

Fe 基アモルファス軟磁性膜を用いる交換結合型裏打ち層の作製 Preparation of an Exchange-Biased Fe-Based Amorphous Soft-Magnetic Underlayer

鈴木淑男・大内一弘

秋田県高度技術研究所、秋田市新屋町字砂奴寄 4-21 (〒010-1623)

T. Suzuki and K. Ouchi

AIT (Akita Research Institute of Advanced Technology), 4-21 Sanuki, Araya, Akita 010-1623

Fe-based amorphous soft-magnetic films and Mn-Ir exchange-biasing films were investigated, with the aim of developing a soft-magnetic underlayer for L1₀-type Fe-Pt perpendicular double-layered media. It was found that a carbon-added Fe₇₈Si₉B₁₃ composition film had a smooth surface and excellent structural stability in amorphous state after annealing at 450°C. A B_s value of 13.7 kG and an H_c value of below 1 Oe for the easy axis were obtained. For the exchange-biased films, the compositions and crystal orientations of the Mn-Ir films and the effects of inserting a Co-Fe layer between the Fe-Si-B-C layer and the Mn-Ir layer were investigated. As a result, a large unidirectional anisotropy constant, J_k, of 0.5 erg/cm² was obtained for a layer configuration of Fe-Si-B-C (50 nm)/Co₇₀Fe₃₀ (5 nm)/Mn₈₅Ir₁₅ (10 nm)/Nb-Permalloy (5 nm)/Ta (20 nm)/glass-substrate. The large exchange-bias field, small coercivity, smooth surface, and excellent structural stability of the film will be suitable for the soft-magnetic underlayer of Fe-Pt media.

Key words: amorphous, exchange bias, Fe-Si-B-C, Mn-Ir, perpendicular magnetic recording, soft-magnetic underlayer

1. はじめに

垂直二層膜媒体と単磁極ヘッドから構成される垂直磁気記録方式は、高い記録分解能が得られると同時に記録磁化の熱擾乱耐性に優れる記録方式である¹⁾。その実用化を目指し、さまざまな検討が行われる中、二層膜媒体における軟磁性裏打ち層には、次のような特性と技術が要求されている。

- ①記録磁場の飽和を避けるための高い飽和磁束密度。
- ②スパーシングロスと低減すると共に表面凹凸から発生する漏洩磁束を抑制する表面平坦性。
- ③磁壁から発生するスパイクノイズとその揺らぎに起因するノイズを低減する磁区制御もしくは単磁区化技術。

現在、上記①に関して Fe-Co 系高飽和磁化膜^{2),3)}、②に関して Fe 基微結晶型薄膜^{4),5)} および Co 基アモルファス膜⁶⁾ が報告されている。また、③に関しては、軟磁性膜/硬質磁性膜⁶⁾、軟磁性膜/反強磁性膜^{7),8)}、軟磁性膜/非磁性膜/軟磁性膜^{9)~11)}、等の層間結合を用いる層構造が提案され、さらに異方性磁界の高い Fe-Co-B 高飽和磁化膜¹²⁾ の開発も進められている。

一方、Fe 基アモルファス材料は、Fe-Si-B 系^{13),14)} および Fe-Si-B-C 系¹⁵⁾ 薄帯で報告されているように、Co 基アモル

ファス材料に比べ飽和磁束密度が高く、また磁歪も大きいことが知られている。さらに、熱安定性に優れる合金組成も報告されている¹³⁾。

アモルファス薄膜は、膜成長過程が結晶性薄膜で見られる粒成長とは異なり、優れた表面平坦性と膜構造の均一性が期待できる。この特徴を生かし、特に、Fe-Pt 媒体用裏打ち層に应用するためには、Fe-Pt 膜以上の飽和磁化を有し、かつ Fe-Pt 膜の製膜温度で軟磁気特性が劣化せず、さらに磁区制御ができることが必要となる。今回、Fe 基アモルファス合金に着目し、軟磁気特性と熱安定性の条件を満たす組成と交換結合磁界の大きな反強磁性交換結合膜に関する知見を得たので報告する。

2. 実験方法

試料の作製は、すべて 2.5 インチ φ のハードディスク用ガラスディスク基板を用いた。

Fe 基アモルファス膜は、(Fe_{0.78}Si_{0.09}B_{0.13})_{100-x}C_x (x=0, 1, 2, 4) の組成(at%)のターゲットを用い、DC マグネトロンスパッタ法で Ar ガス圧 0.07 Pa、ターゲット基板間距離 50 mm、基板温度 50°C の条件で製膜し、所定の温度で熱処理を 1 時間行った。

