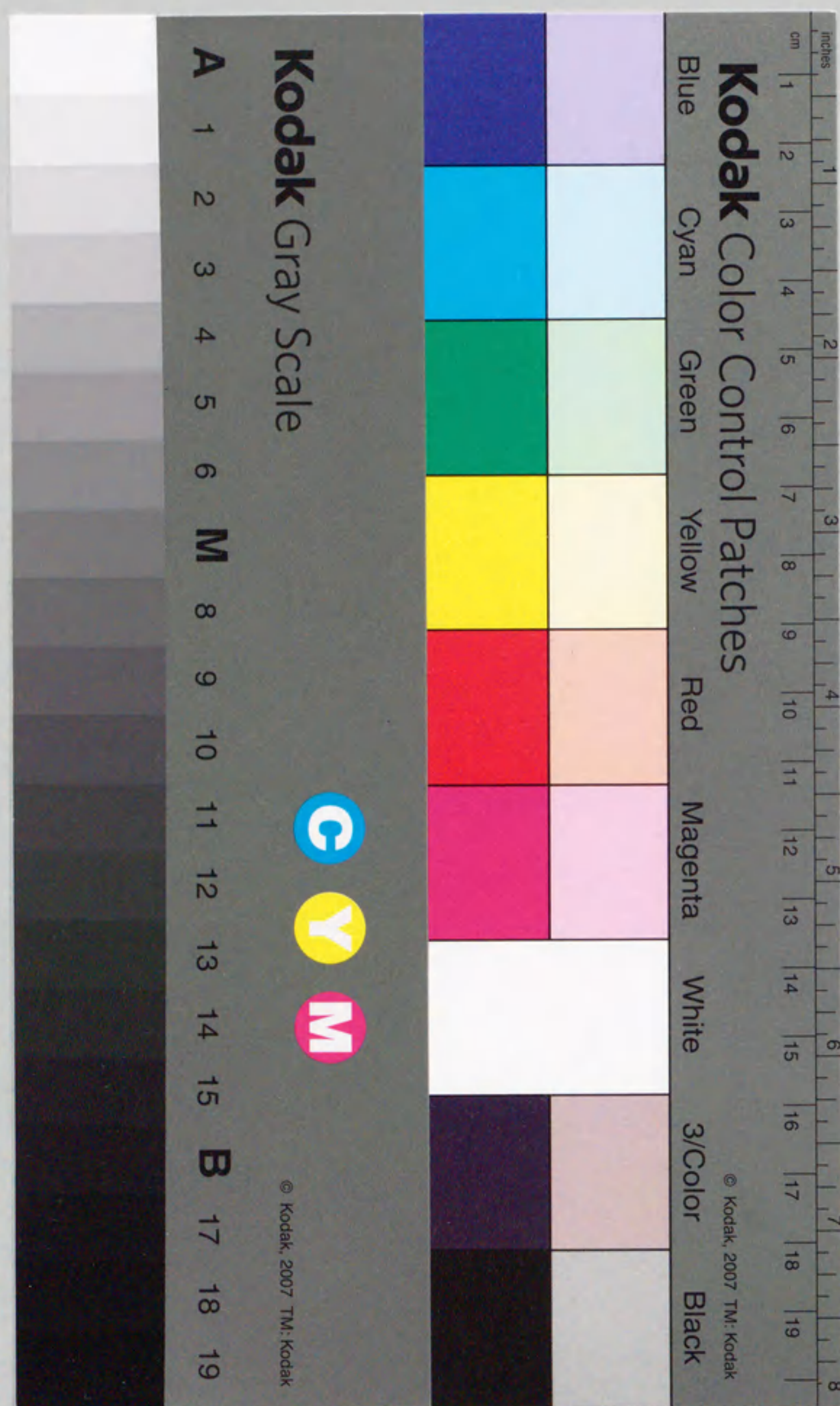


報告番号 第 4392号

## 主論文の要旨

題名 Fe系磁性多層膜の  
軟磁気特性に関する研究

氏名 千田 正勝





## 主論文の要旨

報告番号	※乙第	号	氏名	千田 正勝
<p>本論文は薄膜磁気ヘッド用コア材などに要求される高性能軟磁性材料の開発に関する研究結果をまとめたものである。近年、急激な情報量の増加に伴って記録密度の向上による大容量記憶装置の実現が望まれている。記録密度向上のために磁気ヘッド用磁性材料としては、高飽和磁化(高<math>4\pi M_s</math>)、低保磁力(低<math>H_c</math>)、高比透磁率(高<math>\mu_r</math>)、零磁歪(零<math>\lambda_s</math>)などの特性を示し、かつ広い有効磁束路幅を持ち高周波特性に優れていることが要求される。将来の高記録密度化のためには、15 kG以上の<math>4\pi M_s</math>、2000以上の<math>\mu_r</math>が必要とされている。本研究の目的は、このような優れた特性を有した新しい軟磁性材料を開発することである。本研究では、磁性を担う基本材料として単元素物質中、最も<math>4\pi M_s</math>の高いFeを使用し、膜全体の<math>4\pi M_s</math>をできるだけ高く維持した状態で、異種材料との多層化という人工的手法により零<math>\lambda_s</math>化、および低<math>H_c</math>化を図ることを材料開発の基本方針とした。また有効磁束路幅拡大、高周波特性改善のためには磁性体と非磁性絶縁体との多層効果を利用した。このような多層構造材料は、数原子層程度の膜厚制御および異種材料間の積層化を可能とする近年の薄膜作製技術の特徴を最も活かした材料形態といえ、バルクあるいは単層膜とは異なる新しい物性の発現が期待される。またこのような人工的手法による特性制御法を系統的に研究することは、工業上のみならず、材料開発の一手法を提案する点で学術的にも興味を持たれている。</p> <p>以下に各章の概要を示す。第1章は序論であり、本研究の背景と目的を述べた。第2章では[磁性体/非磁性絶縁体]多層膜において現れる二つの多層効果、すなわち有効磁束路幅拡大および<math>\mu_r</math>の高周波特性改善の効果について確認を行った。磁性体および非磁性絶縁体には薄膜部品材料として多用されているNiFe合金およびSiO<sub>2</sub>を使用した。NiFe膜の<math>\lambda_s</math>と磁気異方性との関係を調べた結果、微細加工した磁性膜では逆磁歪効果による歪誘導磁気異方性が全磁気異方性の中で支配的となる場合があることがわかった。目安として<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>とすることにより歪誘導磁気異方性の影響を回避でき、磁場誘起誘導磁気異方性による安定な磁気異方性制御が可能となることが明らかになった。NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では磁性層、非磁性絶縁層の層厚をある程度薄くし、積層回数を多くすることによって還流磁区構造が消失し、単磁区あるいは180度磁壁のみから成る磁区構造となり、有効磁束路幅が拡大されることが確認できた。さらにNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜ではNiFe単層膜と比較し、<math>\mu_r</math>の高周波特性が大幅に改善され、また膜厚の減少に伴う軟磁気特性の劣化が改善されることがわかった。以上、本章では</p>				



## 主論文の要旨

報告番号	※乙第	号	氏名	千田 正勝
<p>NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜において[磁性体/非磁性絶縁体]多層効果である、有効磁束路幅の拡大、高周波特性の改善、および軟磁気特性の膜厚依存性改善の効果を確認し、[磁性体/非磁性絶縁体]多層構造が薄膜部品用軟磁性膜の高性能化に対し、有効な手法であることを明らかにした。</p> <p>第3章では[磁性体/非磁性絶縁体]多層膜において問題となる<math>4\pi M_s</math>の低下を解決することを目的に、高い<math>4\pi M_s</math>を有した新しい軟磁性材料の開発を目指して、磁性体同士が多層構造から成る磁性多層膜の磁気特性について検討した。Feと多層化する磁性体としては<math>4\pi M_s</math>の高いCo, CoFeを使用した。その後、磁性体としてFe/Co多層膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を用いた(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化、多層効果の確認、および磁気特性の検討を行った。各層厚を変化させることにより膜全体のHc, <math>\lambda_s</math>は変化し、<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、Fe/Co(15/0.5 nm)多層膜では<math>4\pi M_s = 21</math> kG, Hc = 1.5~2.0 Oeが、一方、Fe/CoFe(10/0.5 nm)多層膜では<math>4\pi M_s = 21</math> kG, Hc = 6.5 Oeが実現した。Fe/Co多層膜のHcは300℃アニールにより0.8 Oeまで低下した。<math>\lambda_s</math>変化の原因を説明するモデルとして、Fe層, Co層などの負<math>\lambda_s</math>とCoFe相互拡散層の正<math>\lambda_s</math>との<math>\lambda_s</math>バランスを仮定するモデルを提案した。<math>\lambda_s</math>測定およびメスバウア分析による組成変動プロファイルの解析により、このモデルが定量的にも正しいことを確認した。また低Hc化は結晶粒の微細化に伴う磁気異方性分散の低下が原因であることがわかった。なお、Fe/Co, Fe/CoFe多層膜のように正<math>\lambda_s</math>層と負<math>\lambda_s</math>層の重ね合わせから成る磁性多層膜では、各層は独立の容易軸を持つことはできず、均一な単層の磁性膜同様、共通の容易軸を持つこと、および歪誘導磁気異方性の大きさは多層膜全体の<math>\lambda_s</math>と膜応力によって決定していることが確認された。従って、このような多層膜においても<math>\lambda_s</math>を零とすることにより歪誘導磁気異方性の影響を回避できることが明らかとなった。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化および多層効果の確認を行った結果、Fe層厚15 nm, Co層厚0.5 nm, Fe/Co層厚62 nm, SiO<sub>2</sub>層厚5 nmの場合に<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>, <math>4\pi M_s = 20</math> kG, Hc = 1.0 Oe, <math>\mu_r = 2000</math>の優れた軟磁気特性が総膜厚0.3 <math>\mu</math>m以上で実現した。また、非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大効果および軟磁気特性の改善効果も確認できた。以上、本章では<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、20 kGの高<math>4\pi M_s</math>, 2000の高<math>\mu_r</math>を有し、多層効果を示す新軟磁性材料(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。</p>				

## 主論文の要旨

報告番号	※乙第	号	氏名	千田 正勝
<p>第4章では(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となる材料構成の複雑さを解決することを目的に、高い<math>4\pi M_s</math>を有し、かつ材料構成の単純な新しい軟磁性材料の開発を目指してFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性について検討した。まずFeと各種非磁性体とから成る多層膜の磁気特性について検討した結果、Fe/SiO<sub>2</sub>, Fe/Cu, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>多層膜など非固溶系多層膜ではFeの結晶配向変化により、一方、Fe/C, Fe/Si, Fe/Ti多層膜など固溶系多層膜ではFe層の負<math>\lambda_s</math>と相互拡散層の正<math>\lambda_s</math>との<math>\lambda_s</math>バランスにより<math>\lambda_s</math>変化が生じることがわかった。またこれらの多層膜では、Fe結晶粒の微細化およびFe層間の静磁結合に伴う磁気異方性分散の低下により低Hc化が実現していることがわかった。非磁性体としてSiO<sub>2</sub>を選び各層厚の最適化を行った結果、Fe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜において<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、<math>4\pi M_s = 15.5</math> kG, Hc = 0.3 Oe, <math>\mu_r = 4300</math>が実現し、軟磁気特性は総膜厚がサブミクロンの領域でも維持された。<math>\mu_r</math>は250℃アニールにより5000まで向上した。また、非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大効果も確認できた。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では単元素物質であるFeのみの非常に単純な構成により優れた軟磁気特性が実現することから、この系をモデルとして軟磁気特性実現のための条件を調べた。その結果、Hc最小は、膜面内ならびに膜厚方向の両方向で磁気異方性分散が同時に最小となる条件で実現するという、Hcと磁気異方性分散との関係が明らかとなった。なお、膜厚方向の磁化成分は界面磁気異方性および柱状結晶構造に由来して発生することがわかった。以上、本章では<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、15.5 kGの高<math>4\pi M_s</math>, 4000~5000の高<math>\mu_r</math>, および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。</p> <p>第5章ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となる<math>4\pi M_s</math>の不十分さを解決することを目的に、一層高い<math>4\pi M_s</math>を有し、かつ材料構成の単純な新しい軟磁性材料の開発を目指してFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における磁気特性のスパッタガス依存性について検討した。磁気特性はスパッタガスの種類に依存し、<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>となるFe層厚はKr, Ar, Ne<sub>99</sub>Ar<sub>28</sub>の順に厚くなり、また同一Fe層厚におけるHcはKr, Ar, Ne<sub>99</sub>Ar<sub>28</sub>の順に低くなった。Ne<sub>99</sub>Ar<sub>28</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜において<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、<math>4\pi M_s = 17.2</math> kG, Hc = 0.3 Oe, <math>\mu_r = 5000</math>以上がアニール無しで実現した。スパッタガスによる<math>\lambda_s</math>変化の違いはFe結晶配向性の変化のみでは説明できず、Fe-Si-O結合などFe/SiO<sub>2</sub>界面における化学状態の違いが影響を及ぼしていることがわかった。また軟磁気</p>				



# 主論文の要旨

報告番号	※乙第	号	氏名	千田 正勝
<p>特性の違いは、スパッタガスに依存して形成されるFe結晶粒径が異なり、これに伴う磁気異方性分散の相違が原因であることがわかった。以上、本章では<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、17.2 kGの高<math>4\pi M_s</math>，5000の高<math>\mu_r</math>，および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料NeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。</p> <p>第6章では、第2章から第5章にかけて検討したNiFe/SiO<sub>2</sub>，(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>，Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜などにおける零<math>\lambda_s</math>化，低H<sub>c</sub>化の機構、磁気特性制御法、および材料構成の特徴を比較整理した。またその結果をもとに、磁性多層膜における高性能軟磁気特性実現のための材料設計指針を明らかにした。</p> <p>第7章では、各章のまとめと本研究における成果および今後の課題について記述した。</p> <p>以上、本研究では、<math> \lambda_s  &lt; 10^{-6}</math>の下、15～20 kGの<math>4\pi M_s</math>，2000～5000の<math>\mu_r</math>を有し、かつ有効磁束路幅拡大および高周波特性改善といった多層効果を示す高性能軟磁性膜の開発に成功した。本研究で開発した磁性多層膜は、薄膜磁気ヘッドを初めとする各種磁性薄膜部品の汎用材料として有用と考えられる。なお、本研究では上記の特性を異種材料間の多層化という人工的手法により実現した。零磁歪化のためには、磁歪バランス，あるいは結晶配向変化の手法を利用し、これらの磁歪制御法は各々多くの固溶系多層膜，非固溶系多層膜に適用できることを示した。また、結晶粒径の微細化および磁性層間の静磁結合によって磁気異方性分散を低下させ低保磁力化を実現し、低保磁力化のためには多層構造が有効な材料形態であることを示した。さらに、上記の磁歪変化，保磁力変化の起源は、組成変調，界面磁気異方性，薄膜における結晶の初期成長など界面近傍あるいは超薄膜の中で起きるミクロな現象であることを明らかにした。このように本研究では、材料開発，磁性体物理，薄膜および界面物性の分野においてもいくつかの興味ある結果が得られた。本研究で開発した磁性多層膜の信頼性，部品作製プロセスとの適合性などを検討し、部品への応用を進めるとともに、本研究で得た材料設計指針，多層化技術をさらに発展させ、新物性の発見および新材料開発を進めることが今後の課題である。</p>				







Fe系磁性多層膜の  
軟磁気特性に関する研究

千 田 正 勝



Fe系磁性多層膜の  
軟磁気特性に関する研究

千田 正勝



第1章 序論	-----	1
1-1 研究の背景と目的	-----	1
1-2 本論文の構成	-----	9
第2章 NiFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	-----	15
2-1 はじめに	-----	15
2-2 実験方法	-----	15
2-3 NiFe膜の磁歪定数と磁気異方性	-----	21
2-4 NiFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	-----	23
2-4-1 NiFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の構造	-----	23
2-4-2 NiFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁区構造	-----	23
2-4-3 比透磁率の周波数特性	-----	26
2-4-4 NiFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜のM-H特性	-----	30
2-5 まとめ	-----	34
第3章 Fe/Co, Fe/CoFe, (Fe/Co)/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	-----	36
3-1 はじめに	-----	36
3-2 実験方法	-----	36
3-3 Fe/Co, Fe/CoFe多層膜の磁気特性	-----	38
3-3-1 Fe/Co多層膜の磁気特性	-----	38
3-3-2 低保磁力化に対する検討	-----	40
3-3-3 磁歪変化に対する検討	-----	46
3-3-4 Fe/Co多層膜の磁歪定数と磁気異方性	-----	54
3-3-5 Fe/CoFe多層膜の磁気特性	-----	59
3-4 (Fe/Co)/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	-----	64
3-5 まとめ	-----	65



第4章 Fe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	69
4-1 はじめに	69
4-2 実験方法	69
4-3 Fe/(非磁性体)多層膜の磁気特性	72
4-4 Fe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	82
4-4-1 軟磁気特性の最適化	82
4-4-2 膜面内の磁気異方性	85
4-4-3 膜厚方向の磁気異方性	96
4-5 まとめ	110
第5章 NeスパッタFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	114
5-1 はじめに	114
5-2 実験方法	114
5-3 Ne, Ar, KrスパッタFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気特性	115
5-3-1 磁気特性のスパッタガス依存性	115
5-3-2 NeスパッタFe/SiO <sub>2</sub> 多層膜の磁気異方性	118
5-3-3 磁歪変化および低保磁力化に対する検討	120
5-4 まとめ	129
第6章 多層化による高性能軟磁性膜実現のための設計指針	132
6-1 はじめに	132
6-2 高性能軟磁性膜実現の設計指針	132
6-3 まとめ	139
第7章 結論	143
7-1 各章のまとめ	143
7-2 本研究の成果と今後の課題	146
本研究に関する研究発表	150
謝辞	155

## 第1章 序論

### 1-1 研究の背景と目的

強磁性体はその磁化曲線の形によって、軟磁性、硬磁性、半硬磁性に大別され、それぞれ磁心、永久磁石、磁気記録材料などに応用されている[1]。本研究の目的は、磁気記録用薄膜磁気ヘッド、電源回路用薄膜トランスなどの磁心材料として要求されている高性能な軟磁性膜を開発することにある。特に本研究では、磁気ディスク装置の薄膜磁気ヘッドコア用軟磁性膜をその研究対象としている。以下にまず、磁気記録の原理について簡単に説明し[2]、次いで薄膜磁気ヘッドコア膜に要求される磁気特性の条件および問題点を明記する。

磁気記録は磁性体における磁化の履歴現象を応用する記録技術であり、磁気ヘッドと記録媒体とから構成される。磁気記録の原理を図1-1に示す。磁気ヘッドは一種の電磁石であり、コイルに信号電流が流れるとコアはその方向と大きさに応じて磁化する。記録媒体はヘッドを通過するときヘッドギャップから漏れる信号磁場によって方向と大きさを変えて磁化し、信号は残留磁化の形で記録される。一方、再生過程では記録された媒体を磁気ヘッドに沿って移動させ、媒体の残留磁化により磁気ヘッドのコアを磁化し、コイルに発生する誘導起電力によって電気信号を取り出す。磁気テープ装置の場合には媒体と磁気ヘッドは接触しているが、磁気ディスク装置の場合には磁気ヘッドを空気の流れを利用した流体力学的な力で媒体上に浮上させて用いる(図1-2-a)。磁気ディスク装置は大型コンピュータの外部記憶装置として使われており、この分野では近年の急激な情報量の増加に伴って、大容量記憶装置の実現が望まれている。磁気ディスク装置において記憶容量を増加させる際、記録媒体の面積を大きくすると装置が大型化してしまう。そこで装置の小型化と大容量化を同時に行うためには、記録媒体における記録密度の増大を図らなくてはならないことになる。近年の磁気記録の研究では記録密度向上がその主たる目的となっている。記録密度を向上させるためには、記録のトラック方向および幅方向の寸法を小さくする必要がある(図1-3-a)。従来磁気ヘッドコアにはNiZnフェライトあるいはMnZnフェライトが使用され、磁気ヘッドもバルク型であったが、近年、磁場分布が急峻で記録波長の短縮に有利であり、またトラック幅を小さくすることにも有利である薄膜磁気ヘッドが多く



用いられるようになった。薄膜磁気ヘッドの形状を図1-2-b), c)に示す。

記録密度を増大させるため磁気ヘッド用磁性膜に要求される特性を以下に列記する。

(1)高飽和磁化(高 $4\pi Ms$ )...線記録密度を向上させるためには媒体として保磁力の高い材料が使用される。記録時においてこの媒体を十分磁化するためには小さい断面積のコア磁極から大きな磁場を発生させる必要があることからヘッドコア膜としては飽和磁化が高いことが必要である。従来の設計法によれば、飽和磁化として媒体保磁力の10倍以上の値が要求される。今後、高線記録密度化のために保磁力1000 Oe以上の媒体を使用することが予想されるため、ヘッドコア膜の飽和磁化としては15 kG以上が必要となる。

(2)低保磁力(低 $H_c$ )、高比透磁率(高 $\mu_r$ )...記録された信号を再生する際、媒体が発生する微弱な磁場を検出するためにはコアとしての磁気回路の抵抗が低いこと、即ち保磁力が小さく、比透磁率が高いことが必要である。比透磁率値としては、従来、薄膜磁気ヘッド用磁性膜として多用されてきたNiFe膜における値2000程度以上が必要となる。

(3)磁場誘起誘導磁気異方性...軟磁性膜を磁気回路の磁束路に用いる場合、高周波応答に優れた一軸磁気異方性の困難軸方向の磁化過程を利用することが有利である。磁性膜を薄膜ヘッド用に微細加工すると、膜面内でパターン形状に依存した形状磁気異方性が生じる。安定で適切な磁化方向を得るためには形状磁気異方性に打ち勝つだけの誘導磁気異方性を持つことが必要である。とりわけ、成膜中に任意の方向に異方性がつけられる点で、磁場誘起誘導磁気異方性を示すことが要求される。

(4)零磁歪( $\lambda_s \sim 0$ )...薄膜は膜自体が内部応力を持ち、また部品として形成する場合、異種材料との積層化およびパターンの形状に依存した複雑な膜応力が発生する。歪誘導磁気異方性は磁歪定数と膜応力との積で表され、上記磁場誘起誘導磁気異方性による磁化方向の制御を困難にする。歪誘導磁気異方性の影響を回避するため磁歪定数を零付近とする必要がある。

(5)膜厚依存性...リング型ヘッド(図1-2)用コアでは $2 \sim 3 \mu m$ 、垂直記録用単磁極ヘッドの主磁極[3-6]ではサブミクロン程度の膜厚が必要とされる。また、他の部品への汎用的応用を考えると広い膜厚範囲で優れた軟磁気特性を示すことが必要である。

(6)熱安定性...材料を部品に応用する場合、熱安定性に代表される部品作製プロセスとの適合性が問題となる。薄膜磁気ヘッドに関しては、全作製プロセスを $200^\circ C$ 以下に抑える技術が確立しているため[7]、磁性膜としては $200^\circ C$ 程度までの熱安定性が必要となる。

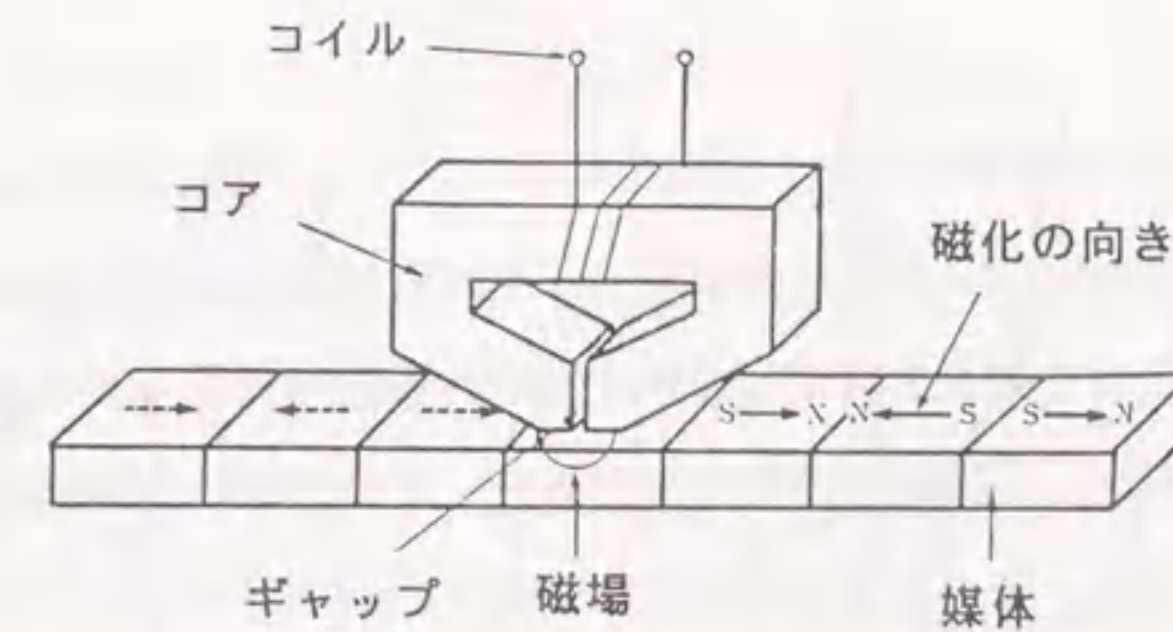
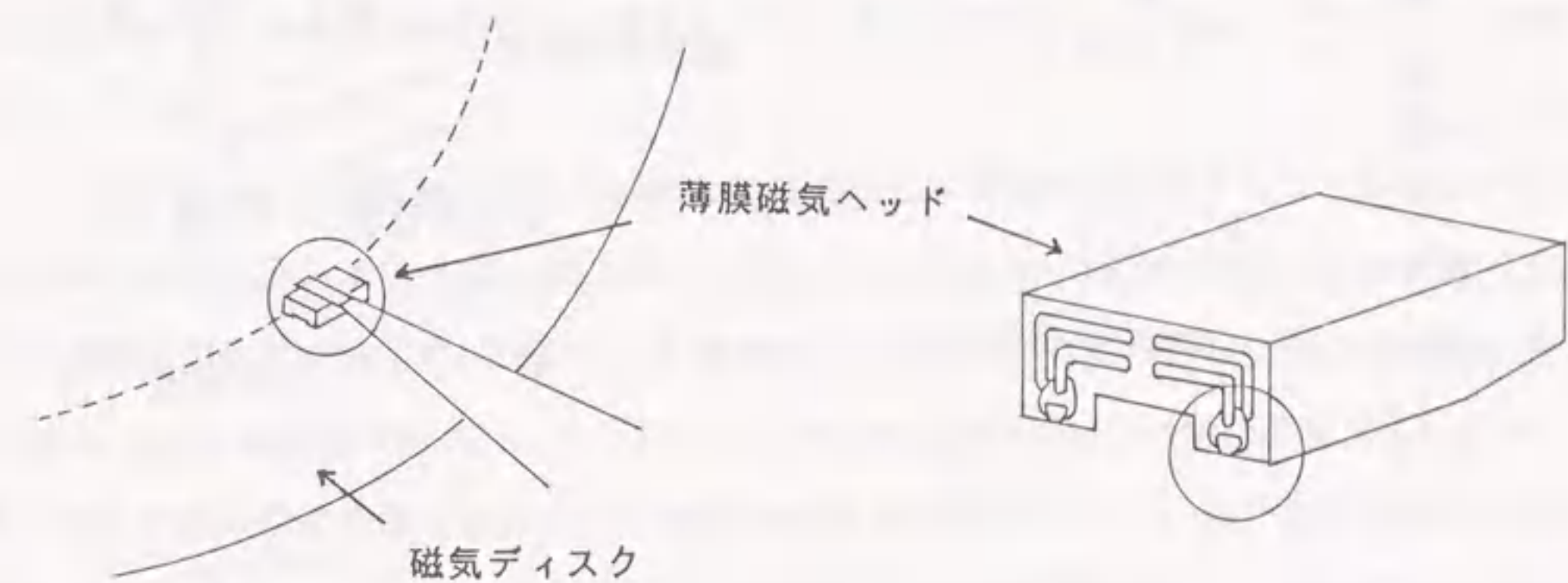


図1-1 磁気記録の原理



a) 薄膜磁気ヘッドと磁気ディスク

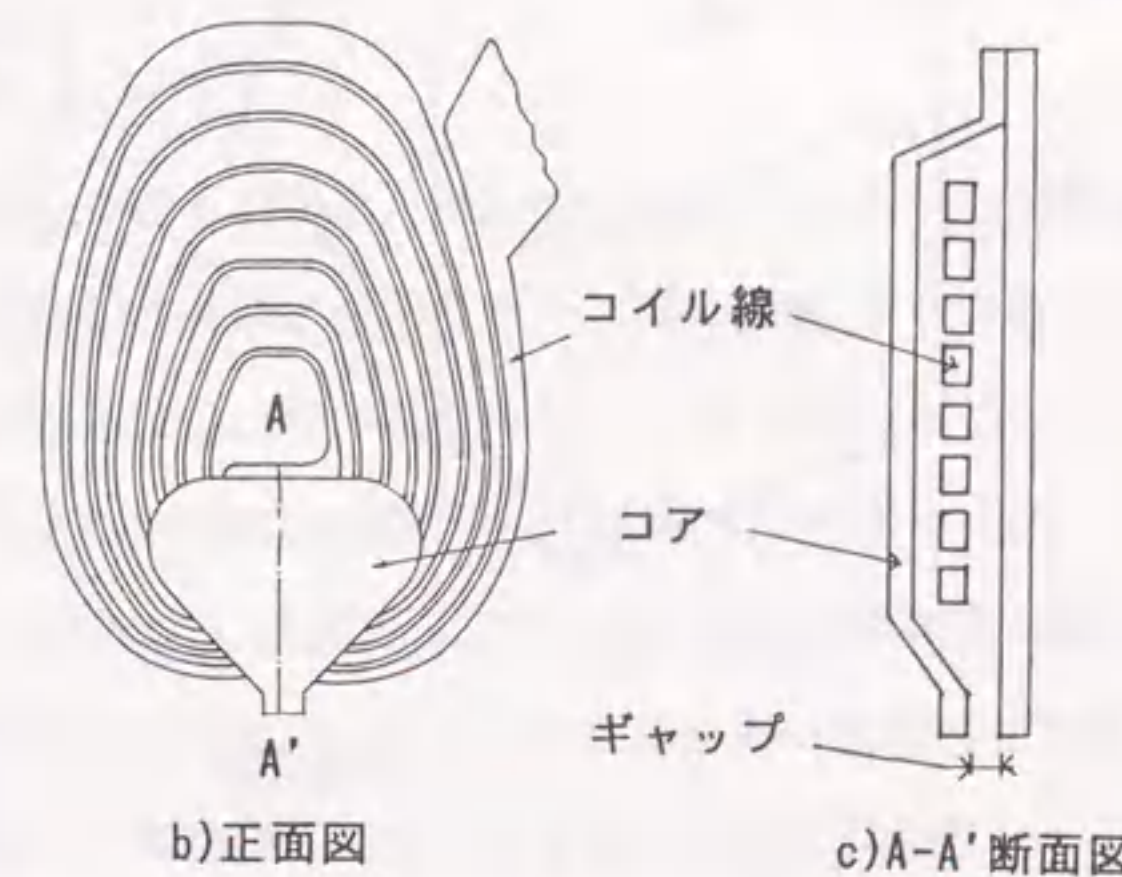


図1-2 薄膜磁気ヘッドの形態



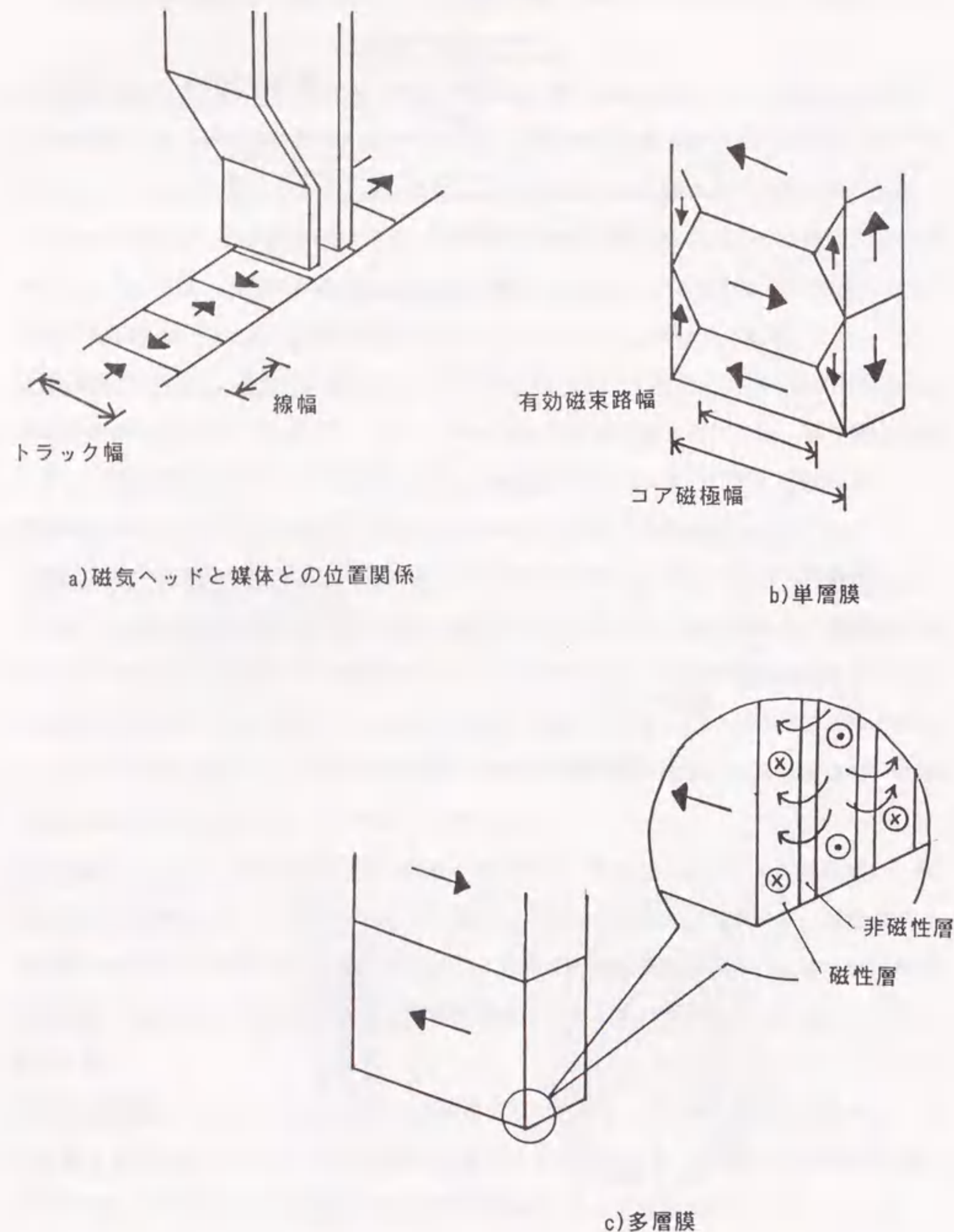


図1-3 薄膜磁気ヘッドコア膜

またトラック密度，線記録密度の向上に伴い以下に示すような新たな問題が生じる。

(1)高トラック密度化のためにはヘッドコア磁極幅を狭くする必要がある。しかし、磁極幅が狭くなると、磁性膜の磁区構造は静磁エネルギーを安定化させるために図1-3-b)に示すような還流磁区構造となる。還流磁区構造の三角磁区は高周波応答しないため、磁束路の有効幅は通常、コア磁極幅より狭くなる。三角磁区の占める割合はコア磁極幅が狭くなる程大きくなるため、狭トラック化を行うと有効磁束路幅は急激に狭くなり、再生効率は急減する。

(2)線記録密度が向上すると必然的に記録再生の周波数は高くなる。高周波帯域では渦電流損失により、磁性体の比透磁率が低下し再生効率は急減する。

上記問題(1)，(2)を解決する方法としては磁性体を非磁性絶縁体を介して多層化する方法が提案されている[8-10]。図1-3-c)に示すように磁性体/非磁性絶縁体 多層構造では、磁性層間に静磁的な相互作用が働き、各層の磁化は一層ごとに反平行となり三角磁区は消失する(還流磁区構造の消失)。図1-3-c)では有効磁束路の幅はコア磁極の幅と等しくなるため、再生効率の急減は回避される(有効磁束路幅の拡大)。また、図1-3-c)の構造では各磁性層を表皮深さより薄くできるため、高周波帯域での渦電流損失が抑えられ、比透磁率の高周波特性の改善が期待される(比透磁率の高周波特性改善)。本研究では問題(1)，(2)を解決する方法として、上記、磁性体/非磁性絶縁体 多層構造の膜とする方法を採用する。

以上、記録密度の向上を図るためには、上記(1)から(6)の特性を有し、非磁性絶縁体との多層化が可能な磁性材料が必要となる。表1-1に従来の磁気ヘッド用磁性材料であるフェライト系酸化物磁性体，NiFe合金(パーマロイ)膜[11]，CoZr系アモルファス合金[12-14]膜，FeAlSi合金(センダスト)膜[15-17]の磁気特性をまとめる。これらの磁性材料では、飽和磁化はいずれも10 kG前後以下である。将来の高密度記録実現のためには15 kG以上の飽和磁化が必要となるため、これらの従来材料は飽和磁化の点で、いずれも不十分な材料と言える。近年、高飽和磁化を有する軟磁性膜を得る試みとして、Fe，Coをベースとした材料のアモルファス化[12-14,18-26]、Fe，Coへの異種元素添加[1,11,27-32]、および磁性体の多層膜化[33-48]などの研究が盛んに行われている。このうち、アモルファス



表1-1 従来材料の磁気特性

	$4\pi M_s(\text{kG})$	$H_c(\text{Oe})$	$\mu_r$ (at 10MHz)
NiZn ferrite	3.3	0.2	250
MnZn ferrite	5.0	0.1	430
NiFe	10.0	<0.3	2000~3000
CoZr-Re	12.0	0.1	5000
FeAlSi	11.0	<0.1	500

系磁性膜は熱安定性に乏しく、また安定性を向上させた異種元素添加膜は飽和磁化がさほど高くない、多元素系となり膜の組成制御が難しい等の問題がある。本研究では、薄膜の形態で高性能な軟磁気特性を得ること、および上記問題(1)、(2)を解決するため磁性体と非磁性絶縁体との多層化を行うことを前提としている。そこで本研究ではこれら薄膜化技術、多層化技術をさらに発展させ、磁性体特に単元素物質中最も飽和磁化の高いFeをベースとした磁性多層膜によって高性能な軟磁性膜の実現を図ることを材料開発の基本方針とする。磁性多層膜は、数原子層程度の膜厚制御が容易であり、膜厚方向への異種材料の積層化を得意とする近年の薄膜作製技術の利点を最も活かした材料形態といえる。このような多層系の物質に関する研究は近年盛んに行われており、数原子層から成る磁性人工格子ではバルクあるいは単層膜とは異なった特性が現れることが報告されている[49-51]。このような人工的物質による特性制御法の研究は、工業的には勿論のこと、材料開発の一手法を提案する点で学術的にも関心が持たれている。

薄膜の特性は成膜法および成膜条件に強く依存する。本研究では成膜法としてイオンビームスパッタ法を用いる。装置の構造を図1-4に示す。イオンガンはカウフマン型と呼ばれ、カソードで発生した熱電子でプラズマを発生し、スクリーングリッドとエクストラクタグリッドの電位差を利用してチャンバ内にスパッタイオンを引き出す。プラズマを作る際、プラズマ密度を高めるためアノードの周囲に電磁石を配置し、熱電子の軌跡を長くさせている[52-54]。イオンビームスパッタ法の特徴としては、(1)比較的高真空中で成膜が可能のため純度の高い良質な膜が作製できる、(2)構造上、ターゲットや基板が直接プラズマにさらされないため低温成膜が可能であり、基板に取り付けたヒータとの併用により広い温度範囲での成膜が可能である、(3)加速電圧、イオン電流など成膜パラメータを独立に制御でき、スパッタ中にターゲット交換を行っても安定な放電が維持できる、などがあげられる。以上のような特徴を持つことからイオンビームスパッタ法は多層膜作製に適した方法と言える。

以上、本研究ではFe系磁性多層膜において、上記(1)から(6)の磁気特性を有し、かつ問題(1)、(2)を解決した、従来材料以上の高性能軟磁気特性の実現を目指す(図1-5)。



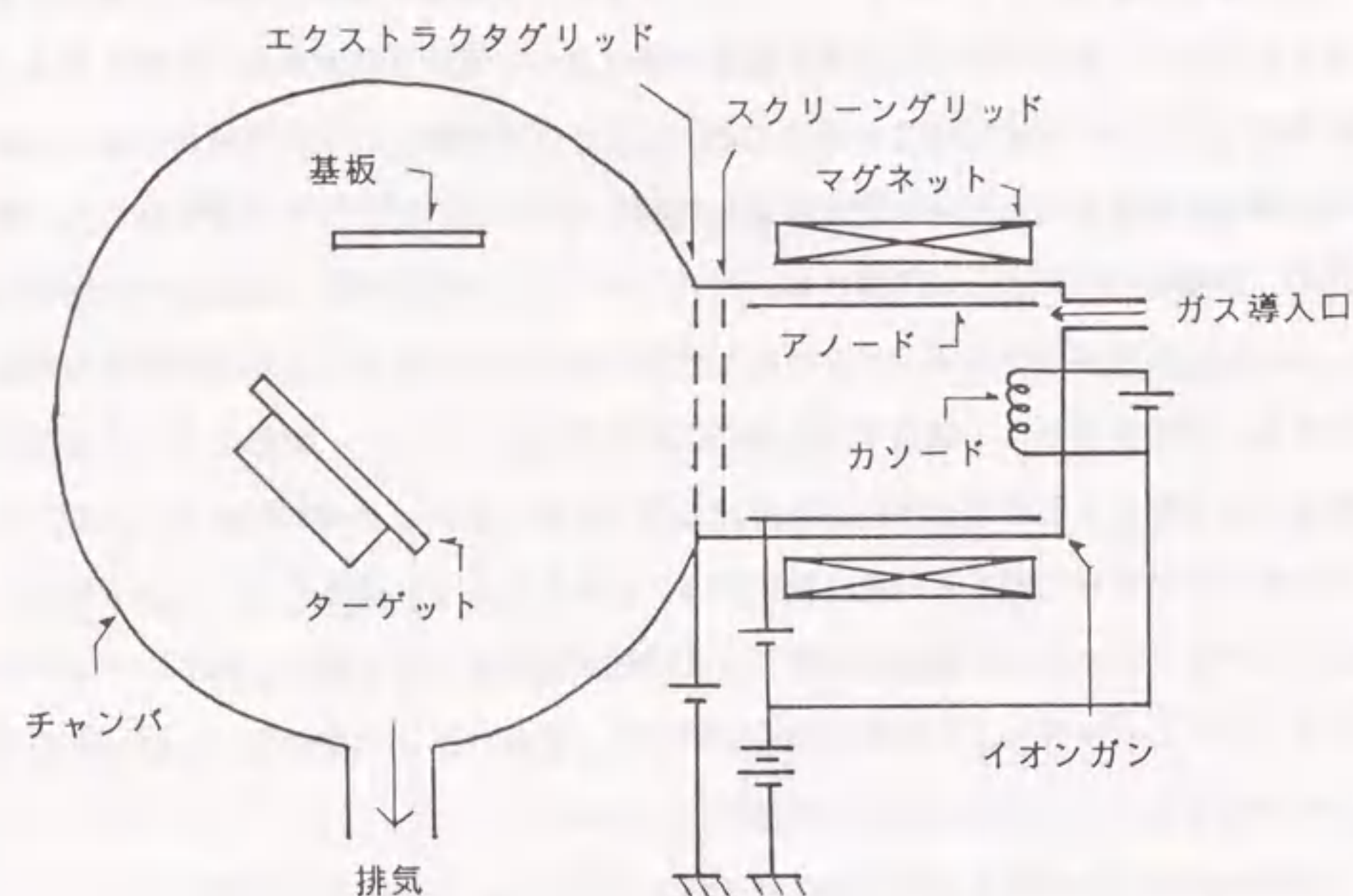


図1-4 イオンビームスパッタ装置

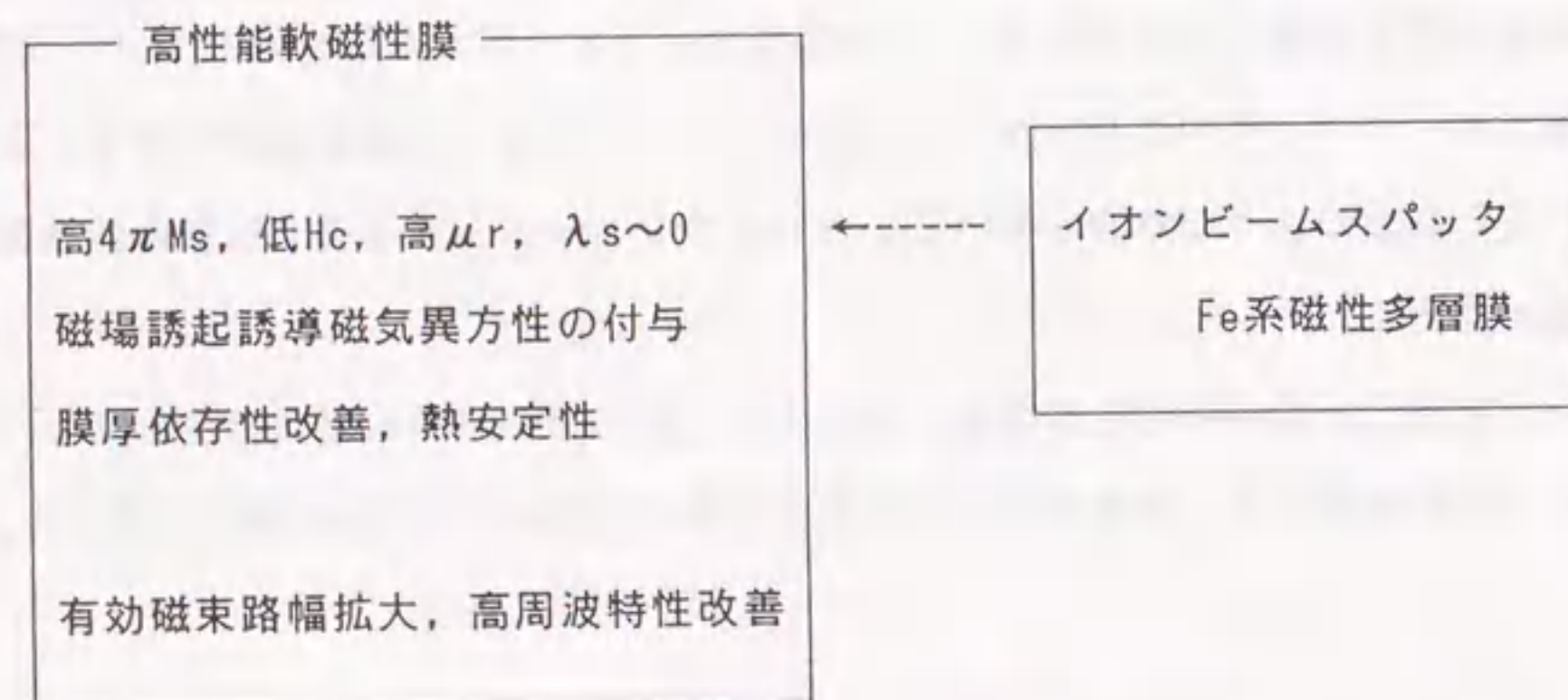


図1-5 本研究の目的

## 1-2 本論文の構成

本論文の構成を図1-6に示す。本論文ではまず第2章において磁性体と非磁性絶縁体とから成るNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜により二つの多層効果、すなわち還流磁区構造の消失による有効磁束路幅の拡大効果、および比透磁率の高周波特性改善効果について確認する。第3章ではまず高い飽和磁化を有した新軟磁性材料の開発を目的にFe/Co多層膜の磁気特性について検討する。次いで磁性体としてFe/Co膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を選び上記多層効果を確認する。第4章では材料構成が単純で高い飽和磁化を有した新軟磁性材料の開発を目的にFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性について検討する。第5章ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の飽和磁化を一層高くすることを目的にNeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性について検討する。また第6章では上記磁性多層膜開発において得られた知見をもとに、高性能軟磁気特性実現のための材料設計指針を明らかにする。

各章の概要を以下に示す。

## 第2章 「NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」

本章では磁性体と非磁性絶縁体とから成る多層膜において生ずる二つの多層効果、すなわち有効磁束路幅拡大および比透磁率の高周波特性改善の効果について確認する。磁性体には磁性薄膜部品材料として多用されておりその磁気特性がよく理解されているNiFe合金を、非磁性絶縁体には薄膜部品中で電氣的磁氣的絶縁材料として一般的に使用されているSiO<sub>2</sub>を使用する。まず、歪誘導磁気異方性を回避するための条件を明らかにするため、NiFe合金膜の磁歪定数と磁気異方性との関係を調べ、次いでNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の構造、上記多層効果、および磁気特性について検討する。

## 第3章 「Fe/Co, Fe/CoFe, (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」

本章では磁性体/非磁性絶縁体 多層膜において問題となる飽和磁化の低下を解決することを目的に、高い飽和磁化を有した新軟磁性材料の開発を目指して磁性体同士の多層構造から成る磁性多層膜の磁気特性について検討する。Feと多層化する磁性体としては4π Msの高いCo, CoFeを使用した。まずこれらの多層膜が零磁歪の下、高い飽和磁化を有し、かつ優れた軟磁気特性を示すことを述べ、次いで磁歪変化および低保磁力化の機構について議論する。その後、磁性体としてFe/Co膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を選び、これらを交互に積層した(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化、多層効果の確認、および磁



気特性の検討を行う。

#### 第4章 「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」

本章では(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となる材料構成の複雑さを解決することを目的に、高い飽和磁化を有し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料の開発を目指してFe/(非磁性体)多層膜の磁気特性について検討する。各種Fe/(非磁性体)多層膜において零磁歪、低保磁力が実現することを述べ、それらの多層膜における磁歪変化、低保磁力化の機構について議論する。次いでこれらの中で特に優れた軟磁気特性が期待されるFe/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化および多層効果の確認を行う。また、膜面内および膜厚方向の磁気異方性の観点から軟磁気特性実現のための条件を検討する。

#### 第5章 「NeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」

本章ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となる飽和磁化の不十分さを解決することを目的に、一層の高い飽和磁化を有し、かつ材料構成の単純な新磁性材料の開発を目指してFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における磁気特性のスパッタガス依存性について検討する。スパッタガスが磁歪変化および低保磁力化に影響を与えることを示し、その機構について議論する。次いで最も優れた軟磁気特性が期待されるNeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化を行う。

#### 第6章 「多層化による高性能軟磁性膜実現のための設計指針」

本章では、第2章から第5章にかけて検討したNiFe/SiO<sub>2</sub>、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜などにおける低保磁力化、零磁歪化の機構、磁気特性制御法、および材料構成の特徴を比較整理し、磁性多層膜における高性能軟磁気特性実現のための材料設計指針を明らかにする。

#### 第7章 「結論」

本章では、各章のまとめと本研究における成果および今後の課題について記述する。

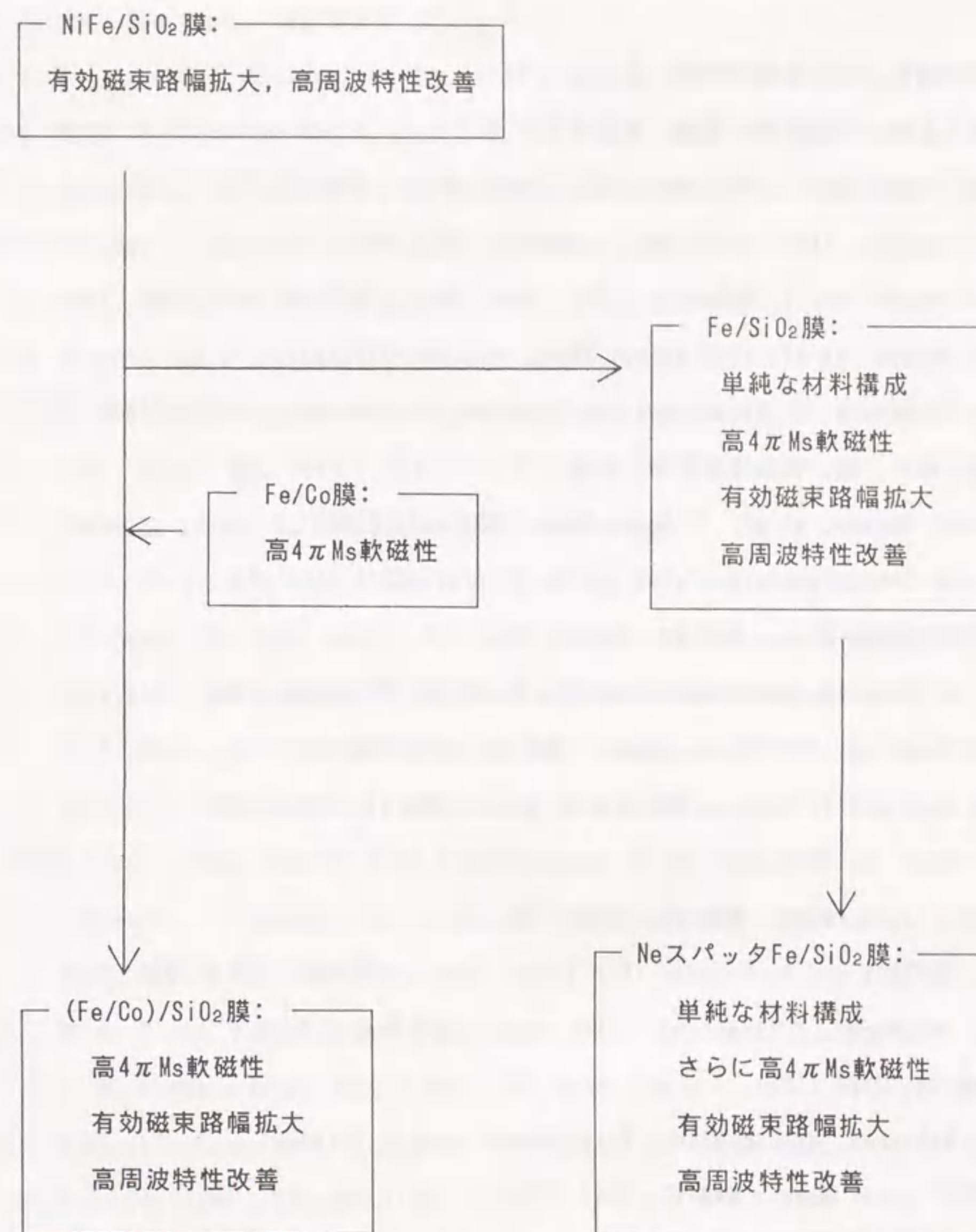


図1-6 本研究の構成



第1章の参考文献

- 1) 近角聡信, 強磁性体の物理, 裳華房 ('84).
- 2) 西川正明, 磁気記録の理論, 朝倉書店 ('85).
- 3) S. Iwasaki and Y. Nakamura, IEEE Trans. Magn., MAG-13, 1272 ('77).
- 4) S. Iwasaki, IEEE Trans. Magn., MAG-20, 657 ('84).
- 5) S. Iwasaki and Y. Nakamura, IEEE Trans. Magn., MAG-14, 436 ('84).
- 6) J. Hokkyo, et al, IEEE Trans. Magn., MAG-20, 72 ('84).
- 7) C. Nishimura, K. Yanagisawa, A. Tago and J. Kishigami, INTERMAG'89, EQ-06.
- 8) 飯田修一 他, 磁性薄膜工学, 丸善 ('77).
- 9) D. A. Herman, et al, J. Appl. Phys., 63, 4036 ('88).
- 10) J. C. Slonczewski, B. Petek and B. E. Argyle,  
IEEE Trans. Magn., MAG-24, 2045 ('88).
- 11) R. M. Bozorth, Ferromagnetism (Van Norstrand, Princeton, NJ, '51).
- 12) H. Sakakima, IEEE Trans. Magn., MAG-19, 131 ('83).
- 13) M. Naoe and Y. Hoshi, IEEE Trans. Magn., MAG-19, 1958 ('83).
- 14) A. Tago, C. Nishimura and K. Yanagisawa,  
IEEE Trans. Magn., MAG-21, 2032 ('85).
- 15) H. Shibata and I. Fukuda, IEEE Trans. Magn., MAG-13, 1029 ('77).
- 16) M. Takahashi, H. Arai and T. Wakiyama, IEEE Trans. Magn.,  
MAG-23, 3523 ('87).
- 17) T. Wakiyama, M. Takahashi, S. Nishimaki and J. Shimoda,  
IEEE Trans. Magn., MAG-17, 3147 ('81).
- 18) H. Sakakima, K. Osano and Y. Omata, IEEE Trans. Magn., MAG-23, 3707 ('87).
- 19) Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi, J. Appl. Phys., 64, 6044 ('88).
- 20) Y. Yoshizawa, K. Yamauchi, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 193 ('90).
- 21) T. Choh, H. Chihara, M. Igarashi, O. Kohmoto and Y. Narumiya,  
J. Mag. Soc. Jpn., 15, 285 ('91).
- 22) N. Hasegawa and M. Saito, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 313 ('90).
- 23) N. Hasegawa, M. Saito, A. Kojima, A. Makino, Y. Misaki and T. Watanabe,  
J. Mag. Soc. Jpn., 14, 319 ('90).
- 24) Y. Iitake and Y. Shimada, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 361 ('91).
- 25) K. Nago, H. Sakakima and K. Ihara, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 365 ('91).
- 26) K. Nakanishi, O. Shimizu and S. Yoshida, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 371 ('91).
- 27) K. Yamada, T. Maruyama, H. Tanaka, I. Kagawa and S. Ito,  
J. Appl. Phys., 64, 3157 ('88).
- 28) K. Hayashi, et al, J. Appl. Phys., 61, 3514 ('87).
- 29) D. W. Rice, J. Suits, D. Nepela and R. Tremoureux,  
J. Appl. Phys., 50, 7089 ('79).
- 30) Y. Nagai, A. Tago, K. Yanagisawa and T. Toshima,  
J. Appl. Phys., 61, 3841 ('87).
- 31) M. Takahashi, H. Shoji and T. Wakiyama, J. Magn. Soc. J., 13, 585 ('87).
- 32) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo, N. Kumasaka and K. Shiiki,  
J. Appl. Phys., 64, 3157 ('88).
- 33) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo and N. Kumasaka,  
IEEE Trans. Magn. MAG-23, 2746 ('87).
- 34) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo, N. Kumasaka and K. Shiiki,  
J. Appl. Phys., 64, 3157 ('88).
- 35) F. W. A. Dirne, F. J. A. den Broeder, J. A. M. Tolboom, H. J. de Wit,  
C. H. M. Witmer, Appl. Phys. Lett., 53, 2386 ('88).
- 36) T. Miyazaki, F. Sato, K. Takahashi, T. Tanaka and T. Shimazu,  
J. Mag. Soc. Jpn., 13, 241 ('89).
- 37) Y. Hoshi, M. Seki and M. Naoe, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 289 ('89).
- 38) S. Sugeno, H. Okayama and Y. Narumiya, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 351 ('89).
- 39) 中谷亮一 他, 応用物理 第59巻 688 ('90).
- 40) K. Takahashi, H. Shoji, M. Abe, H. Komaba and T. Wakiyama,  
J. Mag. Soc. Jpn., 14, 283 ('90).
- 41) N. Hasegawa and M. Saito, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 313 ('90).
- 42) A. Gyotoku, H. Tomiyasu and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 375 ('90).



- 43) F. Sato and T. Miyazaki, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 307 ('91).
- 44) A. Gyotoku, H. Tomiyama and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 399 ('91).
- 45) N. Hasegawa, M. Saito, N. Kataoka and H. Fujimori, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 403 ('91).
- 46) M. Jimbo, E. Sobue, S. Tsunashima and S. Uchiyama, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 2756 ('91).
- 47) M. Jimbo, T. Nakamachi, E. Sobue, S. Tsunashima and S. Uchiyama, J. Mag. Soc. Jpn, 15, Suppl., S2, 69 ('91).
- 48) M. Jimbo, E. Sobue, S. Tsunashima and S. Uchiyama, J. Magn. Magn. Mat., 104, 1829 ('92).
- 49) L. L. Chang and B. C. Giessen, Synthetic Modulated Structures (Academic Press, '85)
- 50) T. Shinjo and T. Takada, Metallic Superlattices (Elsevier Science Publishers, '87).
- 51) 新庄輝也, 固体物理, Vol. 21, 582 ('86).
- 52) H. R. Kaufman, j. j. Cuomo and J. M. E. Harper, J. Vac. Sci. Technol., 21, 725 ('82).
- 53) H. R. Kaufman, J. Vac. Sci. Technol., 15, 272 ('87).
- 54) G. R. Thompson, Jr., Solid State Technol., 21, 73 ('78).

## 第2章 NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

### 2-1 はじめに

薄膜磁気ヘッド等の磁性薄膜部品用磁性膜において有効磁束路の幅を広げ、かつ高周波特性を改善するためには、磁性体と非磁性絶縁体とを交互に積層させた多層構造の膜とすることが有利である[1-4]。本章では磁性体と非磁性絶縁体とから成る多層膜を作製し、このような膜において期待される有効磁束路幅拡大および比透磁率の高周波特性改善効果について確認する。本章の目的は上記多層効果の確認にあるため、多層膜の構成材料としてはその特性が比較的よく理解されており、また単層状態との比較が容易であることが望ましい。そこで本研究では磁性体として従来、磁性薄膜部品用磁性膜として多用されているNiFe合金を、また非磁性絶縁体としては薄膜部品中で電氣的磁氣的絶縁材料として使用されているSiO<sub>2</sub>を用いる。本章ではまず、歪誘導磁気異方性を回避するための条件を明らかにするため、NiFe合金膜の磁歪定数[5]と磁気異方性との関係を調べ、ついでNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の構造、多層効果、および磁気特性について検討する。

### 2-2 実験方法

多層膜はイオンビームスパッタ法により作製した。図2-1に装置の概略図を示す。NiFeおよびSiO<sub>2</sub>の2枚のターゲットを装着させ、ターゲットホルダを回転させることにより、ターゲットの交換を真空を保ちつつ連続的に行う。各層の膜厚はスパッタ時間により設定し、ターゲットホルダの回転およびスパッタ時間の制御はコンピュータにより行った。主な成膜条件を表2-1に示す。チャンバの真空のバックグラウンドは $1 \times 10^{-6}$  Torr、スパッタガスには高純度Ar(99.99%)を使用し、動作真空度は $1 \times 10^{-4}$  Torrとした。Arイオンの加速電圧は1 kV、イオン電流は35 mAとした。ターゲットには5インチ径のNiFe合金およびSiO<sub>2</sub>ディスクを使用し、NiFe合金ターゲットの組成はNiFe合金ディスク上に張り付けた1 cm角のFeおよびNiペレットの位置あるいは枚数により制御した。ターゲット、ペレットにはいずれも純度99.99%のものを使用した。基板にはCorningガラス(No.0211)およびSi(110)ウェハを使用し、基板温度は160℃に設定した。NiFe膜に磁気異方性をつけるため、基板表面に平行に約100 Oeの外部磁場を印加した。外部磁場は基板ホルダに固定した永久



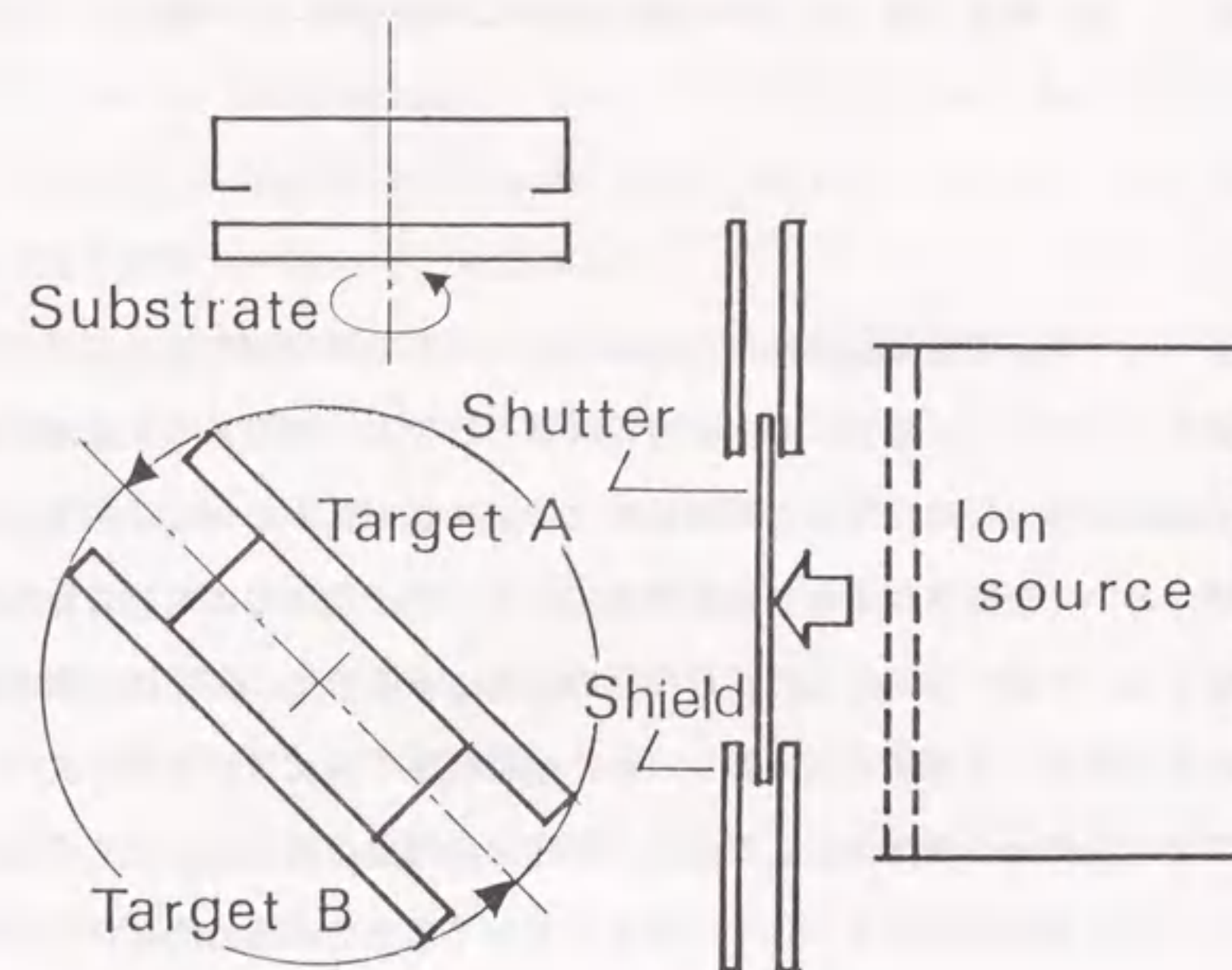


図2-1 多層膜作製用IBS装置

表2-1 成膜条件

Pwork	Ar $1 \times 10^{-4}$ Torr
Vacc	1 kV
Iion	35 mA
depo.rate	500 nm/hr.
Tsub	160°C
Hext	100 Oe

磁石により印加した。基板ホルダはスパッタ粒子が基板面に垂直に入射するように設置され、また膜の均一化を図るため、成膜中はスパッタ粒子の入射方向を軸として4 rpmで回転させた。

多層膜の断面形態、結晶構造は、透過電子線顕微鏡(TEM)、電子線回折(ED)により観察した。膜厚方向の組成分布はArイオンラスタを併用したオージェ電子分光法(AES)により分析した。

磁歪定数( $\lambda_s$ )は膜面に平行に外部磁場(25 Oe)を印加した際の、基板のたわみ量の変化から見積った。図2-2に示すように短冊状基板の一端を固定し、外部磁場方向を基板の短辺方向から長辺方向へ変化させた際の基板のたわみ量の変化を $\Delta$ とすると、 $\lambda_s$ は

$$\lambda_s = (2/9) \cdot \{E_s(1+\nu_r)ts^2\Delta\} / \{E_r(1-\nu_s)trl^2\} \quad \dots(2-1)$$

で表される[6]。ここで $E_s$ ,  $E_r$ はそれぞれ基板および膜のヤング率、 $\nu_s$ ,  $\nu_r$ は基板、膜のポアソン比、 $ts$ ,  $tr$ は基板、膜の厚さ、 $l$ は基板の長辺の長さである。ヤング率、ポアソン比はバルクでの値を使用した。たわみ量の測定には静電容量型変位センサを使用した。この測定法では、膜厚数百nmの膜に対し、 $\lambda_s = 1 \times 10^{-7}$ 程度の感度で磁歪測定が可能である。

磁区構造はフォトリソグラフィ法により微細パターンに加工した後、ビッター法[7]により観察した。フォトリソグラフィ法の手順を図2-3に示す。露光には紫外線、エッチングにはArイオンビームを使用した。ビッター法はコロイド溶液に懸濁した強磁性微粒子が磁性膜表面の漏洩磁束密度の勾配が急な磁壁近傍に集まることを利用した方法(図2-4)であり、本研究ではMnZnフェライトコロイドのシクロヘキサン溶液を用い、観察は光学顕微鏡により行った。

比透磁率( $\mu_r$ )の周波数特性は8字コイル法[8]を用い、磁場強度約80 mOeの高周波磁場(1~50 MHz)中にて測定した。図2-5に示すように、膜に高周波磁場( $H_{rf}$ )を印加すると、サンプルコイルに誘導される電圧( $V_s$ )および参照コイルに誘導される電圧( $V_r$ )は、

$$V_s = \mu_r \cdot \mu_0 (dH_{rf}/dt) W \cdot tr + \mu_0 (dH_{rf}/dt) W (h-tr) - \mu_0 (dH_{rf}/dt) W \cdot h$$

$$\approx \mu_r \cdot \mu_0 (dH_{rf}/dt) W \cdot tr \quad \dots(2-2)$$

$$V_r = \mu_0 (dH_{rf}/dt) W \cdot h \quad \dots(2-3)$$

となり、比透磁率は、

$$\mu_r = (h/tr) \cdot (V_s/V_r) \propto V_s/V_r \quad \dots(2-4)$$

と求められる。ここで $\mu_0$ は真空の透磁率、 $W$ ,  $h$ はコイルの幅、高さ、 $tr$ は膜厚である。



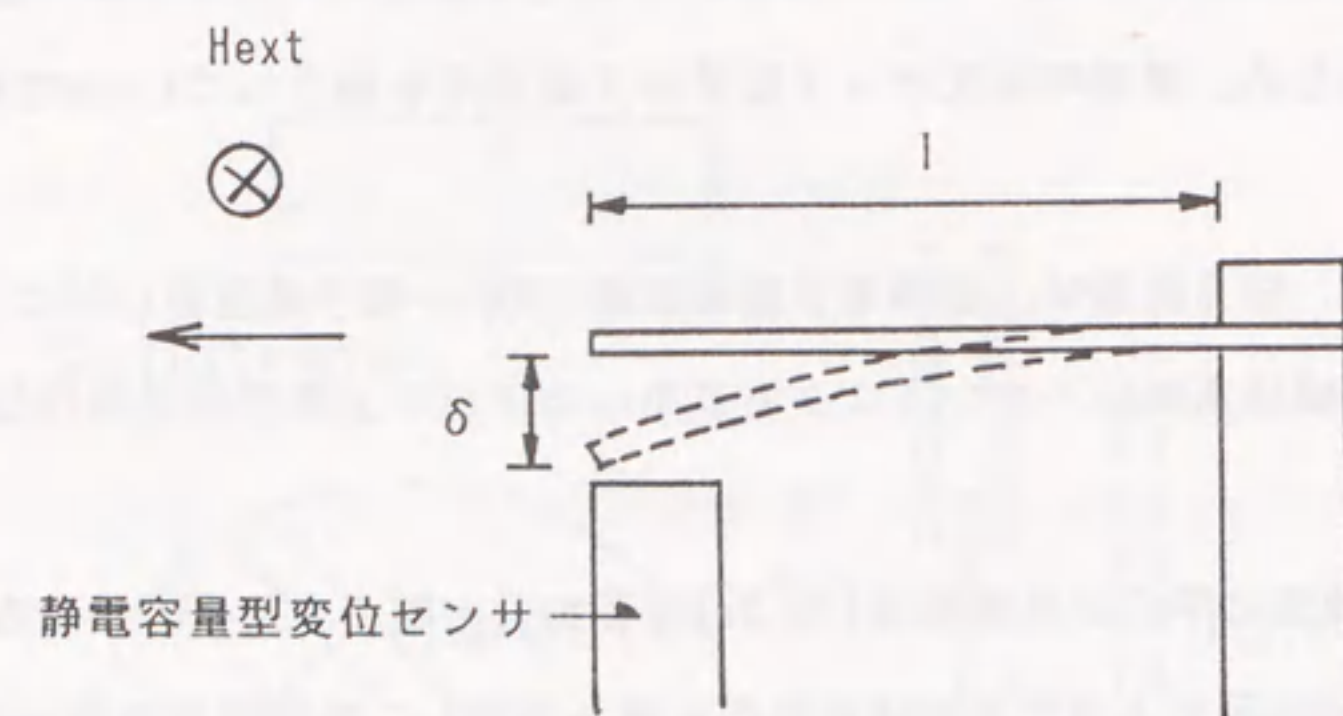


図2-2 磁歪定数測定の実理

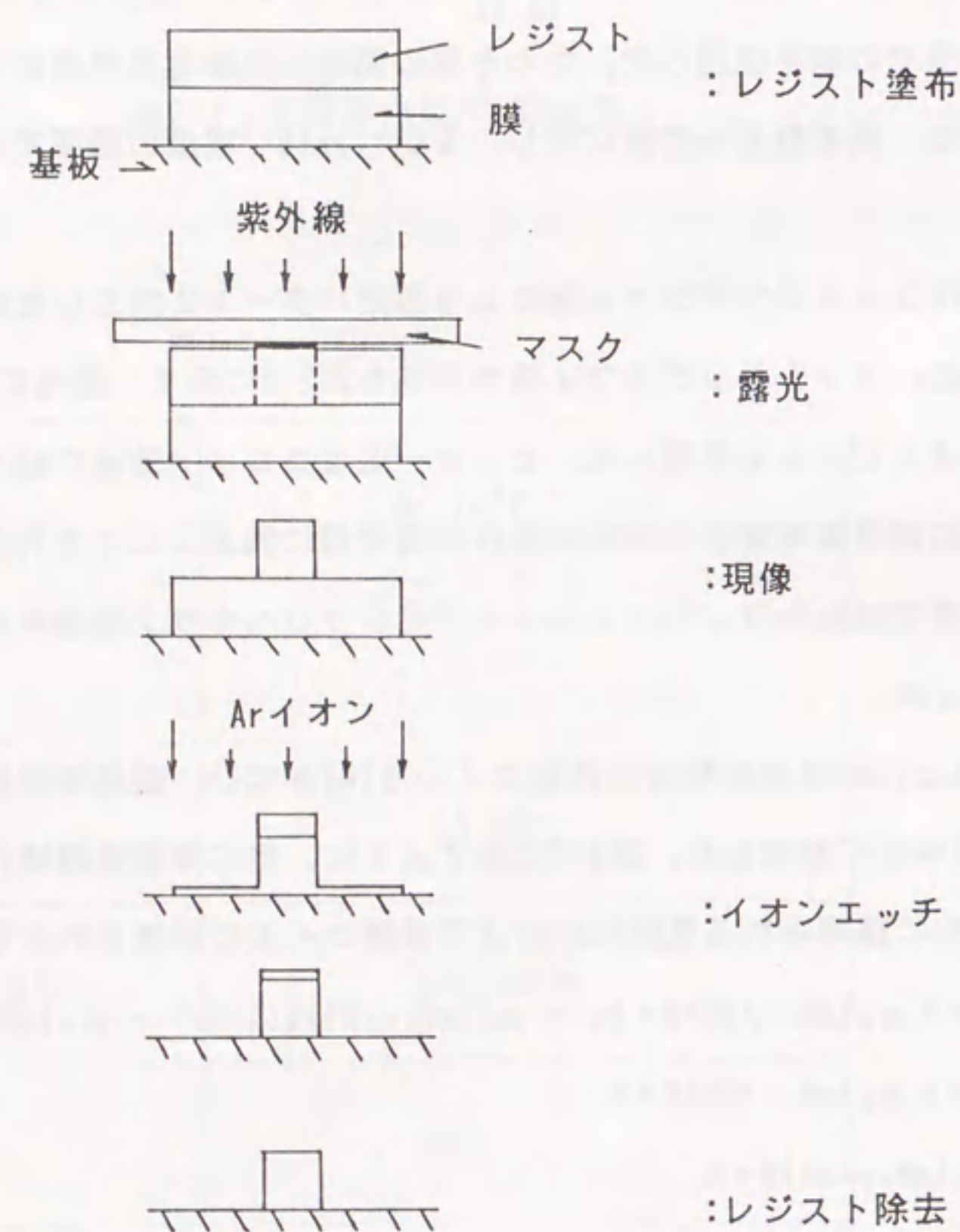


図2-3 フォトリソグラフィ法による微細加工手順

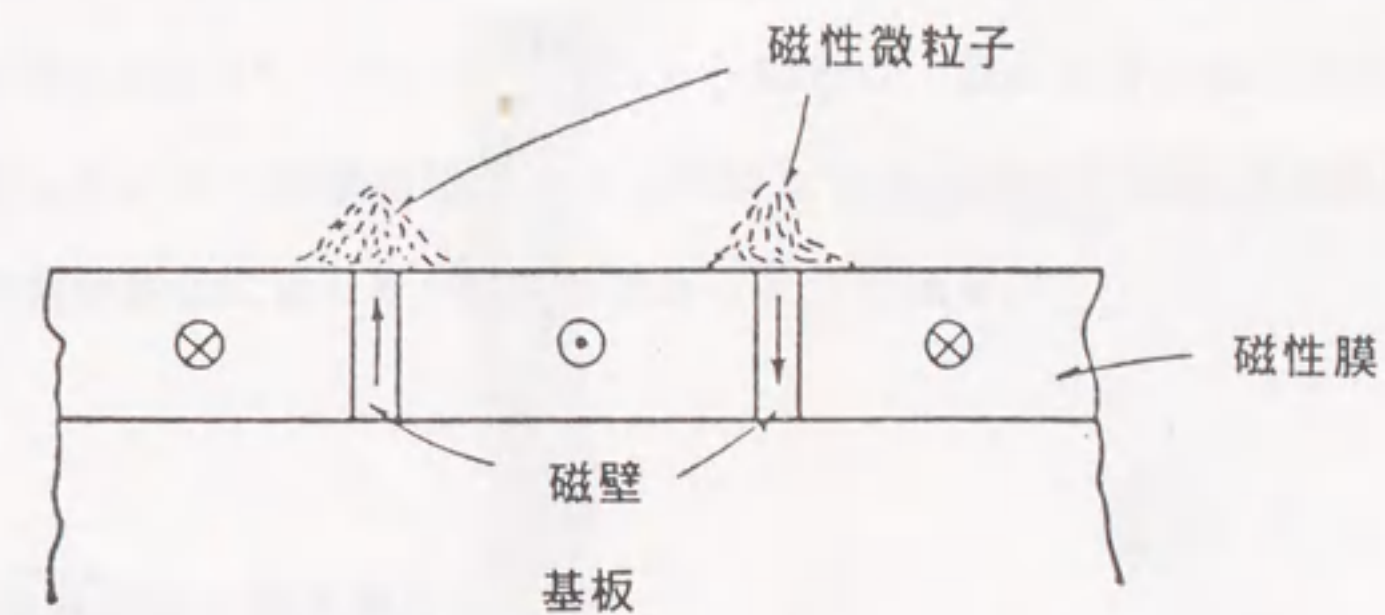


図2-4 ビッター法による磁区観察の実理

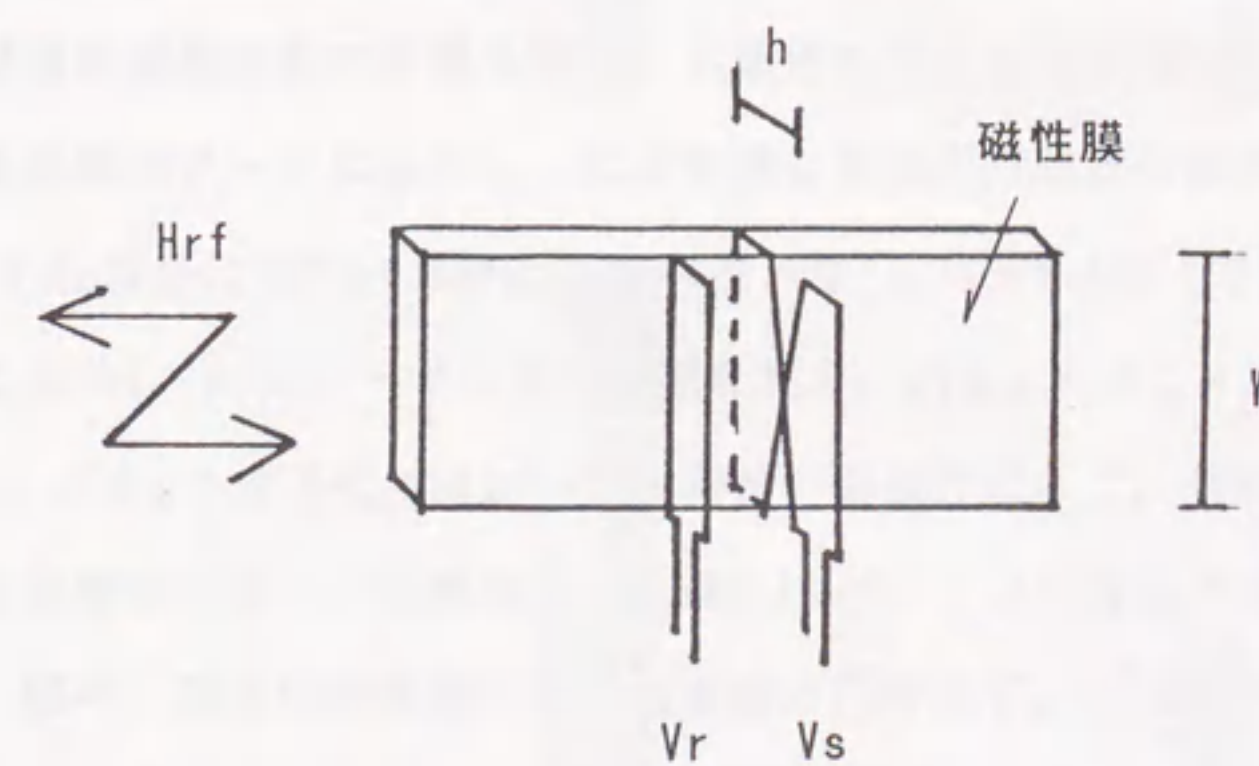


図2-5 8字コイル法による比透磁率測定



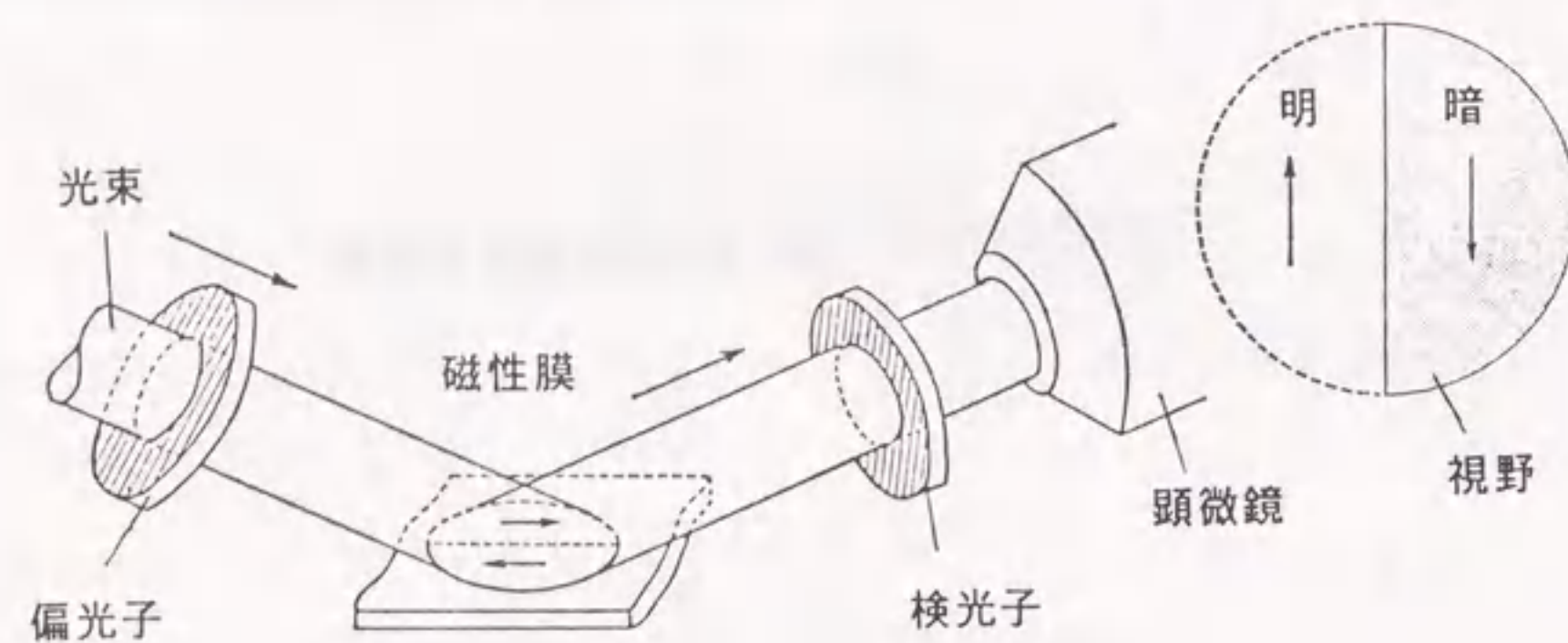


図2-6 カー効果によるM-H測定

周波数の走査および信号処理はネットワークアナライザにより行い、(2-4)式の $h$ はNiFe膜を標準試料に用いて校正した。なお、一連の操作はコンピュータにより自動化した。

