

鉄-コバルト多層膜の磁気特性

星 陽 一* 関 雅 史*
古 市 満* 直 江 正 彦**

Magnetic Properties of Iron-Cobalt Multilayered Films

Y. HOSHI, M. SEKI, M. FURUICHI, and M. NAOE

Abstract

Fe-Co multilayered films with about 3000 Å thick have been deposited by an opposed targets type of high rate sputtering apparatus. The low angle X-ray diffraction diagram shows that the films with layer period d_{layer} above 10 Å have layered structure. However, the film with d_{layer} below 45 Å has only bcc crystal structure in the film. But as d_{layer} increases above 70 Å, hcp and fcc phase along with bcc phase can be detected in the film.

While, the mean crystallite size $\langle D \rangle$ decreases steeply with an increase of d_{layer} , which suggests that the layered structure suppresses the crystal growth in the film.

The film have large saturation magnetization 1800 emu/cc, which depends little on the d_{layer} . On the other hand, the uniaxial magnetic anisotropy energy K_u induced in the film by a magnetic field during deposition and coercive force H_c of the film with $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ of 1/3 and 1 decreases steeply with an increase of d_{layer} . And the film with d_{layer} about 60 Å has the lowest value of H_c of 8 Oe.

1. ま え が き

鉄系の薄膜は大きな飽和磁化を有するのみならず、優れた軟磁気特性をも合わせ持つことから薄膜ヘッド用の軟磁性材料として注目され、多くの研究がなされている¹⁻⁷⁾。我々はより大きな飽和磁化を持つ軟磁性材料の開発を目的として、窒化鉄薄膜⁸⁾や鉄-コバルト系の薄膜⁹⁾をイオンビームデポジッション法やオンビームスパッタ法を用いて形成し、その構造や磁気特性を明らかにしてきた。

しかし、両者とも純鉄を越える大きな飽和磁化

を持つものの、窒化鉄膜は熱的安定性や再現性に問題があり、さらに鉄-コバルト合金膜では5 Oe以下の低保磁力を持つ軟磁性膜は実現できなかった。

一方、異種の磁性薄膜を堆積することにより形成される磁性人工格子膜はバルクの性質と異なる全く新しい磁性を示す可能性を秘めていることから、近年多くの研究者の注目を集めている。[例えば参考文献 10 参照]

以上のことを考慮して我々は高飽和磁化人工格子軟磁性膜の可能性を検討することを目的として、まず、bcc 構造を持つ Fe と hcp 構造を持つ Co の人工格子膜を磁性体の高速低温スパッタが容易で、かつ低いガス圧でスパッタ可能な対向

*東京工芸大学工学部 **東京工業大学工学部
昭和 63 年 9 月 16 日受理

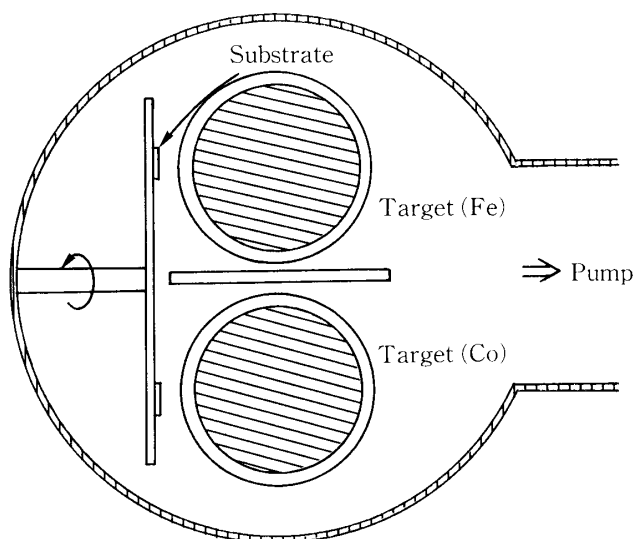


Fig.1 Opposed targets type sputtering apparatus used for film preparation.

