

Co, Ni₈₀Fe₂₀ 薄膜における強磁性共鳴の膜厚依存性 Thickness Dependence of Ferromagnetic Resonance for Co and Ni₈₀Fe₂₀ Thin Films

水上 成美・安藤 康夫・宮崎 照宣

東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻, 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 08 〒980-8579

S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Aoba-yama 08, Sendai 980-8579

(1998 年 10 月 14 日受理, 1998 年 12 月 4 日採録)

Thickness dependence of ferromagnetic resonance (FMR) and magnetic properties were studied for cobalt and Ni₈₀Fe₂₀ thin films prepared on glass substrates by magnetron sputtering. Resonance field and linewidth increased with decreasing film thickness, while saturation magnetization and square ratio decreased. Thickness dependence of $4\pi M_{\text{eff}}$, estimated from resonance field by using Kittel's formula was consistent with $4\pi M_s$ from hysteresis loops. Linewidth was assumed to have two components: zero-frequency linewidth, ΔH_0 , caused by magnetic inhomogeneities in films and viscous damping. ΔH_0 estimated from the experimental linewidth was, above 40 Å thick, nearly constant with film thickness. Below 30 Å, however, ΔH_0 for both films rapidly increased. These results were discussed by taking account of the structural inhomogeneity in the thin magnetic layer region.

Key words: ferromagnetic resonance, linewidth, thickness dependence, thin films, Co, Ni₈₀Fe₂₀

1. 背景

強磁性共鳴 (Ferromagnetic Resonance: FMR) において観測される共鳴磁場は, 強磁性体の g 因子や磁化に働く実効的な磁場 (磁気異方性等) に依存する. よって, スペクトルを解析する事で強磁性体の有する基本的なパラメータを実験的に求めることができる. 近年では, 単結晶超薄膜のもつバルクとは異なった異方性や, 人工格子における磁性層間相互作用等がこの方法で調べられている¹⁾.

一方で, FMR において十分な理解が得られていないのが, 強磁性金属におけるスペクトルの線幅である. 通常, FMR の現象論的記述には Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式 (LLG) が用いられるが, LLG から導出される線幅と実際に観測される線幅は一対一に対応しない. 強磁性金属の FMR 線幅に影響を与える要因として従来考えられてきたものは, ①本来的な磁気緩和, ②表皮効果に際しての交換相互作用, ③試料中の磁気的不均一性, の三つである²⁾. ③は様々な構造の乱れから生ずるものであるが, 強磁性金属薄膜に関して線幅と構造の乱れの関係を系統的に調べた例は少ない³⁾. 薄膜の持つ特徴的な構造の乱れとして界面 (表面) のラフネスがあるが, 当然この乱れは磁気的な乱れを通して線幅に影響を与えるものと思われる. 界面の構造の乱れは, 近年精力的な研究が行われている巨大磁気抵抗効果 (GMR) や, トンネル磁気抵抗効果 (TMR) においても重要な要素である事を考えると, FMR 線幅と界面の乱れとの対応を調べる事は興味深い. このような観点から,

本研究では, Co, Ni₈₀Fe₂₀ (Py) 多結晶薄膜をスパッタ法によって作製し, FMR の膜厚依存性から線幅と構造の乱れについて明らかにする事を目的とした.

2. 実験方法

試料作製にはマグネトロンスパッタ法を用い, 到達真空度は 5×10^{-7} Torr 以下, Ar 圧は 3 mTorr, ターゲット基板間距離は 70 mm とし, 基板は 10 °C に冷却している. Co, Py のスパッタには RF, Cu には DC 電源を各々使用し, 積層レートを, Co 4 Å/sec, Py 5 Å/sec, Cu 3 Å/sec で製膜した. 膜の構成は, 7059 ガラス基板上に Co 又は Py を膜厚を 20–200 Å と変化させ作製し, その上に Cu を保護層として 50 Å 積層した.

FMR の測定には, マイクロ波周波数 9.8 GHz, TE₁₀₂ キャビティを用い, 磁場は薄膜面内に最大 3 kOe 印加した. ヒステリシスループの測定には VSM 及び SQUID を用い, 磁場は最大 5 T まで印加した. 表面の観察には AFM を用い, 測定面積は $500 \times 500 \text{ nm}^2$ とした. なお, 全ての測定は室温で行っている.