通常の磁化特性はM-Hループトレーサにより測定し、微小部分の磁化特性はカー効果を利用して測定した。カー効果は磁化によって反射光の偏光面が回転する現象であり(図2-6)、反射光の強度変化によりM-H特性を知ることができる。

### 2-3 NiFe膜の磁歪定数と磁気異方性

軟磁性膜を薄膜部品の磁束路として用いる場合、高周波応答に優れた一軸磁気異方性の困難軸方向のM-H特性を利用することが有利である。NiFe膜の場合、磁場誘起誘導磁気異方性を示すため[9]、磁場中成膜することにより、任意の方向に一軸磁気異方性をつけることができる。しかし、磁性膜が磁歪を持つ場合には、逆磁歪効果による歪誘導磁気異方性を考慮する必要がある。歪誘導磁気異方性( $K_\lambda$ )は磁歪定数( $\lambda_s$ )と膜内の一軸性の応力( $\sigma_r$ )との積

$$K_\lambda = -(3/2) \sigma_r \cdot \lambda_s \quad \dots (2-5)$$

で表される。成膜時に応力が膜面内で等方的であったとしても、薄膜部品として微細加工すると、パターンの形状によって異方的な応力が生じ、膜面内で一軸磁気異方性が発生する。この歪誘導磁気異方性の影響を回避する条件を明らかにするため、種々の磁歪定数を持つNiFe膜を微細パターンに加工し、磁歪定数と磁気異方性との関係を調べた。結果を図2-7に示す。NiFe合金はNi83wt.%付近で零磁歪となり、83wt.%以上で負磁歪、83wt.%以下で正磁歪となる[5]。NiFeターゲットの組成を変え、a)  $\lambda_s < 0$  ( $-4.3 \times 10^{-6}$ ), b)  $\lambda_s \sim 0$  ( $-1.1 \times 10^{-7}$ ), c)  $\lambda_s > 0$  ( $+2.3 \times 10^{-6}$ )の3種類の膜を作製した。作製されたNiFe膜の膜応力はいずれも圧縮性であり、微細加工した際にはパターンの長辺方向に強い圧縮力( $\sigma_r < 0$ )が働く。図中、両矢印は成膜中の印加磁場方向を示す。a)とc)では $\lambda_s$ の符号が逆であるため、歪誘導磁気異方性により全ての場所で容易軸方向が90度逆転していることがわかる。a), c)ではそれぞれ長辺方向、短辺方向が容易軸となり、磁場誘起誘導磁気異方性による磁気異方性制御が不可能となっている。一方、b)では全ての場所で容易軸方向が印加磁場方向と一致し、容易軸は磁場誘起誘導磁気異方性によって決定していることがわかる。以上のように、薄膜部品中では磁性膜の磁気異方性は歪誘導磁気異方性の影響を強く受けることがわかる。歪誘導磁気異方性を積極的に利用することも考えられるが、薄膜部



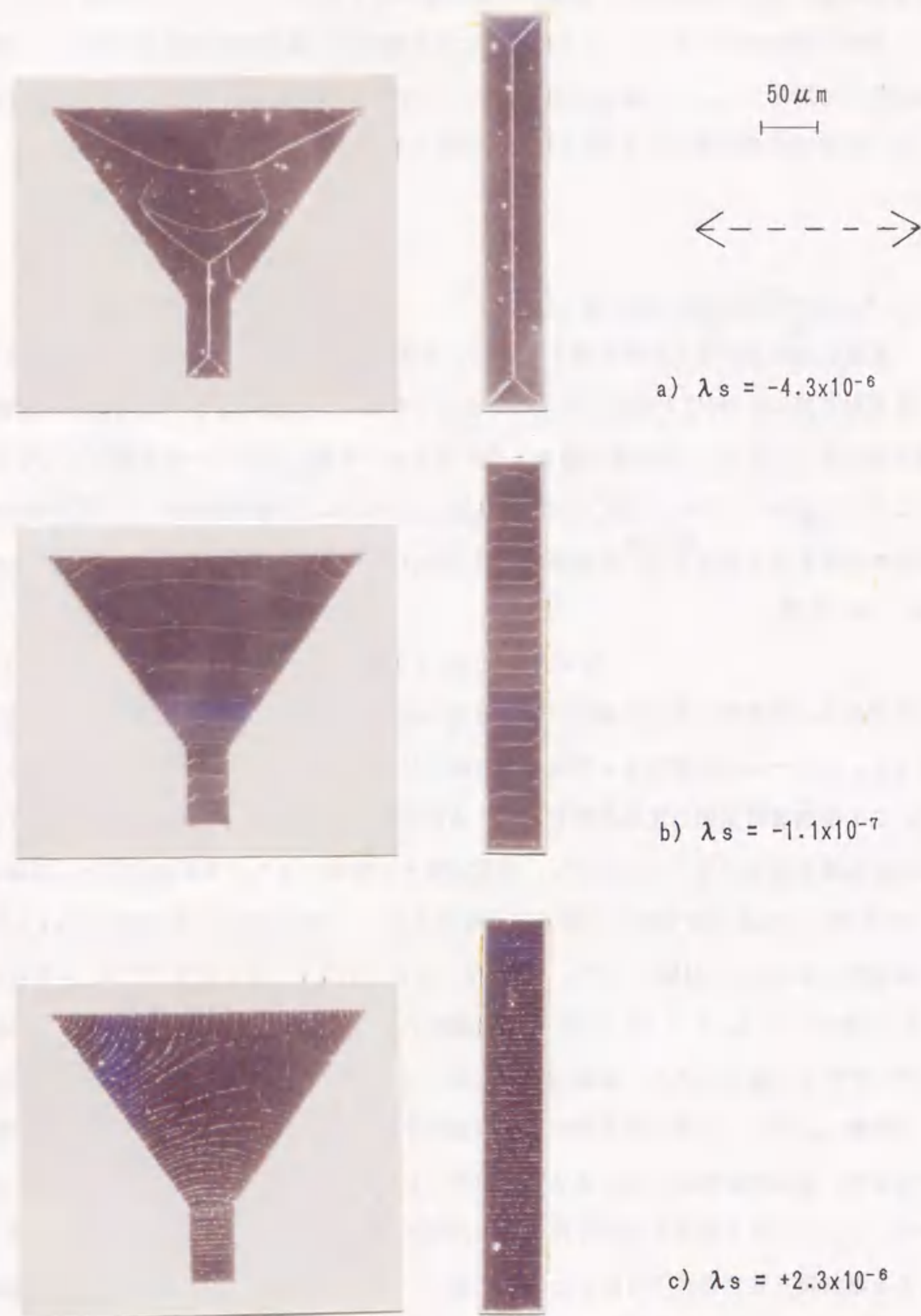


図2-7 磁歪定数と磁区構造の関係

品では多彩なパターン形状を用いること、および異種材料を複雑に積層化させる必要があることなどにより、応力分布が複雑となり、一般には磁気異方性制御が困難である。従って、実際には歪誘導磁気異方性の影響を避け、磁場誘起誘導磁気異方性のみによって磁気異方性制御を行うことが必要となる。膜と基板との間に生ずる応力は膜の種類によらず  $10^9$  dyn/cm<sup>2</sup> とほぼ同程度であるため、上記の検討から磁歪定数として  $\pm 10^{-6}$  以下と設定することにより、歪誘導磁気異方性の影響をほとんど回避できることがわかる。今後開発する新磁性材料においても、歪誘導磁気異方性の影響を回避できる磁歪定数の値として、 $\pm 10^{-6}$  以下を目安とする。

## 2-4 NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

### 2-4-1 NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の構造

図2-1の作製装置で実際に多層構造の膜が作製可能であることを確認するため、作製した試料の断面形態を観察した。図2-8にNiFe/SiO<sub>2</sub> (50/5 nm)多層膜の断面TEM像を示す。各層は数nmから数十nmと非常に薄いにもかかわらず、各層連続的で層厚も設定どおりの多層構造が形成されていることがわかる。SiO<sub>2</sub>層はアモルファス状態を成し、このような薄さでは電氣的絶縁性が問題となる[4, 10, 11]。しかし、この分析結果からは絶縁不良の原因となるピンホールは観察されない。図2-9に膜断面のEDパターンを示す。図でEDパターンの方位はTEM像の方位と一致する。NiFe層はfcc(面心立方格子)結晶構造をなし、膜厚方向に(111)優先配向性を示している。図2-10にAESによる深さ方向の組成分布を示す。etching timeは膜表面からの深さに対応する。NiFe層とSiO<sub>2</sub>層とが交互に積層されている様子が組成分析の結果からもわかる。境界面での緩やかな組成変化はAESの分解能に起因するものであり、実際にはTEM像で観察されるようにもっと急峻な界面を成しているものと考えられる。以上、本方法により設定どおりの多層膜の作製が可能であることが確認された。

### 2-4-2 NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁区構造

磁性体/非磁性絶縁体 多層膜の作製が可能となったため、次にこれらの多層膜について多層効果の一つである還流磁区構造の消失による有効磁束路幅拡大効果について検討し



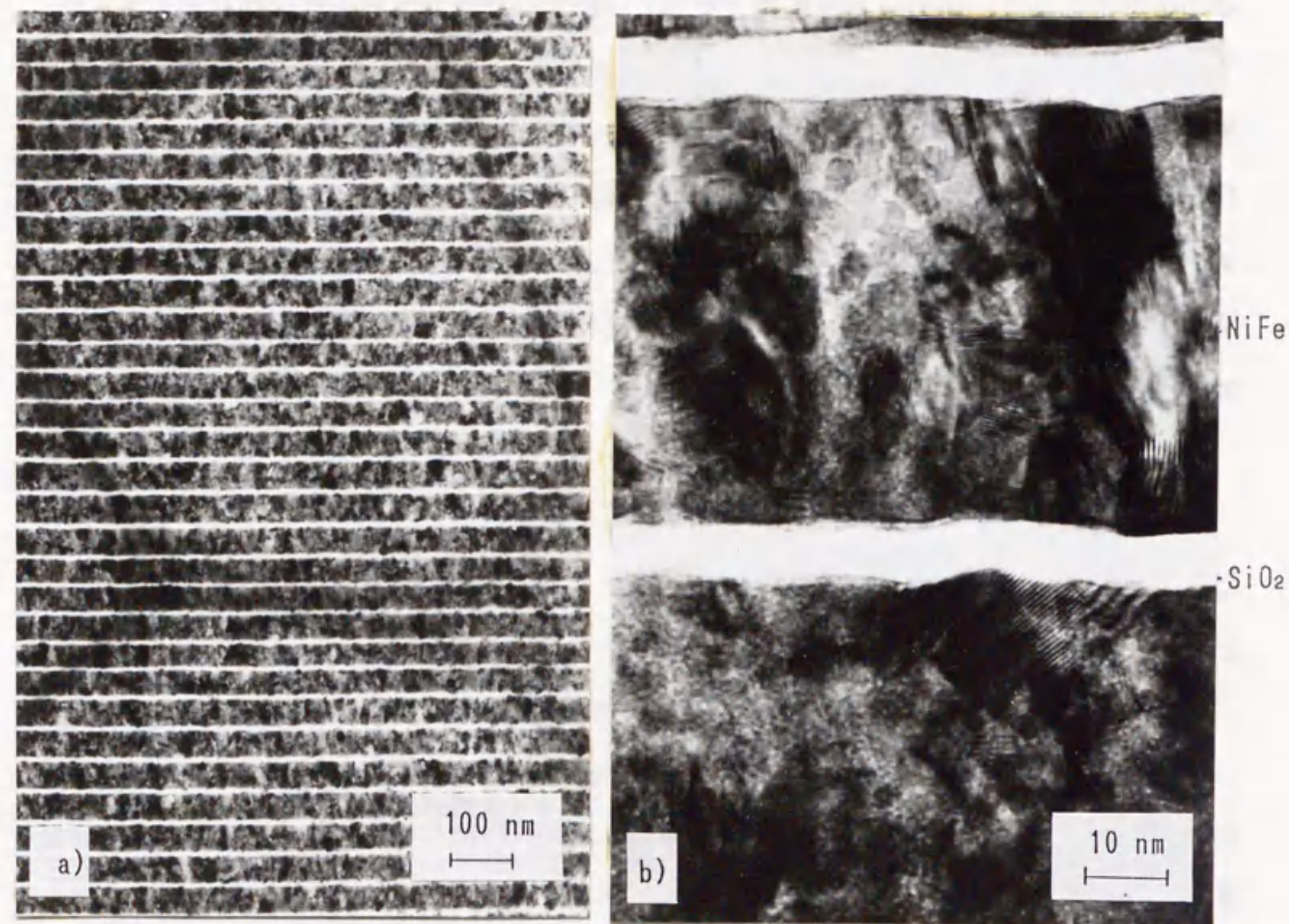


図2-8 NiFe/SiO<sub>2</sub> (50/5 nm)膜の断面TEM像

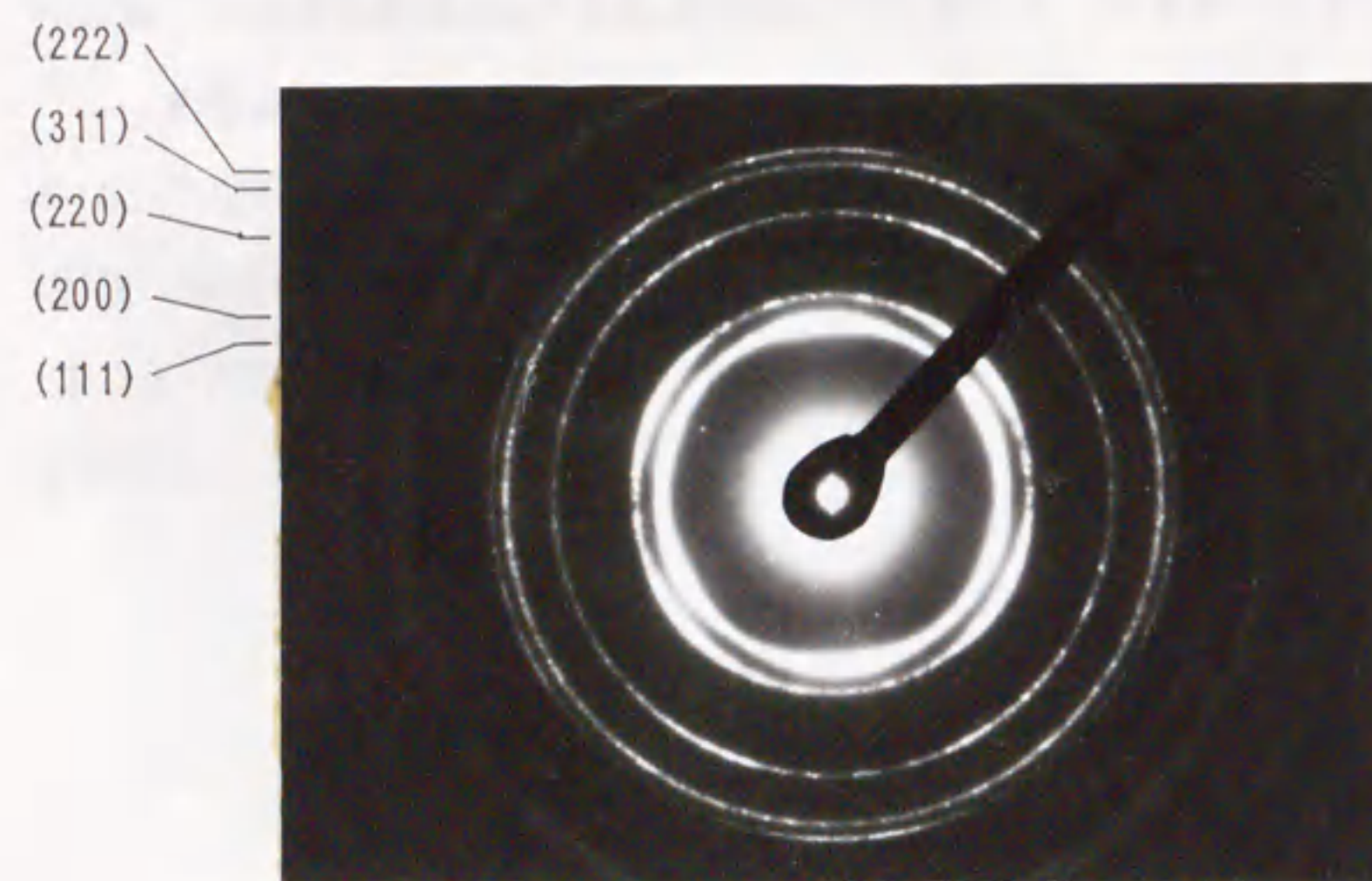


図2-9 NiFe/SiO<sub>2</sub> (50/5 nm)膜の断面EDパターン

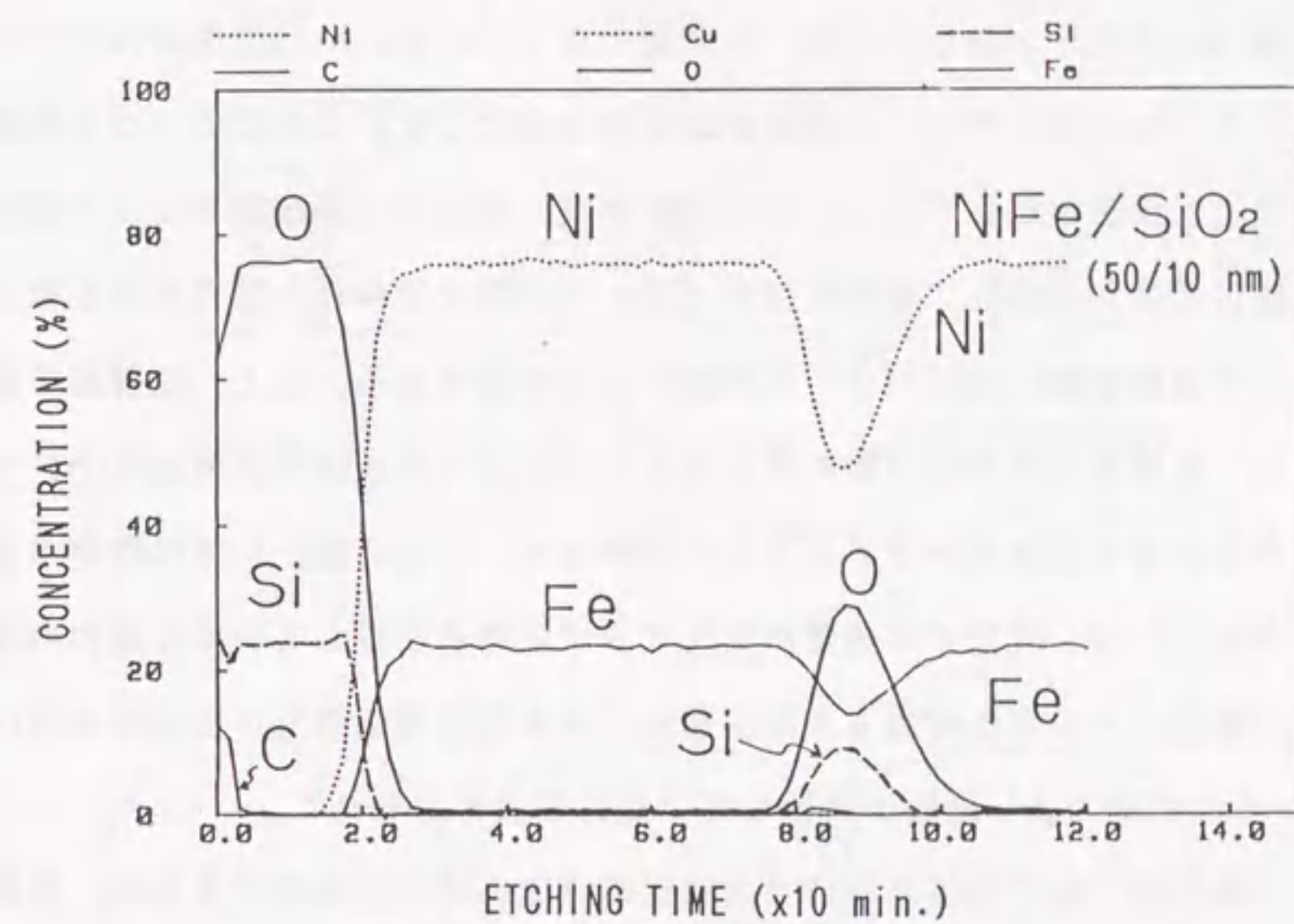


図2-10 NiFe/SiO<sub>2</sub> (50/10 nm)膜の組成分布(AES)



た。図2-11にNiFe層の層厚を変化させた場合の磁区構造を示す。パターンには薄膜磁気ヘッドコア用パターン(コア磁極部の幅 $10\mu\text{m}$ ,  $7\mu\text{m}$ )を使用し、総膜厚は薄膜磁気ヘッドに実際に使用される $2\sim 3\mu\text{m}$ 厚とした。 $\text{SiO}_2$ 層の層厚は断面TEMの結果から磁氣的絶縁がほぼ確実にとれている $5\text{ nm}$ に設定した。図中、両矢印は成膜中の印加磁場方向を示す。NiFe( $3\mu\text{m}$ )単層膜ではパターン全体に還流磁区構造が見られ、コア磁極部ではパターンの幅( $10\mu\text{m}$ )に比べ有効磁束路の幅がかなり狭くなっていることが観察できる。この傾向はコア磁極部の幅 $7\mu\text{m}$ パターンのものでは一層顕著となっている。NiFe層厚が $1000\sim 400\text{ nm}$ の多層膜ではパターンの広い部分では還流磁区構造は消失しているものの、コア磁極部は依然として還流磁区構造を成している。NiFe層厚が $200\text{ nm}$ 以下の多層膜ではコア磁極部においても還流磁区構造が消失し、線状磁壁がパターンの端まで伸びた磁区構造となっている。この様子はコア磁極部幅 $7\mu\text{m}$ のパターンにおいても同様である。以上、磁性層の層厚をある程度薄くし、多層構造の積層回数を多くすることによって還流磁区構造を消失させ、線状磁壁のみからなる磁区構造とできることがわかった。なお、図2-11では磁壁が見えたパターンのみを示したが、実際には磁壁が見えず単磁区構造を成していると思われるものも観察された。磁壁エネルギーを考慮すると多層膜では単磁区構造の方が安定であるが、図2-11ではピン止め作用により磁壁が残留しているものと考えられる。

微細加工後の容易軸方向は単層膜では磁区構造観察により確認できるが、多層膜では単磁区構造あるいは、線状磁壁のみの磁区構造となり容易軸方向の確認が困難である。そこでカー効果を用いてパターンの微小部分のM-H特性を調べ多層膜における容易軸方向の確認を行った。図2-12にパターンの上から下方にレーザスポットを走査した場合のM-H特性を示す。(a)は成膜中の外部磁場方向と平行に外部磁場を印加した場合、(b)は垂直に印加した場合である。シート状膜(2-4-4参照)に比べ、磁化を飽和させるのに大きな印加磁場を要するのは、微細加工後は膜面内の形状磁気異方性が無視できなくなるためと考えられる。(a)では全ての場所で容易軸方向のM-H特性が、一方(b)では全ての場所で困難軸方向のM-H特性が観測され、微細加工後の多層膜においても容易軸方向は磁場誘起誘導磁気異方性によって決定されていることがわかる。またこのことから図2-11で観察された線状磁壁は $180^\circ$ 磁壁であることがわかる。

以上、磁性体と非磁性絶縁体とからなる多層膜における有効磁束路幅拡大効果が確認された。

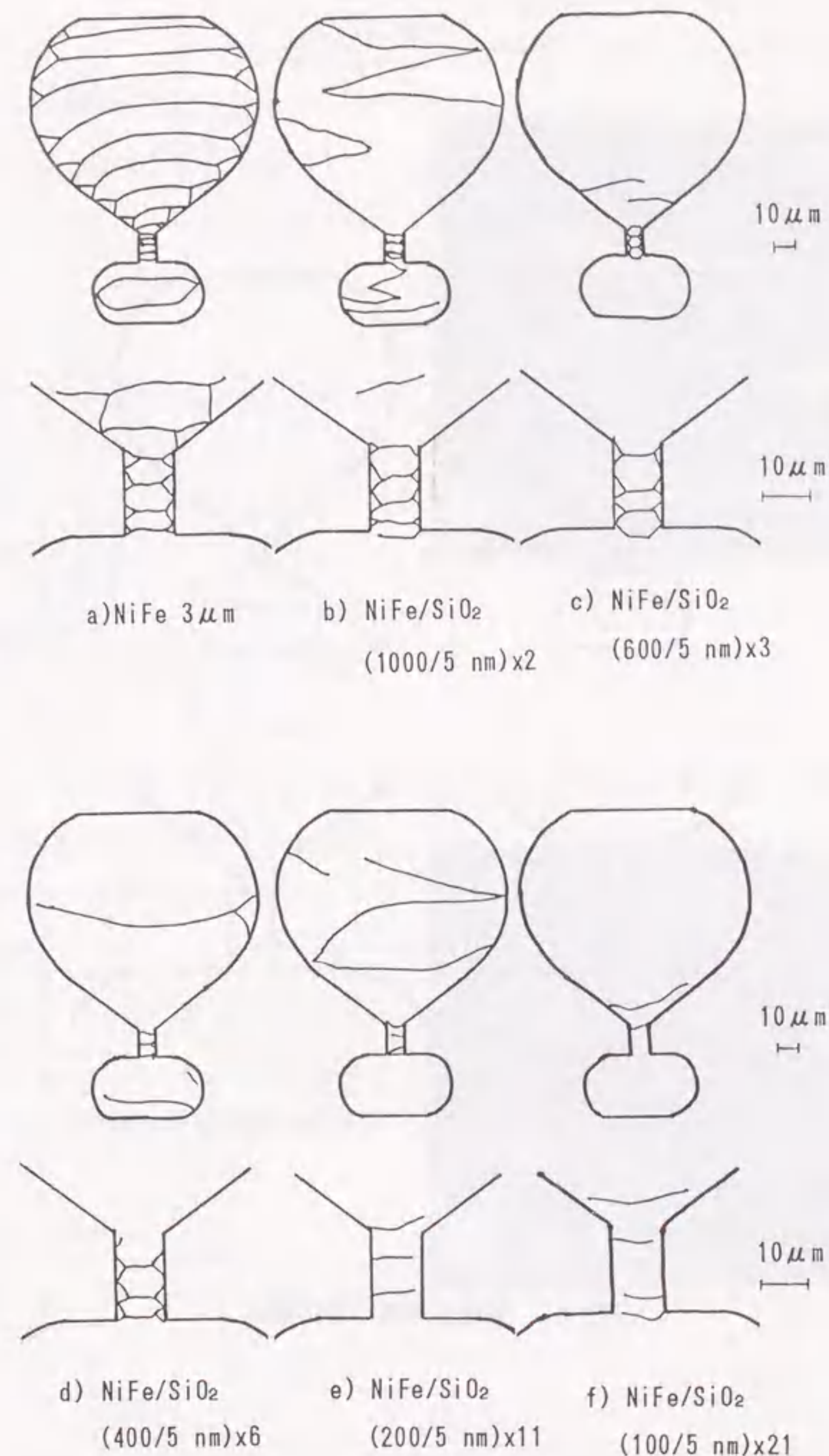


図2-11 各種多層膜の磁区構造



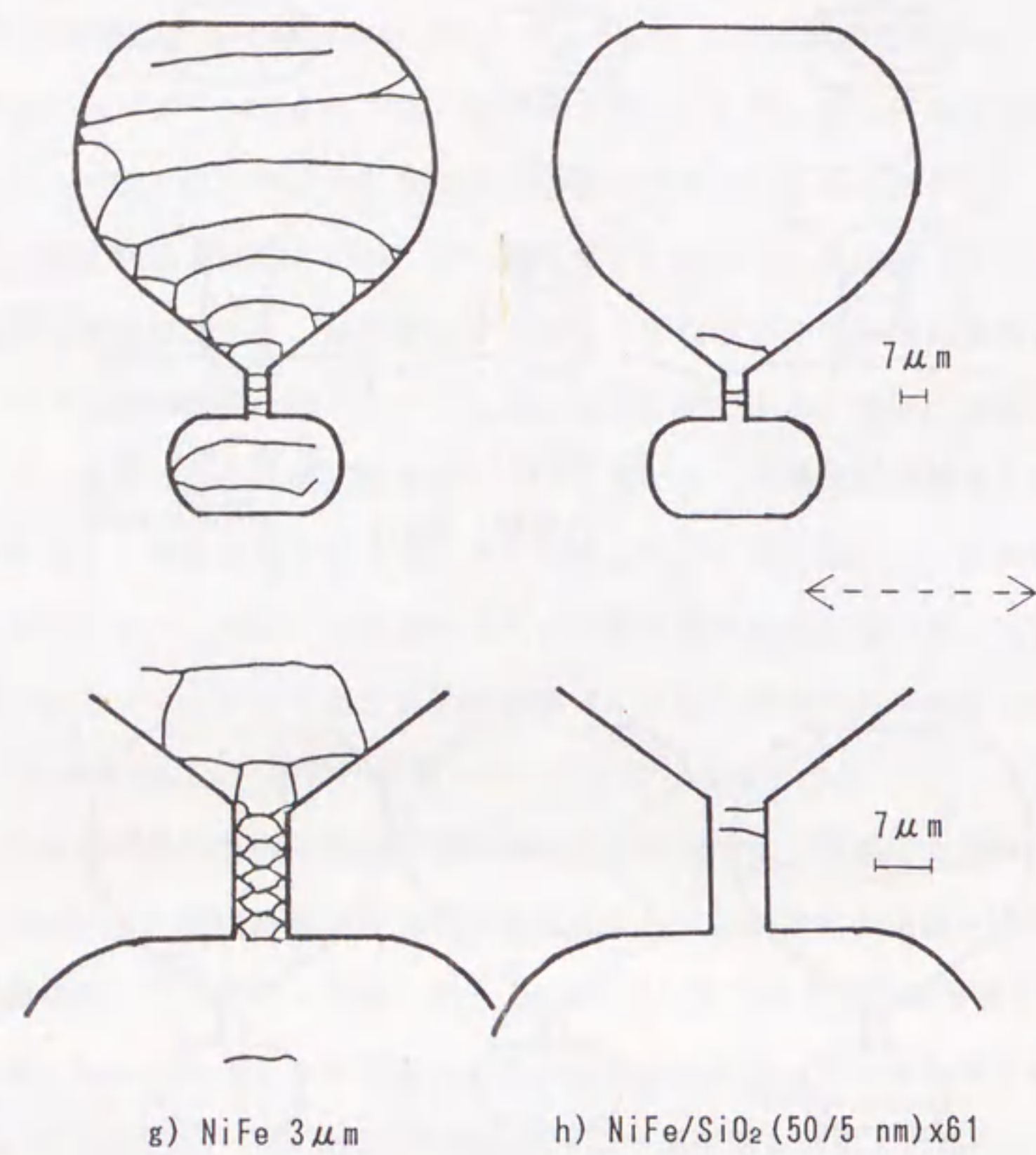


図2-11 各種多層膜の磁区構造

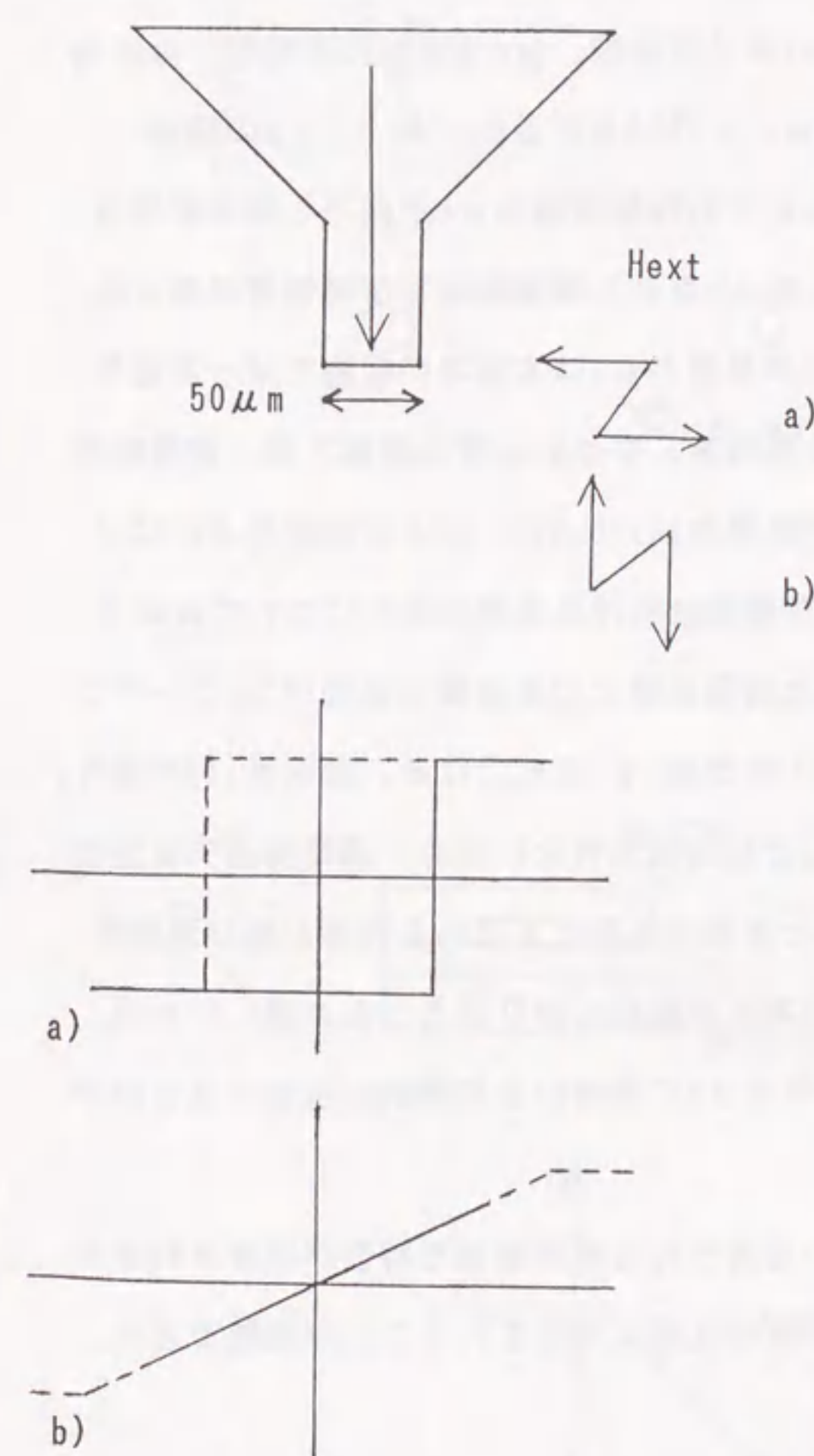
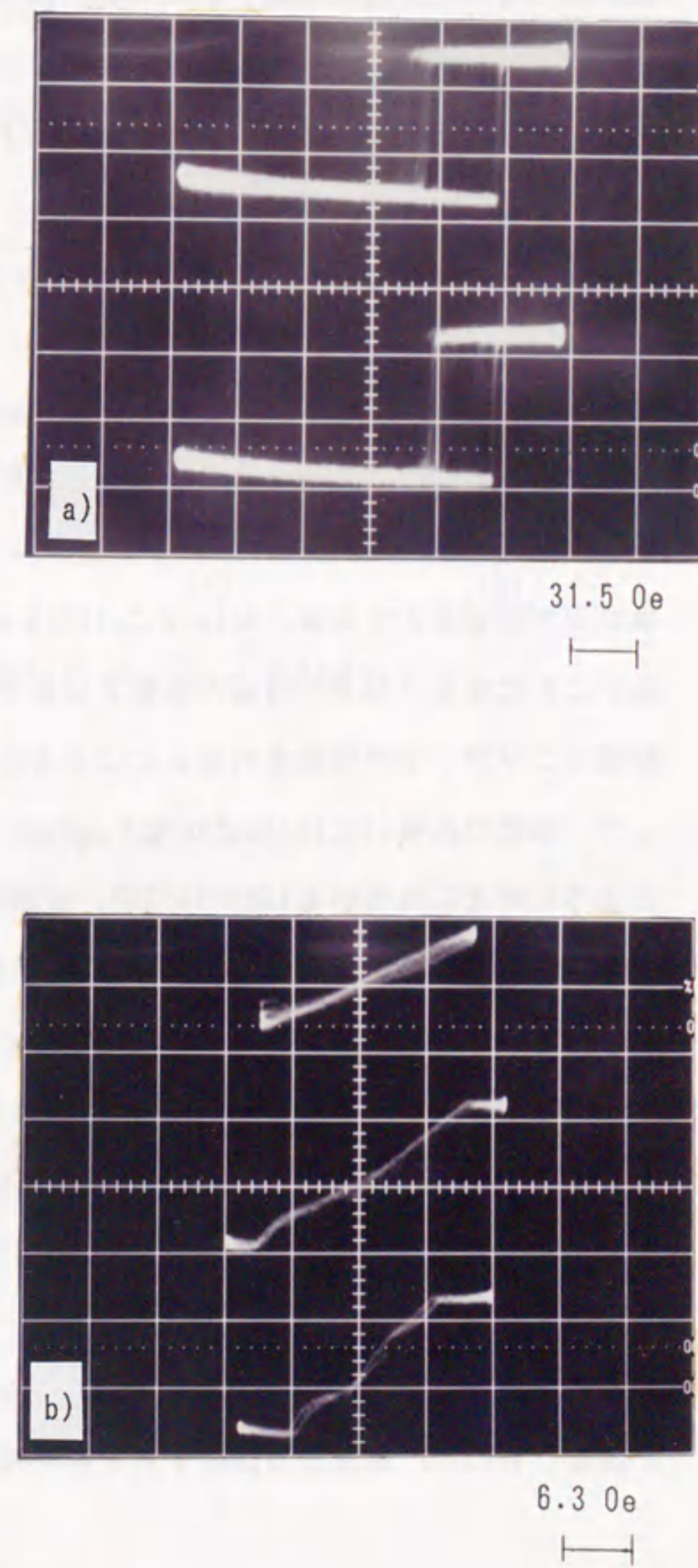


図2-12 パターン内のM-H特性





### 2-4-3 比透磁率の周波数特性

次にもう一つの多層効果である比透磁率の高周波数特性改善効果について検討した。図2-13にNiFe(2 $\mu$ m)単層膜, NiFe/SiO<sub>2</sub>(50/5 nm x 40)多層膜の比透磁率( $\mu_r$ )の周波数特性を示す。数MHzではいずれの膜でも $\mu_r$ は2500程度となった。数MHz以上で $\mu_r$ は低下し始めるが、単層膜と比較し多層膜ではその低下の度合いが小さく、高周波特性が改善されていることがわかる。表皮深さ( $\delta$ )は、

$$\delta = \sqrt{2\rho/\omega\mu_r\mu_0} \quad \dots(2-6)$$

で表される。ここで、 $\rho$ は磁性体の抵抗率、 $\mu_r$ は比透磁率、 $\mu_0$ は真空の透磁率、 $\omega$ は角振動数である。NiFeの場合 $\rho = 15 \times 10^{-8} \Omega\text{m}$ 、 $\mu_r = 2500$ とすると、 $\delta = 2 \mu\text{m}$ の場合、 $f(=\omega/2\pi) = 4 \text{ MHz}$ となる。これは図2-13においてNiFe単層膜の $\mu_r$ が低下し始める周波数とほぼ一致する。一方 $\delta = 50 \text{ nm}$ では $f = 6 \text{ GHz}$ となり、周波数特性が磁性層の表皮効果のみで決まるとすれば、NiFe/SiO<sub>2</sub>(50/5 nm)多層膜の $\mu_r$ は本測定の範囲では一定値を示すことになる。30 MHz付近から低下し始める原因としてはSiO<sub>2</sub>層の絶縁不良、金属磁性層間でコンデンサが形成されることによる渦電流損失[4,10,11]、および磁壁あるいはリップル磁壁の共鳴[12,13]などが考えられる。多層膜における渦電流損失については以下のように考えられている(図2-14)[4]。金属膜と誘電体膜との多層膜は抵抗(R)とコンデンサ(C)との直列回路で置き換えられ、この回路の時定数( $\tau$ )はRCとなる。周波数(f)が低く、 $\tau \ll 1/2\pi f$ を満たす場合には渦電流はほとんどの時間流れないため、渦電流損失は無視できる。一方、fが高くなり $\tau \sim 1/2\pi f$ となると渦電流が絶えず流れる状態となり渦電流損失が問題となる。この解釈は、変位電流の分布を理論的に取り扱うことが難しいため、定量性には欠けるものの[10,11]、多層膜における $\mu_r$ の振舞いを定性的に説明するものである。

以上、多層膜では単純に磁性層の層厚から見積られる周波数まで特性が改善されることはないものの、単層膜と比較すると高周波特性は大幅に改善されることが確認できた。

### 2-4-4 NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜のM-H特性

多層化に伴う磁気特性の変化を調べるため、各種多層膜のM-H特性を測定した。図2-15にNiFe層厚、SiO<sub>2</sub>層厚を変化させたNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の困難軸方向のM-H曲線を示す。いずれの膜でも、保磁力(H<sub>c</sub>)は0.1~0.3 Oe、異方性磁場(H<sub>k</sub>)は3~4 Oeとなり、これらの値

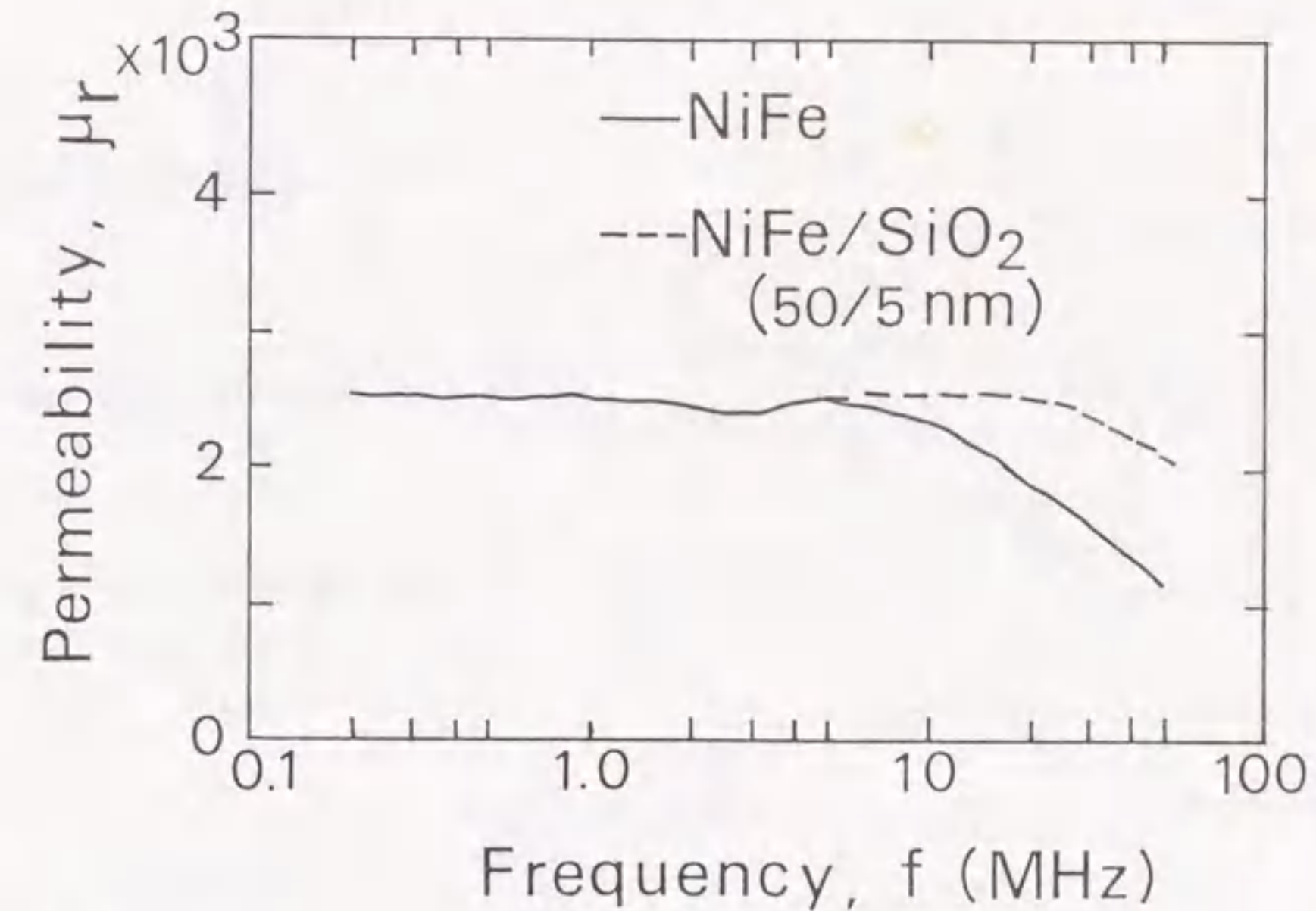


図2-13 比透磁率の周波数特性

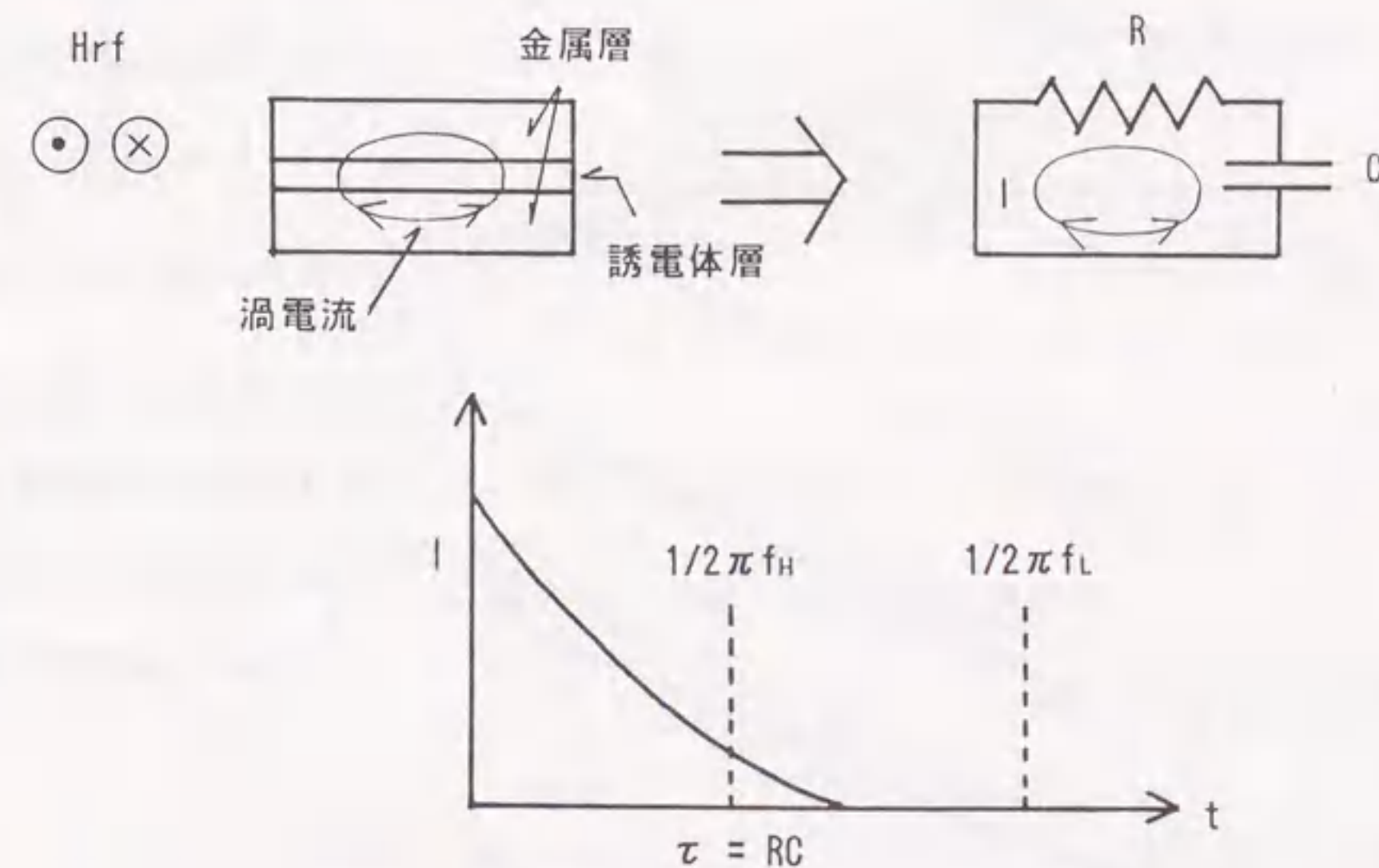


図2-14 多層膜における渦電流損失



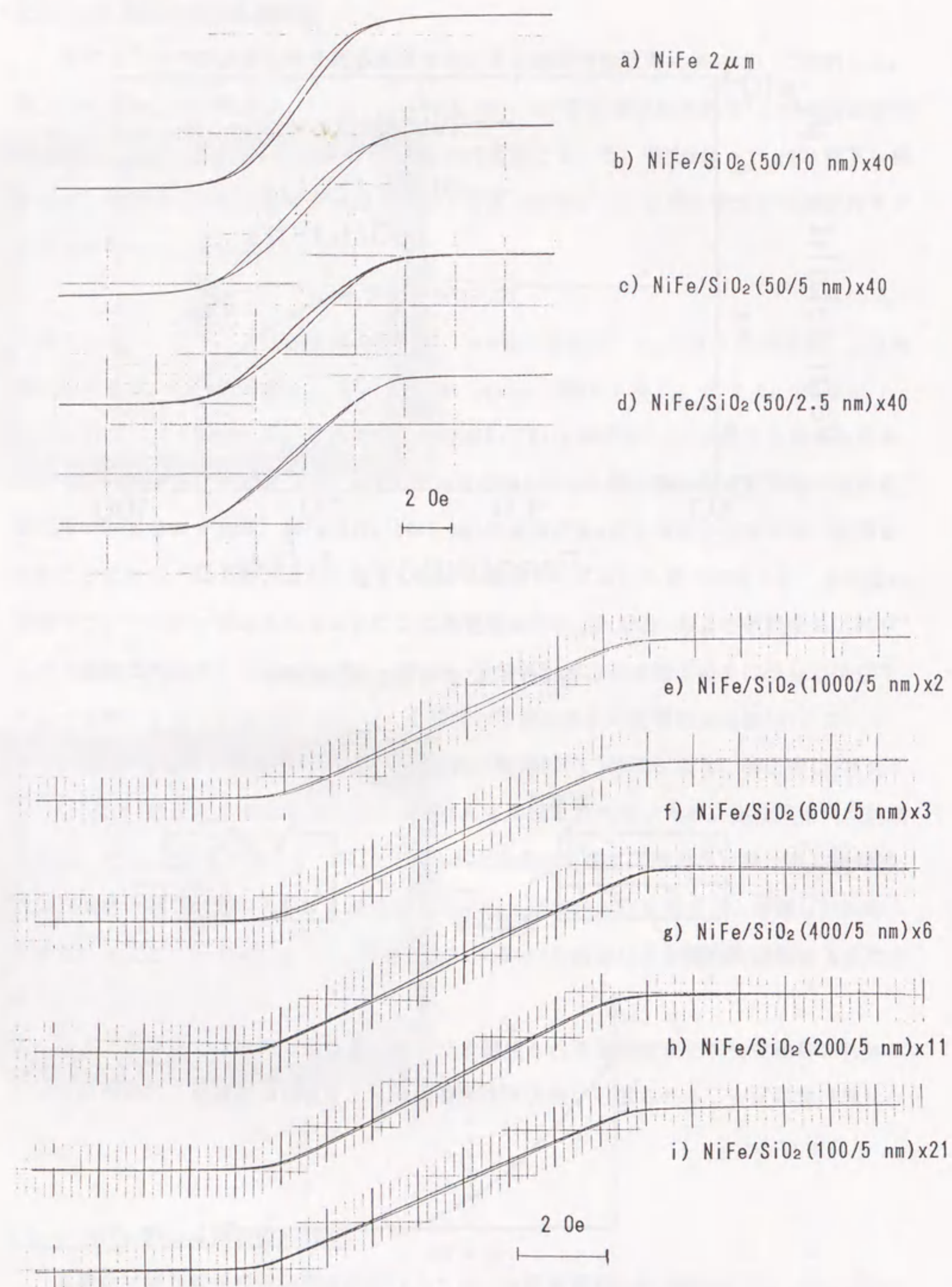


図2-15 各種NiFe/SiO<sub>2</sub>膜のM-H特性

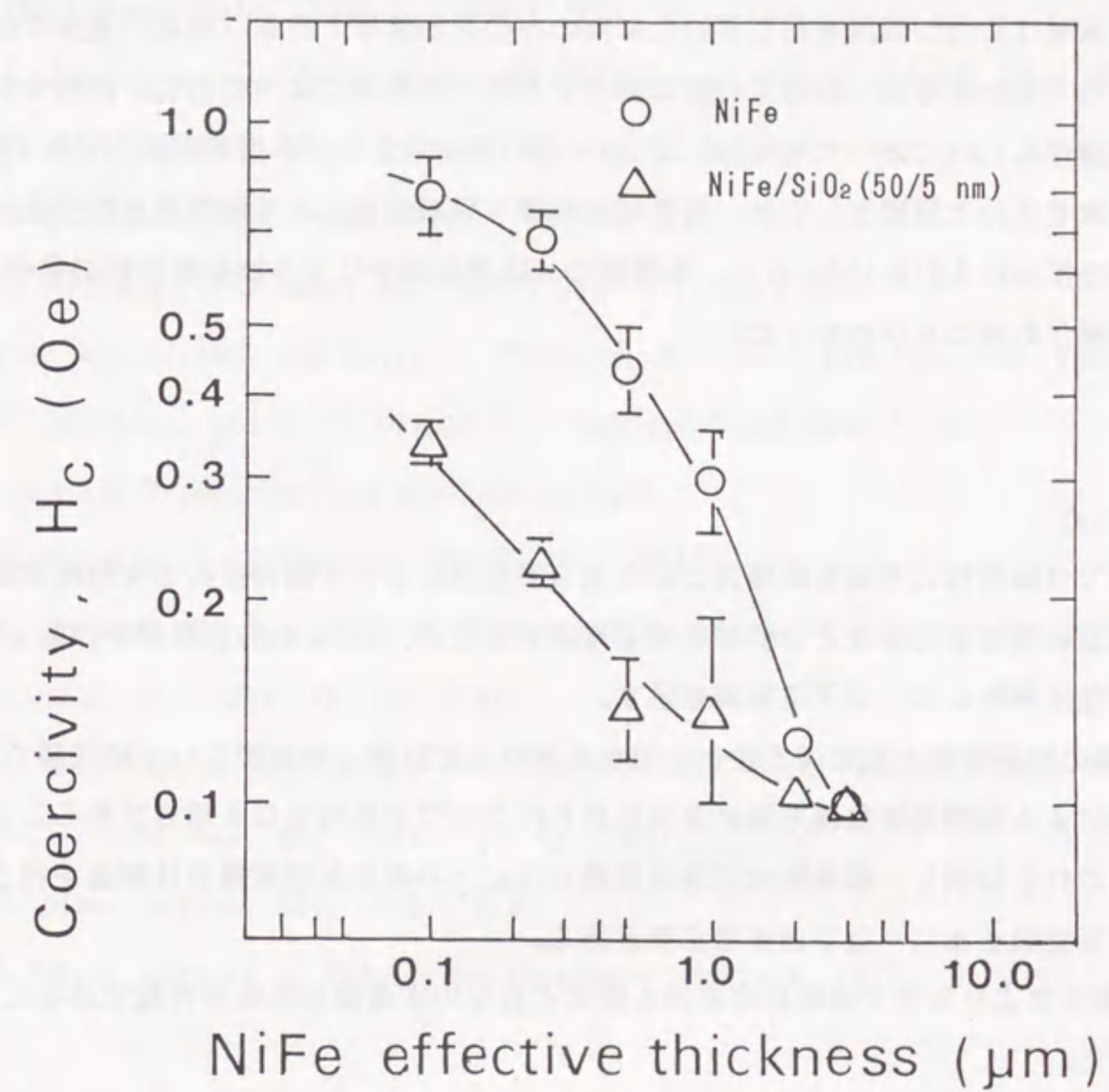


図2-16 保磁力の有効膜厚依存性



はNiFe単層膜と同程度である。従って非磁性絶縁層と多層化することによる磁気特性の劣化はないことがわかる。リング型ヘッドではコア用磁性膜として2~3 $\mu\text{m}$ 程度の膜厚が、また単磁極ヘッドではサブミクロンの膜厚が必要とされ、今後他の薄膜部品への応用も考えとできるだけ広い膜厚範囲で優れた軟磁気特性を示すことが要求される。図2-16にNiFe単層膜とNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の困難軸方向保磁力(H<sub>c</sub>)の膜厚依存性を示す。NiFe層厚、SiO<sub>2</sub>層厚はそれぞれ50 nm, 5 nmに設定し積層回数を変えることにより総膜厚を変化させた。図で横軸はSiO<sub>2</sub>の膜厚を差し引いたNiFeのみの有効膜厚である。膜厚の減少に伴い、いずれの膜でもH<sub>c</sub>は増加し軟磁気特性は劣化するが、多層膜ではその劣化が抑制されており、有効膜厚0.1 $\mu\text{m}$ においてもH<sub>c</sub>は0.35 Oeと低い値を示した。多層膜においてH<sub>c</sub>の膜厚依存性が改善された原因としては、磁性層間に働く静磁結合により磁気異方性分散が低下した点があげられる[14,15]。以上、多層膜では膜厚の減少に伴う軟磁気特性の劣化を抑制する効果があることがわかった。

## 2-5 まとめ

本章では磁性体と非磁性絶縁体とから成る多層膜において期待される有効磁束路幅拡大、高周波特性改善効果などの多層効果を確認するため、NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜を作製し、その磁気特性を検討した。以下に結果を示す。

(1)NiFe膜の磁歪定数と磁気異方性との関係を検討した結果、微細加工した磁性膜では逆磁歪効果による歪誘導磁気異方性が全磁気異方性の中で支配的となる場合があることがわかった。これを抑制し、磁場誘起誘導磁気異方性による安定な磁気異方性制御を行うためには、磁歪定数を $\pm 10^{-6}$ 以下とする必要がある。

(2)本作製法により各層が連続的で層厚も設定どおりの多層膜の形成が可能であることが確認された。

(3)多層膜では磁性層、非磁性絶縁層の層厚をある程度薄くし、積層回数を多くすることによって還流磁区構造を消失させ、単磁区あるいは180度磁壁のみからなる磁区構造にできることが確認された。また、多層膜においてもその磁気異方性は磁場誘起誘導磁気異方性によって制御可能であることがわかった。

(4)多層膜では、単純に磁性層の層厚から表皮効果として見積られる程ではないものの、単層膜と比較すると大幅な高周波特性の改善が確認された。

(5)多層化による磁気特性の劣化は生じず、むしろ多層膜では膜厚の減少に伴う軟磁気特性の劣化が改善されることがわかった。

以上、有効磁束路幅を拡大し高周波特性を改善する方法として、磁性体と非磁性絶縁体との多層化は有効な方法であることが確認された。

## 第2章の参考文献

- 1) 飯田修一 他, 磁性薄膜工学, 丸善 ('77).
- 2) D. A. Herman, et al, J. Appl. Phys., 63, 4036 ('88).
- 3) J. C. Sloczewski, B. Petek and B. E. Argyle, IEEE Trans. Magn., MAG-24, 2045 ('88).
- 4) J. S. Y. Feng and D. A. Thompson, IEEE Trans. Magn., MAG-13, 1521 ('77).
- 5) F. Lichtenberger, Ann. Physik, 10, 45 ('32).
- 6) E. Klokholm, IEEE Trans. Magn., MAG-12, 819 ('76).
- 7) F. Bitter, Phys. Rev., 38, 1903 ('31), 41, 507 ('32).
- 8) Paul A. Calcagno and David A. Thompson, Rev. Sci. Instrum., 46, 904 ('75).
- 9) S. Chikazumi and C. D. Graham Jr., Magnetism and Metallurgy (Academic Press. NewYork and London, '69).
- 10) Y. Shimada, T. IEE Japan, 111-A, 262 ('91).
- 11) Y. Shimada, J. Numazawa, Y. Yoneda and A. Hosono, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 327 ('91).
- 12) J. Smit and H. P. J. Wijn, Ferrites (Philips Tech. Library, '59)
- 13) G. T. Rado, Rev. mod. Phys., 25, 81 ('53).
- 14) H. Clow, Nature, 194, 1035 ('62).
- 15) A. Yelow, Physics of Thin films (Academic, NewYork, 1971), Vol. 6.