ターゲット式スパッタ法¹¹⁾を用いて形成し、その構造と磁気特性を調べた。以下に、Fe-Co 人工格子膜の形成法と得られた膜の構造と磁性について報告する。

2. 膜試料の形成法と評価方法

Fig. 1 に膜形成に用いた対向ターゲット式スパッタ装置の概略を示す。

2 対の対向ターゲット式スパッタ源 (ターゲット径 10 cm ϕ , ターゲット間距離 12 cm) を備えており、基板を図のように回転させることにより各々のスパッタ源からスパッタ放出されるスパッタ粒子を交互に堆積できるようになっている。

スパッタ槽内を 1×10^{-6} Torr 以下に排気した後、Ar ガス (純度 99.995%) を槽内に導入し、ガス圧 1.5×10^{-3} Torr でスパッタを行った。人工格子膜の積層周期 d_{layer} は主に基板の回転速度を変化させることで、さらに Fe と Co の層厚の比 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ はそれぞれのターゲットに加える投入電力の比を変えることで変化した。

主な膜形成条件を Table 1 に示しておく。ここで基板の加熱は行っていないが、膜形成中の温度上昇により約 100°C 程度になっていると考えられる。

膜の結晶構造は X 線回折、及び反射電子線回折法により調べた。また膜が基板より受ける応力は

Table 1. Film deposition conditions.

Target material	Fe <99.9%>	Co <99.9%>
Target voltage	850~900 V	760~810 V
Input power	425~1350 W	380~1215 W
Discharge current	0.5~1.5 A	
Ar gas pressure	1.5 mTorr	
Layer period d_{layer}	3~600 Å	
Rotation velocity	80~0.5 rpm	
Thickness ratio of Fe layer to Co layer	$t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$: 1/3, 1, 3	
Deposition time	10 min.	
Film thickness	3000~3800 Å	
Substrate temperature	100°C	
Substrate	glass	

膜の堆積により 150 μm のガラス基板が受ける変形量を測定することにより求めた。膜の磁気特性は主に振動試料形磁力計 (VSM) 及びトルク磁力計を用いて調べた。

3. 結果と検討

3.1. 膜の構造

Fe は bcc, Co は hcp (or fcc) の結晶構造を持つが、これを積層して堆積させた膜 (Fe と Co の層厚比 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}} = 1$, 積層周期 $d_{\text{layer}} = 45, 70$, 及び 140 Å) の X 線回折ダイアグラムの一例を Fig. 2 に示す。図のように d_{layer} が 45 Å 以下の膜では bcc 構造の回折ピークのみしか観測できず、これらの膜では、相互拡散のために Co 層が hcp 構造を取れないことを示唆している。一方、 $d_{\text{layer}} = 70$ Å と積層周期を大きくしていくと Co 層からと考えられる fcc の (111) 面, hcp の (101) 面からの回折ピークも観測されるようになり、結晶構造の異なる Fe と Co の層が交互に積層していくことがわかる。 $d_{\text{layer}} = 140$ Å と積層周期をさらに大きくしていくと fcc 相からの回折ピークは認められなくなり、bcc 相と hcp 相のみの回折ピークとなる。

bcc の (110) 面からと考えられる回折ピークより求まる面間隔 $d_{(110)}$ 及び平均結晶粒径 $\langle D \rangle$ は積

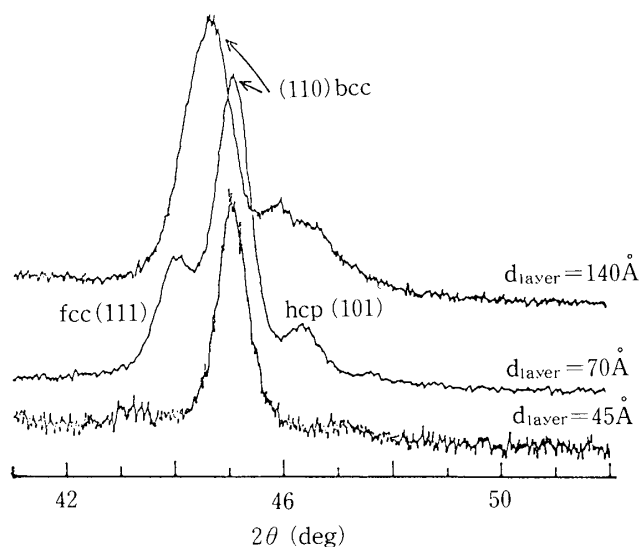


Fig.2 X-ray diffraction diagram of Fe-Co multilayered films with various d_{layer} . ($t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}=1$)

