

Atomic layer stacking structure and uniaxial magnetocrystalline anisotropy for c -plane oriented Co films sputtered on inclined crystal plane of Ru underlayer

Shintaro Hinata^{1,2}, Daiji Hasegawa³, Takuya Kimura², Shin Saito², Migaku Takahashi⁴ and Masashi Sahashi²

1. Japan Society for the Promotion of Science, Research Fellowship for Young Scientist (PD)

2. Department of Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University
6-6-05, Aza-Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

3. Waseda Institute for Advanced Study, Waseda University
1-6-1 Nishi Waseda, Shinjuku-ku, Tokyo 169-8050, Japan

4. New Industry Creation Hatchery Center (NICHe), Tohoku University
6-6-10, Aza-Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

Relation among structure of Ru underlayer and atomic layer stacking structure and uniaxial magnetocrystalline anisotropy (K_u) of sputtered Co films was discussed. Small torque with amplitude below theoretical limit $|K_u^{\text{Cobulk}} - 2\pi(M_s^{\text{Cobulk}})^2| = 6.8 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ was obtained for Co film with thickness $d_{\text{Co}} < 30 \text{ nm}$ deposited on rough Ru underlayer. Structure analysis of the thin Co films with $d_{\text{Co}} < 30 \text{ nm}$ deposited on rough Ru underlayer demonstrated that: 1) Magnitude of stacking faults were less than 1%, which meant the Co films had almost perfect hcp stacking, 2) Lattice constant c was expanded about 0.6% with retaining lattice constant a , 3) Thin Co films had rough surface which reflected morphology of the Ru underlayer. According to these results, it was thought that initial Co growth reflected vertical stacking of Ru underlayer on inclined crystal plane of the rough Ru underlayer. K_u was derived by correcting torque amplitude with self-demagnetizing energy considering surface morphology of Co film. K_u took maximal value of $5.0 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ at $d_{\text{Co}} = 30 \text{ nm}$, and rapidly decreased with decreasing d_{Co} . Reduction of K_u in $d_{\text{Co}} < 30 \text{ nm}$ might be caused by decrement of crystallographic uniaxial anisotropy for Co film due to expansion of the c axis.

Key words: c -plane oriented Co film, stacking faults, uniaxial magnetocrystalline anisotropy, epitaxial growth, bumped Ruthenium

Ru 下地層の傾斜結晶面上に成膜された c 面配向 Co スパッタ薄膜の原子積層構造および一軸結晶磁気異方性

日向 慎太郎^{1,2}, 長谷川 大二³, 木村 拓也², 斉藤 伸², 高橋 研⁴, 佐橋 政司²

1. 日本学術振興会 特別研究員 (PD)

2. 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 6-6-05 (〒980-8579)

3. 早稲田大学高等研究所, 新宿区西早稲田 1-6-1 (〒169-8050)

4. 東北大学未来科学技術共同研究センター, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10 (〒980-8579)

1. はじめに

Co 基合金薄膜の一軸結晶磁気異方性エネルギー (K_u) は、古くから、格子定数比 c/a や結晶粒中の積層欠陥 (Stacking Faults: SFs) の形成度合いに相関することが指摘されている¹⁻³⁾。これは、Co 基合金薄膜の K_u がスピン軌道相互作用 (λLS) に起因するためと理解されており、 c/a の変化、および六方晶 (hcp) 固有の原子積層 (-A-B-A-B-...) 中への局所的な面心立方晶 (fcc, -A-B-C-原子積層) の形成度合いにより結晶の等方性が増減し、 λL が変化することに起因すると考えられている⁴⁾。我々は過去に、スパッタ法で作製した c 面配向 Co-M (M: Cr, Mo, W) 合金薄膜中に形成される SFs を実験室規模の In-plane X 線回折 (XRD) により定量評価し、SFs と K_u との相関について評価した。その結果、Ru 下地上に室温で純 Co 薄膜を作製すると hcp 原子積層中に約 10% の確率で fcc 原子積層が導入され、 K_u がバルク値の半分程度にまで低下してしまうことを明らかにした^{5,7)}。そのためスパッタ Co 薄膜の完全 hcp 原子積層化は、その手法と共に非常に興味深い。一般にスパッタ法による Co 薄膜の成長過程は、1) 飛来した Co 原子がマイグレーションにより基板上で液滴を形成し、2) 液滴の中でも低温度の下地層側では徐々に