### 第3章 Fe/Co, Fe/CoFe, (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

#### 3-1 はじめに

前章では有効磁束路の幅を広げ、かつ比透磁率の高周波特性を改善するために、磁性体を非磁性絶縁体を介して交互に積層させた多層膜の磁気特性について検討を行った。このような多層膜では、非磁性絶縁層の存在により膜全体の飽和磁化は磁性体単体の場合に比べ低下することになる。薄膜磁気ヘッドでは高線記録密度化のために、コア用磁性膜として飽和磁化ができるだけ高いことが要求される。従って、上記多層効果を持つ磁性体/非磁性絶縁体多層膜を高線記録密度用磁気ヘッドに応用するためには、磁性体として従来材料以上の高い飽和磁化を持つ材料を使用する必要がある。本章では高飽和磁化を有する新磁性材料の開発を目的に、磁性体同士の多層構造からなる磁性多層膜の磁気特性について検討する。Feと多層化する磁性体としては、飽和磁化の高いCo, CoFeを使用した。これらの磁性多層膜が高い飽和磁化を持つ良好な軟磁性膜であることを明らかにし、ついで磁性体としてFe/Co膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を選びこれらを交互に積層した(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜を作製し、この膜の多層効果を確認する。

#### 3-2 実験方法

Fe/Co, Fe/CoFe多層膜は図2-1に示すイオンビームスパッタ装置で作製した。なお、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜を作製するためには、3種類のターゲットが必要となるためスパッタ装置としては図3-1に示すように3つのターゲットを装備したものを使用した。動作真空度はAr  $1 \times 10^{-4}$  Torr, 加速電圧1 kV, イオン電流20 mA, 基板温度は160℃とした。ターゲットには5インチ径のFe, Co, CoFe(Co 52wt.%), SiO<sub>2</sub>ディスク(各々純度99.99%)を、基板にはCorningガラス(No. 0211)およびSiウエハを使用した。成膜中は、基板ホルダに固定した永久磁石により基板表面に平行に約100 Oeの磁場を印加し、また膜の均一化を図るため基板ホルダは約4 rpmで回転させた。ターゲット、基板はスパッタ粒子が基板面に垂直に入射するよう設置した。

保磁力、飽和磁化はM-Hループトレーサおよび試料振動型磁力計(VSM)により測定した。

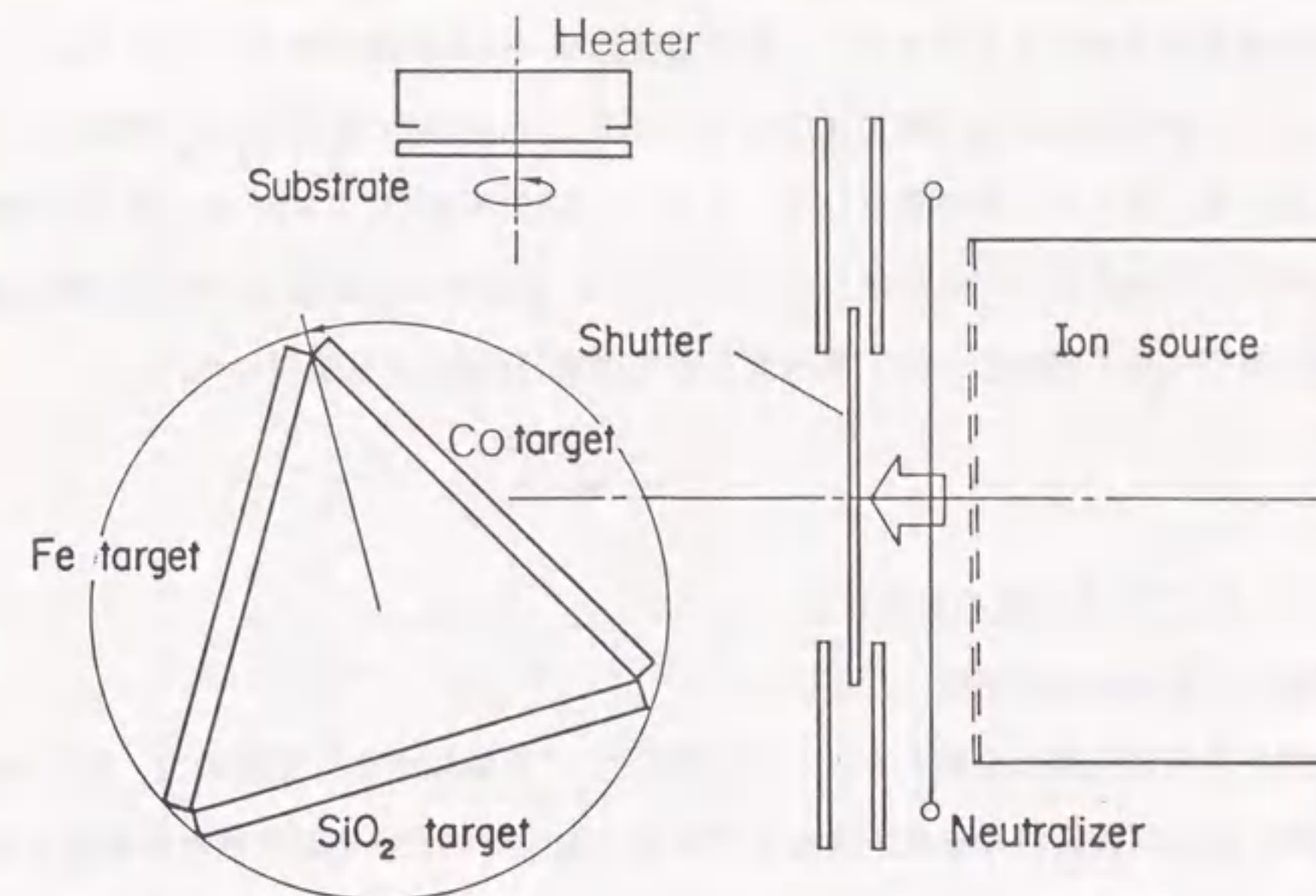


図3-1 多層膜作製用IBS装置(3面ターゲット)

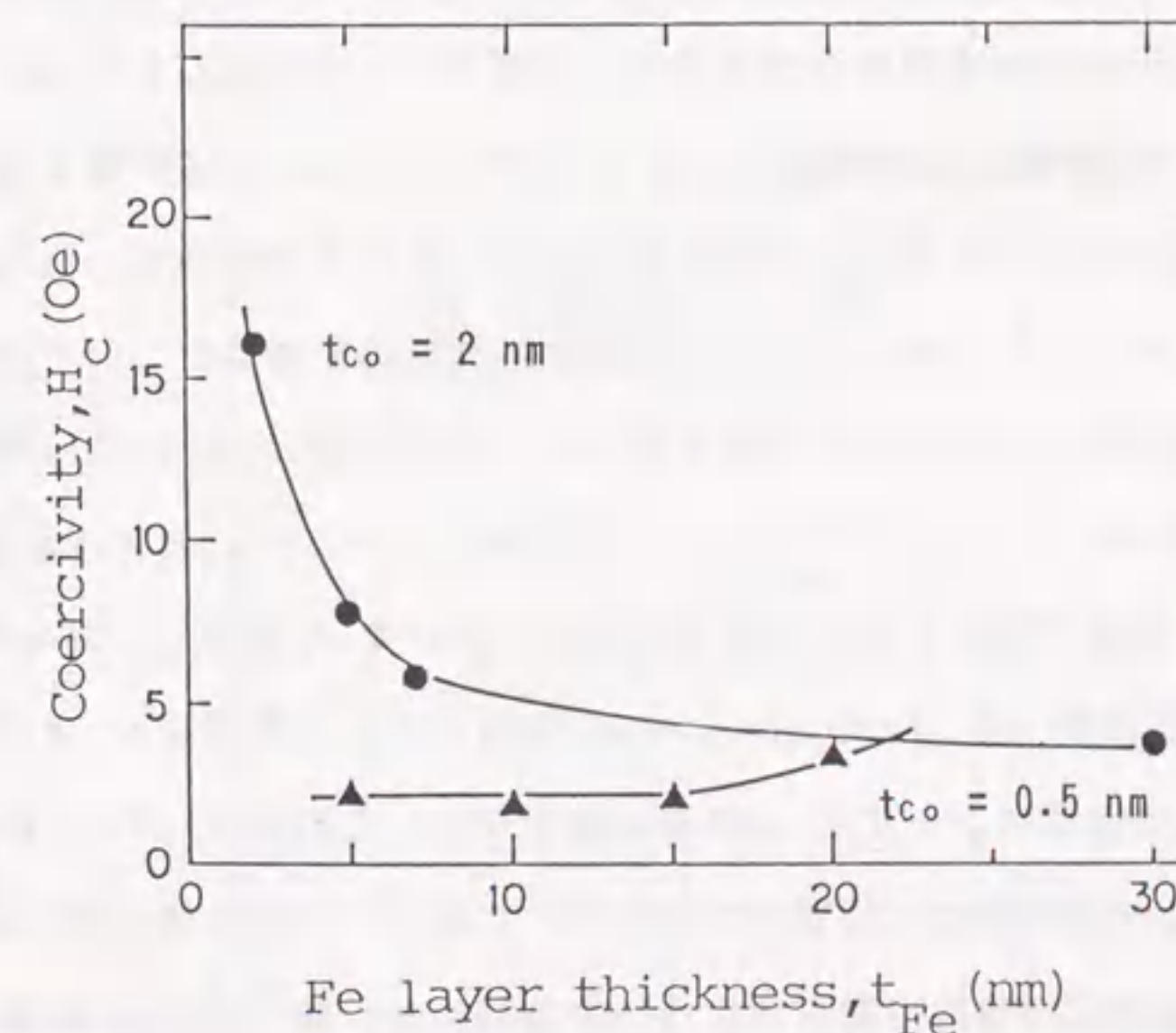


図3-2 保磁力のFe層厚依存性



磁歪定数は25 Oeの外部磁場を印加した際の基板のたわみ量の変化から見積った(2-2参照)[1]。比透磁率は8字コイル法を用い、磁場強度約80 mOeの高周波磁場(1~50 MHz)中に測定した(2-2参照)[2]。磁区構造はフォトリソグラフィ法(2-2参照)により微細パターンに加工した後、ピッター法で観察した。アニールは160~300℃, 1 hr., 500 Oeの磁場を成膜中の外部磁場と同方向に印加しながら行った。結晶構造, 多層膜の断面形態はX線回折(XD)ならびに電子線回折(ED), 透過電子線顕微鏡(TEM)により観察した。

### 3-3 Fe/Co, Fe/CoFe多層膜の磁気特性

#### 3-3-1 Fe/Co多層膜の磁気特性

薄膜部品用軟磁性膜に必要とされる磁気特性は、高飽和磁化, 低保磁力, 高比透磁率, 零磁歪, 磁場誘起誘導磁気異方性などである。本研究における新磁性材料開発の基本方針は、元素中物質最も飽和磁化の高いFeをベースとし、この飽和磁化をできるだけ高く維持した状態で、異種磁性材料との多層化の手法により他の要求特性の実現を図ることである。Feと多層化する磁性材料としては、単元素中Feの次に飽和磁化の高いCoを使用することにする。まず、Fe層, Co層各々の層厚を変化させた場合の、磁気特性の変化を調べた。

図3-2に保磁力(Hc)のFe層厚依存性を示す。Co層厚は2 nmおよび0.5 nmに設定した。本方法で作製したFe単層膜, Co単層膜のHcはそれぞれ10 Oe以上および数十Oeであるのに対し、Fe/Co多層膜のHcはそれらより大幅に低下していることがわかる。Fe/Co(10/0.5 nm)多層膜においてHcは1.5 Oeまで低下した。次にこれらの多層膜について磁歪定数および飽和磁化の変化を調べた。図3-3に磁歪定数( $\lambda_s$ )と飽和磁化( $4\pi M_s$ )のFe層厚依存性を示す。Fe単層膜の $\lambda_s$ は $-2 \sim -4 \times 10^{-6}$  [3], Co単層膜の $\lambda_s$ は $-10^{-5}$  [4]と大きな負の値であるのに対し、Fe/Co多層膜ではいずれもFe層厚の減少に伴い $\lambda_s$ は増加し、符号も負から正へと変化する。Fe/Co(25/2 nm), Fe/Co(16/0.5 nm)条件において零磁歪( $< \pm 10^{-6}$ )が実現している。また $4\pi M_s$ は層厚によらず21 kG前後の値を示し、この値はFeの $4\pi M_s$ とほぼ一致する。これはこれらの多層膜ではFe層がCo層に比べて厚く、Fe層主体の構成をしているためである。次に磁場誘起誘導磁気異方性について検討した。図3-4に外部磁場を印加して作製した(Hext $\neq$ 0)膜と、無磁場(Hext=0)で作製した膜の容易軸方向と困難軸方向の角型比を示す。ここで容易軸方向は成膜中の印加磁場方向を指し、またHext=0の膜に関しては基板ホルダ上の同様な方向を容易軸方向としてプロットした。Hext=0の膜では両方向

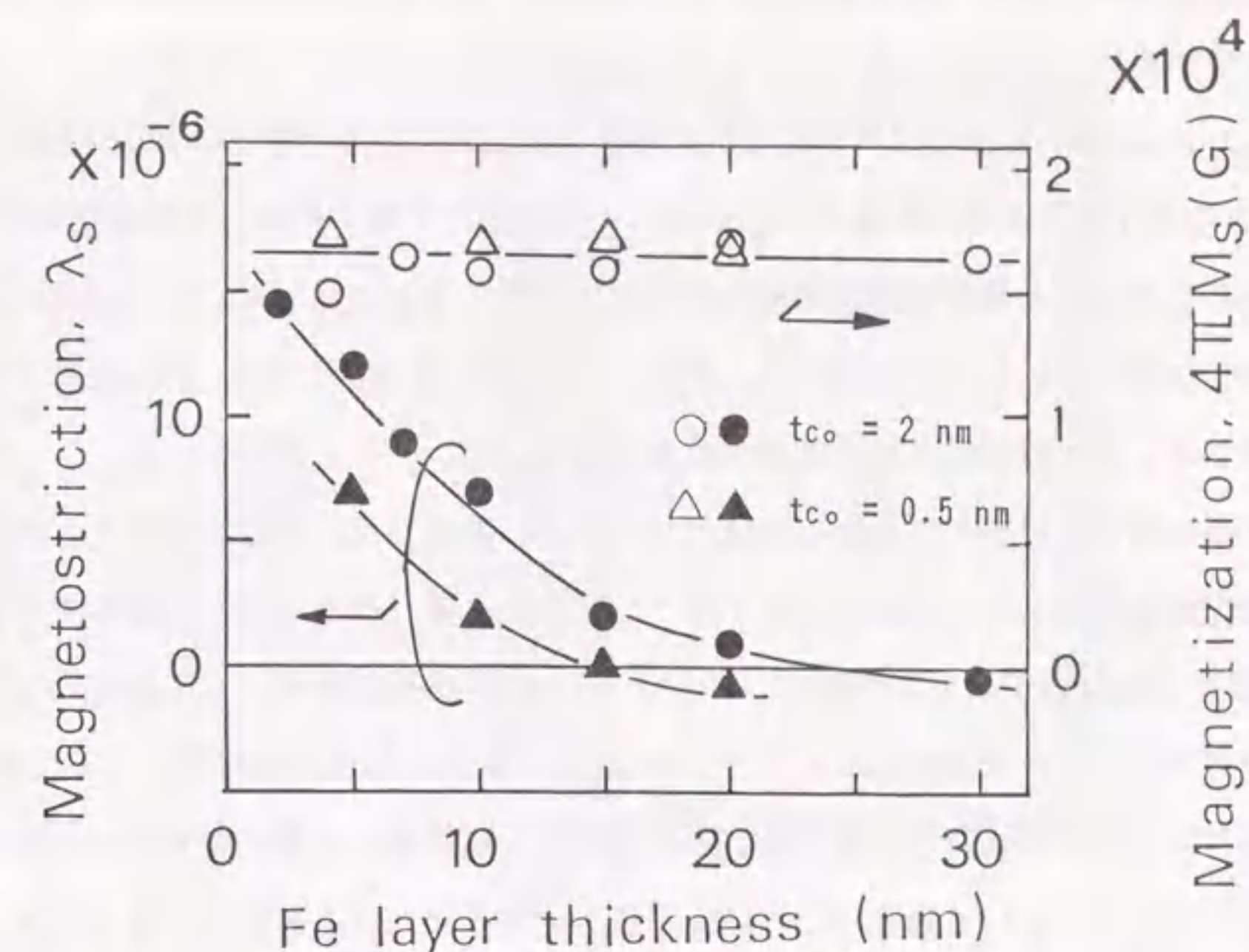


図3-3 磁歪定数および飽和磁化のFe層厚依存性

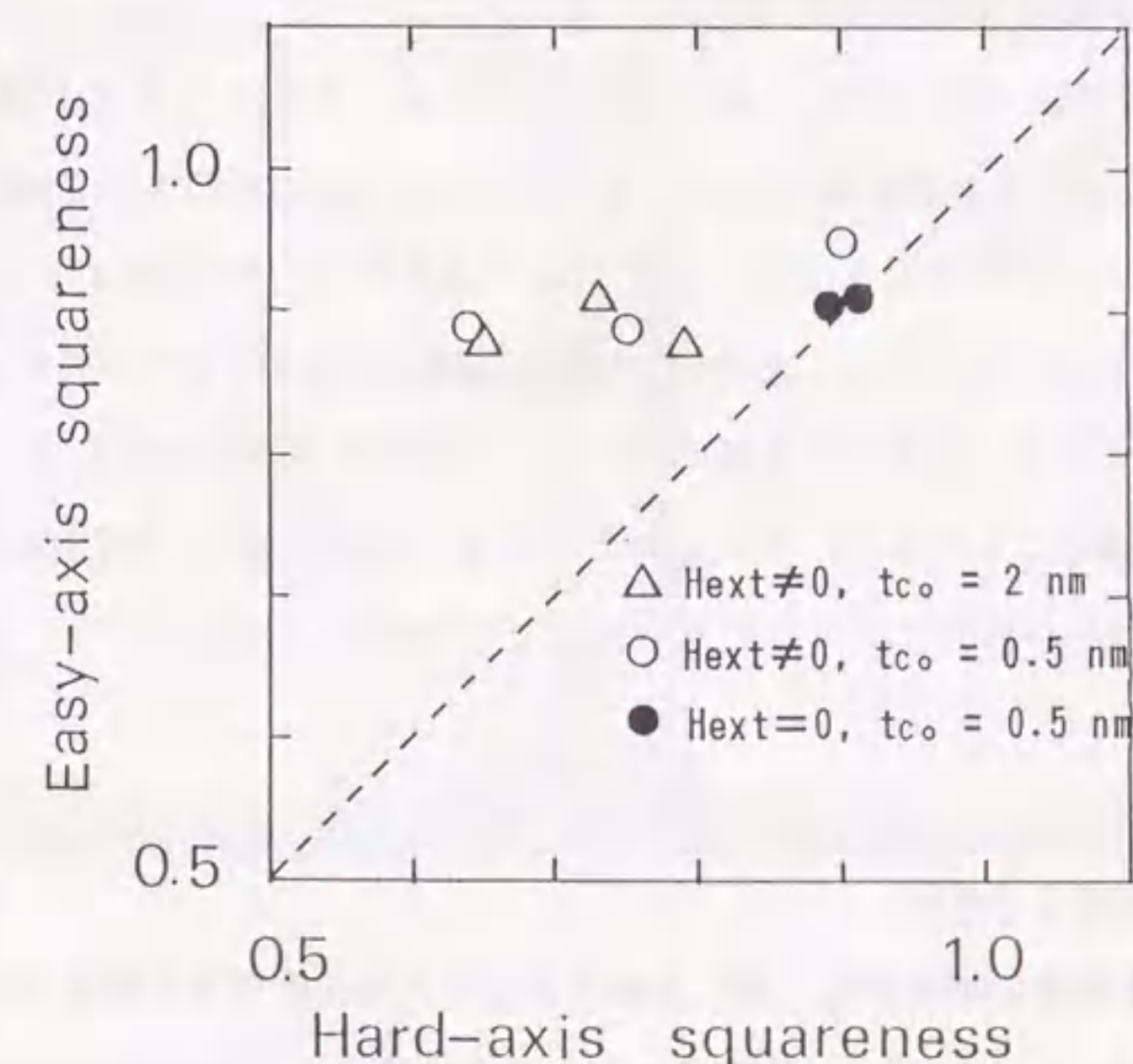


図3-4 容易軸方向および困難軸方向の角型比



の角型比はほぼ一致し、磁気異方性は見られない。それに対し、 $H_{ext} \neq 0$ の膜ではいずれも異方性が現れ、またその磁気異方性の容易軸方向は成膜中の印加磁場方向に一致する。このことからFe/Co多層膜は外部磁場による誘導磁気異方性を示すことがわかる。以上、Fe/Co多層膜は各層を適当に選ぶことにより、飽和磁化を高く維持した状態で零磁歪、低保磁力とでき、また磁場誘起誘導磁気異方性を示すことがわかった。Fe/Co(15/5 nm)条件において磁歪零付近の下( $< \pm 10^{-6}$ )、飽和磁化21 kG、保磁力1.5~2.0 Oeが実現し、本章の目的であった高飽和磁化軟磁性膜の開発に成功した。

軟磁性膜を薄膜部品材料として採用する場合、部品作製、加工プロセス上要求される種々の安定条件があり、熱安定性もその一つである。薄膜磁気ヘッド作製プロセスは200℃以下での低温プロセスが確立しているため[5]、軟磁性材料としては200℃以下で熱的に安定であることが要求される。そこでFe/Co多層膜の熱安定性を検討するため、磁気特性のアニール温度依存性を調べた。また成膜時の磁性膜では膜内のストレスや欠陥が磁壁移動のピン止めとして働き、これが低保磁力化をさまたげる原因の一つとなっている。アニールを行うことによりこれらピン止めが除去され、一層の低保磁力化も期待される。図3-5に保磁力( $H_c$ )と磁歪定数( $\lambda_s$ )のアニール温度依存性を示す。Fe/Co(10/0.5 nm)膜ではアニール温度にかかわらず $H_c$ 、 $\lambda_s$ ともに一定値を示す。一方、Fe/Co(20/2 nm)膜ではアニール温度の上昇に伴い $H_c$ は低下し、300℃アニールによって $H_c = 0.8$  Oeが実現した。しかしながら $\lambda_s$ はアニール温度の増加に伴い増加し、この実験の範囲では零磁歪と低保磁力を同時に満たすことはできなかった。以上、Fe/Co多層膜は200℃程度まではほぼ安定な材料であることがわかった。なお、本研究では成膜温度を160℃としているため、これ以上の温度では後述するような相互拡散層の拡大により磁気特性の変化が生じる。成膜温度、各層厚を適切に選ぶことにより、さらに安定で軟磁気特性の優れた磁性膜の実現が可能と考えられる。

### 3-3-2 低保磁力化に対する検討

前節ではFe/Co多層膜の磁気特性、特に保磁力と磁歪定数が各層厚を変えることにより変化することがわかった。本節と次節ではこれら磁気特性の変化の原因について検討する。

まずFe単層膜とFe/Co多層膜の結晶性の相違について調べる。図3-6に(a)Fe単層膜と

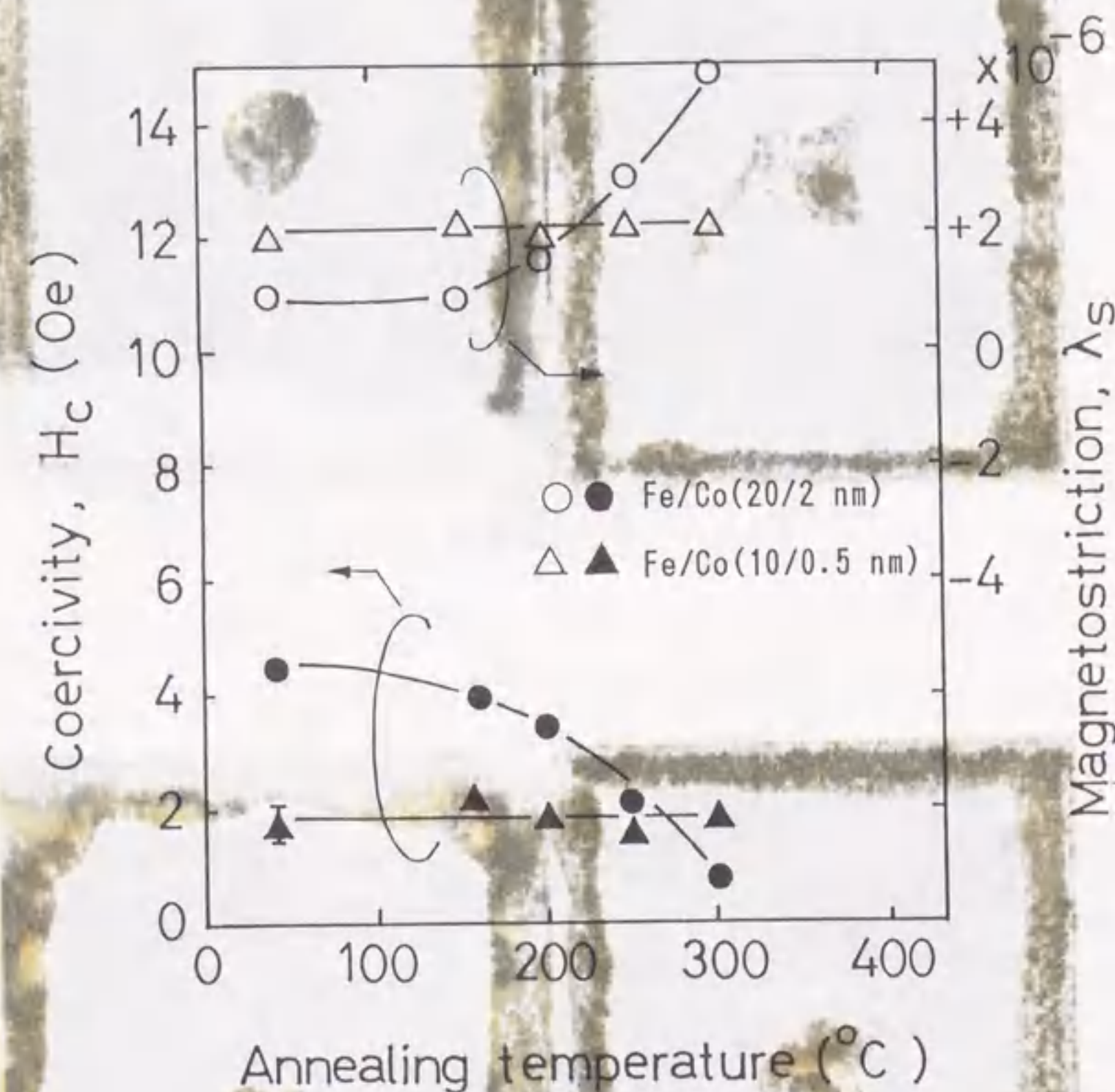
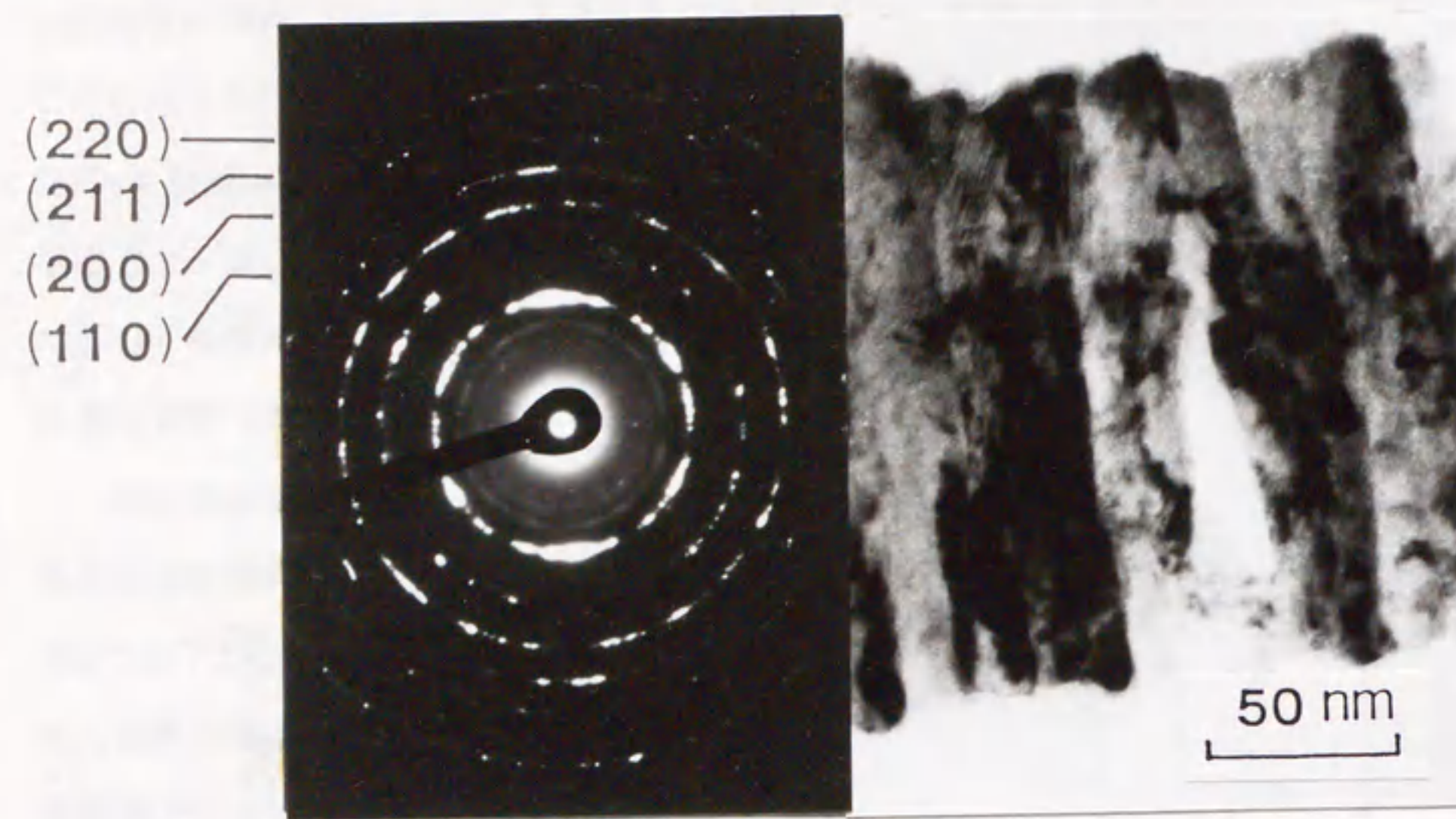
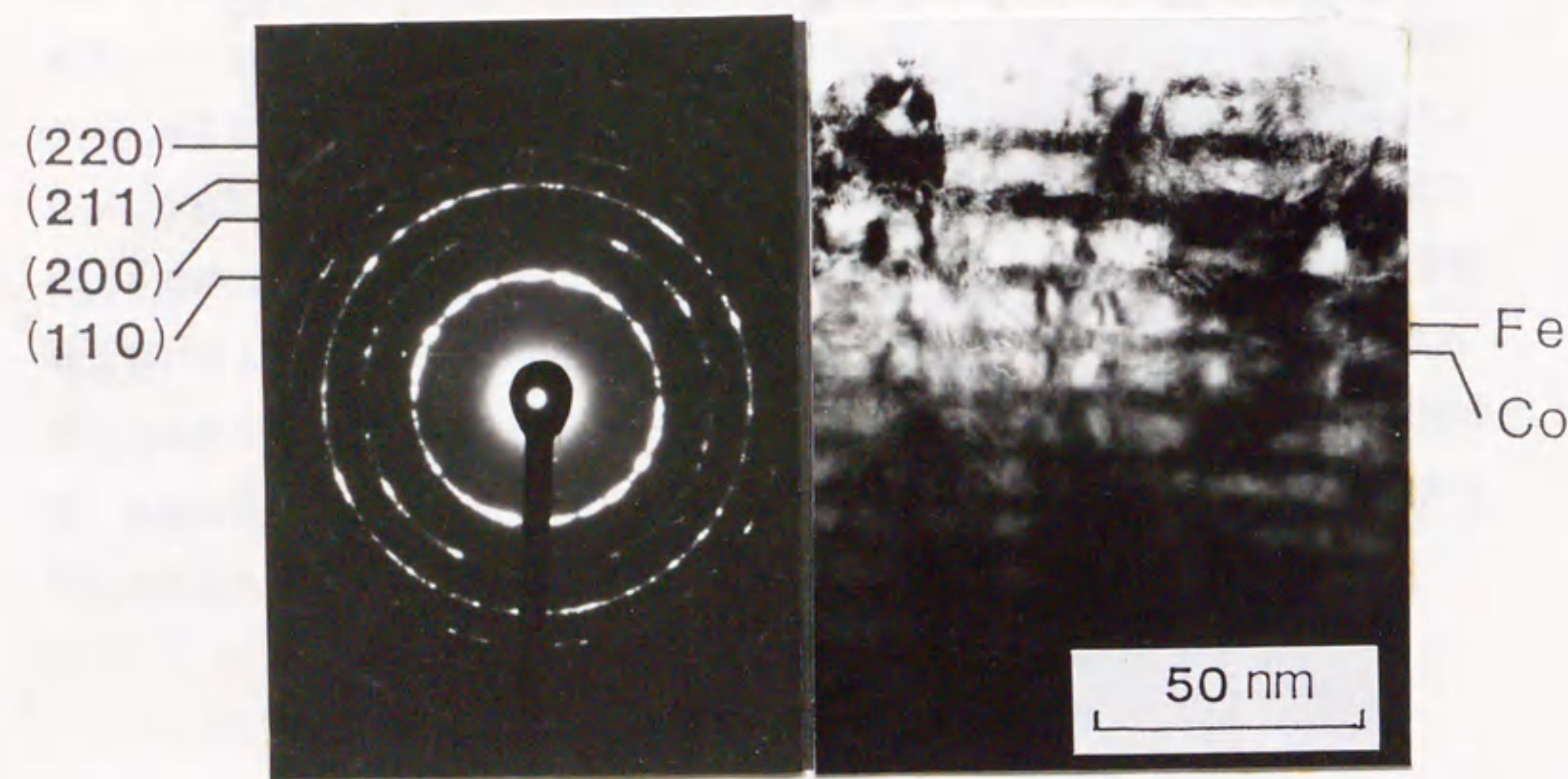


図3-5 保磁力および磁歪定数のアニール温度依存性





a) Fe単層膜



b) Fe/Co多層膜

図3-6 断面EDおよびTEM像

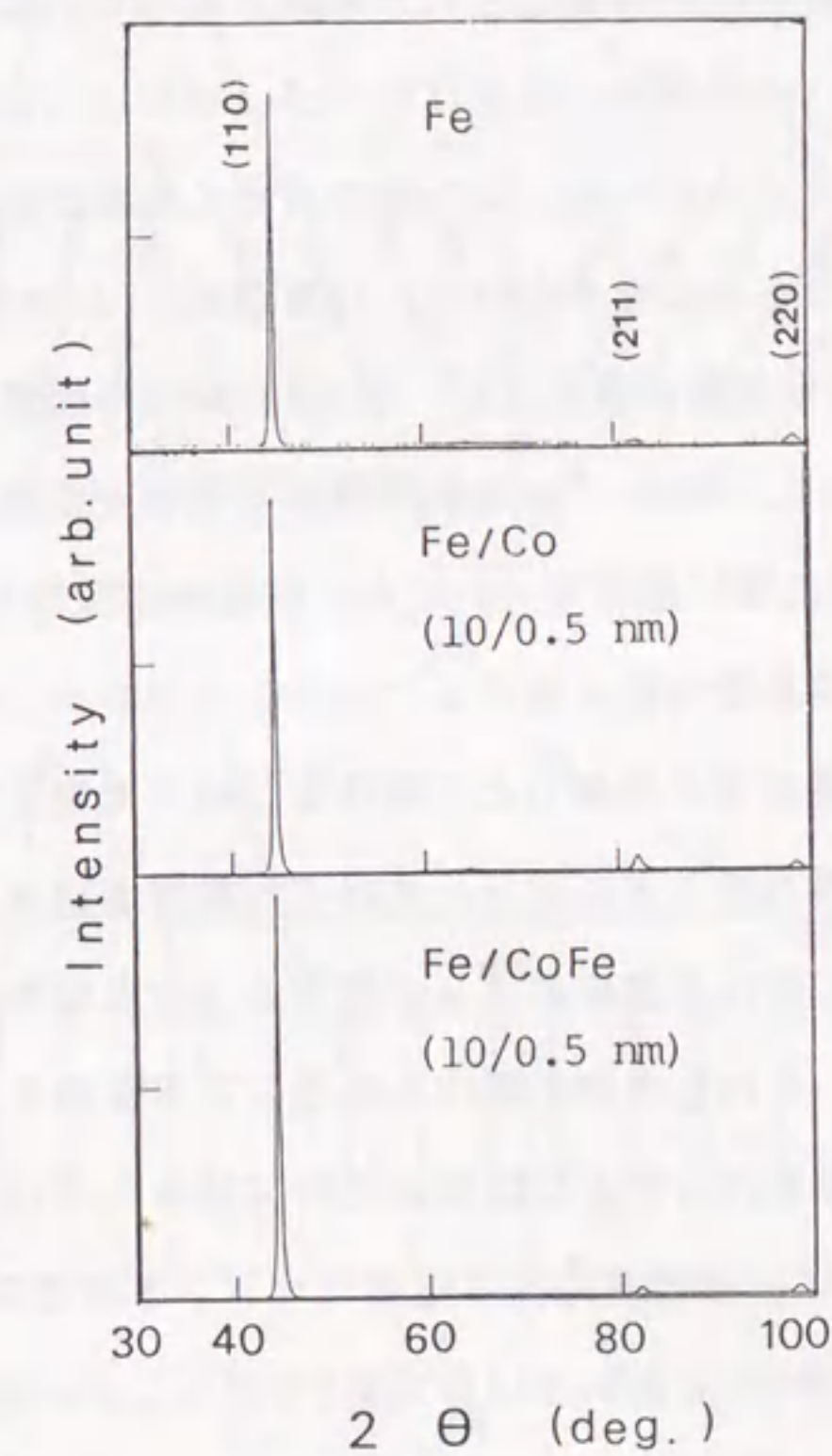


図3-7 XDプロファイル



(b) Fe/Co多層膜の断面EDパターンおよび断面TEM像を示す。図でEDパターンとTEM像の方位は一致する。Fe単層膜ではFeの結晶構造はbcc(体心立方)であり、膜構造は直径20~50 nmの柱状組織から成り立っている。また、膜厚方向に強い(110)優先配向性を示していることがわかる。一方、Fe/Co多層膜中でもFe層はbcc構造をとり、膜厚方向の(110)優先配向性が見られる。TEM像からFe層はCo層によって完全に分断されており、Fe単層膜で見られる大きな柱状組織に代わり結晶粒が微細化された形態となっていることがわかる。図3-7にFe単層膜, Fe/Co(10/0.5 nm)多層膜, およびFe/CoFe(10/0.5 nm)多層膜のXDプロファイルを示す。多層膜中ではFe層に比べCo層, CoFe層の占める割合が小さいことからこれらの回折線はほとんどFe層からのものと考えられる。Fe単層膜, Fe/Co多層膜はED分析結果と同様、膜厚方向に強い(110)優先配向性を示し、またFe/CoFe多層膜も同程度に強く(110)配向していることがわかる。以上、Fe/Co多層膜は明確な人工周期構造をとり、この多層膜中でFe層は10 nmと非常に薄い層厚においても、結晶粒が微細化されている以外はFe単層膜と同様の結晶構造、結晶配向性を維持していることがわかった。

多結晶磁性膜における結晶粒径と保磁力との関係について考察してみる。各結晶粒は、歪誘導磁気異方性、結晶磁気異方性などにより、それぞれ固有の磁気異方性を持っており、それらによって決まる容易軸方向は結晶粒によって固有の方向となる。そのため、もし各結晶粒が互いに独立であれば、それらの中の磁化も独立な方向を向くことになる。しかし、実際には結晶粒同士は結晶粒界を介して互いに強磁性的に結合しており独立にはなっていない。ここで図3-8に示すように、各結晶粒内で磁気モーメントがその結晶粒に固有な容易軸方向(図中、破線両矢印で示す)を向いている場合(モデル1)と、膜全体の磁気モーメントが平行になっている場合(モデル2)の2つの単純化したモデルを考え、これらのエネルギーを比較してみる。モデル1では、粒界面において交換エネルギー $\sigma_{ex}(=J_{ex}S^2)$ だけエネルギーが高くなる。結晶粒の大きさを $D$ 、格子定数を $a$ とすると、粒界面当り $(D/a)^2$ 個の磁気モーメントが存在するため、単位体積当りのエネルギー密度( $\epsilon_a$ )は、

$$\epsilon_a = \sigma_{ex} \cdot (D/a)^2 \cdot (1/D^3) \quad \dots(3-1)$$

となる。一方、モデル2では、各結晶粒において結晶磁気異方性( $K_{cryst}$ )、歪誘導磁気異方性( $K_R$ )の分だけエネルギーが高くなるため、単位体積当りのエネルギー密度( $\epsilon_b$ )は、

$$\epsilon_b = K_{cryst} + K_R \quad \dots(3-2)$$

程度となる。(3-1)式より、 $\epsilon_a$ は $1/D$ に比例するため、結晶粒径が小さくなるとモデル1状態よりモデル2状態の方が安定となる。Feの場合、 $J_{ex} = 2.16 \times 10^{-14}$  erg,  $S = 1$ ,  $a =$

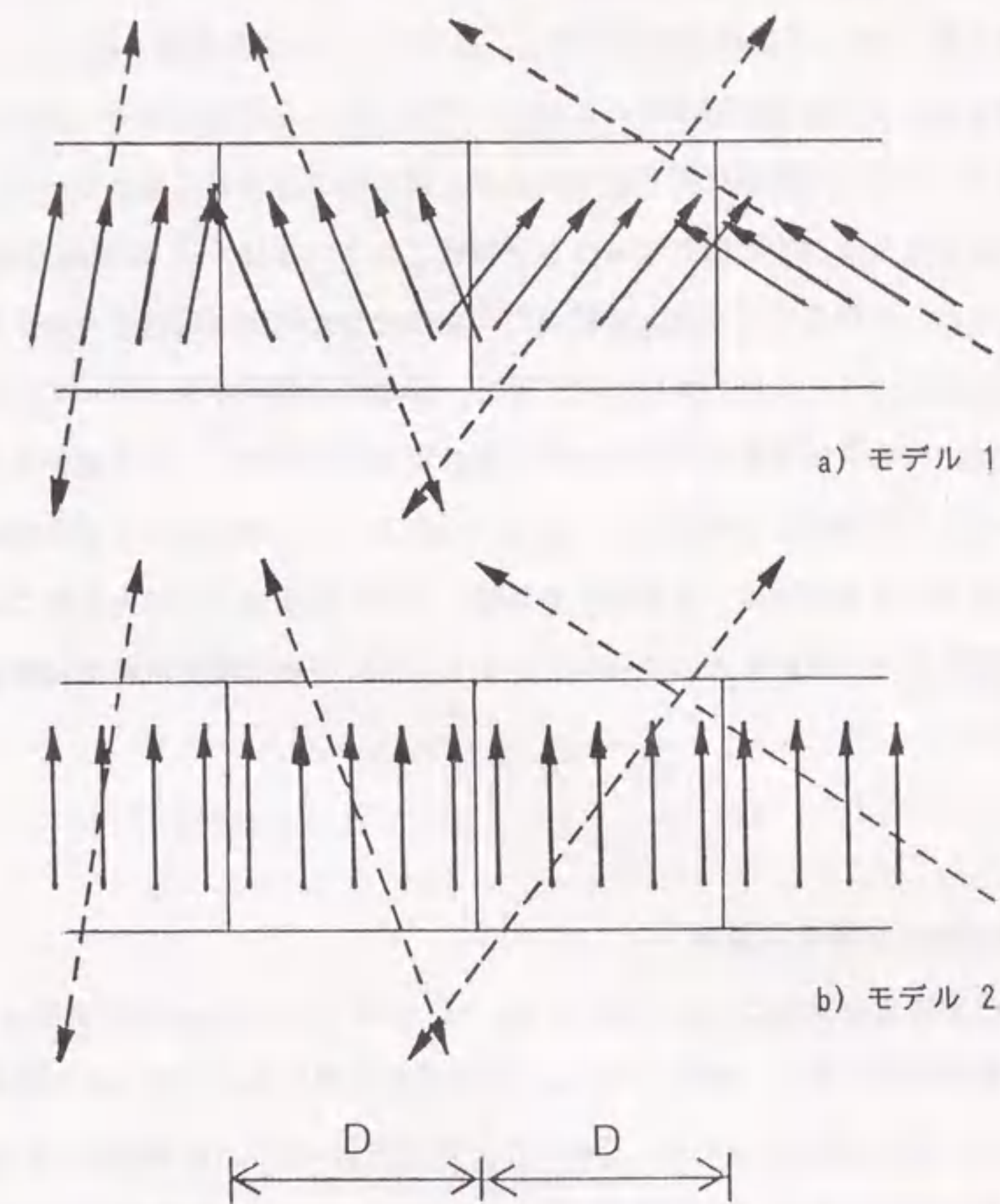


図3-8 結晶粒径と異方性分散との関係



$2.86 \times 10^{-8}$  cm,  $K_{\text{crys}} = 4.2 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup>,  $K_u \sim \sigma_f \lambda_s \sim 10^3 \sim 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>とすると、 $\varepsilon_a = \varepsilon_b$ となる結晶粒径( $D^*$ )は $0.6 \mu\text{m}$ 程度となる。すなわちこの値より結晶粒が微細になると、モデル2状態のように、全磁気モーメントが各結晶粒内固有の磁気異方性とは無関係に互いに平行になった状態の方が安定となる。ここで膜全体の容易軸方向は、成膜中の磁場印加による磁場誘起誘導磁気異方性によって決定することになる。なお実際には、各結晶粒は図3-8のように横方向だけでなく縦方向にも他の結晶粒と隣合っており、また磁化遷移領域として磁壁が形成されるため、問題はもっと複雑になる。またモデル2のように磁気モーメントが完全に平行とはならず、膜全体の容易軸のまわりにある分散をもって分布する磁化リップル状態となることが報告されている[6,7]。磁気異方性分散が小さくなることは、全磁気モーメントが磁場の印加に対して同時に応答することを意味し、そのため磁化過程のヒステリシスが小さくなり、保磁力は低下する。従ってFe/Co多層膜における保磁力の低下は多層化によりFe層の結晶粒径が微細化し、その結果磁気異方性分散が低下したことが原因と解釈される。なお、このように多層化により結晶粒を微細化し、保磁力を低下させる手法は、各種磁性多層膜について近年盛んに研究されている[8-23]。また、結晶粒径と比透磁率との関係についても、いくつかの理論計算の結果が報告されている[24,25]

### 3-3-3 磁歪変化に対する検討

次に磁歪変化の原因について検討する。bcc Feは $\langle 100 \rangle$ 方向の磁歪定数は正、 $\langle 111 \rangle$ 方向の磁歪定数は負であり、結晶方向により磁歪定数が異なる[3,26]。この両者から計算される $\langle 110 \rangle$ 方向の磁歪は負となり、このことが膜厚方向に $(110)$ 優先配向したFe単層膜の負磁歪を説明する。しかし、Fe/Co多層膜中でもFe層は $(110)$ 優先配向性を示しており、またCoの磁歪定数も負であることから結晶性からはFe/Co多層膜の磁歪変化を説明することはできない。Fe/Co多層膜の構成材料であるFe層、Co層はともに負磁歪であるにもかかわらず、図3-3ではFe層厚の薄い領域で正磁歪が観測されている。本研究ではFe層をベースとした磁性多層膜の開発を目指したためFe層に対しCo層が薄い場合の磁気特性について検討してきたが、大きな正磁歪が観測される領域ではFe層厚とCo層厚が同程度であることから、この領域での磁気特性をもっと詳細に調べることにする。

図3-9に飽和磁化( $4\pi M_s$ )の層厚比依存性を示す。横軸はFe層厚とCo層厚の和に対する

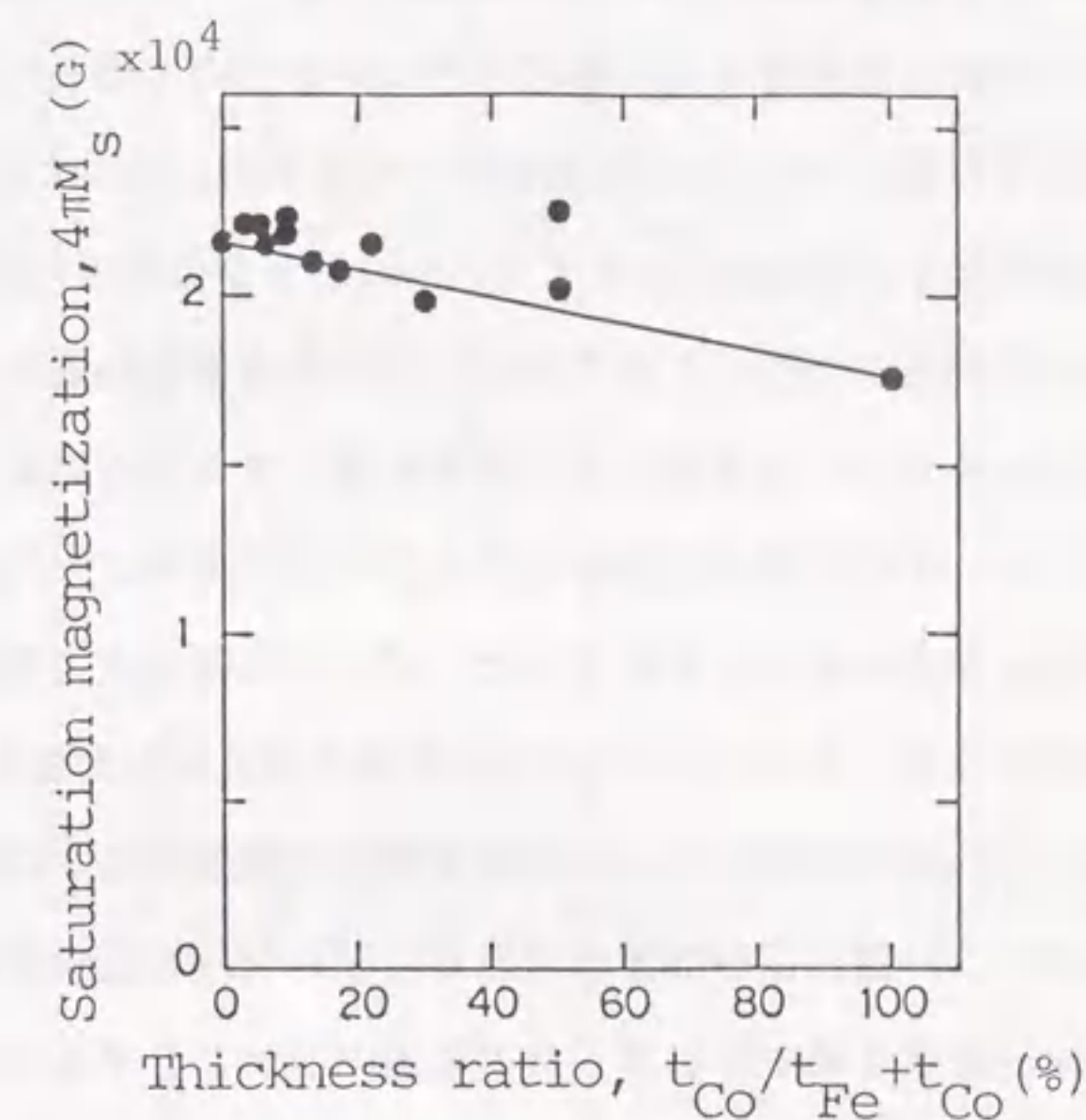


図3-9 飽和磁化の層厚比依存性



Co層厚の比率を表している。また、図中直線はFeとCoの $4\pi Ms$ である21.5 kGと17.6 kGとを結んだ線であり、Fe/Co多層膜の $4\pi Ms$ がFeとCoとの $4\pi Ms$ の単純和で表されるとすれば全てのデータはこの直線上に乗ることになる。しかし実際はほとんどのデータが直線より上方にプロットされ、このことはFe/Co多層膜中ではFeとCo以外の物質が形成されていることを示唆している。構成元素がFeとCoであり、 $4\pi Ms$ が高くなることから考えて、この物質はCoFe合金であることが予想される。FeとCoは固溶系であることからCoFe合金はFe層とCo層との境界に両層からの相互拡散層として形成されているものと思われる。Dirneらは最近、著者と同様の方法で作製したFe/Co多層膜の磁化状態をMössbauer法により解析した[27]。図3-10にその結果を示す。Mössbauerスペクトルのピーク位置は内部磁場の大きさを表し、これにより物質の同定を行うことができる。CoFe合金層はFe層とCo層との界面に形成されていると予想されるため、多層膜の人工周期を短くすることにより、膜中のCoFe合金層の割合を大きくし、その効果を顕在化させることができる。Fe/Co多層膜のスペクトルをFeおよび $Co_{50}Fe_{50}$ 合金のものと比較すると、ピーク位置は人工周期が短くなるに従い、 $Co_{50}Fe_{50}$ のものに近づき、このことはFe/Co多層膜界面にCoFe合金が形成されていることを意味している。CoFe合金はほとんどの組成範囲で正磁歪を示す[28]。図3-3の結果は、Fe層厚の減少に伴い、Fe層およびCo層の負磁歪よりもCoFe相互拡散層の正磁歪が支配的となって膜全体では正磁歪を示すという正負の磁歪バランスモデル[29]によって定性的に説明される。なお、図3-2においてFe層厚の薄い領域で保磁力が高くなるのは、数十Oeと大きな保磁力を持つCoFe合金の割合が増加したためと考えられる。また、CoFe合金は方向性規則配列による磁場誘起誘導磁気異方性を示すことから[30]、Fe/Co多層膜の磁場誘起誘導異方性はCoFe相互拡散層の存在が原因となっているものと考えられる。

図3-11に保磁力( $H_c$ )と磁歪定数( $\lambda_s$ )のCo層厚依存性を示す。Fe層厚は5 nmに設定した。Co層厚の増加に伴い、 $H_c$ は急激に増加する。Coは $H_c$ が数十Oeと高いこと、 $4\pi Ms$ が17.6 kGとFeに比べ低いこと、および $-10^{-5}$ 台の大きな負磁歪を持つことを考慮すると、Fe/Co多層膜において優れた軟磁気特性を実現するためには、Co層はできるだけ薄くすべきであることがわかる。一方 $\lambda_s$ はCo層厚0.5 nmから1 nmにかけてはCo層厚の増加に伴い増加し、1 nm以上では減少する傾向を示す。この $\lambda_s$ 変化は上記の磁歪バランスモデルを用いて図3-12のように解釈できる。すなわちCo層厚1 nm以下の領域ではCo層全体がCoFeに合金化するため、Co層厚の減少に伴い正磁歪であるCoFe拡散層の層厚が薄くなり、膜全体の $\lambda_s$ は負方向へシフトする。一方1 nm以上の領域ではCo層の一部のみがCoFeに合金化す

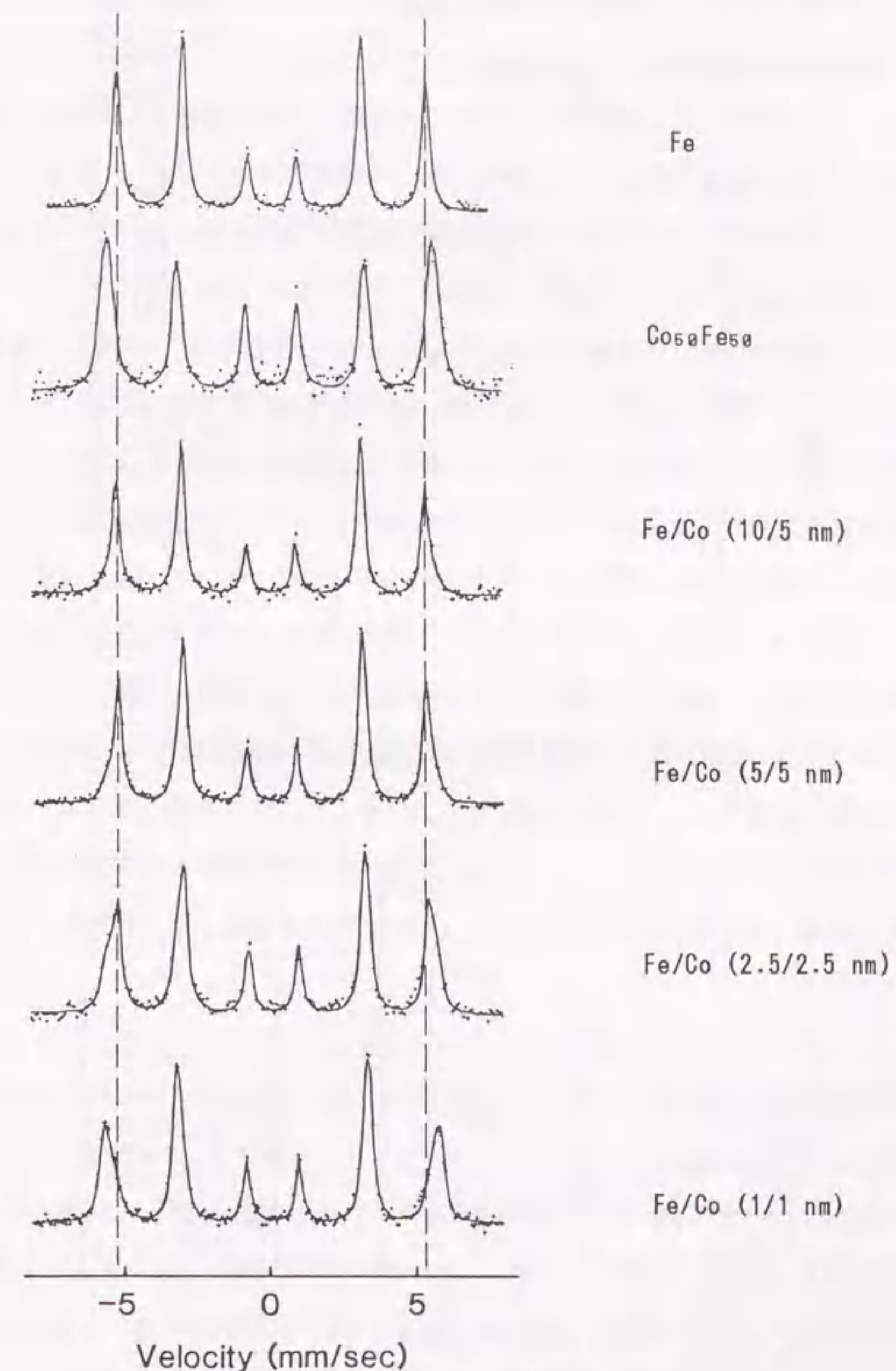


図3-10 Mössbauerスペクトル[25]



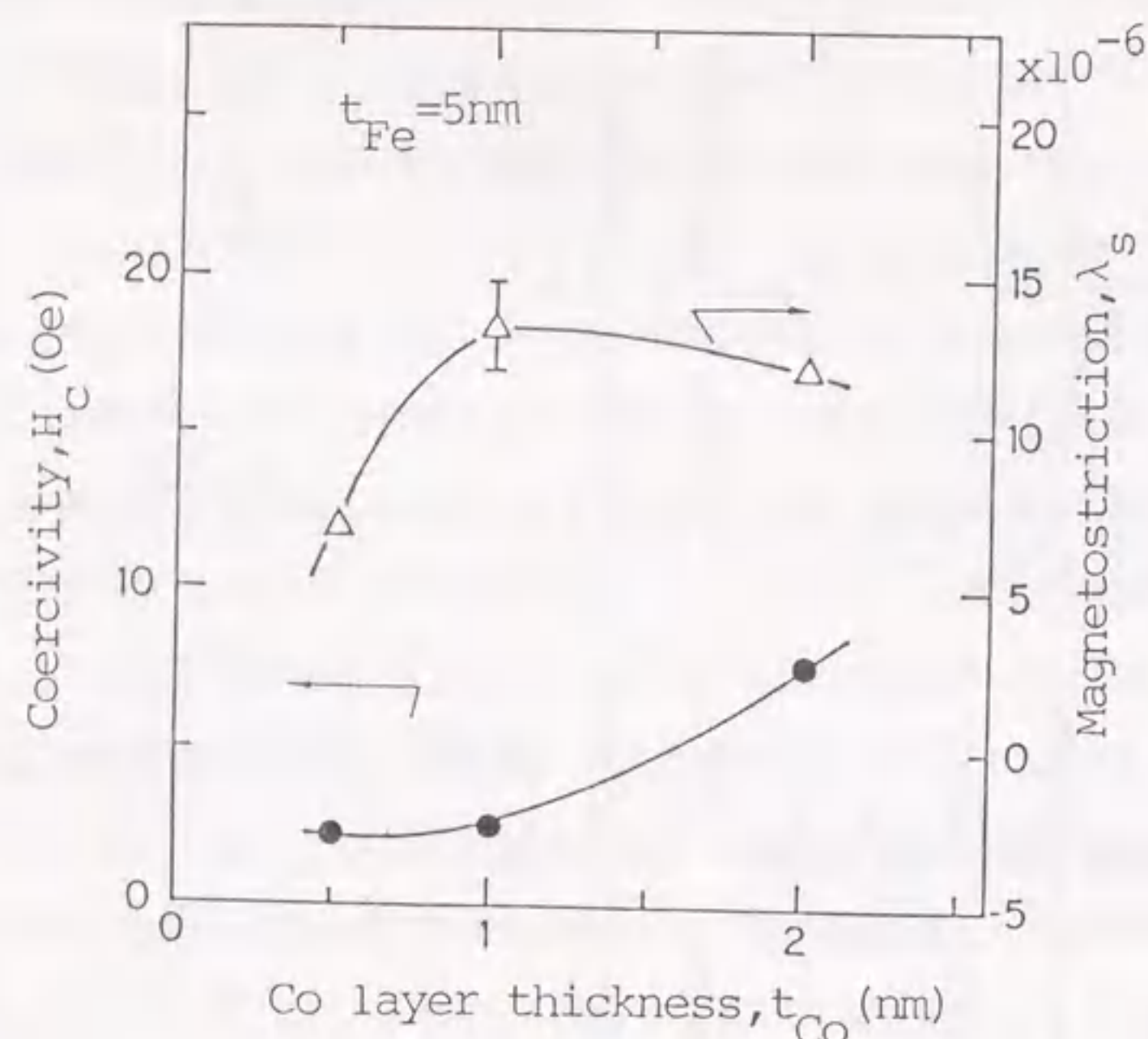


図3-11 磁歪定数および保磁力のCo層厚依存性

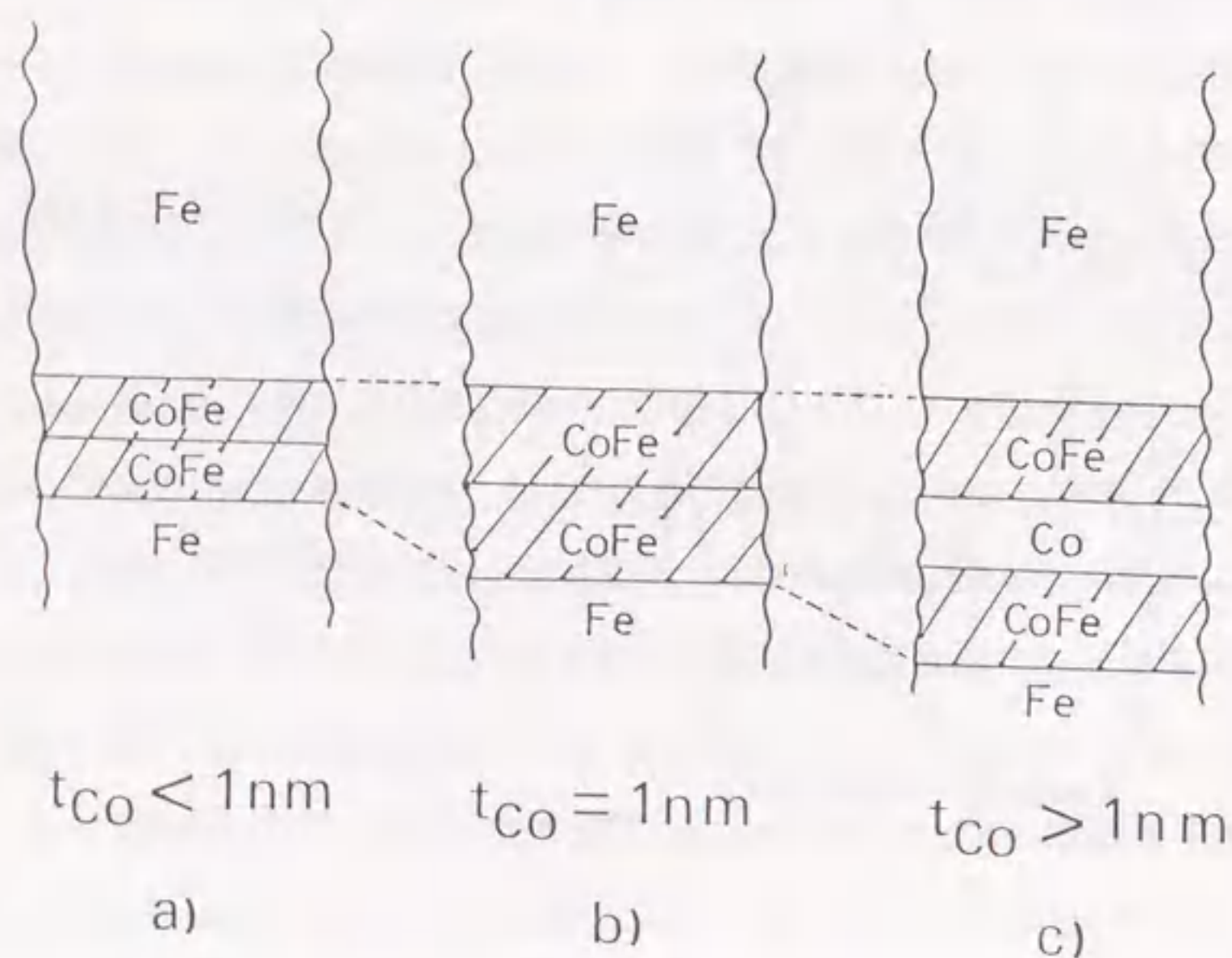


図3-12 Co層厚の変化に対するFe/Co多層膜断面構造の変化

るため、負磁歪であるCo層の層厚増加に伴い $\lambda_s$ は負方向へシフトする。なお、この解釈により、本実験の成膜条件におけるCoFe相互拡散層の層厚は1 nm前後と推定できる。またこのことから、図3-5においてFe/Co(20/2 nm)膜でアニール温度の増加に伴い $\lambda_s$ が増加したのは、CoFe相互拡散層が高温で広がり正磁歪成分が増加したためであり、一方、Fe/Co(10/0.5 nm)膜で $\lambda_s$ が一定であるのは、既にCo層全体がCoFeに合金化してしまっており、温度が上がってもCoFe相互拡散層の量に変化が少ないためと考えられる。

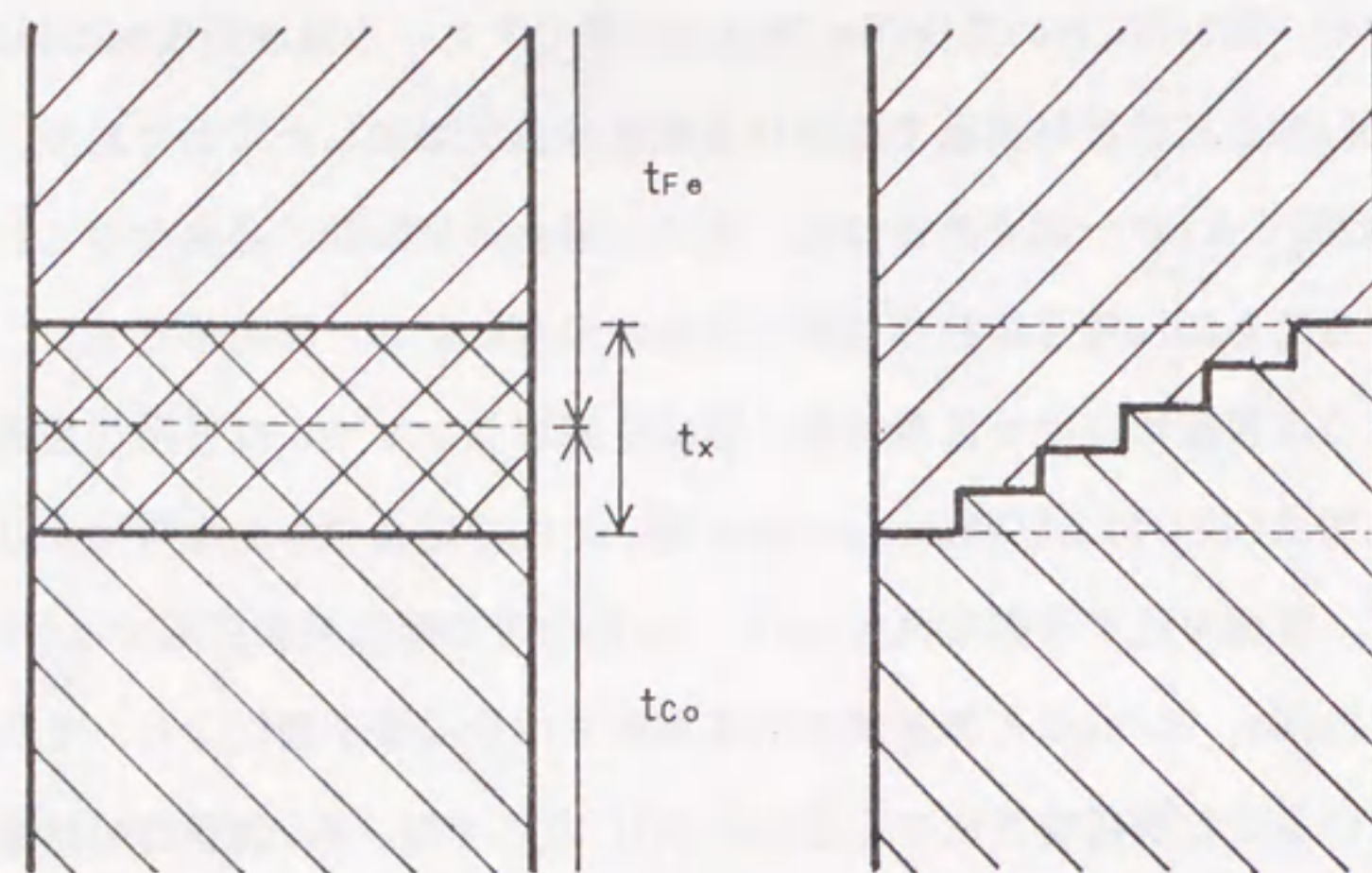
このような界面における拡散状態、組成変調プロファイルは各種の金属多層膜について核磁気共鳴法(NMR)およびMössbauer法を用いた内部磁場分布の解析により求められている。例えば、常温付近で作製されたFe/V、Fe/Mnなどの固溶系多層膜では5~6原子層により、一方、Fe/Cu、Fe/Mgなどの非固溶系多層膜では1~3原子層により、その相互拡散層が構成されていることが報告されている[31-34]。ここでは、Fe/Co界面の組成変調プロファイルを上記の $\lambda_s$ 測定データをもとに磁歪バランスモデルを用いて解析してみる。Fe/Co界面の組成変調モデルとして図3-13に示す二つを設定し、実験値との比較を行う。モデル1ではFe層、Co層からそれぞれ同じ層厚( $t_x/2$ )だけCoFeに合金化し、合金層は全て $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 組成になっているとする。モデル2では、やはり各々の層から $t_x/2$ だけ拡散に寄与するが、合金層の組成が純Feから純Coにリニアに変調しているとする。膜全体、Fe層、Co層、および合金層の磁歪定数をそれぞれ $\lambda_s$ 、 $\lambda_{\text{Fe}}$ 、 $\lambda_{\text{Co}}$ 、および $\lambda_x$ 、またFe層厚、Co層厚、および合金層の厚さをそれぞれ $t_{\text{Fe}}$ 、 $t_{\text{Co}}$ 、および $t_x$ とすると、両モデルにおいて $t_x$ は、

$$t_x = \{ \lambda_s(t_{\text{Fe}} + t_{\text{Co}}) - \lambda_{\text{Fe}}t_{\text{Fe}} - \lambda_{\text{Co}}t_{\text{Co}} \} / \{ 2\lambda_x - \lambda_{\text{Fe}} - \lambda_{\text{Co}} \} \quad \dots(3-3)$$

と表される。 $\lambda_{\text{Fe}} = -5 \times 10^{-6}$ 、 $\lambda_{\text{Co}} = -27 \times 10^{-6}$ 、モデル1における $\lambda_{x1}$ を $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 合金の値 $+68 \times 10^{-6}$ 、モデル2における $\lambda_{x2}$ を $\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}$ ( $y: 0 \sim 1$ )の平均値 $+44 \times 10^{-6}$ [35]とし、計算した結果を表3-1に示す。合金層厚はモデル1では0.6~0.8 nm、モデル2では0.8~1.1 nmと見積られる。Fe/Co多層膜に関するMössbauer法による解析では[27]、界面で組成は連続的に変化しており、その厚さは1.0~1.2 nm、原子層にして5~6層という結果が得られている。この値はモデル2の計算結果とほぼ一致しており、このように二つの独立した方法で求めた結果が良く一致することは、この結果が定量的にも信頼できるものであることを意味する。さらにこのことは、上記の磁歪バランスモデルが定量的にも正しいモデルであることを示唆するものである。

以下に上記で検討したFe/Co多層膜における零磁歪化、低保磁力化の機構について簡





a) モデル 1

b) モデル 2

図3-13 Fe/Co多層膜の組成変調モデル

表3-1 CoFe拡散層の厚さ

Fe/Co(nm)	$\lambda s(\times 10^{-6})$	$tx_1$ (nm)	$tx_2$ (nm)
10/10	-11.0	.595	.833
5/5	- 4.9	.661	.925
3.5/3.5	- 0.8	.633	.887
2/2	+14.5	.726	1.017
1/1	+35.0	.607	.850
5/1	+13.0	.773	1.083

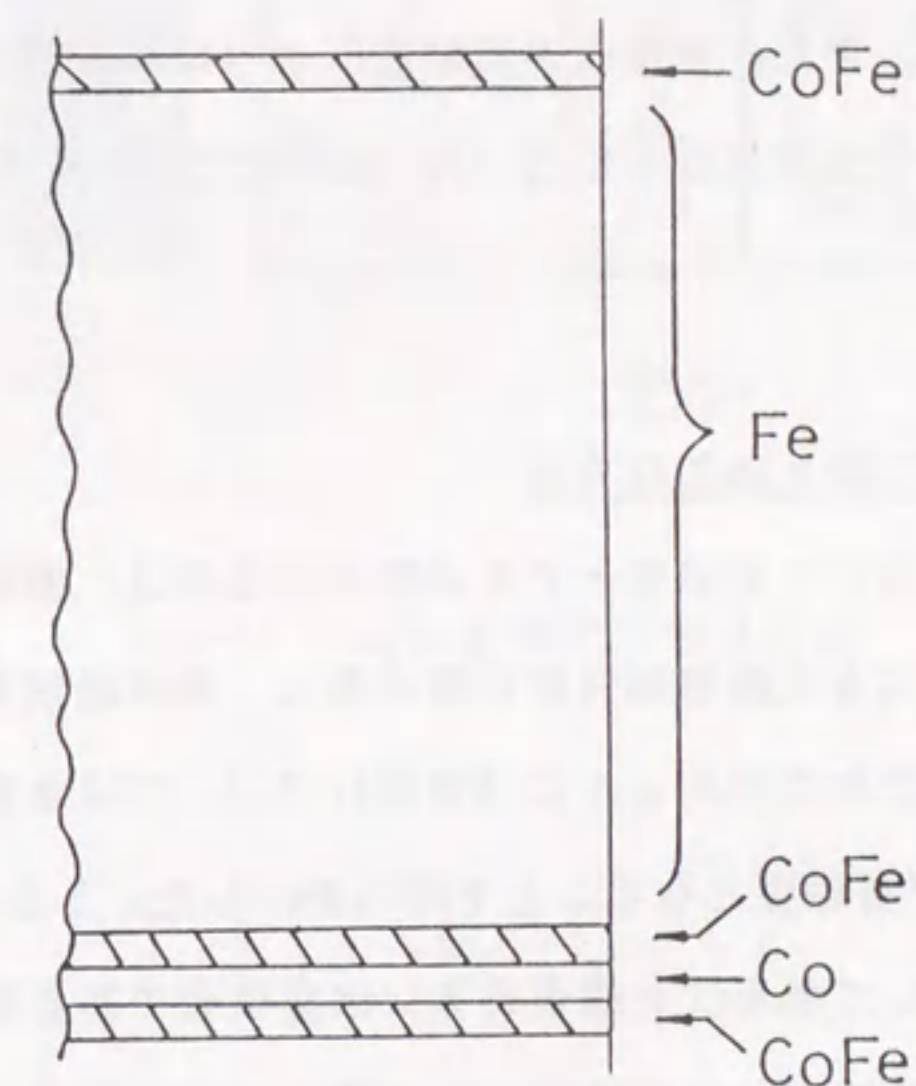


図3-14 Fe/Co多層膜の断面構造



単に整理する。Fe/Co多層膜の構成モデル図を図3-14に示す。FeとCoは固溶系であるため、両層の境界には相互拡散によりCoFe合金層が形成される。Fe層、Co層はともに負磁歪であるがCoFe層は正磁歪であるため各層厚を変化させることにより膜全体の磁歪定数は変化する。Feの磁歪定数に比べCo、CoFeの磁歪定数は1桁から2桁大きいいため、零磁歪を実現するにはCo層、CoFe層をFe層よりかなり薄くする必要がある。このことはこの多層膜を飽和磁化の高いFe層主体に構成できることを意味し、従って膜全体の飽和磁化もFe膜の値程度に高くすることが可能となる。また、各層は多層構造により結晶成長が抑制され細かく微細化しているため、磁気異方性分散が低下し[6,7]、低保磁力化が実現するわけである。

#### 3-3-4 Fe/Co多層膜の磁歪定数と磁気異方性

薄膜部用品軟磁性膜において零磁歪とする必要があるのは、微細パターンに加工した際、逆磁歪効果によって生じる歪誘導磁気異方性を抑え、磁場誘起誘導磁気異方性による安定な磁気異方性制御を行うためであった(2-3参照)。3-3-1では各層の層厚を適当に選ぶことによってFe/Co多層膜が零磁歪となることを明らかにした。しかしながらFe/Co多層膜は、微視的に見ると依然として各層は正磁歪あるいは負磁歪であるため、このような正負の磁歪の重ね合わせにより構成される磁性膜での磁歪定数と磁気異方性との関係について調べる必要がある。図3-15-a)にFe/Co(14/0.5 nm)x34多層膜の磁区構造を示す。多層膜の最上層は14 nmのFe層である。保磁力は2.5 Oe、磁歪定数は $+0.6 \times 10^{-6}$ 、膜応力は圧縮性である。図中、両矢印は成膜中の印加磁場方向を示す。膜は還流磁区構造を成し、その容易軸方向は成膜中の磁場方向に一致することがわかる。図3-15-b)に膜応力が圧縮性で負磁歪の場合の磁区構造のモデル図を示す。2-3で議論したようにこのような条件では歪誘導磁気異方性によりパターンの長辺方向が容易軸方向となる。Fe単層膜は膜応力が圧縮性で、磁歪は負であるため、もしFe/Co多層膜の磁区構造が各層で独立に決定しているとしたら、ビッター法で観察をした場合、Fe/Co多層膜の磁区構造は最上層のFe層の磁区構造、すなわち図3-15-b)のような構造が観察されるはずである。しかしながら実際にはFe/Co膜の磁区構造は図3-15-a)のようになり、このことは最上層のFe層がそれより下の層と独立した磁区構造を成していないことを意味する。このことから正負の磁歪層の重ね合わせからなる多層膜では、各層は独立に容易軸を持つことはできず、均一な磁性膜同様、共通の容易軸を持つこと、および歪誘導磁気異方性の大きさは多層膜全体の $\lambda_s$ と膜応力とで決定さ

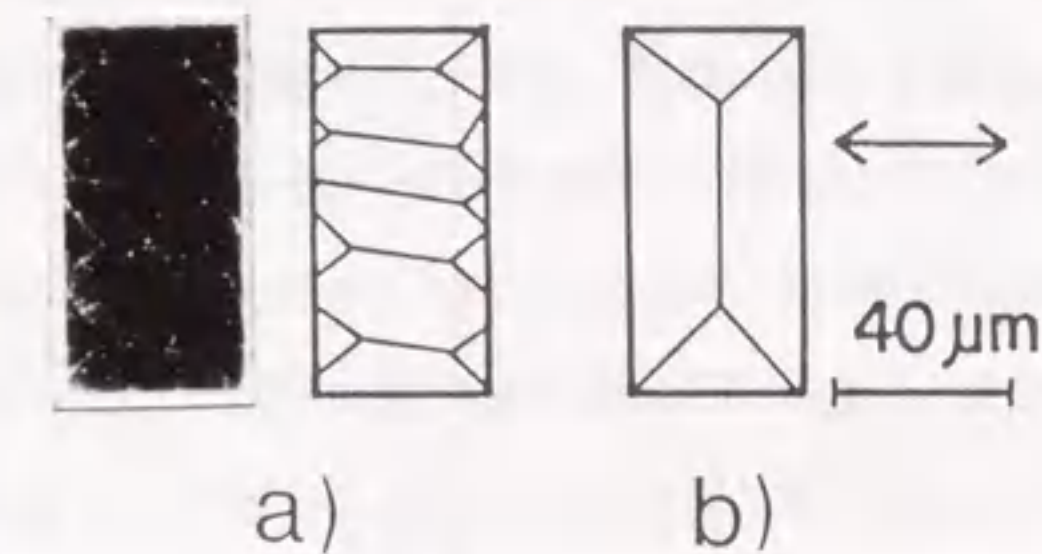


図3-15 Fe/Co多層膜の磁区構造

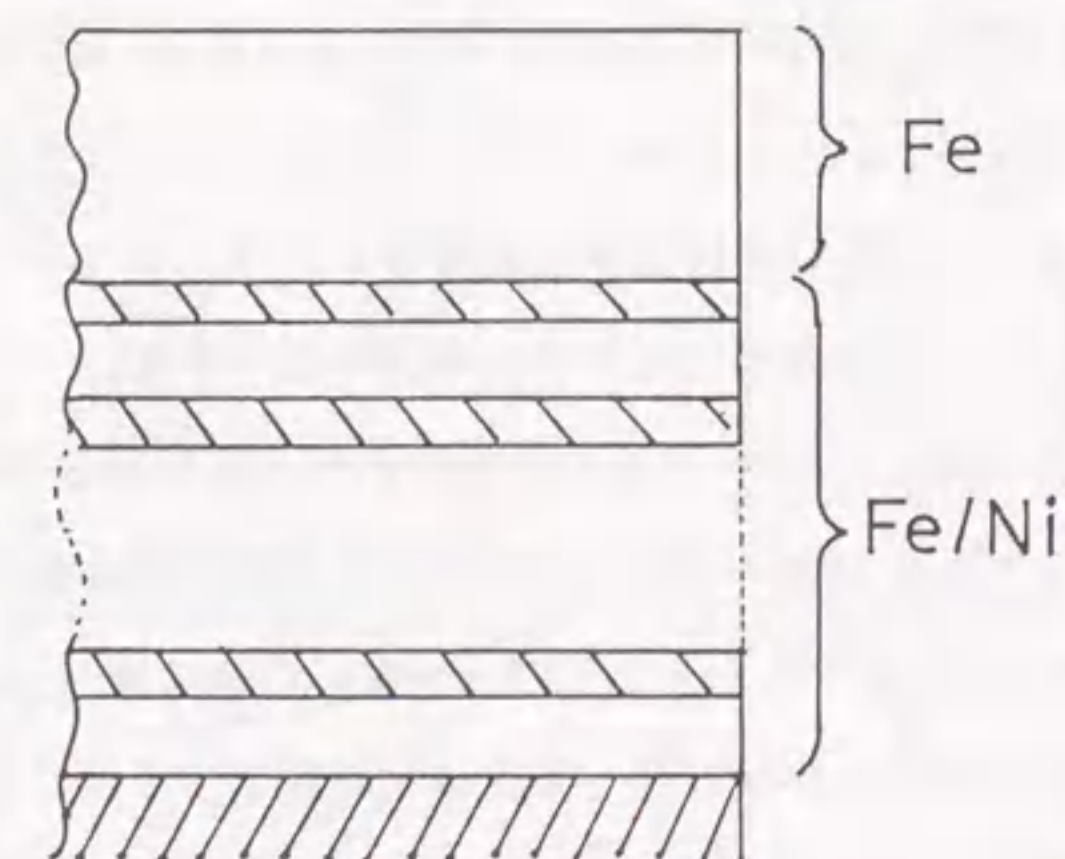


図3-16 Fe/Ni多層膜の断面構造



表3-2 Fe/Ni多層膜のプロファイル

No.	Fe/Ni	surface Fe (nm)	$\lambda_s$ ( $\times 10^{-6}$ )	Hc (Oe)
a)	10/1 nm x 45	10	+ 0.4	0.9
b)	7/1 nm x 50	100	+ 0.6	1.7
c)	5/1 nm x 58	150	+ 1.7	1.8
d)	10/4 nm x 30	10	- 3.9	1.3

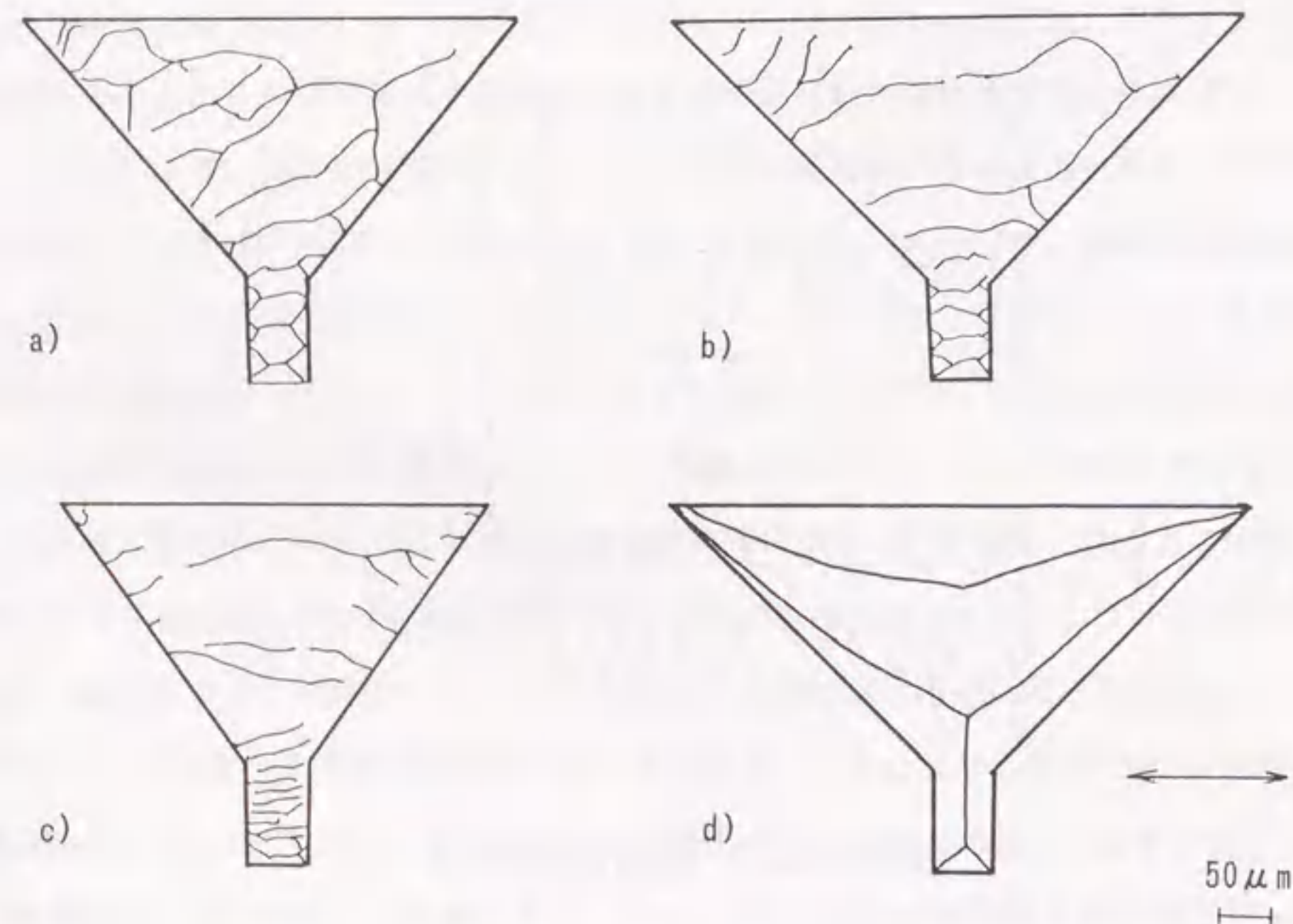


図3-17 Fe/Ni多層膜の磁区構造

れることがわかる。以上、Fe/Co多層膜における膜全体の $\lambda_s$ は、均一膜の場合と同様の物理的意味を持ち、従って正負の磁歪バランスによって多層膜全体を零磁歪とすることにより、歪誘導磁気異方性の影響を回避可能であることがわかった。