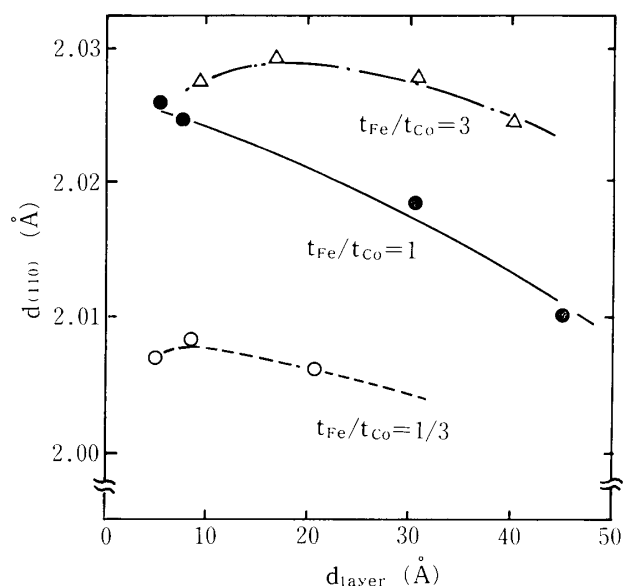


Fig.3 Changes in $\langle 110 \rangle$ plane spacing $d_{(110)}$ with layer period d_{layer} .

層周期 d_{layer} 及び Fe と Co の層厚比 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ によりそれぞれ Fig. 3 及び Fig. 4 に示したように変化する。 $d_{(110)}$ は $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ が小さくなるにつれて減少し $\langle D \rangle$ は $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ が 1 の場合 d_{layer} が小さくなるほど増加する傾向にあることが分かる。 $d_{(110)}$ が d_{layer} の増加につれて減少する理由については明かではないが、 d_{layer} の増加による $\langle D \rangle$ の急減は結晶構造の異なる膜を交互に積層することにより結晶粒子の成長が抑制されることを示唆している。

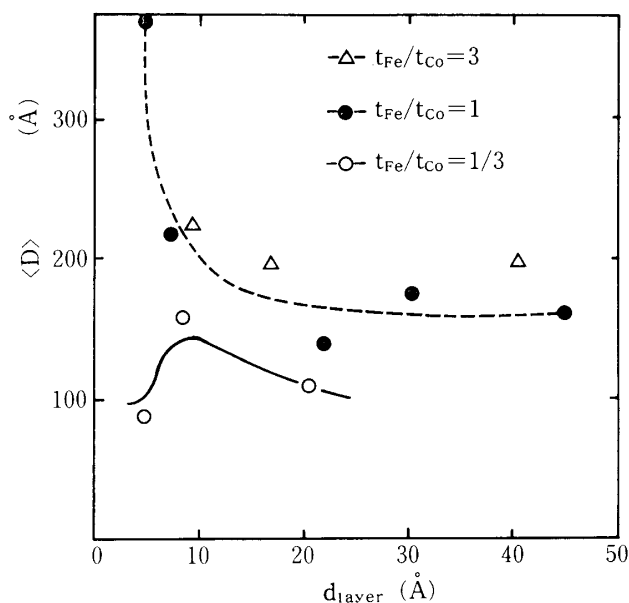


Fig.4 Changes in mean crystallite size $\langle D \rangle$ with layer period d_{layer} .