3. 実験結果

3.1 FMR 並びに磁化測定

Fig. 1 に FMR スペクトルの代表例として Py 薄膜の測定結果を示す. 膜厚の減少と共に, 共鳴磁場が高磁場側にシフトし, 線幅は増大する. 特に膜厚 20 Å でのブロードニングは著しい. Fig. 2 に Py のヒステリシスループの測定結果を示す. FMR スペクトルと同様, 膜厚の減少と共にループの形は変化しており, 保磁力は 50 Å で極大をとった後減少する傾向を示す. 更に, 膜厚が 20 Å では, 超常磁性的な振る舞いを示している. なお, 今回作製した試料は, 薄膜面内で等方的である事を確認している.

3.2 AFM による表面観察

Fig. 3 にガラス基板上の Py 膜表面の AFM 観察の結果を示す. 測定は, ガラス基板上に Py を製膜した後, 真空チャンバーから取り出し測定を行っている. 大気に暴露してから測定するまでの時間は約 5 分程度であるので, 汚染による表面形状の変化はほとんどないものと思われる. 強磁性膜表面の平均表面粗さ (R_a) は, Py が膜厚 20, 100 Å の時それぞれ 3, 4 Å であった. Co 膜も同様に測定し, 膜厚 20, 100 Å のいずれも $R_a = 4 \text{ Å}$ であった. 7059 ガラス基板表面の R_a は約 5 Å であったことから Py, Co 双方とも基板表面の粗さを引きずって膜成長しているものと思われる. FMR,

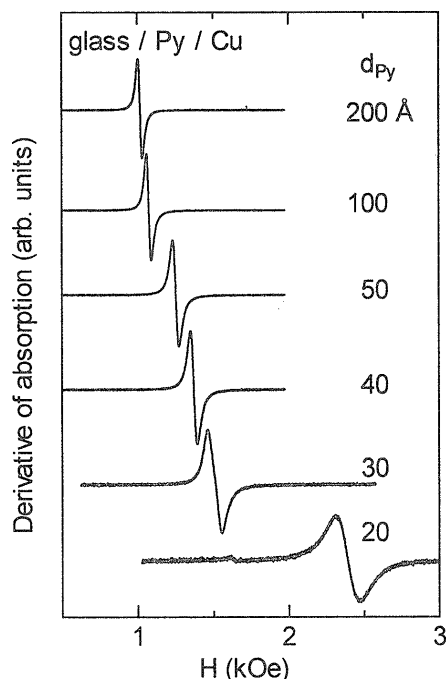


Fig. 1 FMR spectra of Py films with various thicknesses.

M - H ループが、膜厚 20 Å と 100 Å では明らかに異なっていることから、何らかの構造の変化が生じていることが予想されたものの、AFM の観察結果からは、その違いはわからなかった。

4. FMR の解析

4.1 FMR 共鳴磁場

厚膜の X 線構造解析、及びヒステリシスループが面内で等方的だったことから、今回作製した試料は無配向の多結晶膜であり、面内では異方性がランダム分散していると考えられる。また、膜厚は交換長程度の大きさなので、表面と層内部の異方性や磁化の違いは膜厚全体で平均化して差し支えないと思われる。従って、共鳴磁場の解析には、外部磁場を膜の面内に印加した測定に用いられる Kittel の有効反磁場で表わされる簡単な表式、

$$(\omega/\gamma)^2 = H_R(H_R + 4\pi M_{\text{eff}}), \quad (1)$$

が適用できると考えらる。ここで、 $\omega=2\pi f$ であり、 f は測定に用いたマイクロ波の周波数である。 γ は角磁気回転比であり、 g 因子を用いて $\gamma=2\pi g\mu_B/h$ と書ける。 μ_B はボーア磁子、 h はプランク定数である。 H_R は共鳴磁場であり、 $4\pi M_{\text{eff}}$ が有効反磁場である。有効反磁場は更に、

$$4\pi M_{\text{eff}} = 4\pi D M_s - 2K/M_s, \quad (2)$$

と書ける。ここで、(2)式の右辺第一項は、膜面に垂直方向の反磁場に相当する量で、 M_s は飽和磁化である。また、 $4\pi D$ は反磁場係数であり、通常は $D=1$ である。第二項は、垂直磁気異方性による異方性磁場に相当する量であり、 K がその定数である。これは、膜内部の結晶磁気異方性及び界面の垂直磁気異方性を含む。通常、FMR スペクトルの角度依