次に上記のような磁性多層膜における磁歪定数と磁気異方性との関係が、どの程度各層厚が厚くなっても成立するかを確認するため、最上層のFe層の層厚を様々に変化させ、磁歪定数と磁区構造の関係を観察した。なお、実験にはより低保磁力が得られ、磁区構造の観察が容易であるという理由からFe/Ni多層膜を使用した。Niは負磁歪[3]、NiFe合金は大部分の組成範囲で正磁歪[36]であることから、Fe/Co多層膜と同様の議論が可能である[29,37,38]。図3-16に実験用試料の断面構造を示す。基板上にFe/Ni多層膜を形成し、最上層のFe層の層厚のみを厚くする。負磁歪を持つ最上層Fe層の層厚に応じてFe/Ni多層膜の磁歪を変化させ、膜全体の磁歪定数を制御した。Fe/Ni多層膜の磁歪定数はFe層、Ni層の層厚を変化させることにより変化した。Fe/Ni多層膜のみの膜厚は300~500 nm程度である。各試料のプロファイルを表3-2に、微細パターンにおける磁区構造を図3-17に示す。図中、両矢印は成膜中の磁場方向を示し、また膜応力は圧縮性である。 $\lambda_s > 0$ である

a), b), c)では容易軸方向は印加磁場方向と一致し、 $\lambda_s < 0$ であるd)ではa), b), c)と90度逆転した方向が容易軸方向となっている。a), b)では磁区が比較的大きく磁気異方性が小さいこと、および $\lambda_s$ の値が小さいことから、これらの膜では磁場誘起歪導磁気異方性によって容易軸が決定しているものと考えられる。一方、c)では磁区が細かく大きな磁気異方性が働いていること、d)では容易軸方向が逆転していることおよびこれらの $\lambda_s$ が大きいことから、c), d)では歪誘導磁気異方性が支配的になっているものと考えられる。これらFe/Ni多層膜の磁歪定数と磁区構造の関係は、2-3で議論した磁性単層膜の微細パターンにおける磁歪定数と磁区構造との関係と正確に一致する。またこの関係はFe/Ni多層膜300~500 nmに対し、最上層のFe層厚が150 nmとなっても成立しており、本研究で対象とする各層厚が数十nm以下の多層膜では磁歪に関しては十分均一な膜と考えても良いことがわかる。

次に、上記の現象を簡単なモデルを立てて解釈してみる。図3-18に示すように、正負の磁歪層の重ね合わせからなる多層膜において、各層内の磁気モーメントが全てその層の歪誘導磁気異方性により決定される容易軸方向を向いている場合(a)と、全部の層の磁気モーメントが全て同一方向を向いている場合(b)のエネルギーを計算し比較する。図中、矢印は磁気モーメント、両矢印は各層の容易軸方向を表す。全磁気異方性の中で歪誘導磁気



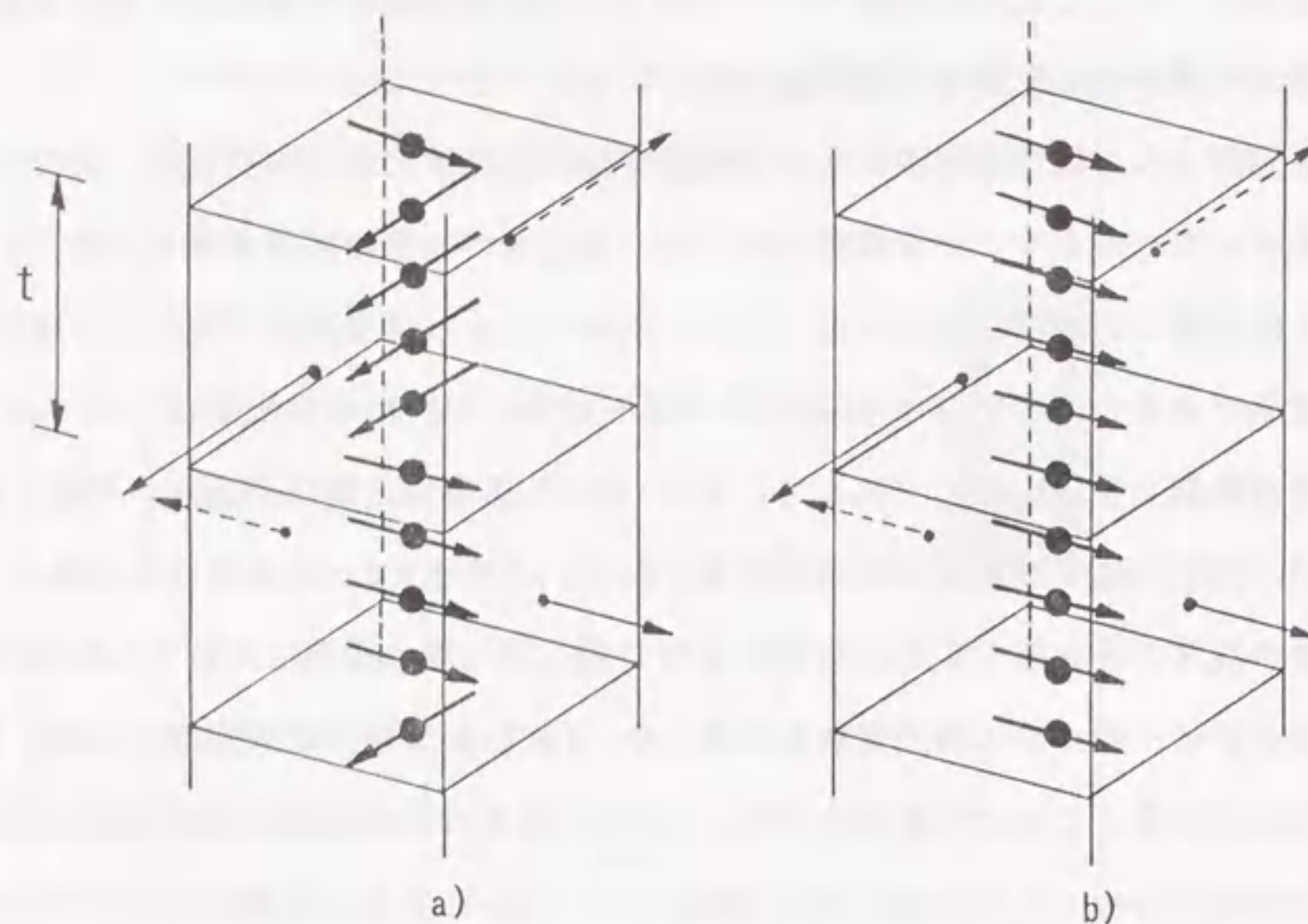


図3-18 正負の磁歪層からなる多層膜の構造モデル

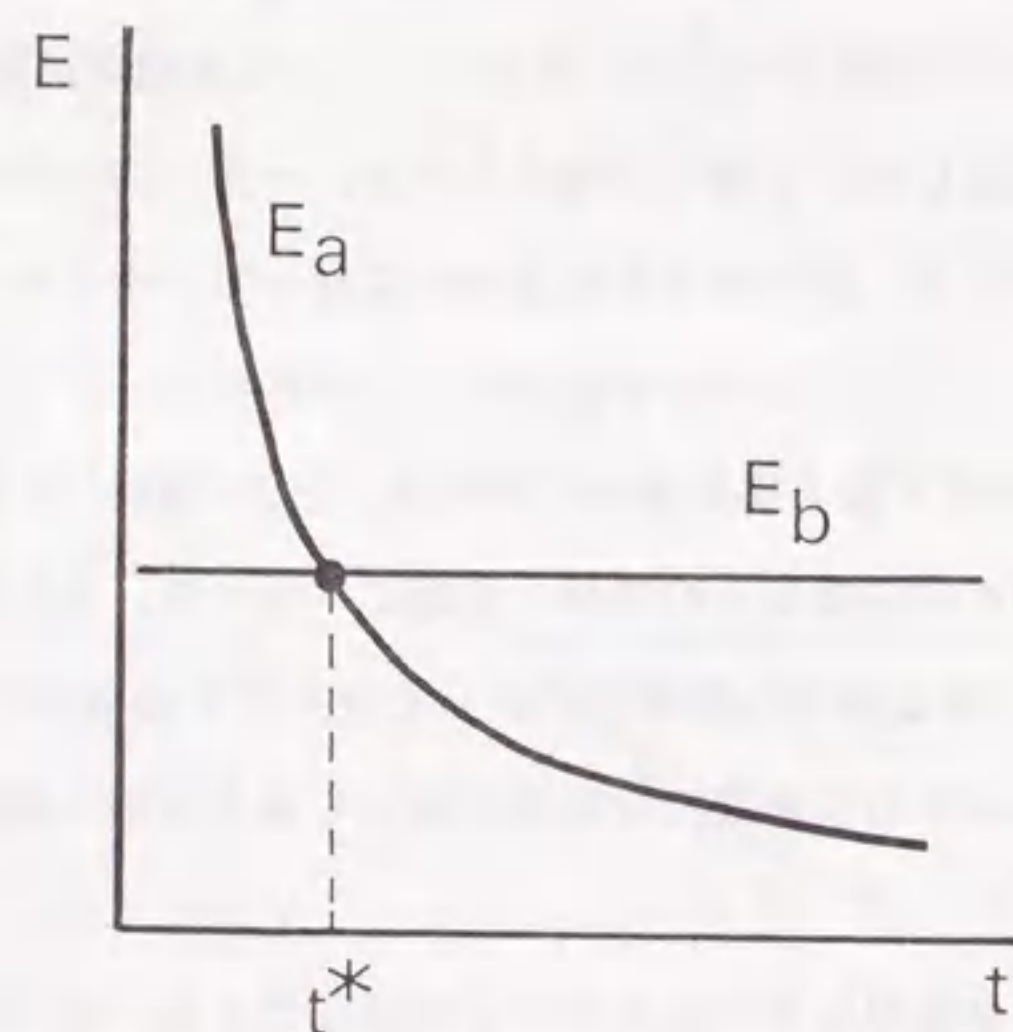


図3-19 磁気的エネルギーと層厚との関係

異方性が支配的であるとし、他の磁気異方性は無視する。a)では膜面積 $A$ 、層厚 $t$ 、格子定数 $a$ とすると、磁気モーメント間の角度が変わる界面において交換エネルギーが $\sigma_{ex}(=J_{ex}S^2)$ だけ高くなり、このような磁気モーメントの組は各界面で $A/a^2$ 個あり、界面は単位体積当たり $1/At$ 個あるため、単位体積当たりのエネルギー密度( $\epsilon_a$ )は、

$$\begin{aligned}\epsilon_a &= \sigma_{ex} \cdot (A/a^2) \cdot (1/At) \\ &= \sigma_{ex}/a^2 t\end{aligned}\quad \dots(3-4)$$

となる。一方、b)では歪誘導磁気異方性( $K_R$ )の分だけエネルギーが高くなるため、単位体積当たりのエネルギー密度( $\epsilon_b$ )は、

$$\epsilon_b = K_R / 2 \quad \dots(3-5)$$

程度となる。両者を比較すると $\epsilon_a$ は $1/t$ に比例するため、層厚の減少に伴い、各層の磁気モーメントが独立した方向を向く(a状態)よりも、同一方向を向く(b状態)方が安定となることがわかる(図3-19)。Feの場合、 $J_{ex} = 2.16 \times 10^{-14}$  erg,  $S = 1$ ,  $a = 2.86 \times 10^{-8}$  cm、 $\sigma_r = 10^9$  dyn/cm<sup>2</sup>,  $\lambda_s = 10^{-6}$ とすると、 $\epsilon_a = \epsilon_b$ となる $t^*$ は $50 \sim 500$   $\mu$ mとなる。すなわち、本研究で対象としている層厚が高々 $10^2$  nmである磁性多層膜では、磁気モーメントはほとんど同一方向を向いていることになり、このことは図3-15、図3-17の実験結果と一致する。なお、実際には、磁気モーメントは完全に平行とはならず、3-3-2で述べた磁化リップル状態のように膜全体の容易軸のまわりにある分散を持って分布するものと考えられる。

### 3-3-5 Fe/CoFe多層膜の磁気特性

Fe/Co多層膜では負磁歪のFe層、Co層とそれらの相互拡散によって形成された正磁歪のCoFe層との磁歪バランスによって膜全体の磁歪変化が生じた。このことから、CoFe層を相互拡散によってでなく直接CoFeターゲットを用いて形成しても、零磁歪が実現できFe/Co多層膜と同様もしくはそれ以上の優れた軟磁気特性を実現できることが期待される。本節ではこのような目的から、Fe/CoFe多層膜の磁気特性について検討する。なおCoFe合金膜の組成はターゲット組成同様Co52wt.%であった。

図3-20に磁歪定数( $\lambda_s$ )のFe層厚依存性を示す。CoFe層厚は0.5 nmに設定した。Fe層厚の増加に伴い $\lambda_s$ は正から負へ連続的に減少する。これはFe/Co多層膜同様、Fe層の負磁歪とCoFe層の正磁歪との磁歪バランスモデルにより説明がつく。Fe/CoFe(12/0.5 nm)条件



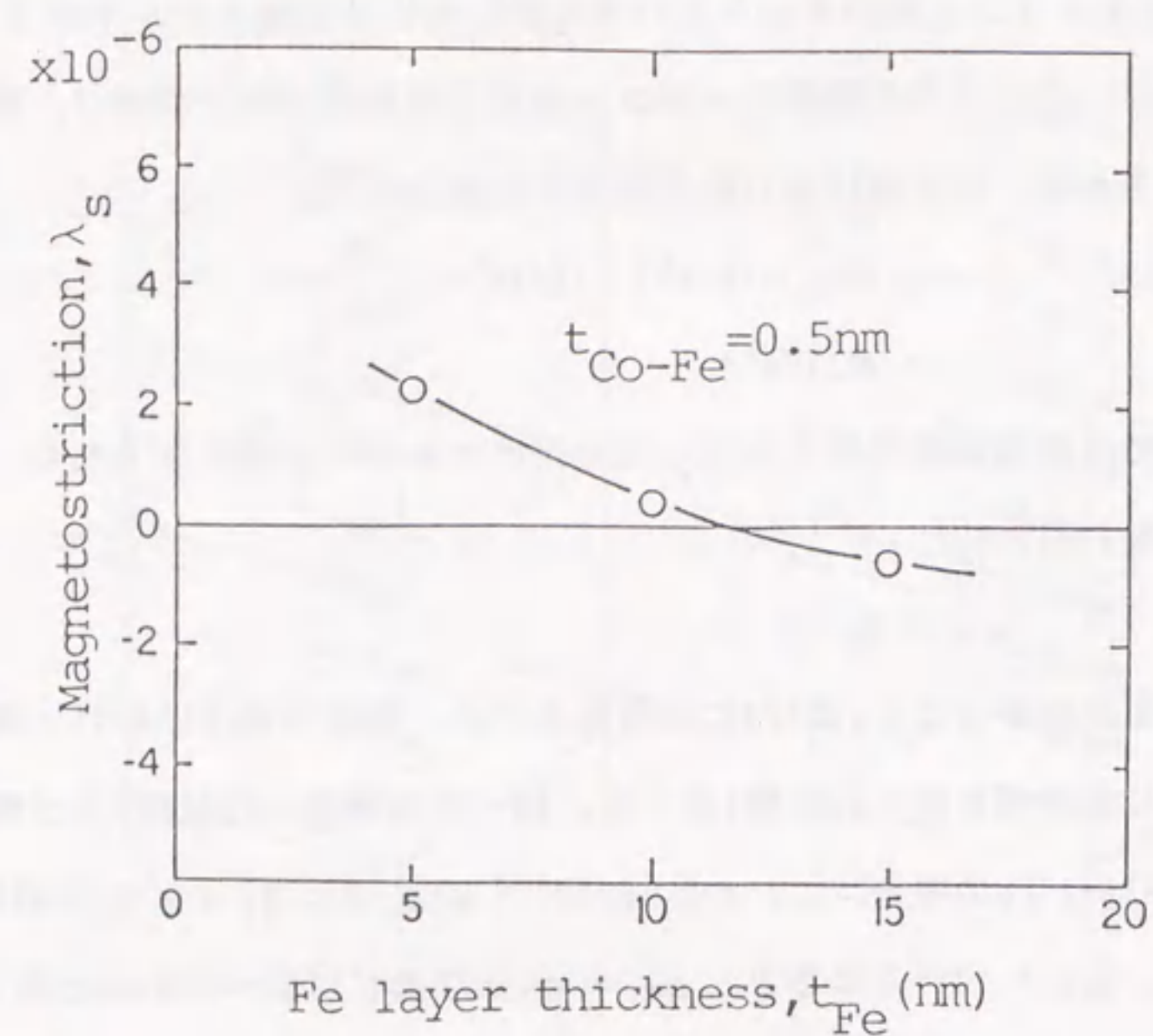


図3-20 磁歪定数のFe層厚依存性

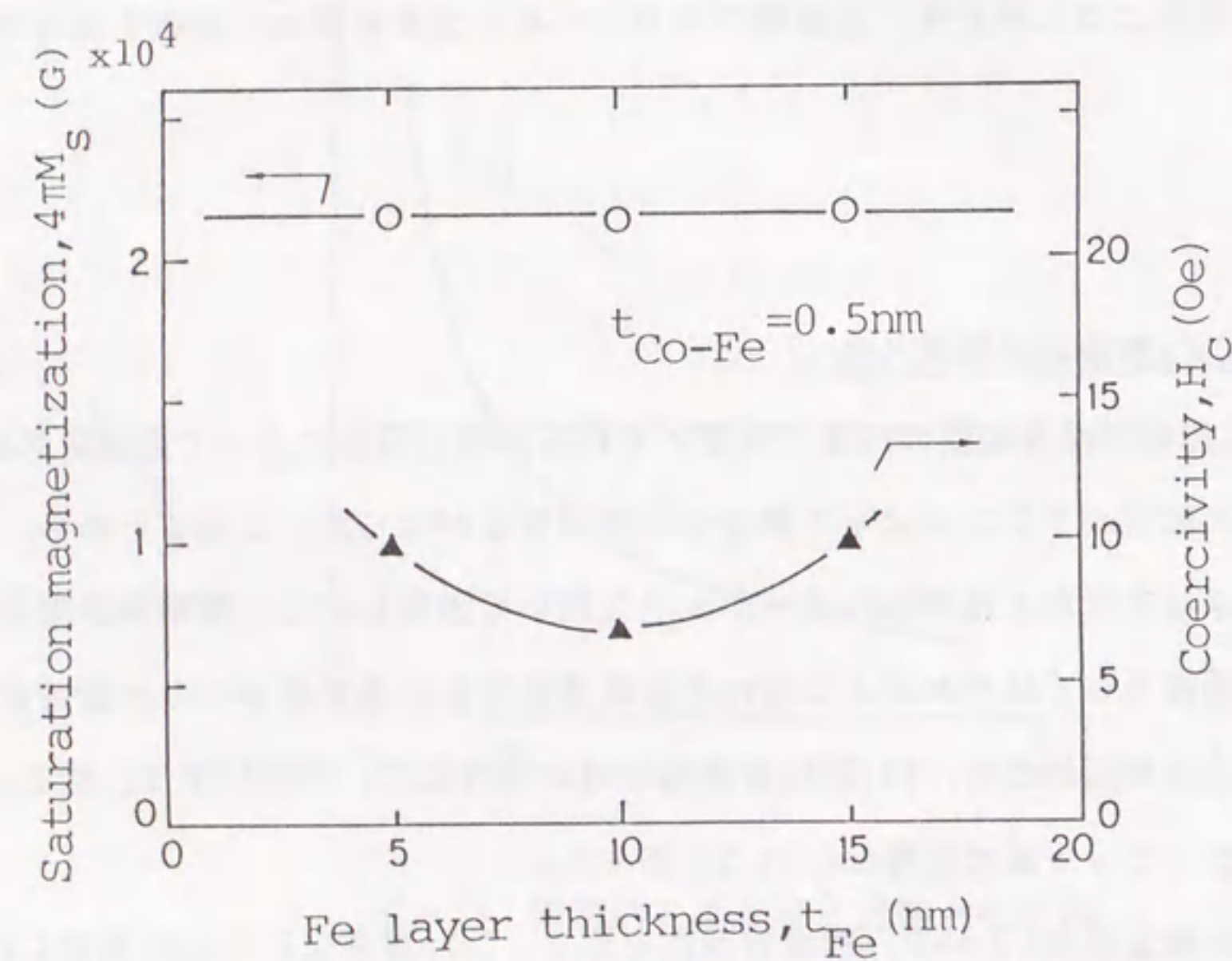


図3-21 保磁力と飽和磁化のFe層厚依存性

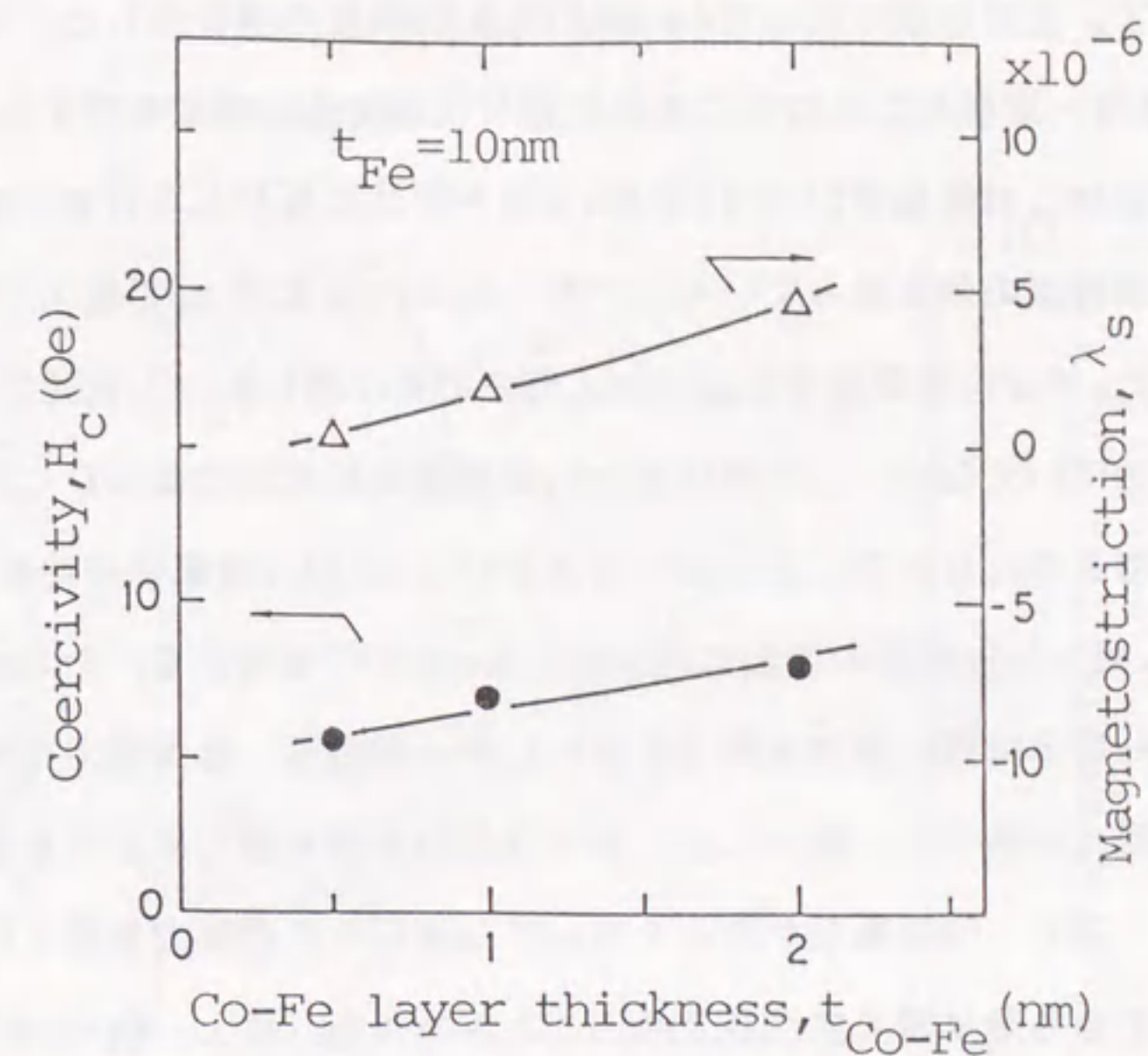


図3-22 磁歪定数と保磁力のCoFe層厚依存性

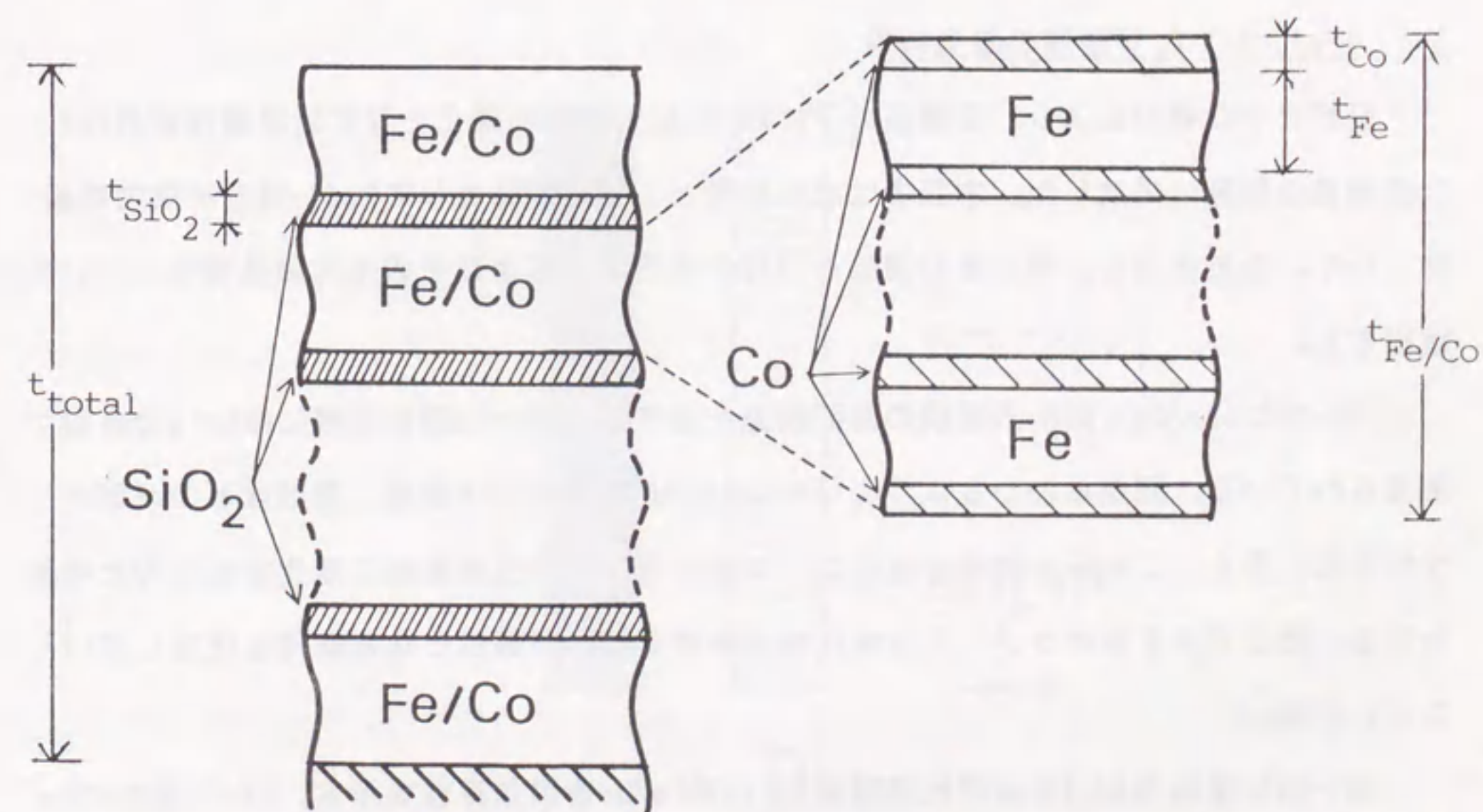


図3-23 (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の断面構造



において零磁歪(±10<sup>-6</sup>)が実現している。図3-21に飽和磁化(4 $\pi$ Ms)と保磁力(H<sub>c</sub>)のFe層厚依存性を示す。全ての膜において4 $\pi$ Msは21.5 kG程度の値を示した。Fe層厚の変化に対して4 $\pi$ Msがほぼ一定値となるのはこの多層膜がFe層主体の構成を成すからである。それゆえ、CoFe合金がこの組成で24.5 kGの高4 $\pi$ Msを持つにもかかわらず、膜全体としてはFe/Co多層膜と同程度の値となっている。一方、H<sub>c</sub>はFe層厚10 nmで最小となり、その値は6.5 Oeであった。Fe/Co多層膜でのas depo.時での最小値1.5 Oeと比較するとこの値はさほど低いものとはいえない。この違いはCoFe合金層の組成分布ならびに結晶性の相違が原因しているものと考えられる。図3-22にH<sub>c</sub>および $\lambda_s$ のCoFe層厚依存性を示す。Fe層厚は10 nmに設定した。CoFe層厚の増加に伴いH<sub>c</sub>,  $\lambda_s$ は共に増加する。4 $\pi$ Msを高くするという点からはCoFe層厚は厚い方が有利である。しかし零磁歪、低保磁力化の観点からは、CoFe合金は保磁力が数十Oeと高いこと、およびCoFe層厚を厚くするとその正磁歪を打ち消すFe層厚が厚くなり、Fe結晶粒が大きくなってFe層自体の保磁力も高くなることなどから、CoFe層厚はできる限り薄くすべきであることがわかる。以上、Fe/Co多層膜ほどの低保磁力化は達成できなかったものの、Fe/CoFe多層膜においてもFe/Co多層膜の場合と同様の機構により、零磁歪化および低保磁力化が実現することがわかった。

### 3-4 (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

前節までの検討により、零磁歪の下、20 kG以上の飽和磁化を有す新軟磁性材料Fe/Co多層膜の開発に成功した。本節では次の段階として磁性体としてFe/Co膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を使用し、第2章の議論と同様の多層効果およびその他の磁気特性について確認する。

図3-23に(F<sub>e</sub>/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の断面構造を示す。Fe層とCo層の境界にはCoFe合金層が形成されている。図からわかるように(F<sub>e</sub>/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では層厚、層数などのパラメータが非常に多く、これらを変化させることによって磁気特性は多様に変化するものと考えられる。そこでまず各パラメータを変化させ軟磁気特性が最良となる条件を決定していくことにする。

図3-24に保磁力(H<sub>c</sub>)および比透磁率( $\mu_r$ )のFe/Co層厚依存性を示す。Fe/Co層中のFe層厚およびCo層厚は前節の検討結果より零磁歪、低保磁力条件を満たす15 nmおよび0.5 nmとし、またSiO<sub>2</sub>層厚はNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜同様、磁氣的絶縁がとれる5 nmに設定した。Fe

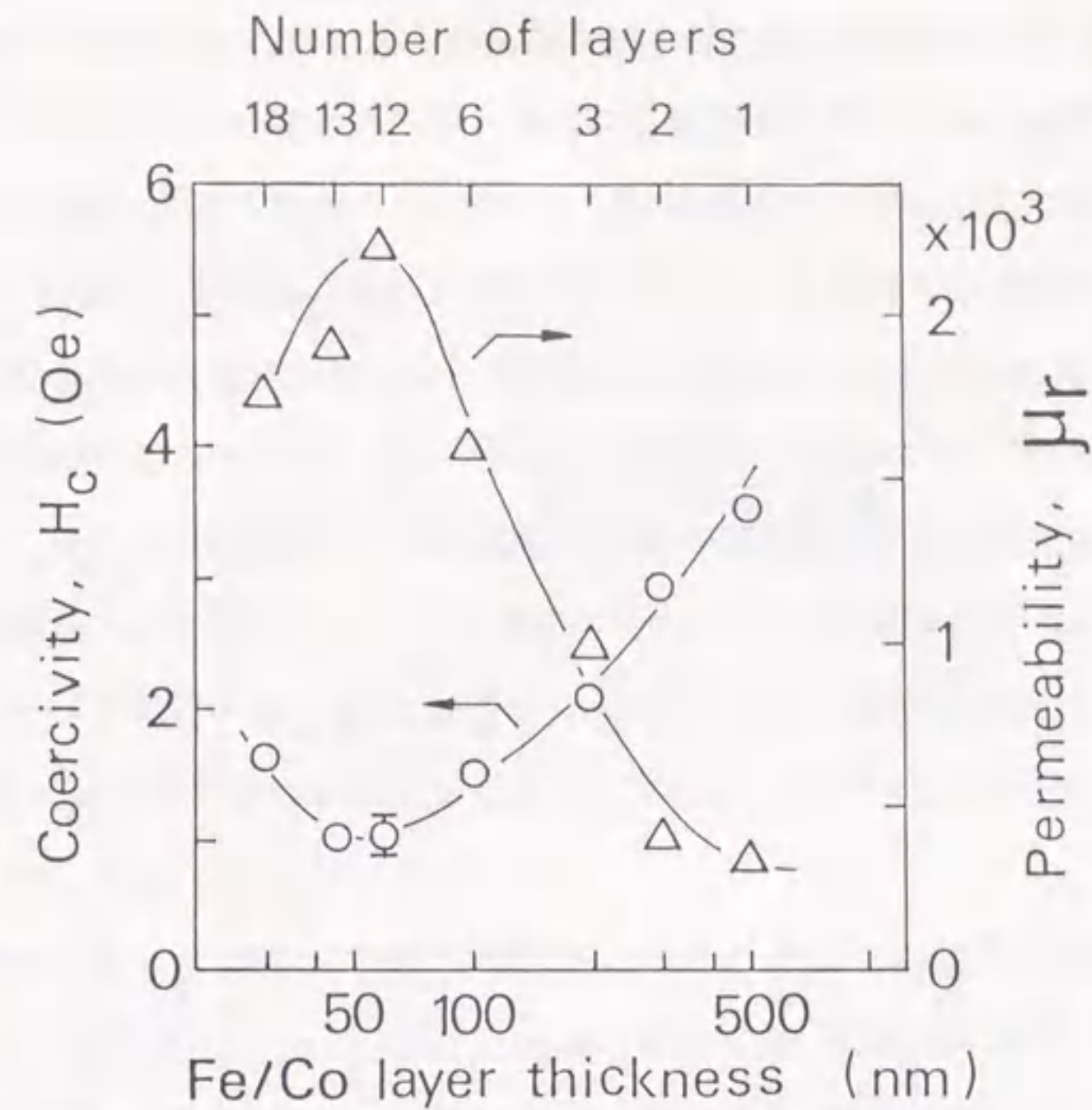


図3-24 保磁力および比透磁率のFe/Co層厚依存性

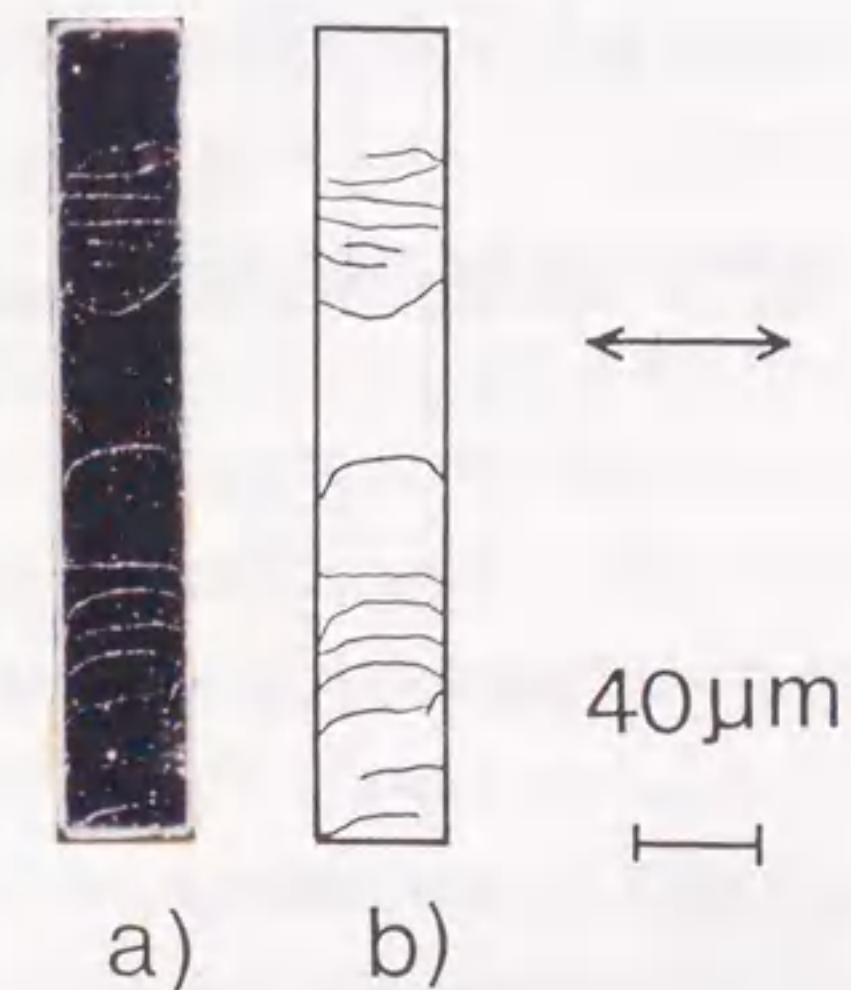


図3-25 (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁区構造



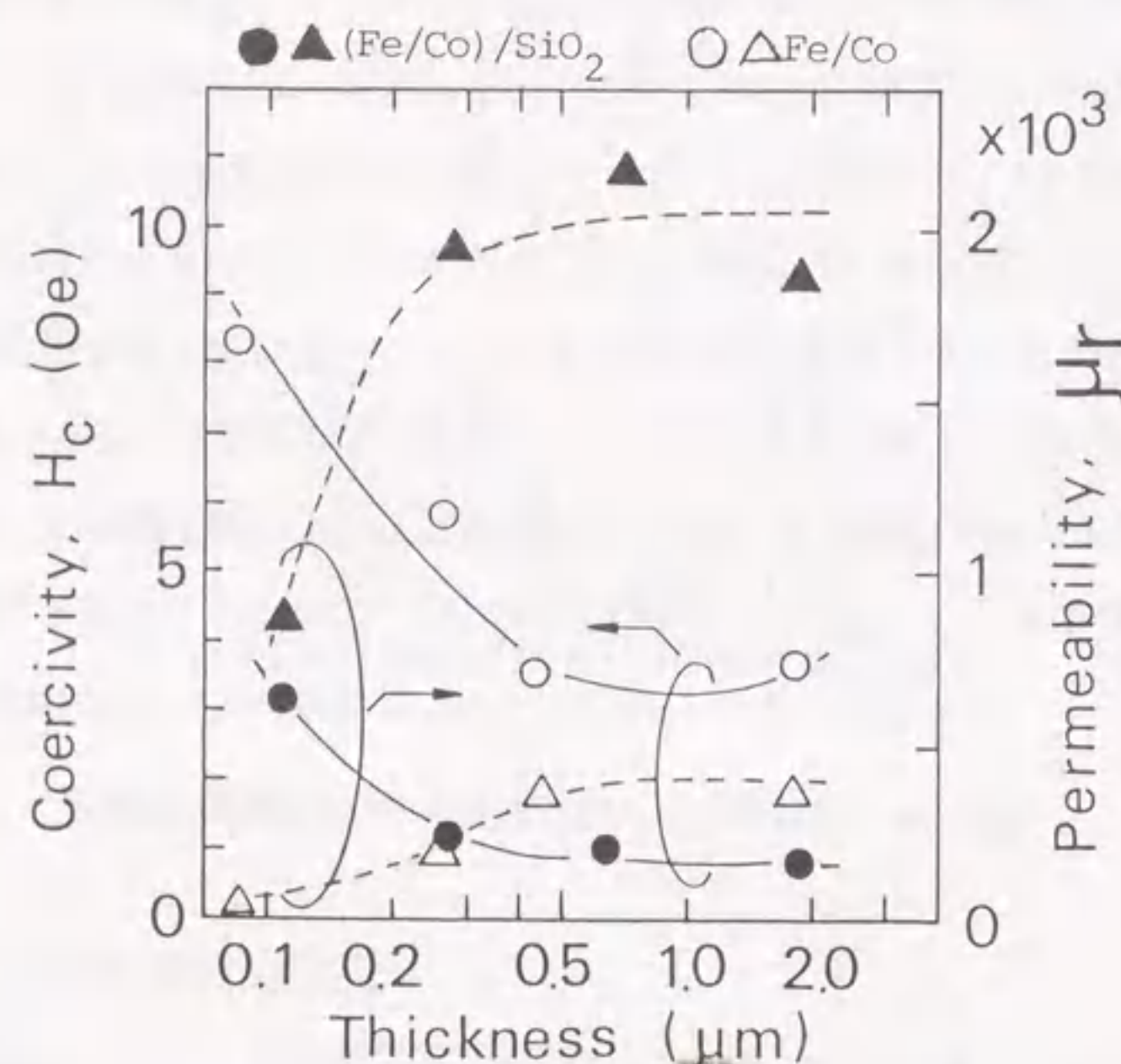


図3-26 保磁力および比透磁率の総膜厚依存性

/Co層の層厚はFe/Co(15/0.5 nm)多層膜の積層回数により変化させた。Fe/Co層厚は約30 nmから500 nmまで変化させ、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜全体の膜厚が約500 nmとなるよう設定した。図3-24の上横軸はFe/Co層とSiO<sub>2</sub>層からなる積層回数を表す。Fe/Co層厚の減少に伴いHcは減少、 $\mu_r$ は増加する。なお、 $\mu_r$ は1~10 MHzの範囲でほぼ一定値を示した。Fe/Co層厚62 nmにおいてHc = 0.9 Oe,  $\mu_r > 2000$ が実現した。この様に非磁性絶縁体との多層化により軟磁気特性が改善されるのは、磁性層間の静磁結合により磁気異方性分散が低下したことが原因と考えられる[39,40]。また、Fe/Co層厚の減少にともない軟磁気特性が良好となるのは、2-2-4で検討したように磁性層厚がある程度薄く積層回数が増加しないと磁性層間の静磁結合が安定化しないためと考えられる。Fe/Co層厚が50 nm以下になると軟磁気特性はかえって劣化する。これは、Fe/Co層中のFe/Coの積層回数が2~3程度となり、Fe/Co層そのものの軟磁気特性が劣化したためと考えられる。以上の検討によりFe/Co層厚の最適値として62 nmが決定した。

上記の検討により各層厚の最適化が図られたので、次にこの膜の多層効果について確認する。図3-25に(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>[(15/0.5)/5 nm]多層膜の磁区構造を示す。Fe/Co多層膜層厚は62 nm、膜全体の磁歪定数は $+0.6 \times 10^{-6}$ である。図中両矢印は成膜中の印加磁場方向を表す。NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜同様、還流磁区構造は消失し180度磁壁がパターンの端まで伸びた磁区構造が観察される。また容易軸方向は印加磁場方向と一致し、磁場誘起誘導磁気異方性による磁気異方性制御がなされている。以上、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜においてもNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜同様の還流磁区消失による有効磁束路幅拡大効果が確認された。

次に磁性体/非磁性絶縁体多層化による軟磁気特性の改善効果を確認するため、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜とFe/Co多層膜における磁気特性の総膜厚依存性を調べた。保磁力(Hc)と比透磁率( $\mu_r$ )の測定結果を図3-26に示す。Fe, Co, SiO<sub>2</sub>層厚はそれぞれ15 nm, 0.5 nm, 5 nmに設定した。両多層膜ともHcは総膜厚の減少に伴い増加する。しかし、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜ではその増加は抑えられ、総膜厚0.3 μm以上の領域でHcは1 Oe以下となる。 $\mu_r$ の変化はHcの変化によく対応し、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では総膜厚0.3 μm以上の領域で、薄膜磁気ヘッド用磁性膜に要求される2000以上の値となった。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜において軟磁気特性が改善されたのは、磁性層間の静磁結合により磁気異方性分散が低下したため[39,40]と考えられる。このようにFe/Co多層膜と比較すると(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では軟磁気特性が大幅に改善され、また総膜厚がサブミクロンと薄くなってもその特性はほとんど劣化しない。このことは部品応用上、汎用性が広がるという意味で非常に有用といえる。



以上、非磁性絶縁体との多層化による軟磁気特性の改善効果を確認することができた。なお、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の飽和磁化はFe/Co層とSiO<sub>2</sub>層との単純体積比で決定し、20 kG程度の値となった。

### 3-5 まとめ

本章では高飽和磁化を有した新軟磁性材料の開発を目的にFe/Co, Fe/CoFe, (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性について検討した。以下に結果を示す。

(1)各層厚を変化させることにより、膜全体の保磁力、磁歪定数は変化する。零磁歪の下、Fe/Co(15/0.5 nm)多層膜では飽和磁化21 kG, 保磁力1.5~2 Oeが、Fe/CoFe(10/0.5 nm)多層膜では飽和磁化21 kG, 保磁力6.5 Oeが実現した。また、これらの多層膜は磁場誘起誘導磁気異方性を示すことがわかった。Fe/Co多層膜の保磁力は300℃アニールにより0.8 Oeまで低下した。

(2)Fe/Co多層膜ではFe層, Co層の負磁歪とCoFe相互拡散層の正磁歪とが、Fe/CoFe多層膜ではFe層の負磁歪とCoFe層の正磁歪とがそれぞれバランスして磁歪変化が生じる。界面の組成変調プロファイルは濃度勾配がリニアに変化するとしたモデルによく一致し、組成変調プロファイルの解析により、この磁歪バランスモデルは定量的にも正しいことが示された。また低保磁力化は結晶粒の微細化に伴う磁気異方性分散の低下が、磁場誘起誘導磁気異方性はCoFe層における方向性規則配列が原因であることがわかった。

(3)正磁歪の磁性体と負磁歪の磁性体の重ね合わせからなる磁性多層膜では、各層は独立の容易軸を持つことはできず、均一な単層膜同様、共通の容易軸を持つ。また、歪誘導磁気異方性の大きさは膜全体の磁歪定数と膜応力によって決定する。従って、このような磁性多層膜の磁歪定数は均一膜の磁歪定数と同様の物理的意味を持ち、これを零とすることにより、歪誘導磁気異方性の影響を回避できる。

(4)(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜ではFe層厚15 nm, Co層厚0.5 nm, Fe/Co層厚62 nm, SiO<sub>2</sub>層5 nmの場合に零磁歪, 飽和磁化20 kG, 保磁力1 Oe, 比透磁率2000の優れた軟磁気特性が総膜厚0.3 μm以上で実現した。また、非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大および軟磁気特性の改善効果が確認された。

以上、零磁歪の下、20 kGの高飽和磁化、2000の高比透磁率を持ち、非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大および軟磁気特性の改善効果を示す新軟磁性材料(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。

### 第3章の参考文献

- 1) E. Klokholm, IEEE Trans. Magn., MAG-12, 819 ('76).
- 2) Paul A. Calcango and David A. Thompson, Rev. Sci. Instrum., 46, 904 ('75).
- 3) E. W. Lee, Rept. Prog. Phys., 18, 184 ('55).
- 4) K. Honda and S. Shimizu, Phil. Mag., 6, 392 ('03).
- 5) G. Nishimura, K. Yanagisawa, A. Tago and J. Kishigami, INTERMAG'89, EQ-06.
- 6) H. Hoffmann, J. Appl. Phys., 35, 1790 ('64).
- 7) K. J. Harte, J. Appl. Phys., 39, 1503 ('68).
- 8) M. Senda and Y. Nagai, Appl. Phys. Lett., 52, 672 ('88).
- 9) M. Senda and Y. Nagai, J. Appl. Phys., 65, 3151 ('89).
- 10) M. Senda and Y. Nagai, J. Appl. Phys., 65, 3157 ('89).
- 11) M. Senda and Y. Nagai, J. Appl. Phys., 65, 1238 ('89).
- 12) M. Senda and Y. Nagai, J. Vac. Sci. Technol. A8, 13 ('90).
- 13) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo, N. Kumasaka and K. Shiiki, J. Appl. Phys., 64, 3157 ('88).
- 14) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo and N. Kumasaka, IEEE Trans. Magn. MAG-23, 2746 ('87).
- 15) T. Miyazaki, F. Sato, K. Takahashi, T. Tanaka and T. Shimazu, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 241 ('89).
- 16) Y. Hoshi, M. Seki and M. Naoe, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 289 ('89).
- 17) S. Sugeno, H. Okayama and Y. Narumiya, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 351 ('89).
- 18) K. Takahashi, H. Shoji, M. Abe, H. Komaba and T. Wakiyama, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 283 ('90).
- 19) N. Hasegawa and M. Saito, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 313 ('90).
- 20) A. Gyotoku, H. Tomiyasu and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 375 ('90).
- 21) F. Sato and T. Miyazaki, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 307 ('91).
- 22) A. Gyotoku, H. Tomiyama and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 399 ('91).
- 23) N. Hasegawa, M. Saito, N. Kataoka and H. Fujimori, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 403 ('91).



- 24) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., 25, 3327 ('89).
- 25) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., 26, 1397 ('90).
- 26) N. Ishiwata, C. Wakabayashi and T. Matsumoto,  
IEEE Trans. Magn., MAG-23, 2152 ('88).
- 27) F. W. A. Dirne and C. J. M. Denissen, J. Magn. Magn. Mat., 78, 122 ('89).
- 28) R. C. Hall, J. Appl. Phys., 30, 816 ('59).
- 29) Y. Nagai, M. Senda and T. Toshima, J. Appl. Phys., 63, 1136 ('88).
- 30) E. T. Ferguson, J. Phys. Radium, 20, 251 ('51).
- 31) N. Hosoi, K. Kawaguchi, T. Shinjo, T. Takada and Y. Endoh,  
J. Phys. Soc. Jpn., 53, 2659 ('84).
- 32) K. Takahashi, H. Yasuoka, K. Kawaguchi, N. Hosoi and T. Shinjo,  
J. Phys. Soc. Jpn., 53, 4315 ('84).
- 33) N. K. Jaggi, L. H. Schartz, H. K. Wong and J. B. Ketterson,  
J. Magn. Magn. Mat., 51, 273 ('85).
- 34) H. M. van Noort, F. J. A. den Broeder and H. J. G. Draaisma,  
J. Magn. Magn. Mat., 51, 273 ('85).
- 35) R. M. Bozorth, Ferromagnetism (Van Nostrand, Princeton, NJ, '51).
- 36) F. Lichtenberger, Ann. Physik 10, 45 ('32).
- 37) Y. Nagai, K. Yanagisawa and M. Senda, J. Appl. Phys., 64, 1343 ('88).
- 38) Y. Nagai and M. Senda, J. Appl. Phys., 64, 4108 ('88).
- 39) H. Clow, Nature, 192, 1035 ('62).
- 40) A. Yelow, Physics of Thin Films (Academic, New York, 1971), Vol. 6.

## 第4章 Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

### 4-1 はじめに

前章では零磁歪の下、20 kGの高飽和磁化、2000の高比透磁率を有し、かつ非磁性絶縁体との積層化による多層効果を示す新軟磁性材料として(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜は薄膜部品用軟磁性膜に要求される特性を兼ね備えた高性能な軟磁性膜である。しかしその反面、構造は図3-23に示されるように多少複雑なものとなり、膜作製上、技術面および生産面で課題が残る。そこで本章では、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜における材料構成の複雑さを解決した新しい高飽和磁化軟磁性材料の開発を目指す。本章における新材料開発の設計方針を以下に示す。還流磁区構造の消失による有効磁束路幅の拡大、比透磁率の高周波特性改善、および軟磁気特性の改善のためには、第2章の議論で明らかのように磁性体と非磁性絶縁体との多層化が有効な手段といえる。そこで本章でもこの手法を採用することにする。そして磁性を担う材料としては単元素物質中最も飽和磁化が高いFeを使用し、Feと非磁性体との多層化によりできるだけ飽和磁化を高く維持した状態で零磁歪、低保磁力といった特性を実現することを試みる。Feと非磁性体のみで上記の特性実現を図ることができれば、磁性層であるFe層が非磁性層により分断された構造をとっているためにこの二種類の層のみで第2章で議論した多層効果が達成され、従って(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜と比較し材料構成の単純化が可能となる。

### 4-2 実験方法

試料は多層膜作製用イオンビームスパッタ装置により作製した。動作真空度はAr 1×10<sup>-4</sup> Torr, 加速電圧は1 kV, 基板温度は160℃とした。ターゲットには5インチ径のFe, SiO<sub>2</sub>, Cu, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, C, Si, Tiディスク(いずれも純度99.99%)を、基板にはCorningガラス(No. 0211)およびSiウエハを使用した。基板ホルダに固定された永久磁石により基板表面に平行に約100 Oeの磁場を印加し、また、膜の均一化を図るため、基板ホルダは成膜中約4rpmで回転させた。ターゲット、基板はスパッタ粒子が基板面に垂直に入射するよう設置した。アニールは160℃から300℃, 1 hr., 500 Oeの磁場を成膜中の外部磁場と同方向に印加して行った。



保磁力、飽和磁化はM-Hループトレースならびに試料振動型磁力計(VSM)により測定した。磁歪定数は25 0eの一定磁場を印加した際の基板のたわみ量の変化から見積った(2-2参照)[1]。比透磁率は8字コイル法を用い、磁場強度約80 mOeの高周波磁場(1~50 MHz)中にて測定した(2-2参照)[2]。磁区構造はフォトリソグラフィ法により微細パターンに加工した後、カー効果を用いて観察した。

膜応力( $\sigma_f$ )は、膜堆積前後の基板のたわみ量の変化( $\delta$ )から次式を用いて見積った[3]。

$$\sigma_f = E_s t_s^2 \delta / \{3(1 - \nu_s)L^2 t_r\} \quad \dots(4-1)$$

ここで、 $E_s$ は基板のヤング率、 $\nu_s$ は基板のポアソン比、 $L$ は基板の長さ、 $t_r$ は膜の厚さ、 $t_s$ は基板の厚さである。ヤング率、ポアソン比はバルクでの値を用いた。

多層膜の結晶性、人工周期構造、膜面および断面の形態、結晶粒径はX線回折(XD)、電子線回折(ED)、ならびに透過電子線顕微鏡(TEM)により観察した。ED、TEM用試料はSiウエハあるいは岩塩基板上に作製した。膜厚方向の結晶粒径( $D$ )はFe(110)回折ピークの半値幅( $B$ )から次式(Scherrerの式)を用いて見積った[4]。

$$D = 0.9 \lambda / (B \cos \theta) \quad \dots(4-2)$$

ここで $\lambda$ はx線の波長である。

膜面内の異方性磁場はM-H特性から見積った。膜面内の磁気異方性の強度分散および角度分散はTorokの方法[5]により測定した。図4-1に測定系を示す。試料には高周波磁場( $H_{rf}$ )とそれに垂直な方向にバイアス磁場( $H_{bias}$ )が印加されている。試料のM-H特性は $H_{bias}$ が平均の異方性磁場( $\overline{H_k}$ )と等しくなった場合、および $H_{rf}$ が容易軸と平行になった場合に最も大きなヒステリシスを示す(図4-2)。図4-2の縦軸は確率密度関数であり、これはヒステリシスループの面積に比例する。ヒステリシスループの面積はM-Hの位相差に比例することから、サンプルコイルに発生する誘導起電力( $V_s$ )と参照コイルに発生する誘導起電力( $V_r$ )の比 $V_s/V_r \sim \exp(i\delta)$ ( $\delta$ :M-Hの位相差)を測定することにより、確率密度関数は求まる。強度分散は磁化全体の50%が $\overline{H_k}$ を中心に $\pm \delta H_{bias}$ の範囲にあることで定義される $\Delta_{50}(= \delta H_{bias}/\overline{H_k})$ 、すなわち

$$0.50 = \int_{-\Delta_{50}}^{+\Delta_{50}} P(\Delta) d\Delta \quad \dots(4-3)$$

により、一方角度分散は磁化全体の50%が $\pm \delta \theta$ の範囲にあることで定義される $\alpha_{50}(= \delta \theta)$ 、すなわち

$$0.50 = \int_{-\alpha_{50}}^{+\alpha_{50}} P(\alpha) d\alpha \quad \dots(4-4)$$

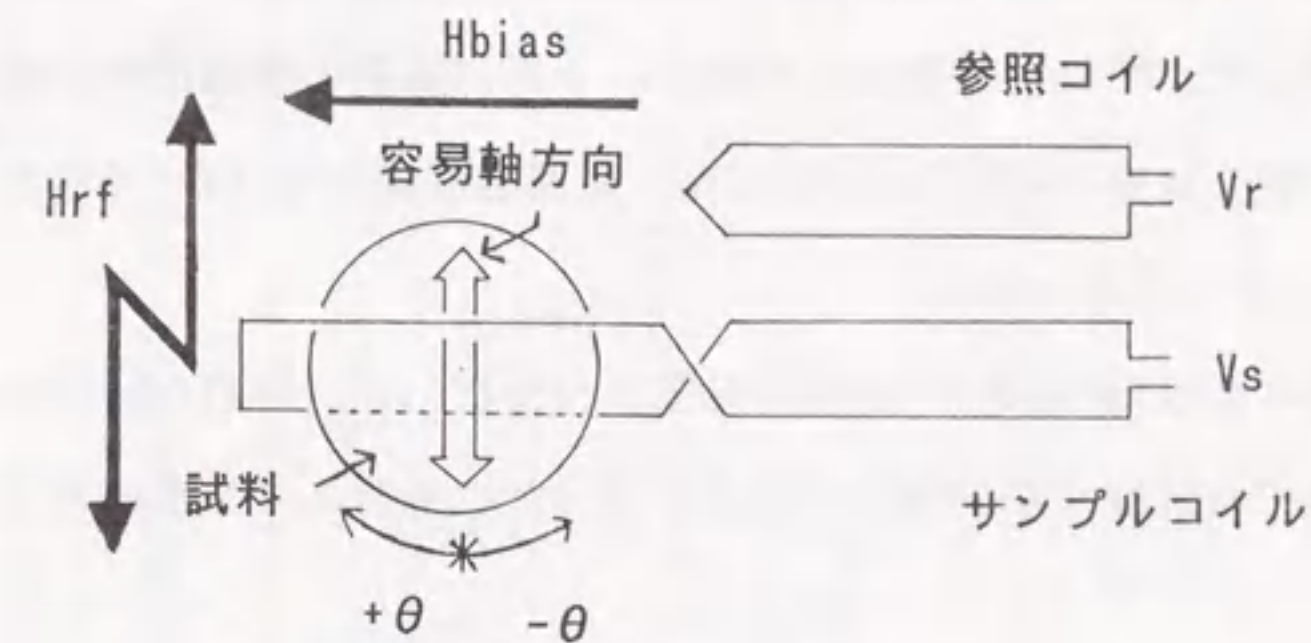


図4-1 磁気異方性分散の測定法

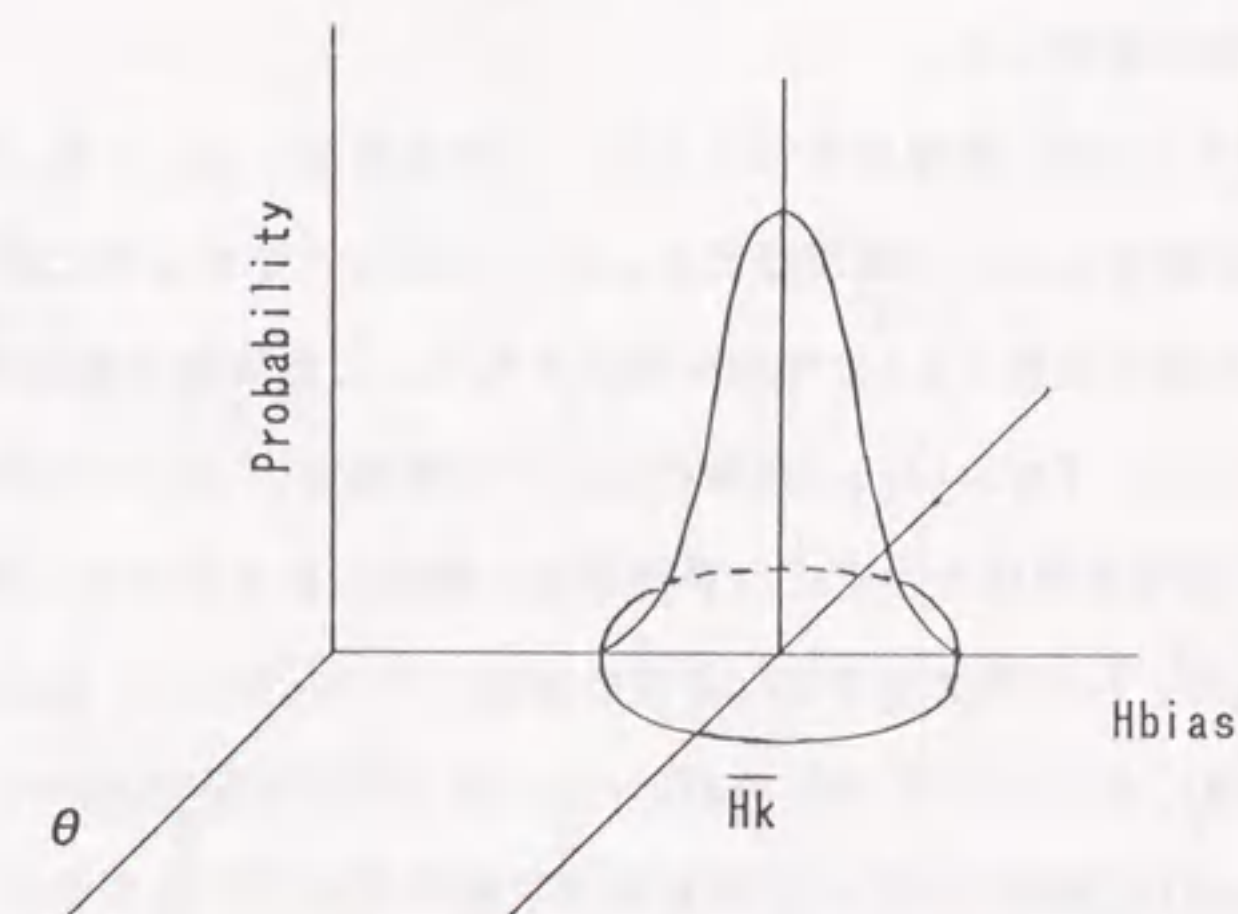


図4-2 磁気異方性分散の分布



によりそれぞれ評価した。なお、測定感度を上げるためHrfの大きさは数百mOeとした。このような大きなHrfでは分散の絶対値は実際より大きめに観測されるため、規格化した相対値により評価した。

膜厚方向の磁化方向およびFeの磁気秩序状態は内部転換電子によるMössbauer分光法(CEMS)により測定した。 $^{57}\text{Co}$ を線源として用い、 $\gamma$ 線は試料の膜面に対し垂直に入射させた。スペクトルの較正は $\alpha$ -Fe箔により行った。垂直磁気異方性はM-H特性および強磁性共鳴(FMR)スペクトルから見積った。

多層膜の界面状態はX線光電子分光(XPS)により分析した。励起X線にはMg K $\alpha$ を使用し、深さプロファイルはArイオンラスタにより行った。結合エネルギーの較正はAr 2pレベルで行った。

#### 4-3 Fe/(非磁性体)多層膜の磁気特性

本節ではFeの零磁歪化、低保磁力化を目指して、Feと種々の非磁性体との多層化を試み最適材料の探索を行う。非磁性体としては $\text{SiO}_2$ , Cu,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , C, Si, Tiを選び、それぞれの多層膜の磁気特性を検討した。

図4-3に磁歪定数( $\lambda_s$ )のFe層厚依存性を示す。Cuの層厚は1 nm,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , C, Si, Tiの層厚は5 nmに設定した。Fe単層膜の $\lambda_s$ は $-2 \sim -4 \times 10^{-6}$ であるのに対し、全ての多層膜においてFe層厚の減少に伴う $\lambda_s$ の増加が観測される。この実験の範囲ではFe/ $\text{SiO}_2$  (6/5 nm), Fe/C (25/5 nm), Fe/Si (7/5 nm)条件において零磁歪( $< \pm 10^{-6}$ )が実現する。図4-4に保磁力( $H_c$ )のFe層厚依存性を示す。Fe単層膜は十数Oeの $H_c$ を示すのに対し、Fe/ $\text{SiO}_2$ , Fe/Cu, Fe/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Fe/C多層膜ではFe層厚の減少に伴い、 $H_c$ は10 Oe以下に減少する。特に、Fe/ $\text{SiO}_2$  (5/5 nm), Fe/Cu (5/1 nm), Fe/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  (5/5 nm)多層膜では1~2 Oeの低 $H_c$ が実現した。Fe/Si, Fe/Ti多層膜ではこの実験範囲では軟磁気特性を示さなかった。図4-5に磁場中成膜した場合と無磁場で成膜した場合での容易軸方向と困難軸方向の角型比を示す。closed symbolは無磁場成膜試料、open symbolは磁場中成膜試料を示す。Fe/Si多層膜を除くFe/ $\text{SiO}_2$ , Fe/Cu, Fe/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Fe/C多層膜では異方性が現れた。容易軸方向が印加磁場方向と一致することから、この磁気異方性は磁場誘起誘導磁気異方性であることがわかる。

上記で検討したようにFe/(非磁性体)多層膜では磁歪変化、低保磁力化、磁場誘起誘

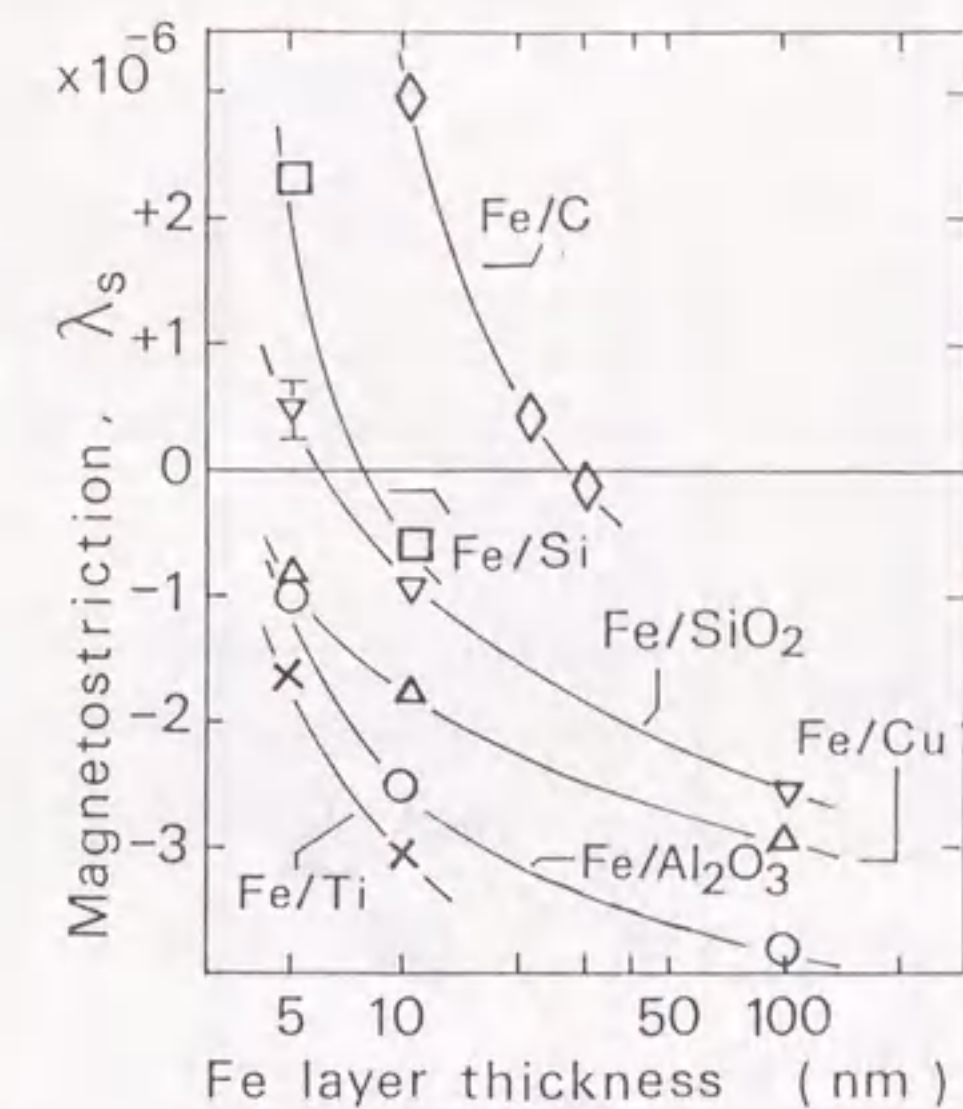


図4-3 磁歪定数のFe層厚依存性

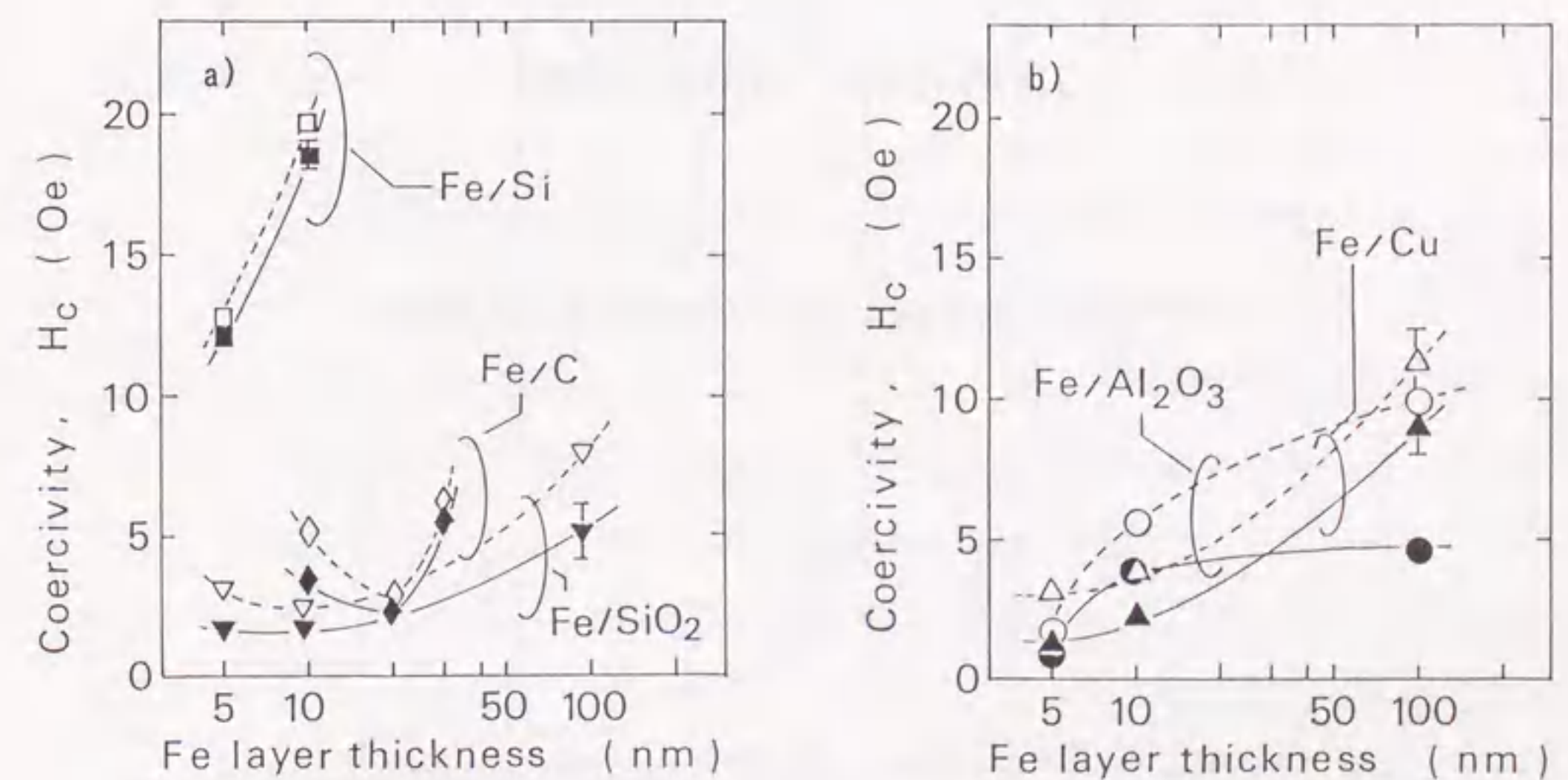


図4-4 保磁力のFe層厚依存性



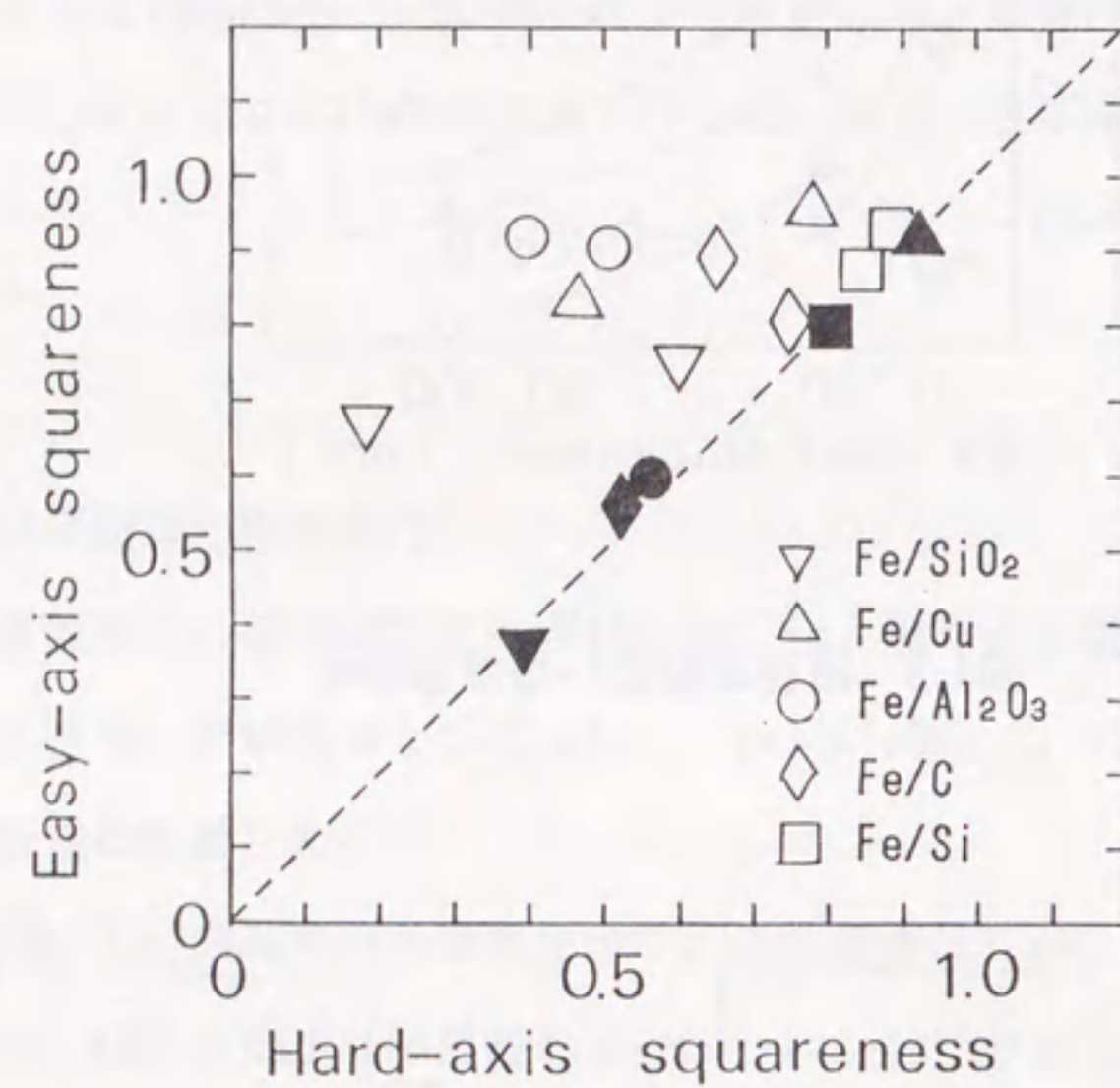


図4-5 容易軸方向および困難軸方向の角型比

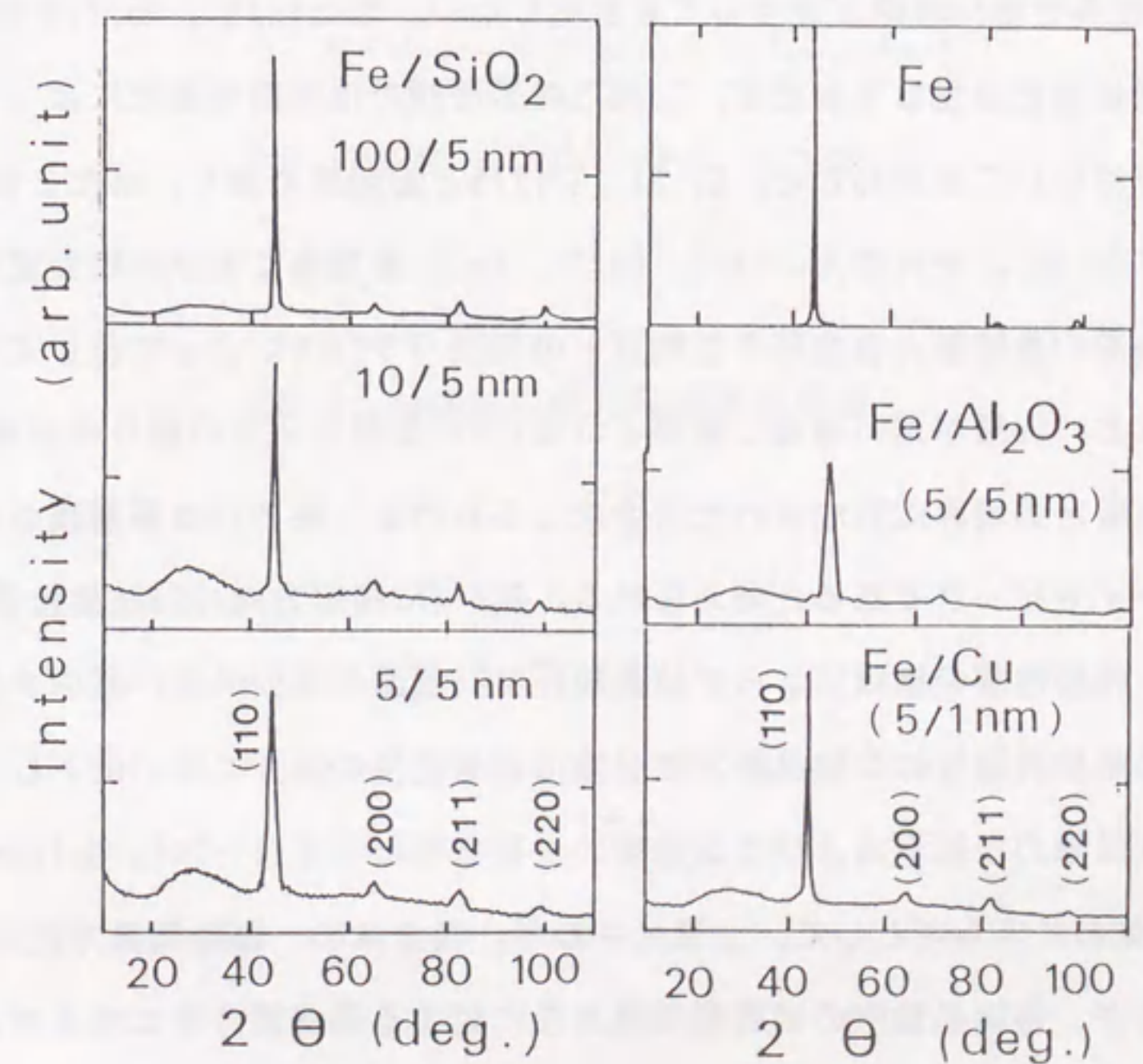
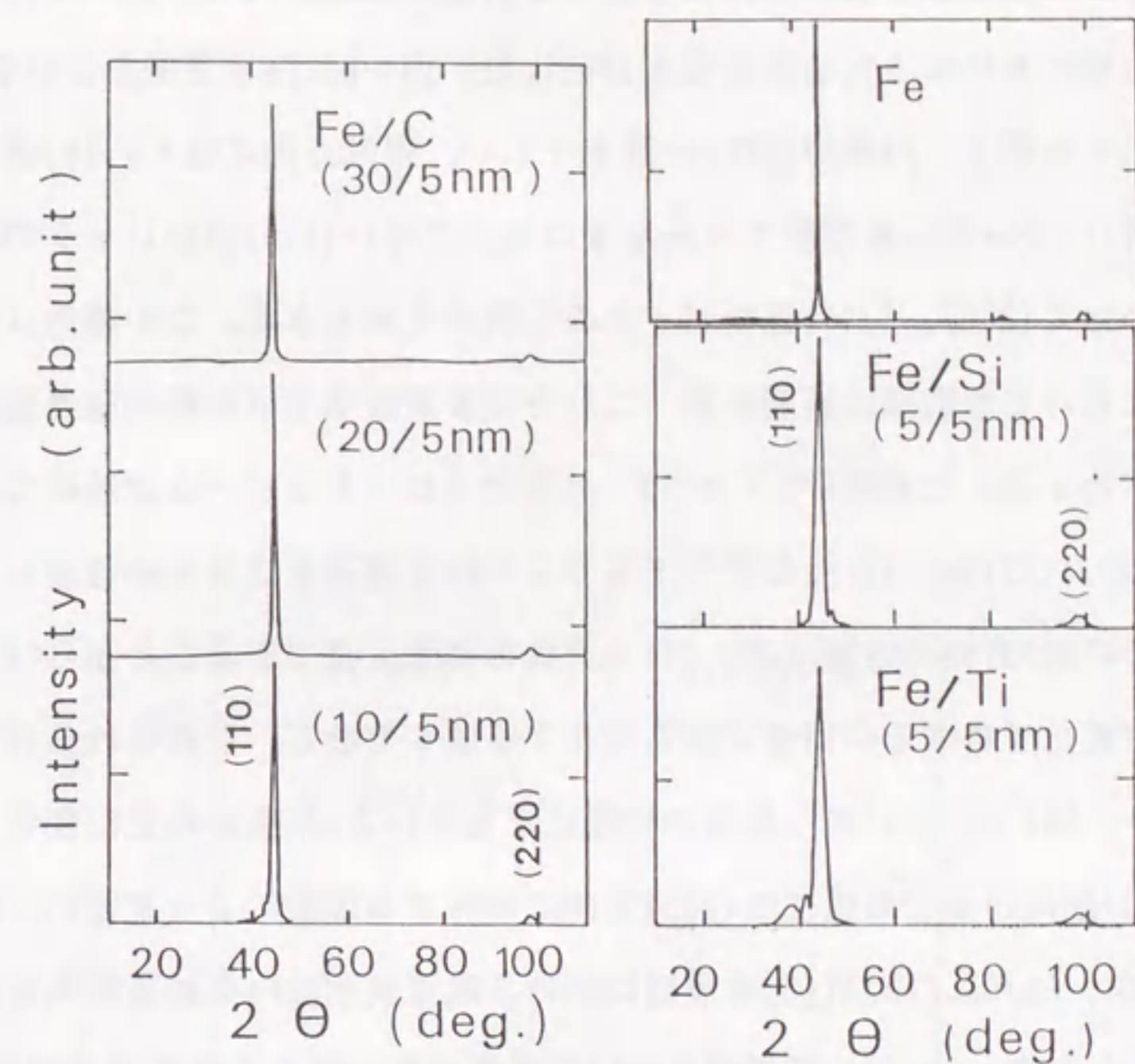


