

CoCrTa 垂直磁気記録媒体の磁化の熱擾乱と磁気特性

Effect of Thermal Agitation on the Magnetic Properties
of CoCrTa Perpendicular Recording Media

島津武仁, 駒込博泰, 村松孝一, 渡辺 功, 村岡裕明, 杉田 恒, 中村慶久

東北大学電気通信研究所, 〒980-8577 仙台市青葉区片平2丁目1番1号

T. Shimatsu, H. Komagome, K. Muramatsu, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Sugita, and Y. Nakamura

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

(1999年10月27日受理, 2000年1月25日採録)

The effect of thermal agitation of magnetization on the magnetic properties of CoCrTa/Ti perpendicular media was studied by using a pulse magnetometer. The values of the “intrinsic” remanence coercivity H_0 , obtained by subtracting the thermal agitation of magnetization, are several times larger than those of the remanence coercivity H_r measured experimentally at a field sweep rate of ~ 5 Oe/s. The value of H_0 gradually approaches H_k as the CoCrTa thickness decreases, and shows values larger than 90 % of H_k at thicknesses of less than 20 nm. This indicates the potential of perpendicular media to achieve H_r values equal to H_k . The activation volume gradually decreases as the thickness decreases, and is nearly the same as the mean grain volume at thicknesses of less than 30 nm. This suggests that magnetization reversal within the grains is uniform at thicknesses of less than 30 nm, even though the grains have an elongated shape (30 nm $\times$ 9.5² nm² at 30 nm thickness, for instance). This will be another advantage of perpendicular media in resisting thermal agitation of magnetization.

Key words: perpendicular recording media, CoCrTa, remanence coercivity, pulse magnetometer, magnetic anisotropy, thermal agitation, activation volume

1. はじめに

垂直二層膜媒体における記録分解能の向上,あるいは、オーバーライト特性の改善などのためには、膜厚の低減が必要である¹⁾。しかし、垂直媒体の利点である高出力あるいは熱安定性の維持といった観点からは膜厚を厚く維持することが必要であるため、その高密度化にあたっては適切な膜厚の設定が重要である。

一方、長手媒体と比較した垂直媒体の利点の一つは、残留保磁力(保磁力)を理論的には異方性磁界 H_k と同程度まで増加できることである²⁾。しかし、膜厚を低下させると一般的に保磁力等の磁気特性が低下してしまうため、垂直媒体の高いポテンシャルが引き出せない原因を、構造的要因と熱擾乱の影響に分けて議論することが重要となる。

また、垂直媒体は、低ノイズ化のために面内方向の粒径を小

さくしても、膜厚方向で粒子の大きさを維持できるため熱安定性に優れると考えられるが、粒子形状が長すぎると粒子内部でインコヒーレントな磁化反転が生じ^{3),4)}、熱的な安定性が保たれない可能性がある。そのため、熱的活性化体積と膜厚の関係を明確にしていく必要がある。

そこで今回は、Ti シード層を用いた CoCrTa/Ti 垂直磁気記録媒体の、磁気特性の膜厚依存性について検討を行い、これらの媒体の磁化機構と構造ならびに磁化の熱擾乱との関係について考察を行った。

2. 実験方法

試料は、100 nm の NiP 薄膜を製膜した 2.5 インチ ϕ ガラスディスク基板上に、UHV の DC マグネトロンスパッタ法により作製した。記録層の組成は $\text{Co}_{77}\text{Cr}_{19}\text{Ta}_4$ (以下 CoCrTa と省略)とし、膜厚を 15~50 nm の範囲で変化させた。シード層として Ti 膜を用い、その膜厚は 5 nm 一定とした。Ti ならびに CoCrTa 膜の製膜基板温度は 200 °C 一定とした。

磁化曲線の計測は、VSM により行った。10⁸ Oe/s 台の磁界変化速度における残留保磁力の測定は、パルス磁界を用いた VSM (PMVSM01, ハヤマ)を用いて行った。回転ヒステリシス損失ならびに垂直磁気異方性の大きさは、トルク磁力計を用いて、磁気トルクの印加磁界依存性を測定して評価した。