交換結合膜は、軟磁性膜として (Fe_{0.78}Si_{0.09}B_{0.13})_{100-x}C_x (x=4) を用い、反強磁性膜として Mn_{100-y}Ir_y (y=15, 20, 25 (at%)) を用いた。反強磁性膜の作製条件は、DC マグネトロンスパッタ法で Ar ガス圧 0.5 Pa、ターゲット基板間距離 95 mm とした。また、交換結合膜は、製膜後スパッタチャンバー内で 375°C の熱処理を 1 時間行った。なお、ターゲットからの漏洩磁場を測定した結果、ディスク基板はその半径方向に約 10 Oe の磁場を受けていることがわかった。

磁気特性は、ディスク基板を 8 mm 角に切り出し、振動試料型磁力計により評価した。交換結合膜の交換結合磁界 (H_{ex}) は、ヒステリシスループのシフト量から求めた。

3. 実験結果

3.1 Fe-Si-B-C 膜の磁気特性と熱安定性

Fe 基アモルファス合金においては、概ね Fe 組成の増加に伴い飽和磁束密度が増加する反面、構造の熱安定性が低下する。Fig.1 には、(Fe_{0.78}Si_{0.09}B_{0.13})_{100-x}C_x (x=0, 1, 2, 4) 組成のターゲットを用いて作製した膜(膜厚=100 nm)の飽和

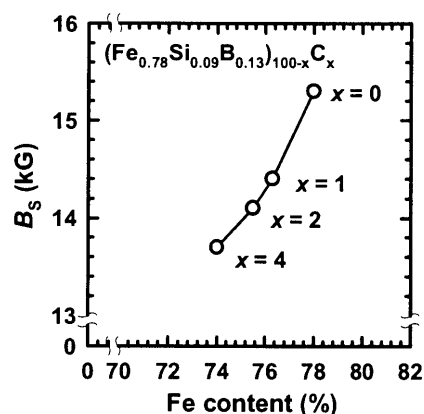


Fig. 1 Dependence of the saturation magnetic flux density on the Fe content of $(\text{Fe}_{0.78}\text{Si}_{0.09}\text{B}_{0.13})_{100-x}\text{C}_x$.

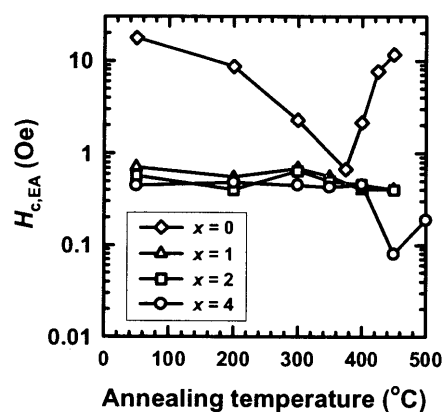


Fig. 2 Dependence of the coercivity along the easy axis on the annealing temperature for $(\text{Fe}_{0.78}\text{Si}_{0.09}\text{B}_{0.13})_{100-x}\text{C}_x$.

磁束密度を示す。炭素添加により、飽和磁束密度は低下するものの、4at%添加において13.7 kGが得られた。従って、アモルファス裏打ち層として一般的に用いられているCo-Zr-Nb膜もしくはCo-Zr-Ta膜より大きな飽和磁束密度を得ることができる。

Fig.2には、Fe-Si-B-C膜の抗磁力の熱処理温度依存性を示す。炭素無添加の組成においては、375°C以下の熱処理により抗磁力は改善するものの、それ以上の温度においては結晶化し抗磁力は増大した。一方、炭素添加膜においては、1at%添加において1 Oe以下の抗磁力が得られ、さらに、450°Cの熱処理においてもアモルファス状態が維持される優れた熱安定性を有していることがわかった。従って、炭素を1at%から4at%添加した $(\text{Fe}_{0.78}\text{Si}_{0.09}\text{B}_{0.13})_{100-x}\text{C}_x$ 膜は、Fe-Pt媒体用軟磁性裏打ち層に適用するための飽和磁束密度と熱安定性の条件を満たす。なお、熱処理による飽和磁束密度の変化は見られなかった。

Fig.3には、Fig.1および2で用いた試料のヒステリシスループを示す。Fe-Pt媒体では、Fe-Pt層を375°Cで製膜することから¹⁶⁾、ここでは熱処理温度300°Cと400°Cの結果を示す。炭素無添加の組成においては、ループの形状から垂直異方性が示唆される。一方、炭素添加により、軟磁気特性

