

# 光学的手法による垂直薄膜媒体磁化過程の膜厚方向解析

## Optical Analysis of Magnetization Process Dependence on Film Depth for Perpendicular Thin-Film Media

斉藤 伸<sup>A†</sup>・八田芳仁<sup>A</sup>・高橋 研<sup>A</sup>

<sup>†</sup> 日本学術振興会特別研究員

<sup>A</sup> 東北大学大学院工学研究科電子工学専攻, 仙台市青葉区荒巻字青葉 05 (〒980-8579)

S.Saito<sup>A†</sup>, Y.Hatta<sup>A</sup>, M.Takahashi<sup>A</sup>

<sup>†</sup> Research Fellow of the Japan Society for the Promotion of Science

<sup>A</sup> Department of Electronics Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku Univ., Aoba-yama 05, Sendai 980-8579

(2000年10月10日受理, 2001年1月24日採録)

Heterogeneity of the perpendicular magnetization process dependence on film depth for CoNiCrTa and CoCrTaPt perpendicular thin-film media is discussed based on a magneto-optical analysis. Results show that: (1) by means of longitudinal Kerr equipment, evaluation for separating longitudinal magnetization of a columnar structure and initial layer is possible; (2) in a perpendicular magnetization process, the top of the medium has high coercive force and high squareness compared with the bottom of the medium; and (3) the top of the medium has homogeneous magnetization thicker than 25 nm, and the bottom has a thickness of about 10 nm. The top and bottom of the medium are considered to be a columnar structure and initial layer, respectively.

**Key words:** perpendicular media, thin film, polar Kerr magnetometer, wavelength dependence, columnar structure, initial layer

### 1. はじめに

垂直薄膜媒体の記録層の磁気特性は、振動試料型磁力計 (VSM) や極カー装置により測定された磁化曲線から導き出され、評価されてきた。しかしながら両装置による同一試料の磁化曲線の測定結果を比較すると、全く差異が認められない試料が存在する一方で、保磁力で 1 kOe 程度も異なる試料が存在し<sup>1-3)</sup>、統一した傾向は議論されていない。我々はこのような測定装置による磁気特性評価結果の相違は、試料の磁化過程の本質的な情報を反映していると考えている。すなわち、VSM により測定される磁化曲線は、試料全体の平均的な磁化過程を表しているのに対し、極カー装置により得られる磁化曲線は、入射側磁性層表層の磁化過程を表していると推察する。そこで本論文では、垂直薄膜媒体の磁化過程を入射方向依存性や波長依存性、光学多層膜モデル計算といった光学的手法を用いて膜厚方向磁化過程の非一様性に関して議論する。

### 2. 実験方法

CoCr 基垂直薄膜媒体は UC プロセス下で DC マグネトロンスパッタリング法を用いて石英ガラス基板上に作製した。基板温度は放射加熱ヒータを用い 250 °C とし、Ar ガス圧は 2~4 mTorr とした。磁性層材料は、筆者らのグループが面内媒体で検討を行ってきた  $\text{Co}_{67}\text{Ni}_{13}\text{Cr}_{16}\text{Ta}_4$ ,  $\text{Co}_{68}\text{Cr}_{20}\text{Ta}_4\text{Pt}_8$  を用い<sup>3)</sup>、磁性層膜厚  $d_{\text{mag}}$  は 5~75 nm の範囲で変化させた。下地層には Ti (7.5 nm),  $\text{Ti}_{50}\text{Cr}_{10}$  (7.5 nm),  $\text{Co}_{60}\text{Cr}_{40}$  (5 nm) / Ti (7.5 nm) を用いた。構造解析の結果、今回用意した試料中にはコラム状組織の成長初期部に微結晶初期層が形成されていることが確かめられた<sup>4)</sup>。試料の磁気特性は VSM で測定した。光学・磁気光学特性の測定の際には、632.8 nm の He-Ne レーザと、400 nm ~ 1000 nm の波長範囲を分光できる Xe ランプを光源とし、適宜薄膜側または基板側から光を入射した。縦カー磁化曲線は最大印加磁場 6 kOe の下、入射角を 65° とし、差動検出法により測定した。極カー磁化曲線は、最大印加磁場 17 kOe の下、偏光面変調法を用いて測定し、基板側入射の場合には基板のファラデー効果成分を除去して試料自身の磁化曲線を導出した。光学定数 (屈折率  $n$ , 消光係数  $\kappa$ ) および磁気光学定数 (左右円偏光の複素屈折率の差  $\Delta n$ ,  $\Delta \kappa$ ) は全て薄膜側から測定した結果を基に解析して決定した。まず磁性層および下地層の各材料について膜厚 100 nm の単層膜を用意し、これらの光学定数を各波長ごとに回転検光子法を用いて決定した。次に磁性層材料の磁気光学定数を、薄膜側から測定した磁気カー回転角と楕円率、および磁性層の光学定数を用い実験結果に矛盾を生じないように決定した。光学多層膜計算はマトリクス法を磁気光学効果に応用して用いた。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 垂直磁気記録媒体の面内磁化過程

