

連載講座

「磁性材料入門」

ソフト磁性材料基礎講座 IV. ナノ組織制御ソフト磁性材料

Magnetic Materials

Lecture on Soft Magnetic Materials IV. Soft Magnetic Materials by Nano-Scale Fabrication Process

島田 寛 東北大学多元物質科学研究所

Y. Shimada, Institute for Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

Key words: soft magnetic materials, amorphous ribbon, amorphous films, nanocrystal structure, granular structure, heteroamorphous film, high resistivity, patterned film, magnetic anisotropy, multilayer film

1. ま え が き

この連載講座ですでに強調されているように、強磁性材料がソフトな特性をもつためには、結晶磁気異方性定数 K_c と磁歪定数 λ_s (または λ_{111} , λ_{100}) がゼロであることが重要である。この条件を満たす多結晶強磁性材料は、パーマロイ、センダスト、また Ni-Zn, Mn-Zn フェライトなどごく少数である。これに対し、1970 年ころに開発されたアモルファス薄帯は、その原子配置がランダムであり、原子の方位配列に起因する K_c は存在しない。また、局所的な歪や組成ずれの原因となる結晶粒界も存在しないので、磁壁移動、磁化回転を妨げるエネルギー障壁が非常に少なくなり、画期的なソフト性を示す。アモルファス薄帯は熔融金属の急冷によって作られるが、より高速の急冷プロセスが実現できる気相急冷、つまり蒸着やスパッターによって薄膜を作ることによって広い組成範囲でアモルファス相が得られ、高い飽和磁化とソフト性をもつアモルファス薄膜となる。さらに、アモルファス相でなくとも、微結晶状態であればソフト材料となることが発見され、さらに高い飽和磁化をもつナノクリスタル薄帯が得られた。また、この微結晶形成のプロセスをスパッター法に応用すると、酸化物、窒化物、フッ化物などの電気的絶縁物と強磁性微結晶との複合構造（グラニューラー構造）となり、ソフト性と同時に高い電気抵抗をもつことがわかり、現在も高周波薄膜材料としての開発研究が続いている。

本稿では、これらの軟磁性材料の合成法、ソフトな特性が得られる理由、ナノ構造に起因する磁気異方性、これによって得られる優れた高周波特性などについて述べ、さらに、単なる単層膜でなく、人工的な構造制御を行って高周波特性や微小磁気素子の特性改善を目指した多層膜とパターン膜について解説する。

2. アモルファス材料

(a) アモルファス材料の構造

室温で強磁性を示すアモルファス合金は、1970 年代にその基本的磁性の研究が開始され、急冷ロール法によって優れた軟磁性を示すアモルファス薄帯が高速で得られるようになり、軟磁性材料として急速に普及した。Fig. 1 は、アモルファス薄帯、ワイヤを作製する急冷ロール法 (a)、水中紡糸法 (b) である¹⁾。Fe, Co, Ni の強磁性元素にガラス化元素と呼ばれる、IIIb~Vb (B, Si, P など) を約 20 at%, あるいは IIIa~Va (Y, Ti, Zr, Hf, Nb, Ta) を約 10 at% 添加した熔融金属を、およそ 10^5 K/s の速度で急冷すると、結晶核が生成されずに室温で安定なアモルファス構造となる。薄帯の厚みは 4~100 μm が可能であり、通常は厚さ数十 μm , 幅数 cm のものが市販されている。また、水中紡糸法では、数 μm ~数十 μm 径のワイヤが作れる。

Fig. 2 は、アモルファス構造の模式図で、磁性原子のみ

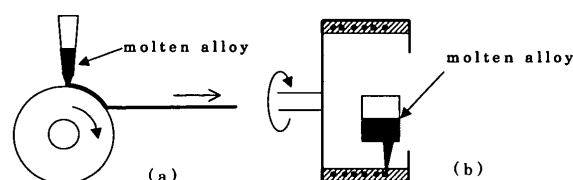


Fig. 1 Rapid cooling methods to produce an amorphous alloy. (a) Fabrication of amorphous ribbons. (b) Fabrication of amorphous wires.