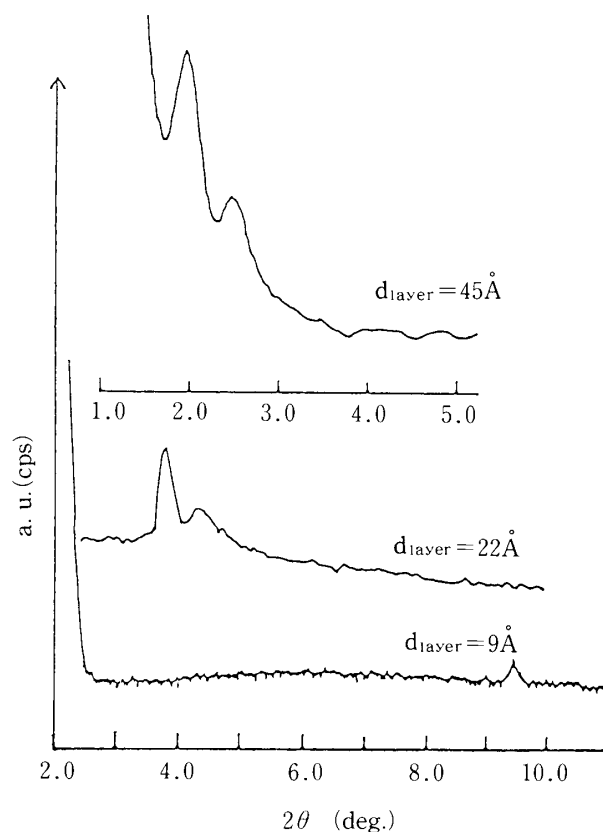


Fig.5 Low angle X-ray diffraction diagrams of Fe-Co multilayered films with various d_{layer} .

Fig. 5 にこれらの膜の低角 X 線回折ダイアグラムの一例を示す。積層周期を大きくしていくと 10 Å 付近から積層周期に相当する位置に回折

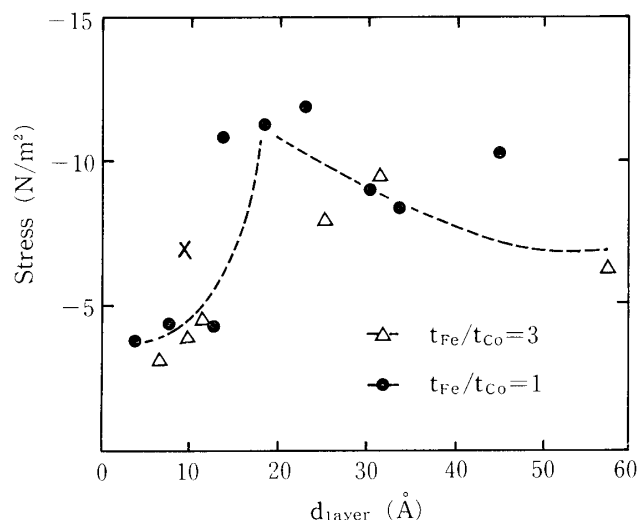


Fig. 6 Changes in internal film stress with d_{layer} .

ピークが認められるようになり、この周期以上で積層構造を持った膜となることを示している。

一方、積層周期をさらに大きくしてゆくと図のように2つの回折ピークが認められるX線回折ダイアグラムを示すようになる。これはFe層とCo層の積層周期以外に層間の相互拡散により形成される合金層のために新たな周期構造が膜中に

生じるためと考えている。

Fig. 6 に膜が基板より受ける応力の積層周期 d_{layer} による変化の様子を示す。膜は全て基板より圧縮応力を受けているが、積層周期が 10 \AA 以下で、膜がほぼ均一な合金相になっていると見なせる場合には約 $4 \times 10^8 \text{ (N/m}^2\text{)}$ 前後、膜が明確な積層構造を持つようになる積層周期 15 \AA 以上では $10 \times 10^8 \text{ (N/m}^2\text{)}$ 前後の大きな圧縮応力を受けていることが分かる。また、積層周期が認められる d_{layer} が 9 \AA の膜は、これらの中間の $7 \times 10^8 \text{ (N/m}^2\text{)}$ 程度の値を示した。

