# コバルト蒸着薄膜の磁気的,光学的性質

# 松 本 光 功\*·望 月 諭\*\*

(昭和44年5月27日受理)

## 1. まえがき

情報科学の目覚しい発達に伴い,記録工学に対しても,高密度記録及び高速度読み出し に対する要求が増々高まっている.従来からの磁気テープ記録は情報の蓄積容量の大きい こと,ビット当りのコストが低い点で,他の記録方式に比べはるかに優れた特長を有し, 計算機の外部記憶装置として重要な機能を果している.しかしその access time が著しく 長いという大きな欠点をもっている.この欠点を解決するため,読み出し方式を基本的に 改善するものと期待されているのが磁気光学効果の応用である.記録媒体としての薄膜の 製造方法には,電着,化学メッキ,蒸着法が主要なものである.その得失を第1表に示す. 蒸着膜は一般に磁気特性が他の製法によるものに比べ悪いという点の他に第1表に示す致 命的な欠陥があるため,硬磁性蒸着薄膜の研究は少なく,その報告は極めて少ない.磁 気光学効果の適用に当っては,膜面の平滑性,透過度等光学的特性が問題となり,蒸着法 が優れている点も少なくない.

本論文では、コバルト蒸着薄膜の製造方法を吟味し、斜め蒸着及び基板を加熱することによって上記の大きな欠点のいくつかは除かれること、光学的性質としては MgF2の増透 剤の効果等について報告する.また磁気光学効果として Faraday 効果による情報読み出 しの原理及びコバルト蒸着薄膜を用いて得られた磁化模様を示す.

#### 2. 磁気特性

## 1. 膜厚の効果

膜厚は磁気光学効果においてたいへん大きな影響を及ぼす. この特性を見るために第2

	Hc (Oe)	付着	速度	基	板	前久	几理	基板と	の付着力	再	閱 性
電着	<1300	速	Ļ٢	導電性物	体に限る	簡	単	強	l.	良	Ļ١
化学メッキ	<1200	遅	い	特に限	定なし	面	倒	륑룅	ţ.›	PP	·悪い
蒸 着	<1000	速	ţ,	特に限	定なし	簡	単	弱	<u>ل</u> ،	悪	(v

第1表 硬磁性薄膜の製造法の得失

\* 精密工学教室,助教授

\*\* 大学院学生

第2表 Co-Ni 合金粉末試料を作るときのメッキ条件

溶	液	漏過した水道水 11	
濃	度	CoCl <sub>2</sub> •6H <sub>2</sub> O; 22g/l NiCl <sub>2</sub> •6H <sub>2</sub> O 8g/l	(73%) (27%)
溫	度	常温	
PI	Н	調整なし	



表に示すような条件でメッキを行なって粉末を取り,蒸着を行なう、第1図は膜厚と Hc の関係を示し,第2図は膜厚と Br, Bs の関係を示す.データのばらつきはあるが,膜厚 が薄くなる程 Hc は小さくなり, Br, Bs は大きくなる傾向が見られる.この傾向は電気 メッキ法や化学メッキ法で得られる結果と異なっている.なお膜厚の測定は顕微干渉計を No. 26 用いた.

# 2. Ni 添加の効果

Co はたいへん硬度が大きな金属であるため、機械的に粉砕することが困難である.そこでその合金粉末の試料作製において電気メッキ法を利用した.第3図に示される様に陽極に炭素棒,陰極にW線を使って CoCl<sub>2</sub>, NiCl<sub>2</sub> 混合液中で Co-Ni 合金粉末を沈澱させて、その粉末をろ過することによって試料を得る.本研究においては、蒸着は Mo ボートで行ない、基板には 0.7mm 厚の硬質ガラス板を用い、蒸発物から基板までの間隔は薄膜の厚さのばらつきやボートによる基板加熱を小さくするために、25cm 以上離している.真空度は 4 × 10<sup>-5</sup>Torr.以下で蒸着を行なっている.基板と蒸着膜の付着力を強めるため、一般に基板の洗浄が行なわれる.本研究では塩酸とアセトン及び重クロム酸カリで洗浄し、その後水洗したものを乾燥して用いている.