原子の秩序配列が形成され、3) 液滴下層側の固体-液体界面において、稠密面配向の場合 A-B-A-B または A-B-C 原子積層のいずれかの安定位置でほぼ層状に凝固が進行してゆくと考えられる。したがって、Co スパッタ薄膜の完全 hcp 原子積層化のためには、液滴中の固相表面における hcp 原子積層時の自由エネルギーを低下させることが重要となり、下地層の構造がそれに大きな影響を及ぼすことが考えられる。しかしながら、これまで SFs を簡便迅速な方法で定量評価する手法がなかったため、下地層の構造とその上に作製される Co 薄膜の原子積層について系統的に検討した報告は少ない。我々は c 面配向 Ru 薄膜が SFs のほとんど入らない六方晶原子積層構造をとる特徴をもち、かつ成膜時のガス圧や膜厚を変化させることにより、その粒径や、表面凹凸形状を変化させ得るという知見を別途得ている⁸⁾。そこで本研究では、種々の Ru 下地上に作製した室温成膜 Co 薄膜の SFs の導入度合いを調べ、Co スパッタ膜の完全六方晶積層化による高 K_u 化を実現する下地層構造について検討したので報告する。

2. 実験方法

試料はガス圧 0.6 Pa の成膜雰囲気下で dc マグネトロン

スパッタ法により室温で作製した。基板には厚さ 0.635 mm の 2.5 インチガラスディスクを用いた。成膜後の Co 薄膜の酸化を防ぐ目的で、膜表層には保護膜を 30 nm 設けた。保護膜の材料としては、後述の In-plane XRD の入射深さを低減させにくい C を選択した。尚、基板はカソードから 25 mm の距離に静止対向して設置されているため、成膜中にプラズマに覆われる膜の温度上昇が懸念される。そのため保護膜は、余熱による Co 薄膜の炭化を避ける目的で、Co の製膜後、真空槽中で 30 分程度保持した後に作製した。試料の層構成は glass sub./ Ta (5 nm)/ Pt (6 nm)/ Ru (Ar ガス圧 0.6, 8.0 Pa, 膜厚 5, 200 nm)/ Co (d_{Co} nm)/ C (30 nm) とした。Co 薄膜の構造は走査型透過電子顕微鏡 (STEM) および Cu $K\alpha$ 線を用いた Out-of-plane および In-plane XRD により観測した。In-plane 方向での XRD 観測は、X 線の入射角を 0.4° としたため、Co の場合表層から深さ約 20 nm までの結晶構造を反映する。hcp 原子積層構造における面直および面内方向の格子定数 c および a は、(00.2) および (11.0) の面間隔 $d_{0.2}$, $d_{1.0}$ を用いて

$$c = 2d_{0.2}, \quad a = 2d_{1.0} \quad (1)$$

により導出した。原子積層構造の評価は、In-plane XRD における (10.0) および (11.0) 回折線の強度比をローレンツ因子および原子散乱因子で補正した、補正強度比 Corrected $I_{10.0}/I_{11.0}$ により評価した。補正強度比は原子層 -A-B- の後に C 層が積層される確率 P_{fcc} と対応関係がある⁵⁻⁷⁾。尚、Ru 下地層の原子積層構造は In-plane XRD にて評価したところ、種々の成膜プロセスにおいて P_{fcc} が 1% 未満のほぼ完全な hcp 原子積層であった。磁気特性については、飽和磁化 (M_s) を振動試料型磁力計 (VSM) にて、 K_u をトルク磁力計にて測定される垂直トルク曲線の 2θ 成分振幅の印加磁界に対する飽和外挿値 $L_{2\theta}^{sat}$ から、

$$K_u = L_{2\theta}^{sat} + E_{demag} \quad (2)$$

により求めた。ここで、 E_{demag} は面内および面直方向において生じる反磁界による単位体積あたりの自己エネルギーの差であり、

$$E_{demag} = 1/2 (N_{out} - N_{inp}) M_s^2 \quad (3)$$

である。 N_{out} および N_{inp} はそれぞれ cgs-gauss 単位系における面直および面内方向の反磁界係数であり、平坦な薄膜の場合には $N_{out} = 4\pi$, $N_{inp} = 0$ である。