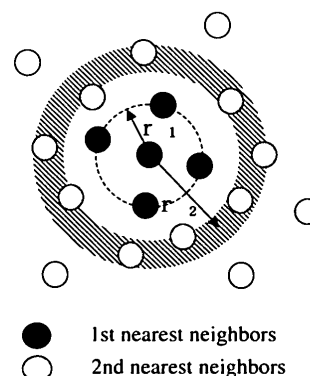


Fig. 2 Atomic structure of the amorphous alloy.

の配置を示している。磁性原子間の距離は、結晶相のときの距離 (r_1, r_2) に近いところに分布している。特に最近接原子は急峻に分布し、第2, 3近接原子の位置はばやけている。この原子構造は方位的には全くの無秩序に見えるが、なるべく充填度の高い詰まり方をしていて、fccの原子配置に近いものである。したがって、結晶構造がbccであるFeでは、アモルファス相になると異なる性質が現れ、特に磁歪定数が大きく異なってくる。Fig. 3は、(Fe, Co, Ni)₇₈Si₈B₁₄のアモルファス薄帯の飽和磁歪 λ_s のFe, Co, Ni含有量依存性である²⁾。Fe/Coの比率が95/5の付近で λ_s がゼロになることは、多結晶のFe-Co合金に似ているが、Feが主成分になると λ_s が増大することは多結晶との大きな違いである。

気相からの急冷効果が有効に利用できるスパッター法では、非常に広い範囲でアモルファス相が得られる。Fig. 4は、Co-(IIIa~Va)のうち、代表的な組成であるCo-Zr-Nbについて、スパッター膜の飽和磁化と磁歪の組成変化を調べた結果である³⁾。

以上のアモルファス組成のうち、アモルファス相の安定性、飽和磁化の高さ、作りやすさなどからよく使われる組成として、高飽和磁化薄帯のFe-(Si, B, C)、高透磁率薄帯の(Fe_{1-x}Co_x)-Si-B、また薄膜では、Fig. 4のCo-(IIIa~Va)系がある。Fe-(Si, B, C)は飽和磁化が高く、またヒス

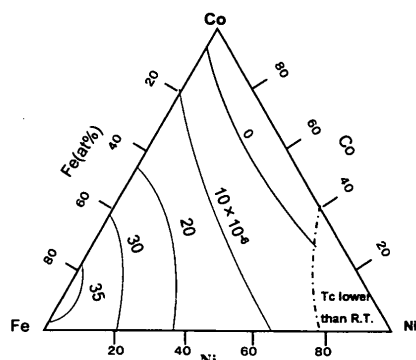


Fig. 3 Saturation magnetostriction of (Fe, Co, Ni)-(Si-B) amorphous ribbons.

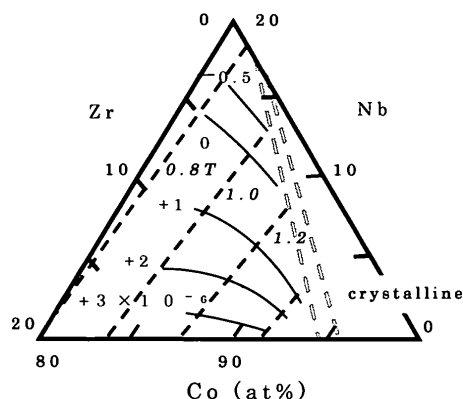


Fig. 4 Saturation magnetization and saturation magnetostriction of Co-Zr-Nb amorphous films.

テリシス損失が非常に低いので、Fe-Si 電磁鋼板に代わる電力トランス用磁心として期待されたが、電磁鋼板の着実な進歩もあって現在も一部のみの普及に留まっている。しかし、電力トランスとしては熱損失が非常に少ないので、運転効率、小型化、耐久性に有利な点が注目されている。(Fe_{1-x}Co_x)-Si-Bでは、Fig. 3に示したように $x \approx 0.05$ で飽和磁歪がゼロになり、 H_c は0.1 A/m程度にまで下げることが可能である。高透磁率材料として、可飽和リアクトル、磁場センサーなどの応用がある。Co-(IIIa~Va)系のスパッター膜は、パーマロイ、センダストの多結晶膜に比べて軟磁性のよさが注目され、また、Fig. 4からわかるように、飽和磁歪がZr/Nbの比率によって正負を挟んでゆるやかに変化し、磁歪ゼロの軟磁性薄膜を作製しやすいこと、また M_s を増やしても軟磁性を失わない点に特徴があるが、後に述べるようにアモルファス相が不安定になり、耐熱性が問題となる。