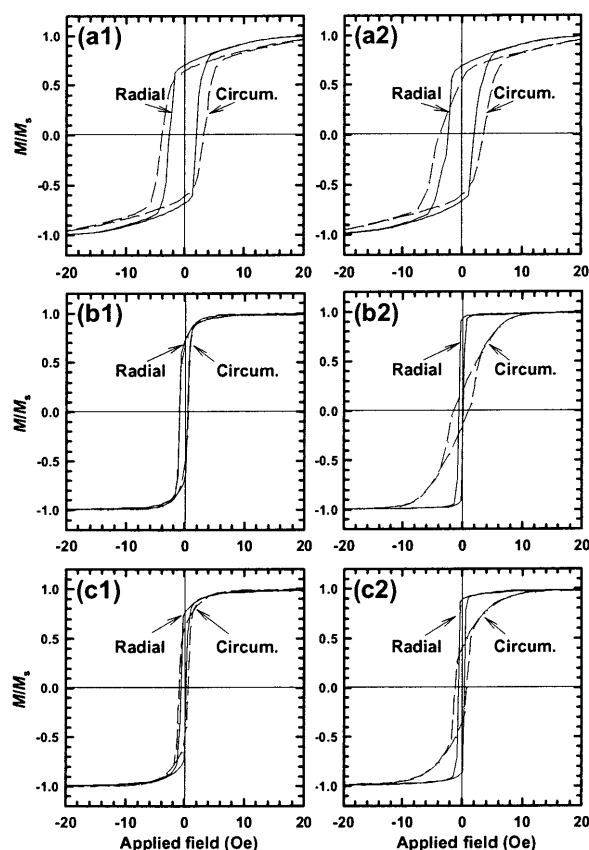


Fig. 3 Hysteresis loops for $(\text{Fe}_{0.78}\text{Si}_{0.09}\text{B}_{0.13})_{100-x}\text{C}_x$ after annealing at 300°C and 400°C. (a1) for $x=0$ at 300°C, (a2) for $x=0$ at 400°C, (b1) for $x=1$ at 300°C, (b2) for $x=1$ at 400°C, (c1) for $x=4$ at 300°C, and (c2) for $x=4$ at 400°C.

は改善されているものの、熱処理温度により磁化容易軸方向が変化する。異方性制御の為には、今後、製膜条件および下地層の検討も必要と思われる。

Fig.4に炭素4at%組成膜(膜厚=300 nm)の400°C熱処理後のAFM像を示す。表面形態は、結晶性合金膜に見られる粒形態は見られず、用いたガラス基板の表面状態を反映した形態である。なお、表面粗さ(R_a)は0.37 nmであり、用いたガラス基板とはほぼ同じ値を示した。

3.2 交換結合膜の作製

3.2.1 Mn-Ir膜の組成依存性

前記の炭素4at%組成膜($B_s=13.7$ kG)を用い、交換結合膜を作製した。ここで用いた層構造は、Fe-Si-B-C(50 nm)/Mn-Ir(3 nm-50 nm)/Nb-Permalloy(5 nm)/Ta(20 nm)/glass diskであり、すべての膜を50°Cで製膜後、熱処理を375°Cで1時間行った。

Fig.5にMn-Ir膜を作製する際に用いたターゲットの組成($\text{Mn}_{85}\text{Ir}_{15}$, $\text{Mn}_{80}\text{Ir}_{20}$, $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$)の影響を示す。交換結合磁界(H_{ex})と膜厚の関係は、組成によらず、膜厚20 nm以下で交換結合磁界が増加し、5 nmで最大値を示した。さらに、その膜厚以下では、交換結合磁界が急激に低下し、臨界膜厚は約3 nmと判断される。また、交換結合磁界の大きさは、Ir

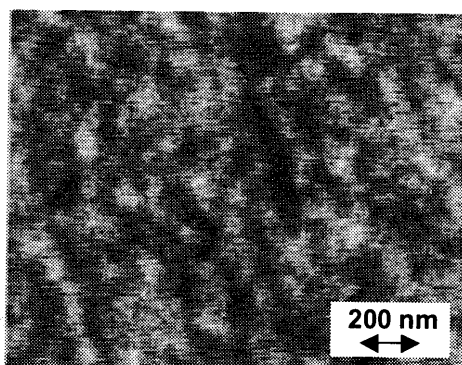


Fig. 4 AFM image for $(\text{Fe}_{0.78}\text{Si}_{0.09}\text{B}_{0.13})_{100-x}\text{C}_x$ ($x=4$) of 300 nm thickness after annealing at 400°C.