3. 実験結果および考察

3.1 種々の Ru 下地層上に作製した Co 薄膜の垂直磁気異方性

下地層の構造が Co 薄膜の積層欠陥に及ぼす影響を調べるため、構造の極端に異なる下地層の例として、凹凸および粒径の大きな Ru (Ru^{rough}) と小さな Ru (Ru^{flat}) とを選択した。 Ru^{flat} および Ru^{rough} 下地層成膜条件はそれぞれ Ar ガス圧 $P_{Ar}^{Ru} = 0.6$ Pa, $d_{Ru} = 5$ nm および $P_{Ar}^{Ru} = 8.0$ Pa, $d_{Ru} = 200$ nm とした。Fig. 1 には、 Ru^{rough} , Ru^{flat} 上に成膜した Co 薄膜の (a) 飽和磁化 M_s および (b) $L_{2\theta}^{sat}$ の膜厚依存性を示す。(a), (b) 中の点線はそれぞれ Co の M_s のバルク値 1429 emu/cm^3 ¹⁰⁾、および薄膜における $E_{demag} = -2\pi (M_s^{bulk})^2$ 、ならびに薄膜がバルク値と同等の $K_u^{bulk} = 5.97 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ ¹¹⁾ を有する場合のトルク振幅 $K_u^{bulk} - 2\pi (M_s^{bulk})^2$ を表している。Co 薄膜の M_s は、いずれの下地においても d_{Co} に依らずバルク値とほぼ同程度の値であった。一方 $L_{2\theta}^{sat}$ は、 $d_{Co} = 200$ nm から 1 nm への減少において Ru^{rough} 上では $-11 \times 10^6 \text{ dyne/cm}^2$ から $0.76 \times 10^6 \text{ dyne/cm}^2$, Ru^{flat} 上では $-12 \times 10^6 \text{ dyne/cm}^2$ から $-0.77 \times 10^6 \text{ dyne/cm}^2$ に減少した。この結果から、 $|L_{2\theta}^{sat}|$ は概し

d_{Co} が低下するにしたがい減少することがわかる。一般に薄膜における垂直トルク曲線の $|L_{2\theta}^{sat}|$ は $|K_u - 2\pi M_s^2|$ で表されるが、今回の実験結果によるといずれの下地を用いた場合も極薄膜領域において、バルク値から見積もられる振幅絶対値 $|K_u^{bulk} - 2\pi (M_s^{bulk})^2|$ を下回っている。更に、 Ru^{rough} と Ru^{flat} 下地層の場合の結果を比較すると、前者の $|L_{2\theta}^{sat}|$ はどの d_{Co} においても値が小さいことが見てとれる。

以降では、 Ru^{rough} 下地上の Co 薄膜に注目し、反磁界係数および K_u と d_{Co} との関係について、Co 薄膜の結晶構造および形状に注目して実験および解析を行った。

3.2 Co 薄膜の原子積層構造と形状

3.2.1 原子積層構造

Fig. 2 は種々の d_{Co} における Co 薄膜の (a) out-of-plane および (b) in-plane XRD プロファイルである。参考のためプロファイルの下部および上部にはそれぞれ Ru および Co の粉末回折プロファイルも示した。(a) 中の $d_{Co} = 4, 8, 12, 16$ nm の試料については強度を 10 倍に拡大したプロファイルも示している。Out-of-plane 方向では 44.5° 近辺に、in-plane 方向では 40° および 75° 近辺に回折が観測されている。これらの回折は、hcp Co の粉末回折プロファイルと比較するとそれぞれ Co の (00.2) および (10.0) ならびに (11.0) からの回折線に対応していることがわかる。したがって、成膜した Co 薄膜は c 面配向した六方晶構造をとっていることがわかる。 d_{Co} の減少にともない Co (00.2) 回折線は $d_{Co} < 30$ nm において低角側に推移している。また Co (10.0) 回折線の強度が (11.0) 回折線と比較して増加している (Fig. 3 (b) 網掛け部)。これらの結果は、 d_{Co} の低下にともない Co の格子定数 c の伸張および SFs の形成度合いの減少が生じていることを示している。

