

氏名	橋本篤志		
授与学位	博士(工学)		
学位授与年月日	平成19年3月27日		
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項		
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程) 電子工学専攻		
学位論文題目	グラニューラ型垂直磁気記録媒体における軟磁性裏打ち層の高性能化および非磁性中間層の極薄化に関する研究		
指導教官	東北大学教授 高橋 研		
論文審査委員	主査 東北大学教授 高橋 研	東北大学教授 佐橋 政司	
	東北大学教授 村岡 裕明	東北大学教授 大野 英男	
	東北大学教授 杉本 諭		

## 論文内容要旨

### 第1章 序論

本章では、ハードディスクドライブ(HDD)における垂直磁気記録媒体の記録密度向上のための研究経緯と問題点から、本研究の展開について概説している。

HDDにおいてこれまで主流であった面内磁気記録方式は、ヘッド磁界の収斂性の制約と媒体の熱擾乱耐性の問題から記録密度が物理的限界に近づいている。これに対し単磁極ヘッド-軟磁性裏打ち層(SUL)-リターンヨークなる記録ヘッド系磁気回路を有する垂直磁気記録方式は、上記条件が緩和されるため盛んに研究され、民生用途から実用化されつつある。ただし垂直磁気記録媒体では、記録層の他に、厚い非磁性中間層(NMIL)およびSULが必要となるため、SUL起因のノイズや情報消去の発生、NMILの薄膜化にともなうグラニューラ型記録層(G-RL)の磁性結晶粒間の交換結合の増加や垂直磁気異方性エネルギー( $K_{u,RL}$ )の低下、といった問題点がある。

そこで本研究では、まずSULに起因するスパイクノイズおよび隣接トラック情報消去(WATE)の同時抑制方針を考察し、更にそれを具現化するSULの層構成および材料・設計指針を提案した。次にNMILの膜厚低減のために、多層化して機能を分離し、形状制御層および成長制御層のそれぞれを薄膜化することを提案した。

### 第2章 実験方法

本章では、本研究で用いた金属薄膜・積層膜の成膜方法ならびに構造解析・磁気測定法に関して記述している。第5章で議論する薄膜の表面粗さは、結晶粒径程度(数nm)の面内周期のため、X線反射率プロファイルのフィッティングにより解析した。

### 第3章 スパイクノイズならびに隣接トラック情報消去を抑制するための軟磁性裏打ち層の設計指針

本章では、磁壁エネルギーの計算によりSULの設計指針を導いている。スパイクノイズならびにWATEの同時抑制のためには、SULの磁壁構造および磁化過程を制御することが重要である。スパイクノイズの抑制には、膜垂直方向への漏れ磁束の低減のために単磁区化もしくは面内回転型磁壁の形成が必要と考えられる。一方WATEの抑制には、記録時に還流する磁束密度の分散のために膜垂直方向の磁化率( $\chi_{\perp}$ )の低減が必要と推察される。これら二つの思想を両立させるために数値計算を行ったところ、SULへの磁氣的層間結合エネルギーもしくは負の垂直磁気異方性エネルギー( $K_{uL}$ )の付与が重

要であることがわかった。一例として、 $M_s = 1000 \text{ emu/cm}^3$ であるSULに $-6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ の $K_{u1}$ を付与すると、SULとして実用的な膜厚範囲 ( $\leq 90 \text{ nm}$ ) で磁壁構造は面内回転型となり、かつ $\chi_1$ は $K_{u1} = 0$ の場合と比較して半減する、と見積もられた。

#### 第4章 磁氣的層間結合および負の垂直磁気異方性エネルギーを付与した軟磁性裏打ち層の特性

本章では、第3章で導かれた設計指針を具現化する種々のSULを作製し、その磁気特性を評価している。上記の指針を具現化するために、反強磁性(AFM)/軟磁性(FM)積層SUL、FM/非磁性(NM)/FM積層SUL、負の結晶磁気異方性エネルギー ( $K_{u3}$ )を有する材料による単層SUL、の3種類の手法を試みた。

##### 2-1) AFM/ FM 積層による単磁区化SUL

AFM/ FM 積層膜では、積層界面に働く一方向異方性  $J_K$ により単磁区化されるため零磁界下で磁壁を排除でき、かつ  $J_K$ の増大により $\chi_1$ を低減できる。単磁区化膜をSULとして用いるためには、Bloch磁壁移動型磁化反転部分を形成させないもしくはなるべく再生ヘッドから距離をおくことと、ドライプロセス工程数を低減させること、との両立を図る必要がある。実現のためにAFM層をSUL表層に設け、主たるFM層を簡便なめっき法で作製するトップピン型のSULを提案した。その結果、トップピン型めっきSULでは従来のボトムピン型SULと比較して5工程ものドライプロセス削減に成功し、かつスパイクノイズおよびWATEの同時抑制を実現できることがわかった。