3. 実験結果及び考察

3.1 構造ならびに磁気異方性

Fig.1 には、CoCrTa/Ti 垂直媒体の CoCrTa 膜厚に対する X 線回折パターンの変化を、また、Fig.2 には、CoCrTa(50 nm)/Ti 媒体の平面 TEM 像を示した。5 nm の Ti シード層を用いることで c 軸の優れた垂直配向性が導出され、その結果、大きな垂直磁気異方性の導出ならびに角型比の向上などに結びついている⁵⁻⁷⁾。Fig.1 に示した X 線回折結果から、膜厚を低下した場合でも、CoCrTa の hcp-(002)ならびに(004)面からの回折線のみが観測されており、c 軸の優れた垂直配向性が保たれていることがわかる。

一方、Fig.2 に示した TEM 像には、比較的明瞭な粒界構造が確認されており、Cr の粒界偏析により粒間の交換相互作用

が大きく低下していることが推察される。膜厚 50nm の媒体の回転ヒステリシス積分 R_h の値は 0.22 と、磁氣的孤立粒子の理論的下限である 0.4 の半分程度の値を示した。これは、これらの媒体の粒間交換相互作用が小さいため、粒間の静磁氣的結合が強くなっていることを示している。Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いたシミュレーションの結果、c 軸の垂直配向性が優れ、且つ、粒間の交換相互作用が小さな場合に、このように R_h が 0.4 以下の小さな値となることを確認している⁸⁾。また、Fig.2 より求めた膜面内方向の粒子の大きさは、約 9.5^2 nm^2 程度と小さな値を示した。このように膜面内方向の平均粒径が小さいこと、ならびに、粒間交換相互作用が小さいため、今回検討に用いた媒体は磁化の熱擾乱が大きく、磁化の経時変化から求めた磁気粘性係数 S を残留磁化 M_r で規格化した磁化の減少率 S/M_r は、50 nm の膜厚において 1.9 %、15 nm において 4.3 % 以上と大きな値であった。

Fig.3 には、膜の反磁界を補正した垂直磁気異方性 K_u ならびに飽和磁化 M_s の変化を磁性層厚に対して示した。 M_s の値は膜厚に対して大きく変化せず約 400 emu/cm³ の値を示してい

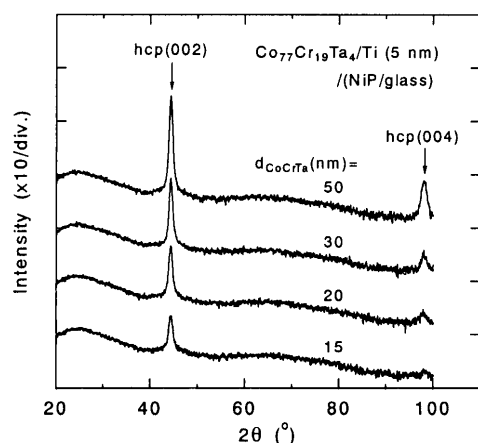


Fig. 1 X-ray diffraction patterns of the CoCrTa/Ti perpendicular media.

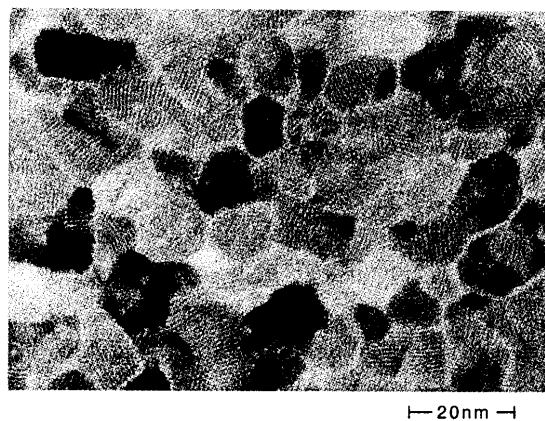


Fig. 2 TEM bright field image of the CoCrTa (50 nm) /Ti perpendicular medium.