ここではメッキ溶液中の Co と Ni との重量比をもって, 試料の成分比と仮定している. 第1図, 第2図より, 膜厚1200Å以上では Hc, Br にあまり差が生じないから, この厚さ の範囲で成分比による磁気特性を測定した. 第4図に成分比と Hc の関係, 第5図に成分 比と Br の関係を示す. これらの図より, Ni10%添加した試料では, Hc, Br共に低下し, Ni20% 近辺の試料では Hc は極大となっているが, Ni 添加の効果は大きくはない.

#### 3. 斜め蒸着

第1図,第2図で示した磁気特性はあまり良くなく,これを改善するには異方性を利用 することがまず考えられる.異方性の与えかたとしては,斜め蒸着,磁界中での蒸着があ げられるが,硬磁性材料では,磁界中での蒸着によって異方性をつけることは困難であ る.そこで斜め蒸着によって異方性をつけることを試みた.ここでは成分 Col00 % を採 用している.この理由は第4図より Hc が Co80%, Ni20%と比べてあまり変らないこと 試料粉末の作成が簡単であることによる.第6図は入射角度による Hc の変化,第7図は 入射角度と Br/Bs の関係,第8図は履歴曲線の入射角度による変化を示す.第6図より, 入射角を大きくすると,入射面に平行方向,直角方向共に Hc が非常に増加していること





がわかる.第7図より入射面に直角の場合が,磁化容易軸方向で,平行の場合が困難軸方 向であると判断できる.垂直蒸着と斜め蒸着の膜面構造を写真1,写真2に示す.膜面は いずれも非常に一様性のよいことがわかる.斜め蒸着による膜面には方向性がみられ,形 状異方性によって磁気特性が改善されていることが明らかである.垂直蒸着,斜め蒸着の 場合の粒子の成長過程をコロジオン膜上に直接蒸着して観察したのが写真3,写真4であ る.どちらの写真も粒子は一方向に伸びた楕円形をしているが,斜め蒸着の場合は粒子の 方向がそろい,これが磁化容易軸方向となっている.

#### 4. 基板加熱

薄膜と基板との付着力を増す目的で、基板加熱による蒸着を試みた、付着力は基板温度 200~300°C以上で非常に強くなり、セロテープではがれず、電着膜に劣らなくなり、一 般にいわれる蒸着膜の付着力の弱さは克服できた。この場合 Hc の変化を測定したのが第 9 図である、高保磁力の磁性体は焼鈍によって Hc が低下するといわれているが、本実験 の場合基板加熱によって Hc が大幅に増加するという重要な結果が得られた、基板を500° Cに加熱しながら蒸着した試料の膜面構造を写真5に示す。(a)は垂直入射、(b)は入射角



No. 26

60°の斜め蒸着を行なった場合で、両者には差がみられないが、ラメラ状に析出したものが観察される.このラメラ状物質の形状異方性により、Hcが増加するものと考えられる.

## 3. 光学的性質

#### 1. コバルト薄膜の透過度

Faraday効果を用いる場合,透過度を測定することは最も基本的なことである.第10図は, 膜厚によって透過度の減衰するようすを示す. 膜厚が薄い場合 Hc の低下が著しく,また厚い場合透過度が極端に減少する. こういう点からコバルト薄膜の Faraday 効果を使用する範囲は 300Å~500Å が最適と思われる. またこの図にみられる透過度の指数函数的な関係から減衰定数 α は  $3.7 \times 10^{5}$  cm<sup>-1</sup> となる. なおここで用いた光線はW線ランプである.

### 2. 誘電体の coating

磁気光学効果を情報の読み出しに応用する場合 Faraday 回転角が大きいことと同時に S/Nの点から透過光度を増加する必要がある。第10図に示される透過度の減衰を補償する 目的で  $MgF_2$  を coating した. 一般に屈折率 nの物体上に屈折率  $n_1$ , 厚さ  $d_1$ の薄膜を coating した場合,反射を防止するには次の条件が必要である。

$$n_1 d_1 = \frac{1}{4}\lambda \tag{1}$$

$$n_1 = \sqrt{n} \tag{2}$$

(2) は実際は満たされていないが、 $MgF_2$ の屈折率を1. 39とすれば、可視光線を用いた場合 (1) 式より、 $d_1 = 700$ Å~1400Åとなる、第11図はコバルト膜厚 300Åの上に $MgF_2$ を蒸着 し、 $MgF_2$ の膜厚による透過度の変化を測定したものである、これより coating 厚が 400Å 付近の場合、透過度は最大となる、これは上述の膜厚の計算値より小さいが、30%程度の 増透の効果がある。