Fig. 1 にガラス基板上に作製した種々の膜厚の (a) CoNiCrTa 媒体ならびに (b) CoCrTaPt 媒体の VSM により測定した面内方向磁化曲線を示す。 $d_{\text{mag}} = 10 \text{ nm}$  の場合にはいずれの媒体の場合も保磁力が小さく、垂直磁化曲線と比較した結果、面内方向が磁化容易軸となっていることがわかった。 $d_{\text{mag}} = 35 \text{ nm}$  の場合

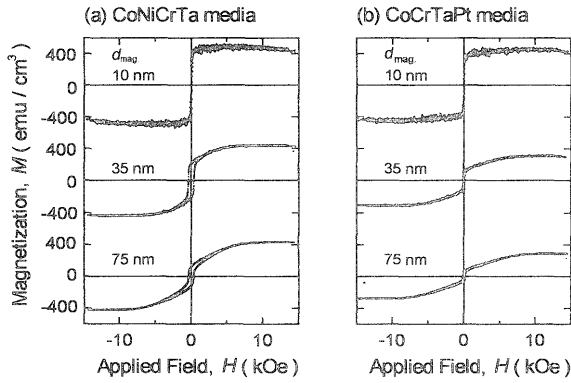


Fig. 1 Longitudinal magnetization curves evaluated by VSM for (a) CoNiCrTa media and (b) CoCrTaPt media with various film thicknesses deposited on a glass substrate.

には、薄膜全体の磁化曲線は、面内方向が磁化容易軸である磁化過程成分（面内磁化容易成分）と面内方向が磁化困難軸である磁化過程成分（面内磁化困難成分）の寄与が重畳した形状を示し、 $d_{\text{mag}} = 75 \text{ nm}$  の場合には面内磁化容易成分に対する面内磁化困難成分の割合が増加していることがわかる。下地層を用いた媒体も同様の傾向を示した。この現象は、CoCr基垂直薄膜媒体中のコラム状組織の初期成長部に形成される「初期層」の磁化過程がコラム状組織のそれと比較し面内方向に磁化容易軸を有する軟磁性的な特性を示すことに起因する<sup>9)</sup>。そこで、縦カー装置を用いて基板側あるいは薄膜側から光を入射することにより、コラム状組織の磁化過程と初期層の磁化過程の分離導出を試みた。

Fig. 2 にガラス基板上に直接作製した  $d_{\text{mag}} = 50 \text{ nm}$  の CoNiCrTa 媒体の (a) 薄膜側および (b) 基板側から測定した縦カー装置による面内磁化曲線を示す。比較のために VSM により測定した (c) 同媒体の面内磁化曲線を示す。薄膜側から入射

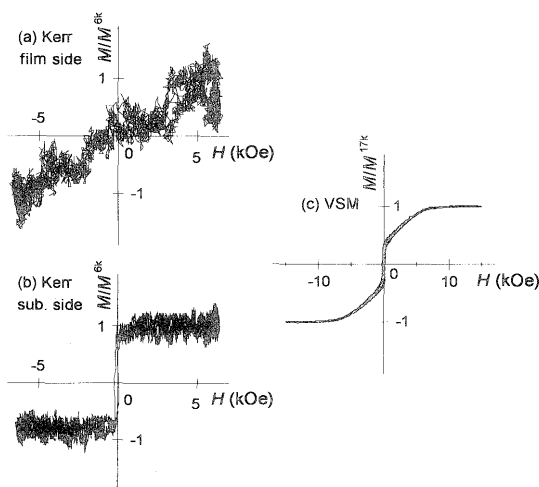


Fig. 2 Magnetization curves evaluated by (a) longitudinal Kerr magnetometer from film surface side, (b) longitudinal Kerr magnetometer from substrate side, and (c) VSM for CoNiCrTa medium with a film thickness of 50 nm deposited on a glass substrate.