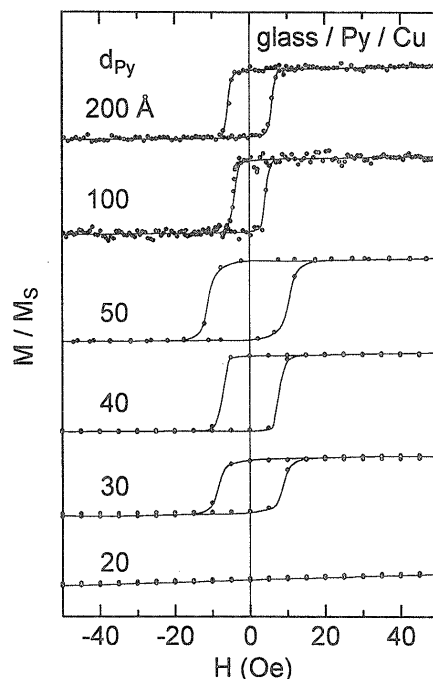


Fig. 2 Hysteresis loops of Py films with various thicknesses.

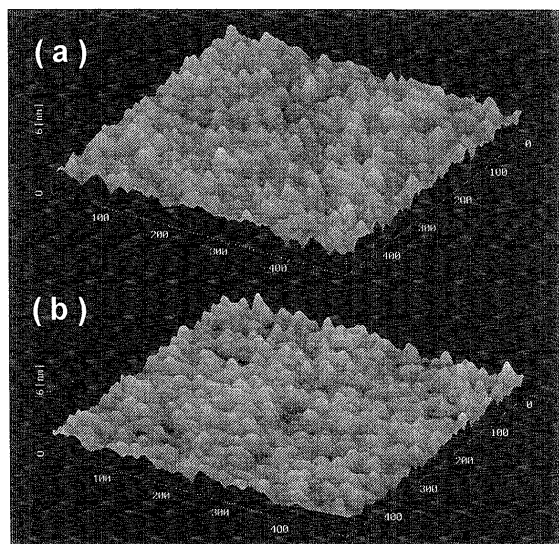


Fig. 3 AFM images of the surface of (a) Py (200 Å) and (b) Py (20 Å) on glass substrate.

存性を調べることでこれらのパラメータを決定できるが、今回は g 因子に文献値を用いて、(1)式から共鳴磁場の実験値に対応する $4\pi M_{\text{eff}}$ を見積った。その結果を Fig. 4 に示す。ここで Py の g 因子は 2.09⁴⁾とした。又、Co の厚膜の X 線構造解析では hcp のピークが観測されたことから、Co の g 因子は hcp の値 2.18⁵⁾とした。更に、Fig. 4 に VSM 及び SQUID の測定から得た飽和磁化の膜厚依存性を併せて示す。Co、Py のいずれも、 $4\pi M_{\text{eff}}$ と $4\pi M_s$ は 40 Å 以上でほとんど同じ値を持つ事が分かる。従って、この膜厚領域では、共鳴磁場のシフトの主要な原因は磁化の減少にあるといえ、Py については、他の報告ともこの傾向は一致している^{6, 7)}。しかし、30 Å 以下では、両方の膜で $4\pi M_{\text{eff}}$ と $4\pi M_s$ の間に系統的なずれが認められることから、付加的要素があると思われる。Py の飽和磁化は、