図4-6 XDプロファイル



導磁気異方性などFe単層膜の磁気特性とは異なる特性が観測される。次にこれら磁気特性の変化の原因を明らかにするため結晶性を分析した。図4-6にFe単層膜および各種多層膜のXDプロファイルを示す。Fe単層膜はbcc構造を示し、膜厚方向に強く(110)優先配向している。それに対し、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜ではFe層厚の減少に伴い(110)回折ピークの強度は弱くなりそれに代わって(200), (211)回折ピークの強度が大きくなる。この傾向はFe/Cu, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>多層膜においても同様に観測され、これらの多層膜中ではFe層の結晶配向性が変化していることがわかる。なお図中2θ = 30° 付近のブロードなピークは基板であるCorningガラスおよびSiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などアモルファス結晶構造を成す非磁性層からのものである。bcc Feの<100>方向の磁歪は正、<111>方向の磁歪は負であることから[6,7]、bcc Feは結晶配向が変化すればその磁歪定数も変化するはずである。計算される<110>方向の磁歪は負であり、図4-3においてFe層厚の現象にともないλ<sub>s</sub>が負から正に変化する様子は、負磁歪性の(110)配向から正磁歪性の(200)配向に移行する現象により定性的に説明がつく。従って、Fe/SiO<sub>2</sub>, Fe/Cu, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>多層膜における磁歪変化はFeの結晶配向性の変化が原因と考えられる。なお、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜において界面状態の変化も磁歪変化に影響を与えていることは第5章で述べる。一方、Fe/C多層膜では(110)と(220)回折ピークのみが現れ、この(110)優先配向性はFe層厚が減少しても変化しない。またFe/Si, Fe/Ti多層膜においても同様に配向性変化は生じておらず、これらの多層膜では配向性変化によって磁歪が変化しているのではないことがわかる。C, Si, TiはFeと固溶系であり、またこれらの合金は正磁歪を示す[8-10]。それゆえ、Fe/C, Fe/Si, Fe/Ti多層膜における磁歪変化はFe/Co多層膜同様、Fe層の負磁歪と合金層の正磁歪との磁歪バランスによって生じているものと考えられる。なお、Fe層が薄い場合に観察される(110)回折ピークの周りの小さなピークはFe層と非磁性層との境界に形成された合金によるものか、あるいは多層膜の人工周期に由来するサテライトピークであると考えられる。図4-7に膜厚方向のFe結晶粒径のFe層厚依存性を示す。非磁性層の種類によらず結晶粒径はFe層厚の減少に伴い減少する。前章で議論したように多結晶磁性体の磁気異方性分散は結晶粒径の減少に伴い低下し、磁気異方性分散の低下は保磁力の低下および比透磁率の上昇をもたらす[11-14]。Hoffmannらは[11,12]、系全体のエネルギーとして、交換エネルギー、膜全体の一軸磁気異方性に対する磁気異方性エネルギー、各結晶粒内の結晶磁気異方性に対する磁気異方性エネルギー、および漏洩磁場による静磁エネルギーを考え、全エネルギーを最小とする膜全体の容易軸方向と各磁気モーメントとの間の角ψの平均値<ψ>を求め、

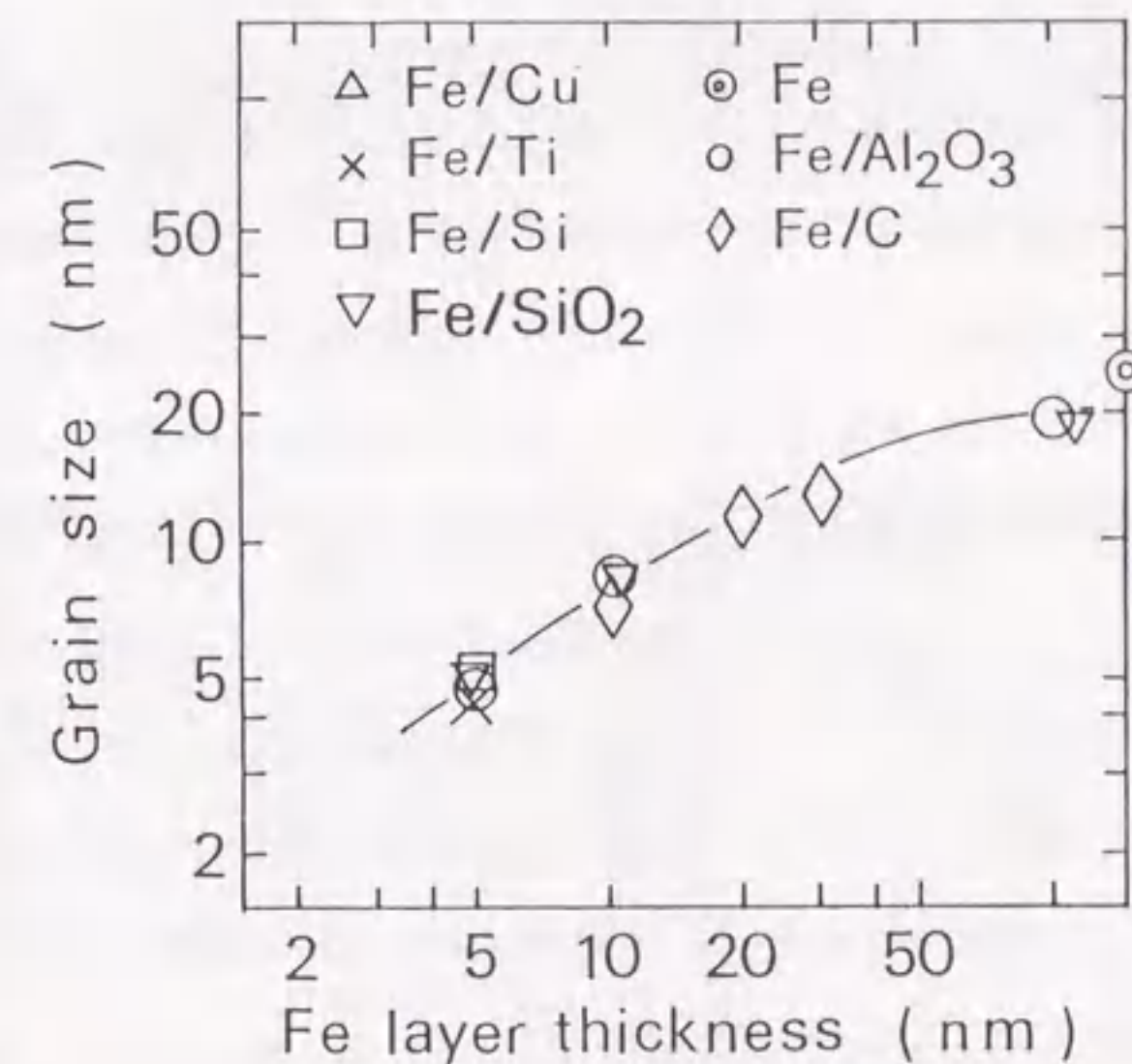


図4-7 Fe結晶粒径のFe層厚依存性



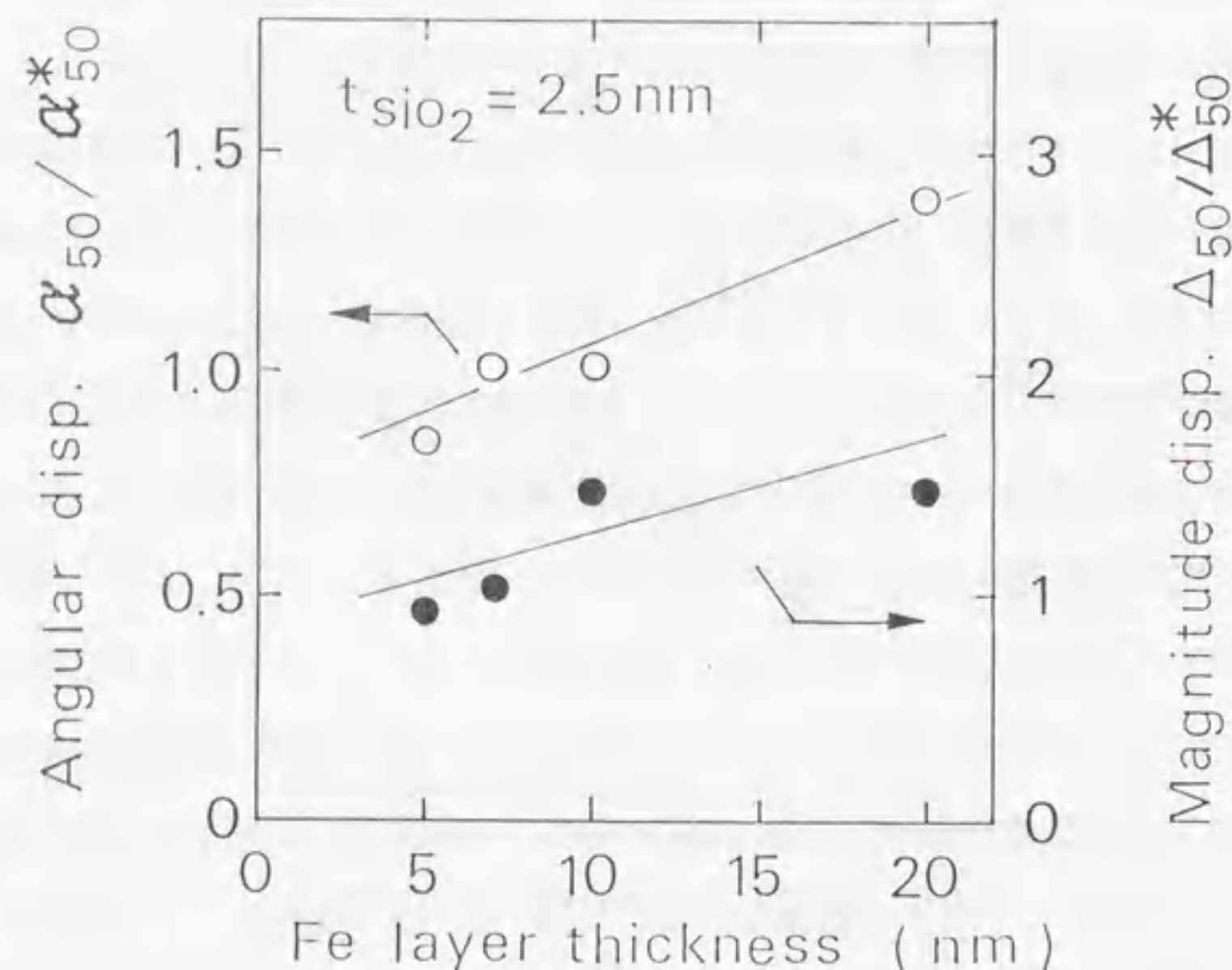


図4-8 異方性分散のFe層厚依存性

$$\langle \psi \rangle \propto D$$

$$\dots (4-5)$$

となる結果を得た。ここでDは磁性体の結晶粒径である。図4-8に磁気異方性の角度分散( $\alpha_{50}$ )および強度分散( $\Delta_{50}$ )のFe層厚依存性を示す。値はFe層厚7 nmでの値( $\alpha_{50}^*$ ,  $\Delta_{50}^*$ )により規格化した。データにばらつきがあり、また測定精度もあまり高くないため定量的な議論はできないが、Fe層厚の減少に伴い $\alpha_{50}$ ,  $\Delta_{50}$ ともに減少し、 $\alpha_{50} \sim \langle \psi \rangle$ と考えると、上記で示した結晶粒径と磁気異方性分散との関係が定性的に現れていることがわかる。なお最近、比透磁率が結晶粒径の6乗に逆比例するという計算結果がHerzerによって報告されている[13,14]。以上、これら多層膜における低保磁力化はFe結晶粒の微細化に伴う磁気異方性分散の低下が原因と考えられる。また磁性体/非磁性体多層膜では磁性層間に静磁結合が働き、これは磁気異方性分散の低下をもたらす[15,16]。従って、磁性層間の静磁結合もこれら多層膜における低保磁力化の原因と考えられる。なお、Fe/Ti多層膜での高い保磁力は高保磁力を持つFe-Ti相互拡散層[17]の形成が原因と考えられる。

上記のFeの配向性および結晶粒の微細化を再度確認するために、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜について断面形態を観察した。図4-9にFe単層膜の断面(a)EDパターンおよび(b)TEM像を、図4-10にFe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜の断面(a)EDパターン、(b)TEM明視野像、および(c)TEM暗視野像を示す。図中両矢印は膜厚方向を意味し、EDパターンとTEM像の方位は一致する。またTEM暗視野像は膜厚方向の(110)回折ビームにより観察した。Fe単層膜はXDで観察された結果と同様、膜厚方向に強く(110)優先配向しており、膜は直径20~50 nmの柱状組織から構成されることがわかる。一方、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜のEDパターンは連続的で濃淡分布のない回折リングとなり、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中でFe層は膜厚方向にほぼランダムに配向していることがわかる。TEM明視野像から各層が数nmから数十nmと非常に薄いにもかかわらず各層連続的で層厚も設定どおりの多層構造が形成されていることがわかる。また、Fe層は2.5 nmと薄いSiO<sub>2</sub>層によっても完全に分断されていることがわかる。TEM暗視野像において白く見える部分は膜厚方向に(110)配向している個々のFe結晶粒に対応し、この図からFe/SiO<sub>2</sub>多層膜中のFe結晶粒の形状を直接観察することができる。図からFe結晶粒は膜厚方向だけでなく、層内においても数nm程度に細かく微細化されていることがよくわかる。以上、ED, TEM分析からもFe/SiO<sub>2</sub>多層膜中でFeは配向性変化および結晶粒の微細化を起こしていることが確認された。

上記の検討によりFeと非磁性体の二種類の層のみにより零磁歪、低保磁力、磁場誘起誘導磁気異方性が実現することから、各層厚の最適化を行うことにより、優れた軟磁気特



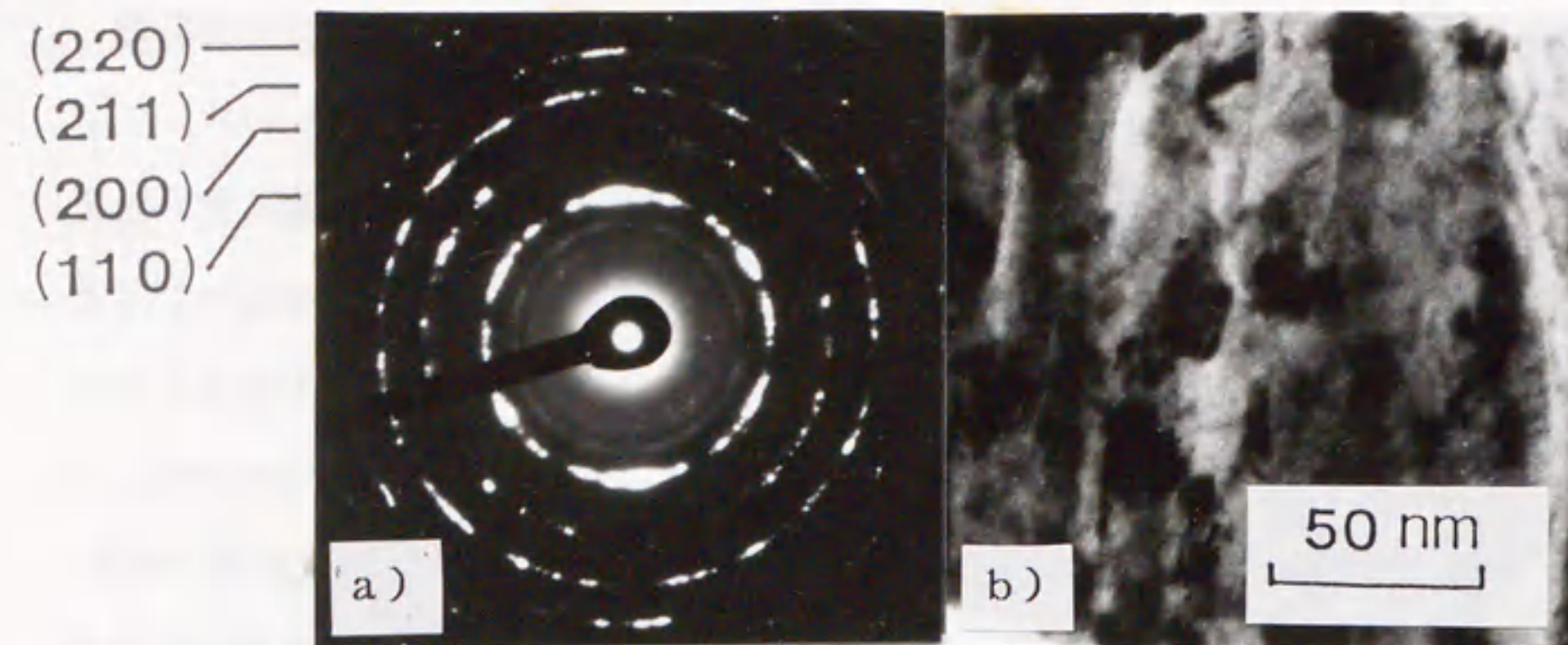


図4-9 Fe単層膜の断面 a)EDパターン, b)TEM明視野像

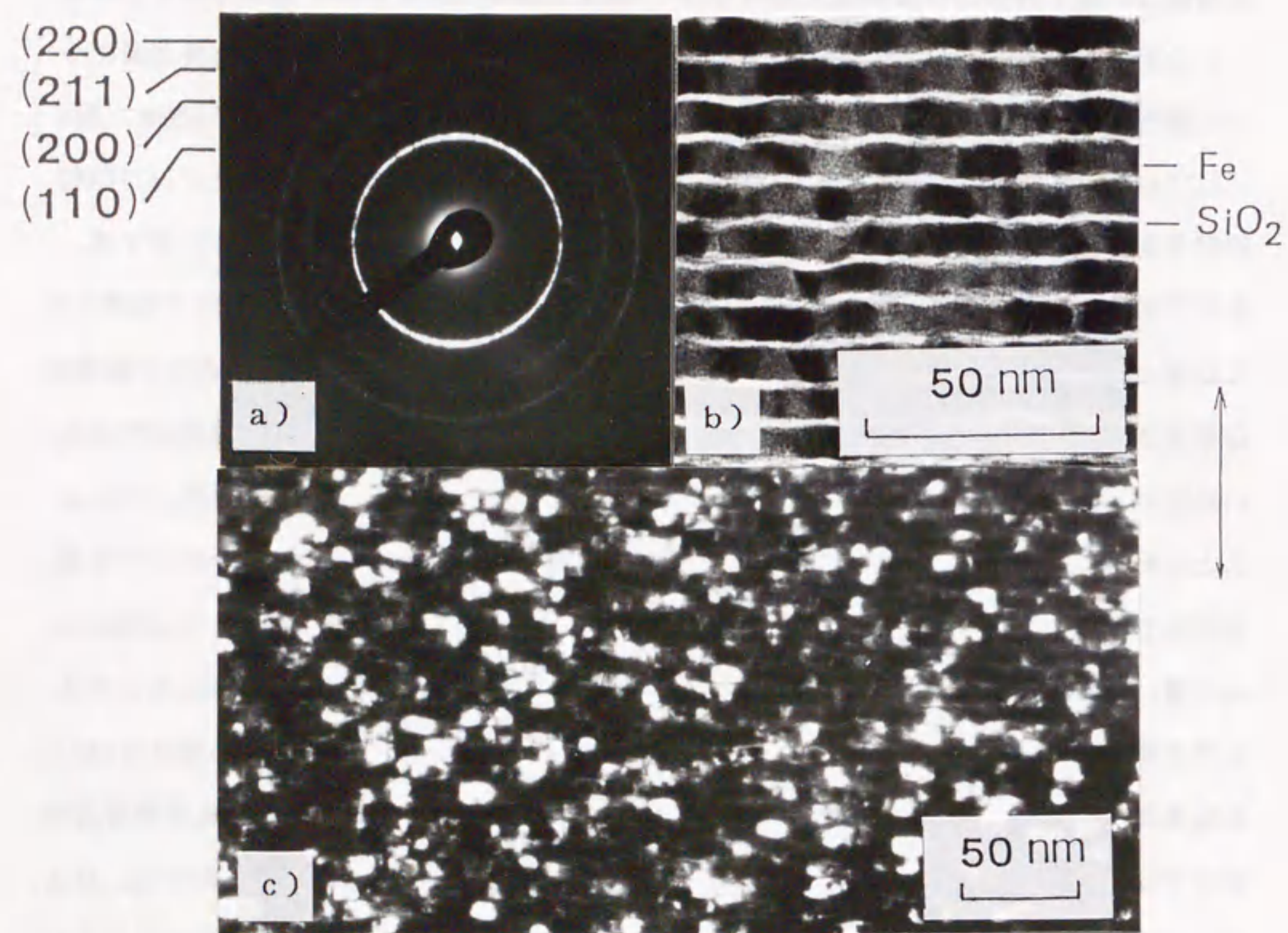


図4-10 Fe/SiO<sub>2</sub>膜の断面 a)EDパターン, b)TEM明視野像, c)TEM暗視野像

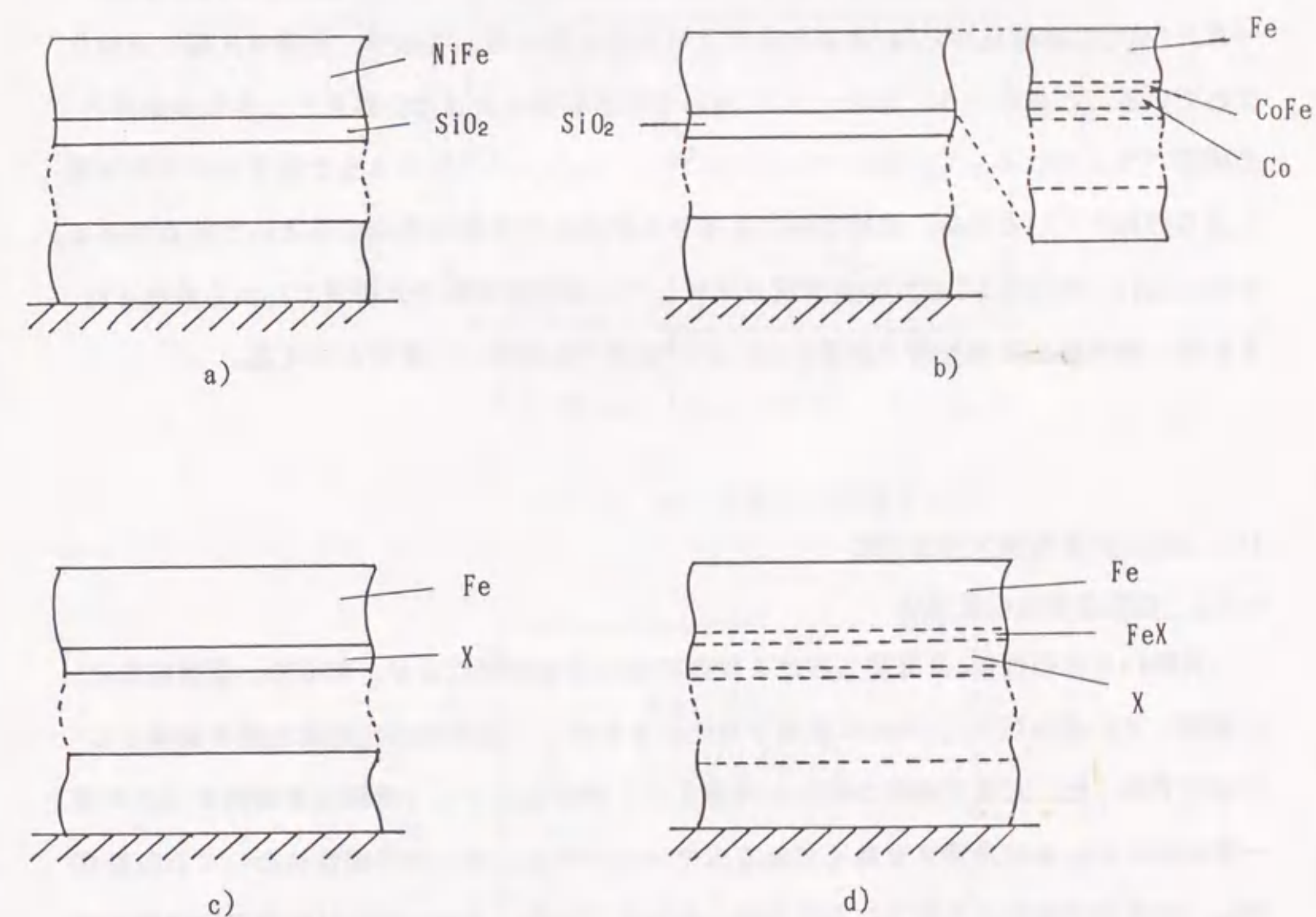


図4-11 Fe系磁性多層膜の断面構造



性を有しかつ材料構成の単純な高飽和磁化軟磁性膜を実現できることが期待される。ここでFe/(非磁性体)多層膜における磁気特性制御の特徴を第2章で検討したNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜、および第3章で検討した(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜と比較して整理してみる。図4-11に(a)NiFe/SiO<sub>2</sub>, (b)(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>, (c), (d)Fe/(非磁性体)多層膜の断面構造を示す。(c)は非磁性体がFeと非固溶系の場合、(d)は固溶系の場合である。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜においてCo層が担っていたFe結晶粒の微細化および磁歪変化の役割を、(c)では非磁性層とFe自体が、一方、(d)では非磁性層とFe-非磁性体相互拡散合金層が担っており、構造が大幅に単純化されていることがわかる。なお、(b)において磁歪制御は大きな正磁歪と大きな負磁歪との磁歪バランスによって行われているのに対し、(c), (d)ではもともと磁歪の小さなFe層により行われているため、膜厚誤差に由来する磁歪設定誤差が低減するという利点がある。さらに(c), (d)ではNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜と比較しても磁性層が単元素物質のFeから構成されるため、膜の組成制御を行う必要がないという点で膜作製上、有利といえる。

#### 4-4 Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

##### 4-4-1 軟磁気特性の最適化

各種Fe/(非磁性体)多層膜における磁気特性の比較検討により、零磁歪、低保磁力化が実現しているFe/SiO<sub>2</sub>, Fe/C多層膜が目的とする新しい高飽和磁化軟磁性膜の候補として有力であった。渦電流損失の抑制を考慮すると非磁性体として絶縁体を選択する方が同一周波数における表皮深さを厚くできる点で有利である。そこで非磁性体としてSiO<sub>2</sub>を採用し、各層厚の最適化を行うことにする。飽和磁化を高くするためには磁歪定数が零付近という条件下でFe層をできるだけ厚く、またFe層を分断できるという条件下でSiO<sub>2</sub>層をできるだけ薄くすることが望ましい。図4-10の断面TEM観察からSiO<sub>2</sub>層2.5 nmにおいてもSiO<sub>2</sub>層はFe層を完全に分断できていることがわかる。そこでSiO<sub>2</sub>層厚を2.5 nmと設定し、Fe層厚の最適化を行う。図4-12にSiO<sub>2</sub>層厚2.5 nmにおける磁歪定数( $\lambda_s$ )のFe層厚依存性を示す。 $\lambda_s$ は図4-3のSiO<sub>2</sub>層厚5 nmの場合とほぼ同様の变化を示す。2-3の検討により、歪誘導磁気異方性の影響を抑えるためには、 $\lambda_s$ として $\pm 10^{-6}$ 以下とすることが必要であった。Fe層厚7 nmにおいて $\lambda_s$ は $-2 \sim -5 \times 10^{-7}$ の値を示し、この条件を満たしている。以上からSiO<sub>2</sub>層厚を2.5 nm, Fe層厚を7 nmと決定し、磁気特性の検討を進める。

軟磁性膜を薄膜部品に応用する場合、その汎用性を考えるとできるだけ広い膜厚範囲

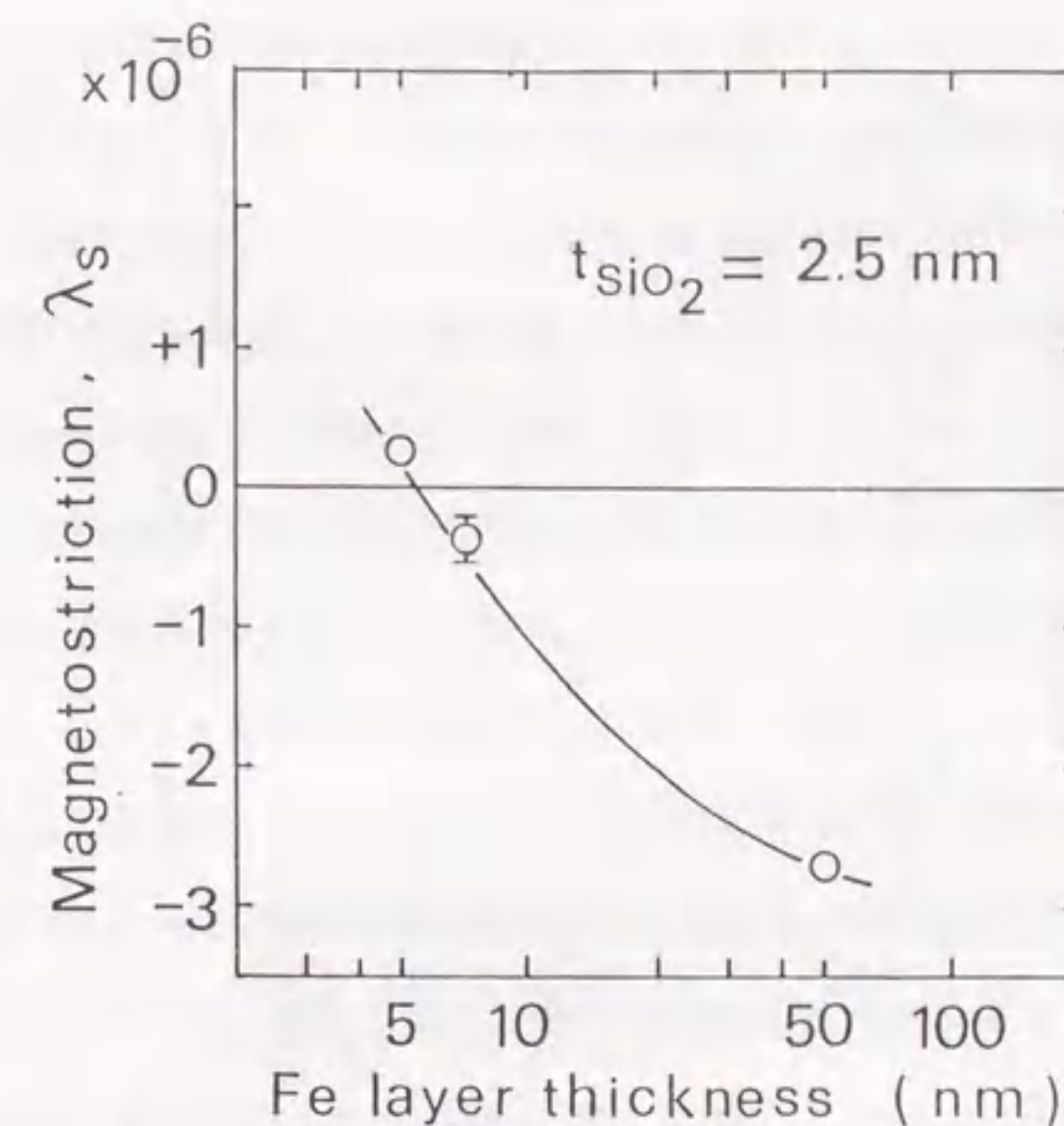


図4-12 磁歪定数のFe層厚依存性

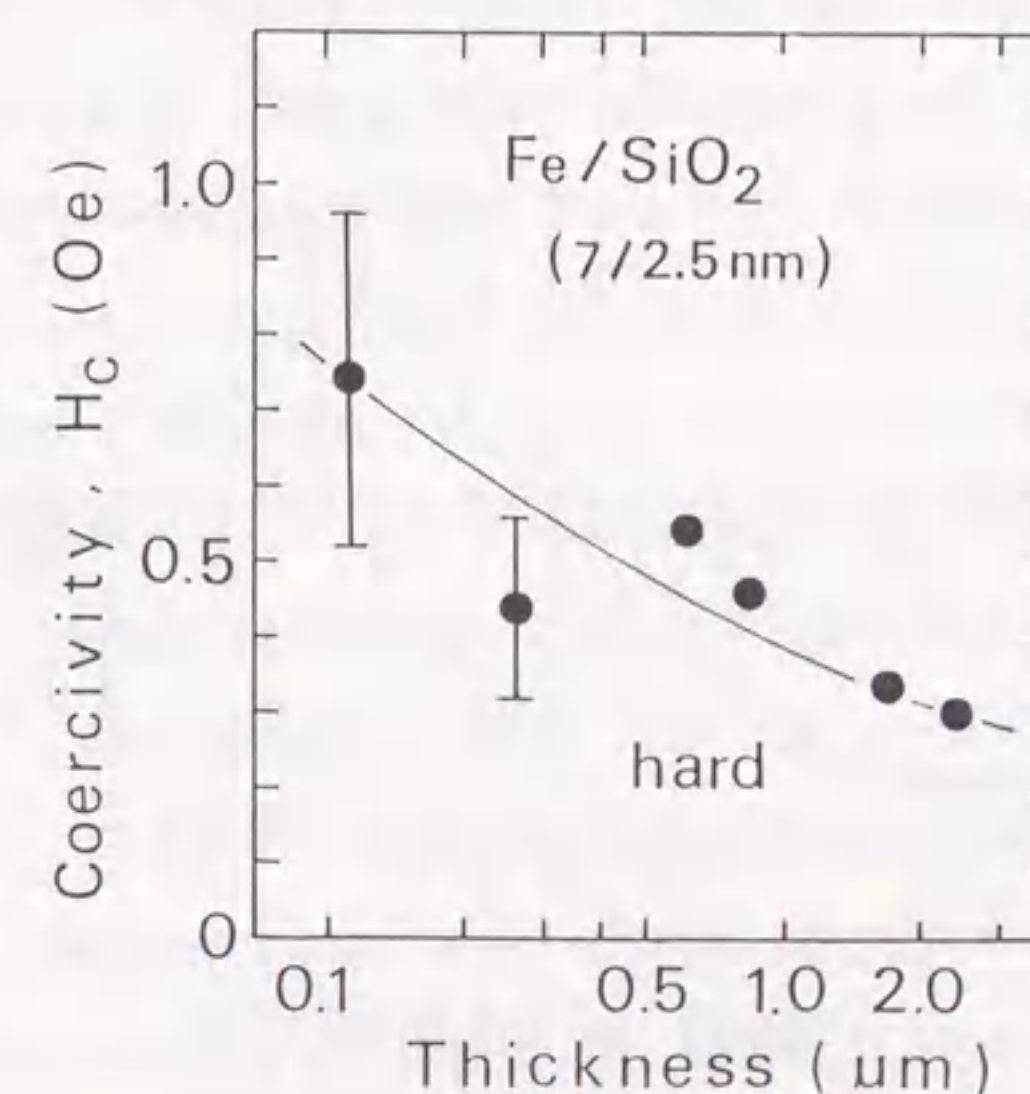


図4-13 保磁力の総膜厚依存性



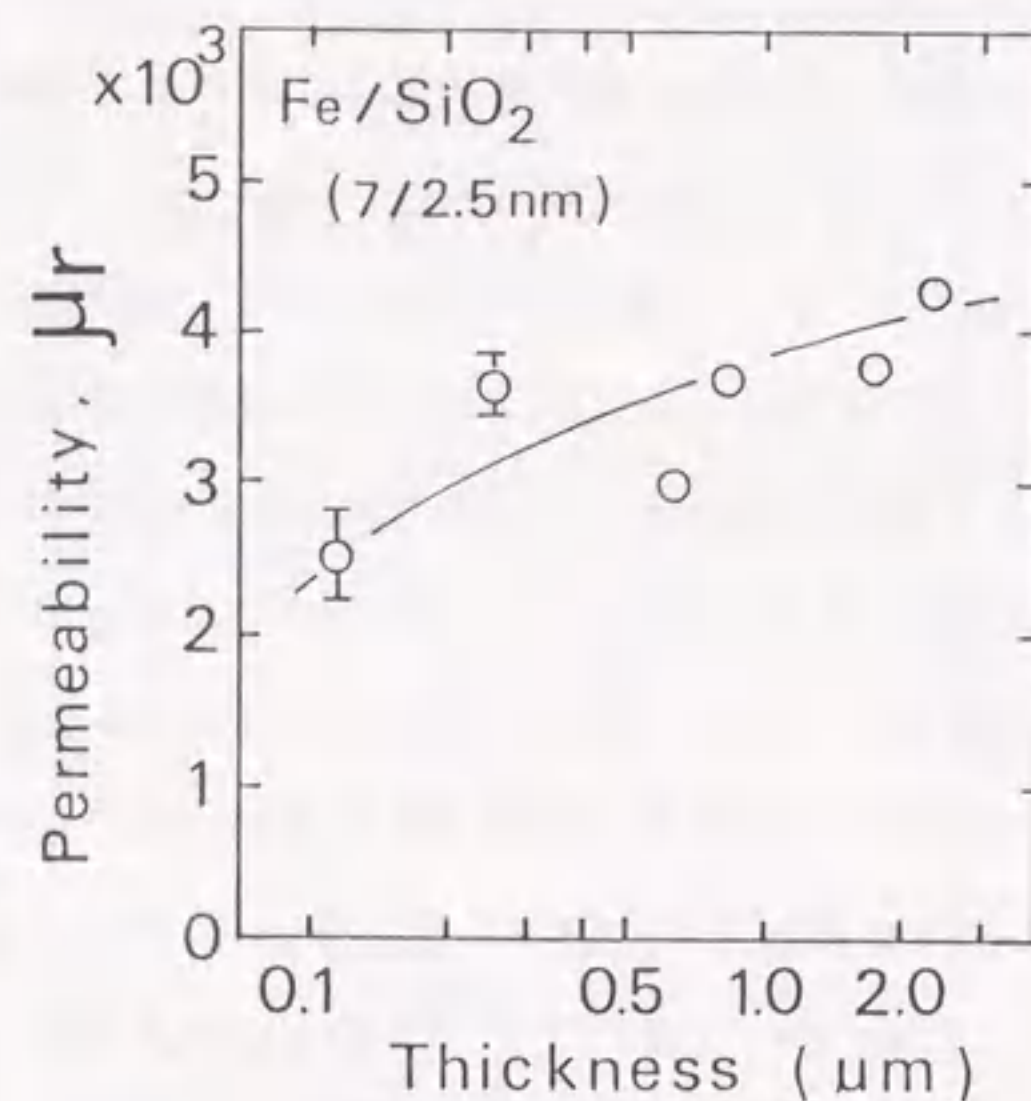


図4-14 比透磁率の総膜厚依存性

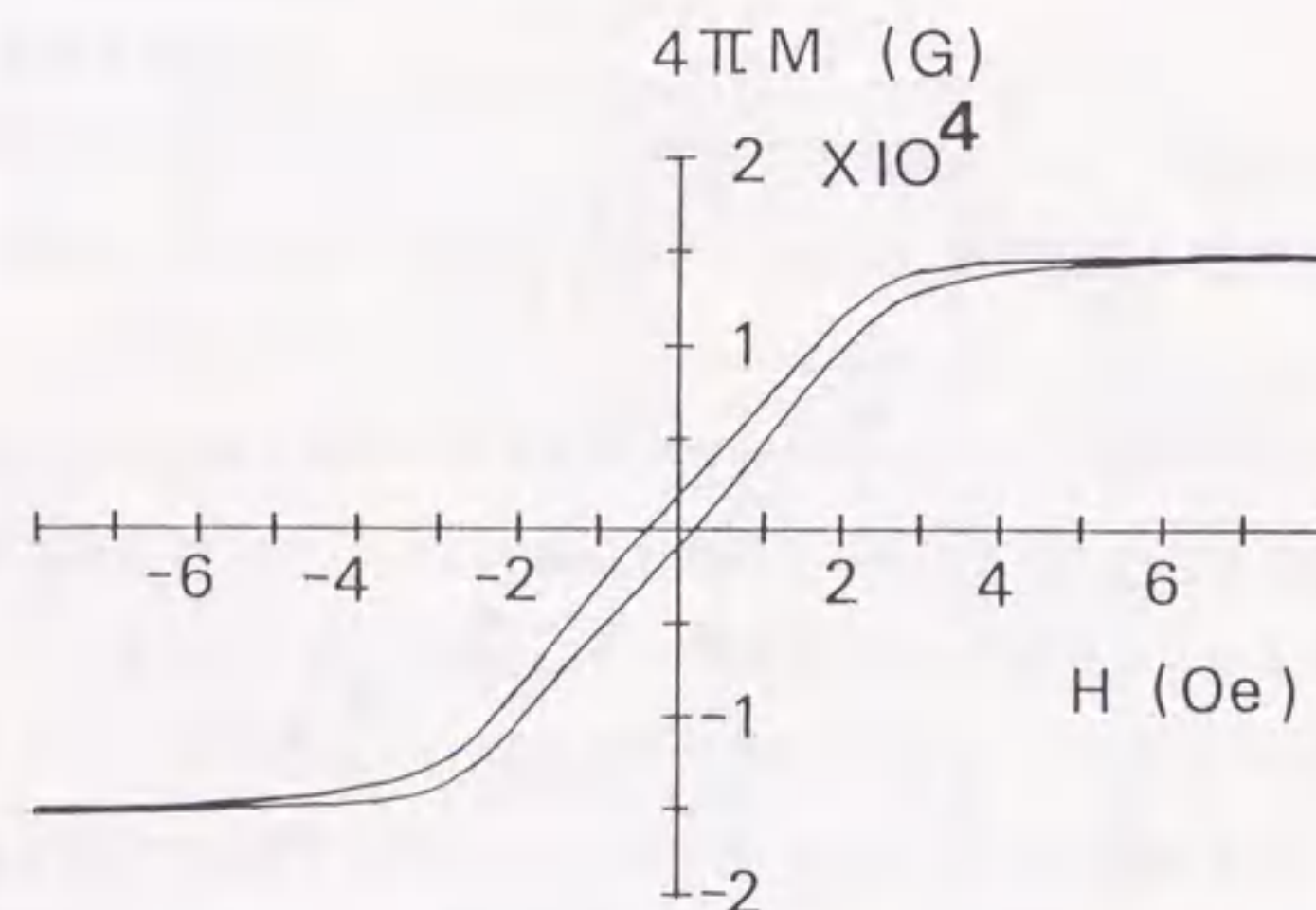


図4-15 Fe/SiO<sub>2</sub>膜のM-H特性

で優れた軟磁気特性を示すことが必要である。図4-13に保磁力( $H_c$ )、図4-14に比透磁率( $\mu_r$ )のFe層厚依存性を示す。 $H_c$ はFe層厚の増加に伴い低下し、サブミクロン領域で1 Oe以下、2  $\mu\text{m}$ 以上では0.3 Oeとなる。 $\mu_r$ は $H_c$ の変化に対応してFe層厚の増加に伴い増加し、Fe層厚サブミクロン領域で3000、2.5  $\mu\text{m}$ では4300の優れた軟磁気特性が実現した。なお、 $\mu_r$ は1~50 MHzの範囲で行ったがこの測定範囲で周波数依存性は見られなかった。図4-15にFe/SiO<sub>2</sub> (7/2.5 nm)多層膜のM-H特性を示す。保磁力は0.3 Oe、飽和磁化( $4\pi M_s$ )は15.5 kGであり、この飽和磁化は21.5 kGの $4\pi M_s$ を有すFe層7 nmと非磁性体SiO<sub>2</sub>層2.5 nmとの単純体積比によって得られる値と一致する。M-H特性から異方性磁場( $H_k$ )は3 Oe程度であることがわかり、また $4\pi M_s/H_k$ から静的比透磁率は5000程度であることが見積られる。

軟磁性膜を部品応用する場合、その熱安定性が問題となる。薄膜磁気ヘッドの場合ヘッド形成プロセスおよびヘッドの信頼性の点から、少なくとも200℃以下で安定であることが要求される[18]。そこでFe/SiO<sub>2</sub> (7/2.5 nm)膜の磁気特性に及ぼすアニールの効果について調べた。図4-16に $\lambda_s$ のアニール温度依存性を示す。 $\lambda_s$ は200℃前後まではほぼ一定であるが、200℃以上で徐々に負方向にシフトする。これまでの議論および第5章の議論により、Fe/SiO<sub>2</sub>膜における磁歪変化はFe結晶の配向性変化およびFe層とSiO<sub>2</sub>層との界面での混成が原因と考えられる。アニールによりFe層の配向性が負磁歪を示す(110)配向に移行したとも考えられるが、アニール前後で顕著な配向性の変化は観察されなかった。またアニールにより界面でのSiの拡散が進んだとすれば、Fe-Si合金は正磁歪を示すため磁歪定数は正方向へシフトするはずであり、図4-16の負方向へのシフトは説明できない。以上、図4-16の結果については原因は不明である。なお、200℃では3 hr.のアニールによっても磁歪変化が観察されないことから、Fe/SiO<sub>2</sub>膜は200℃までは十分安定な材料であることがわかる。図4-17に $H_c$ の、図4-18に $\mu_r$ のアニール温度依存性を示す。 $H_c$ は250℃以下では0.3 Oeの一定値をとり、250℃以上で急激に増加する。 $\mu_r$ は250℃まで徐々に増加し250℃以上で減少する。250℃アニールにより $\mu_r$ は5000を越える値となった。この $\mu_r$ の値は図4-15から見積った静的な比透磁率の値と一致する。250℃以下の領域ではアニールにより膜内のストレスや欠陥が除去され軟磁気特性が改善したものと考えられる。250℃以上の領域については磁歪変化同様、原因は不明である。

次に非磁性絶縁体との積層化による多層効果を確認するため、磁区構造を観察した。図4-19-a)に薄膜磁気ヘッドコア用パターンにおける磁区構造を示す。図中両矢印は成膜中の印加磁場方向を示す。図から180度磁壁がパターンの端まで伸びた磁区構造を成し、



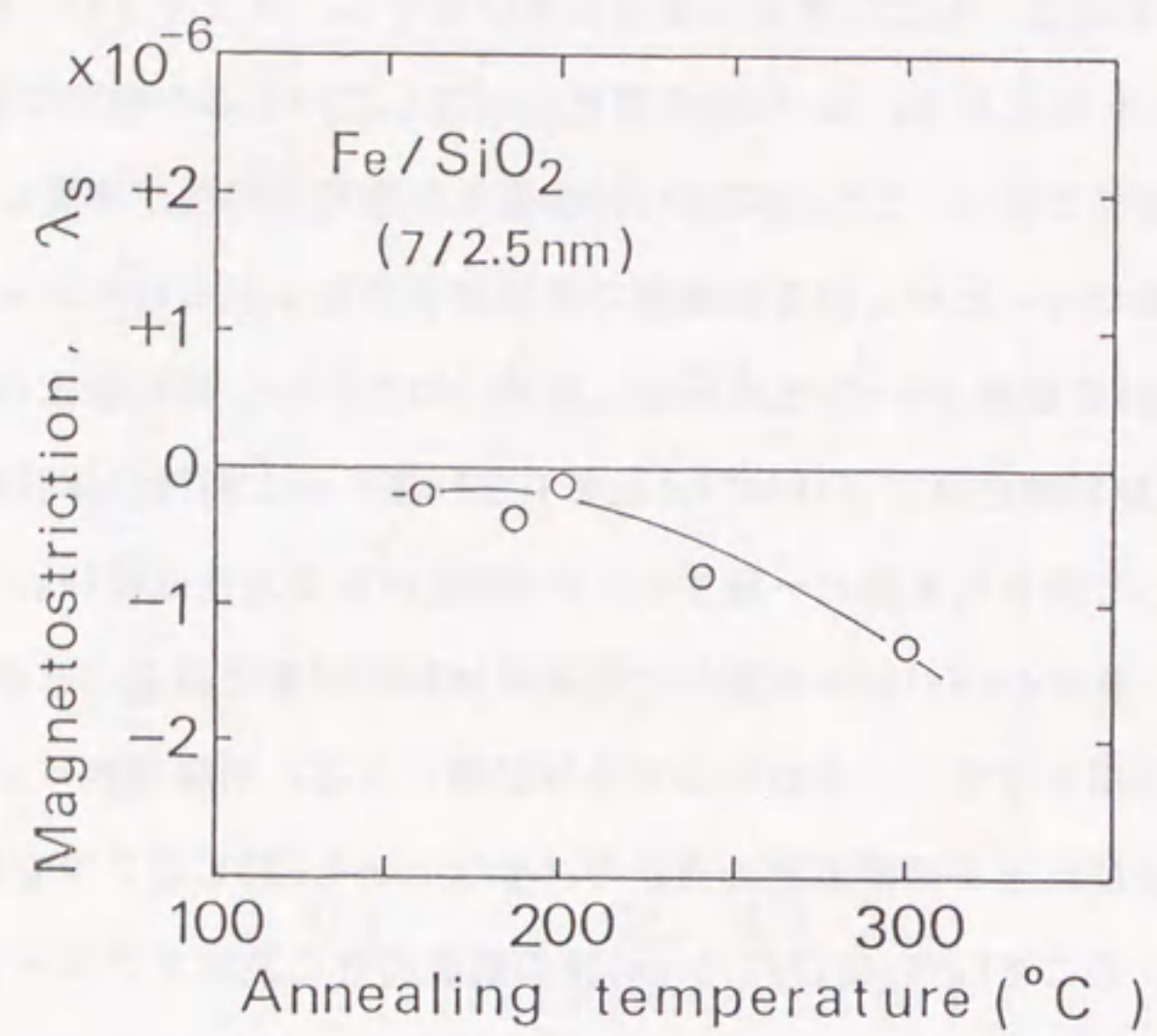


図4-16 磁歪定数のアニール温度依存性

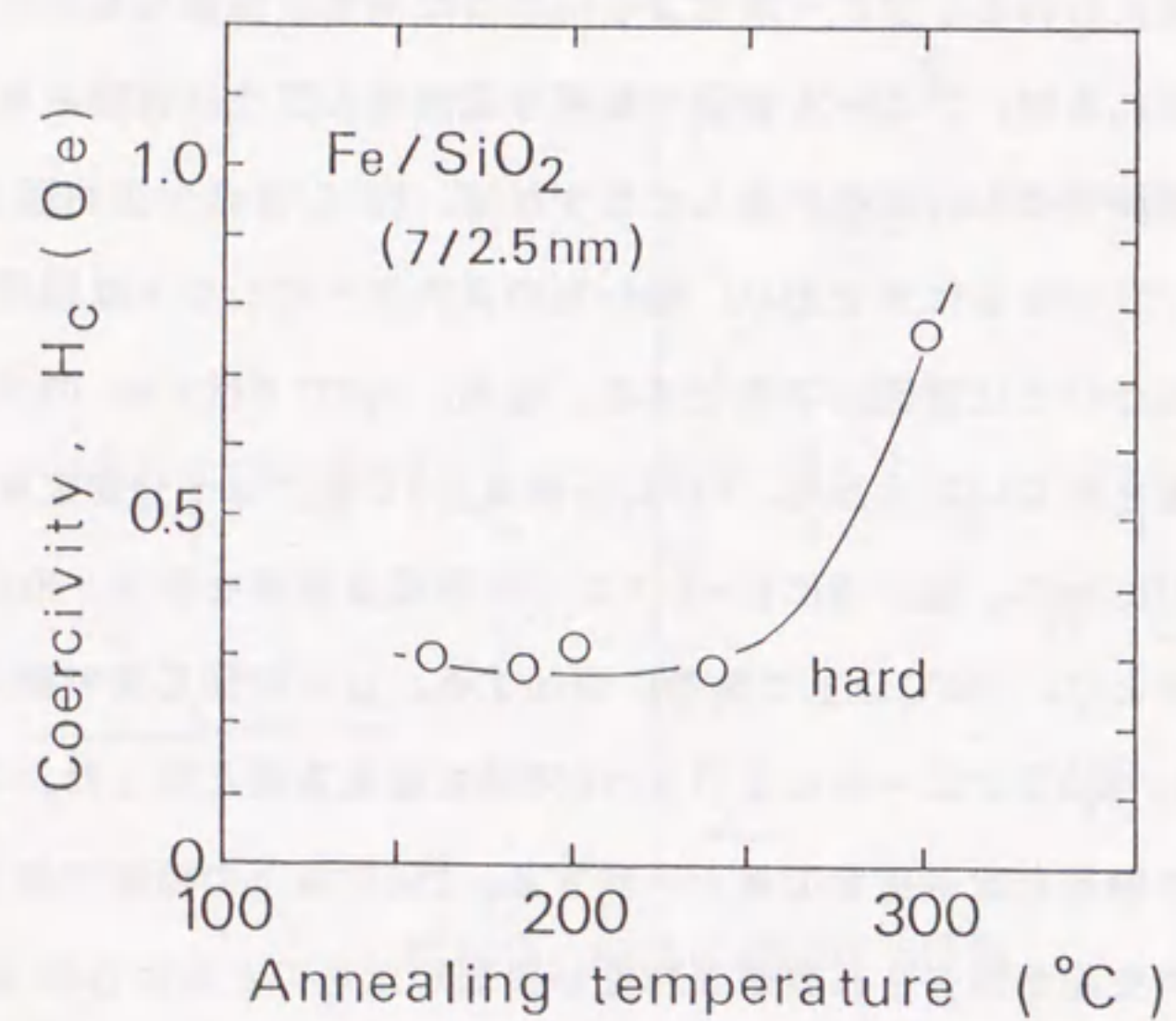


図4-17 保磁力のアニール温度依存性

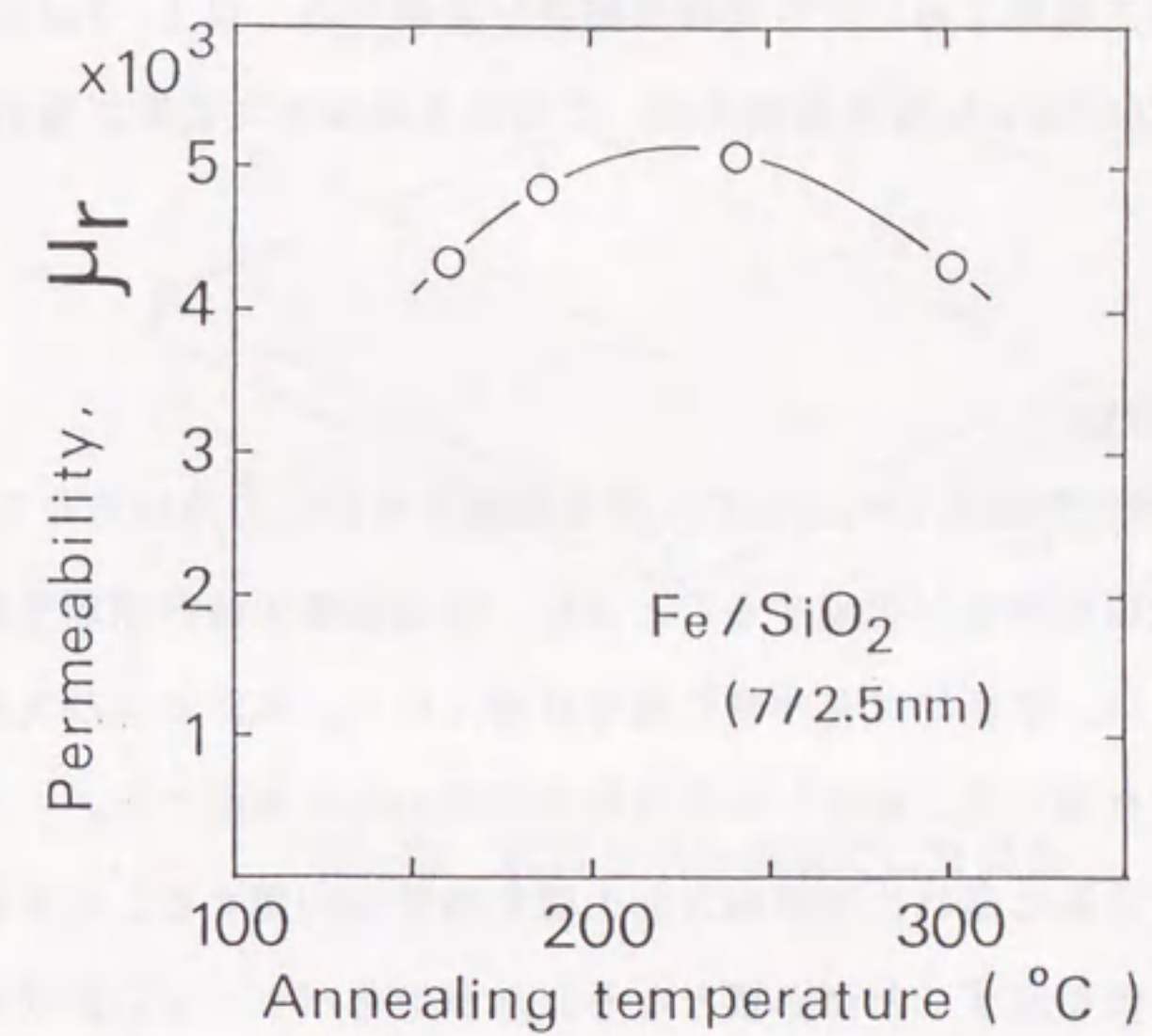


図4-18 比透磁率のアニール温度依存性

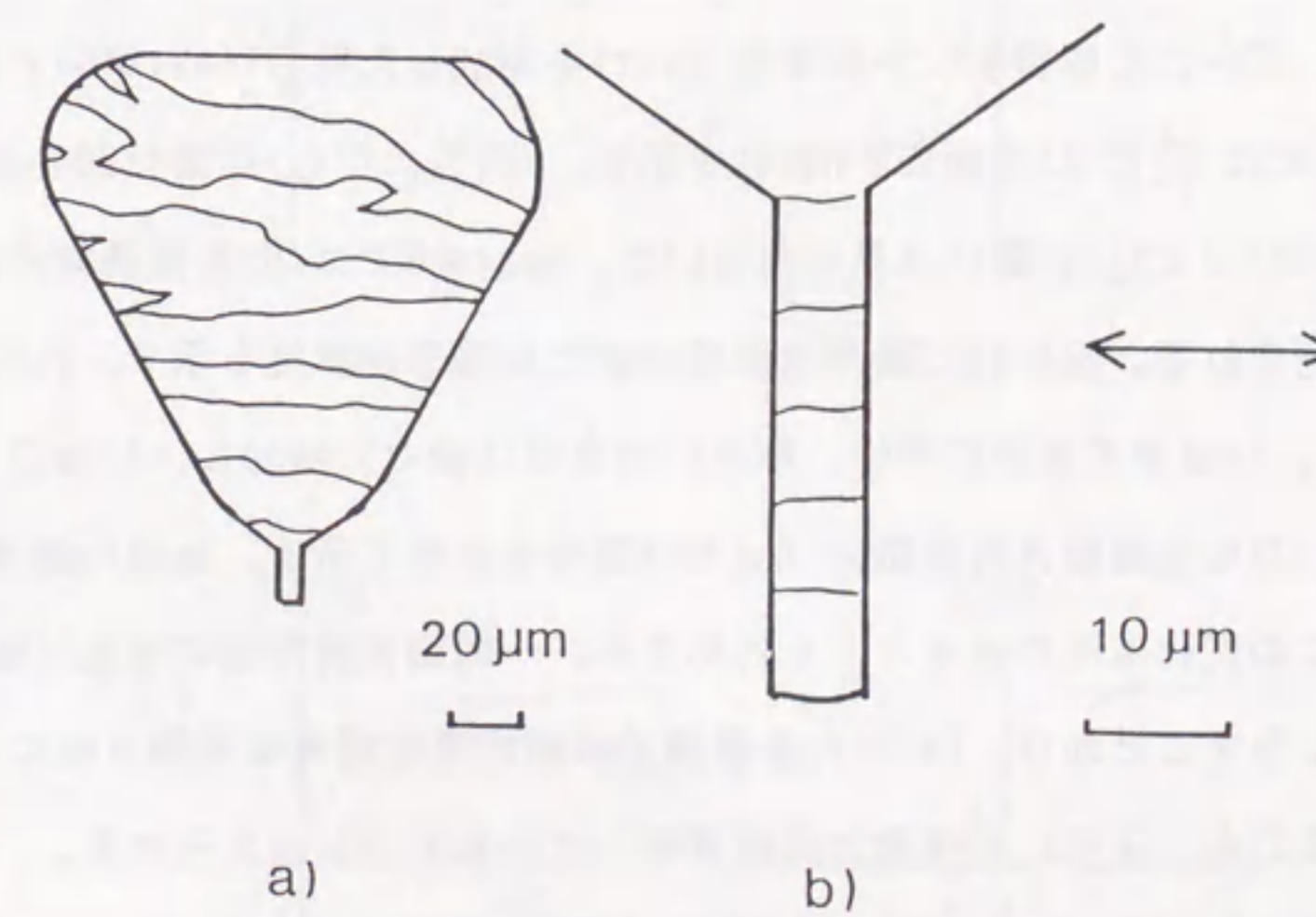


図4-19 Fe/SiO<sub>2</sub>膜の磁区構造



その容易軸は印加磁場方向に一致していることがわかる。図4-19-b)はコア磁極先端部の拡大図である。コア磁極先端部においても同様の結果が観察でき、以上、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜においてもNiFe/SiO<sub>2</sub>, (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜同様、有効磁束路幅拡大効果が確認された。

#### 4-4-2 膜面内の磁気異方性

Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では単元素物質のFeおよび非磁性絶縁体のSiO<sub>2</sub>のみからなる非常に単純な構成により優れた軟磁気特性が実現することから、軟磁性膜の設計原理を提案するための適切なモデルとなり得、学術的にも非常に興味を持たれる。本節および次節では、膜面内および膜厚方向の磁気異方性に着目し軟磁気特性実現の条件を調べる。

軟磁性膜では高周波応答に優れた困難軸方向の磁化特性を利用することが有利であり、そのために一軸磁気異方性を示すことが必要となる。なかでもパターンの形状に依らない安定な容易軸方向が得られ、かつ成膜中に任意の方向に異方性がつけられる点から、磁場誘起誘導磁気異方性を示すことが必須とされる。本節ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気異方性と軟磁気特性との関係、および磁気異方性変化の原因について検討する。

Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜が磁場誘起誘導磁気異方性を示すことは、図4-5の結果により明らかである。図4-21, 図4-22に成膜中に外部磁場(H<sub>ext</sub>)を印加した場合(H<sub>ext</sub>≠0)と印加しない場合(H<sub>ext</sub>=0)での<||>と<⊥>方向のM-H特性を示す。<||>および<⊥>は図4-20のように定義した。H<sub>ext</sub>=0では<||>と<⊥>に違いは見られないが、H<sub>ext</sub>≠0では<||>を容易軸方向とする磁気異方性が観測される。図4-23に異方性磁場(H<sub>k</sub>)のFe層厚依存性を示す。SiO<sub>2</sub>層厚は2.5 nmに設定した。Fe層厚の減少に伴い、H<sub>k</sub>は5 nmまでは徐々に増加し、5 nm以下で急激に減少する。図4-24に困難軸方向保磁力(H<sub>c</sub>)のFe層厚依存性を示す。H<sub>c</sub>はFe層厚5~7 nmで最小となり、この変化はH<sub>k</sub>の変化とよく対応する。一軸磁気異方性の増加は磁気異方性分散の低下をもたらすことから、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では磁場誘起誘導磁気異方性による異方性磁場が増加することにより、低保磁力化が実現しているものと考えられる。

上記のようにFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気異方性はFe層厚に強く依存する。この磁気異方性変化の原因を明らかにするために、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中のFeの結晶性について分析した。磁気異方性をもたらす原因としては膜面内の結晶配向、結晶粒の形状、および膜応力の異方性が考えられる。bcc Feの結晶磁気異方性の容易軸は<100>であることから、成膜中H<sub>ext</sub>によって<100>方向が膜面内で配向し、<||>を容易軸とする一軸磁気異方性が現れることが

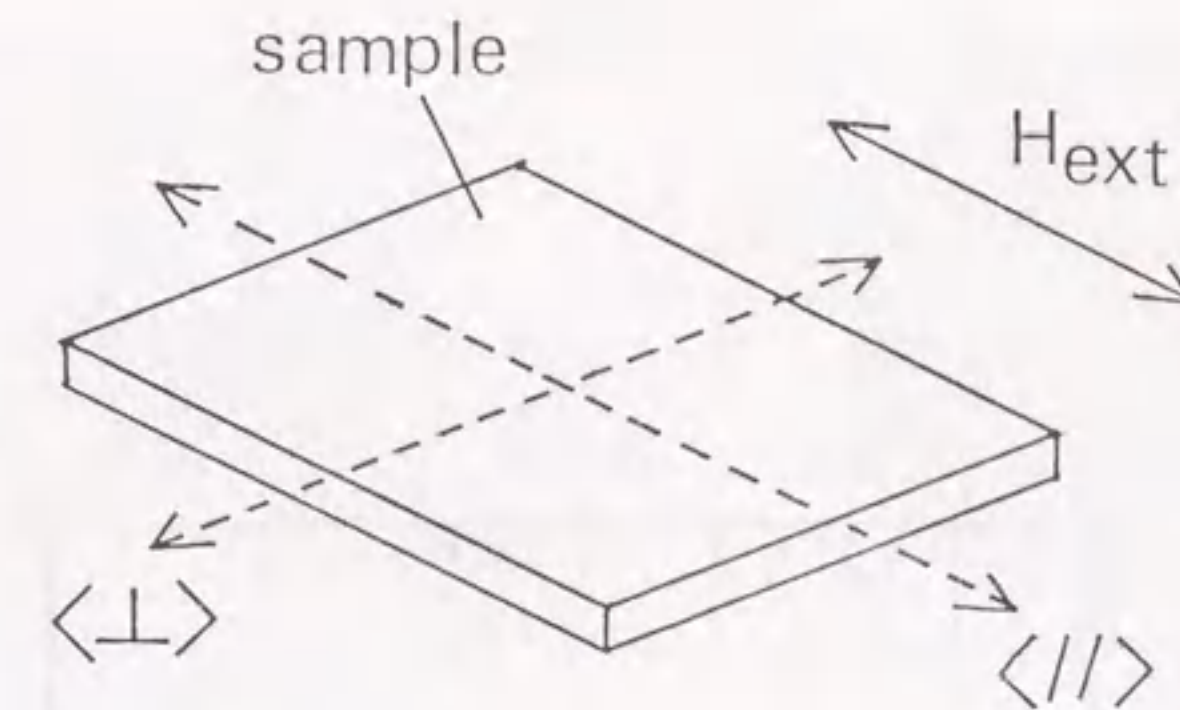


図4-20 試料と印加磁場の位置関係

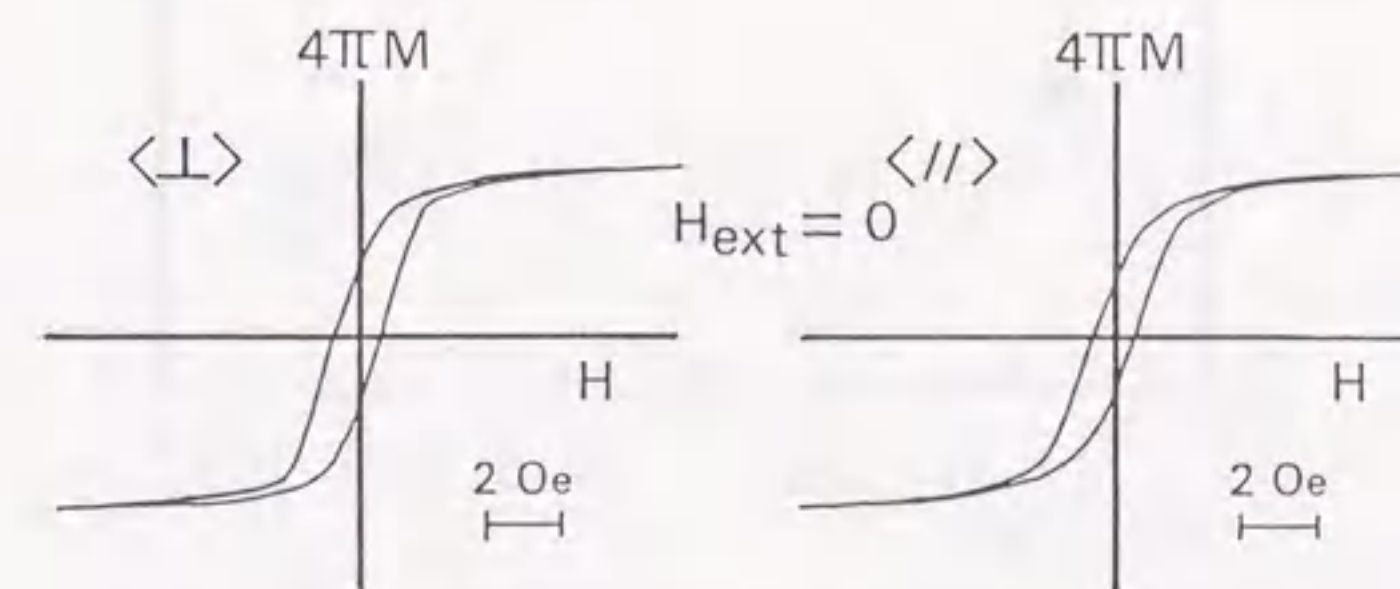


図4-21 M-H特性(H<sub>ext</sub> = 0)

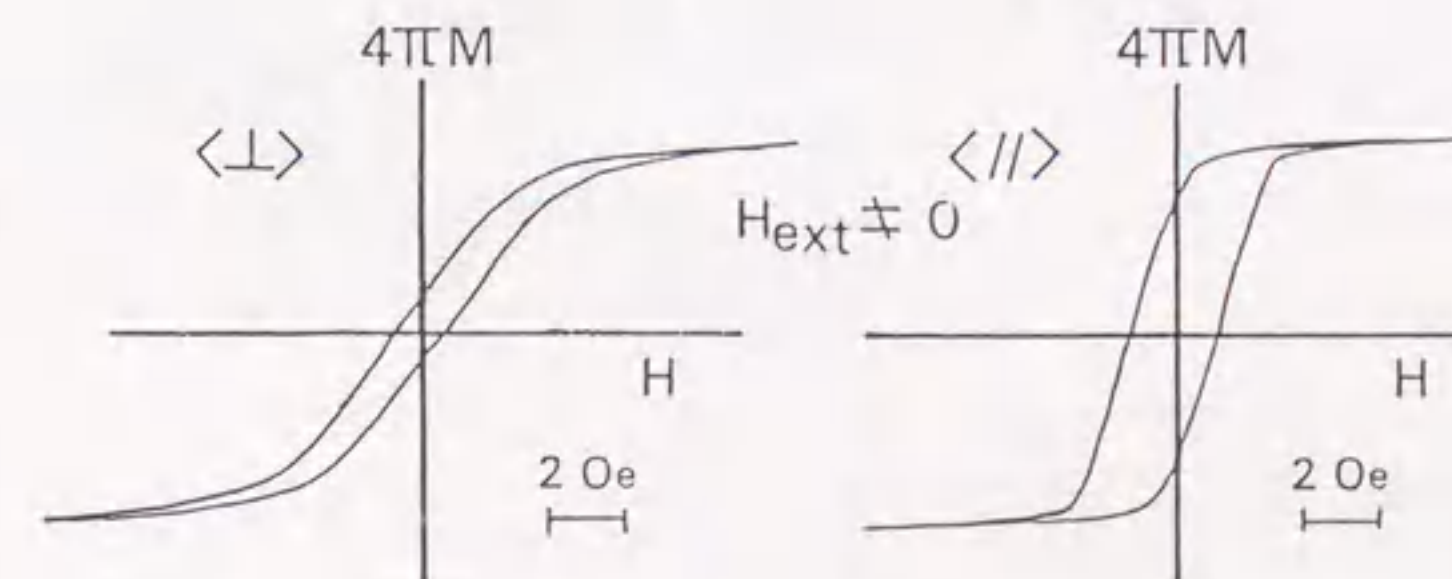


図4-22 M-H特性(H<sub>ext</sub> ≠ 0)