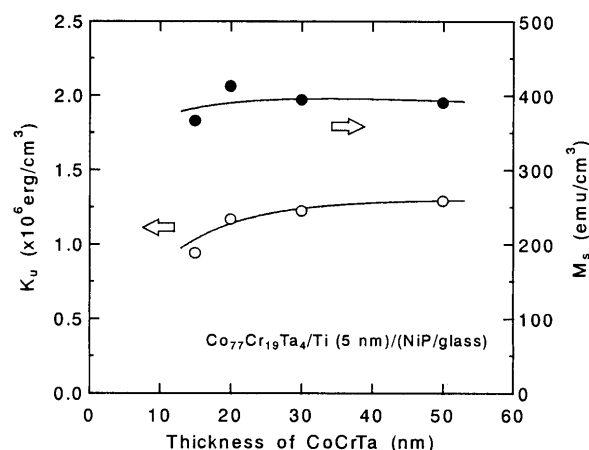


Fig. 3 Thickness dependence of M_s and K_u for the CoCrTa/Ti perpendicular media. Here, K_u is obtained by subtracting the shape anisotropy value of the demagnetizing energy $2\pi M_s^2$ from the measured value.

る。一方、 K_u の値は、50 nm から 15 nm への膜厚の低下に伴い、 $1.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ から約 $1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 程度まで少しずつ低下していた。媒体の c 軸の垂直配向性が非常に優れていることを考慮すると、この K_u の変化は、結晶粒の磁気異方性の変化にほぼ対応すると考えられる。

3.2 残留保磁力と異方性磁界の関係

Fig.4 には、媒体の保磁力 H_c と角型比 M_r/M_s の値を磁性層厚に対して示した。ここでの測定は、VSM により測定磁界をステップ的に増加・測定を繰り返す一般的な方法で行っており、測定時の磁界変化速度は一定ではない(1試料あたりの測定時間 30~40 分、最大印加磁界 $\pm 20 \text{ kOe}$)。図中には、これらの磁化曲線についても示してある。膜厚を低下させた場合でも、30 nm までの膜厚範囲では 2 kOe 程度の H_c を示しているが、その後、大きく減少することがわかる。 M_r/M_s の変化も同様である。

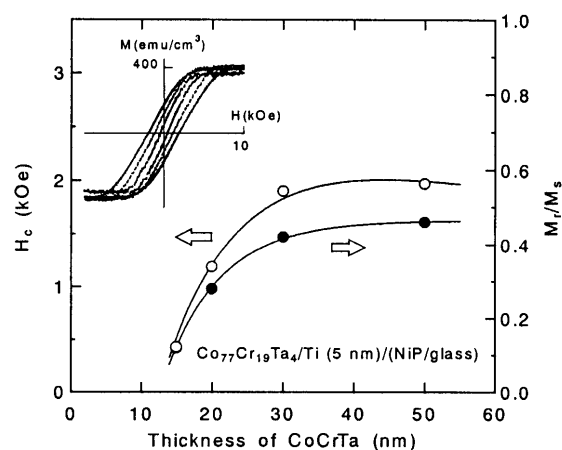


Fig. 4 Thickness dependence of H_c and M_r/M_s for the CoCrTa/Ti perpendicular media.