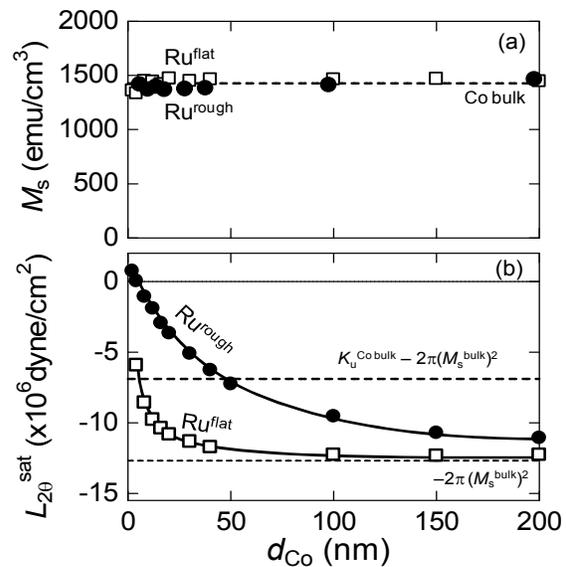


Fig. 1 (a) Saturation magnetization M_s and (b) 2 theta component of the saturation torque $L_{2\theta}^{sat}$ as functions of thickness of Co film d_{Co} . Solid circle and open square plots relate to Co films deposited on Ru underlayer of 8.0 Pa, 200 nm (Ru^{rough}), and 0.6 Pa, 5 nm (Ru^{flat}), respectively. Dotted lines in (a) and (b) show M_s for Co bulk, self-energy by demagnetizing field and $L_{2\theta}^{sat}$ for the Co films with uniaxial magnetocrystalline anisotropy K_u of Co bulk.

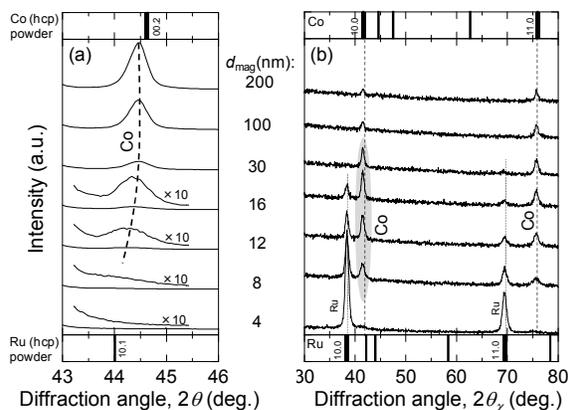


Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD profiles for the Co films deposited on Ru^{rough}. Upper and bottom profiles show powder diffraction patterns of hcp Co and Ru, respectively.

Fig. 3 には (a) 格子定数 a , c および (b) c/a の d_{Co} 依存性を示す。(b) 中の破線は、剛体球モデルにおける $cl/a = 1.633$ である。 a は d_{Co} の減少に対しほぼ一定であるのに対し、 c は d_{Co} が約 30 nm 以下へと減少すると、約 4.07 Å から 4.10 Å にまで大幅に増大することがわかる。この結果は、 c の増大は、バルク Ru の c が約 4.28 Å であることを考慮すると、Co 薄膜の格子定数が Ru のそれへと漸近したことを示唆しているが、六方稠密面配向膜における格子整合の効果が a ではなく c に現れていることが特徴的である。これにともない、 cl/a は c の変化に対応し、 $d_{Co} < 30$ nm において d_{Co} の減少にともない約 1.622 から 1.631 へ急激に増大し剛体球モデルでの幾何学的理論値 1.633 に近づく傾向を示している。よって Ru^{rough} 上の Co 薄膜では、結晶の対称性が d_{Co} の減少にともない等方的となる方向へと変化していることがわかる。

Fig. 4 には Co の原子積層構造の指標として、補正強度比 Corrected I_{100}/I_{110} の d_{Co} 依存性を示す。副軸には補正強度比に対応する P_{fcc} を示した。Co 薄膜の補正強度比は、

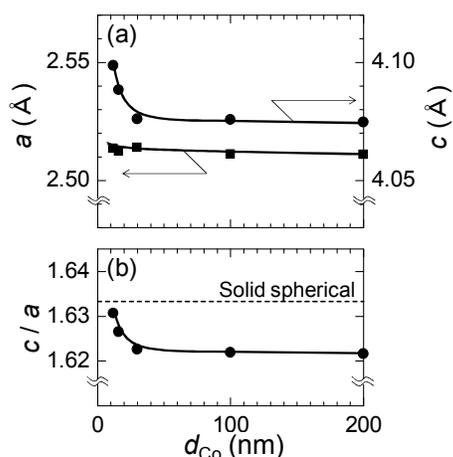


Fig. 3 (a) Dependence of lattice constant a (left vertical axis), c (right vertical axis), and (b) lattice constant ratio c/a on d_{Co} for Co films deposited on Ru^{rough}. Dashed line indicates c/a for solid spherical model.