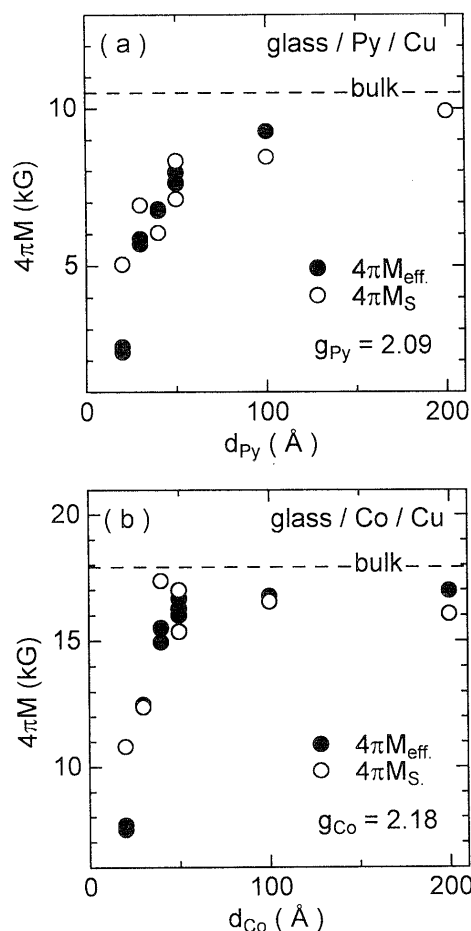


Fig. 4 Thickness dependence of $4\pi M_{\text{eff}}$ and $4\pi M_s$ for (a) Py and (b) Co films.

ほぼ膜厚の逆数で減少している。従って、膜界面の磁化がバルク値よりも減少している事が推測される。一方、Coは40 Å付近から磁化の急激な減少が始まり、Pyとはその傾向が異なっている。

4.2 FMR 線幅

前述したように、絶縁性の物質と比較して強磁性金属のFMR線幅は、理論的に十分な理解が得られていない。経験的には、表皮の厚さより十分に薄い膜では、観測される線幅（全半値幅）は、

$$\Delta H = \Delta H_0 + 2(G/\gamma M_s)(\omega/\gamma), \quad (3)$$

が成り立つと他のグループが報告している^{1),8)}。この式は、観測される線幅（左辺）が、右辺のマイクロ波周波数に依存しない項とマイクロ波周波数に比例する項からなっている。前者が磁気的不均一性に起因する線幅、後者はLLG式に由来する線幅で、磁気緩和によるものである。 G は減衰の定数でありギルバートパラメータである。この式によれば、線幅のマイクロ波周波数依存性を調べることで全線幅から ΔH_0 と G を分離できる。この方法で、Schreiberら⁹⁾は、スパッタで作製したエピタキシャルライクな $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ 薄膜の ΔH_0 と G の組成依存性を調べている。又、Heinrichら¹⁰⁾はMBEで作製したFe超薄膜の ΔH_0 と G の膜厚依存性を調

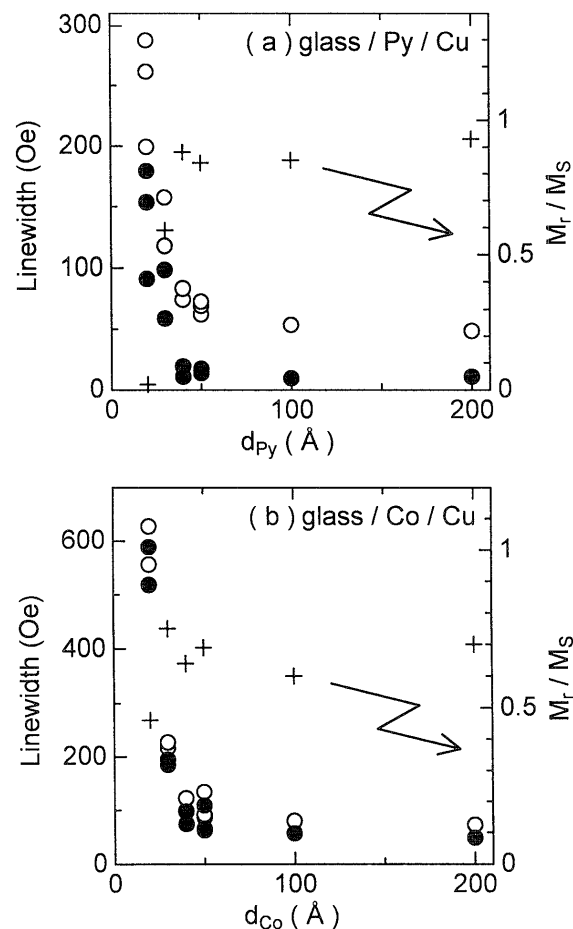


Fig. 5 Thickness dependence of ΔH (open circle), estimated ΔH_0 (solid circle), and square ratio (cross) for (a) Py and (b) Co films.