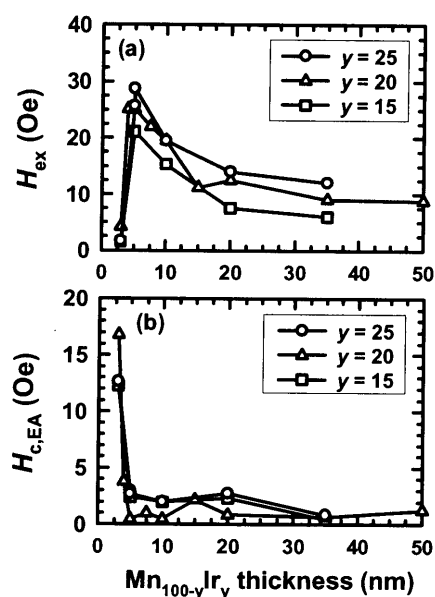


Fig. 5 Magnetic properties of an Fe-Si-B-C (50 nm)/ $\text{Mn}_{100-y}\text{Ir}_y$ /Nb-Permalloy (5 nm)/Ta (20 nm)/glass disk after annealing at 375°C for 1 hr.: (a) exchange bias field, (b) coercivity along the easy axis.

組成の増加に伴い大きくなった。本実験の組成範囲においては、Ir組成の増加に伴いMn-Ir合金のネール温度が増加することから¹⁷⁾、交換結合磁界の増大は交換スティフネスの影響と考えられる。なお、交換結合膜の磁化容易軸は、ディスク半径方向であった。

一方、抗磁力（容易軸方向）は、交換結合磁界が最大となる膜厚5 nmにおいて3 Oe以下であり、交換結合膜として良好な磁気特性が得られている。さらに、抗磁力は、交換結合磁界が低下する臨界膜厚近傍の膜厚において急激に増大する傾向が見られた。

3.2.2 Mn-Ir膜の結晶配向面の影響

前記Mn-Ir膜の作製に用いた下地層は、Mn-Ir膜の最稠密面である(111)結晶面の配向性および結晶性を高める。最近、著者らは、ガラス基板上でMn-Ir膜の結晶配向面を制御する

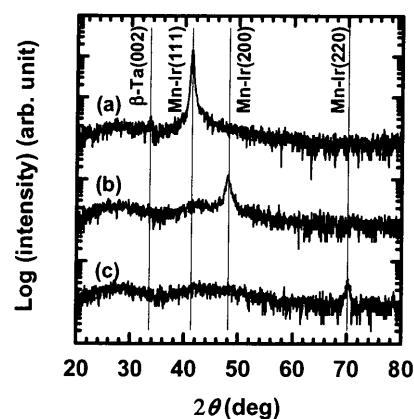


Fig. 6 XRD charts for Mn-Ir (50 nm)/underlayer/glass disk. Underlayer: (a) Nb-Permalloy (5 nm)/Ta (20 nm), (b) MgO (5 nm), (c) Nb-Permalloy (5 nm)/MgO (5 nm).

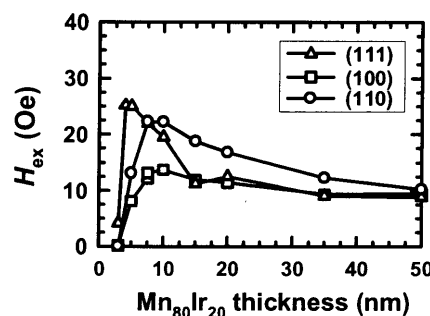


Fig. 7 Magnetic properties of Fe-Si-B-C (50 nm)/ $\text{Mn}_{80}\text{Ir}_{20}$ (111), (100), (110)/glass disk after annealing at 375°C for 1 hr.