##### 2-2) FM/ NM/ FM 積層による反平行配列SUL

FM/ NM/ FM 積層による反平行配列膜では、RKKY的相互作用による反強磁性的層間結合を増強することにより、磁壁構造をネール型とするとも $\chi_1$ を低減可能である。したがって反平行配列膜をSULとして用いるためには、高 $M_s$ 材料を用いて界面を平坦化しつつ、大きな反平行結合を導出する必要がある。Fig.1には、高 $M_s$ 材料であるFeCoにボロンを添加してサブナノ結晶化した平滑FeCoB層を用いたFeCoB/ Ru/ FeCoB積層膜のフロップ磁界 ( $H_{ex}$ )の大きさを、Ru膜厚 ( $d_{Ru}$ )とFe組成を変化させて検討を行った実験結果を示す。Fe量の増加につれて $H_{ex}$ のピークをとるRu膜厚は低膜厚側へシフトし、 $H_f$ の1stピーク値はFe = 65 at% ( $M_s: 1520 \text{ emu/cm}^3$ )の時に107 Oe ( $d_{Ru} = 0.3 \text{ nm}$ )と著しい最大値を示す。この $H_f$ は、従来SUL材料として用いられていたCoZrNb ( $M_s: 1090 \text{ emu/cm}^3$ )を用いたFM/ NM/ FM積層膜と比較して3倍以上の値である。(Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>)<sub>88</sub>B<sub>12</sub>を用いた反平行配列膜において反強磁性的層間結合の指標となる $H_f$ を大きく導出できた理由は、FeCoへのボロン添加によりRu層との界面粗さを算術平均粗さにして0.3 nmまで低減できたこと、また、これにともない極薄膜厚領域においてもRuを連続膜として形成できたことが挙げられる。

##### 2-3) 負の $K_{u3}$ を有する材料を用いた単層SUL

負の $K_{u1}$ を有するSULを実現するために、一軸結晶磁気異方

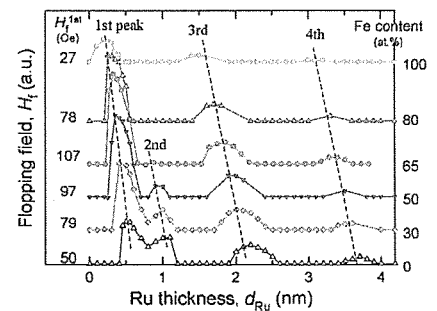


Fig.1 種々の Fe 組成を有する FeCoB/Ru/FeCoB 積層膜の  $H_f$  の Ru 膜厚依存性

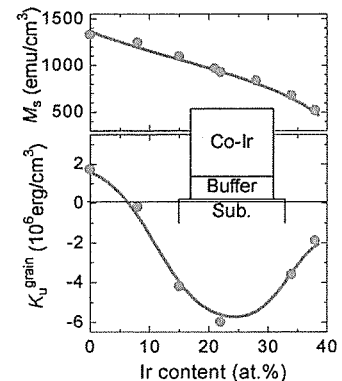


Fig.2 c 面配向させた CoIr 薄膜における  $M_s$ ,  $K_{u3}$  の、Ir 組成依存性

性エネルギー ( $K_u^e$ ) が負である材料を  $c$  面配向させる手法を提案した.  $K_u^e < 0$  材料として hcp-CoIr を選択し, 実際に  $c$  面配向膜を作製したところ, Ir = 22 at% で  $K_u^e$  は極小値  $-6 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> ( $M_s = 920$  emu/cm<sup>3</sup>) を示した (Fig. 2). 更にこの  $c$  面配向 CoIr 膜を SUL として用いた垂直磁気記録媒体を作製したところ, 80 nm 以内という SUL の実用膜厚範囲でスパイクノイズならびに WATE の同時抑制効果が確認された.

## 第5章 グラニュラ型記録層用非磁性中間層の薄膜化

本章では, G-RL の構造制御層である NMIL を薄膜化するための材料設計指針を提言している. NMIL は, その上に作製される G-RL の磁性結晶粒間の磁氣的孤立化を促進させ, 高  $K_u^{RL}$  を導出させるという二つの機能を有する. 一般に, G-RL の磁氣的孤立性には磁性結晶粒の初期部成長様式が, 高  $K_u^{RL}$  の導出には磁性結晶粒の結晶構造および結晶配向が影響することが指摘されている. したがって G-RL 中の磁性結晶粒の成長および結晶構造を制御するためには, NMIL の表面性状, 結晶相, ならびに磁性結晶粒との濡れ性およびミスフィットの制御が必要不可欠となる.