べている。周波数を変化させる方法は、複数の装置もしくは周波数可変の装置を用いる必要があり、簡単ではない。そこで今回は G, γ は膜厚に対してほとんど変化しないと仮定して文献値^{2),11)}を用い、 M_s は磁化測定の結果を用いて、実験値から磁気的不均一性に起因する線幅 ΔH_0 を見積る事を試みた。

この方法で得た ΔH_0 の膜厚依存性をFig. 5に示す。図中にヒステリシスループから得た角形比を併せて示す。Py膜では、観測される線幅と ΔH_0 は大きく異なる。特に、40 Å以上では線幅は主に磁気緩和から生じ、 ΔH_0 はほとんど膜厚に依存せず一定である。しかし、30 Å以下になると、 ΔH_0 は急激に増加している。一方、Co膜では、観測された線幅に対する寄与はいずれの膜厚の試料でも ΔH_0 の方が大きい。Coの ΔH_0 の膜厚依存性については、Py膜ほど顕著ではないが、30 Å付近で急激に立ち上がっていることから、Py膜と同様な事が言える。一方、Py膜の角形比の膜厚依存性は、最初ほぼ一定値をとった後、30 Å以下で急激に減少しており、 ΔH_0 の膜厚依存性と傾向が非常に良く似ている。Co膜でも、Py程顕著ではないものの、角形比は20 Åで減少している。角形比の減少は、前述したように膜厚減少とともに超常磁性的になっていく事が原因であり、膜の結晶粒径が小さくなり不連続的な構造になっているものと考えられる。この時、結晶粒

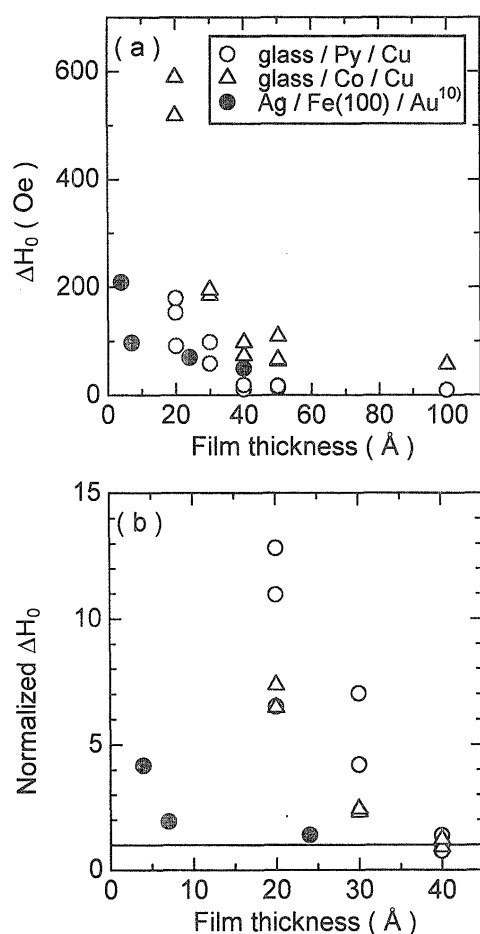


Fig. 6 (a) Thickness dependence of ΔH_0 for the present work and ref. 10. (b) Thickness dependence of ΔH_0 normalized by each value at 40 Å.