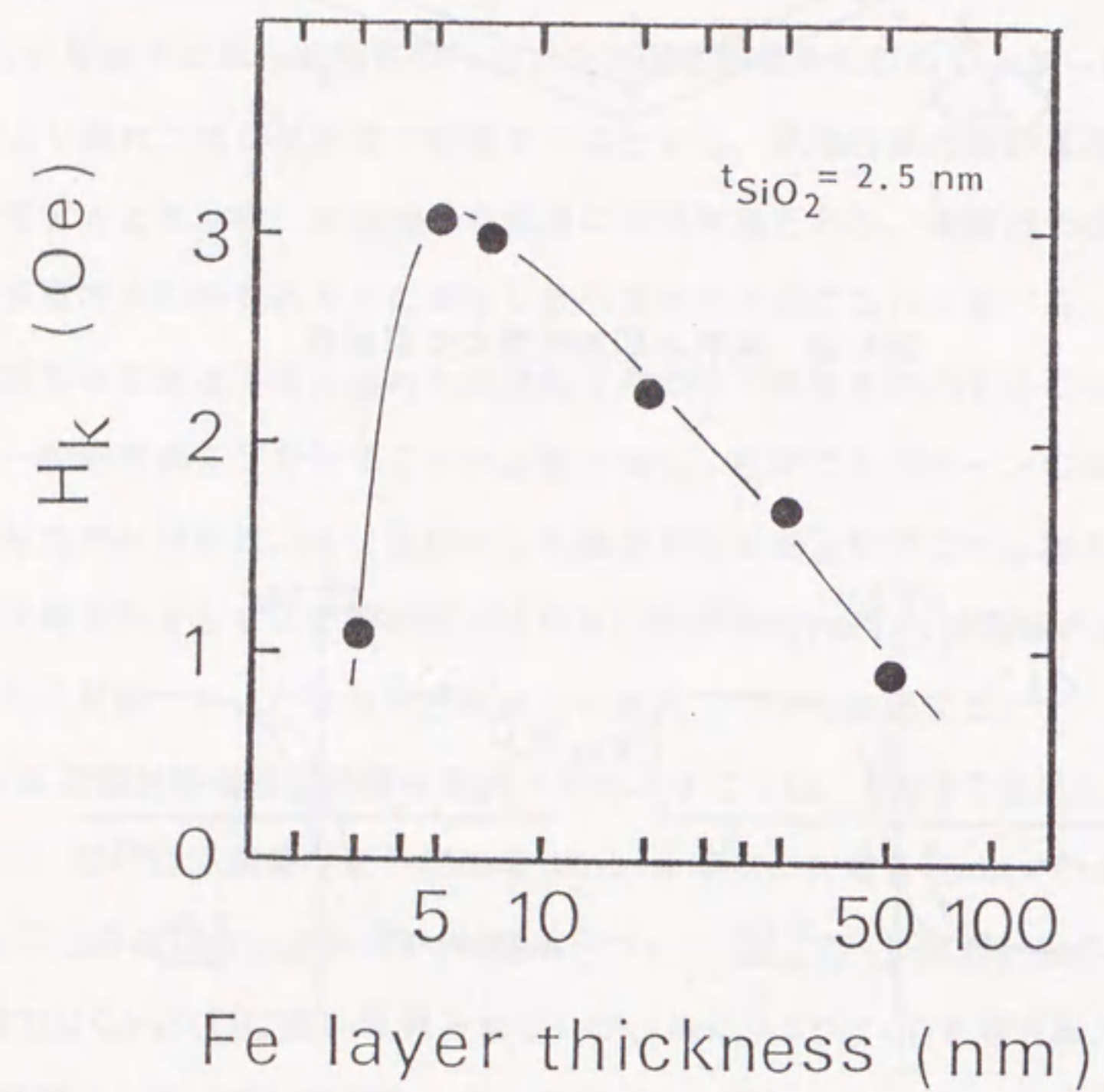


図4-23 異方性磁場のFe層厚依存性

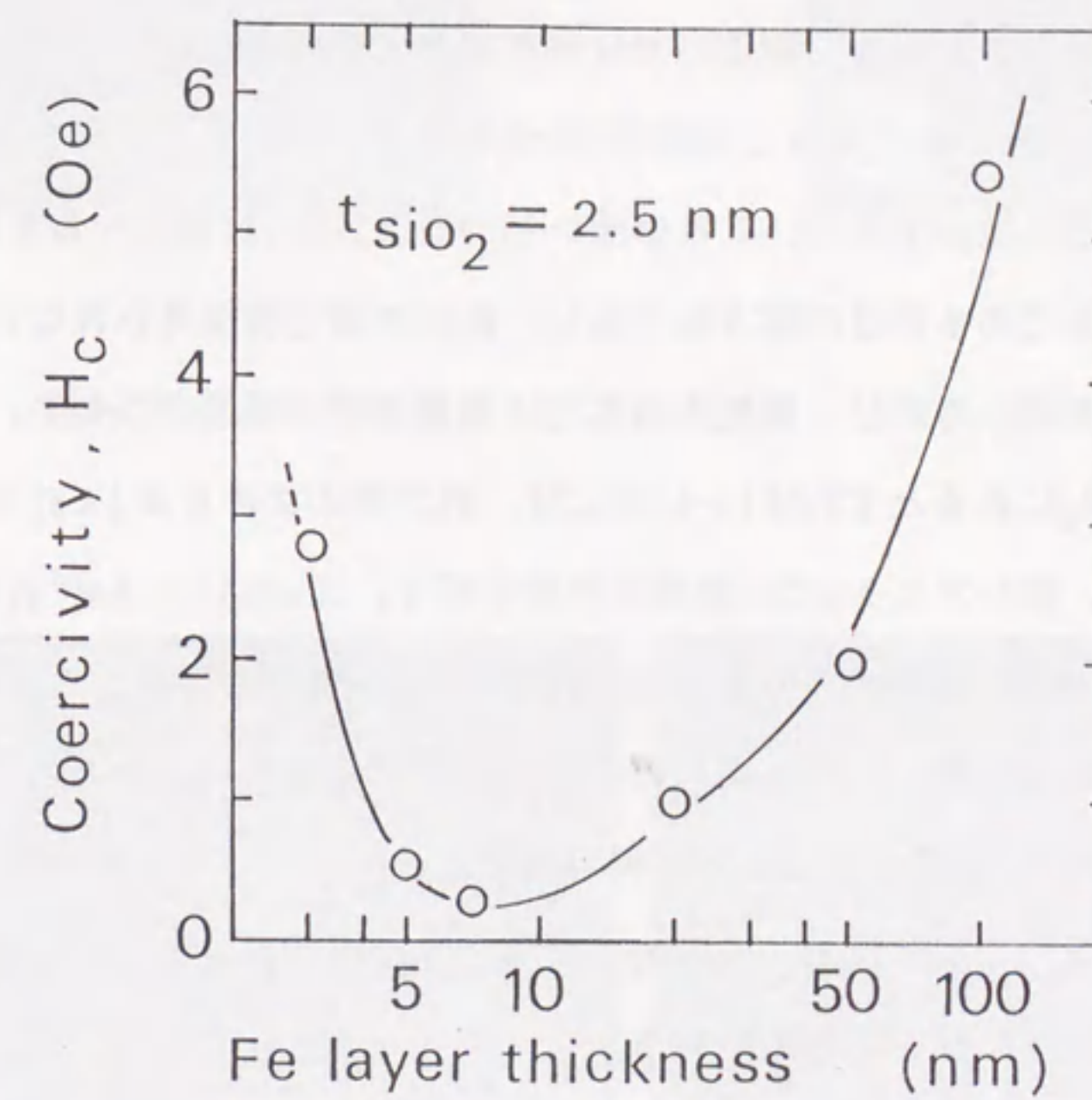


図4-24 保磁力のFe層厚依存性



予想される。また膜面内で結晶粒の形状に異方性があればそれに基づく磁気異方性が現れ得る。さらに逆磁歪効果に由来する歪誘導磁気異方性( $K_H$ )は磁歪定数( $\lambda_s$ )と一軸性の膜応力( $\sigma_f$ )の積

$$K_H = -(3/2) \lambda_s \cdot \sigma_f \quad \dots (4-6)$$

で記述されることから、膜面内で応力に異方性があればそれは磁気異方性をもたらすことになる。図4-25に(a)Hex $\neq 0$ および(b)Hex $=0$ の条件で作製したFe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜の膜面内のEDパターンを示す。両試料ともFeはbcc構造を成す。また連続的で濃淡のない均一な回折リングを示すことから膜面内では結晶配向に異方性はないことがわかる。図4-26にFe(110)回折ビームにより撮った暗視野TEM像を示す。白い部分はFe結晶粒一つ一つに対応する。結晶粒径は数nmであり、これは図4-10の断面TEMの結果と一致する。図より結晶粒の形状は不定形であるがほぼ等方的であり、粒形の異方性は見られない。図4-25では回折リングは真円形をしており、膜面内の応力にも異方性は観測されない。また、もし磁気異方性の原因が $K_H$ にあるとすれば(4-6)式より、異方性の大きさは $|\lambda_s|$ に比例した変化をすることになる。図4-27に $\lambda_s$ のFe層厚依存性を示す。 $\lambda_s$ は5~6 nm付近で零となることから、 $K_H$ に由来する $H_K$ は図4-28のようなFe層厚5~6 nm付近で最小となる依存性を示すはずである。この変化は図4-23に示す実際の $H_K$ の変化と矛盾するものであることから、歪誘導磁気異方性はFe/SiO<sub>2</sub>膜の磁場誘起歪誘導磁気異方性に関与していないことがわかる。以上、膜面内の結晶配向、結晶粒形、膜応力には異方性は観測されず、これらは磁場誘起歪誘導磁気異方性の原因ではないと考えられる。

次にFe層とSiO<sub>2</sub>層との界面状態を分析した。典型的な軟磁性膜であるNiFe合金[19]やCoZrアモルファス合金[20]などの多元系合金では原子対の方向性規則配列により、磁場誘起歪誘導磁気異方性が生ずると考えられている。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の界面ではFeとSiO<sub>2</sub>の反応が考えられ、この部分での方向性規則配列が磁気異方性の原因とも考えられる。図4-29にFe 2p<sub>3/2</sub>, Si 2p, O 1s結合エネルギーの深さプロファイルを示す。試料はFe/SiO<sub>2</sub>(5/5 nm)多層膜を使用し、etching timeは表層であるFe層からの深さに対応する。Fe層とSiO<sub>2</sub>層との界面はetching time 3 min.付近にある。Fe 2p<sub>3/2</sub>結合エネルギーレベルは純Feのレベルに一致し、界面付近で化学シフトは観測されない。界面でFeの状態に変化が観測されないのは、4-4-3に示すFe層が非常に薄い場合でのMössbauer分析の結果と一致する。Si 2pおよびO 1sの結合エネルギーは共に界面で化学シフトを示し、その遷移幅から界面での混成領域は数Å程度であることがわかる。Fe層厚の減少に伴い膜全体に対する界面の割

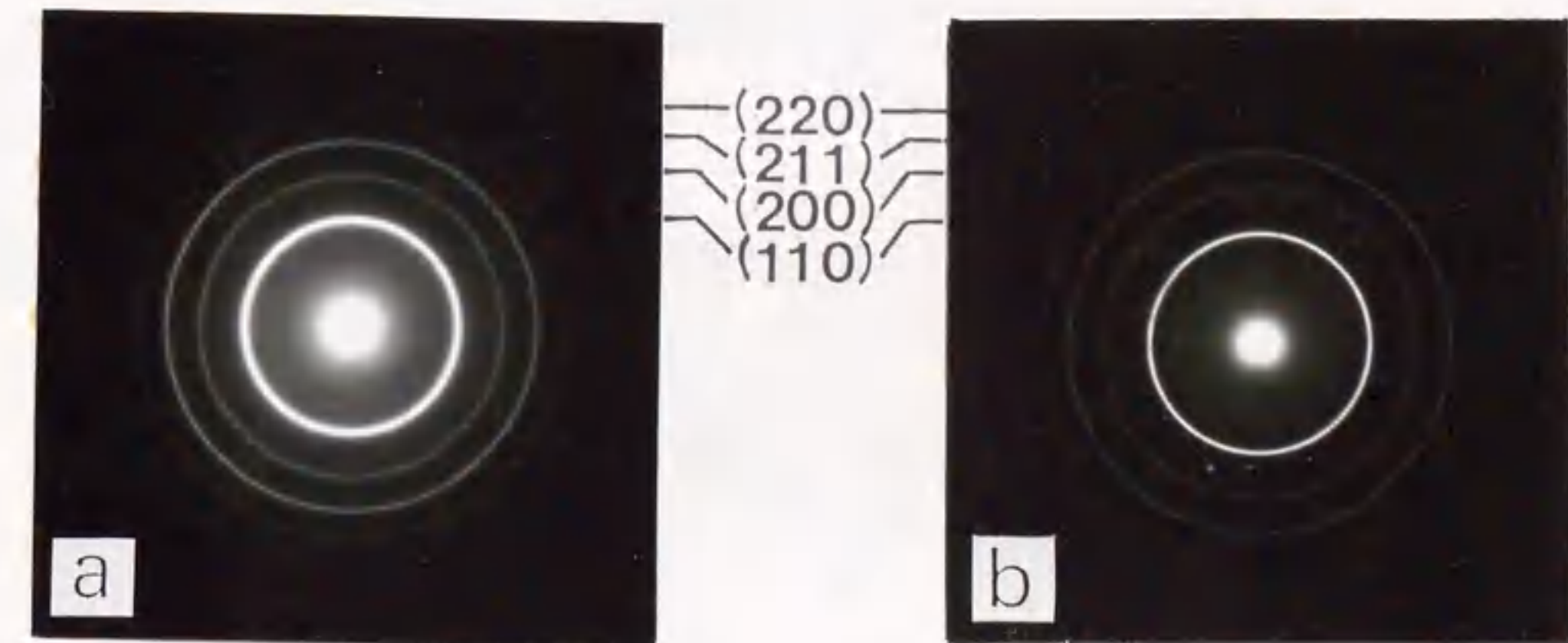


図4-25 Fe/SiO<sub>2</sub>膜膜面のEDパターン a)Hex $\neq 0$  b)Hex $=0$

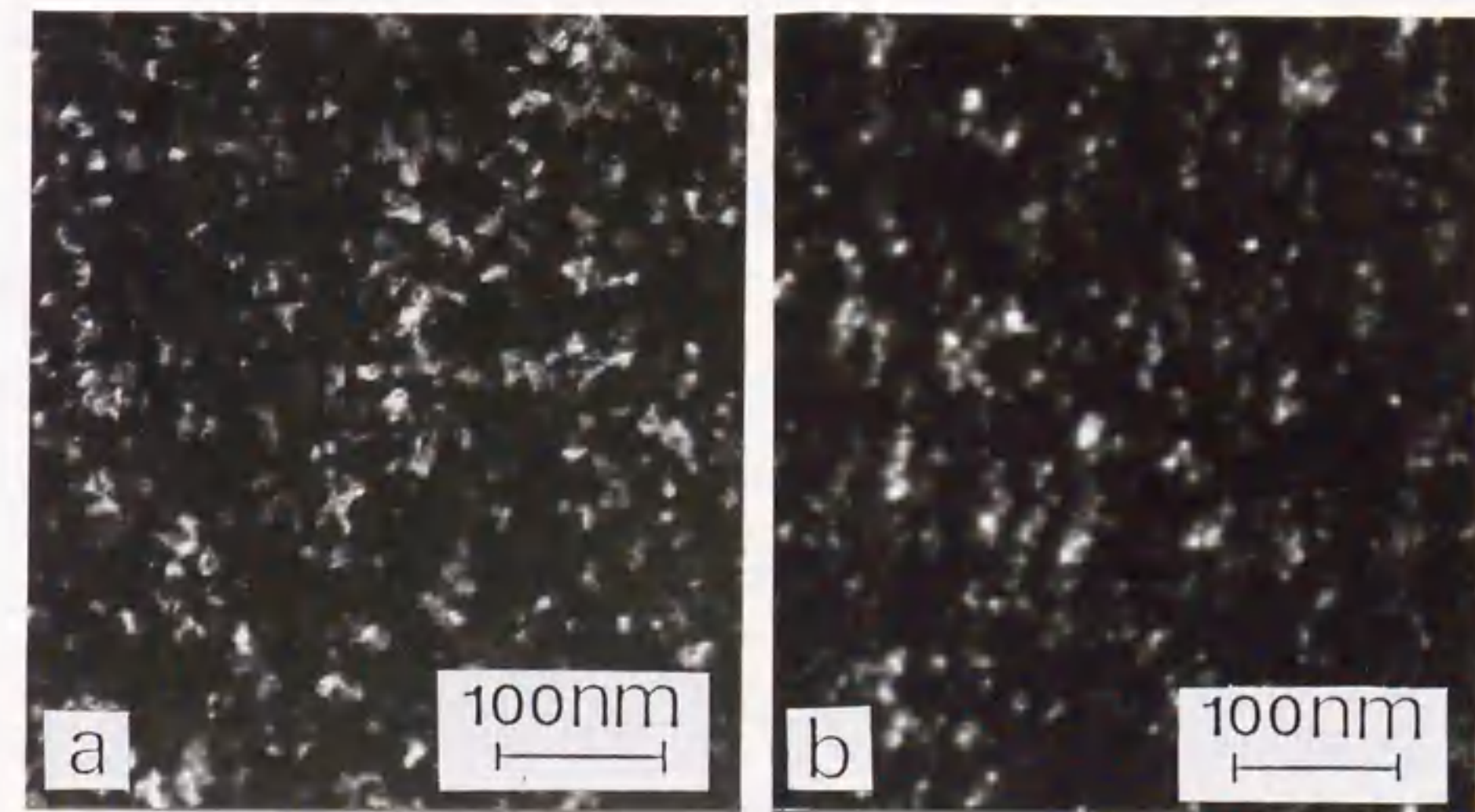


図4-26 Fe/SiO<sub>2</sub>膜膜面のTEM暗視野像 a)Hex $\neq 0$  b)Hex $=0$



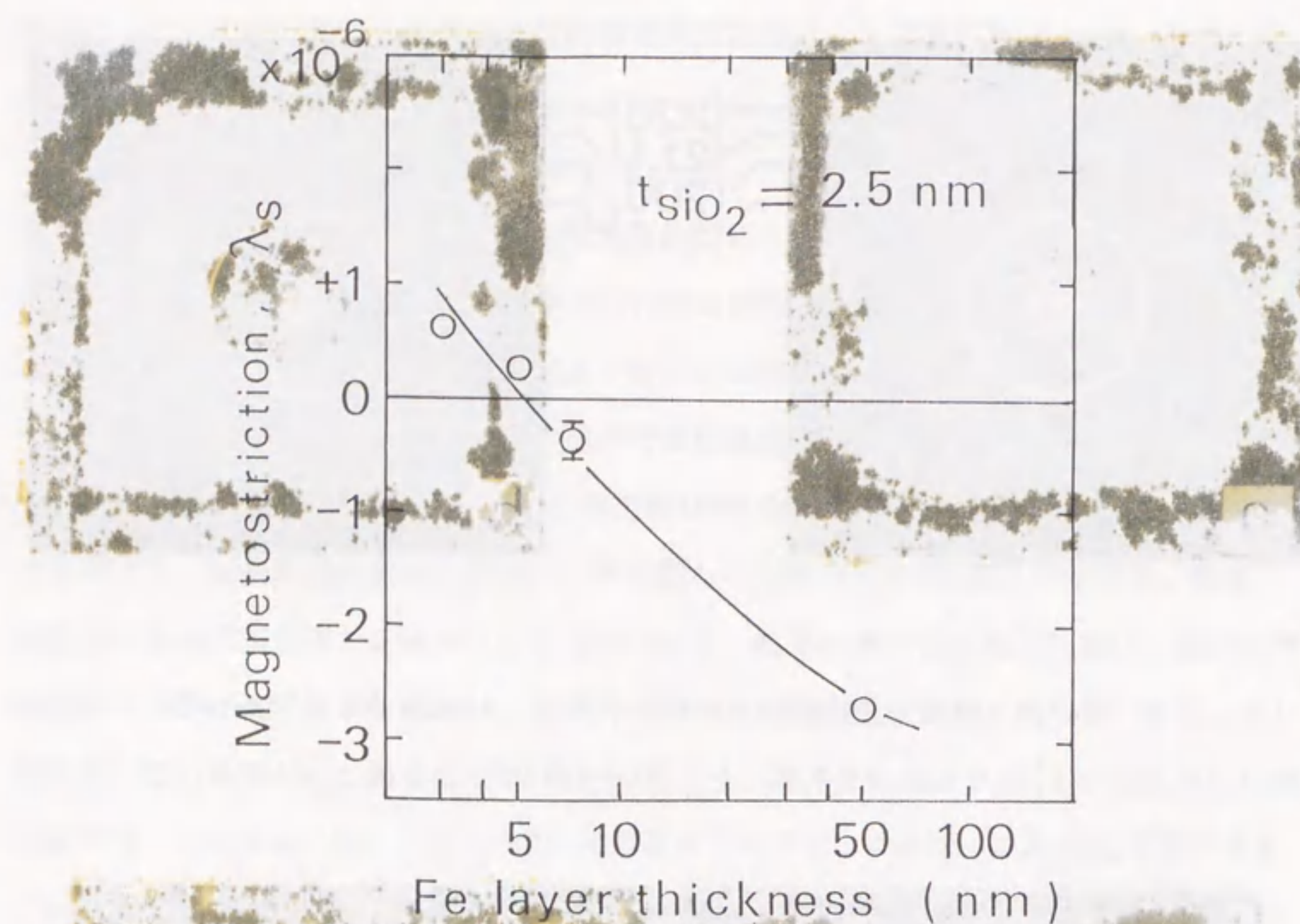


図4-27 磁歪定数のFe層厚依存性

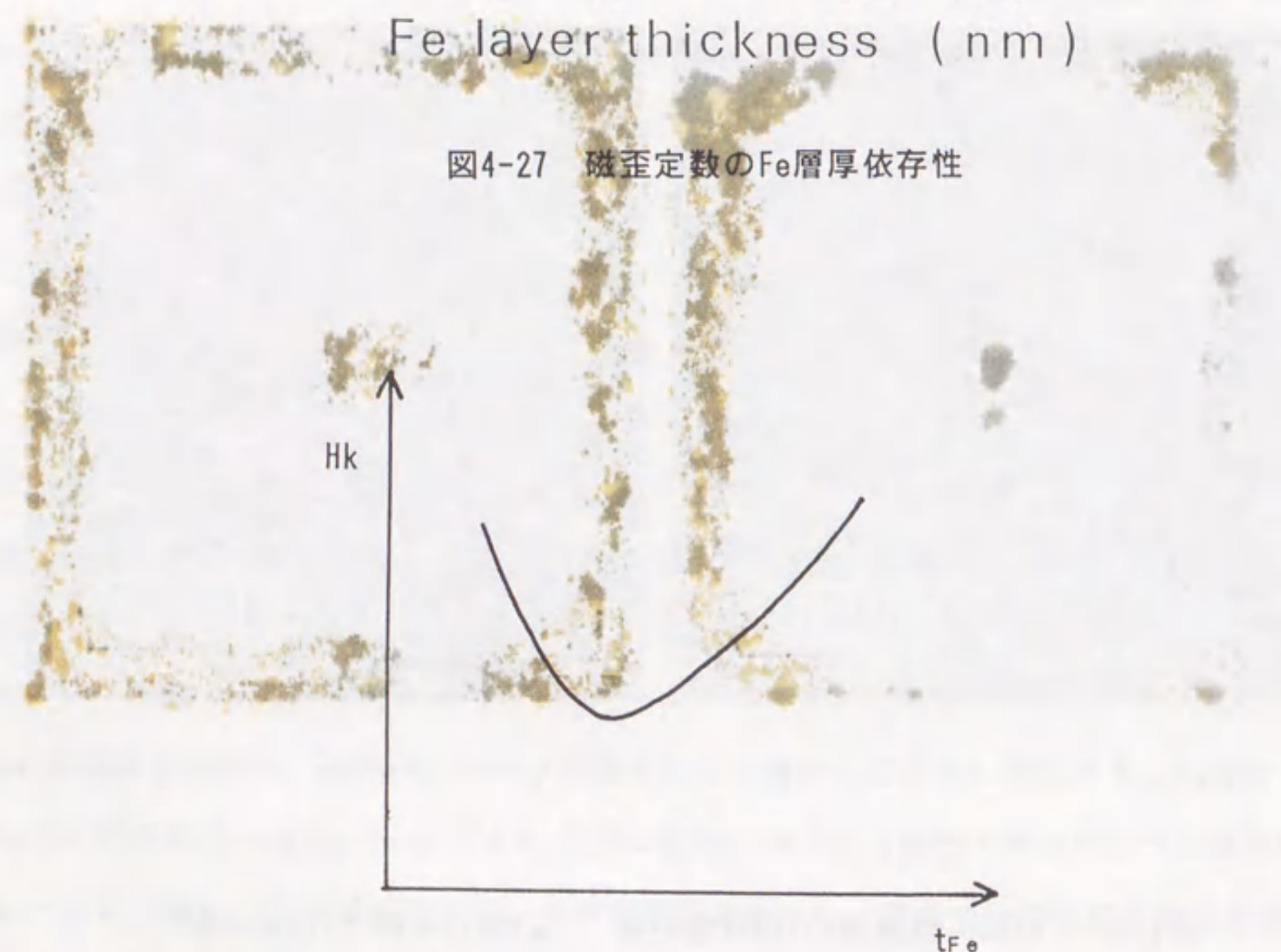


図4-28 磁歪定数変化(図4-27)から予測される  
異方性磁場のFe層厚依存性

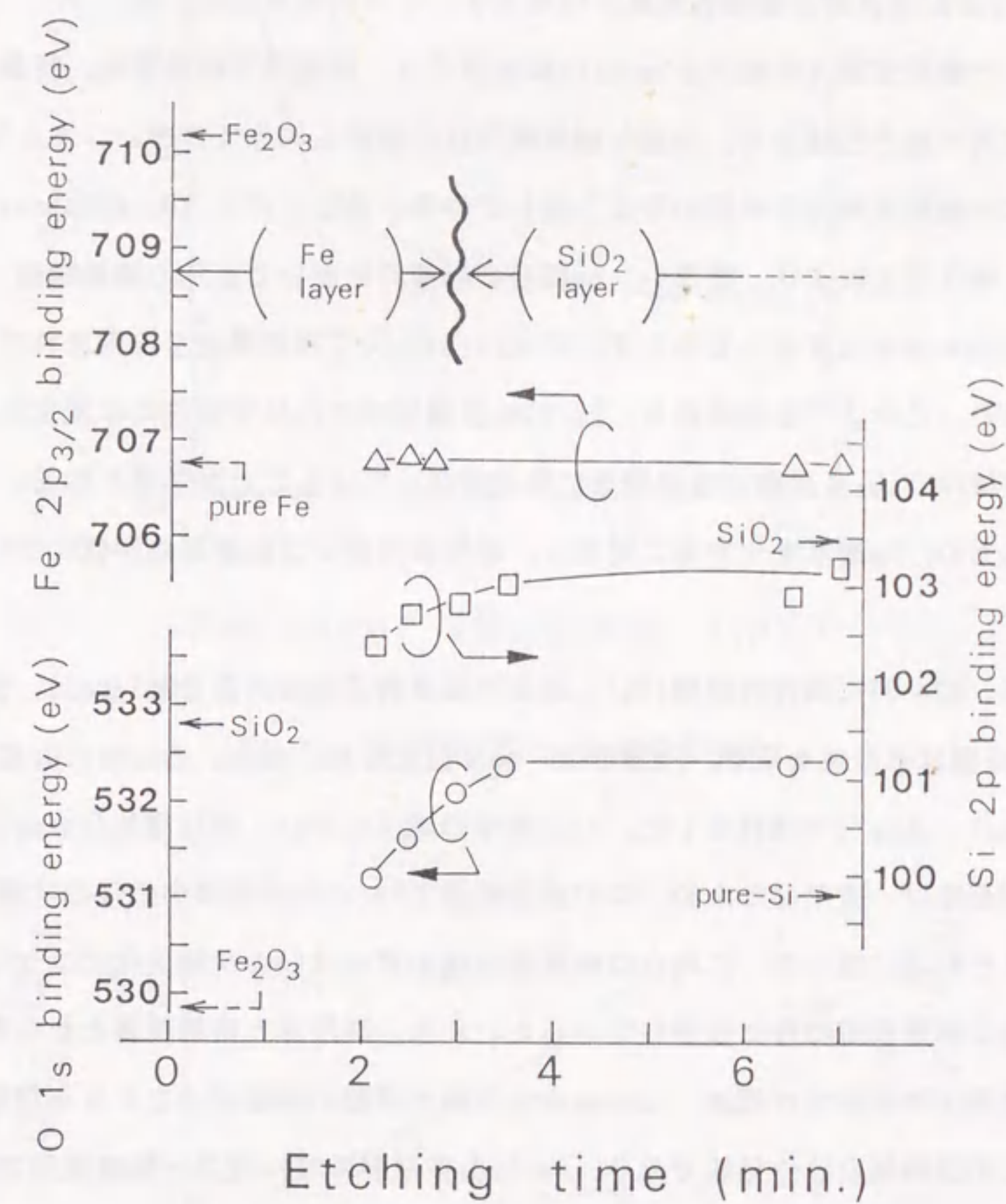


図4-29 Fe2p<sub>3/2</sub>, Si2p, O1s結合エネルギーの深さプロファイル



合は増加する。この傾向はFe層厚5 nm以上のHkの変化と対応する。しかし、5 nm以下に見られるHkの急激な低下は界面の増加とは相反する結果であり、従ってFe/SiO<sub>2</sub>界面の混成状態は磁気異方性の原因になっているというよりもむしろ磁気異方性を低下させる働きをしている。Fe/SiO<sub>2</sub>界面が垂直磁気異方性を示すことは次節で記述する。

以上、一軸磁気異方性を示すFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、膜面内で結晶配向、結晶粒の形状および膜応力に異方性はなく、磁歪も磁気異方性に影響を与えていない。またFe/SiO<sub>2</sub>界面は面内の一軸磁気異方性を弱めるよう働いている。さらにXPS, XD, Mössbauer分析(4-4-3参照)、磁化測定により、層厚1-3 nm程度のFe層内においてもFeの結晶構造、原子状態および磁化の大きさは変化しておらず、またFe/SiO<sub>2</sub>人工周期構造も維持されていることが確認された。このような結果から、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中でFeは本質的には変化しておらず、磁気異方性はFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の多層構造に直接関係していることが予想される。このことを確認するため、Fe層厚を一定値に固定し、磁気異方性のSiO<sub>2</sub>層厚依存性について検討した。

図4-30、図4-31に異方性磁場(Hk)、および磁気異方性の角度分散( $\alpha_{50}$ )、強度分散( $\Delta_{50}$ )のSiO<sub>2</sub>層厚依存性を示す。Fe層厚は7 nmに設定した。 $\alpha_{50}$ 、 $\Delta_{50}$ はSiO<sub>2</sub>層厚2.5 nmでの値( $\alpha_{50}^*$ 、 $\Delta_{50}^*$ )で規格化した。SiO<sub>2</sub>層厚の減少に伴い、Hkは増加し $\alpha_{50}$ 、 $\Delta_{50}$ は減少する。Fe層厚は一定であるため、この実験範囲でFe/SiO<sub>2</sub>多層膜中のFeの状態は同一であると考えられる。従って、これらの磁気異方性の変化はFeの状態変化ではなく、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の多層構造のみに依存しているといえる。磁性体と非磁性体とからなる多層膜では磁性層間に静磁結合が働き、この結合力は磁性層間の距離が小さくなる程強くなる[15,16]。この静磁結合は一軸的であり、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中でFe層の一軸磁気異方性の分散を低下させているものと考えられる。なお、磁気異方性分散の低下は結晶粒の微細化によっても生ずることがわかっている(図4-7、図4-8参照)[11-14]。

以上、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜ではFe層間の静磁結合およびFe結晶粒の微細化といった多層構造特有の効果によって一軸磁気異方性分散の低下が生じ、このことが低保磁力実現の原因となっているものと考えられる。

#### 4-4-3 膜厚方向の磁気異方性

本節では膜厚方向の磁気異方性から見たFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の低保磁力化の条件および垂

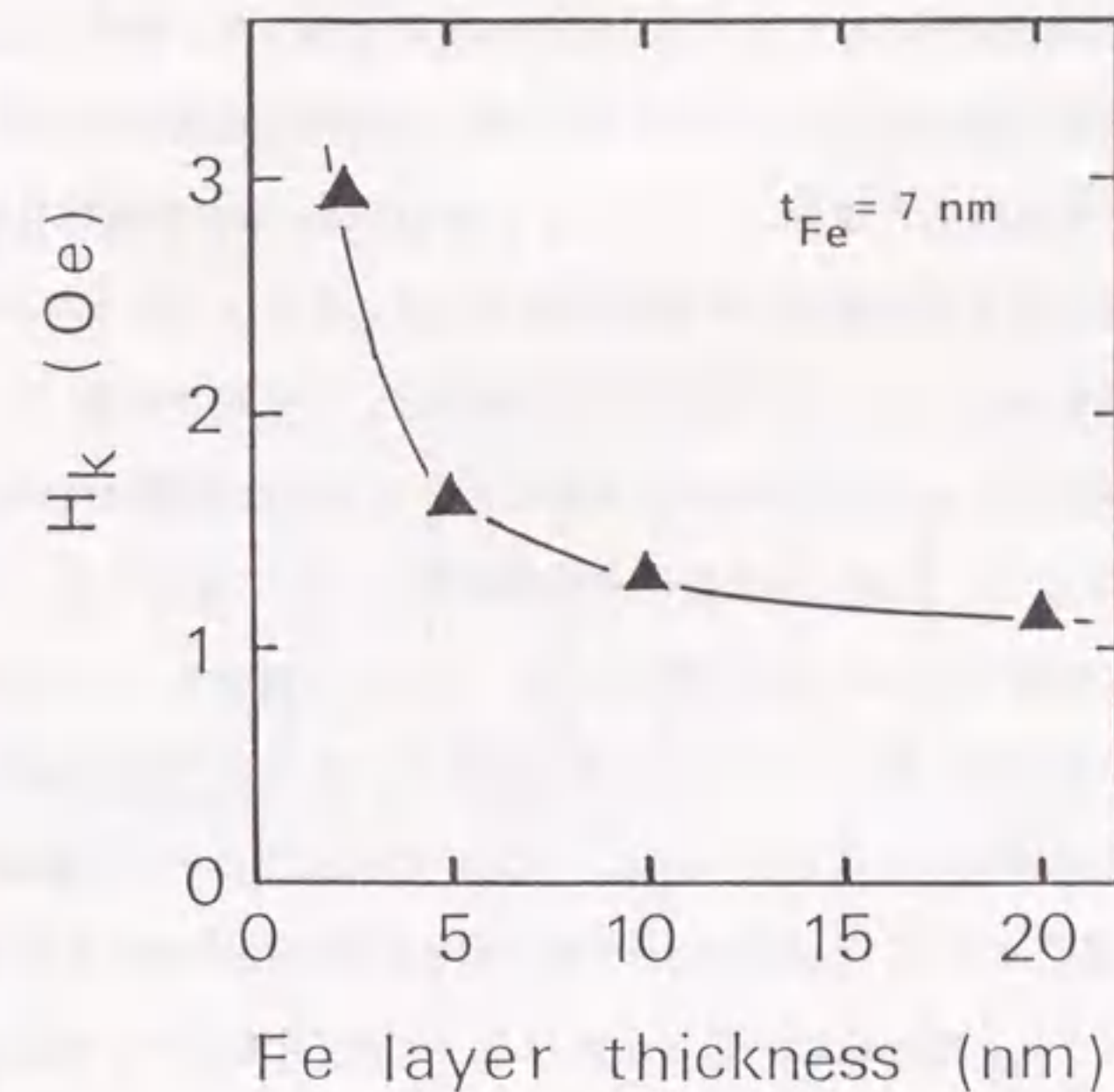


図4-30 異方性磁場のSiO<sub>2</sub>層厚依存性

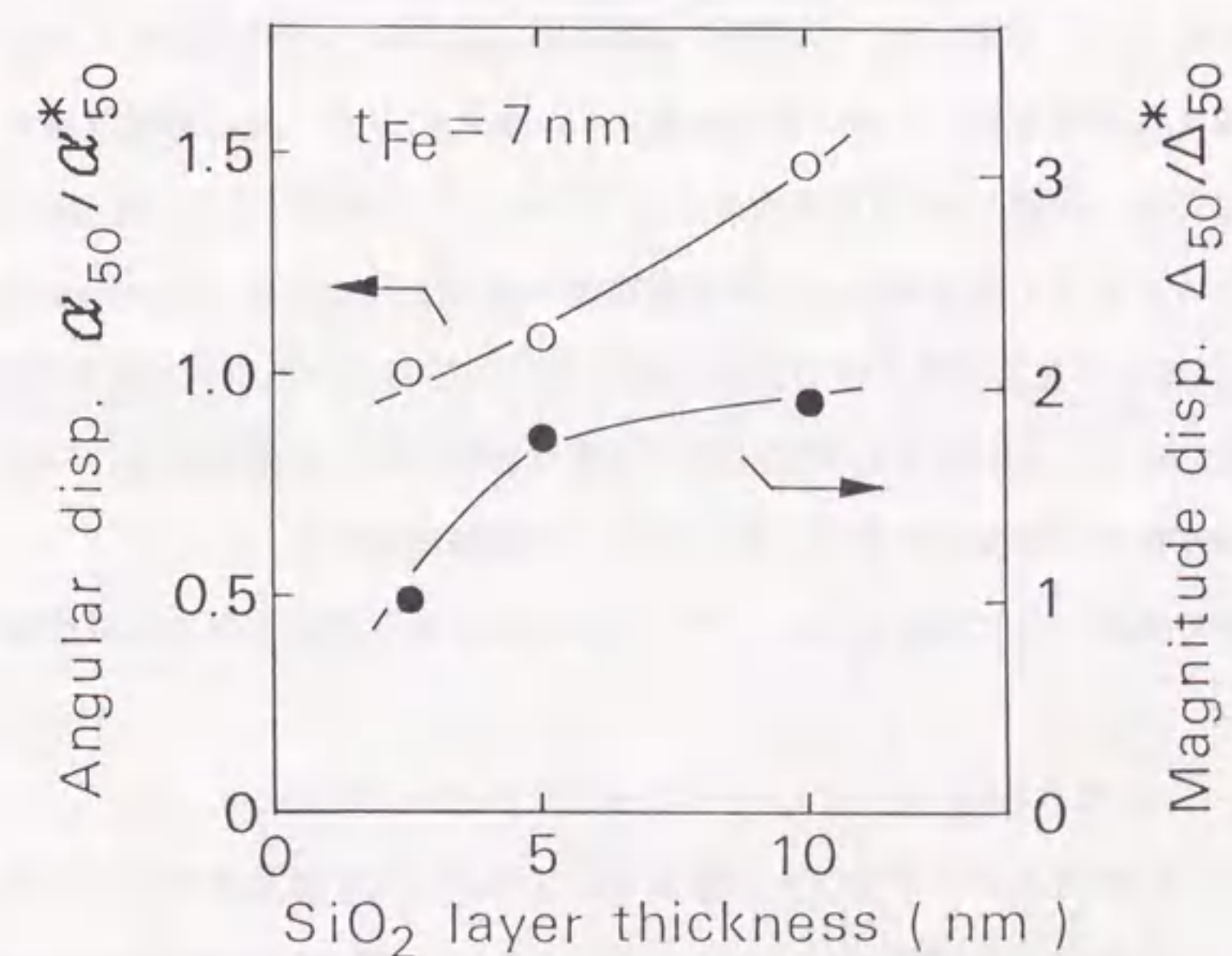


図4-31 異方性分散のSiO<sub>2</sub>層厚依存性



直磁気異方性の原因について検討する。垂直磁気異方性の測定法としてはMössbauer分析を用いた。磁気異方性の測定法としてはトルク法が一般的であるが、膜厚方向には反磁場による巨視的形狀磁気異方性が存在するため、膜の持つ本質的な磁気異方性が小さい場合にはこれを検出することは困難となる。これに対し、Mössbauer法は零磁場状態でもスペクトルの強度比から磁化と入射 $\gamma$ 線との角度がわかり、またそのスペクトルから磁気秩序状態に関する情報も得られることから、本研究の実験法として有用である。

図4-32に内部転換電子によるMössbauer分光法により測定した各種Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜のMössbauerスペクトルを示す。まず、Fe層の磁気秩序状態について解析する。Fe層厚が薄くなった場合、Fe層は超常磁性(スーパーパラ)状態、あるいは磁気モーメントが消失した状態にあることが予想される。図4-32ではFe層厚3 nmにおいてもスペクトルは6本に分裂しており、Feは強磁性状態にあることがわかる。また、これらのピークの間隔、位置は $\alpha$ -Fe箔のものとも一致することから、Fe層が3 nmと薄い場合にも内部磁場の大きさおよびFe原子の結合状態はバルクFeと変わらないことがわかる。またM-H特性から見積られるFe層の飽和磁化の値はバルクFeの値と一致することから、Fe層中のFe原子はバルクFeの場合と同じ大きさの磁気モーメントを維持していることがわかる。図4-33にFe/SiO<sub>2</sub>(1/2.5 nm)多層膜のXDプロファイルを示す。a)は低角XDプロファイルであり、 $2\theta$ が $3^\circ$  付近の回折線は人工周期からくるものである。回折線の位置から人工周期の格子定数は3 nm程度と計算され、この値は作製設定値3.5 nmにほぼ一致する。またb)から、回折線強度はかなり弱くなっているものの、Fe層はbcc結晶構造をとっていることが確認できる。すなわち、Fe層厚が1 nmとなっても人工周期構造および結晶構造は維持されていることがわかる。なお、 $2\theta \sim 30^\circ$  のブロードな回折線はガラス基板およびSiO<sub>2</sub>層のアモルファス結晶構造からくるものである。以上、本実験で対象としている層厚範囲では人工周期構造、Feの結晶構造および磁気秩序状態は本質的に変化していないことが確認された。

次に磁化方向について解析する。スペクトルの強度比と磁化方向には以下の関係が成り立つ[21]。

$$I_1:I_2:I_3 = I_6:I_5:I_4 = 3 : 4\sin^2\theta/(1+\cos^2\theta) : 1 \quad \dots(4-7)$$

ここで $I_i$ ( $i:1\sim6$ )はスペクトルのピーク強度であり左から順に番号をつけた。 $\theta$ は入射 $\gamma$ 線と磁化との成す角である(図4-34 inset 参照)。従って、磁化方向が面内にある場合強度比は3:4:1、一方、面に垂直方向にある場合は3:0:1となり、第2(あるいは第5)ピークの強度比から磁化方向を知ることができる。磁化方向のFe層厚依存性を図4-34に示す。

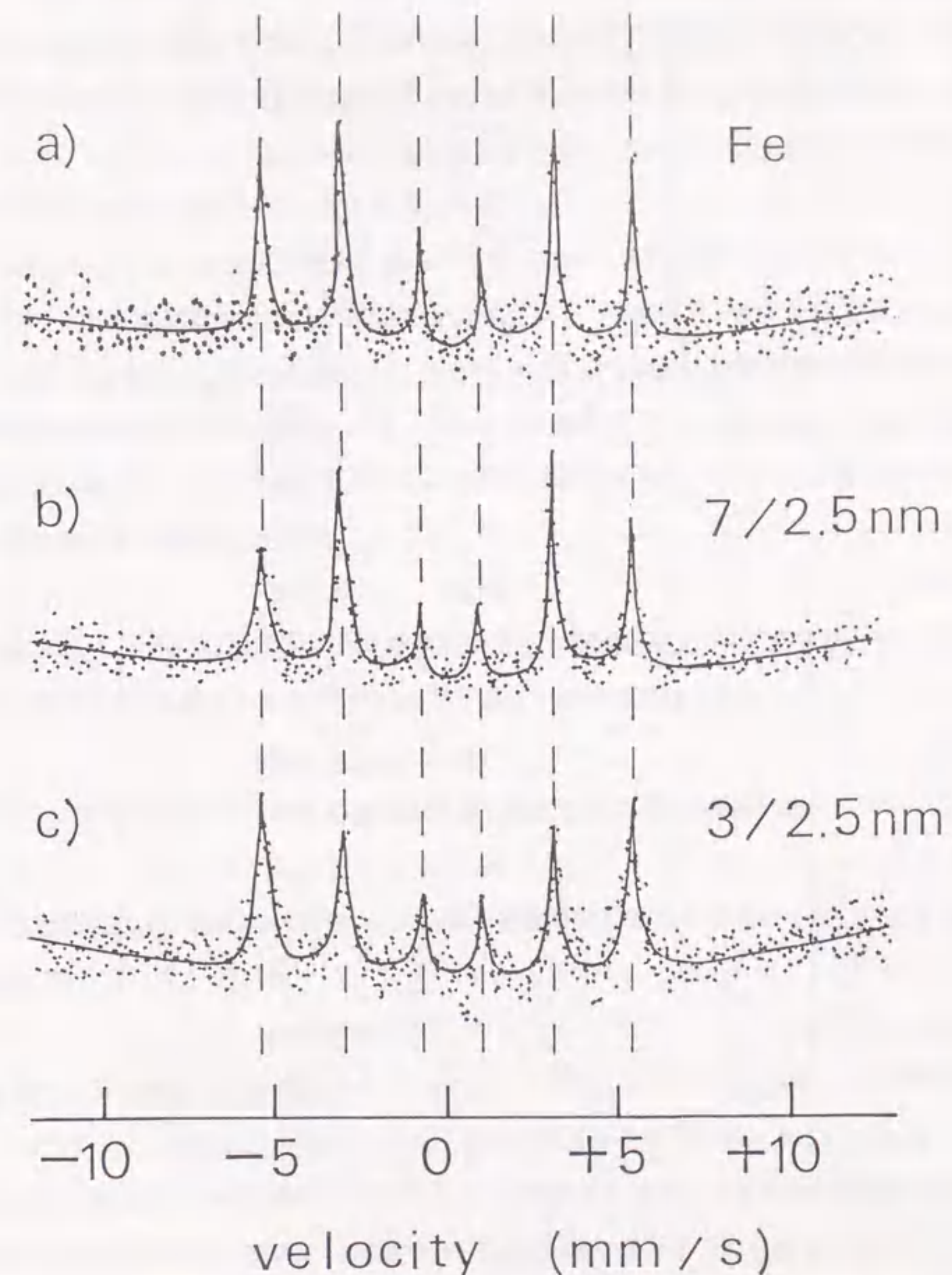


図4-32 Mössbauerスペクトル



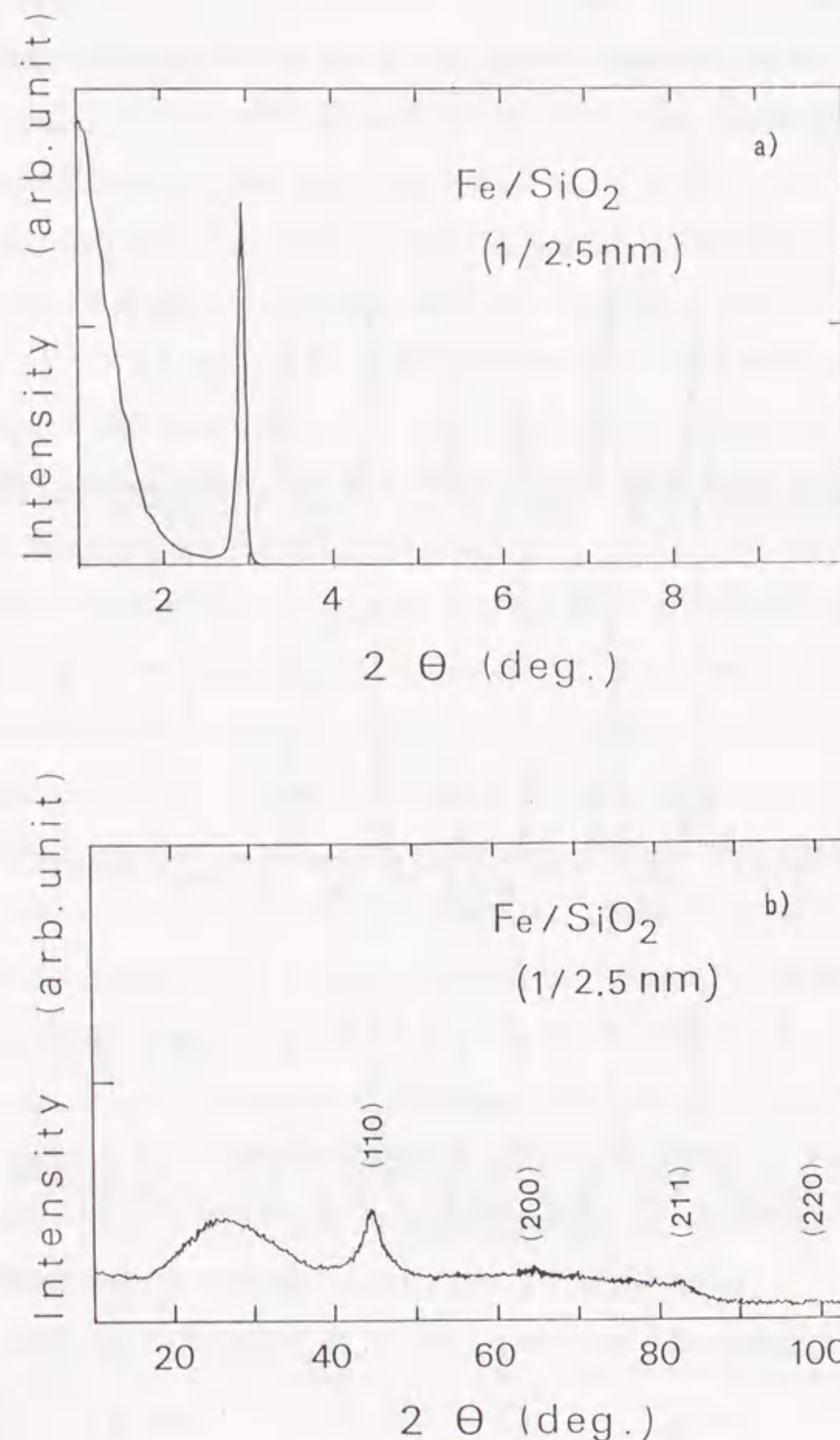


図4-33 XRDプロファイル

closed symbolは膜厚1  $\mu\text{m}$ のFe単層膜での値である。粉末Feの強度比は3:2:1となり、この時  $\theta = 54.7^\circ$  である。すなわち、 $\theta < 54.7^\circ$  では磁気モーメントが膜厚方向により多く分布し、一方  $\theta > 54.7^\circ$  では膜面内により多く分布することを意味する。Fe層厚の減少に伴い、磁化はFe層厚7 nm以上では徐々に面内に、7 nm以下では膜厚方向に向く傾向を示す。この結果はFe層厚が7 nm以上および7 nm以下では磁化に垂直成分が現れ、一方Fe層厚7 nmでは磁化はほぼ完全に膜面内を向き、膜厚方向の磁気異方性分散が最小となることを意味している。すなわち、膜厚方向の磁気異方性の点から見てもFe層厚7 nm付近で保磁力を低下させる条件を満たしていることがわかる。

Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜は垂直磁化成分を持ち、これが強いFe層厚依存性を示すことがわかった。次にこの垂直磁気異方性の原因について議論する。磁気異方性定数および異方性磁場はM-H特性およびFMR分析により求めた。膜の持つ本質的な垂直磁気異方性はその大きさが巨視的形狀磁気異方性と同程度ならば、これらの方法によっても観測可能となる。有効垂直異方性磁場( $H_{k\perp}^*$ )を反磁場に由来する巨視的形狀磁気異方性( $-4\pi \text{ NMs}$ )と膜の持つ本質的な垂直異方性磁場( $H_{k\perp}$ )との和

$$H_{k\perp}^* = H_{k\perp} - 4\pi \text{ NMs} \quad \dots(4-8)$$

で定義する。ここでNは膜厚方向の反磁場係数であり薄膜の場合 $\sim 1$ とおける。 $H_{k\perp}^*$ は面内方向と膜厚方向のM-H曲線が囲む面積( $K_{\perp}^*$ )から以下の式で見積られる。

$$H_{k\perp}^* = 2K_{\perp}^* / M_s \quad \dots(4-9)$$

また $H_{k\perp}^*$ は膜面に対し平行に外部磁場を印加した配置でのFMR共鳴条件式

$$(\omega/\gamma)^2 = H_0 \cdot \{H_0 - H_{k\perp}^*\} \quad \dots(4-10)$$

からも求められる。 $H_0$ は共鳴磁場、 $\omega$ は共鳴周波数で本実験では10 GHzを用いた。 $\gamma$ はFeのg値を用いて

$$\gamma = 2\pi g\mu_B/h \quad \dots(4-11)$$

で定義される元素固有の定数である。 $\mu_B$ はボーア磁子、 $h$ はプランク定数、本実験ではg値としてバルクFeの値2.10を用いた。 $H_{k\perp}^*$ のFe層厚依存性を図4-35に示す。closed symbolは膜厚1  $\mu\text{m}$ のFe単層膜での値である。M-H特性から見積った値とFMRの結果は良く一致し、Fe層厚の減少に伴い $H_{k\perp}^*$ は増加する。本実験の範囲では、 $H_{k\perp}^*$ は負の値のみを示すことから磁化は大部分面内にあるが、Fe層厚が薄くなると相対的に垂直磁気異方性が増加することがわかる。図4-36にFe/SiO<sub>2</sub> (1/2.5 nm)多層膜のM-H特性を示す。<<||>>は面内、<<\perp>>は膜厚方向の特性である。ここで $4\pi \text{ M}$ はSiO<sub>2</sub>層を含んだ体積から見積った値であり、



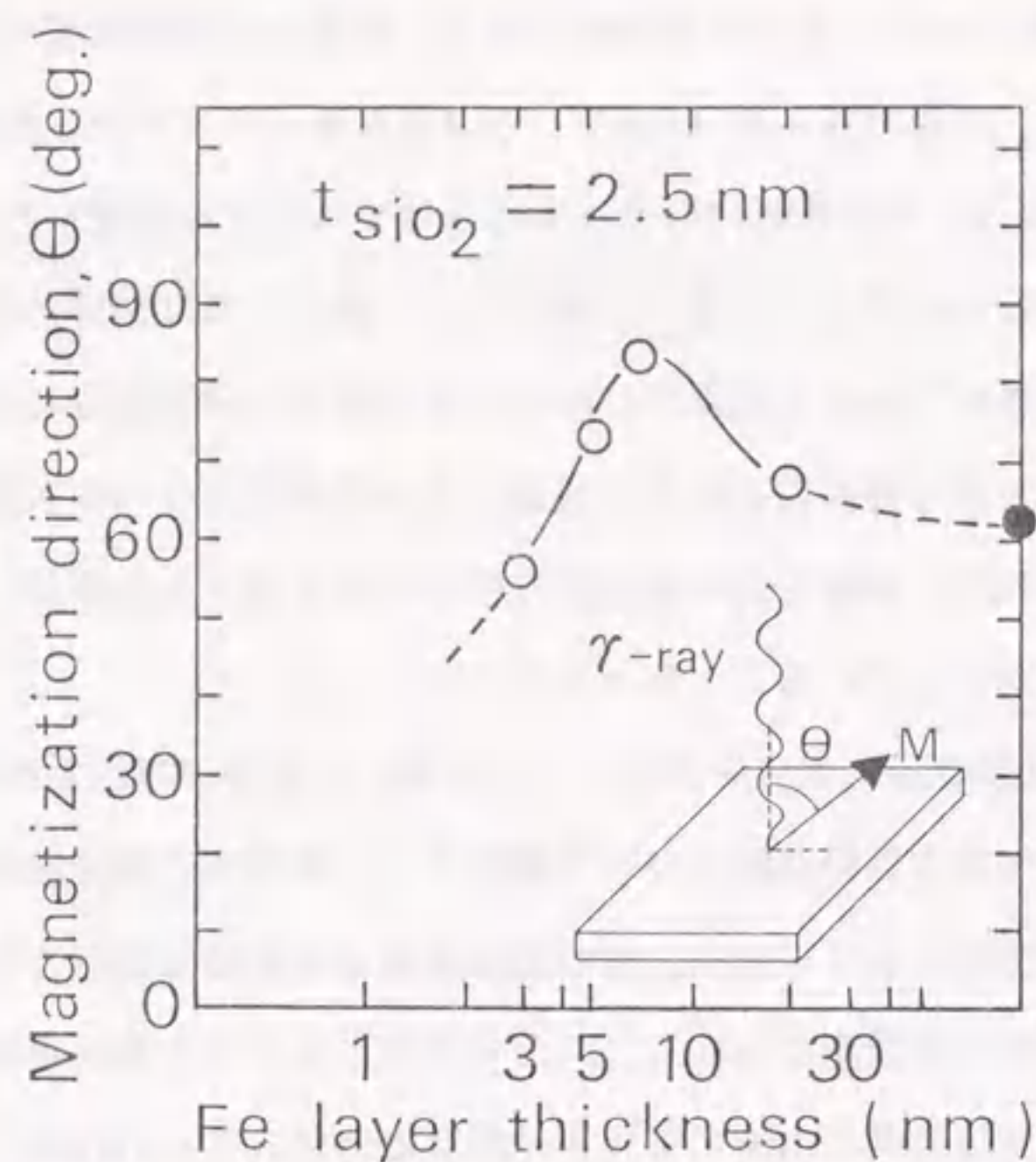


図4-34 磁化方向のFe層厚依存性

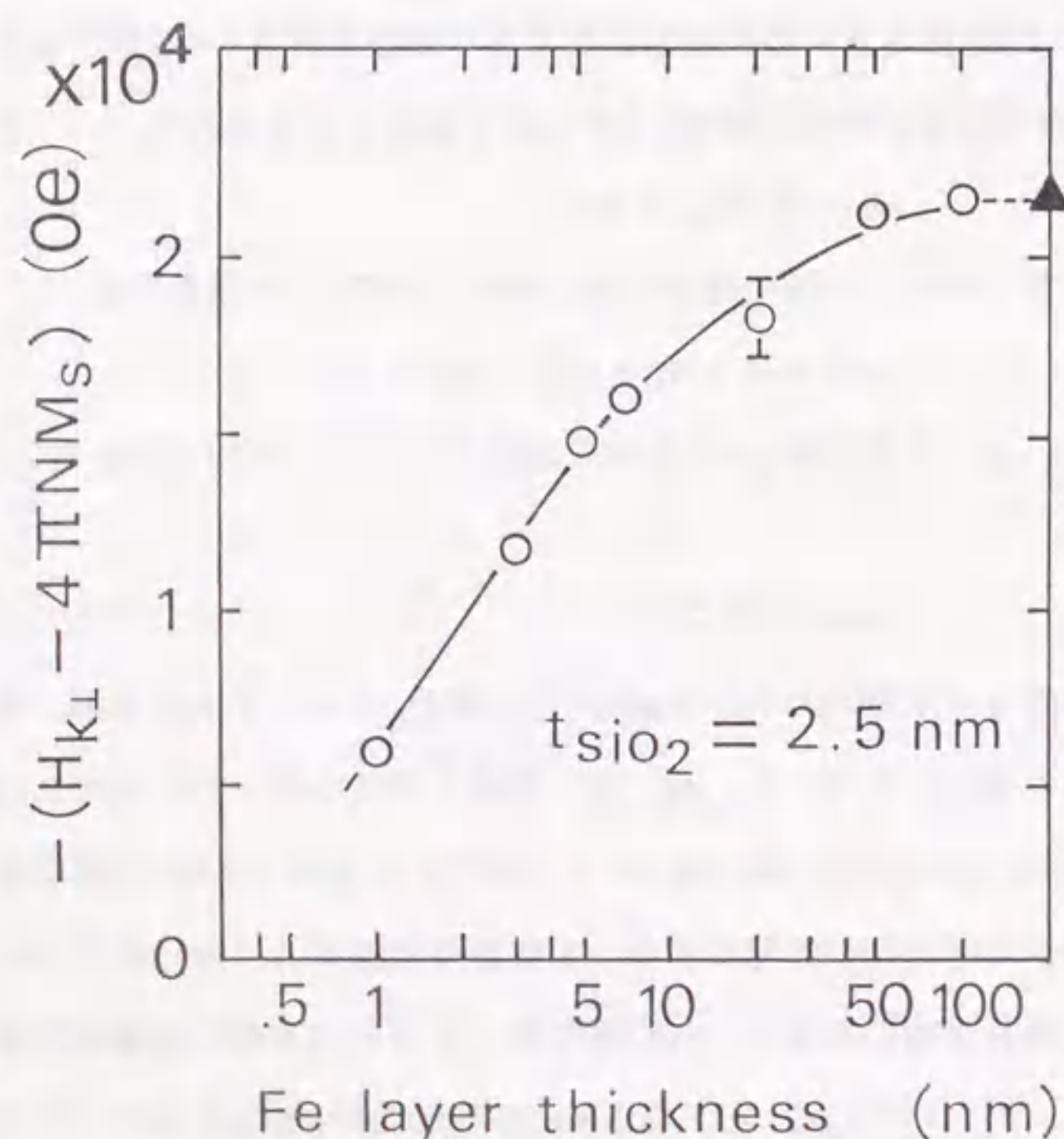


図4-35 有効垂直異方性磁場のFe層厚依存性

実際にはFe層は21.5 kG程度の飽和磁化を持っている。従って磁化を膜厚方向に飽和させるためには少なくとも反磁場(〜21.5 kOe)以上の印加磁場が必要となるはずである。しかしながら図4-36では<⊥>方向の磁化曲線は数kOe付近から飽和し始めており、何等かの垂直磁気異方性が働いていることがわかる。また、Fe膜の<||>方向の磁化曲線はせいぜい十数Oeで飽和するが、Fe/SiO<sub>2</sub>(1/2.5 nm)多層膜では2 kOe付近まで飽和せず、この結果も垂直磁気異方性の存在を示唆している。

このようにFe/SiO<sub>2</sub>多層膜には何等かの垂直磁気異方性が存在することがわかったが、以上の実験ではSiO<sub>2</sub>層厚が2.5 nmと非常に薄いため、各Fe層の表面に現れた磁荷がFe層間で相互作用し、反磁場を抑えるように働き、磁化が膜厚方向を向き易くなっていることも予想される。そこでSiO<sub>2</sub>層厚を変化させた場合の $H_{k\perp}$ を調べてみた。図4-37に種々のFe層厚における $H_{k\perp}$ のSiO<sub>2</sub>層厚依存性を示す。 $H_{k\perp}$ はSiO<sub>2</sub>層厚によらずほぼ一定値を示し、その大きさはFe層厚のみに依存している。従って、図4-35に見られる垂直磁気異方性の存在および変化は純粋にFe層のみの性質であることがわかる。

Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中ではFe自体の状態は本質的に変化していないことから、磁気特性の変化はサイズ効果あるいは界面効果等であることが予想される。そこで図4-34の結果を界面に垂直磁気異方性が存在するとして解析してみる[22-25]。垂直磁気異方性定数( $K_{\perp}$ )が体積垂直磁気異方性( $K_{\perp}^v$ )と界面垂直磁気異方性( $K_{\perp}^s$ )の和

$$K_{\perp} = K_{\perp}^v + 2K_{\perp}^s/t_{Fe} \quad \dots(4-12)$$

で表されると仮定する。ここで $t_{Fe}$ はFe層厚である。図4-38 a), b)に $K_{\perp} \cdot t_{Fe}$ のFe層厚依存性を示す。Fe層厚の薄い領域で各点はきれいに一直線上に乗り、このことは垂直異方性が(4-12)式のように、体積異方性の成分と界面異方性の成分とを持つことを意味している。なお、Fe層厚が厚い領域で(4-12)式の関係からずれるのは、この領域で別の垂直磁気異方性が生じていることを示唆している。以上、Fe層が薄い領域での垂直磁気異方性の出現はFe層厚の減少に伴い、界面垂直磁気異方性の寄与が顕在化したことが原因と考えられる。図4-38から  $K_{\perp}^v = -15.2 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>,  $K_{\perp}^s = 0.6$  erg/cm<sup>2</sup>と見積られ、 $K_{\perp}^v$ は反磁場による巨視的形状磁気異方性の値( $-2\pi N M_s^2$ )にほぼ一致する。また、図からFe層厚約0.8 nmで $K_{\perp}$ は零となり、これ以下のFe層厚で垂直磁化が安定化することが予想される。このような界面垂直磁気異方性の存在は、数種のFe系磁性多層膜、Co系磁性多層膜で観測されている。表4-1に各種磁性多層膜における $K_{\perp}^s$ の値と、 $K_{\perp}$ が零となるFe層厚あるいはCo層厚の値( $t_m$ )を示す。これらの磁性多層膜では、 $K_{\perp}$ の層厚依存性はいずれも(4-12)式に従い、定性的



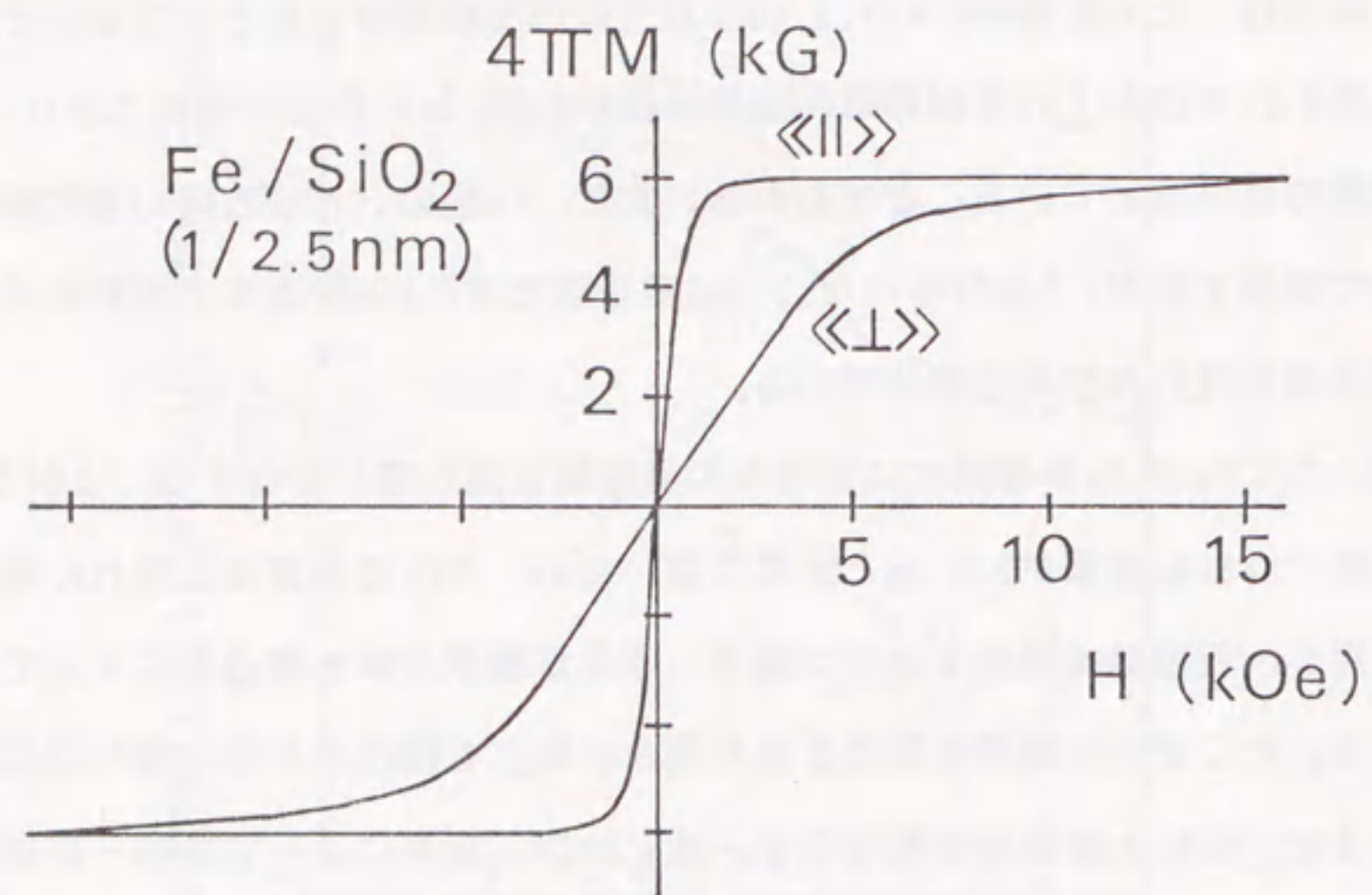


図4-36 膜厚および面内方向のM-H特性

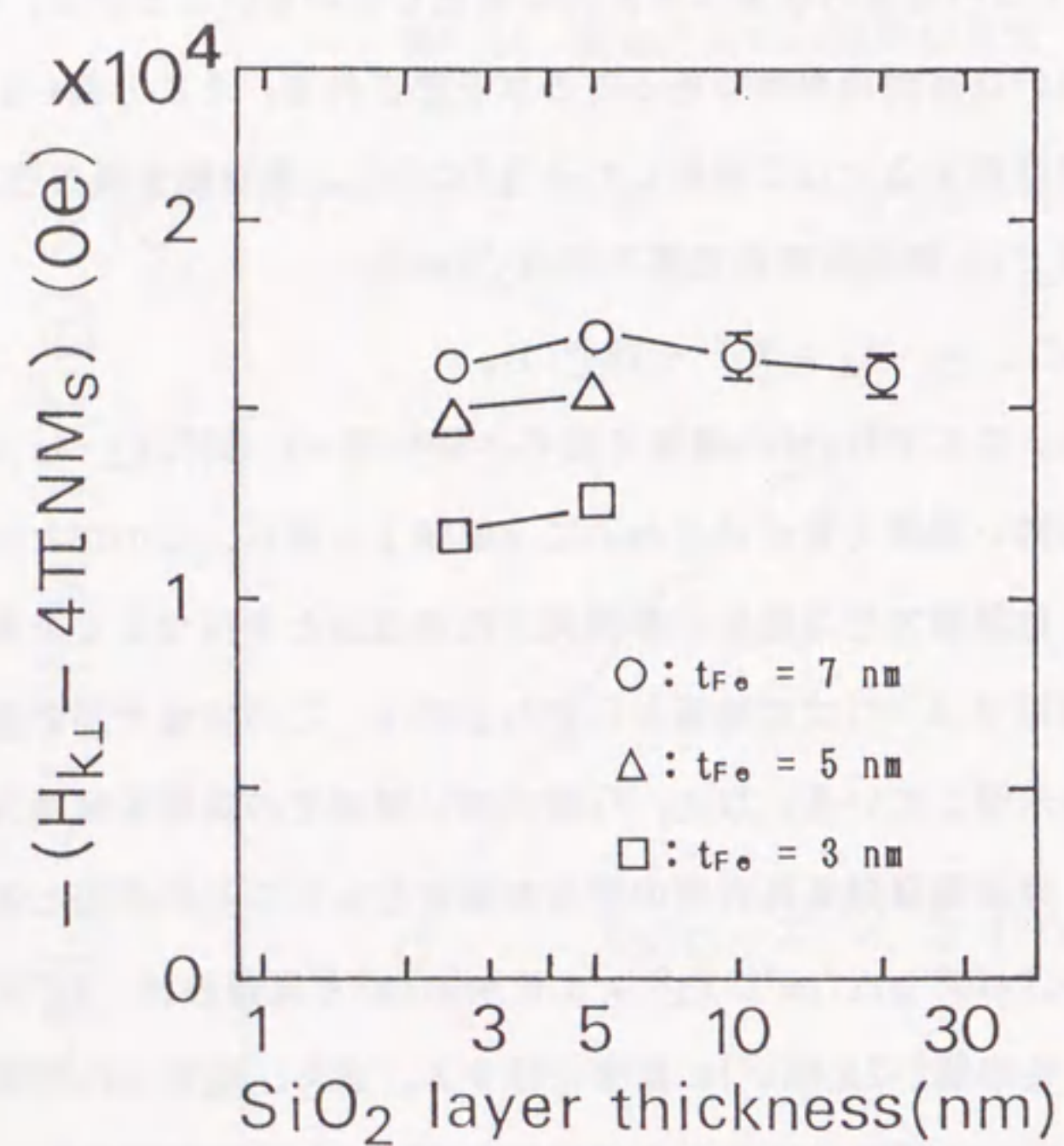


図4-37 有効垂直磁場のSiO<sub>2</sub>層厚依存性

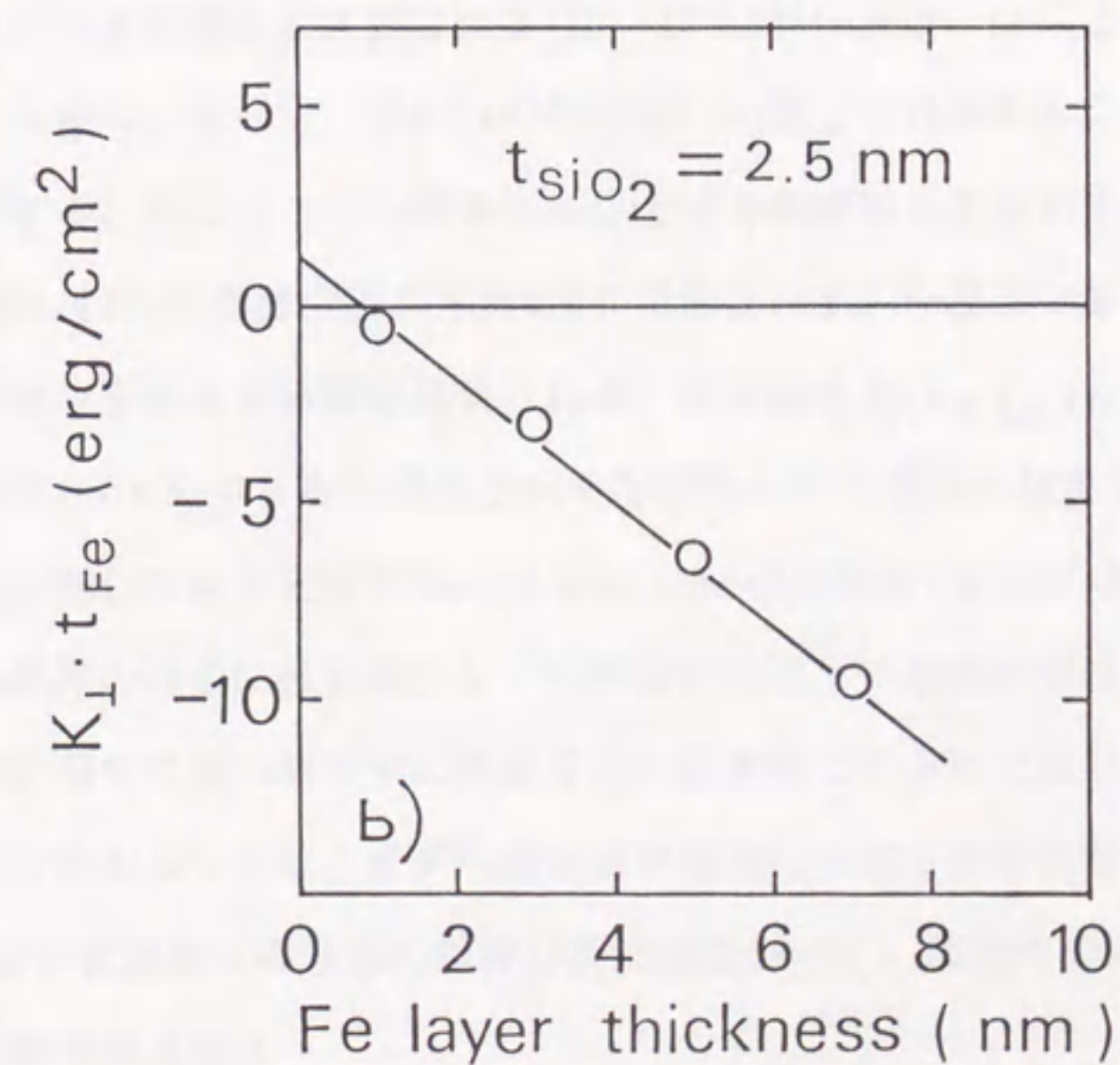
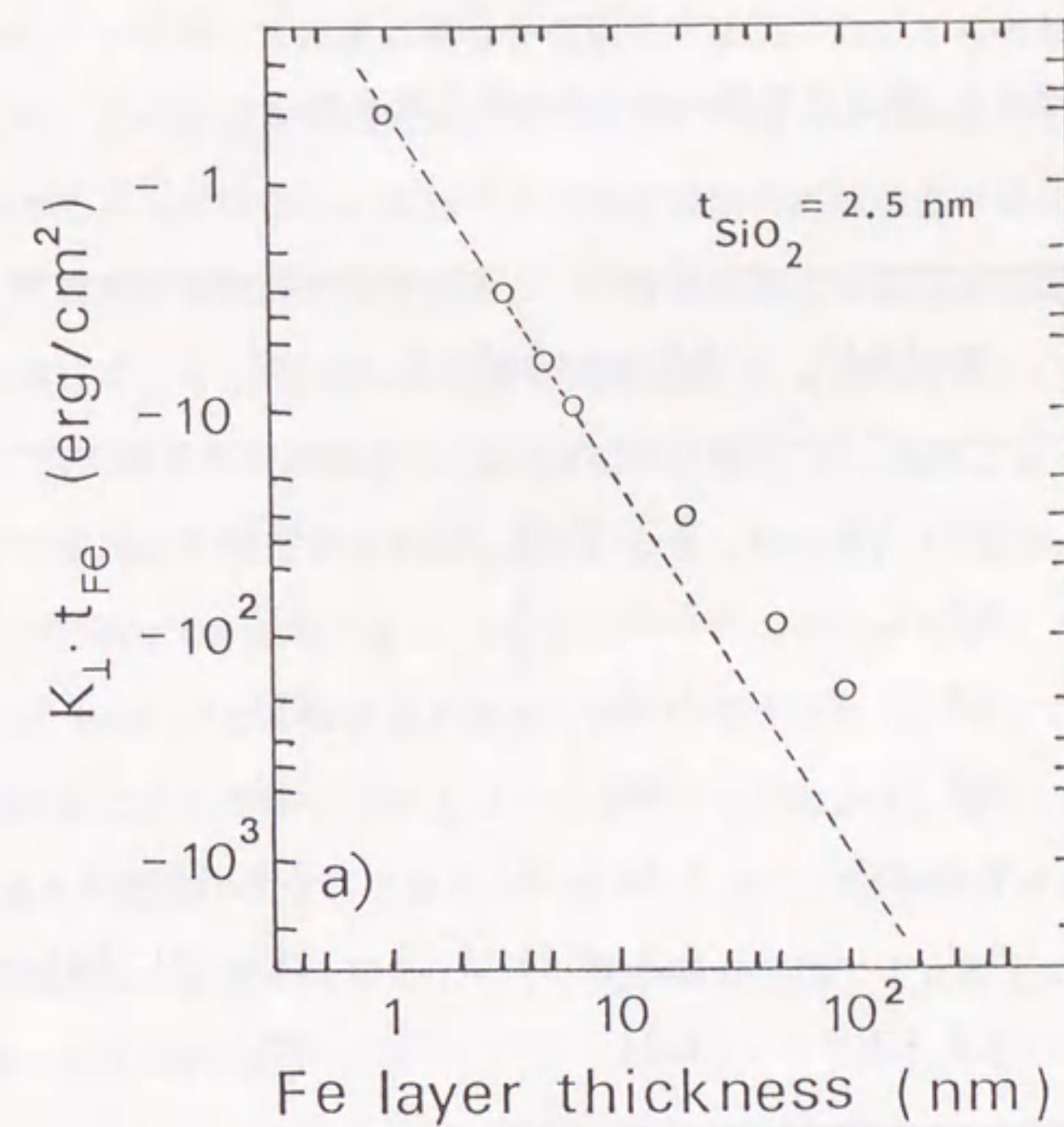