### 3-1) 磁性結晶粒のバリエント成長抑制のための fcc 構造 NMIL への積層欠陥の導入

fcc 構造の NMIL を用いる際は, 磁性結晶粒のバリエント成長を抑制するために配向している (111) 面と平行に積層欠陥を形成させることが重要である. Fig. 3 には, 積層欠陥を導入していない fcc Pt 上の RL の断面 TEM 像を示す. 磁性結晶粒は, 70 度方向の原子テラスに存在する (111) 面にもエピタキシャル成長, すなわちバリエント成長していることがわかる. そこで適切な元素添加量により fcc Pt 層に積層欠陥を導入すると, その上に積層した G-RL のバリエント成長が抑制される結果, 磁気特性が向上することわかった (fig. 4).

### 3-2) グラニュラ型記録層の磁氣的孤立化促進のための NMIL の表面粗さの増強

NMIL 上の磁性結晶粒は, 1) 成長初期部で NMIL の表面に Co 基金属が析出し, 2) NMIL 表面の凸部上の磁性結晶粒が優先成長し, 3) 富酸化物が凹部に析出する, といった成長様式をとることによりファイバ状の一方凝固組織となる. このことから, G-RL の磁氣的孤立性には NMIL の表面凸部が初期核発生サイトとして機能するため, 表面粗さの形成が重要となることが予想される. 検討の結果, G-RL の規格化保磁力 0.3 以上の良好な磁氣的孤立性を得るためには, NMIL の表面粗さを, 二乗平均粗さにして 1.5 nm 以上に増強する必要がある, その手段として NMIL の格子定数をバルク値から 0.3 % 以上伸張させることが重要であ

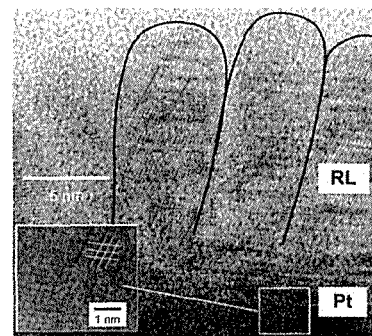


Fig. 3 Pt を NMIL として用いた媒体における, Pt と磁性結晶粒の積層界面の断面 TEM 像

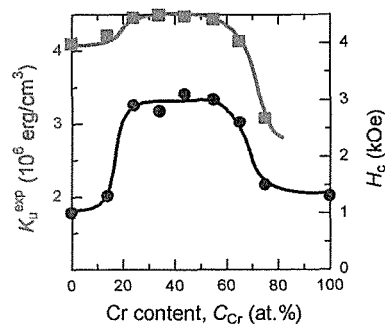


Fig. 4 PtCr を NMIL として用いた媒体の  $H_c$  および  $K_u$  の, 添加 Cr 濃度依存性

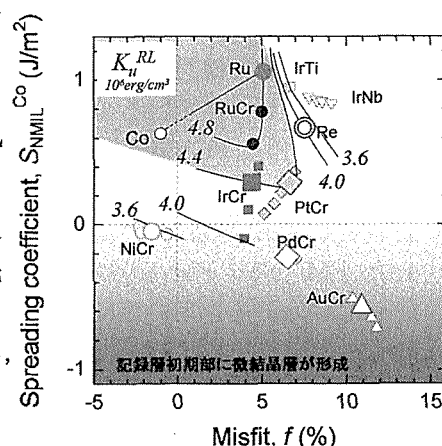


Fig. 5 種々の NMIL 上の磁性結晶粒のミスフィット  $f$  および拡張係数  $S_{NMIL}^{Co}$  に対する  $K_u^{RL}$  の変化

ることがわかった。

### 3-3) グラニューラ型記録層の $K_u^{RL}$ におよぼす NMIL の濡れ性, ミスフィットの影響

G-RL の高  $K_u^{RL}$  化のためには, 磁性結晶粒の高結晶配向化および磁性結晶粒中の積層欠陥の低減が重要である. NMIL 上の磁性結晶粒の濡れ性が悪いと成長初期核が小さくなり結晶磁区の配向分散が増大し, ミスフィットが大きいと磁性結晶粒中の積層欠陥が増加するため, いずれも  $K_u^{RL}$  を低下させてしまう. そこで, 磁性結晶粒との濡れ性とミスフィットに対して G-RL の  $K_u^{RL}$  をプロットすることにより, 高  $K_u^{RL}$  化を可能とする合金 NMIL 材料を探索した(Fig.5). その結果, ミスフィットは 6 %以内, 濡れ性の指標となる拡張係数  $S_{NMIL}^{Co}$  を  $0.2 J/m^2$  以上に設計することにより, その上の磁性結晶粒が良好に  $c$  面配向エピタキシャル成長する結果, 高い  $K_u^{RL}$  を示すことを見出し, この指針に沿って, RuCo 新材料を提案した.