間に働く正の相互作用が減少する事が考えられる。この場合、FMR スペクトルは、各結晶粒の異方性磁場の分布を顕著に反映する為、不均一な結晶粒の分布が生じている場合には、線幅が大きく増加する事が考えられる。一方、AFMの結果からは、磁性層の膜厚が 100 Å と 20 Å では R_a にほとんど変化が見られなかった事から、膜厚 20 Å で島状成長しているとは考えにくい。しかし、AFM で観察できるのは、構造の凹凸であり、物質の区別まではできないことを考慮すると、AFM では観測できない磁性膜の不連続性が線幅に反映していると考えれば矛盾はしない。

Fig. 6 (a) に ΔH_0 の膜厚依存性の結果を、Heinrich ら¹⁰⁾ の Fe 単結晶超薄膜の報告と併せて示す。今回の結果と同様、Fe 単結晶超薄膜においても、膜厚が減少するにつれて ΔH_0 は増加する事が分かる。しかし、物質の違いや作製方法の違いによって、①絶対値、②急激に立ち上がる膜厚、③増加率が異なっている。 ΔH_0 の大きさは、試料の構造の乱れの程度と磁気異方性や飽和磁化の大きさによってその大小が決定されると思われる。そこで、 ΔH_0 がほぼ膜厚に依存せず一定となる値として膜厚 40 Å の値を選び、その値で 40 Å 以下の膜厚の ΔH_0 を規格化した値の膜厚依存性を Fig. 6(b) に示す。規格化した値で比較すると、今回のガラス基板上に作製された多結晶膜とエピタキシャル膜の違いが明確になる。多結晶膜において、規格化され

た ΔH_0 は 40 Å 以下で急激に立ち上がり、数倍から 10 倍以上になるのに対し、エピタキシャル膜は、非常に薄くなるまでほとんど変化しない。約 5 Å で若干立ち上がるが、4 倍程度である。この事からも、 ΔH_0 の増加の原因は、薄い領域での薄膜の不連続性にあると言える。つまり、スパッタによって作製された超薄膜でも、平坦で連続的になっていれば線幅は大きくならないと思われる。

5. まとめ

スパッタでガラス基板上に作製された Co, Py 膜における FMR 及びヒステリシスループの膜厚依存性を調べた。膜表面を AFM で観察した結果、膜厚 20 Å と 100 Å で平均表面粗さはほとんど変化がなかったものの、FMR 及び磁気特性は、膜厚の減少とともに大きく変化した。解析の結果、FMR の共鳴磁場の変化は磁化の減少による反磁場の減少に起因するものと考えられる。一方、線幅は磁気的不均一性と磁気緩和の二つの寄与に分離し、前者の膜厚依存性は角形比のそれと同様な傾向を示した。この原因は、薄い領域で磁性膜が不連続構造をとる事によるものと考えられる。

謝 辞 本研究は、旭硝子財団、三菱財団、矢崎財団の研究助成、情報ストレージ研究推進機構 (SRC) 研究助成、NEDO 国際共同研究助成、科学研究費補助金 (基盤研究 08405001 および特定領域研究「微小領域の磁性と伝導」09236101) により行われている。

文 献

- 1) B. Heinrich and J. F. Cochran: *Adv. Phys.*, **42**, 523 (1993).
- 2) A. S. Borovik-Romanov and S. K. Sinha: Spin waves and other magnetic excitations, part.2, p. 1 (North-Holland, Amsterdam, 1988).
- 3) Z. Celinski and B. Heinrich: *J. Appl. Phys.*, **70**, 5935 (1991).
- 4) R. Weber and P. E. Tannenwald: *Phys. Rev.*, **140**, 498 (1965).
- 5) 近角聡信, 大田恵造, 安達健五, 津谷昇, 石川義和編: 磁性体ハンドブック, p.290 (朝倉書店, 東京, 1975).
- 6) J. Dubowick, F. Stobiecki, and T. Lucinski: *Phys. Rev. B*, **57**, 5955 (1998).
- 7) J. W. Smits, H. A. Algra, U. Enz, and R. P. van Staple: *J. Magn. Magn. Mat.*, **35**, 89 (1983).
- 8) J. J. Krebs, F. J. Rachford, P. Lupitz, and G. A. Printz: *J. Appl. Phys.*, **53**, 8058 (1982).
- 9) F. Schreiber, J. Pflaum, Z. Frait, J. Heise, and J. Pelzl: *J. Magn. Magn. Mat.*, **157/158**, 281 (1996).
- 10) B. Heinrich, K. B. Urquhart, A. S. Arrott, J. F. Cochran, K. Myrtle, and S. T. Purcell: *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1756 (1987). S. M. Bhagat and P. Lupitz: *Phys. Rev. B*, **10**, 179 (1974).