下地層とその作製条件を見出した¹⁸⁾。ここでは、その結果のみFig.6に示す。(111)配向は前記の構造によるもので、(100)配向はMn-Ir(50 nm)/MgO(5 nm)/glass disk、(110)配向はMn-Ir(50 nm)/Nb-Permalloy(5 nm)/MgO(5 nm)/glass diskの層構造によるものである。図中の試料(b)および(c)において観測されるMn-Ir(200)回折線および(220)回折線は、試料(a)の(111)回折線に比べてブロードであることから結晶性は劣っているが、いずれの試料も単配向であることがわかる。なお、Mn-Ir組成は $\text{Mn}_{80}\text{Ir}_{20}$ である。

Fig.7に交換結合磁界のMn-Ir膜の結晶配向面の影響を示す。Mn-Ir膜は多結晶体であるが、結晶配向面により交換結合磁界の大きさに差が見られる。本実験の範囲においては、膜厚5 nmの(111)配向試料で最大の交換結合磁界が得られた。なお、X線回折測定により、10 nm以下の膜厚領域において結晶構造が確認できたのは(111)配向試料のみである。一方、10 nm以上の膜厚においては、三種類の配向試料の中で(110)配向試料が最も大きな交換結合磁界を示した。このことは、10 nm以下の膜厚領域で良好な結晶性の(110)配向試料が得られれば、より大きな交換結合磁界が得られることを示唆する。また、(100)配向試料では、他の配向試料で見られる膜厚10 nm前後における交換結合磁界の増加量は小さ

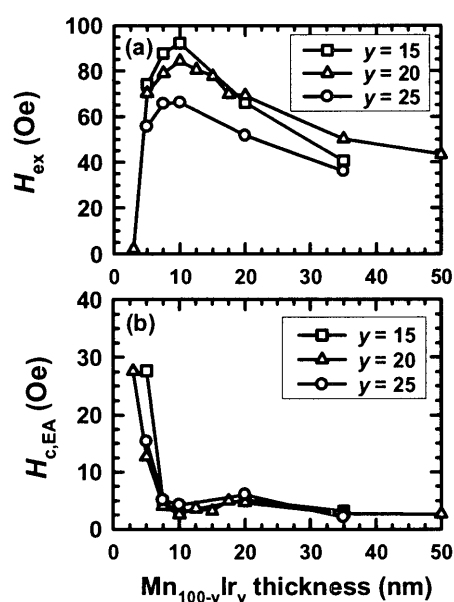


Fig. 8 Magnetic properties of Fe-Si-B-C (50 nm)/Co₇₀Fe₃₀ (5 nm)/Mn_{100-y}Ir_y/Nb-Permalloy (5 nm)/Ta (20 nm)/glass disk after annealing at 375°C for 1 hr.

Table 1 Unidirectional anisotropy constants, J_k , for Mn-Ir compositions and Mn-Ir crystal orientations.

Ir content (at%)	15	20			25
Orientation	(111)	(111)	(110)	(100)	(111)
J_k (erg/cm ²) without Co-Fe	0.12	0.14	0.12	0.07	0.16
J_k (erg/cm ²) with Co-Fe	0.50	0.46	0.38	0.24	0.36
H_{ex} (Oe) ^{a)}	42	38	32	20	30

^{a)} Calculated value for soft-magnetic film with $B_s = 15$ kG and thickness = 100 nm.

く、大きな交換結合磁界は得られなかった。

3.2.3 Co-Fe膜の効果

軟磁性層とMn-Ir膜の間にCo₇₀Fe₃₀層を導入することにより、交換結合磁界を高められることが知られている^{10), 19)}。Co₇₀Fe₃₀層の効果を本系で調べるため、Fe-Si-B-C(50 nm)/Co₇₀Fe₃₀(5 nm)/Mn-Ir(3-50 nm)/Nb-Permalloy(5 nm)/Ta(20 nm)/glass diskの層構造を作製した。Fig.8に得られた交換結合磁界の結果を示す。Co-Fe層が無いFig.5に示した値に比べ、概ね3倍の大きさの結合磁界が得られることがわかった。最大の交換結合磁界は、膜厚10 nmのMn₈₅Ir₁₅組成で92 Oeが得られた。この時の抗磁力は約3 Oeであり、単磁区状態を安定化する優れた特性といえる。なお、膜厚10 nm以下では交換結合磁界が低下し、さらにMn-Ir組成の効果はCo-Fe層が無い場合と逆の傾向になった。今のところ、これらの原因は明らかではないが、Mn-Ir層とCo-Fe層の相互拡散が影響している可能性も考えられる。