した縦カー磁化曲線によると、印加磁場の増加に対して単調に垂直磁化成分が増大する磁化過程が観測されているのに対し、基板側から入射した縦カー磁化曲線では保磁力が数 10 Oe 程度の軟磁性的な磁化過程が観測される。また VSM により測定された磁化曲線は入射方向を変えて測定した縦カー磁化曲線で観測される磁化過程の重畳により説明できる形状となっている。以上のことより、初期層とコラム状組織を含む Co 基垂直薄膜媒体の面内方向磁化過程は、構造の膜厚方向不均一性に対応して非一様であり、薄膜表面側に面内磁化困難層、基板側に面内磁化容易層が存在することが実験的に検証された。

### 3.2 Co 基垂直薄膜媒体の垂直磁化過程

Fig. 3 にガラス基板上に作製した種々の膜厚の CoNiCrTa 媒体ならびに CoCrTaPt 媒体の VSM により測定した垂直方向磁化曲線を示す。いずれの磁性層材料の場合も、磁性層厚が 10 nm から 75 nm へと増加するにつれ、保磁力が増加していることがわかる。下地層を設けた媒体も同様の傾向を示した。VSM による垂直磁化曲線は、面内磁化曲線の場合と異なり、一見したその形状からは複数の磁化過程が重畳しているようには見受けられない。しかしながら、垂直方向に磁場を印加した場合にも構造の不均一性にもなる磁化過程の不均一性は試料内に生じているはずであると考え、入射方向を変化させて極カー磁化曲線を観測することにより、試料の膜厚方向の磁化過程の解析を試みた。

Fig. 4 にガラス基板上に直接作製した種々の膜厚の CoNiCrTa 媒体の極カー磁化曲線を示す。図中には薄膜側から入射した場合の測定結果を実線で、基板側から入射した場合の測定結果を破線で示してある。 $d_{\text{mag}} = 10 \text{ nm}$  の場合には、基板側および薄膜側から入射した磁化曲線はほぼ一致しているが、磁性層膜厚が増加するにつれ、薄膜側から入射した磁化曲線が基板側から入射した磁化曲線よりも磁気履歴が大きくなり、保磁力および角形比ともに大きな値を示していることがわかる。ガラス基板上に直接作製した CoNiCrTa 媒体について、保磁力および角形比の磁性層膜厚に対する変化を Fig. 5 にまとめた。図中には比較

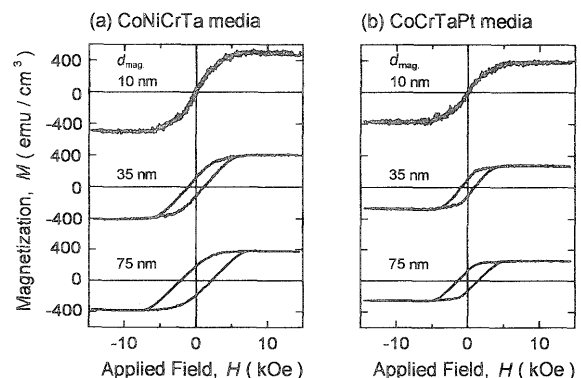
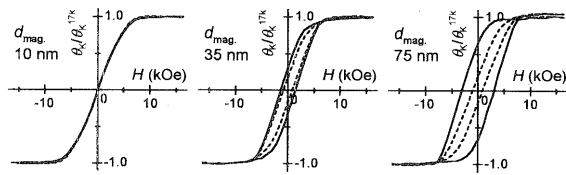
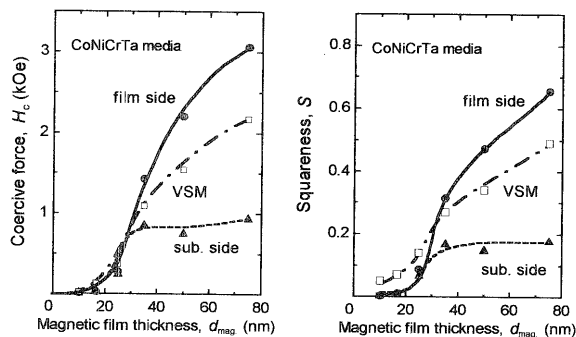


Fig. 3 Perpendicular magnetization curves evaluated by VSM for (a) CoNiCrTa media and (b) CoCrTaPt media with various film thicknesses deposited on a glass substrate.