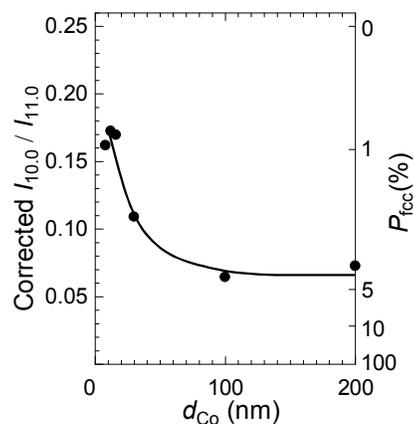


Fig. 4 Dependence of corrected I_{100}/I_{110} on d_{Co} for Co films deposited on Ru^{rough}. The right vertical axis indicates the probability of -A-B-C- atomic-layer stacking, P_{fcc} ⁶⁾.

d_{Co} が 200 から 8 nm へ低下するにしたがい約 0.06 から 0.18 にまで増大することがわかる。この補正強度比の増大は P_{fcc} の約 4 から 1% への減少に対応している⁶⁾。すなわち今回の試料では、室温にてスパッタ成膜した Ru^{rough} 上の Co 薄膜の原子積層構造が $d_{Co} = 8$ nm の極薄膜領域においてほぼ完全な hcp 積層をとっていることを示唆しており、下地層の構造も上部に積層される Co 薄膜の SFs の排除に影響を及ぼすことを明解に示している。

3.2.2 薄膜形状

Ru^{rough} 上に作製された Co 薄膜の形態を観測した。Fig. 5 には $d_{Co} = 4$ nm の Co 極薄膜を Ru^{rough} 上にスパッタ成膜した試料の断面視野の STEM 像を示した。上段から下段に向けて、(a) 暗視野 STEM 像、(b) Ru の L 線のエネルギー分光型 X 線分析 (EDX) 像、(c) Co の K 線の EDX 像であり、View1 と View2 はそれぞれ異なる視野での観測結果である。

Ru の EDX 像から、作製された Ru 層先端部は、粒径約 22 nm、頂点-谷部の距離が最大約 17 nm の凹凸構造を有していることがわかる。また、Co の EDX 像から、Ru^{rough}

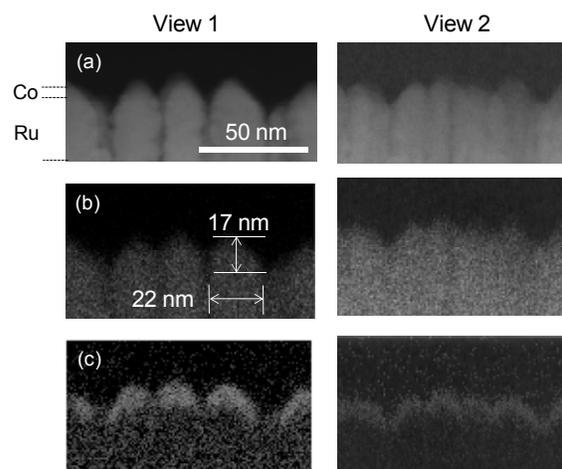


Fig. 5 Cross sectional STEM images of (a) dark field and (b) Ru, and (c) Co EDX maps for a 4-nm Co film on Ru^{rough}. View1 and 2 show different fields of views.

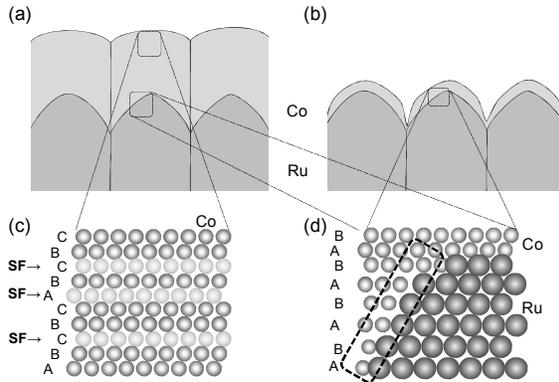


Fig. 6 Schematics of cross sections of the (a) thick and (b) thin Co films deposited on Ru^{rough}, and schematics of stacking structure around (c) surface and (d) boundary between Co and Ru layers. Small and large spheres indicate Co and Ru atoms, respectively.

上に作製された Co 極薄膜は下地層の表面をほぼ均質に被覆しており、Ru の表面凹凸を反映した形状を有していることがわかる。

3.2.3 傾斜結晶面を有する Ru 下地層上への Co 薄膜の結晶成長様式

上記の形態および結晶構造の解析結果から、Co 薄膜の成長様式を推察した。Fig. 6 には粗れた Ru 下地層上に成膜された Co 薄膜について (a) 厚膜 ($d_{Co} > 30$ nm) および (b) 極薄膜 ($d_{Co} < 8$ nm) の断面構造の模式図、ならびに (c) Co 厚膜の表層および (d) Co-Ru 界面における原子積層構造を示した。大小の球はそれぞれ Ru および Co 原子を示しており、積層構造の左には稠密充填の積層位置 (A, B, C) を表記した。