3.2. 膜の磁気的特性

Fig. 7 に種々の積層周期 d_{layer} による M-H 曲線の変化の様子を示す。積層周期により膜の磁気異方性や保持力が大きく変化することが分かる。

純鉄薄膜の場合スパッタ粒子の斜め入射効果による板状粒子の成長のため、磁界に垂直な方向を、磁化容易軸とする膜が形成される¹¹⁾。一方、積層膜ではそのような斜め入射効果による板状粒子の成長は抑制され、替わって Fe と Co の合金が磁界中

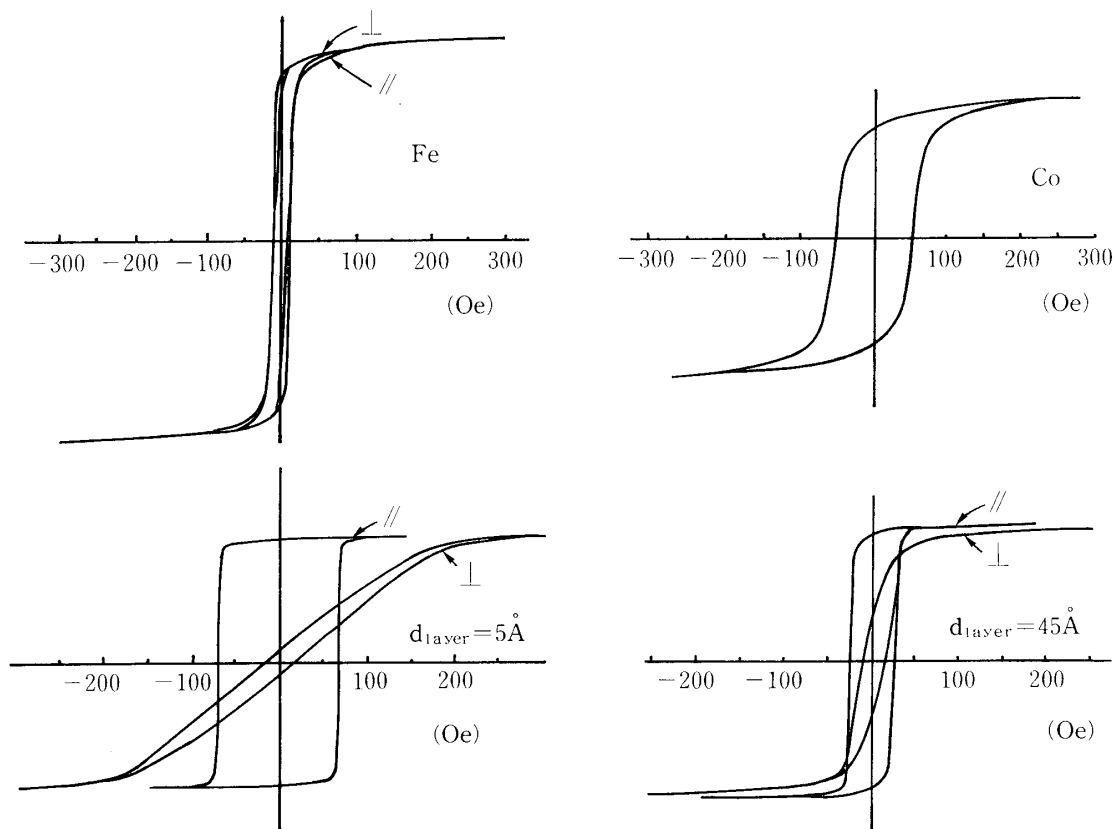


Fig. 7 Changes in M-H curves of the films with d_{layer} .