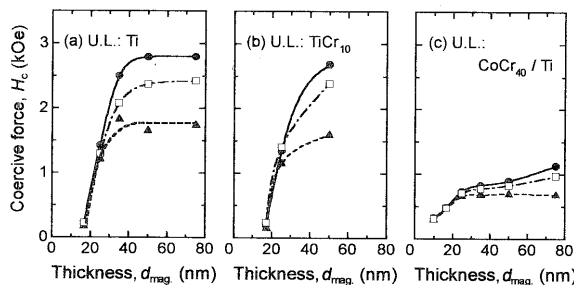


**Fig. 4** Perpendicular magnetization curves evaluated by polar Kerr magnetometer for CoNiCrTa media deposited on a glass substrate with film thicknesses of (left) 10 nm, (center) 35 nm, and (right) 75 nm.

のために VSM で測定した磁化曲線から導出した保磁力ならびに角形比についても示してある。保磁力に関しては、磁性層膜厚 25 nm 程度までは入射方向に依存せずほぼ同じ値を示しているが、磁性層膜厚が 30 nm 以上になると薄膜側から入射した場合に観測される保磁力が基板側から入射した場合に観測される保磁力よりも大きな値を示し、 $d_{\text{mag}} = 75 \text{ nm}$  の場合では、その差は 2 kOe に至っている。角形比の磁性層膜厚依存性も保磁力の場合と同様な傾向を示す。したがって、今回作製した垂直媒体では、垂直磁化過程においても膜厚方向に均一な磁化過程を有しておらず、薄膜表面側には保磁力・角形比ともに大きな磁化過程を有する層が存在し、薄膜基板側には保磁力・角形比が比較的小さい層が形成されていることがわかる。VSM による測定値は、 $d_{\text{mag}} < 30 \text{ nm}$  の場合を除き、保磁力および角形比のいずれの場合も、薄膜側および基板側から入射して観測される値の中間の値を示している。このことは、VSM により測定される磁化曲線が、膜厚方向に磁化過程の不均一な試料に対し、試料全体の平均的な磁化過程を反映していることを支持する結果であると考えられる。尚、 $d_{\text{mag}} < 30 \text{ nm}$  の場合、VSM で評価された角形比が上記の傾向を逸脱しているが、これは、磁化曲線の飽和部分と基板や試料ホルダの反磁性成分との明確な分離が困難であることによる測定誤差が主要因であると考えている。Fig. 6 には種々の下地層上に作製した CoNiCrTa 媒体の垂直保磁力の磁性膜厚依存性を示したが、いずれの下地層の場合も膜厚方向に磁化過程が一樣ではないことがわかる。

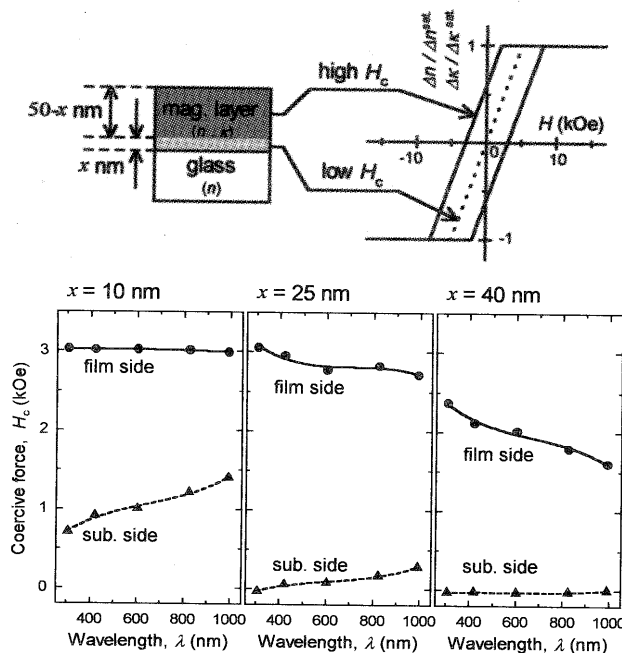


**Fig. 5** Coercive force and squareness for CoNiCrTa media with various film thicknesses deposited on glass substrate measured by a polar Kerr magnetometer with a wavelength of 990 nm (solid line: film side, broken line: substrate side, and dashed chain line: VSM).