(b) アモルファス材料の磁気異方性

軟磁性材料の透磁率と周波数特性（磁気共鳴周波数、高周波損失など）を決定する磁気異方性については、パーマロイに見られる無秩序合金に類似した誘導磁気異方性が現れる（誘導磁気異方性については、文献4）を参照されたい）。Fig. 5は、福永らによる(Co-Fe)_{0.9}Zr_{0.1}、(Co-Ni)_{0.9}Zr_{0.1}の誘導磁気異方性 K_u の測定結果である⁵⁾。パーマロイの誘導磁気異方性が $K_u \approx 10^2$ J/m³ (=0.02 J/kg)であるのに比較してFig. 5のアモルファス金属では非常に強い。これは、Co-(Fe, Ni)の磁気双極子相互作用⁴⁾が強いためである。また、アモルファス相は準安定相であることから、熱処理中にアモルファス相自身の構造緩和（よりポテンシャルの低いrandomな原子配置への緩和、また、より高温では微結晶核の形成）が起こる。このため、誘導磁気異方性の熱的な挙動はアモルファス相合成後の熱処理の履歴に影響される。特に薄膜では、誘導磁気異方性の強さは、その作製装置や堆積条件によって純度、空隙率、内部歪などが異なり、最適な熱処理条件は少しずつ異なってくる。

以上のように、アモルファス相の磁気異方性は α -Feな

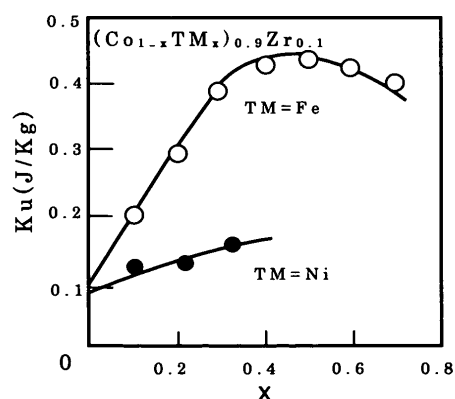


Fig. 5 Induced anisotropy of (Co-TM)_{0.9}Zr_{0.1} amorphous ribbons.

どの結晶磁気異方性に比べて数桁低い誘導磁気異方性であり、またその分散（強さと方向の空間的分布）は非常に小さいので、非常に優れたソフト性をもっている。しかし、Fig. 2 のモデルからわかるように、原子間距離はほぼ一定であって、これが外力により変化すれば、スピンの方向が変化する（この機構は双極子相互作用のモデルによりわかりやすく説明されている。文献 4）などを参照されたい）。すなわち、磁気弾性効果による磁気異方性は避けられない。この磁気異方性は決して小さくない。例えば、Fig. 3 の Fe-Si-B で $\lambda_s = 35 \times 10^{-6}$ を仮定し、これに 10^8 N/m^2 の応力（薄膜では $10^8 \sim 10^9 \text{ N/m}^2$ の応力は通常観測される）があると、

$$K_o = \frac{3}{2} \lambda_s \sigma = 5 \times 10^3 \text{ J/m}^3 \quad (1)$$

となり、アモルファス金属は歪があると利点を失うように見える。しかし、アモルファス材料の内部にある歪あるいは外力による歪は磁壁の厚みに比べると数桁大きなスケールで均一に分布するので、磁壁移動や均一な磁化反転の支障にはならず、軟磁性が失われることはない。この特徴によって、飽和磁歪の大きい Fe 系のアモルファス薄膜でも非常に低い H_c が得られている。また、この大きな磁歪によって磁化曲線は敏感に変化し、歪センサーなどの用途が開けている。

