比較して、およそ半分となった。このことは、不純物酸素の存在によって、Co/Cu 多層膜の積層構造の平坦性が向上することを示している。このような積層構造の変化は、先に考察したように、解離した不純物酸素原子によって多層膜が部分的に酸化され、その結果として金属結晶粒子の三次元的成長が抑制されたことに起因していると考えられる。

次に、多層膜の積層構造の変化と磁気特性との相関について考える。多層膜の各層の膜厚は 1 nm 程度と極めて薄いため、積層構造の平坦性が劣化した場合、隣接磁性層同士の部分的な接触が起こり得る。磁性層の部分的接触は、直接交換相互作用を介して隣接磁性層磁化を平行配列させる。そう考えると、 $P = 7 \times 10^{-6}$ Pa 以下の領域においては、添加酸素分圧の低下に伴って、積層膜の平坦性が劣化し、磁性層の部分的接触の割合が増加したために、磁気抵抗変化 $\Delta\rho$ が減少したものと考えると説明がつく。

以上の例で見たように、成膜雰囲気中の不純物酸素は、金属多層膜の平坦性を向上させるために有効な添加元素であることが判った。

3.2 Ni-Fe/Mn-Ir 積層膜の交換磁気異方性に及ぼす残留不純物の影響¹⁸⁾

図10に、清浄性の異なる2つの雰囲気中で作製した4層膜 Sub./Ta 5 nm/Ni_{0.8}Fe_{0.2} d_F/Mn_{0.74}Ir_{0.26} d_{AF}/Ta 5 nm における一方向異方性定数、 $J_k (= M_s d_F H_{ex})$ の、強磁性層厚 (d_F) 依存性ならびに反強磁性層厚 (d_{AF}) 依存性を示す。飽和磁化 (M_s) ならびに交換結合磁界 (ループシフト磁界: H_{ex}) は、振動試料型磁力計 (VSM) で測定した磁化曲線から求めた。測定は室温で行った。一方向異方性定数の大きさは交換磁気異方性の強さであり、これが大きいほど、スピンバルブ膜のピン層磁化を強固に一方向に固定させることができ、外乱磁界に対し

図11 成膜前チャンバー圧力 (P_b) を変化させて作製した Ta/Ni-Fe/Mn-Ir/Ta 積層膜の断面 TEM 像. $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa (a), $P_b=4 \times 10^{-5}$ Pa (b).

ての耐性を増し、再生ノイズの低減に対しても重要な要素の一つである。

成膜前チャンバー圧力 (P_b) を 7×10^{-9} Pa ならびに 4×10^{-5} Pa と変化させることによって、成膜プロセス中の不純物濃度は約 2 桁変化する¹⁸⁾。また、四重極質量分析計を用いて残留ガス分析を行った結果、 $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa においては水素が、また、 $P_b=4 \times 10^{-5}$ Pa においては水分が残留ガスの主成分であることが判った¹⁹⁾。二次イオン質量分析計 (SIMS) による分析の結果、作製した積層膜中の不純物として、酸素 ($m/e=16$) の含有量が、 $P_b=4 \times 10^{-5}$ Pa で作製した膜では、 $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa で作製した場合のそれに比較して約一桁多いことが判った²⁰⁾。

図10において、 $P_b=4 \times 10^{-5}$ Pa で作製した積層膜に比較して、 $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa で作製した積層膜の J_k が、著しく大きくなっていることが判る。特に、極薄膜厚領域における Ni-Fe/Mn-Ir 積層膜の交換磁気異方性の大きさは、成膜雰囲気中の清浄化により顕著に増大することが判る。

図11は、 $d_F=5$ nm, $d_{AF}=10$ nm の 4 層積層膜の断面

TEM 像である。 $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa で作製した積層膜(a)において Ni-Fe ならびに Mn-Ir 結晶粒の粒径が、 $P_b=4 \times 10^{-5}$ Pa で作製した積層膜(b)のそれよりも大きいことが明らかである。また、 $P_b=7 \times 10^{-9}$ Pa で作製した積層膜では、fcc-(111) 結晶面が Ni-Fe 層の初期層から Mn-Ir 層の最上部まで、基板面に平行に積み重なっていることが明瞭に観察される。fcc-(111) 結晶面は、優先配向面であり、薄膜成長に際して、基板とのエピタキシャル成長性、吸着・酸化などの薄膜表面の改質等の付加的要素が存在しなければ、表面エネルギーの最も低い fcc-(111) 結晶面が基板面に対して配向する。従って、図11の結果は、成膜雰囲気中の残留不純物の排除によって、薄膜成長における核発生サイトが減少する、あるいは基板に到達したスパッタ粒子が不純物によって捕獲されることが無くなるために、その面内移動度が増大し、欠陥が少なく、且つ膜面内の粒径の大きな結晶粒が形成されたことを意味している。