Table 1に、次式(1)から求まる一方向異方性定数(J_k)をまとめた。

$$J_k = M_s \cdot d \cdot H_{ex} \quad (1)$$

なお、 M_s および d は、それぞれFe-Si-B-C膜の飽和磁化1090 emu/cm³と膜厚50 nmを用いた。

本検討で最大値を示した(111)配向のMn₈₅Ir₁₅膜の一方方向異方性定数は0.5 erg/cm²であり、非常に大きな値といえる。この値は、飽和磁束密度15 kG、膜厚100 nmの軟磁性膜に対して42 Oeの交換結合磁界が得られることに相当する。従って、本系の交換結合膜を裏打ち層として用いた場合、安定な単磁区状態を得ることができ、スパイクノイズの抑制に効果が期待できる。また、(110)結晶配向面は、(111)面に比べて結晶性は劣っているものの、比較的大きな一方方向異方性が得られている。従って、結晶性の向上により、さらに大きな交換結合磁界を得る可能性も考えられる。以上の結果をもとに、今後、裏打ち層としての効果の確認と結晶配向面の効果の起源について詳細な検討を行っていきたい。

4. 結論

Fe-Si-B-Cアモルファス膜の熱安定性と反強磁性交換結合膜の作製を検討し、以下を明らかにした。

- ① (Fe_{0.78}Si_{0.05}B_{0.13})_{100-x}C_x膜は炭素1at%組成で450°Cの熱処理でもアモルファス状態が維持でき、かつ1 Oe以下の抗磁力を得ることができる。飽和磁束密度は、炭素1at%組成で14.5 kG、4at%組成で13.7 kGが得られる。
- ② 上記Fe-Si-B-Cアモルファス膜を用いた交換結合膜の作製において、Mn₈₅Ir₁₅組成とその(111)配向およびCo₇₀Fe₃₀層の導入により、0.5 erg/cm²の一方方向異方性が得られる。

以上から、Fe-Si-B-Cアモルファス膜を用いる交換結合膜の裏打ち層への応用、特に、Fe-Pt媒体等の大きな飽和磁化を有し、また比較的高い製膜温度が必要となる媒体への応用の可能性を示した。

謝辞 日頃ご指導頂きますAIT名誉所長、岩崎俊一東北工業大学長に深謝致します。本研究の一部は科学技術振興機構、秋田県地域結集型共同研究事業の一環として行われた。

文献

- 1) S. Iwasaki: *IEEE Trans. Magn.*, **20**, 657(1984).
- 2) N. X. Sun and S. X. Wang: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 2506(2000).
- 3) K. Sintaku, K. Yamakawa and K. Ouchi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **27**, 367 (2003).
- 4) A. Kikukawa, Y. Honda, Y. Hirayama, and M. Futamoto: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 2402(2000).
- 5) S. Saito, K. Hirai, and M. Takahashi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **26**, 248 (2002).
- 6) T. Ando and T. Nishihara: *IEEE Trans. Magn.*, **33**, 2983(1997).
- 7) H. Fujiwara, C. Hou, M. Sun, and H. S. Cho: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23-S2**, 1(1999).
- 8) S. Takahashi, K. Yamakawa, and K. Ouchi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23-S2**, 63(1999).
- 9) F. Nakamura, T. Hikosaka, Y. Tanaka: *J. Magn. Magn. Mater.*, **235**, 64(2001).
- 10) S. Saito, K. Hirai, A. Hashimoto, M. Tsunoda, and M. Takahashi:

- J. Magn. Soc. Jpn.*, **27**, 224(2003).
- 11) T. Shimatsu, K. Honma, I. Watanabe, H. Muraoka, and Y. Nakamura: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **27**, 230(2003).
 - 12) S. H. Kong, T. Okamoto, and S. Nakagawa: *J. Appl. Phys.*, **93**, 6778(2003).
 - 13) K. I. Arai and N. Tsuya: *J. Appl. Phys.*, **49**, 1718(1978).
 - 14) M. A. Mitchell, A. E. Clark, H. T. Savage, and R. Abbundi: *IEEE Trans. Magn.*, **14**, 1169(1978).
 - 15) M. Mitera, T. Masumoto and N. S. Kazama: *J. Appl. Phys.*, **50**, 7609(1979).
 - 16) T. Suzuki, T. Kiya, N. Honda, K. Ouchi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **235**, 312(2001).
 - 17) Jiseitai Handbook (in Japanese), S. Chikazumi, K. Ohta, K. Adachi, N. Tsuya and Y. Ishikawa, p. 391(Asakura-shoten, Tokyo, 1990).
 - 18) T. Suzuki and K. Ouchi: submitted to *IEEE Trans. Magn.*
 - 19) K. Tanahashi, A. Kikukawa, and Y. Hosoe: *J. Appl. Phys.*, **93**, 8161(2003).

2003 年 10 月 22 日受理, 2004 年 1 月 15 日採録