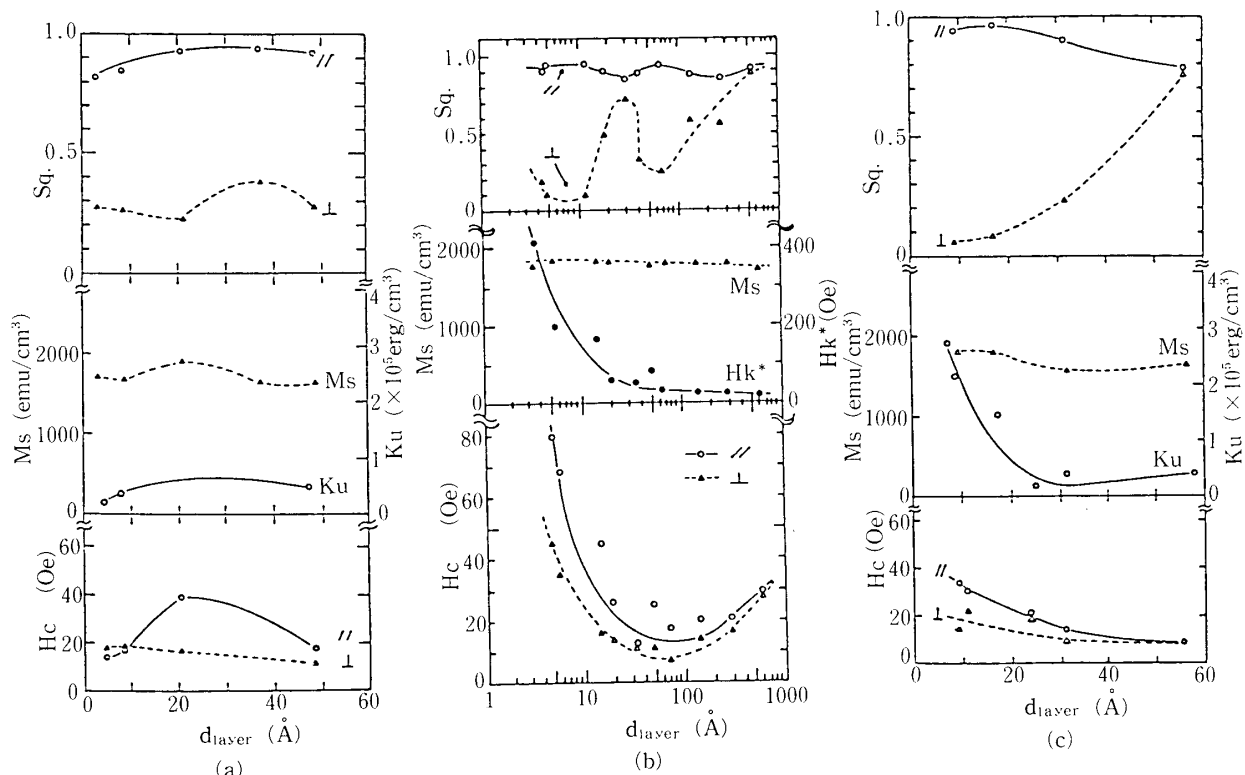


Fig.8 d_{layer} dependences of coercive force H_c , saturation magnetization M_s , uniaxial magnetic anisotropy energy K_u , and squareness ratio Sq of the film with (a) $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}=1/3$, (b) $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}=1$ and (c) $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}=3$.

で堆積することによる磁界方向を容易軸とする誘導磁気異方性が誘起される。

Fig.8—(a), (b), 及び (c) に Fe と Co の層厚比 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ がそれぞれ 1/3, 1 及び 3 の場合の膜の保持力 H_c , 飽和磁化 M_s , 一軸磁気異方性定数 K_u , 角形比 Sq の積層周期 d_{layer} による変化の様子を示す。ほぼ均一な合金相となっていると見なせる d_{layer} が 10 Å 以下の膜の H_c は 15 Oe 以上で、イオンビームスパッタ法で形成した Fe-Co 合金膜とほぼ同等な値を示した。