(c) 軟磁性材料としての特徴

この非常に優れた軟磁性材料の弱点は、熱安定性である。軟磁性材料の応用には、商用周波数付近での、トランスなどの電力変換機器、数十～数百 kHz での制御機器、また数 MHz～数 GHz での薄膜素子があるが、そのほとんどの応用で飽和磁化が高いことが要求される。アモルファス金属の磁気モーメントは結晶相の強磁性体よりも低下している⁶⁾。実用材料としては、この飽和磁化をなるべく高めたアモルファス相が望ましく、ガラス化元素の含有量を減らす試みがされてきた。しかし、アモルファス相が結晶化する温度が低下することは避けられない。Fig. 6 は、磁歪がゼロに近いという条件で集めた、さまざまなアモルファス合金の結晶化温度と飽和磁化の関係で、合金組成にあまり依存しない関係があり、大幅な改善は望めそうもないことがわかる。

以下に述べるナノ結晶材料は、アモルファス材料につきまとう耐熱性の問題をほぼ解決したもので、強磁性微結晶の新しい機能性が発現した典型的な例である。

3. ナノ結晶材料

結晶粒のもつ結晶磁気異方性のために軟磁性を示さない Fe や Co を、スパッター法などによって薄膜で作製した場合、結晶粒のサイズが小さくなると H_c が低下することは以前から知られていた⁷⁾。

このような微結晶の効果が明確な形で軟磁性材料に活か

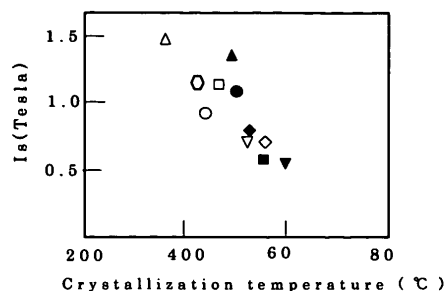


Fig. 6 Relation between saturation magnetization and crystallization temperature for various amorphous compositions. Δ , $\text{Co}_{95}\text{Zr}_5$; $\blacktriangle$, $\text{Co}_{91}\text{Zr}_5\text{Ta}_4$, $\square$, $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$, $\circ$, $\text{Co}_{90}\text{Nb}_{10}$, $\bullet$, $\text{Co}_{87}\text{Zr}_5\text{Nb}_8$, $\bigcirc$, $\text{Co}_{83}\text{Ti}_{17}$, $\blacklozenge$, $\text{Co}_{80}\text{Mo}_3\text{V}_7\text{Zr}_{10}$, $\diamond$, $\text{Co}_{80}\text{Mo}_{10}\text{Zr}_{10}$, ∇ , $\text{Co}_{80}\text{V}_{10}\text{Zr}_{10}$, $\blacktriangledown$, $\text{Co}_{79}\text{Mo}_9\text{Zr}_{11}$, $\blacksquare$, $\text{Co}_{78}\text{Mo}_9\text{B}_2\text{Zr}_{11}$.

されたのは、吉沢らによるナノクリスタル薄帯（ファインメット）である⁸⁾。この薄帯は、代表的なアモルファス合金薄膜である Fe-Si-B に Cu, Nb を加えて結晶化温度以上で熱処理すると、 α -Fe を主成分とする微結晶 ($\sim 10 \text{ nm}$) が析出し、その周囲は Fe から分離した Cu, Nb, Si, B を主成分とするアモルファス相がある構造になる。このアモルファス相の結晶化温度は高く、分離が進むとさらに高くなる方向にあるので、 α -Fe は成長を阻まれている。Herzer は、この微結晶構造が軟磁性になる理由について、このアモルファス相も Fe を含む強磁性であり、微結晶間は交換結合でつながっていることを実験で示した⁹⁾。また、以下のようなモデルで軟磁性の機構を説明している¹⁰⁾。

Fig. 7 は微結晶構造を示し、正方形の微結晶が互いに交換相互作用で結合しているモデルである。このとき、ある結晶内のスピンと隣の結晶のスピンは互いに平行になろうとするが、結晶磁気異方性の方向が異なるとその分平行からずれる。さらに離れた結晶内ではスピンは影響を受けなくなる。この互いに影響がなくなる結晶間の距離 L_{ex} は、交換結合エネルギーと磁気異方性エネルギーの総和が最小となる距離で、これは磁気異方性 K_u をもつ強磁性体内での磁壁の厚みを表現する場合と同じである。