飛来したスパッタ Co 原子は Co 厚膜の表層においては凝固した Co 結晶粒上にスパッタ Co が液滴をなし、凝固析出する。その際 4%程度の割合で A-B-C 原子積層が膜中に形成される (Fig. 6 (c))。一方、成膜初期の Ru と Co との界面付近においては Ru 下地層の傾斜結晶面上にマイグレーションしたスパッタ Co が液滴をなすと考えられる。実験結果によると A-B-C 原子積層の形成度合いは 1%以下で、ほぼ完全な hcp 原子積層が実現されていた (Fig. 6 (d))。3.2.1 において、極薄膜領域において c のみが増大したことを考慮すると、この Co-Ru 界面における積層欠陥の低下は、Co 原子が Ru の傾斜結晶面上において面直方向の Ru の原子配列をも反映して格子整合析出したために、膜法線方向への -A-B-A-B-原子積層が実現したと考えられる (Fig. 6 (d), 破線)。また、Co 薄膜の a が膜厚の変化に対して一定であった要因としては、Ru 表面が傾斜結晶面で構成されていたため、Co が Ru の a を参照することができなかったことが挙げられる。

3.3 Co 薄膜の垂直磁気異方性エネルギーの解析

3.3.1 反磁界による自己エネルギー

3.2.2 における断面構造の観察結果から、Co は $d_{Co} = 4$ nm 前後においては凹凸形態を有することが判明した。そのため、 K_u の導出には、 L_{20}^{sat} の Co 薄膜の形状を考慮した反磁界補正が必須である。前節までに結晶磁気異方性の所以となる結晶構造を議論した。本節では、 L_{20}^{sat} に及ぼす結晶磁気異方性エネルギーの項を極力排除して反磁界による自己エネルギーを評価し、反磁界係数を導出する。具体的

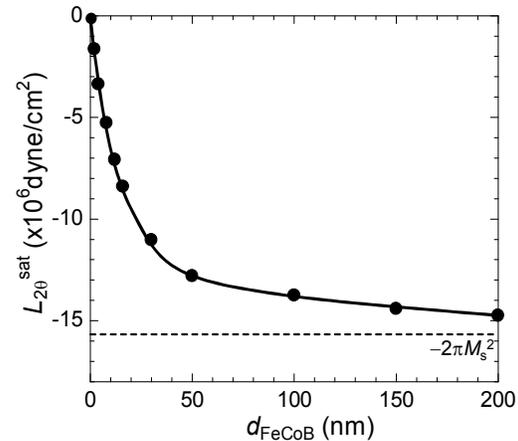


Fig. 7 Dependence of L_{20}^{sat} on thickness of FeCoB film d_{FeCoB} for FeCoB amorphous films deposited on Ru^{rough}. Dashed line shows self energy due to demagnetization field $-2\pi M_s^2$.

には、アモルファスの CoFeB 薄膜を粗れた Ru 下地層上に成膜し、その垂直トルク曲線を測定した。

Fig. 7 には Ru^{rough} 上に作製したアモルファス FeCoB 薄膜における L_{20}^{sat} の磁性層膜厚 d_{FeCoB} 依存性を示す。図中の破線は FeCoB 薄膜の $M_s = 1580$ emu/cm³ から導出した、磁性膜の形状が完全に平坦な場合の $L_{20}^{sat} = -2\pi M_s^2$ である。Ru^{rough} 上に作製された FeCoB 薄膜の L_{20}^{sat} は、 $d_{FeCoB} = 200$ nm の厚膜領域では $-2\pi M_s^2$ に対し約 95% 程度の値を有するが、 d_{FeCoB} の低下にともない大きさが低下することがわかる。

Fig. 8 には FeCoB 薄膜の L_{20}^{sat} から導出した反磁界係数差 ($N_{out} - N_{inp}$) の d_{FeCoB} 依存性 (●)、および妥当性検証のために数値計算により導出した反磁界係数差 (□) を示す。数値計算では、膜中の平均的な反磁界を求め $4\pi M_s$ で規格化することで反磁界係数を導出した。尚、1 結晶粒のモデルは断面 TEM 像を参考に作成した。反磁界計算の手順と