第13図 NRZ 磁化による Faraday 回転



第14図 NRZ 磁化による偏光面回転状態

#### 3. 磁気光学効果

直線偏光が強磁性体を通過すると、その進行方向の磁化の成分と通過距離とに比例して 偏光面が回転する.この回転方向は磁化の方向によって決定される.またこの回転角 $\theta_F$ の大きさは偏光の波長,試料の温度の函数である.この現象を Faraday 効果という.第 12図は本実験に用いている磁化を読み出す装置の原理図である.

光源からの光を偏光子により直線偏光に変換し、NRZ信号を記録した磁性膜に当てる と、第13図に示すように透過光は磁化の大きさに比例した Faraday 回転角 $\theta_F$  だけ回転す る.磁化方向を逆転すれば、偏光面回転方向も逆転する.第14図は偏光面回転状態を光の 進行方向に垂直な面内でベクトル的に描いたものである.その長さは光の振幅の大きさを 示す.同図において $T_P$ ,  $T_A$ はそれぞれ偏光子及び検光子の主伝達軸方向を示し、入射光 の電界ベクトルは  $T_P$  方向と一致する.  $\gamma$ はクロスニコルの状態からのずれの角度を表す. +, 一で示したのは、それぞれ正負の磁化部分を透過した偏光の Faraday 回転後の電界 ベクトルであり、この $T_A$ 方向の振幅を $A_+$ ,  $A_-$ で表す.このとき光電変換素子に入る透過 光の強さ  $I_+$ ,  $I_-$  はそれぞれ  $A_+$ ,  $A_-$  に等しいので近似的に次式で表わされる.

$$I_{+} = I_{0} \{ \sin^{2}(\gamma - \theta_{F}) + \varepsilon \}$$
(3)

$$I_{-} = I_{0} \{ \sin^{2}(\gamma + \theta_{F}) + \varepsilon \}$$
<sup>(4)</sup>

ここで ε は楕円度で, 楕円偏光の長軸方向の振幅を a, 短軸方向の振幅を b とすると

$$\varepsilon = \left(\frac{b}{a}\right)^2$$

で定義される. また Ic は光電変換素子に入る光の強さの最大値を表す.

(3), (4)式において  $\gamma \pm \theta_F \ll 1$  のときは

$$I_{+} = I_{0} \{ (\gamma - \theta_{F})^{2} + \varepsilon \}$$
(3)'

$$I_{-} = I_{\theta} \{ (\gamma + \theta_F)^2 + \varepsilon \}$$
(4)

となる. (3)', (4)'式より  $I_+$ ,  $I_-$  が最小となるときの $\gamma$ の値はそれぞれ  $\theta_F$ ,  $-\theta_F$  となる

ので設定角の差は  $2\theta_F$  となる.したがって $\theta_F$  は次のようにして求める.まず試料の長さ 方向に直流磁界を印加して正の残留磁化状態で、検光子を回転させて  $I_+$  が最小となると きの設定角  $\gamma_+$  を求め、次に試料を負の残留磁化状態にして同様に  $I_-$  が最小となるときの 設定角 $\gamma_-$ を求めると

$$|\gamma_{+} - \gamma_{-}| = 2\theta_{F} \tag{5}$$

となるので $\theta_F$ を求めることができる. 第3表はコバルトの Faraday 回転角  $\theta_F$  を測定した ものである. この表より Faraday 回転角  $\theta_F$  は膜厚にはほとんど関係せずに約3°となり, 他の方法で製造した薄膜より大きな値をとる. 一般に残留磁束密度を $B_r$ , 膜厚を t とする と

$$\theta_F \propto B_r t$$
 (6)

となる.  $B_r \ge t \ge$ の関係は第2図のような傾向を示し, tが小さくなる程  $B_r$ が大きくなるので上述のように  $\theta_F$  が膜厚にそれほど依存しないという結果が得られたものと思われる. しかし, 定量的にはさらに検討が必要である.