図4-38  $K_{\perp} \cdot t_{Fe}$ のFe層厚依存性



表4-1 磁性多層膜の界面垂直磁気異方性

Sample	t <sub>m</sub> (nm)	K <sub>⊥</sub> <sup>s</sup> (erg/cm <sup>2</sup> )	ref.
Fe/Au	0.4, 0.6	0.3, 0.51	26)
Fe/Pt	0.5	0.5	27)
Fe/Pd	0.2	0.12	25)
Co/Au	0.9	0.34	28)
Co/Pt	0.8, 0.9	0.5, 0.19	27), 25)
Co/Pd	0.8	0.5, 0.26, 0.15	28), 27), 25)
Co/Cr	0.5 - 1.0	0.34	30)

には界面垂直磁気異方性の存在を示唆している。しかし、表に見られるようにK<sub>⊥</sub><sup>s</sup>, t<sub>m</sub>の値は材料系によっても、また同じ組合せの磁性多層膜においても異なった値となっている。現在のところ、この界面垂直磁気異方性の発生を説明する理論はなく、またその起源についても明らかになっていない。界面では異種材料間の熱膨張差などにより大きな歪が発生するため、界面垂直磁気異方性の起源として膜厚方向の歪誘導磁気異方性(K<sub>⊥</sub><sup>a</sup>)の可能性について考察してみる。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁歪定数(λ<sub>s</sub>)はFe層厚7 nm以下で正となり(図4-27参照)、また膜厚方向の膜応力(σ<sub>r</sub>)は引張り性(> 0)であることから、K<sub>⊥</sub><sup>a</sup>はFe層厚の薄い領域で垂直磁化を誘発する方向に働く。しかしながら、λ<sub>s</sub>とσ<sub>r</sub>の各々の実測値~10<sup>-6</sup>, ~10<sup>9</sup> dyn/cm<sup>2</sup>を用いると、K<sub>⊥</sub><sup>a</sup>は10<sup>3</sup>~10<sup>4</sup> erg/cm<sup>3</sup>であり、Fe層厚が数 nmでのK<sub>⊥</sub><sup>s</sup>/t<sub>Fe</sub>~10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>と比較すると無視し得る大きさとなる。従って、界面垂直磁気異方性は逆磁歪効果によって生じているのではないことがわかる。表4-1から、他の磁性多層膜のK<sub>⊥</sub><sup>s</sup>の値も同程度の大きさであることから、これらの多層膜においても歪誘導磁気異方性が界面異方性の原因とは考えにくく、何か別の機構により界面に垂直異方性が発生しているものと考えられる。

上記、界面磁気異方性はFe層厚の減少に伴い垂直磁気異方性を単調増加させる。また歪誘導磁気異方性も磁歪定数が負となる(図4-27参照)Fe層厚7 nm以上の領域では磁化を面内に向けるよう働く。従って、図4-34のFe層厚7 nm以上での現象はこれらの磁気異方性の働きとは矛盾する。そこで次にFe層厚7 nm以上での垂直磁化発生の原因について議論する。図4-39に各種Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の膜厚方向のM-H特性を示す。Fe層厚の厚い膜では低磁場で垂直磁化の存在を示唆する履歴が観察される。垂直磁化比(4πM<sub>⊥</sub>/4πM<sub>s</sub>)のFe層厚依存性を図4-40に示す。4πM<sub>⊥</sub>/4πM<sub>s</sub>は膜厚方向を容易軸とする磁化の割合を意味し、4πM<sub>⊥</sub>は履歴曲線内の最大磁化の値で定義する。closed symbolは膜厚1μmのFe単層膜での値である。垂直磁化はFe層厚の減少に伴い減少し、Fe層厚7 nm以下で履歴曲線は消滅する。即ち比較的Fe層厚が厚い場合にはFe層の中に膜厚方向を容易軸とする磁化成分が含まれていることがわかる。この原因としては、まずFe層の柱状組織に由来する形状磁気異方性が考えられる[31,32]。各柱状結晶粒の膜面に垂直な反磁場係数をN<sub>⊥</sub>, 膜面内の反磁場係数をN<sub>||</sub>とするとこの垂直磁気異方性は

$$K_{\perp}^{\text{column}} \propto 2\pi(N_{||} - N_{\perp})M^2 \quad \dots(4-12)$$

と表される。Fe膜およびFe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜の断面TEM像は図4-9, 図4-10に示された。Fe単層膜は20~50 nm径の柱状構造を成しているのに対し、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では結晶粒



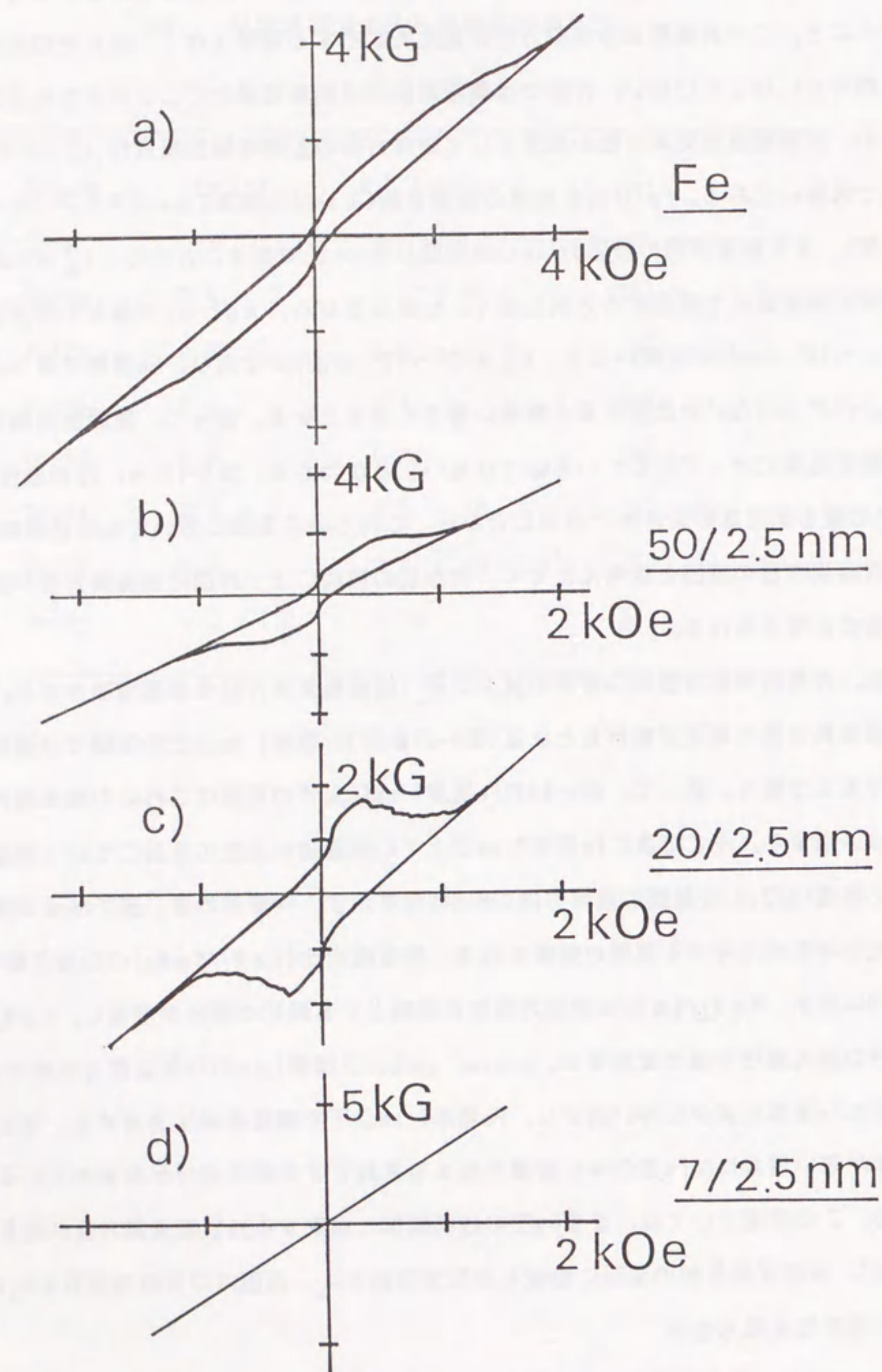


図4-39 膜厚方向のM-H特性

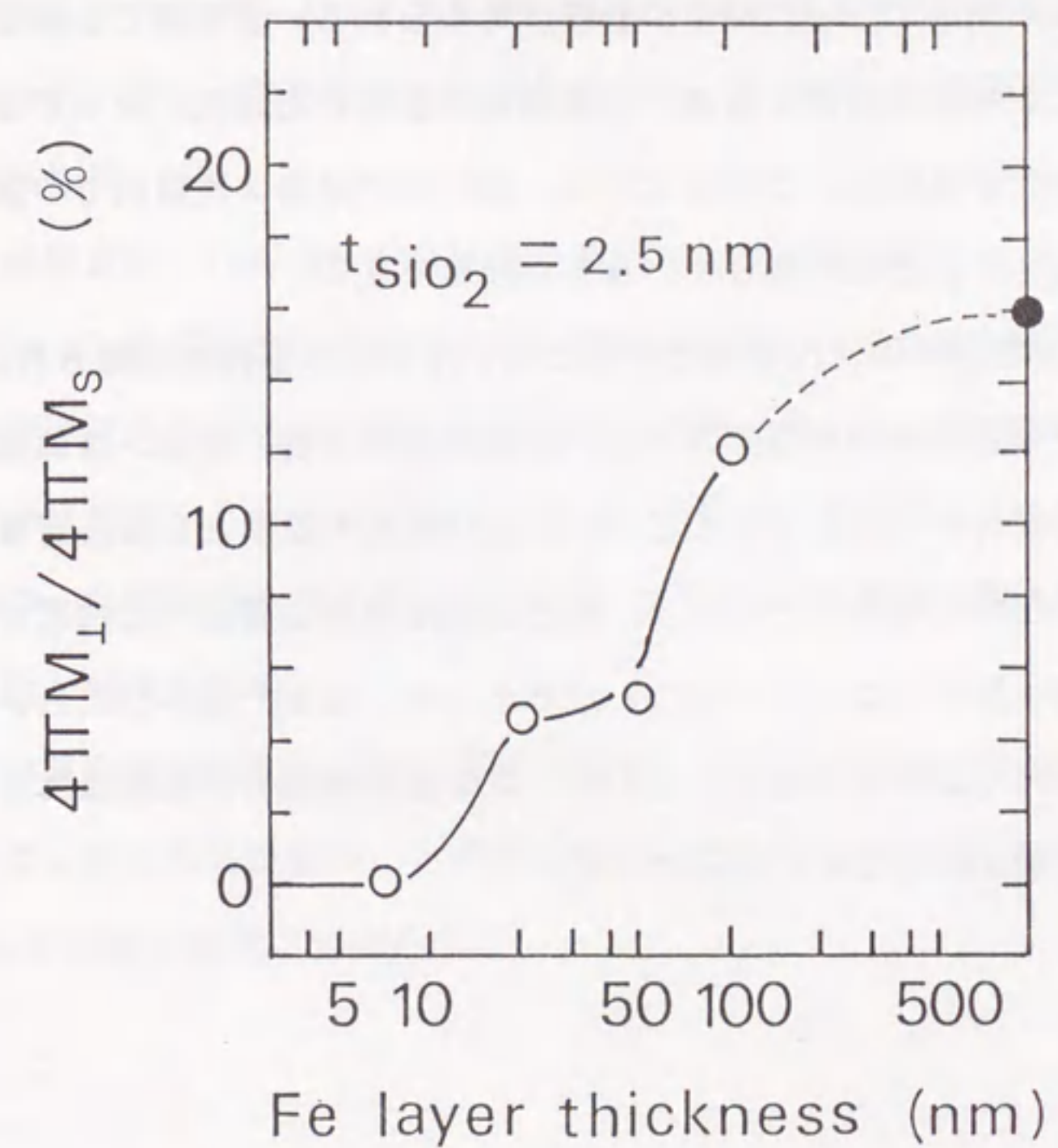


図4-40 垂直磁化比のFe層厚依存性



径が10 nm程度に微細化されている。このようにFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では多層構造によりFe層の柱状組織は分断され、Fe層厚の減少に伴い $N_{\perp}/N_{\parallel}$ は大きくなる。従って、柱状構造に由来する垂直磁気異方性はFe層厚の減少に伴い減少し、このことは図4-34のFe層厚7 nm以上での現象を定性的に説明する。次に、結晶磁気異方性の影響が考えられる。bcc Feにおける結晶磁気異方性の容易軸は(100)であり、これは(110)と45°の角度をなす。(110)配向膜では膜厚方向に(110)の(100)方向成分が残るため、これが膜厚方向の磁化を発生させていることが予想される。最後に磁壁内磁化の影響が考えられる。磁性膜では膜厚の増加にともない、膜内磁化により磁化遷移するネール磁壁から膜厚方向磁化によって磁化遷移するブロッホ磁壁が安定化する[33]。このことから、図4-34の結果は磁壁内での膜厚方向を向いた磁化の量が増加したことに対応しているとも解釈できる。

以上、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、Fe層厚が非常に薄い場合には界面磁気異方性によって、一方、Fe層厚が厚い場合には形状磁気異方性、結晶磁気異方性、あるいは磁壁内磁化の影響によって垂直磁化成分が発生していること、および保磁力最小となるFe層厚5~10nmでは全垂直磁化成分が最小となることにより、磁化はほぼ完全に膜面内に拘束され、膜厚方向の磁気異方性分散が最小となっていることがわかった。なお、図4-23においてFe層厚が薄い領域で膜面内の異方性磁場が急減したのは、この層厚領域で界面垂直異方性が顕在化し、垂直磁化成分が増加したためと解釈できる。

#### 4-5 まとめ

本章では、材料構成が単純でかつ高飽和磁化を有した新軟磁性材料の開発を目的に、Feと非磁性体のみから成る磁性多層膜の磁気特性について検討した。以下に結果を示す。

(1)Fe/SiO<sub>2</sub>, Fe/Cu, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>など非固溶系多層膜では、Feの結晶配向変化により、一方、Fe/C, Fe/Si, Fe/Tiなど固溶系多層膜ではFe層の負磁歪と拡散層の正磁歪との磁歪バランスにより磁歪変化が生じる。またこれらの多層膜では、Fe結晶粒の微細化および磁性層間の静磁結合に伴う磁気異方性分散の低下により低保磁力化が実現する。

(2)非磁性体としてSiO<sub>2</sub>を選び磁気特性の最適化を行った結果、Fe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜において零磁歪の下、飽和磁化15.5 kG, 保磁力0.3 Oe, 比透磁率4300が実現し、軟磁気特性は総膜厚がサブミクロンの領域でも維持された。比透磁率は250℃アニールによって5000まで向上した。また、非磁性絶縁体との多層効果である還流磁区構造消失による有効

磁束路幅の拡大効果も確認された。

(3)Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、Fe層厚が1-3 nm程度となっても明確な人工周期構造をとり、また、結晶構造、磁気秩序状態、磁気モーメントの大きさに関しても、バルクFeと同様の状態を維持している。

(4)Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜は一軸誘導磁気異方性を示す。この磁気異方性は多層構造の特徴である磁性層間の静磁結合および結晶粒の微細化により磁気異方性分散が低下し、かつ一軸磁気異方性が増強されることによって生じる。また、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の保磁力最小は膜面内の磁気異方性分散が最小となる条件で実現しており、このことが低保磁力化の原因の一つであると考えられる。

(5)Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜は、Fe層厚が非常に薄い領域では界面磁気異方性による垂直磁気異方性を示す。一方、Fe層厚が厚い領域では柱状構造に由来した形状磁気異方性、結晶磁気異方性、あるいは磁壁内磁化によって垂直磁化成分が現れる。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の保磁力最小は、全垂直磁化成分が最小となり磁化がほぼ完全に膜面内に拘束される条件で実現する。従って、膜面内の一軸磁気異方性の分散最小に加え、膜厚方向の磁気異方性分散最小も低保磁力実現の原因と考えられる。

以上、単純な材料構成により、零磁歪の下、15.5 kGの高飽和磁化、4000~5000の高比透磁率、および非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大効果を示す新軟磁性材料Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。



#### 第4章の参考文献

- 1) E. Klokholm, IEEE Trans, Magn., MAG-12, 819 ('76).
- 2) Paul A. Calcagno and David A. Thompson, Rev. Sci. Instrum, 46, 904 ('75).
- 3) 金原繁, 藤原英夫, 薄膜, 裳華房 ('84).
- 4) B. D. Cullity, Elements of X-Ray Diffraction  
(Addison-Wesley, Reading, MA, 1956).
- 5) E. J. Torok, et al, J. Appl. Phys., 33, 3037 ('62).
- 6) E. W. Lee, Rept. Prog. Phys., 18, 184 ('55).
- 7) N. Ishiwata, C. Wakabayashi and T. Matsumoto,  
IEEE Trans. Magn., MAG-23, 2152 ('88).
- 8) R. M. Bozorth, Ferromagnetism (Van Nortrand, Princeton, NJ, '51).
- 9) E. Tatsumoto and T. Okamoto, J. Phys. Soc. Jpn., 14, 1588 ('59).
- 10) W. S. Chan, K. Mitsuoka, H. Miyajima and S. Chikazumi,  
J. Phys. Soc. Jpn., 48, 822 ('80).
- 11) H. Hoffmann, J. Appl. Phys., 35, 1790 ('64).
- 12) K. J. Harte, J. Appl. Phys., 39, 1503 ('68).
- 13) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., 25, 3327 ('89).
- 14) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., 26, 1397 ('90).
- 15) H. Clow, Nature 194, 1035 ('62).
- 16) A. Yelon, Physics of Thin Films (Academic, NewYork, '71) Vol. 6.
- 17) G. K. Wertheim and J. H. Wernick, Acta metallurgica, 15, 297 ('67).
- 18) C. Nishimura, K. Yanagisawa, A. Tago and J. Kishigami, INTERMAG'89, EQ-06.
- 19) S. Chikazumi and C. D. Graham Jr.,  
Magnetism and Metallurgy (Academic Press. NewYork and London, '69).
- 20) H. Fujimori, Amorphous Metallic Alloys (Butterworths, '83).
- 21) 出口安夫他, 新実験化学講座3 基礎技術 磁気, 丸善, ('76).
- 22) L. Neel, J. Phys. Radium, 15, 225 ('54).
- 23) U. Gradmann, Appl. Phys., 3, 161 ('74).
- 24) P. F. Carcia, A. D. Meinholdt and A. Suna, Appl. Phys. Lett., 47, 128 ('85).

- 25) H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge and F. J. A. den Broeder,  
J. Magn. Magn. Mat., 66, 351 ('87).
- 26) T. Okuyama and T. Shinjo, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 342 ('90).
- 27) T. Sugimoto, T. Katayama, M. Hashimoto, Y. Suzuki and Nishihara,  
J. Mag. Soc. Jpn., 15, 419 ('91).
- 28) M. Sakurai, T. Takahata and I. Moritani, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 411, ('91).
- 29) H. Tanimoto, J. Ago, M. Nawate, S. Honda and T. Kusuda,  
J. Mag. Soc. Jpn., 15, 423 ('91).
- 30) N. Goshima, T. Mimura, M. Nawate, S. Honda and T. Kusuda,  
J. Mag. Soc. Jpn., 15, 445 ('91).
- 31) H. Fujiwara, J. Phys. Soc. Jpn., 20, 2092 ('65).
- 32) T. Iwata, R. J. Prosen and B. E. Gran, J. Appl. Phys, 37, 1285 ('66).
- 33) H. Fujiwara, J. Phys. Soc. Jpn., 20, 2092 ('65).
- 34) T. Iwata, R. J. Prosen and B. E. Gran, J. Appl. Phys, 37, 1285 ('66).
- 35) S. Middelhoek, J. Appl. Phys., 34, 1054 ('63).



## 第5章 NeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の 磁気特性

### 5-1 はじめに

前章では高飽和磁化を有しかつ材料構成が単純な新軟磁性材料としてFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜は比透磁率4000~5000を示す優れた軟磁性膜であるものの、その飽和磁化は15.5 kGと第3章で論じた(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の20 kGに比較しやや低い値を示す。これはFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では磁歪定数をFe層厚により制御しており、零磁歪条件を満たすFe層厚が7 nmと非常に薄いことが原因である。従って、もし零磁歪となるFe層厚をもっと厚くできればFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の飽和磁化をさらに高くできることが期待される。一方、スパッタ法で作製した膜の特性は、使用したスパッタガスの種類により様々に変化することが報告されており[1-6]、磁気特性への影響も期待される。本章ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の飽和磁化を一層高くすることを目的に、スパッタガスとしてこれまでのArに加え、Ne, Krガスによる作製を試み、スパッタガスが磁気特性に与える影響を比較検討した。

### 5-2 実験方法

試料は多層膜用に改造したイオンビームスパッタ装置により作製した。スパッタガスには Ne<sub>x</sub>Ar<sub>1-x</sub>(分圧 %), Ar, Krを使用し、動作真空度は $1 \times 10^{-4}$  Torrとした。純Neガスは放電が不安定なため使用しなかった。加速電圧は 1kV, イオン電流は 20mA, 基板温度は 160℃とした。ターゲットには5インチ径のFeおよびSiO<sub>2</sub>(純度99.99%)ディスクターゲットを使用し、基板にはCorningガラス(No. 0211)を使用した。基板ホルダに固定した永久磁石により基板表面に平行に約100 Oeの磁場を印加し、また膜の均一化を図るため基板ホルダは成膜中約4 rpmで回転させた。ターゲット, 基板はスパッタ粒子が基板表面に垂直に入射するよう設置した。

磁歪定数は、25 Oeの一定磁場を印加した際の基板のたわみ量の変化から見積った(2-2参照)[7]。保磁力及び飽和磁化はM-Hループトレサならびに試料振動型磁力計(VSM)により測定した。比透磁率は8字コイル法を用い、約80 mOeの高周波磁場(1~50 MHz)中に

て測定した(2-2参照)[8]。磁気異方性の強度分散及び角度分散は、Torokの方法により測定した(4-2参照)[9]。試料の結晶性はX線回折(XD)により観察し、膜厚方向の結晶粒径はFe(110)回折ピークの半値幅(FWHM)から見積った(4-2参照)[10]。多層膜の界面状態はX線光電子分光(XPS)により分析した。励起X線にはMg K $\alpha$ を使用し、深さプロファイルはArイオンラスタにより行った。結合エネルギーの較正はAr 2pレベルで行った。

抵抗率( $\rho$ )は四端子法により常温から液体ヘリウム温度(4.2 K)まで測定し、残留抵抗( $\rho_r$ )は $\rho$ (T)を絶対零度に外挿して見積った。

### 5-3 Ne, Ar, KrスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性

#### 5-3-1 磁気特性のスパッタガス依存性

イオンビームスパッタ法で作製した膜の特性は、スパッタガスの種類により様々に変化することが期待される。本節ではスパッタガスをNe, Ar, Krと変化させて作製したFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性を比較検討した。

図5-1に各種ガスで作製したFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における磁歪定数( $\lambda_s$ )のFe層厚依存性を示す。SiO<sub>2</sub>層厚は5 nmに設定した。Fe単層膜では $\lambda_s$ は $-2 \sim -4 \times 10^{-6}$ 程度であるのに対し、これらの膜の $\lambda_s$ はFe層厚の減少に伴い増加する。また、この傾向はKr, Ar, Ne<sub>99</sub>Ar<sub>20</sub>イオンビームスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の順に強くなる。Ne<sub>99</sub>Ar<sub>20</sub>およびArスパッタ膜では、負から正に符号が変わり、Ne<sub>99</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜ではFe層厚11 nm, Arスパッタ膜ではFe層厚6 nmにおいて零磁歪が実現する。Krスパッタ膜においてはこの実験の範囲内では零磁歪は実現しなかった。このように、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の $\lambda_s$ はFe層厚のみでなく、スパッタガスの種類によっても変化することがわかる。図5-2に $\lambda_s$ とNe-Ar混合ガス中のNe分圧との関係を示す。Fe層厚, SiO<sub>2</sub>層厚ともに 5 nmに設定した。図中、triangle symbolはKrスパッタ膜の $\lambda_s$ である。 $\lambda_s$ はNe分圧の増加に伴い連続的に増加する。 $\lambda_s$ のFe層厚依存性も連続的であることから、Ne-Ar混合ガスを用いれば、図5-1において $\lambda_s$ が零となるFe層厚を11nmから5 nmまでの広い範囲で選択できることがわかる。磁歪零付近という条件に正負の幅を持たせ( $\pm 10^{-6}$ )、Krも含めたNe-Ar-Kr混合ガスを用いれば、選択可能なFe層厚の範囲はさらに広がる。この様子を図5-3に説明する。Arガスのみの場合には、磁歪零付近を満たすFe層厚の範囲は図中 $\Delta t_1$ であるのに対し、Ne-Ar-Kr混合ガスを用いるとその範囲は $\Delta t_2$ に広がる。このことは磁歪零付近という条件の下で飽和磁化, 保磁力, 比透磁率(後



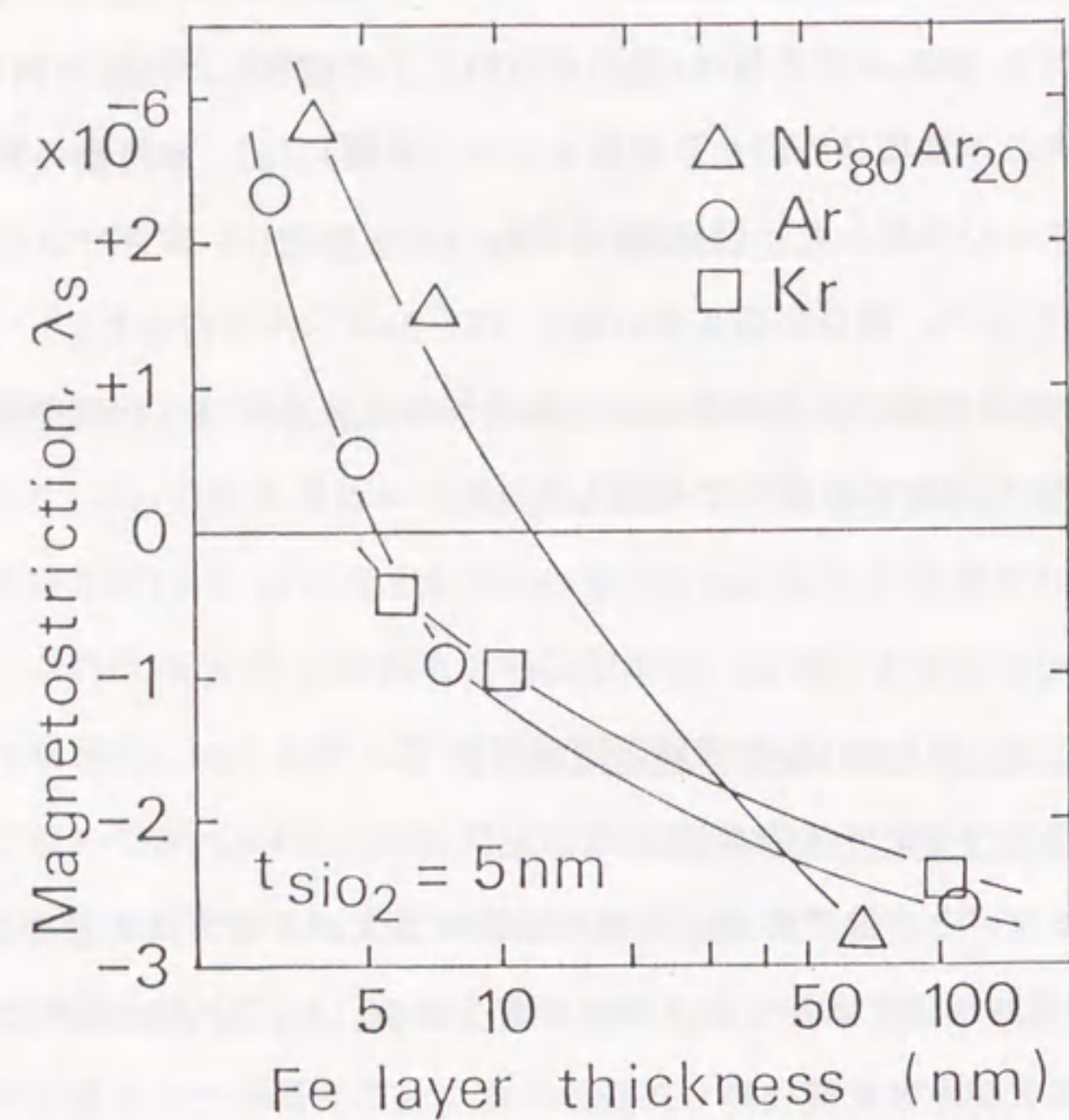


図5-1 磁歪定数のFe層厚依存性

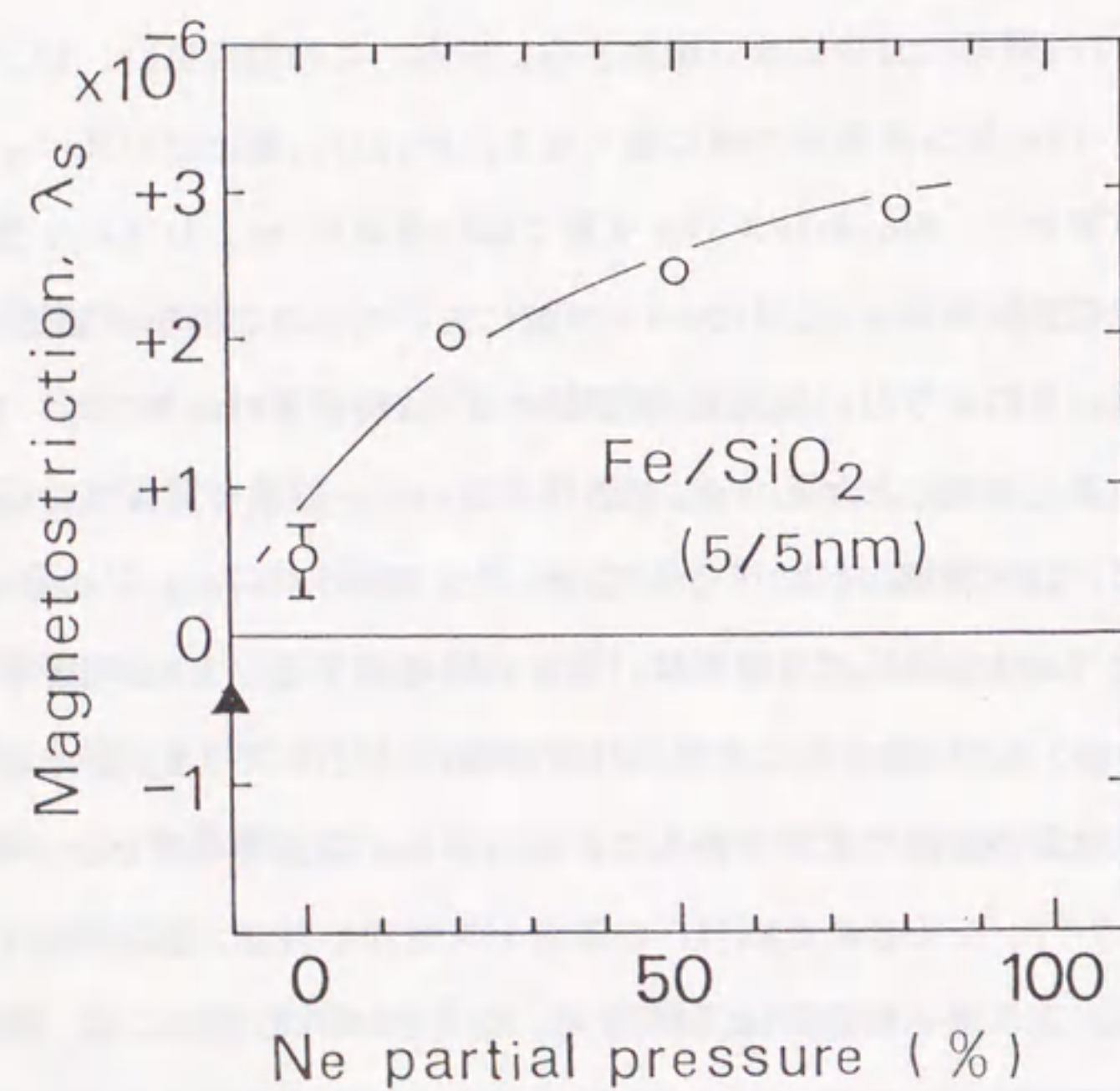


図5-2 磁歪定数のスパッタガス分圧依存性

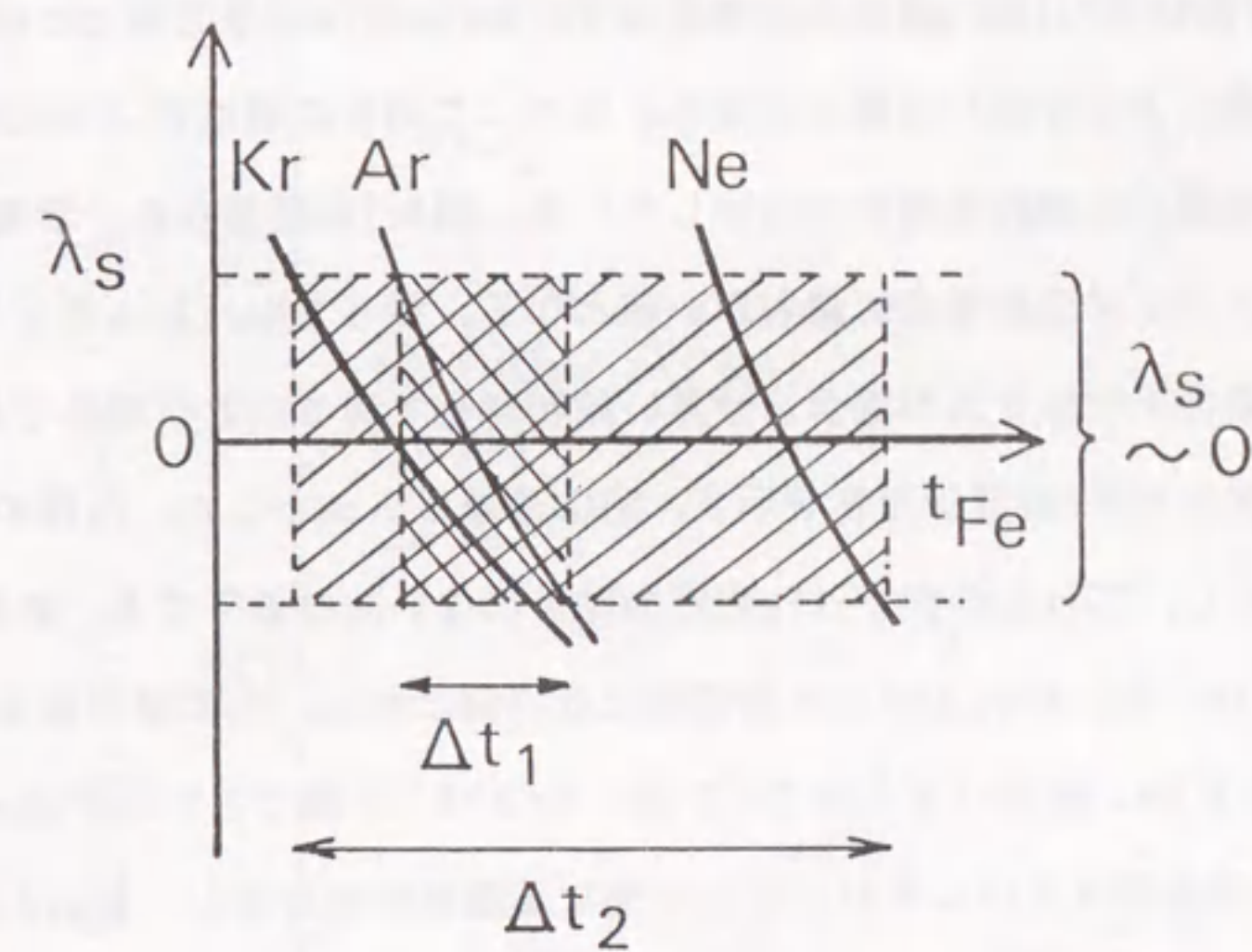


図5-3 磁歪定数とFe層厚とガス分圧比との関係

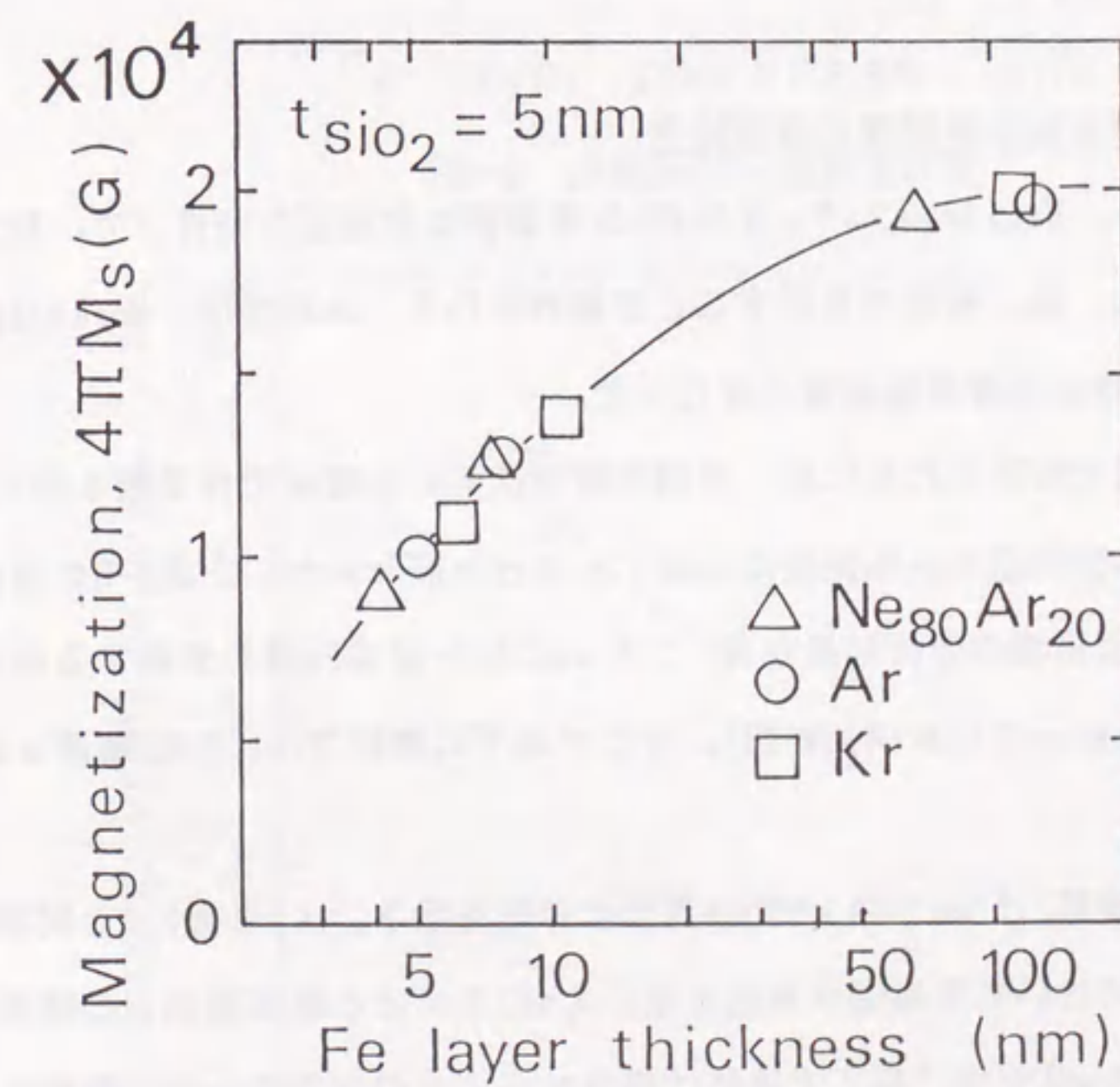


図5-4 飽和磁化のFe層厚依存性



述)の値を比較的広い範囲で制御できることを意味している。

図5-4に飽和磁化( $4\pi M_s$ )のFe層厚依存性を示す。 $4\pi M_s$ はFe層厚の増加に伴い増加し、スパッタガスの種類によらず同一曲線上に乗る。即ち、これらの値は21.5 kGの $4\pi M_s$ を有すFe層と $SiO_2$ 非磁性層との単純体積比で決定している。図5-1の結果から、零磁歪となるFe層厚は $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタ膜の場合に最も厚い値となる。従って $Ne_{80}Ar_{20}$ ガスを使用することにより、零磁歪の下でArガスの場合より高い飽和磁化を得ることが期待できる。

図5-5に保磁力( $H_c$ )のFe層厚依存性を示す。 $SiO_2$ 層厚は5 nmとした。Fe膜の $H_c$ は10 Oe以上であるのに対し、これらの膜ではFe層厚の減少に伴い $H_c$ は低下する。また同じFe層厚では、 $H_c$ はKr, Ar,  $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタ膜の順に低い値となる。 $H_c$ の最小値は、 $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタ膜で0.6 Oe, Arスパッタ膜で1.6 Oe, Krスパッタ膜で2.5 Oeであった。

以上、Fe/ $SiO_2$ 多層膜はスパッタガスにより異なる磁気特性を示し、 $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタFe/ $SiO_2$ 多層膜はAr, Krスパッタ膜より優れた軟磁気特性を示すことがわかった。

### 5-3-2 $Ne$ スパッタFe/ $SiO_2$ 多層膜の磁気特性

前節の結果から、 $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタFe/ $SiO_2$ 多層膜は零磁歪の条件下で、Arスパッタ膜より高い飽和磁化、低い保磁力を示すことが期待される。本節では、 $Ne_{80}Ar_{20}$ スパッタFe/ $SiO_2$ 多層膜における各層厚の最適化を行った。

より高い飽和磁化を得るためには、非磁性層である $SiO_2$ 層はできる限り薄くすべきであり、またFe層を十分分断できる程度には厚くしなければならない。図4-9の透過電子顕微鏡(TEM)による断面形態の分析結果から、2.5 nmの $SiO_2$ 層はFe層を分断するのに十分な厚さであることがわかっている(4-3参照)。そこで以下の検討では、 $SiO_2$ 層厚は2.5 nmに設定した。

図5-6に、 $SiO_2$ 層厚2.5 nmでの $\lambda_s$ のFe層厚依存性を示す。 $\lambda_s$ は図5-1と同様の変化を示し、Fe層厚11 nmにおいて零磁歪が実現する。 $\lambda_s$ の大きさと磁区構造との関係の検討結果(2-3参照)より、 $\lambda_s$ が $\pm 10^{-6}$ 以下であれば磁気ヘッドへの応用のための条件を満たすことがわかっている。従って、図5-6より使用可能なFe層厚の範囲は8~15 nmとなる。

次に軟磁気特性の観点から、Fe層厚の最適化を行う。図5-7に $SiO_2$ 層厚2.5 nmでの $H_c$ と $\mu_r$ のFe層厚依存性を示す。Fe層厚の増加に伴い、 $H_c$ は増加し $\mu_r$ は減少する。Fe層厚10 nm以下の領域で、 $H_c$ は0.3 Oe,  $\mu_r$ は5000以上となる。Fe層厚10 nm以上では、 $H_c$ は増

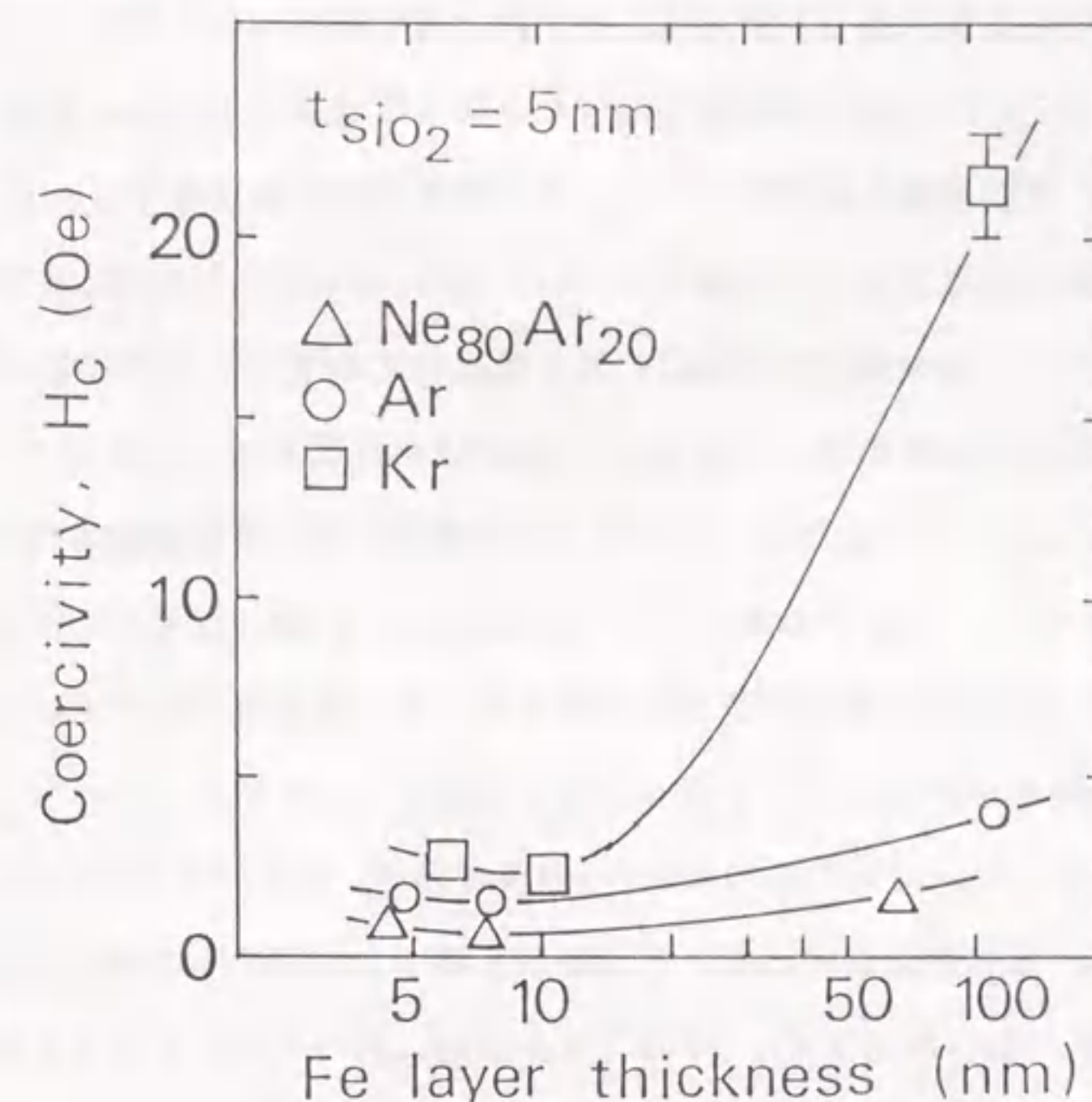


図5-5 保磁力のFe層厚依存性

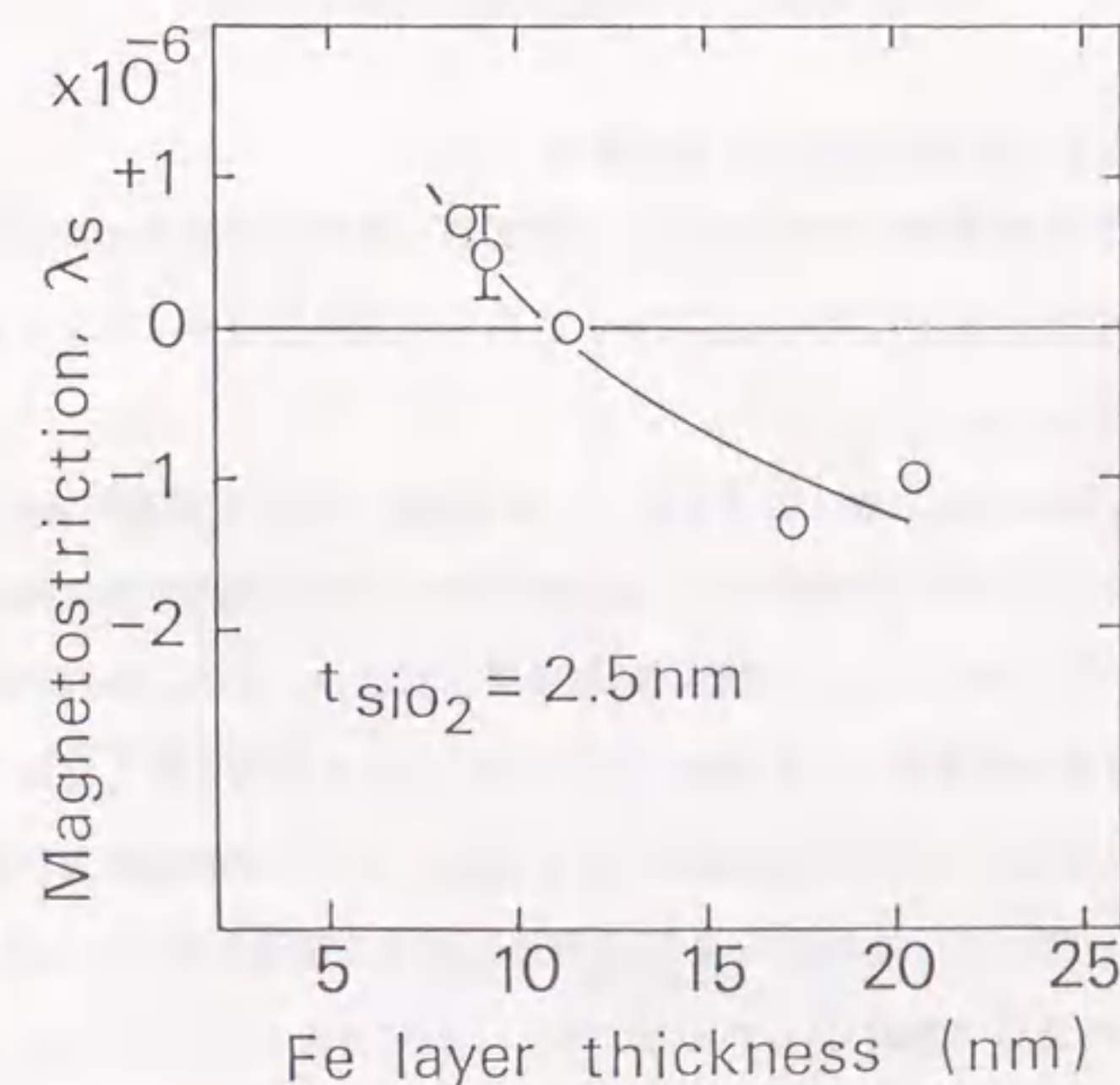


図5-6 磁歪定数のFe層厚依存性



加し $\mu_r$ は急激に減少する。この領域での軟磁気特性の劣化は、Fe層厚の増加に伴うFe結晶粒径の増大により磁気異方性分散が増加したためと考えられる[11,12]。SiO<sub>2</sub>層厚が5 nmの場合と比較すると、2.5 nmでは軟磁気特性がかなり改善されている。非磁性層を挟んだ磁性多層膜では、磁性層間の静磁結合によって磁気異方性分散は低下し、また磁性層間の静磁結合は磁性層の距離に近いほど強くなる[13,14]。従って、SiO<sub>2</sub>層2.5 nmで軟磁気特性が改善されたのは、磁性層間隔の減少に伴う静磁結合の増大が原因と考えられる。以上、磁歪と軟磁気特性の検討から、Fe層厚は10 nm前後が最適と考えられる。

図5-8にNe<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜における困難軸方向のM-H特性を示す。磁歪零付近、アニール無しの条件下で、飽和磁化17.2 kG、保磁力0.3 Oe、比透磁率5000以上が得られた。M-H曲線の傾きから見積られる異方性磁場(H<sub>k</sub>)の値は3 Oe程度であり、 $\mu_r$ の値は $4\pi M_s/H_k$ から得られる値 $\sim 5700$ と比較するとやや小さい。

以上、Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜は、ArスパッタFe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜と比較し、高い飽和磁化と高い比透磁率を持つより高性能な軟磁性膜であることがわかった。なお、Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜においてもArスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜同様、非磁性絶縁体との多層効果が期待できる。

### 5-3-3 磁歪変化および低保磁力化に対する検討

5-3-1ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における磁歪、保磁力のFe層厚依存性は、スパッタガスの種類によって異なることが示された。本節では、これら磁気特性のスパッタガス依存性の原因について検討した。

図5-9, 5-10にNe<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>, Ar, Krイオンビームで作製したFe単層膜およびFe/SiO<sub>2</sub>(5/5 nm)多層膜のXDプロファイルを示す。Fe単層膜はいずれも膜厚方向に強い(110)優先配向性を示し、スパッタガスによる顕著な相違は見られない。他方、Fe/SiO<sub>2</sub>(5/5 nm)多層膜では、(110)以外の回折ピークも現れ、また(110)ピークの幅も広がる。bcc Fe結晶は<100>方向の正磁歪と<111>方向の負磁歪を持ち[15]、そのため結晶配向が変化すれば磁歪定数も変化する。従って、これらFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における磁歪の変化はFe結晶の配向変化が原因と考えられる(4-3参照)。しかしながら、このXD分析の結果からは、スパッタガスによる結晶配向性の顕著な相違は見られない。このことは、結晶配向の変化だけでは磁歪定数の変化を説明できないことを意味している。Fe/SiO<sub>2</sub>界面の膜全体の体積に対する

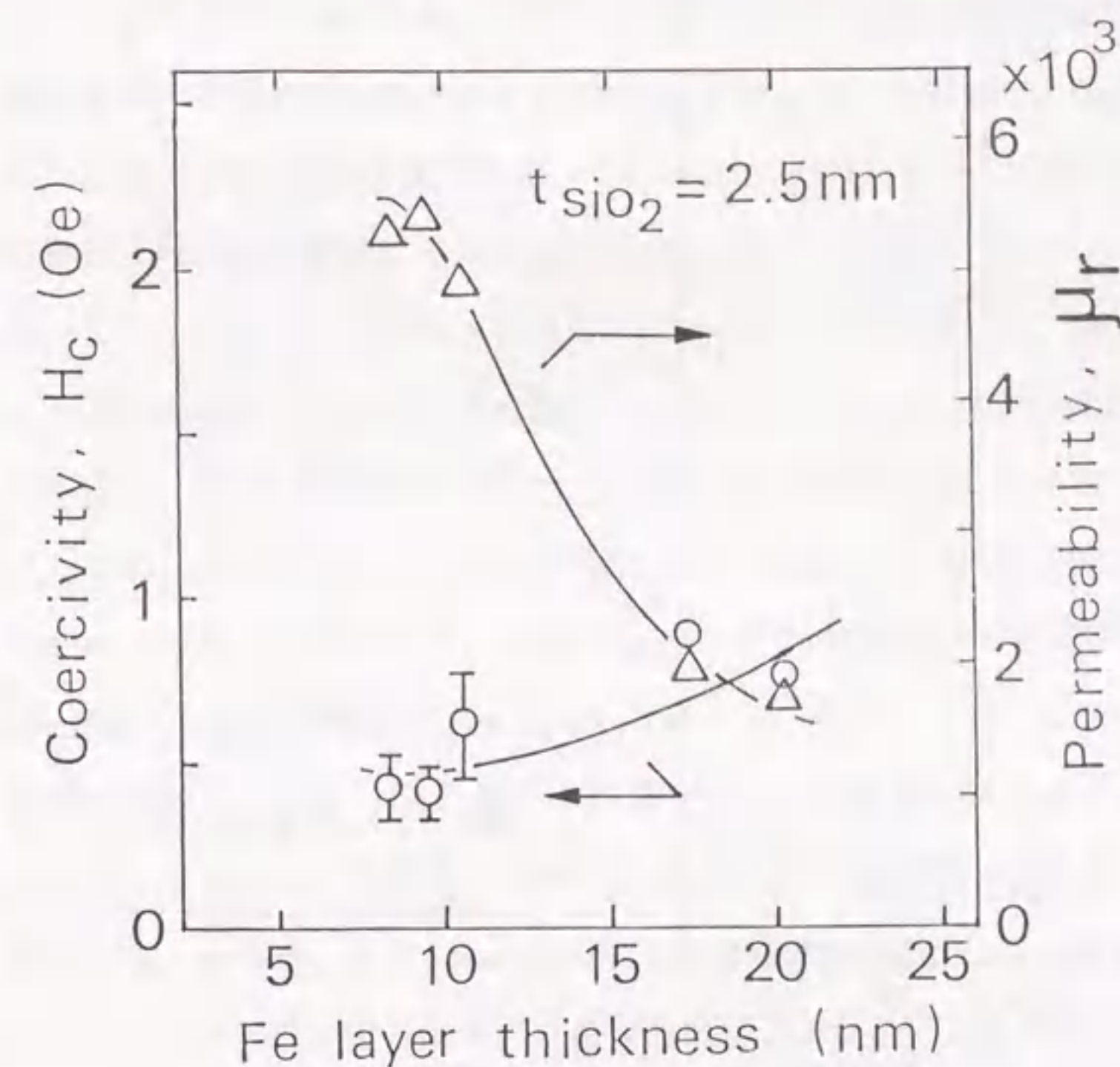


図5-7 保磁力と比透磁率のFe層厚依存性

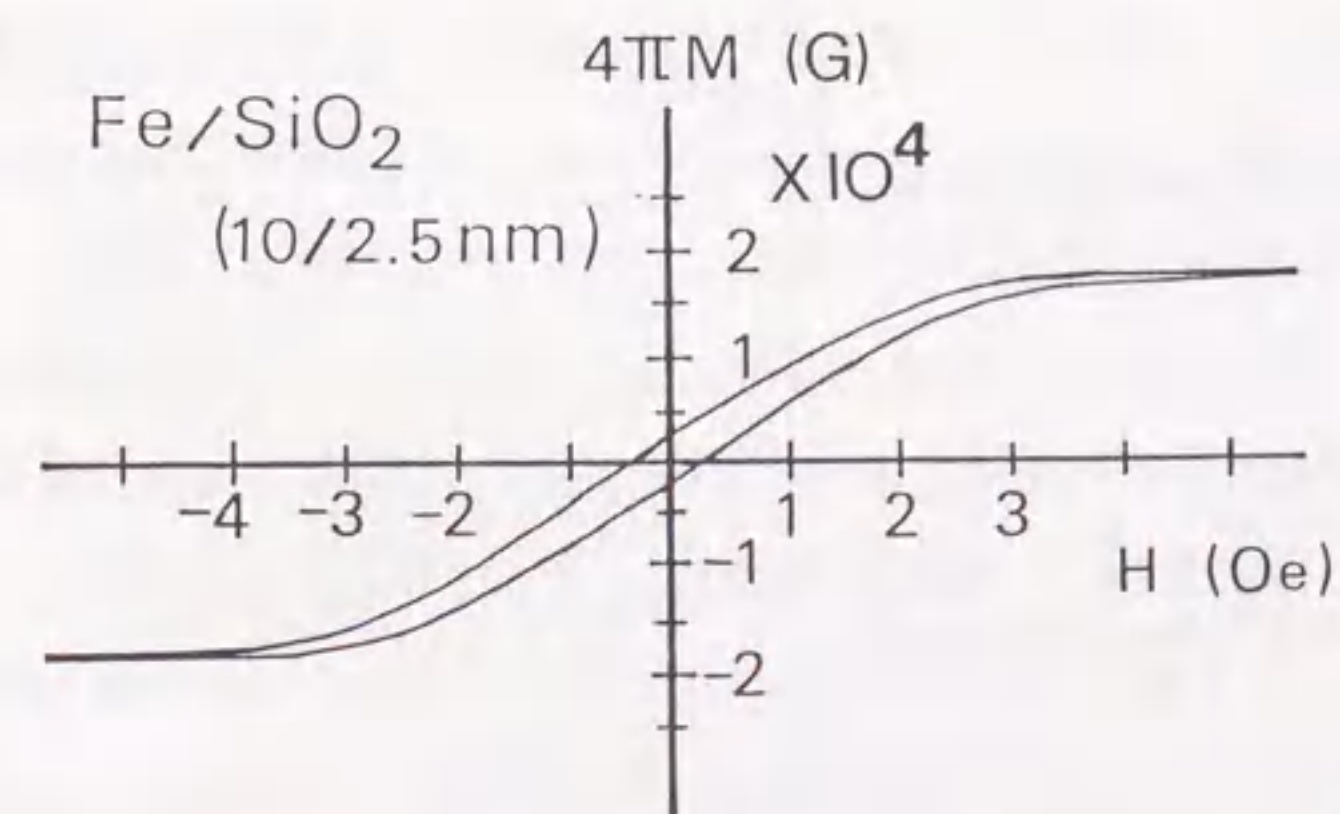


図5-8 M-H特性



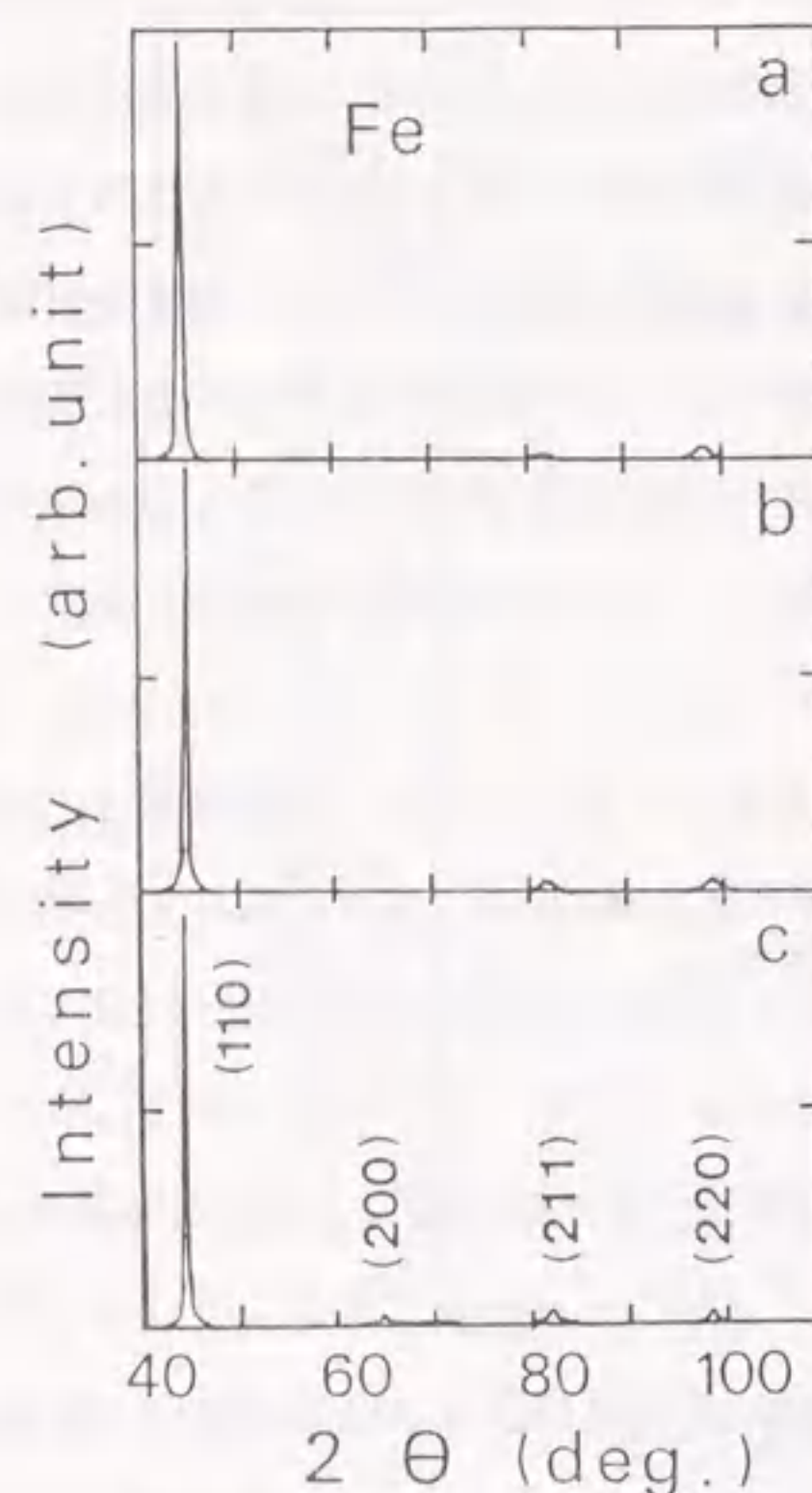


図5-9 Fe単層膜のXRDプロファイル  
a) Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>, b) Ar, c) Krスパッタ膜

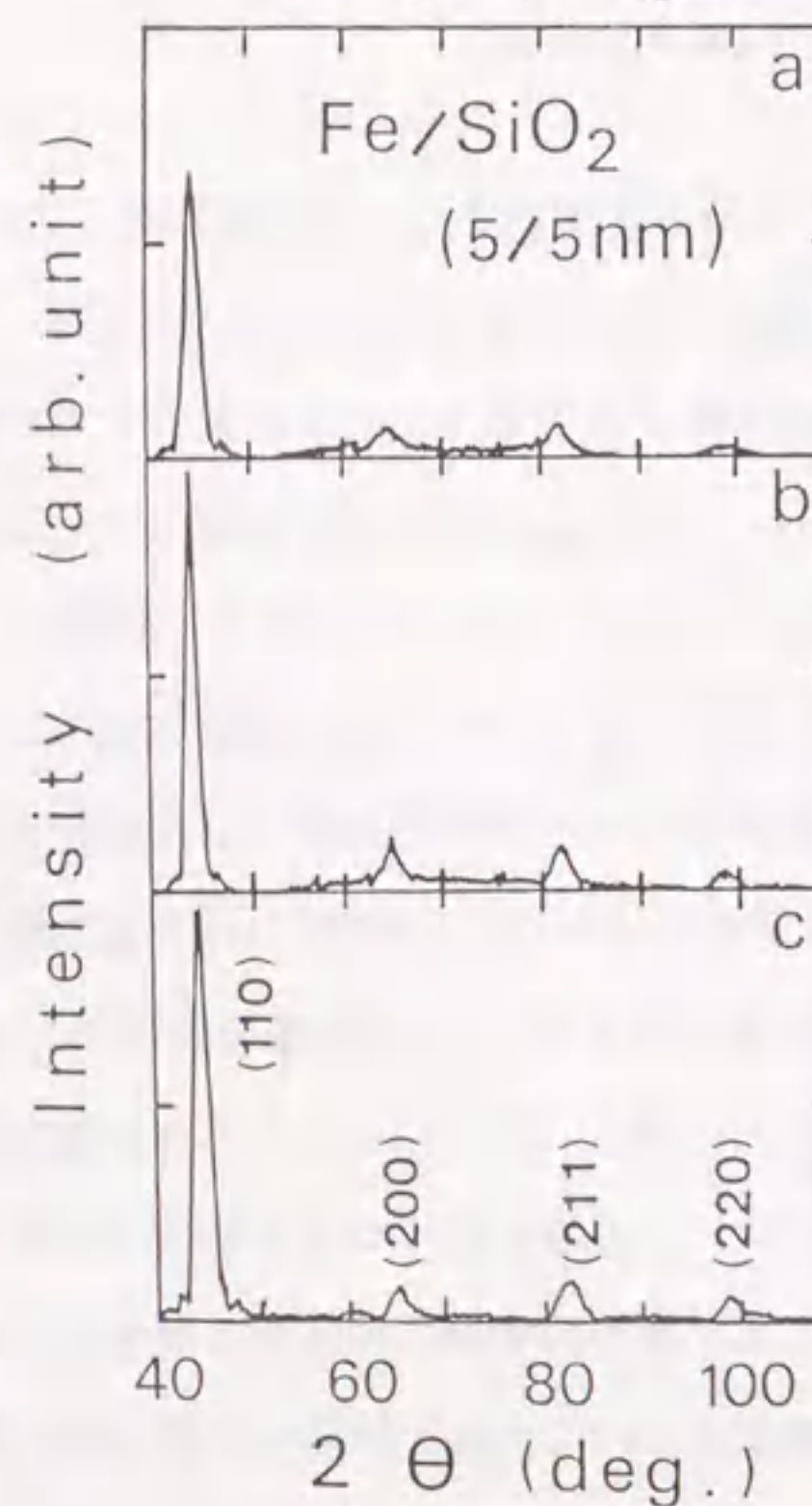


図5-10 Fe/SiO<sub>2</sub>膜のXRDプロファイル  
a) Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>, b) Ar, c) Krスパッタ膜

割合はFe層厚の減少に伴い増加し、この変化は磁歪定数がFe層厚の減少に伴いFe単層膜での値からシフトする様子に対応する。それゆえ磁歪変化はFe/SiO<sub>2</sub>界面の状態が影響している可能性がある。界面状態を調べるためXPS分析を行った。試料は各々のスパッタガスで作製したFe/SiO<sub>2</sub> (5/5 nm)多層膜を使用した。Fe 2p<sub>3/2</sub>スペクトル分析の結果、Fe層からSiO<sub>2</sub>層にかけてFe 2p<sub>3/2</sub>結合エネルギーは一定値を示し、これはスパッタガスの種類によらなかった。また、このエネルギーレベルは純Feのレベルに一致した。Si 2p結合エネルギーのスペクトルおよび深さプロファイルを図5-11に示す。etching timeは表層であるFe層からの深さに対応し、Fe/SiO<sub>2</sub>界面はetching time 3 min.付近にある。Si 2pスペクトルから、Arスパッタ膜, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜ではKrスパッタ膜に比べ界面でのSiの拡散量が多いことがわかる。このことはKrスパッタ膜に比べArスパッタ膜およびNe<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜ではFe/SiO<sub>2</sub>界面での混成領域がわずかながら広がっていることを意味している。またFe層からSiO<sub>2</sub>層に向かうにつれ、Si 2pレベルは高くなりその化学シフト量はスパッタガスに依存する。SiO<sub>2</sub>層中では、Krスパッタ膜のSi 2pレベルは化学量論的組成のSiO<sub>2</sub>中のレベルと一致するが、Arスパッタ膜, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜ではSi 2pレベルは化学量論的組成のSiO<sub>2</sub>中のレベルより低い値を示す。この傾向は界面においても同様であり、混成領域では化学量論的組成のSiO<sub>2</sub>の代わりにSiO<sub>x</sub> (1 < x < 2) が形成されていることがわかる。図5-12にO 1s結合エネルギーのスペクトルおよび深さプロファイルを示す。Krスパッタ膜では界面にO 1sレベルの急激な変化がみられるが、Arスパッタ膜, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜ではO 1sレベルは緩やかに変化する。この緩やかな変化はFe/SiO<sub>2</sub>界面にSiO<sub>2</sub>やFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のものと異なった何等かの結合が存在していることを意味している。以上、Arスパッタ膜およびNe<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜では、界面においてSiがわずかながら拡散しており、またFe/SiO<sub>2</sub>界面にSiO<sub>x</sub>が形成されやすいことがわかった。SiO<sub>x</sub>は化学反応性が強く[16]、界面でO 1sレベルは緩やかに変化的ことから、界面ではFe-Si-O結合が存在すると思われる。従って、磁歪変化のスパッタガス依存性はおそらく正磁歪を持つFe-Si-O結合がKr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜の順に多くなることによって生じているものと考えられる。

次に低保磁力化の原因について検討する。図5-13にFe結晶粒径のFe層厚依存性を示す。図中、closed symbolは膜厚0.5 μmのFe単層膜での値である。Fe層厚10 nm以下で、結晶粒径はFe層厚に比例して増加し、スパッタガスの種類によらず同一線上に乗る。この領域で結晶粒径に差異が見られないのは、XRD分析によって見積られる結晶粒径が膜に垂直方向の値であるため[10] Fe層厚そのものが観測され、面内方向の結晶粒径が評価されていないこ



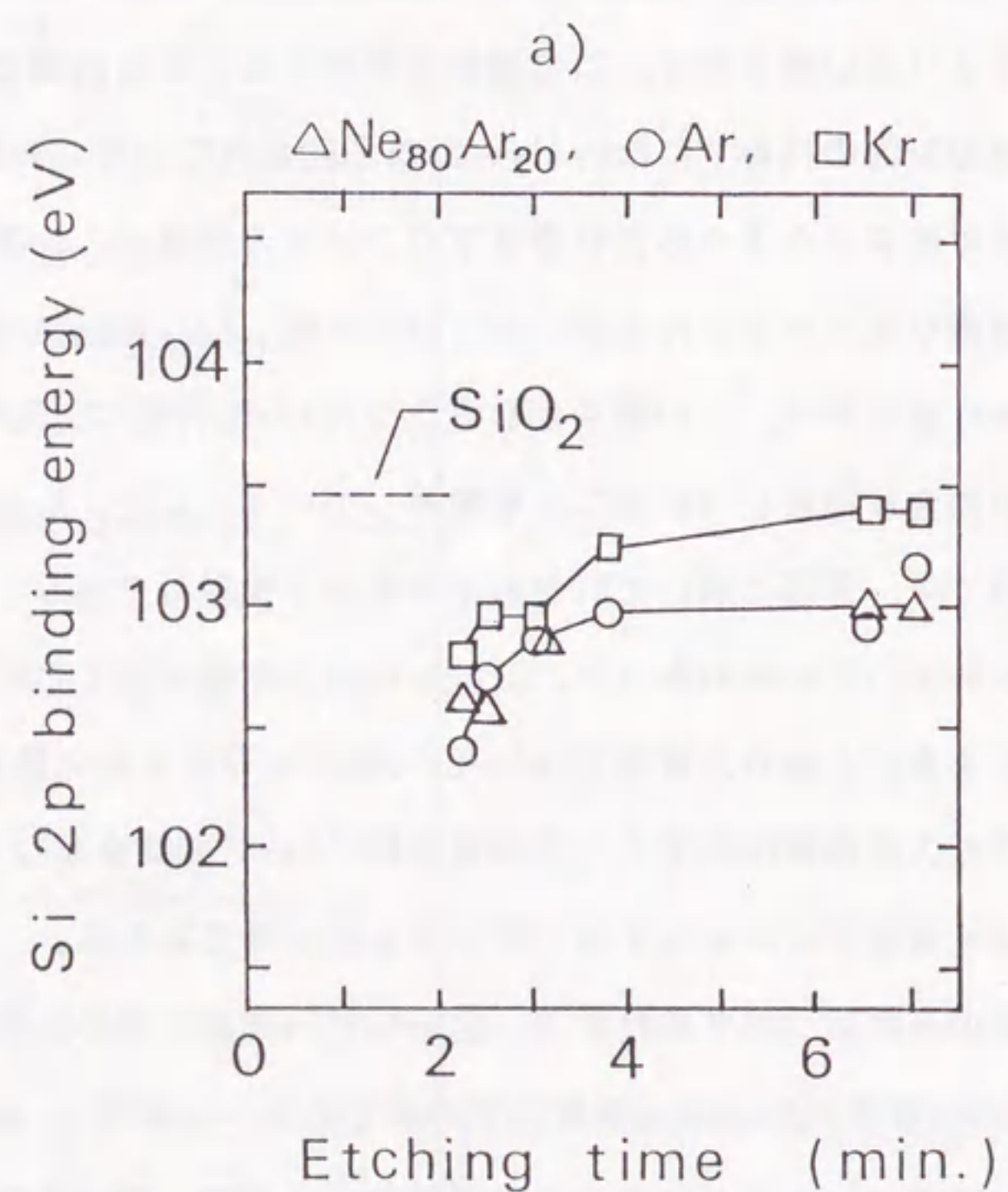
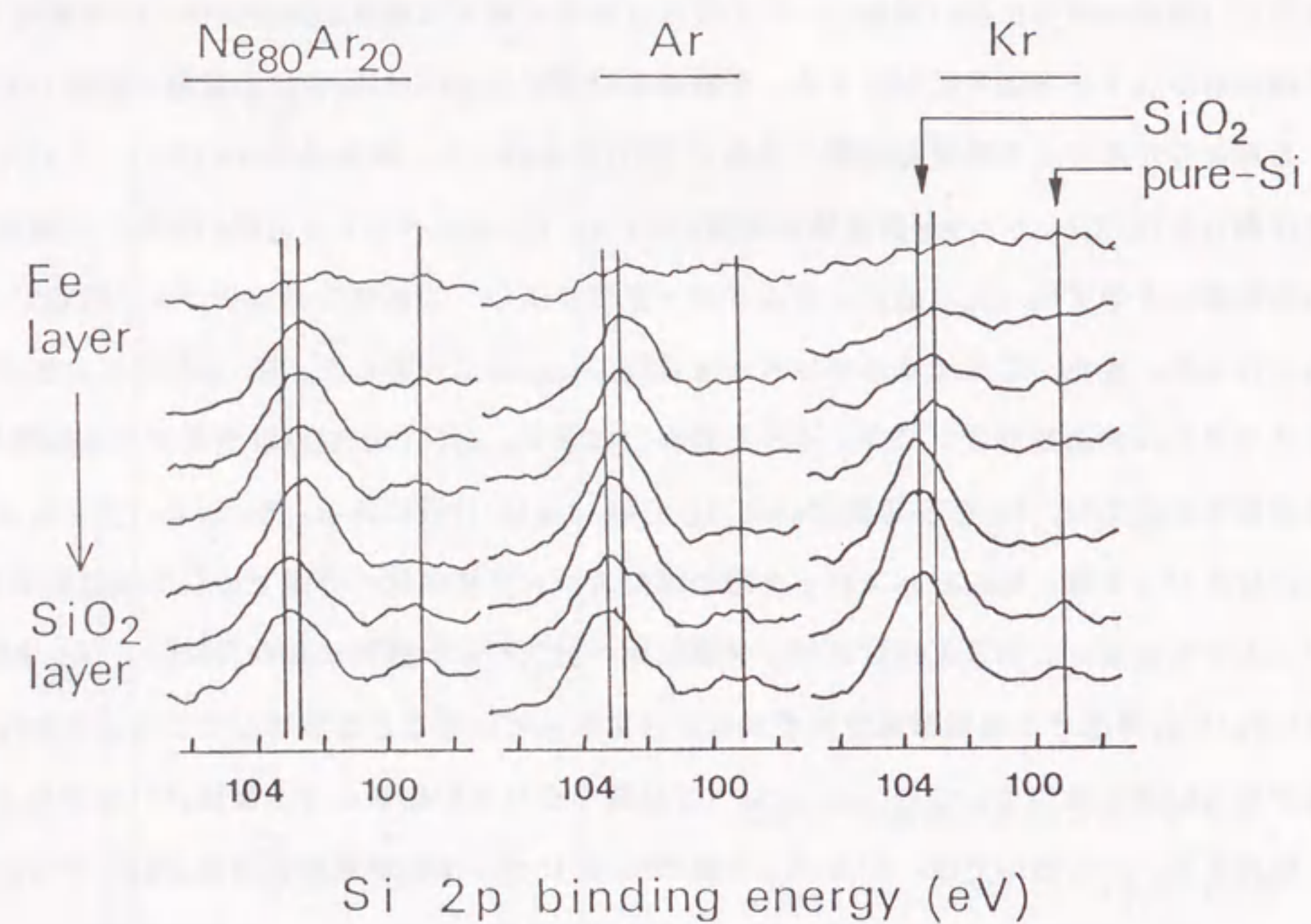