また、膜厚の低下にともなう、磁化曲線の傾きが若干急になる傾向にあるが、磁化機構の違いを示すような磁化曲線の極端な変化は観察されていない。この H_c あるいは M_r/M_s の変化は、Fig.3 に示した K_u の変化と単純には対応していない。

Fig.5 には、 10^8 Oe/s 台の大きな磁界変化速度(パルス磁界)、ならびに、10 Oe/s の小さな磁界変化速度においてそれぞれ測定した磁化曲線を示した。図中には、測定に使用したパルス磁界の一例を示している。大きな磁界変化率で測定した残留磁化曲線は、高磁界側に大きく張り出しており、残留保磁力 H_r 値が増加している。ここで、それぞれの磁界変化速度における H_r の値を用いて、次に示す Sharrock の式^{9),10)}から、磁化の熱擾乱の影響を評価した。

$$H_r(t') = H_0 [1 - \{kT/(K_u V) \ln(f_0 t'/0.693)\}^{1/2}] \quad (1).$$

ここで、 f_0 は周波数因子であり、ここでは 5×10^9 Hz とした。 T は絶対温度、 k はボルツマン定数、 K_u は一軸磁気異方性、 V は磁化反転の単位体積をそれぞれ示す。 H_0 の値は、周波数因子における H_r の値に対応し、熱擾乱の影響を差し引いた場合の H_r 値を意味する。また、 t' は、 H_r と同じ大きさの磁界を印加した際に、磁化の熱擾乱により平均的な磁化が 0 となるために必要な時間を意味する¹⁰⁾。今回の実験では、各磁界変化速度における H_r の測定値を基に、Flanders と Sharrock により報告されている現象論的な解析式¹⁰⁾を用いて t' を算出し、(1)式より H_0 ならびに $K_u V/kT$ の値を求めた。Fig.6 には、50 nm ならびに 20 nm の媒体における H_r と t' の関係と、(1)式を用いてフィッティングさせた曲線をそれぞれ示した。20 nm の媒体では、 $H_r \sim t'$ 曲線の傾きが大きく、 $K_u V/kT$ が小さいことがわかる。

Fig.7 には、各磁界変化速度における H_r ならびに H_0 の膜厚依存性を示す。図中には、Fig.3 に示した K_u と M_s の値から算出した結晶粒の異方性磁界 H_k の変化についても示した。パルス磁界を用いて測定した H_r は、いずれも 3 kOe 前後の値を示しており、5 Oe/s の磁界変化速度における H_r の 1.5~2.5 倍程度大きな値を示している。また、熱擾乱の影響を差し引いた残留保磁力に対応する H_0 の値は 4 kOe を越えており、50 nm の厚みにおける H_0 の値が最も小さい。

ここで、 H_0 と H_k の値を比較すると、50 nm における H_0 は H_k の約 70 % の値となっているが、20 nm 以下の膜厚における H_0 は H_k の約 90 % の値に達していることがわかる。このことは、垂直媒体では構造を適切に制御することで、その残留保磁力を H_k に近い値にまで増加できる高いポテンシャルを持つことを示している。今回の CoCrTa 膜では K_u の値が小さいため、磁化の熱擾乱の影響が大きく、一般的な磁界変化速度において観察される H_r の値は、 H_0 よりもかなり小さくなっているものと考えられる。

一方、 H_k に対する H_0 の比は、熱擾乱の影響を差し引いた粒間相互作用の強さを示すと考えることが出来る。膜厚の低下にともない H_0/H_k の値が増加する原因は、静磁的な粒間相互作用の減少と、後述する粒内部の磁化反転機構の変化によるものであると考えられる。

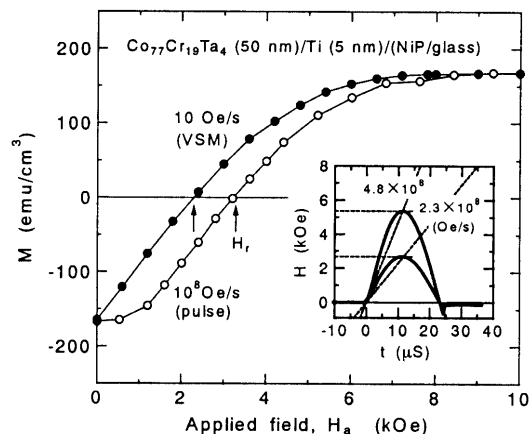


Fig. 5 Remanence curves at 10 and 10^8 Oe/s for the CoCrTa(50 nm)/Ti medium. In the figure, the pulse field used for the measurement is also shown.