図11(b)で見られる様な反強磁性粒子の結晶粒サイズの低下は、局所的なブロッキング温度の低下を招き、その結果として積層膜全体に働く一方向異方性定数を低下させる²¹⁾。従って、交換磁気異方性を示す強磁性層/反強磁性層積層膜の場合には、成膜雰囲気中の不純物を排除することによって、1)膜中に取り込まれる不純物が低減され、2)反強磁性結晶粒の面内成長が促進され、3) J_k の温度特性が改善される。以上の総合的な結果として、室温における積層膜の交換磁気異方性が増大されることが判った。

4. ま と め

機能性磁性薄膜の典型として、ハードディスク装置に用いられる、薄膜記録媒体、強磁性層/非磁性層多層膜、ならびに強磁性層/反強磁性層積層膜について、成膜雰囲気中の不純物の存否によって、結晶粒界や積層界面の薄膜微細構造は著しく変化することを述べた。このような微細構造の変化は、粒間ならびに層間の磁気相互作用に影響を与え、結果として薄膜デバイスの磁気特性そのものを左右する。したがって、所望の磁気特性を導出するための理想的な薄膜微細組織を実現するためには、これら従来不純物元素としてしか考えられていなかった酸素などのガス種の積極的利用も、重要なプロセス技術の一つである。真空チャンバーならびにプロセスガス中に残留する不純物を徹底的に排除した上で、有用な元素(ガス種)のみを、任意の時点・箇所に十分に制御して添加することにより、完全に制御された薄膜作製プロセスが実現できる。薄膜の極限までの微細組織制御が要求される超高密度磁気記録デバイス作製に対して、不純物

制御を含めた超清浄プロセスは極めて有用である。

〔文 献〕

- 1) 例えば, 高橋 研: 応用物理, **68** (1999) 185.
- 2) 例えば, 猪俣浩一郎: 応用物理, **63** (1994) 1198.
- 3) K. Uneyama, M. Tsunoda and M. Takahashi: IEEE Trans. Magn., **33** (1997) 3685.
- 4) 例えば, 高橋 研: 応用物理, **65** (1996) 1218.
- 5) M. Takahashi, A. Kikuchi and S. Kawakita: IEEE Trans. Magn., **33** (1997) 2938.
- 6) 菊地 暁, 中井淳一, 河北信也, 三ッ谷晴仁, 島津武仁, 高橋 研: 日本応用磁気学会学術講演概要集, 東京, 1995 (日本応用磁気学会, 東京, 1995), 409.
- 7) S. Yoshimura, D. D. Djayaprawira, T. K. Kong, Y. Masuda, H. Shoji and M. Takahashi: J. Appl. Phys., **87** (2000) 6860.
- 8) M. Takahashi, H. Shoji, D. D. Djayaprawira and S. Yoshimura: IEEE Trans. Magn., **36** (2000), in press.
- 9) S. Yoshimura, D. D. Djayaprawira, T. K. Kong, Y. Masuda, H. Shoji and M. Takahashi: IEEE Tran. Magn., **36** (2000), in press.
- 10) S. Kawakita, T. Sakurai, A. Kikuchi, T. Shimatsu and M. Takahashi: J. Magn. Magn. Mater., **155** (1996) 172.
- 11) B. Dieny, V. S. Sperious, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri: Phys. Rev. B, **43** (1991) 1297.
- 12) 例えば, 中田正文, 山田一彦: 固体物理, **32** (1997) 242.
- 13) R. D. Hempstead, S. Krongelb, D. A. Thompson: IEEE Trans. Magn., **MAG-14** (1978) 521.
- 14) D. H. Mosca, F. Petroff, A. Fert, P. A. Schroder, W. P. Pratt Jr and R. Laloe: J. Magn. Magn. Mater., **94** (1994) L1.
- 15) S. Miura, M. Tsunoda, T. Nagatsuka, S. Sugano and M. Takahashi: J. Appl. Phys., **85** (1999) 4463.
- 16) 高橋 研: まてりあ, **37** (1998) 789.
- 17) M. Takahashi, S. Miura and M. Tsunoda: Proc. Int. Symp. Nanoscale Magnetism and Transport, Sendai, Japan, 2000, (2000), 130.
- 18) 高橋 研, 角田匡清: 日本応用磁気学会誌, **23** (1999), 1841; M. Takahashi and M. Tsunoda: J. Magn. Magn. Mater., **209** (2000) 65.
- 19) M. Takahashi, M. Tsunoda and H. Shoji: Vacuum (2000), in press.
- 20) M. Tsunoda, K. Uneyama, T. Suzuki, K. Yagami and M. Takahashi: J. Appl. Phys., **85** (1999) 4919.
- 21) E. Fulcomer, S. H. Charap: J. Appl. Phys., **43** (1972) 4190.