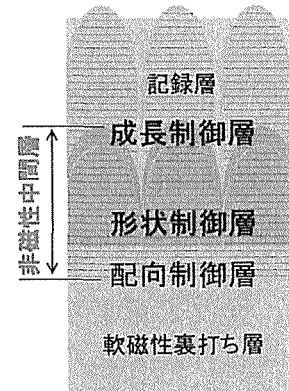


Fig.6 多層化 NMIL の構成図

### 3-4) NMIL の薄膜化の指針

3-1)から 3-3)までの検討結果を踏まえ, NMIL の薄膜化の指針を検討した. その結果, NMIL を, 上部の層の結晶配向を制御する配向制御層, 表面凹凸を形成する形状制御層, 磁性結晶粒を良好にエピタキシャル成長させる成長制御層からなる多層構造とし, 各々の層で薄膜化することを提案した (Fig.6). 更に多層 NMIL とすることにより, NMIL の総厚を現状の 20 nm から 6 nm 程度にまでに低減できる可能性を見出した.

## 第6章 結論

本章では, 本研究で得られた結論を総括している.

SUL については, スパイクノイズと WATE を同時に抑制することが重要であり, SUL に磁氣的層間結合, もしくは負の  $K_u$  を付与すること有効であること, を実験により明らかとした. NMIL については, その薄膜化と G-RL の構造および磁気特性の制御とを両立させることが重要であり, NMIL を前記機能に応じて多層化して各々の層の薄膜化を図った結果, 全 NMIL 厚さを 6 nm 程度まで薄膜化できる可能性を見出した.

# 論文審査結果の要旨

垂直磁気記録媒体の高記録密度化のためには、軟磁性裏打ち層 (SUL) 起因の信号品質劣化の抑制、ならびに非磁性中間層 (NMIL) の極薄化が必須となる。著者は、SUL の磁壁構造および磁化過程の制御により、スパイクノイズと隣接トラック情報消去 (WATE) の同時抑制に成功した。さらには、グラニューラ型記録層の磁気特性向上のための NMIL の材料探索を通して、その薄膜化への指針を示した。本論文は、以上の研究成果をまとめたもので、全文 6 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景および目的を述べている。

第 2 章では、本研究で用いた試料の作製方法、構造解析法、磁気測定法に関して記述している。

第 3 章では、磁壁エネルギーの計算により SUL の設計指針を導いている。スパイクノイズの抑制手法としてはブロッホ型磁壁を排除し面内回転型磁壁を安定化すること、WATE の抑制手法としては SUL の垂直方向の磁化率を低減することを示した。これは、媒体の高密度化を図る上で有用な知見である。

第 4 章では、第 3 章で導かれた設計指針を具現化する種々の SUL を作製し、その磁気特性を評価している。極微結晶  $(\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35})_{88}\text{B}_{12}$  を用いた FeCoB/ Ru/ FeCoB 積層膜において、Ru 膜厚 0.3 nm の時に  $1.9 \text{ erg/cm}^2$  もの巨大な反平行結合エネルギーを得ることに成功した。また、*c* 面配向 CoIr 膜は  $-6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$  もの大きな負の一軸結晶磁気異方性エネルギーを有しつつ、膜面内では良好な軟磁気特性を示すことを見出した。これらは世界に先駆けた成果であり、磁性薄膜工学および磁気工学上非常に有用な知見である。

第 5 章では、グラニューラ型記録層の構造制御層である NMIL を薄膜化するための材料設計指針を提言している。磁性結晶粒のバリエーション成長を抑制する層状不整擬似六方晶中間層材料を発見し、材料設計の自由度を大幅に拡張した。また磁性結晶粒の中間層上へのエピタキシャル成長条件に着目し、濡れ性と格子整合性の適合条件を実験的に明らかにし、NMIL の総厚を 6 nm 程度まで低減できることを示した。これは、スパッタ法による金属合金薄膜の成長過程を制御する上で極めて重要な知見である。

第 6 章は結論である。

以上要するに本論文は、超高密度垂直磁気記録媒体に必要とされる裏打ち軟磁性層、非磁性中間層の材料設計指針を新規に提案しかつ実験的に検証したものであり、磁気記録工学及び電子工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。