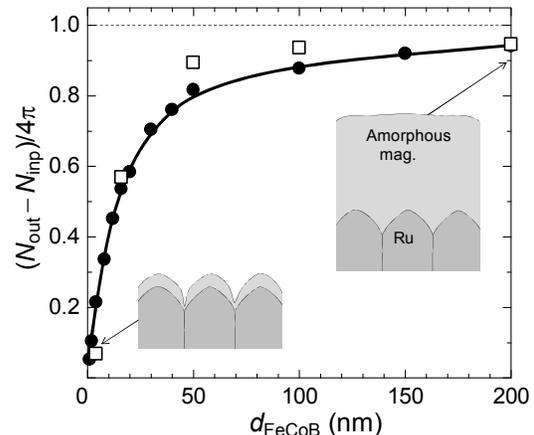


Fig. 8 Demagnetization factor as a function of d_{FeCoB} for FeCoB amorphous films deposited on Ru^{rough} (●) and calculated value (□). Insets show schematics of cross sectional views for the amorphous FeCoB films on Ru^{rough}.

Table 1 Parameters for numerical analysis to derive the demagnetizing factor of ferromagnetic films deposited on a rough underlayer.

d_{ferro} (nm)	Numbers of grains	Numbers of division/ grain	
		in-plane	Out-of-plane
4	32768	2048	32
16	32768	2048	64
50	8192	2048	64
100	8192	2048	128
200	8192	2048	128

しては、まず各々の強磁性結晶粒の表面（磁性層-下地層界面および磁性層-真空界面）に磁極を設置した。次にその点磁極が膜中を作る平均的な反磁界を、磁性膜を三角柱形状のメッシュに区切り、各々の重心位置での磁界を平均化することで導出した。Table 1には薄膜モデル中の結晶粒の数、および1結晶粒内の分割数を示す。挿入図は厚膜および極薄膜領域におけるFeCoB薄膜断面構造の模式図である。FeCoB薄膜の $L_{2\theta}^{\text{sat}}$ から導出した結果を見ると、厚膜領域での反磁界係数差は、平坦な薄膜における値 4π の約95%程度の値を有している。一方 d_{FeCoB} が低減するにつれて反磁界係数差は減少し、 $d_{\text{FeCoB}} = 4$ nmの極薄領域では約20%以下にまで低下することがわかる。この薄膜化による反磁界係数差減少の傾向は数値解析の結果においても顕著に現れている。

3.3.2 一軸結晶磁気異方性エネルギー

前節で導出した E_{demag} によりCoの K_u 導出を試みる。また、 K_u と結晶構造との相関についても議論するため、Coの原子積層構造および c/a についても示す。Fig. 9はRu^{rough}上に作製したCo薄膜の(a) K_u および(b) P_{fcc} ならびに(c) 格子定数比 c/a の d_{Co} 依存性である。 K_u は、 $L_{2\theta}^{\text{sat}}$ から各 d_{Co} 毎の $E_{\text{demag}} = 1/2 (N_{\text{out}} - N_{\text{imp}}) M_s^2$ を差し引いて導出した。(c)中の破線は剛体球モデルでの c/a である。 K_u は $d_{\text{Co}} = 200$ nmから30 nmへの減少につれて約 2.0×10^6 erg/cm³から極大値 5.0×10^6 erg/cm³まで増大し、 $d_{\text{Co}} < 30$ nmでは急激に低下している。 K_u が d_{Co} に対し極大を示した結果に関して、結晶構造と照らしあわせながら考察を行う。 P_{fcc} は100 nm近辺から30 nmで2%以下、20 nm以下で1%以下となり、ほぼ完全hcp構造となる。一方、 c/a は30 nm以下では1.622から1.631 Åへと剛体球モデルの理論値に近づき等方性を増す。この兼ね合いで $d_{\text{Co}} = 30$ nmにおいて極大を示したものと考えられる。以上の考察から、室温成膜のCoスパッタ薄膜の K_u を高める方策として、下地層の傾斜結晶面への格子整合析出を活用する方法が有効であることがわかった。これはCo薄膜に、膜法線方向への下地層の六方原子配列を反映した整合析出を促しSFsの形成を許さないことによる。さらなる K_u の向上のためには、積層欠陥を排除させた状態で c/a を1.633より大幅に低減させること、すなわち、Co薄膜が格子定数 c を下地と整合させた場合に c/a が低下するような下地層の材料選定が有効であると考えられる。

4. まとめ

スパッタ Co 薄膜の原子積層構造におよぼす下地層の影響について、種々の粗さ、粒径を有する Ru 下地層を用いて検討した。その結果、凹凸の大きな Ru 下地層を用いた $d_{\text{Co}} \leq 30$ nmの試料において、飽和トルク値の絶対値がバルク値から導出した理論値 $|K_u^{\text{Cobulk}} - 2\pi(M_s^{\text{bulk}})^2| = 6.8 \times 10^6$ erg/cm³を大きく下回る振幅を示すことが判明した。このト