しかし、Co の層厚比が 1 及び 3 の場合、 H_c , 及び K_u は d_{layer} が大きくなるにつれて両者とも顕著に減少し d_{layer} が 60 Å 付近で H_c は最小となる。これは d_{layer} が小さな領域では均一な Fe-Co 合金膜が形成され磁界方向により多くの原子対の方向性配列が実現されるのに対して、 d_{layer} が大きくなると Fe と Co の各層が完全に分離されるようになるためと考えられる。

しかし H_c は最小でも 8 Oe 程度で良好な軟磁気特性を示す膜は現在までのところ実現できてい

ない。一方、 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}=1/3$ の場合には積層周期を変えても磁気特性は余り大きく変化せず H_c は 20 Oe 前後の値を示した。

角形比 Sq は K_u の変化に対応して、即ち磁化容易軸方向のそれは K_u が大きくなるほど、磁化困難軸方向のそれは K_u が小さくなるほど大きくなる。

本実験で作成した膜厚範囲内では、膜の飽和磁化 M_s は最大で 1800 (emu/cm³) 前後の値を持ち、合金化による M_s の増加が起こっていることを示唆しているが、 M_s の d_{layer} 及び $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ 依存性は小さい。これは生成される Fe-Co 合金相の膜中で占める割合がかなり大きいためと考えられるが、膜厚の測定精度等の問題もあり、多層化に伴う境界層がどのような M_s を持つかに関しては今後さらに詳しく調べる必要がある。

4. ま と め

本研究では 2 対の対向ターゲット式スパッタ源を有するスパッタ装置を用いて Fe と Co の積層

膜を形成し、その構造と磁気特性を調べた。

得られた結果をまとめると以下のようになる。

(1) 積層周期 10 Å まで X 線的に積層構造が認められる膜が形成できたが、 d_{layer} が 45 Å までの膜では Co 層は hcp または fcc の構造を取ることはできず、bcc 単層の膜となった。一方、 d_{layer} をさらに増加させ 70 Å 以上にすると Co 層は本来の hcp 及び fcc 構造を取ることができるようになり、bcc の Fe 及び Fe—Co 合金層と Co 層との積層構造の膜となることがわかった。

(2) 積層構造を持つ膜は膜の内部応力や磁気特性において均一な合金膜と明らかに異なる性質を示す。

(3) Fe—Co 積層膜は d_{layer} にあまり依存しない 1800 (emu/cm³) の大きな飽和磁化を持つ。

(4) Fe と Co の層厚比 $t_{\text{Fe}}/t_{\text{Co}}$ が 1 と 3 の膜では積層周期 d_{layer} が大きくなるにつれて誘導磁気異方性定数と保磁力は顕著に減少し d_{layer} が

60 Å 付近で保持力 8 Oe 程度の膜が得られる。

参考文献

- 1) 柴谷, 福田, 信学論, 57-C, 9 (1974) 319
- 2) M.Naoe, M.Yamaga and N.Terada, IEEE Trans. Mag., MAG-21, (1985) 1900
- 3) Y.Nagai, A.Tago, K.Yanagisawa and T.Toshima, J.Appl.Phys, 61, (1987) 3841
- 4) T.Kobayashi, R.Nakatani, S.Otomo, and N.Kumasaka, Intermag.Conf., INTERMAG '87, DD-08, Apr. (1987)
- 5) 永久保, 中川, 直江, 信学技報, MR 86-22 (1986)
- 6) 石線, 若林, 松本, 信学技報, MR 86-21 (1986)
- 7) M.Miura, K.Tanaka and Y.Noro, Japan. J.Appl. Phys., 25, 2 (1986) 239
- 8) N.Terada, Y.Hoshi, M.Naoe, and S.Yamanaka, IEEE Trans. Mag., MAG-20 (1984) 1451
- 9) 星, 直江, 日本応用磁気学会誌, MR 86-22 (1986)
- 10) 日本応用磁気学会 第 50 回研究資料, 磁性工学人工格子膜 (1987)
- 11) Y.Hoshi, M.Naoe and S.Yamanaka, Advances in Ceramics, Vol.16. Fourth International Conf. on Ferrites, Part II (1986) 295