図5-11 a) Si 2p スペクトル, b) Si 2p 結合エネルギーの深さプロファイル

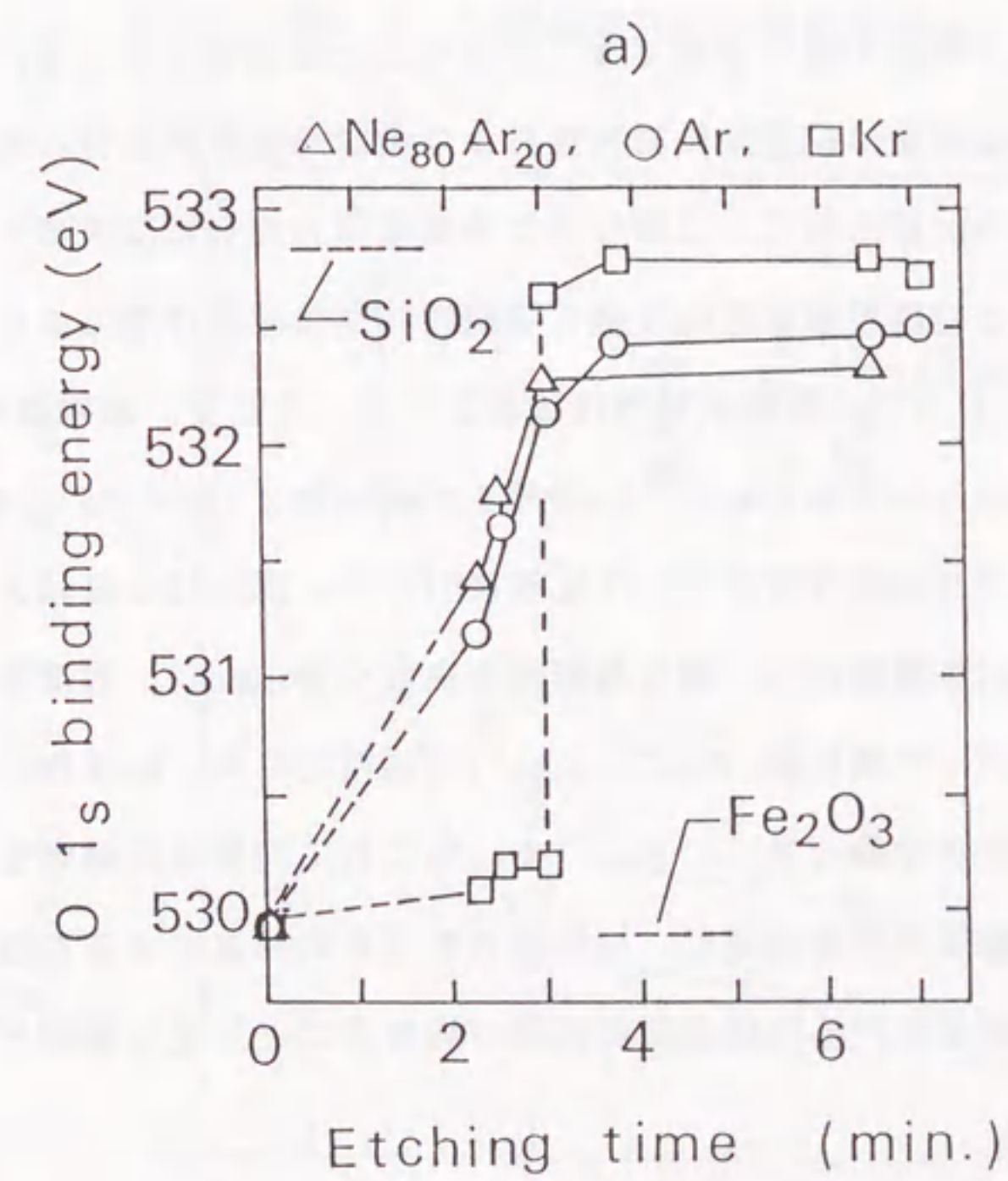
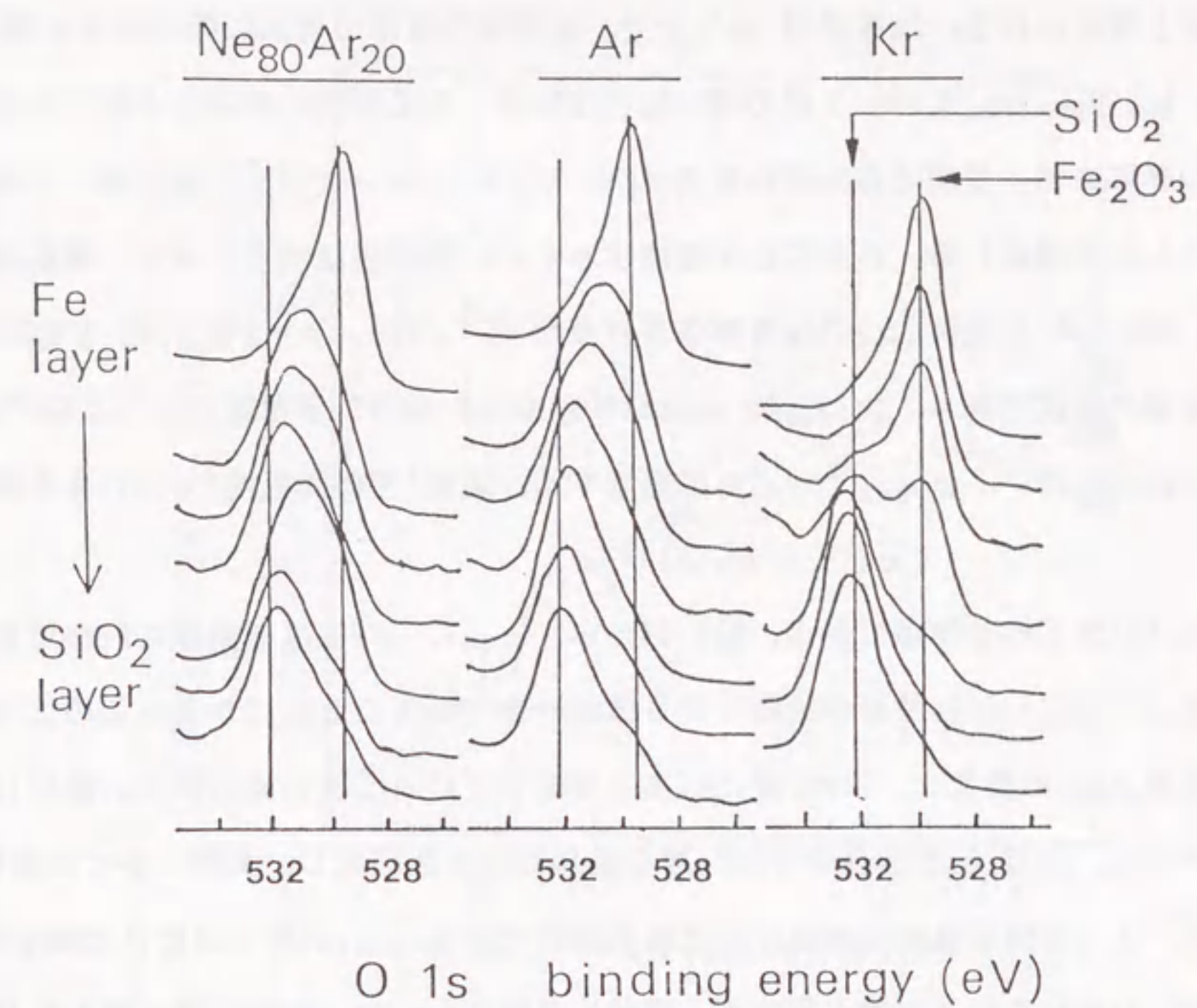


図5-12 a) O 1s スペクトル, b) O 1s 結合エネルギーの深さプロファイル



とが原因と考えられる。Fe層厚10 nm以上で、粒径はFe層厚の増加に伴い徐々に増加する。またKr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜の順に粒径は小さくなる傾向にあることがわかる。それゆえ、Fe層厚の薄い領域でもFe結晶粒径はKr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタ膜の順に小さくなっていることが予想される。このことを確認するため、電気抵抗測定により、結晶粒径を見積った。図5-14に比抵抗( $\rho$ )のFe層厚依存性を示す。 $\rho_{300}$ ,  $\rho_r$ は各々300 Kでの比抵抗および残留比抵抗であり、triangle symbolは膜厚500 nmのFe単層膜における値である。Fe層厚の減少に伴い、 $\rho_{300}$ ,  $\rho_r$ ともに急増する。温度Tでの比抵抗( $\rho(T)$ )を次式で表す。

$$\rho(T) = \rho_a(T) + \rho_r \quad \dots(5-1)$$

ここで $\rho_a(T)$ は温度依存項である。図5-14から、 $\rho_{300}$ ,  $\rho_r$ はほぼ同様のFe層厚依存性を示し、従って $\rho_a(T)$ はFe層厚の変化に対しほぼ一定であることがわかる。このことは図5-14に示す $\rho_{300}$ の変化は、 $\rho_r$ の変化によって生じていることを意味する。図4-10で観察されるように、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜中ではFe層の結晶粒径は微細化し、非常に多くの粒界を含んでいる。よって残留抵抗の原因は主に結晶粒界であり、 $\rho_r$ の変化は粒界の数すなわち結晶粒径に対応していると考えられる。残留比抵抗はKr, Ar, Ne膜の順に高くなり、このことは結晶粒はKr, Ar, Ne膜の順に小さくなっていることを示唆している。Fe結晶粒が大きい場合には、各々の結晶粒は結晶磁気異方性および歪誘導磁気異方性に起因する容易軸を持ち、この容易軸方向は結晶粒ごとに異なるため磁気異方性分散は大きくなる。一方、Fe結晶粒が小さくなると結晶粒界を通して働く強磁性的交換相互作用により磁気異方性分散は小さくなり[11, 12, 17-27]、軟磁気特性は改善される。そこで、軟磁気特性と磁気異方性分散との関係を明らかにするために、Fe層厚を比較的薄くしたFe/SiO<sub>2</sub>多層膜での磁気異方性分散のスパッタガス依存性について比較検討した。図5-15に各種スパッタガスによるFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜のH<sub>c</sub>, 磁気異方性の角度分散( $\alpha_{50}$ ), 強度分散( $\Delta_{50}$ )を示す。 $\alpha_{50}$ ,  $\Delta_{50}$ はArスパッタ膜の値( $\alpha_{50}^*$ ,  $\Delta_{50}^*$ )で規格化した。H<sub>c</sub>はKr, Ar, Ne<sub>80</sub>-Ar<sub>20</sub>スパッタ膜の順に小さな値となり、 $\alpha_{50}$ ,  $\Delta_{50}$ もこれに対応した傾向を示す。従って、スパッタガスによる軟磁気特性の相違は、磁気異方性分散の相違によるものであり、これはスパッタガスにより形成されるFe結晶粒の粒径が異なることが主な原因と考えられる。

#### 5-4 まとめ

本章では高飽和磁化を有し、かつ材料構成の単純な軟磁性材料であるFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の飽和磁化を一層高くすることを目的に、磁気特性のスパッタガス依存性について検討し

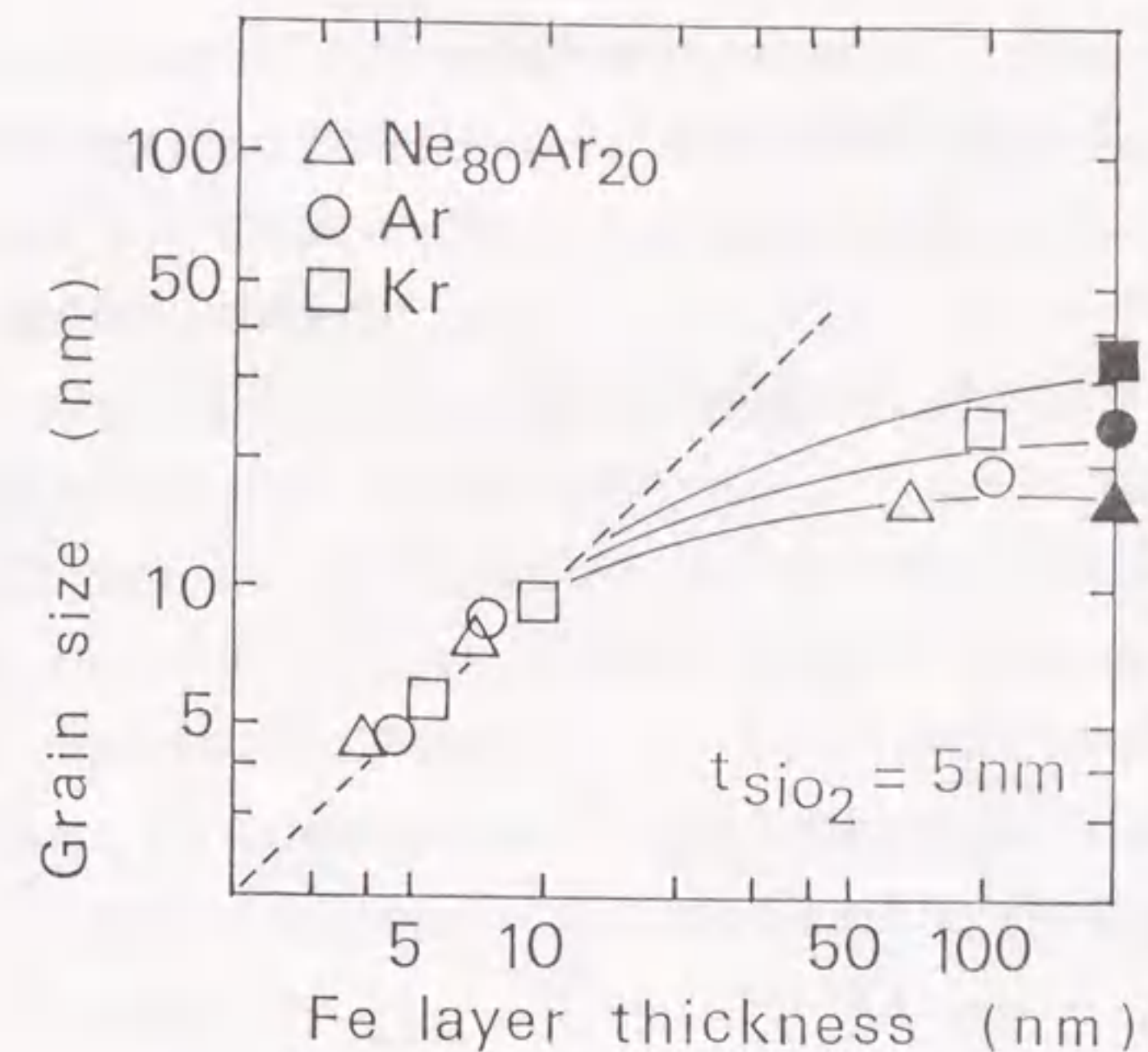


図5-13 Fe結晶粒径のFe層厚依存性

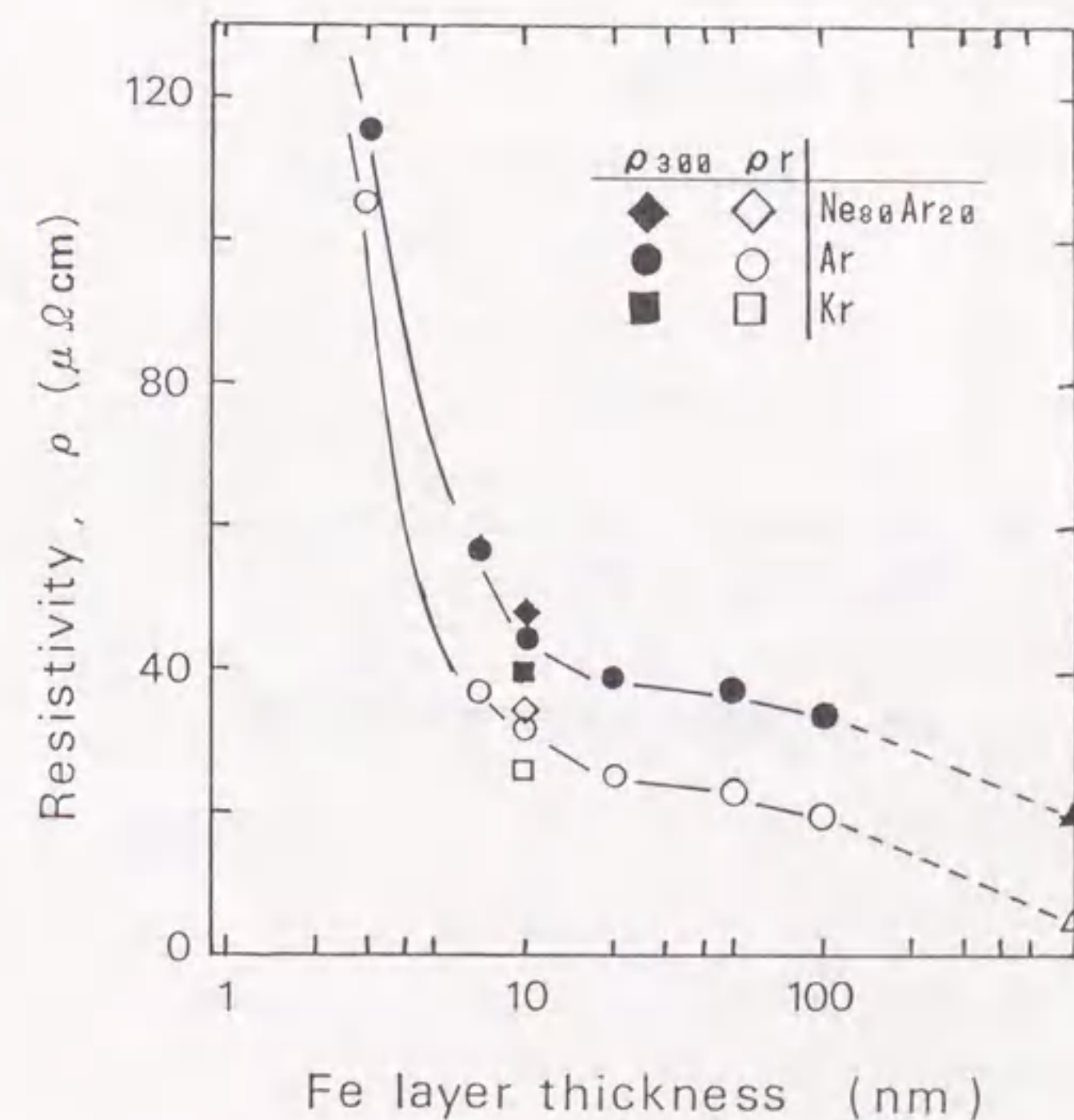


図5-14 比抵抗のFe層厚依存性



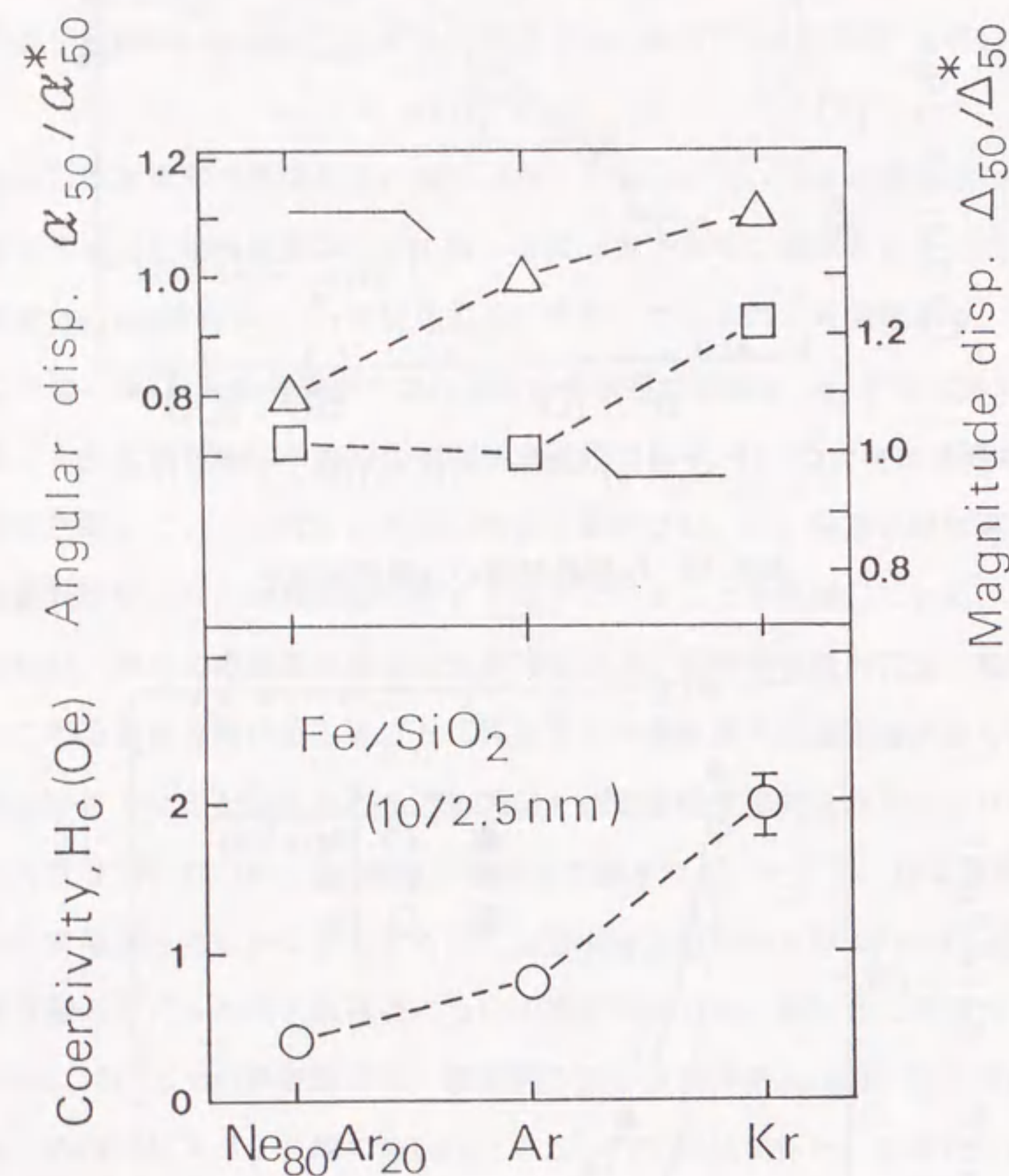


図5-15 保磁力および磁気異方性分散

た。以下に結果を示す。

(1) 零磁歪となるFe層厚はスパッタガスの種類に依存して、Kr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>の順に厚くなる。また、同一Fe層厚における保磁力はKr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>の順に低くなる。多層膜の飽和磁化はいずれのスパッタガスについても、21.5 kGの飽和磁化を有すFe層と、SiO<sub>2</sub>非磁性層との単純体積比によって決まる。

(2) Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜では零磁歪の下、飽和磁化17.2 kG, 保磁力0.3 Oe, 比透磁率5000以上がアニール無しで実現した。

(3) Fe結晶の配向性にはスパッタガス依存性はなく、磁歪変化は結晶配向変化のみでは説明できない。Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>およびArスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜ではKrスパッタ膜に比べFe/SiO<sub>2</sub>界面におけるFe-Si-O結合の存在がより明確化していることから、この界面状態の違いが磁歪変化に影響を及ぼしているものと考えられる。また軟磁性化の違いは、スパッタガスにより形成されるFe結晶粒の大きさが異なり、これに伴う磁気異方性分散の相違が原因と考えられる。

以上、単純な材料構成により、零磁歪の下、17.2 kGの高飽和磁化、5000の高比透磁率を有し、かつ非磁性絶縁体との多層効果を示すNeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。



## 第5章の参考文献

- 1) P. Ziemamm and E. Kay, J. Vac. Sci. Technol., A1, 512 ('83).
- 2) R. W. Moss and M. D. Merz, J. Vac. Sci. Technol., A3, 2694 ('83).
- 3) C. R. Aita and N. C. Tran, J. Appl. Phys., 54, 6051 ('83).
- 4) R. J. Gambino and J. J. Cuomo, J. Vac. Sci. Technol., 15, 296 ('78).
- 5) J. A. Thornton and D. W. Hoffmann, J. Vac. Sci. Technol., 18, 203 ('81).
- 6) E. Kay, F. Parmigiani and W. Parrish, J. Vac. Sci. Technol., A5, 44 ('87).
- 7) E. Klokholm, IEEE Trans. Magn., MAG-12, 819 ('76).
- 8) Paul A. Calcagno and David A. Thompson, Rev. Sci. Instrum., 46, 904 ('75).
- 9) E. J. Torok, et al, J. Appl. Phys., 33, 3037 ('62).
- 10) B. D. Cullity, Elements of X-Ray Diffraction  
(Addison-Wesley, Reading, Ma, '56).
- 11) H. Hoffmann, J. Appl. Phys., 35, 1790 ('64).
- 12) K. J. Harte, J. Appl. Phys., 39, 1503 ('68).
- 13) H. Clow, Nature 194, 1035 ('62).
- 14) A. Yelon, Physics of Thin Films (Academic, New York, '71) Vol. 6.
- 15) E. W. Lee, Rep. Prog. Phys., 18, 184 ('55).
- 16) T. M. Donovan, Thin Solid Films, 116, 41 ('84).
- 17) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo, N. Kumasaka and K. Shiiki,  
J. Appl. Phys., 64, 3157 ('88).
- 18) T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Otomo and N. Kumasaka,  
IEEE Trans. Magn. MAG-23, 2746 ('87).
- 19) T. Miyazaki, F. Sato, K. Takahashi, T. Tanaka and T. Shimazu,  
J. Mag. Soc. Jpn., 13, 241 ('89).
- 20) Y. Hoshi, M. Seki and M. Naoe, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 289 ('89).
- 21) S. Sugeno, H. Okayama and Y. Narumiya, J. Mag. Soc. Jpn., 13, 351 ('89).
- 22) K. Takahashi, H. Shoji, M. Abe, H. Komaba and T. Wakiyama,  
J. Mag. Soc. Jpn., 14, 283 ('90).
- 23) N. Hasegawa and M. Saito, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 313 ('90).

- 24) A. Gyotoku, H. Tomiyasu and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 14, 375 ('90).
- 25) F. Sato and T. Miyazaki, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 307 ('91).
- 26) A. Gyotoku, H. Tomiyama and F. Kobayashi, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 399 ('91).
- 27) N. Hasegawa, M. Saito, N. Kataoka and H. Fujimori, J. Mag. Soc. Jpn.,  
15, 403 ('91).



## 第6章 多層化による高性能軟磁性膜実現のための設計指針

### 6-1 はじめに

前章までの検討により、本研究の目的である、Feをベースとした異種材料との多層化による高性能軟磁性膜の開発に成功した。本研究では、多層化といった人工的な手法により高性能な軟磁気特性の実現を図ったため、ここで用いた材料設計指針、磁気特性制御法から得られる知見には材料開発の面で工業上のみならず、学術的にも興味深い結果がいくつか得られた。本章では、第2章から第5章で扱った各種磁性多層膜における零磁歪化、低保磁力化など磁気特性制御の機構、およびこれらの特性を得るためにとった材料構成などを新たに整理し、高性能軟磁性膜実現のための設計指針を明らかにする。

### 6-2 高性能軟磁性膜実現の設計指針

本研究の材料設計指針および特性制御法を図6-1に整理する。本研究の目的は、薄膜磁気ヘッドなど磁性薄膜部品に要求される、(1)高飽和磁化(高 $4\pi Ms$ )、(2)低保磁力(低 $H_c$ )、高比透磁率(高 $\mu_r$ )、(3)磁場誘起誘導磁気異方性、(4)零磁歪( $\lambda_s \sim 0$ )、(5)良好な膜厚依存性、(6)熱安定性といった磁気特性を有し、かつ有効磁束路幅拡大および高周波特性改善のため、非磁性絶縁体との多層化を行った高性能軟磁性膜の開発であった。Fe膜はそれ自体、負磁歪を示し、また保磁力も10 Oe以上と低くはないが、21.5 kGと単元素物質中最も高い飽和磁化を有するため、高飽和磁化軟磁性膜の有力なホスト材料となり得る。そこで、本研究ではFeの飽和磁化をできるだけ高く維持した状態で、何らかの方法により、零磁歪化および低保磁力化させることを最初の材料設計の方針とした。本研究では、最終的に得たい形態が「薄膜」であること、および非磁性絶縁体との多層化を行うことを前提とした。「磁性多層膜」は数原子層程度の膜厚制御が容易であり、膜厚方向への異種材料の積層化を得意とする近年の薄膜作製技術の利点を最も活かした材料形態といえる。そこで、この薄膜化、多層化技術を発展させた「磁性多層膜」を高性能軟磁気特性実現のための有力な材料形態として選んだ。以上、本研究では、Feをベースとした異種材料との多層化の手法により、零磁歪化、低保磁力化などの磁気特性制御を図ることを基本的

な設計方針とした。

磁気特性制御法における第一の課題は、多層構造により如何なる機構を用いて零磁歪化を図るかという点であった。Fe/Co, Fe/C, Fe/Si, Fe/Ti多層膜など固溶系磁性多層膜では、Fe層の負磁歪と界面に形成される相互拡散層の正磁歪[1-4]との磁歪バランスによって、磁歪変化が生じることがわかった。この磁歪バランスモデルは、界面の組成変調プロファイルの解析により、定量的にも実験結果をうまく説明することが示された。また、正負の磁歪層を交互に重ね合わせた多層膜においても、歪誘導磁気異方性の大きさは多層膜全体の磁歪定数と膜応力によって決定するため、これを零とすることにより歪誘導磁気異方性の影響を回避できることがわかった。一方、Fe/SiO<sub>2</sub>, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe/Cu多層膜など非固溶系磁性多層膜では、Fe層厚の減少に伴い、Fe層の結晶配向が負磁歪に対応する<110>配向から正磁歪に対応する<200>配向[5,6]に移行する様子が観測され、このようなFe結晶の配向変化によって磁歪変化が生じていることがわかった。以上、磁性多層膜では、磁歪バランスあるいは結晶配向変化により零磁歪化が実現し、これらの零磁歪化のための手法は各々、固溶系磁性多層膜、非固溶系磁性多層膜に広く適用できることが明らかとなった。

磁気特性制御法における第二の課題は、低保磁力化の実現という点であった。単純な材料構成により保磁力が顕著な膜厚依存性を示すFe/SiO<sub>2</sub>多層膜について分析を行い、低保磁力化実現のための条件を調べた。その結果、膜面内では磁場誘起誘導磁気異方性による一軸磁気異方性が最大となる場合に、一方、膜厚方向では垂直磁化成分がほとんど零となり磁化がほぼ完全に膜面内に拘束される場合に、保磁力は最小となること、すなわち膜面内ならびに膜厚方向の両方向で、同時に磁気異方性分散が最小となる条件において、低保磁力化が実現するという、磁気異方性分散と保磁力との関係が明らかとなった。Fe層を異種材料層とで多層化すると、Feの結晶成長が抑制され、Fe結晶粒の微細化が生ずる。また、磁性層を非磁性層を介して積層化させた構造では、磁性層間に静磁結合力が働く。磁性多層膜ではこのようなFe結晶粒の微細化および磁性層間の静磁結合により、磁気異方性の分散が低下し[7-10]、保磁力の低下が実現することがわかった。以上、異種材料との多層化は低保磁力化を実現するための有効な手法であることが明らかとなった。

次に、本研究で開発した磁性多層膜の磁気特性と特性制御法の特徴を整理する。表6-1に、本研究における磁性多層膜の特性を、従来の磁気ヘッド用材料と比較する。これら



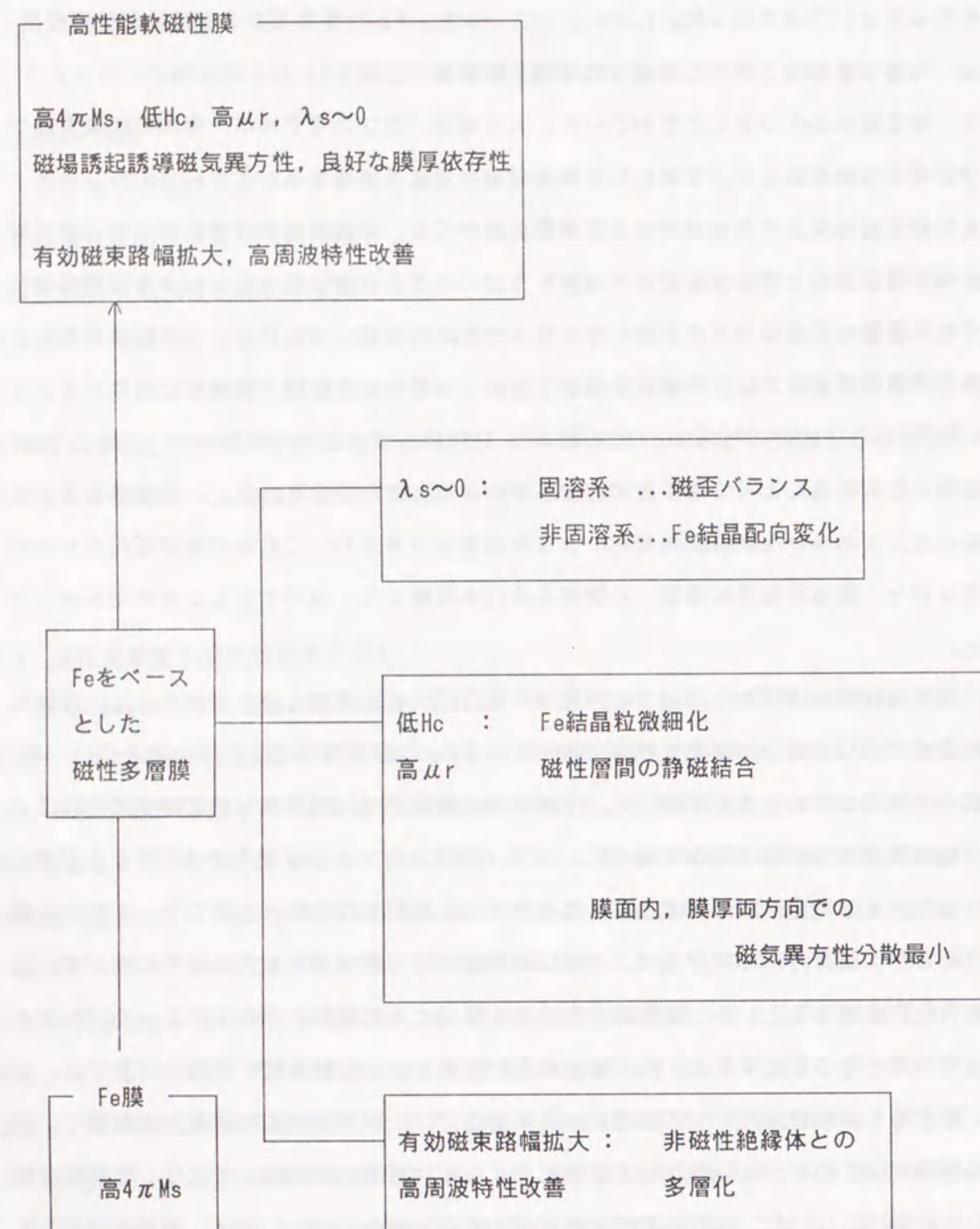


図6-1 本研究における材料設計指針

表6-1 本研究において開発した軟磁性多層膜と  
従来材料との比較

	$\lambda_s$	$4\pi M_s$ (kG)	$H_c$ (Oe)	$\mu_r$	誘導異方性	磁区構造
NiFe	$<\pm 10^{-6}$	10.0	$<0.3$	2000~3000	有り	還流磁区構造
CoZr-Re	$<\pm 10^{-6}$	12.0	0.1	5000	有り	還流磁区構造
NiFe/SiO <sub>2</sub>	$<\pm 10^{-6}$	9.0	$<0.3$	2000~3000	有り	180度磁壁のみ
Fe/Co	$<\pm 10^{-6}$	$>20.0$	1.5	500	有り	還流磁区構造
(Fe/Co)/SiO <sub>2</sub>	$<\pm 10^{-6}$	20.0	$<1.0$	2000	有り	180度磁壁のみ
Ar-Fe/SiO <sub>2</sub>	$<\pm 10^{-6}$	15.5	0.3	$>4000$	有り	180度磁壁のみ
Ne-Fe/SiO <sub>2</sub>	$<\pm 10^{-6}$	17.2	0.3	5000	有り	180度磁壁のみ



の磁性多層膜はいずれも零磁歪( $\pm 10^{-6}$ )および磁場誘起誘導磁気異方性を示し、従来材料であるNiFe合金、CoZr系アモルファス合金と比較し、1.5~2倍の飽和磁化、1~2倍の比透磁率を有する優れた軟磁性膜である。またこれら多層膜の内、非磁性絶縁体との多層化を施した膜は、還流磁区構造の消失による有効磁束路幅の拡大、比透磁率の高周波特性改善、および軟磁気特性の膜厚依存性改善効果など高性能な特性を示す。

本研究における磁性多層膜の磁気特性制御の特徴を従来材料と比較して表6-2、図6-2にまとめる。従来材料であるNiFe合金[11]、CoZr系アモルファス合金[12]では、各々組成制御(Ni83wt.%付近)および異種元素添加(Re, Nb, Taなど)により、零磁歪化を図っている。また、低保磁力化は、NiFe合金では結晶磁気異方性および磁歪がほぼ零となる組成(Ni83wt.%付近)により、CoZr系アモルファス合金ではアモルファス結晶構造により各々実現している。このようにNiFe合金、CoZr系アモルファス合金では、零磁歪、および低保磁力条件を満足させるために、それぞれ飽和磁化の低いNi、あるいは非磁性元素の比率を大きくする必要があり、その結果、膜全体の飽和磁化の低下を招いている。

これに対し、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では、正負の磁歪バランスにより零磁歪化を図った。FeとCoは固溶系であるため、両層の界面には相互拡散により、CoFe合金層が形成される。Fe層、Co層はともに負磁歪であるが、CoFe合金層はほとんどの組成で正磁歪[1]であるため、Fe、Co層の負磁歪とCoFe合金層の正磁歪とが釣り合って膜全体の磁歪は変化する。Feの磁歪定数( $-2 \sim -4 \times 10^{-6}$ )に比較し、Coの磁歪定数( $-10^{-5}$ )、およびCoFe合金の磁歪定数( $+10^{-4}$ )は1桁から2桁大きいいため、Fe/Co多層膜において零磁歪を実現するためにはCo層、CoFe合金層に比較し、Fe層を一桁程度厚くする必要があった。そのため、Fe/Co多層膜は飽和磁化の高いFe層主体の構成とすることができ、膜全体の飽和磁化を20 kG以上と高くすることが可能となった。また、Fe層の結晶成長をCo層により分断し、Feの結晶粒径を微細化するとともに、Fe/Co層をさらにSiO<sub>2</sub>層とで多層化することによって磁性層間に静磁結合を働かせ、これらによって磁気異方性分散を低下させ[7-10]、低保磁力化を図った。

一方、非固溶系であるFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、Feの結晶配向性変化によって磁歪制御を行った。Fe層厚の減少にともない、負磁歪を示す<110>結晶配向性から正磁歪を示す<200>結晶配向性[5,6]に変化し、Fe層厚7 nm付近で零磁歪が実現した。また、SiO<sub>2</sub>層によりFe結晶成長を分断しFe結晶粒の微細化を図るとともに、Fe層間の静磁結合により磁気異方性分散を低下させ[7-10]低保磁力化を図った。飽和磁化はFe層とSiO<sub>2</sub>層との単純体積比で決定した。スパッタガスをArからNeに変えたNeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、磁歪が零

表6-2 各種軟磁性膜における磁気特性制御法

	$\lambda_s \sim 0$	$4\pi M_s$	低Hc, 高 $\mu_r$	誘導異方性	磁区制御
NiFe	組成	Fe, Ni	組成	方向性配列	-
CoZr-Re	Re添加	Co	アモルファス	方向性配列	-
NiFe/SiO <sub>2</sub>	組成	Fe, Ni	組成 磁性層間静磁結合	方向性配列	磁性層間静磁結合
(Fe/Co)/SiO <sub>2</sub>	$\lambda_{sn}$ ランク	Fe, Co	Fe結晶粒微細化 磁性層間静磁結合	方向性配列	磁性層間静磁結合
Fe/SiO <sub>2</sub>	Fe配向変化 Fe/SiO <sub>2</sub> 界面	Fe	Fe結晶粒微細化 Fe層間静磁結合	多層効果	Fe層間静磁結合



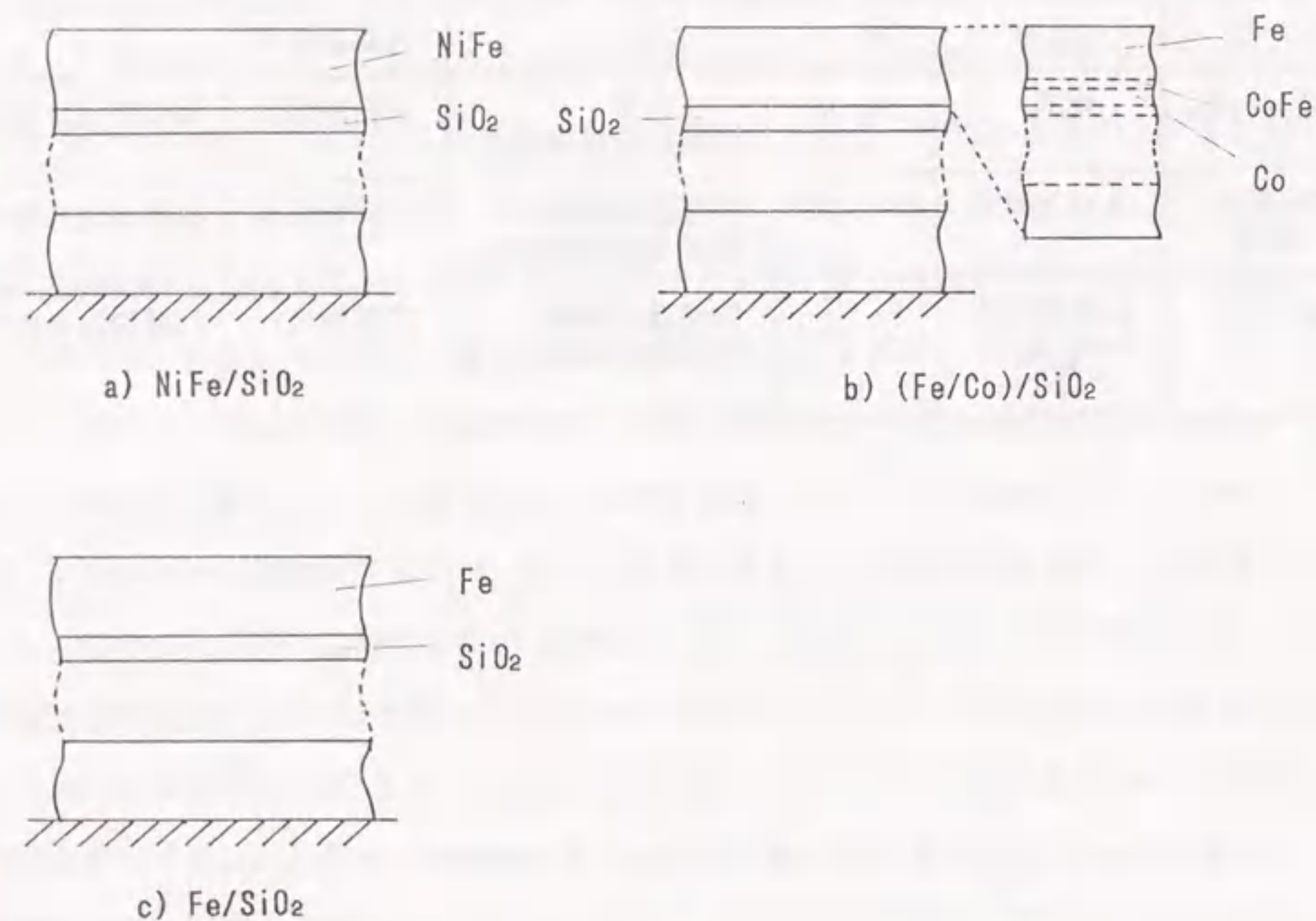


図6-2 磁性多層膜の断面構造

付近となるFe層厚が10 nmとArスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜に比較し厚くなるために、Fe層の層厚を厚く設定することができ、その分、飽和磁化を高くすることが可能となった。また、Neスパッタ膜では、Arスパッタ膜に比べ結晶粒径がより微細となるため、Fe層厚を厚くしてもArスパッタ膜以上の低保磁力化が可能となった。なお、上記(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜はいずれも磁性体と非磁性絶縁体とからなる多層構造を成しているため、NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜同様、有効磁束路幅拡大効果および高周波特性改善効果を示す。

ここで上記磁性多層膜の磁気特性制御法および材料構成を比較してみる。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では、磁歪制御およびFe結晶粒の微細化の役割をCo層が、また有効磁束路幅拡大、および高周波特性改善の役割をSiO<sub>2</sub>層が、それぞれ分担して担っている。これに対しFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、これらの役割をFe層自身あるいはSiO<sub>2</sub>層が担当し、材料構成で見るとCo層が除去された格好となっている。磁気特性の点では、高飽和磁化を有す(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の方が優れた磁気ヘッド用磁性膜といえるが、上記のようにFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜に比較し、大幅な材料構成の単純化が可能となり、このことは材料作製上有利といえる。また、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜では、Co層、CoFe層の各々 $\sim 10^{-5}$ 、 $\sim 10^{-4}$ といった大きな磁歪間の磁歪バランスによって磁歪制御を行っているため、膜厚設定誤差に由来する磁歪制御誤差が大きくなるという課題があった。これに対し、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では、もともと $\sim 10^{-6}$ 程度の小さな磁歪によって磁歪制御が行われているため、磁歪制御誤差が低減され、磁歪制御性が高いという利点もある。なお、従来材料であるNiFe合金膜、CoZr系アモルファス合金膜においても有効磁束路幅拡大、および高周波特性改善効果を図るためには、SiO<sub>2</sub>など非磁性絶縁体と多層化し、図6-2-aのような構造とすることが必要である。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性制御法を従来材料の制御法と比較すると、これら磁性多層膜では単元素物質層の層厚のみによって特性制御が可能であるため、膜組成制御が不要となっている。このように本研究で開発した磁性多層膜は従来材料と比較した場合、より高性能な磁気特性を示すのみでなく、特性制御性の点でも優れているといえる。以上の本研究で扱った磁性多層膜における磁気特性、材料構成改善の流れを図6-3にまとめる。

### 6-3 まとめ

本章では、各種磁性多層膜における零磁歪化、低保磁力化などの機構を新たに整理し、



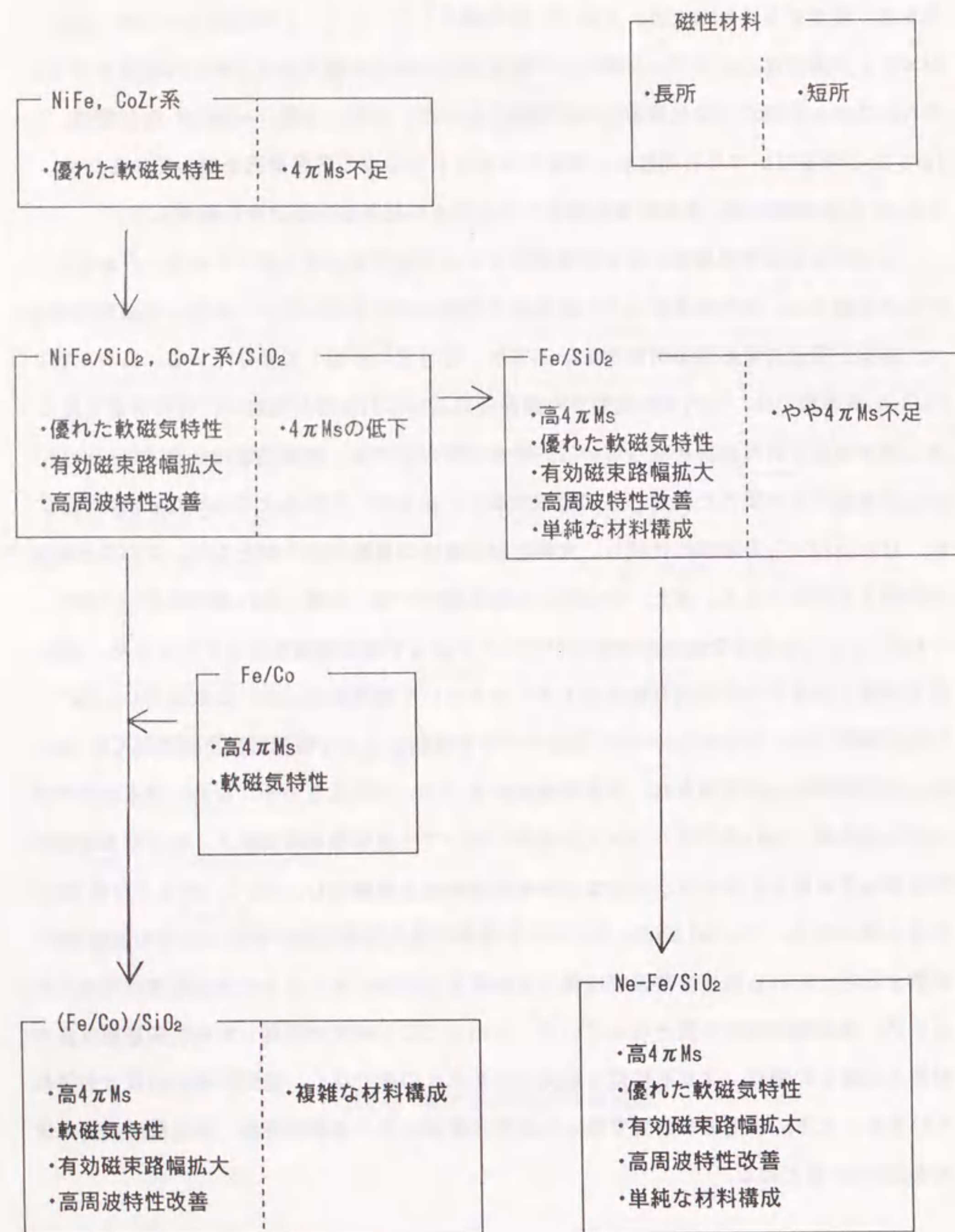


図6-3 磁気特性，材料構成改善の流れ

多層化の手法による高性能軟磁性膜実現のための、材料設計指針，および磁気特性制御法を明らかにした。以下に要点を示す。

(1)単元素物質中最も飽和磁化の高いFeをホスト材料とし、Feの飽和磁化をできるだけ高く維持させたまま、異種材料との多層化により、零磁歪化，低保磁力化を図ることを基本的な材料設計の方針とした。また、有効磁束路幅拡大，および高周波特性改善のためには、非磁性絶縁体との多層化による効果を利用した。

(2)磁性多層膜では、Fe層の負磁歪と相互拡散層の正磁歪との正負の磁歪バランス、あるいはFe層の結晶配向性の変化により、零磁歪化が実現する。前者の手法は固溶系磁性多層膜へ、一方、後者の手法は非固溶系磁性多層膜へ、広く適用できる。

(3)保磁力と磁気異方性分散には密接な関係があり、保磁力最小は、膜面内ならびに膜厚方向の両方向で同時に磁気異方性分散が最小となる条件で実現する。磁性多層膜では、異種材料層との多層化による結晶成長抑制によって結晶粒の微細化が、また非磁性層との多層化によって磁性層間の静磁結合が生じ、これらによって一軸磁気異方性の磁気異方性分散が低下し、低保磁力が実現する。このように、磁性多層膜は低保磁力化を図るための有効な材料形態である。

(4)本研究で得られた磁性多層膜は、従来材料と比較し、1.5～2倍の飽和磁化，1～2倍の比透磁率を有し、かつ有効磁束路幅拡大および高周波特性改善効果を示す高性能な軟磁性膜である。



## 第6章の参考文献

- 1) R. C. Hall, J. Appl. Phys., 30, 816 ('59).
- 2) R. M. Bozorth, Ferromagnetism (Van Norstrand, Princeton, NJ, '51)
- 3) E. Tatsumoto and T. Okamoto, J. Phys. Soc. Jpn., 14, 1588 ('59).
- 4) W. S. Chan, K. Mitsuoka, H. Miyajima and S. Chikazumi,  
J. Phys. Soc. Jpn., 48, 822 ('80).
- 5) E. W. Lee, Rept. Prog. Phys., 18, 184 ('55).
- 6) N. Ishiwata, C. Wakabayashi and T. Matsumoto,  
IEEE Trans. Magn., MAG-23, 2152 ('88).
- 7) H. Hoffmann, J. Appl. Phys., 35, 1790 ('64).
- 8) K. J. Harte, J. Appl. Phys., 39, 1503 ('68).
- 9) H. Clow, Nature, 194, 1035 ('62).
- 10) A. Yelon, Physics of Thin Films (Academic, New York, '71) Vol. 6.
- 11) 近角聡信, 強磁性体の物理(上, 下), 裳華房 ('84).
- 12) 島田寛, 日本金属学会会報, 22, 953 ('83).

## 第7章 結論

### 7-1 各章のまとめ

本研究では薄膜磁気ヘッドなどの薄膜部品に要求される高飽和磁化, 低保磁力, 高比透磁率, 零磁歪, 磁場誘起誘導異方性などの磁気特性を示し, かつ広い有効磁束路を持ち高周波特性に優れた高性能な新軟磁性材料の開発を目的にFeをベースにした磁性多層膜の磁気特性について検討した。以下に各章のまとめを述べる。

第2章では磁性体と非磁性絶縁体とから成る多層膜における多層効果を確認するため, NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜を作製し, その磁気特性について検討した。NiFe膜の磁歪定数と磁気異方性との関係を調べた結果, 微細加工した磁性膜では逆磁歪効果による歪誘導磁気異方性が全磁気異方性の中で支配的となる場合があることがわかった。目安として磁歪定数を $\pm 10^{-6}$ 以下と小さくすることにより歪誘導磁気異方性の影響を回避でき, 磁場誘起誘導磁気異方性による安定な磁気異方性制御が可能となることが確認できた。NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜における断面構造分析の結果から, 本研究で使用したイオンビームスパッタ法により各層が層内に連続的で層厚も設定通りとなる多層膜が形成されていることが確認された。NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜では磁性層, 非磁性絶縁層の層厚をある程度薄くし積層回数を多くすることによって, 還流磁区構造が消失し単磁区あるいは180度磁壁のみから成る磁区構造となり, 有効磁束路幅が拡大されることが確認できた。また多層膜においてもその磁気異方性は磁場誘起誘導磁気異方性によって制御可能であることがわかった。NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜ではNiFe単層膜と比較し, 比透磁率の高周波特性が大幅に改善され, また膜厚の減少に伴う軟磁気特性の劣化が改善されることがわかった。

以上, NiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜において磁性体/非磁性絶縁体 多層効果である, 有効磁束路幅の拡大, 高周波特性の改善, および軟磁気特性の膜厚依存性改善効果を確認し, 磁性体/非磁性絶縁体 多層構造が薄膜部品用軟磁性膜の高性能化に対し, 有効な手法であることを明らかにした。

第3章では磁性体/非磁性絶縁体 多層膜において問題となる飽和磁化の低下を解決することを目的に, 高い飽和磁化を有した新しい軟磁性材料の開発を目指して磁性体同士の



多層構造からなる磁性多層膜の磁気特性について検討した。Feと多層化させる磁性体としては飽和磁化が高いCo, CoFeを使用した。その後、磁性体としてFe/Co多層膜を非磁性絶縁体としてSiO<sub>2</sub>を選び、これらを交互に積層した(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化、多層効果の確認、および磁気特性の検討を行った。各層厚を変化させることにより膜全体の保磁力、磁歪定数は変化し、零磁歪の下、Fe/Co(15/0.5 nm)多層膜では飽和磁化( $4\pi M_s$ ) = 21 kG, 保磁力( $H_c$ ) = 1.5~2 Oeが、一方、Fe/CoFe(10/0.5 nm)多層膜では $4\pi M_s$  = 21 kG,  $H_c$  = 6.5 Oeが実現した。またこれらの多層膜は磁場誘起誘導磁気異方性を示した。Fe/Co多層膜の保磁力は300℃アニールにより0.8 Oeまで低下した。これらの多層膜における磁歪変化を説明するモデルとして、Fe層, Co層の負磁歪とCoFe相互拡散層の正磁歪との磁歪バランスを仮定するモデルを提案した。磁歪変化測定およびメスバウア分析による組成変調プロファイルの解析により、この磁歪バランスモデルは定量的にも正しいことを確認した。また低保磁力化は結晶粒の微細化に伴う磁気異方性分散の低下が、一方、磁場誘起誘導磁気異方性はCoFe層における方向性規則配列が原因であることがわかった。なお、Fe/Co, Fe/CoFe多層膜のように正磁歪の磁性層と負磁歪の磁性層の重ね合わせから成る磁性多層膜では、各層は独立の容易軸を持つことはできず、均一な単層の磁性膜同様、共通の容易軸を持つこと、および歪誘導磁気異方性の大きさは多層膜全体の磁歪定数と膜応力によって決定していることを確認した。従って、このような磁性多層膜の磁歪定数は均一磁性膜の場合と同様の物理的意味を持ち、これを零とすることにより歪誘導磁気異方性の影響を回避できることがわかった。(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜について各層厚の最適化および多層効果の確認を行った結果、Fe層厚15 nm, Co層厚0.5 nm, Fe/Co層厚62 nm, SiO<sub>2</sub>層厚5 nmの場合に零磁歪,  $4\pi M_s$  = 20 kG,  $H_c$  = 1 Oe, 比透磁率( $\mu_r$ ) = 2000の優れた軟磁気特性が総膜厚0.3  $\mu$ m以上で実現した。また、非磁性絶縁体との多層効果である還流磁区構造の消失による有効磁束路幅拡大効果および軟磁気特性の改善効果も確認できた。

以上、零磁歪の下、20 kGの高飽和磁化、2000の高比透磁率を有し、かつ多層効果を示す新軟磁性材料(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。

第4章では(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となった材料構成の複雑さを解決することを目的に、高い飽和磁化および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料の開発を目指してFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性について検討した。まずFeと各種非磁性体との多層膜の磁気特性について検討した結果、Fe/SiO<sub>2</sub>, Fe/Cu, Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>多層膜など非固溶系

磁性多層膜ではFeの結晶配向変化により、一方、Fe/C, Fe/Si, Fe/Ti多層膜など固溶系磁性多層膜ではFe層の負磁歪と相互拡散層の正磁歪との磁歪バランスにより磁歪変化が生じることがわかった。また、これらの多層膜ではFe結晶粒の微細化に伴う磁気異方性分散の低下およびFe層間の静磁結合に伴う磁気異方性分散の低下により低保磁力化が実現していることがわかった。非磁性体としてSiO<sub>2</sub>を選び各層厚の最適化を行った結果、Fe/SiO<sub>2</sub>(7/2.5 nm)多層膜において零磁歪の下、飽和磁化( $4\pi M_s$ ) = 15.5 kG, 保磁力( $H_c$ ) = 0.3 Oe, 比透磁率( $\mu_r$ ) = 4300が実現し、軟磁気特性は総膜厚がサブミクロンの領域でも維持された。 $\mu_r$ は250℃アニールにより5000まで向上した。また、非磁性絶縁体との多層効果である有効磁束路幅拡大効果も確認できた。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜では単元素物質であるFeのみの非常に単純な構成により優れた軟磁気特性が実現していることから、この系をモデルとして軟磁気特性実現のための条件を調べた。磁気異方性の解析結果から、膜面内では磁性層間の静磁結合およびFe結晶粒の微細化により一軸磁気異方性分散の低化が生じていること、一方、膜厚方向では界面磁気異方性、およびFe層の柱状構造に由来した形状磁気異方性、結晶磁気異方性、あるいは磁壁内磁化による垂直磁化成分が発生することがわかった。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の保磁力最小は、膜面内一軸磁気異方性が最大値をとり、かつ全垂直磁気異方性が最小となって磁化がほぼ完全に膜面内に拘束される条件、すなわち膜面内の一軸磁気異方性分散最小条件と、膜厚方向の磁気異方性分散最小条件が同時に満たされることにより実現していることが明らかになった。

以上、零磁歪の下、1.55 Teslaの高飽和磁化、4000~5000の高比透磁率、および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。

第5章ではFe/SiO<sub>2</sub>多層膜において課題となった飽和磁化の不十分さを解決することを目的に、一層の高い飽和磁化および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新しい軟磁性膜の開発を目指してFe/SiO<sub>2</sub>多層膜のスパッタガス依存性について検討した。零磁歪となるFe層厚はスパッタガスの種類に依存し、Kr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>の順に厚くなり、また保磁力はKr, Ar, Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>の順に低くなった。また、これらの膜の飽和磁化は、Fe層とSiO<sub>2</sub>非磁性層との単純体積比で決定されていることがわかった。Ne<sub>80</sub>Ar<sub>20</sub>スパッタFe/SiO<sub>2</sub>(10/2.5 nm)多層膜において零磁歪の下、飽和磁化( $4\pi M_s$ ) = 17.2 kG, 保磁力( $H_c$ ) = 0.3 Oe, 比透磁率( $\mu_r$ ) = 5000以上がアニール無しで実現した。スパッタガスによる磁歪変化の違いはFe結晶配向性の変化のみでは説明できず、Fe-Si-O結合などFe/SiO<sub>2</sub>界面における



化学状態の違いが影響を及ぼしていることがわかった。また軟磁気特性の違いは、スパッタガスに依存して形成されるFe結晶粒径が異なり、これに伴う磁気異方性分散の相違が原因であることがわかった。

以上、零磁歪の下、17.2 kGの高飽和磁化、5000の高比透磁率、および多層効果を示し、かつ材料構成の単純な新軟磁性材料NeスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の開発に成功した。

第6章では、第2章から第5章にかけて検討したNiFe/SiO<sub>2</sub>、(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜などにおける零磁歪化、低保磁力化の機構、磁気特性制御法、および材料構成の特徴を比較整理した。またその結果を基に、磁性多層膜における高性能軟磁気特性実現のための材料設計指針を明らかにした。本研究では、単元素物質中最も飽和磁化の高いFeをホスト材料とし、Feの飽和磁化をできるだけ高く維持させたまま、異種材料との多層化により、零磁歪化、および低保磁力化を図り、また非磁性絶縁体との多層化により、有効磁束路幅拡大、および高周波特性改善効果を持たせることを基本的な材料設計の方針とした。零磁歪化の手法としては、固溶系多層膜ではFe層の負磁歪と相互拡散層の正磁歪との磁歪バランスを、一方、非固溶系多層膜ではFe層の結晶配向変化を各々利用した。また、低保磁力実現のためには、磁性多層膜において生ずる、Fe結晶粒の微細化、および磁性層間の静磁結合による磁気異方性分散の低下を利用した。以上の手法により、零磁歪の下、高飽和磁化、低保磁力、高比透磁率を有し、かつ有効磁束路幅拡大、高周波特性改善の効果を示す高性能軟磁性材料の開発に成功した。

## 7-2 本研究における成果と今後の課題

本研究ではその研究成果として、従来材料の特性を越えた高性能軟磁性膜の開発に成功した点、およびこのような特性を異種材料間の多層化という人工的手法により実現した点が挙げられる。

本研究で開発した磁性多層膜の特性は表6-1に示した。本研究による磁性多層膜はいずれも零磁歪および磁場誘起誘導磁気異方性を示し、従来材料であるNiFe合金、CoZr系アモルファス合金と比較し、1.5~2倍の飽和磁化、1~2倍の比透磁率を有する高性能な軟磁性膜である。またこれらの磁性多層膜は非磁性絶縁体との多層構造を成しているため、還流磁区構造の消失による有効磁束路幅の拡大効果、比透磁率の高周波特性改善効果、およ

び軟磁気特性の膜厚依存性改善効果などの性能を持つ。これら磁性多層膜は本研究で対象とした薄膜磁気ヘッドコア用磁性膜としては勿論、その他磁性薄膜部品の汎用材料としても有用と考えられる。

本研究における材料設計指針および磁気特性制御法は第6章にまとめた。本研究では、単元素物質中最も飽和磁化の高いFeをベースとし、異種材料との多層化により零磁歪化、および低保磁力化を図ることを材料設計の基本方針とした。磁歪バランス、あるいは結晶配向変化により零磁歪化を実現し、これらの磁歪制御法は各々多くの固溶系磁性多層膜、非固溶系磁性多層膜に適用できることを示した。また、結晶粒径の微細化および磁性層間の静磁結合によって磁気異方性分散を低下させ低保磁力化を実現し、低保磁力化のためには多層構造が有効な材料形態であることを示した。なお、上記の磁歪変化、保磁力変化の起源は、組成変調、界面磁気異方性、薄膜における結晶の初期成長など界面近傍あるいは超薄膜の中で起きるミクロな現象であることを明らかにした。以上、本研究では、材料開発、磁性体物理、薄膜、および界面物性の分野においてもいくつかの興味ある結果を得ることができた。

次に今後の課題について述べる。本研究ではその研究対象範囲を材料開発にとどめたが、これらを部品に応用する場合、例えば耐蝕性に代表される信頼性および部品作製プロセスとの適合性など、今後検討すべき課題が数多く残っている。また、本研究により新たに生まれた課題や未解決な問題も多数あった。Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜において、界面垂直磁気異方性の存在が示唆されたが、その起源についてはいまだ未解決なままである。逆磁歪効果では説明できないことは明らかにされたが、その機構を調べることは今後の課題である。Fe/Co多層膜の磁歪変化は磁歪バランスモデルにより定量的に説明された。このモデルでは一原子層合金がバルク合金と同じ磁歪定数を持つことを仮定しているため、さらに正確な解釈を行うには、今後、磁歪現象の電子論的な解析が必要と考えられる。また、Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁歪変化はFe結晶配向性の変化および界面状態の変化により説明されたが、これらの現象は各々結晶成長過程および界面物性と密接な関係がある。薄膜の結晶成長および界面状態についての詳細な研究が今後とも必要と考えられる。今後これら未検討、未解決の問題を一つ一つ検討し、本研究で開発した高性能軟磁性膜の物性解明および実用化に向け研究を進めるつもりである。

なお本研究ではFeの持つ飽和磁化をできるだけ低減させないように零磁歪化、低保磁力化を図るという設計指針をとったため飽和磁化は最大でもFeの持つ値以上にはならな



った。Fe以上の飽和磁化を有する材料としてCoFe合金(パーメンジュール: $4\pi M_s = 24.5$  kG),  $\text{Fe}_{16}\text{N}_2$ 合金( $4\pi M_s = 28$  kG)[1,2]があり、これらを軟磁性化できれば本研究で得られた以上の高飽和磁化軟磁性膜の実現が可能となる。また本研究では軟磁気特性のみを対象としてきたが、磁性体をベースにした多層構造ではバルクあるいは単層膜とは異なる様々な特性が期待される。例えばFe/Cu多層膜におけるカー効果の増大[3]、あるいはFe/Cr多層膜に代表される巨大磁気抵抗効果[4,5]など磁性人工格子における特異現象がいくつか報告されており、今後も多層系の物質で様々な特性の発現が期待される。また、本研究では触れなかったが、Fe層をさらに薄くし一原子層にした場合の磁性、すなわち二次元磁性にも興味がかかる場所である。今後、本研究で得た材料設計指針、多層化技術をさらに発展させ、新材料開発に向け研究を進めるつもりである。

## 第7章の参考文献

- 1) T. K. Kim and M. Takahashi, Appl. Phys. Lett., 20, 492 ('72).
- 2) Y. Kozono, M. Komuro, M. Hanazono and Y. Sugita, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 59 ('91).
- 3) T. Katayama, H. Awano, Y. Nishihara and N. Koshizuka, IEEE Trans. Magn., MAG-23, 2949 ('87).
- 4) M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett., 61, 2472 ('88).
- 5) H. Yamamoto, T. Okuyama, H. Dohnomae and T. Shinjo, J. Mag. Soc. Jpn., 15, 431 ('91).



## 本研究に関する研究発表

### 1. 著者による発表論文

- 1) M. Senda and Y. Nagai:  
"Magnetic properties of ion-beam-sputtered Fe/Co and Fe/CoFe multilayer films", Appl. Phys. Lett., 52, 672 ('88).
- 2) M. Senda and Y. Nagai:  
"Magnetic properties of Fe/Co, Fe/CoFe, and (Fe/Co)/SiO<sub>2</sub> multilayer films", J. Appl. Phys., 65, 3151 ('89).
- 3) M. Senda and Y. Nagai:  
"Magnetic properties of multilayer films consisting of Fe and nonmagnetic layers", J. Appl. Phys., 65, 3157 ('89).
- 4) M. Senda and Y. Nagai:  
"Magnetic properties of Fe/SiO<sub>2</sub> multilayer film", J. Appl. Phys., 65, 1238 ('89).
- 5) M. Senda and Y. Nagai:  
"Influences of noble gases (Ne, Ar, and Kr) on magnetic properties of ion-beam-sputtered Fe/SiO<sub>2</sub> multilayer films", J. Vac. Sci. Technol. A8, 13 ('90).
- 6) M. Senda and Y. Nagai:  
"Magnetic anisotropy of Fe/SiO<sub>2</sub> multilayer film", Jpn. J. Appl. Phys., 30, 62 ('91).
- 7) M. Senda and Y. Nagai:  
"Perpendicular magnetic anisotropy of Fe/SiO<sub>2</sub> multilayer film", J. Appl. Phys., 68, 3508 ('90).
- 8) M. Senda:  
"Ion beam deposition of multilayer magnetic films", Proc. Materials Research Society '91 spring meeting, E8. 1 ('91).

- 9) M. Senda and O. Ishii:  
"Critical current density of screen printed YBCO sintered thick film", J. Appl. Phys., 69, 6589 ('91).
- 10) M. Senda:  
"Permeability measurement of soft magnetic films at high frequency and multilayering effect", J. Mag. Soc. Jpn., 16, 425 ('92).
- 11) M. Senda, O. Ishii and O. Michikami:  
"High frequency measurement of soft magnetic film permeability", Rev. Sci. Instrum., to be published.
- 12) M. Senda and O. Ishii:  
"Study on high frequency magnetic properties of CoZrNb/SiO<sub>2</sub> multilayer films", J. Mag. Soc. Jpn., to be published.
- 13) M. Senda and O. Ishii:  
"Study on high frequency magnetic properties of CoFe/SiO<sub>2</sub> multilayer film with inverse magnetostrictive effect", J. Mag. Soc. Jpn., to be published.
- 14) M. Senda and O. Ishii:  
"Study on high frequency permeability of magnetic multilayer films", Proc. 1993 Japan IEMT Symposium, to be published.

### 2. 共著による発表論文

- 1) Y. Nagai, M. Senda, and T. Toshima:  
"XPS investigations of Ni-Fe alloy and Fe films", Jpn. J. Appl. Phys., 26, L1131 ('87).
- 2) Y. Nagai, M. Senda, and T. Toshima:  
"Properties of ion-beam-sputtered Ni/Fe artificial lattice film", J. Appl. Phys., 63, 1136 ('88).



- 3) Y. Nagai and M. Senda:  
"Properties of ion-beam-sputtered Ni/Fe artificial lattice film",  
Jpn. J. Appl. Phys., **26**, L1514 ('87)
- 4) Y. Nagai, K. Yanagisawa, and M. Senda:  
"Magnetic anisotropy in Ni/Fe artificial lattice film", J. Appl. Phys.,  
**64**, 1343 ('88)
- 5) Y. Nagai and M. Senda:  
"Magnetic properties of Ni/Fe//SiO<sub>2</sub> multilayer film", J. Appl. Phys.,  
**64**, 4108 ('88)

### 3. 著者による学術講演等

- 1) 千田正勝, 永井靖浩:  
「NiFe, Fe薄膜のXPS分析」'87春季応用物理学会学術講演会 28p-ZM-16
- 2) 千田正勝, 永井靖浩:  
「イオンビームスパッタ法によるNiFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の作製」  
'87秋季応用物理学会学術講演会 18p-D-4
- 3) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/Co, Fe/CoFe多層膜の磁気特性」電子情報通信学会技報 MR 87-36
- 4) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/(Co, CoFe)多層膜の磁気特性」'88春季応用物理学会学術講演会 28p-C-13/I
- 5) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」電子情報通信学会技報 MR 88-16
- 6) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/(非磁性層)多層膜の磁気特性」'88秋季応用物理学会学術講演会 4p-ZH-7/I
- 7) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」'88応用磁気学会学術講演会 3p-D-8
- 8) 千田正勝, 永井靖浩:  
「(Fe/Co)/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」'89春季応用物理学会学術講演会 2a-F-6/I

- 9) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Ne, Ar, KrスパッタFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」  
'89春季応用物理学会学術講演会 2a-F-7/I
- 10) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気異方性」'89秋季応用物理学会学術講演会 28a-X-4
- 11) 千田正勝, 永井靖浩:  
「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気異方性(II)」'90春季応用物理学会学術講演会 29a-Y-4/I
- 12) 千田正勝, 石井修:  
「YBCO焼結厚膜のJc-H, M-H特性」'90秋期応用物理学会学術講演会 27p-ZA-14/I
- 13) 千田正勝:  
「Fe系多層磁性膜の軟磁気特性」電気学会マグネティックス研究会 MAG-91-160
- 14) 千田正勝:  
「高周波における軟磁性膜の透磁率測定」'91秋期応用磁気学会学術講演会 31pD-4
- 15) 千田正勝:  
「高周波透磁率測定法と多層磁性膜の高周波磁気特性」  
電気学会マグネティックス研究会 MAG-92-8
- 16) 千田正勝:  
「高周波透磁率測定法におけるエッジの影響」'92春期応用物理学会講演会
- 17) 千田正勝, 石井修, 道上修:  
「MHz-GHz帯におけるCoZrNb/SiO<sub>2</sub>多層膜の高周波磁気特性」  
電気学会マグネティックス研究会 MAG-92-171
- 18) 千田正勝, 石井修:  
「CoZrNb/SiO<sub>2</sub>多層膜の高周波磁気特性に関する検討」  
'92秋期応用磁気学会学術講演会 9pA-4
- 19) 千田正勝, 石井修:  
「歪誘導磁気異方性を利用したCoFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の高周波磁気特性に関する検討」  
電気学会マグネティックス研究会 MAG-93-
- 20) 千田正勝, 石井修:  
「歪誘導磁気異方性を利用したCoFe/SiO<sub>2</sub>多層膜の高周波磁気特性に関する検討」  
'93春期応用物理学会学術講演会



#### 4. 共著による学術講演等

1) Y. Nagai and M. Senda:

"Physical properties of ion-beam-sputtered magnetic artificial lattice",  
The 11th Symposium on ISIAT'87, 431 ('87)

2) 永井靖浩, 千田正勝:

「イオンビームスパッタによるNi/Fe人工格子膜の特性」  
電子情報通信学会技報 MR 87-29 ('87)

3) 永井靖浩, 千田正勝, 安田享祐:

「狭い線幅を持つ磁性ストライプの磁気特性」  
'86秋季応用物理学会学術講演会 27a-ZK-9

4) 永井靖浩, 千田正勝:

「Ni/Fe人工格子膜の磁気特性」'87秋季応用物理学会学術講演会 18p-D-5

5) 永井靖浩, 柳沢佳一, 千田正勝:

「Ni/Fe人工格子薄膜ヘッド」'88春季電子情報通信学会学術講演会 C-164

6) 永井靖浩, 千田正勝, 柳沢佳一:

「Ni/Fe人工格子膜の磁気異方性」'88春季応用物理学会学術講演会 28p-C-14/I

7) 永井靖浩, 千田正勝, 柳沢佳一:

「Ni/Fe//SiO<sub>2</sub>多層膜の磁気特性」'88秋季電気通信学会学術講演会 SC-2-1

8) 永井靖浩, 千田正勝, 柳沢佳一:

「Ni/Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜の比透磁率」'88秋季応用物理学会学術講演会 4p-ZH-8/I

9) 永井靖浩, 千田正勝, 柳沢佳一:

「Fe/SiO<sub>2</sub>多層膜のXPS分析」'89春季応用物理学会学術講演会 2a-F-8/I

#### 謝 辞

本論文をまとめるに当たり、懇切なる御指導と御配慮を賜りました名古屋大学工学部材料機能工学科 松井正顕教授, 坂公恭教授, ならびに名古屋大学工学部電気学科 網島滋教授に謹んで感謝の意を表します。また、本論文をまとめるに当り、貴重な御助言を賜りました名古屋大学理学部物理学科 紺谷雅昭助教授に深謝致します。

本研究を遂行する機会を与えて戴きましたNTT境界領域研究所 稲垣伸夫所長, 久保寺憲一企画部長, 板生清元企画部長, 電子デバイス研究部 戸島知之部長, 杉田悦治元部長に深く感謝致します。また研究を進めるに当り、有意義な御意見と御指導を戴きました越本泰弘主幹研究員, 三宅正二郎元主幹研究員, 道上修主幹研究員, 永井靖浩主任研究員に深謝致します。

研究の全般にわたり、討論ならびに御意見を戴いた 寺田章元主幹研究員, 石井修主幹研究員, 田子章男元主任研究員, 西村力主任研究員, 柳沢佳一主任研究員, 三日月哲郎主幹研究員, 岸上順一主幹研究員に感謝致します。また、実験の実施に当たり、多大なる御協力を戴いた 木町良弘主任研究員, 伊藤圭一郎研究主任, 鈴木尚文研究主任, 鶴浩二社員に感謝致します。