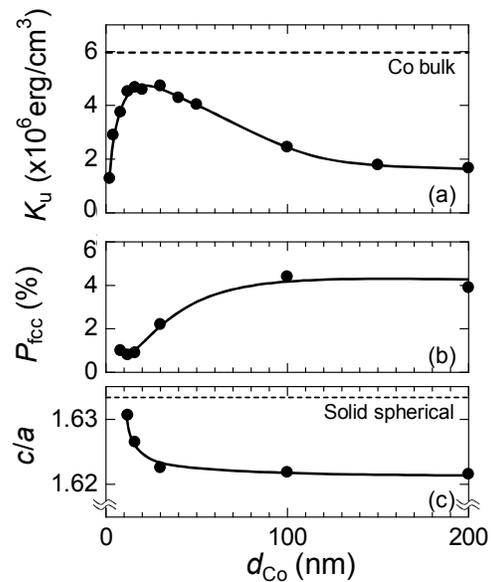


Fig. 9 Dependence of (a) K_u , (b) P_{fcc} and (c) lattice constant ratio c/a on d_{Co} for Co films deposited on Ru^{rough}. Dashed lines in (a) and (c) show K_u for bulk Co and c/a for solid spherical model.

ルク振幅の変化要因について理解するために、まず原子積層構造をX線により解析した結果、fcc原子積層の割合が1%以下のほぼ完全なhcp原子積層となっていることがわかった。また $d_{\text{Co}} \leq 8$ nmの極薄膜領域において格子定数 c のみ0.6%ほど増大していた。また、試料の断面構造を観測した結果、表面形態は下地層を反映して凹凸構造をとっていた。これらのことから、Co原子は粗れたRu下地層の傾斜面上において面直方向のRu原子積層構造を反映した結晶成長を行ったため、hcp安定な積層構造をとったと考えられる。Coの凹凸構造を考慮した E_{demag} により $L_{2\theta}^{\text{sat}}$ を補正して K_u を導出した結果、 $d_{\text{Co}} = 200$ nmから30 nmへの減少につれて約 2.0×10^6 erg/cm³から極大値 5.0×10^6 erg/cm³まで増大し、 $d_{\text{Co}} < 30$ nmでは急激に低下した。上記結晶構造と対応させて考えると、下地層の傾斜結晶面へのCoの格子整合析出が K_u 増大に有効であることが判明した。30 nm以下での K_u 低下要因は、極薄膜領域においてRu下地層との界面においてCo結晶粒の c が伸張し結晶対称性が等方的となったためと考えられる。

謝辞 試料作製にあたり、ガラス基板を提供頂いたオハラ株式会社の後藤直雪氏ならびに山口勝彦氏に感謝致します。本研究は科学研究費補助金、特別研究員奨励費 22・7524の助成を受けて行われた。

References

- 1) G. B. Mitra and N. C. Halder, *Acta Cryst.*, **17**, 817 (1964).
- 2) A. Ishikawa and R. Sinclair, *IEEE. Trans. Magn.*, **32**, 5 (1996).
- 3) T. Shimatsu, H. Sato, Y. Okazaki, H. Aoi, H. Muraoka, Y. Nakamura, S. Okamoto, and O. Kitakami, *J. Appl. Phys.*, **99**, 08G908 (2006).
- 4) P. Bruno, *Phys. Rev. B*, **39**, 865 (1989).
- 5) S. Hinata, R. Yanagisawa, S. Saito, and M. Takahashi, *J. Appl. Phys.*, **105**, 07B718 (2009).
- 6) S. Saito, A. Hashimoto, D. Hasegawa, and M. Takahashi, *J. Phys.*

- D: Appl. Phys.*, **42**, 145007 (2009).
- 7) N. Nozawa, S. Saito, S. Hinata, and M. Takahashi, *J. Appl. Phys.*, **46**, 172001 (2013).
 - 8) S. Saito, K. Inoue, and M. Takahashi, *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 3955 (2011).
 - 9) S. Yonemura, S. Saito, A. Hashimoto, and M. Takahashi, *J. Magn. Mat.*, **320**, 3053 (2008).
 - 10) A. J. P. Meyer and P. Taglang, *C. R. Hebd. Seances Acad. Sci.*, **231**, 612 (1950).
 - 11) R. Pauthenet, Y. Barnier, and G. Rimet, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **17**, 309 (1962).

2013年6月30日受理, 2013年9月9日再受理, 2013年9月24日採録