写真6は第12図に示す 装置を用いて 実際にNRZ信号を 記録したときの 磁化図形である. 記録は試作した磁気ディスクで行なっている.(a),(b)はそれぞれ垂直蒸着,斜め蒸着

厚	さ t (Å)	Faraday回転角 $\theta_{F}(度)$	$ heta_{ m F}/{ m t}$ $ imes$ 10 <sup>-3</sup>
	120	3.08	25.7
	290	3.64	12.6
	380	3.08	8.1
	650	3.98	6.1
	690	3. 13	4.5
	900	3.56	4.0

第3表 Co蒸着薄膜の Faraday 回転角 (斜め蒸着(60°), 光の入射角45°)



(a) 垂 直 蒸 着
 (b) 斜 め 素 着(60°)
 写真6 Faraday 効果によるNRZ 磁化図形

によって作った試料を用いている.後者は境界面が直線に近く明瞭度もよいが,前者の境 界面は鋸状になっている.したがって斜め蒸着は垂直蒸着より高密度に記録できると考え られる.

## 4. あとがき

薄膜の製法を比較した場合,第1表に示すように,電着は,基板の導電性の物質に限る という大きな制限を除けば,他の方法に比べて優れている.化学メッキは前処理が面倒で ある.一方蒸着薄膜は電着にくらべ,一般にHcは小さく,再現性も悪い.また基板との 付着力の弱いことも重大な欠点である.本研究は次の2点によりこの改善を図った.

- 1. 斜め蒸着により Hc を大きくできる. この原因は微粒子の形状異方性による.
- 2. 基板を加熱することにより、付着力は電着膜に劣らない程強くできる. この時 Hc も著しく大きくなる. これは何らかの理由により、微粒子が粒子群を形成し形状異方 性を大きくしていることに原因がある.

さらに増透剤や、反透膜としての誘電体を同時に蒸着できる利点もあるが、電着膜に比 べて再現性が悪い欠点はやはり残るようである.

Faraday 回転角は膜厚に関係なく約3°となった.この値は電着膜にくらべ相当に大き な値であり、蒸着薄膜がより優れていることを示している.

磁気光学効果を応用することにより,原理的には random access が可能であり高速度 読み出しができるわけであるが,光出力検出機構に未だ適当な方法が見当らないためにそ の発展がはばまれている.

日頃から御指導と御協力を賜っている本学 松山教授, 丹野教授, 東北大学 岩崎教授, 電子顕微鏡写真の撮影に当って御協力いただいた宮坂助手に深謝する.

# 文 献

- 1) W. J. Schule, J. Appl. Phys. 35 2558 (1964)
- 2) D. E. Speliotis, G. Bate, J. K. Alstad, and J. R. Morrison, J. Appl. Phys. 35 972 (1965)
- 3) J. S. Sallo, K. H. Olsen, J. Appl. Phys. 32 203s (1961)
- 4) J. S. Sallo, J. M. Carr, J. Appl. PSys. 34 1309 (1963)
- 5) 鈴木,大内,岩崎,昭和44年電気関係連合大会504

#### 松本光功·望月 諭

#### Summary

#### Magnetic and Optical Properties of Evaporated Cobalt Films

### Mitsunori MATSUMOTO and Satoshi MOCHIZUKI

(Department of Precision Engineering, Faculty of Engineering)

A hard magnetic thin cobalt film which is prepared as a recording medium is investigated to apply the magneto-optic effect to information readout system. In this paper Faraday effect is used.

The magnetic properties of vacuum evoporated films, which are supposed to be inferior to the other films made by some other preparation techniques, have been improved by the oblique incidence of the vapor flux. Abrasion-proof of films with substrata, which is another highly deteriorative point, has been recovered by heating the substrata on evaporating. The resultant coercivity also remarkably increased, and it is unexpected result.

The attenuation of transmitted light through the cobalt film has been compensated by about 30 per cent by evaporated coating of  $MgF_2$ . The Faraday rotation is about 3 degree, which is much larger than that of the data of electrodeposited films.