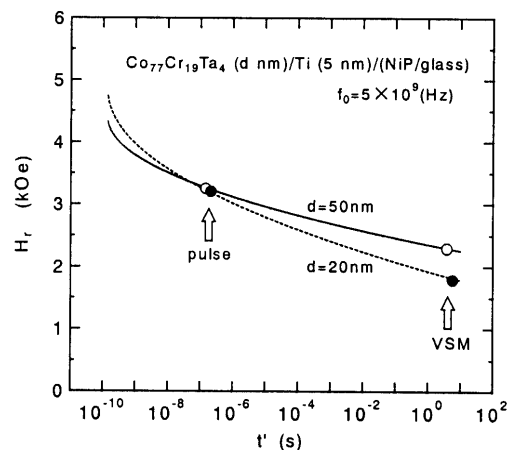


Fig. 6 $H_r \sim t'$ plots for the CoCrTa/Ti perpendicular media.

3.3 熱的活性化体積と結晶粒体積

Fig.8 には、 H_r の変化率から求めた $K_u V/kT$ の値と、この値と K_u 値から算出した活性化体積 V の値(これ以降 V_{act} と表記)の値を、膜厚に対して示した。図中には、結晶粒の平均的な体積 V_{grain} が、膜面内方向の平均結晶粒面積 9.5^2 nm^2 と膜厚の積であると近似した場合の変化についても同様に示した。ここで、実験に用いた基板表面の NiP と同様なアモルファス構造である CoZrNb 膜上に作製した CoCrTa(50 nm)/Ti(5 nm)膜の断面 TEM 像を観察した結果、個々の結晶粒は、膜の厚み方向を通して一つの粒子としてほぼ連続的に形成されていることを確認している^{6,7)}。

$K_u V/kT$ の大きさは膜厚 50 nm でも 100 程度と低い値を示しているが、これは、先述したように媒体の面内方向の平均粒径が小さく、且つ、粒間の交換相互作用が低いためである。ここで、50 nm の膜厚では、 V_{act} の値が、 V_{grain} よりも小さいことがわか

る。これは、50 nm の膜厚では粒子内部でインコヒーレントな磁化反転が生じていることを示唆しており、膜厚と面内方向の粒径の比が 5 程度と非常に細長いためであると推察される。膜厚の低下により V_{act} は徐々に低下しているが、ここで注目したいのは、30 nm 以下の領域では、 V_{act} の値が V_{grain} の変化に沿うように単調に減少していることである。このことは、膜厚 30 nm 以下、即ち、粒子の寸法比が 3 程度以下になると、粒子内部ではほぼコヒーレントな磁化スイッチングを生じていることを示唆している。即ち、30 nm 以下の膜厚が媒体の高保磁力化に優位であることを示しており、先述した H_0 の膜厚に対する変化と良く対応する。一方、実験結果を熱安定性の観点から見た場合、低ノイズ化のために媒体の面内粒径を低下させても、その 3 倍程度の厚みまで膜厚を増加させることで、 $K_u V$ を大きく維持することが可能であることを意味している。これは、長手媒体に比較して、垂直媒体では熱安定性の高い媒体設計が可能であることを示している。

4. まとめ

Ti 膜をシード層とした CoCrTa 垂直磁気記録媒体の、磁性層厚依存性の実験を通し、次のことが明らかになった。

- (1) 磁化の熱擾乱の影響を補正した場合の残留保磁力は、異方性磁界の 70~90 % に達することを示した。このことは、CoCrTa 等のグラニュー系垂直媒体では、組成・構造などの制御などにより熱安定性を高くすることで、その残留保磁力を H_k に近い値まで増加できる高いポテンシャルを持つことを示している。
- (2) 30nm 以下の膜厚では、膜厚の低下により、 V_{act} の値が、 V_{grain} の変化に沿いながら単調に減少することが明らかとなった。面内方向の平均粒径が 10 nm 程度であることを考慮すると、このことは、粒子の寸法比が 3 程度以下になると粒子内部ではほぼコヒーレントな磁化スイッチングを生じていることを示唆している。また、この結果は、膜厚を粒径の 3 倍程度の大きさに維持することで高い熱安定性を保つことが可能であることを示している。