**Fig. 6** Coercive force and squareness for CoNiCrTa media with various film thicknesses deposited on (a) Ti, (b) TiCr<sub>10</sub>, and (c) CoCr<sub>40</sub>/Ti underlayer by a polar Kerr magnetometer with a wavelength of 990 nm (solid line: film side, broken line: substrate side, and dashed chain line: VSM).

薄膜表面側と基板側に存在する磁化過程の異なる層の膜厚に関して、試料表層からの光の浸透深さを変化させた際に、すなわち、測定波長を変化させた際に、観測される極カー磁化曲線の相違から知見が得られないか検討した。実験に先だって測定波長を変化させた場合の磁化曲線の変化を概算するために、以下のような簡単な光学多層膜モデルを考案し極カー効果で観測される磁化曲線を計算した。Fig. 7 に考案した多層膜モデルと各層の磁化過程、ならびに光学多層膜モデルによる磁化過程の計算結果から導出した保磁力の波長依存性を示す。モデル媒体では薄膜表面側に存在する保磁力・角形比が大きい層の磁化過程 ( $H_c^{\perp} = 3.0 \text{ kOe}$ ,  $S^{\perp} = 0.6$ ) と薄膜基板側に存在する保磁力・角形比が小さい層の磁化過程 ( $H_c^{\perp} = 0 \text{ kOe}$ ,  $S^{\perp} = 0$ ) とを図のように仮定し、低保磁力層の膜厚を  $x \text{ nm}$ 、全膜厚を  $50 \text{ nm}$  とした。磁気光学定数の差が垂直磁化成分に比例することを考慮すれば、磁化過程の形状を光学多層膜計算に取り入れることができる。



**Fig. 7** Optical multilayer model and calculation results for (left)  $x = 10 \text{ nm}$ , (center)  $x = 25 \text{ nm}$ , and (right)  $x = 40 \text{ nm}$ , where  $x$  is the thickness of a layer with low coercive force.

基板側の低保磁力層の膜厚  $x$  を変化させた場合に薄膜側および基板側から光を入射した場合の磁化曲線を計算し保磁力を導出した。  $x=10$  nm の場合には、薄膜側から光を入射した場合の保磁力は 3 kOe であり波長依存性を示さない。一方、基板側から入射した場合に観測される保磁力は波長依存性を示す。すなわち  $\lambda=1000$  nm 付近で 1.4 kOe であるが短波長化にともない単調に低下し、  $\lambda=400$  nm 付近では 1.0 kOe を下回る値となっている。  $x=25$  nm の場合には、薄膜側および基板側から観測される保磁力は測定波長範囲で 300 Oe 程度変化し、薄膜側から入射した場合は短波長化にともない 2.7 kOe から 3.0 kOe へと単調増加傾向、基板側から入射した場合には 300 Oe から 0 Oe へと単調減少傾向を示している。  $x=40$  nm の場合には、  $x=10$  nm の場合と傾向が逆転し、基板側から測定した場合には波長に依らず保磁力は 0 Oe を示すのに対し、薄膜側から入射した場合の保磁力は、短波長化にともない 1.6 kOe から 2.0 kOe へと単調増加傾向を示している。これらの結果は、検討した 400 nm から 1000 nm の可視光近傍領域の光は、波長によって磁性層への浸透深さが異なっており、  $\lambda=400$  nm 付近の入射光を用いた場合には磁性層入射側界面から 10 nm 以上 25 nm 以下、  $\lambda=1000$  nm 付近の入射光を用いた場合には、 25 nm 以上 40 nm 以下の試料の磁化情報を反映した磁化曲線が得られることを示唆している。