謝 辞 本研究の一部は、ASET(NEDO,通産省), SRC, ならびに文部省科学研究費補助金の支援により行われたものです。ここに深謝します。

文 献

- 1) 佐々木 保, 村岡裕明, 中村慶久, 日本応用磁気学会誌, 22, 237 (1998).
- 2) E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Trans. Roy. Soc. (London)*, A240, 599 (1948).
- 3) I. S. Jacobs and C. P. Bean, *Physical Review*, 100, 1060 (1955).

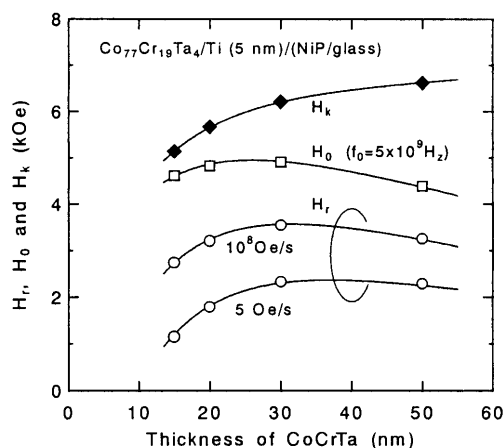


Fig. 7 Thickness dependence of H_r , H_0 , and H_k for the CoCrTa/Ti perpendicular media.

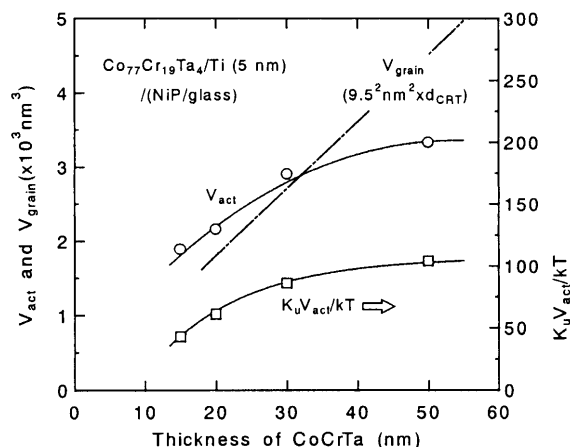


Fig. 8 Thickness dependence of $K_u V/kT$, V_{act} and V_{grain} for the CoCrTa/Ti media.

- 4) C. Seberino and H. N. Bertram, *IEEE Trans. Magn.*, 33, 3055 (1997).
- 5) 島津武仁, パウフィ・スリスティオ, 駒込博泰, 渡辺 功, 杉田 恒, 中村慶久, 日本応用磁気学会誌, 23, 969 (1999).
- 6) T. Shimatsu, H. Komagome, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Sugita, and Y. Nakamura, *J. Appl. Phys.*, the proceedings of the 44th MMM conference, in press (2000).
- 7) 駒込博泰, 島津武仁, 吉田亮一, 渡辺 功, 村岡裕明, 杉田 恒, 中村慶久, 日本応用磁気学会誌, 24 (2000)に掲載.
- 8) T. Shimatsu, S. J. Greaves, K. Muramatsu, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Sugita and Y. Nakamura, *IEEE Trans. Magn.*, the InterMAG confrence 2000 に投稿中.
- 9) M. P. Sharrock, *J. Appl. Phys.*, 76, 6413 (1994).
- 10) P. J. Flanders and M. P. Sharrock, *J. Appl. Phys.*, 62, 2918 (1987).