Fig. 8 に CoNiCrTa 媒体の保磁力の波長依存性の実験結果を示す。図中には比較のために VSM による測定値も示してある。参考のため、膜厚 7.5 nm の Ti 下地層上に作製した媒体の保磁力の波長依存性についても示した。ガラス基板上に直接作製した媒体の場合、薄膜側から入射した場合に観測される保磁力は 2.4 kOe 程度で波長に対して一定値を示すのに対し、基板側から測定した場合には、  $\lambda=990$  nm で約 1.0 kOe、  $\lambda=420$  nm においては約 700 Oe 程度の値を示し、測定波長が短くなるにつれて単調に減少している。Ti 下地層を設けた試料についても、ガラス

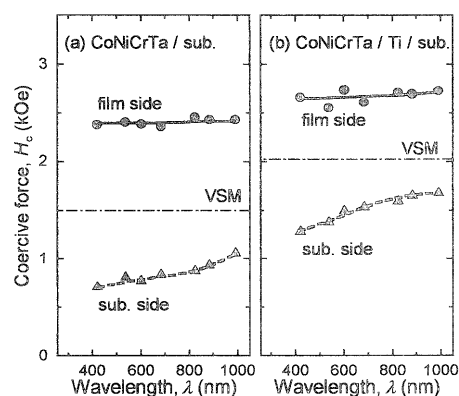


Fig. 8 Coercive force for CoNiCrTa media with a film thickness of 50 nm, with and without a Ti underlayer, as a function of incident light wavelength.

基板上に直接作製した媒体の場合と同様の波長依存性を示す。以上のガラス基板上に作製した CoNiCrTa 媒体についての波長依存性の実験結果は、光学多層膜モデルを仮定した計算結果 (Fig. 7 参照) の  $x=10$  nm の場合に相当することから、試料中の薄膜表面側には 25 nm 以上にわたって、高い保磁力を有する磁化過程が均一な層が存在し、薄膜基板側には 10 nm 程度の低保磁力層の存在が示唆される。このように初期層の存在により、垂直薄膜媒体では、面内磁化過程だけでなく垂直磁化過程も膜厚方向で非一様であることが実験的に検証された。

#### 4. まとめ

微結晶初期層およびコラム状組織が形成されている CoCr 基垂直薄膜媒体に関して、膜厚方向の磁化過程の不均一性を光学的解析により検討した。磁気カー効果を利用して磁化曲線の入射方向依存性および波長依存性を測定した結果、以下のことが明らかになった。

- ① 薄膜側および基板側から光を入射させて縦磁気カー装置による面内磁化曲線を測定することにより、CoNiCrTa 媒体中の薄膜表面側に存在する面内磁化困難層、基板側に存在する面内磁化容易層の磁化過程を分離検証できる。
- ② 極磁気カー装置による垂直磁化曲線により 50 nm 厚の CoNiCrTa 媒体の垂直保磁力を評価すると、薄膜側入射した場合に観測される保磁力は 2.4 kOe 程度の一定値を示すが、基板側入射した場合の保磁力は波長依存性を有し、  $\lambda=990$  nm で約 1.0 kOe、  $\lambda=420$  nm においては約 700 Oe 程度の値を示す。光学多層膜解析の結果、薄膜表面側には高垂直保磁力、高垂直角形比を有する層が 25 nm 以上にわたって存在しており、薄膜基板側には低垂直保磁力、低垂直角形比を示す層が 10 nm 程度存在していることが半定量的に解析できる。

謝辞 縦カー磁化曲線の測定に際し御協力頂きました成瀬科学器械株式会社に感謝いたします。

#### 文献

- 1) J.W.Smits, S.B.Luitjens and R.W.J.Geuskens: *IEEE Trans. Magn.*, MAG-20, 60 (1984).
- 2) 中川茂樹, 高山哲龍, 直江正彦: 日本応用磁気学会誌, 21, Suppl. No.S1, 29 (1997).
- 3) S.Yoshimura, D.D.Djayaprawira, H.Shoji and M.Takahashi: *J. Appl. Phys.*, 87, 6866 (2000).
- 4) 齊藤伸, 長谷川大二, D.D.ジャヤプラウィラ, 高橋研: 日本応用磁気学会誌, 25, (2001) 印刷中.
- 5) 例えば E.R.Wuory and J.H.Judy: *IEEE Trans. Magn.*, MAG-20, 774 (1984) 等 多数