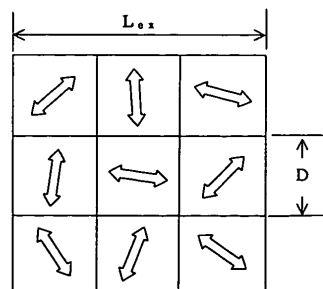


Fig. 7 Model of the nanocrystalline structure that brings about magnetic softness in a polycrystalline phase.

$$L_{\text{ex}} \approx \sqrt{\frac{A}{K_{\text{eff}}}} \quad (2)$$

ここで、 A : 交換スティッフネス常数, K_{eff} : L_{ex} 間の平均の磁気異方性定数である. Fig. 7 の 1 個の結晶粒のサイズを D とすると, L_{ex} の範囲内にある結晶粒の数 N は,

$$N = \left(\frac{L_{\text{ex}}}{D} \right)^3 \quad (3)$$

である. Fig. 7 のように各結晶粒のもつ磁気異方性の方向がランダムであり, その数 N が無限に大きいと, (2) 式の K_{eff} は平均してゼロになるが, (3) 式に示すような有限な N では, K_{eff} はゼロではなく,

$$K_{\text{eff}} = \frac{K_c}{\sqrt{N}} \quad (4)$$

となる. ここで, K_c : 個々の結晶粒が本来もっている磁気異方性の定数である.

(2)~(4) 式から,

$$K_{\text{eff}} \approx (K_c^4 / A^3) D^6 \quad (5)$$

つまり, L_{ex} の距離内の粒子集団を 1 個の粒子と見ると, K_{eff} をもつことになり, 磁化回転を仮定すると,

$$H_c \propto \frac{K_{\text{eff}}}{M} \propto D^6 \quad (6)$$

となる.

以上の簡単なモデルで得られた $H_c \propto D^6$ の関係は実際の微結晶材料で実現されている. Fig. 8 は, さまざまな微結晶材料について, D と H_c の関係をまとめたもので, 微結晶薄帯 Fe-Cu-Nb-Si-B の H_c は D^6 の依存性をもっている. なお, 図の大きな結晶粒の領域では, $1/D$ の依存性をもつ. これは古くから知られていて, 磁壁の pinning によって説明できる.

この微結晶材料の特徴は, 高い飽和磁化と熱安定性, ま

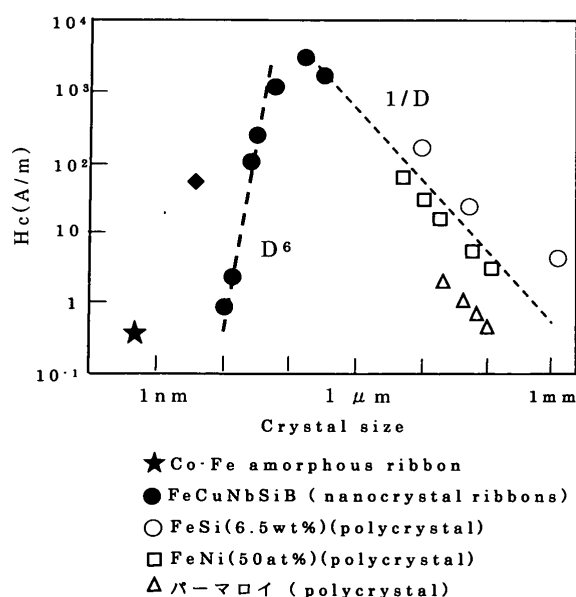


Fig. 8 Coercivity of magnetically soft materials as a function of crystal size.

た優れた軟磁性にある. この構造は当然薄膜でも実現できる. 長谷川らは, (Fe, Co, Ni)-M(M=IV_A~VI_A)-C の組成でスパッター膜を作ると, (Fe, Co, Ni) の微粒子と M-C の炭化物微粒子からなる軟磁性膜となることを見いだした¹¹⁾. その構造は, Fig. 9 の Fe-Ta-C のモデルのように, 微細な Ta-C が分散し, これに Fe の粒界がピン止めされて Fe の成長が抑えられている. このような構造は, Fe-M や Fe-C に比べて M-C の親和性が強い (生成自由エネルギーが大きい) ことによって起こり, M の窒化物においても同じ構造が得られる. 現在までに非常にたくさんの組成においてナノ結晶軟磁性薄膜が得られることがわかっている¹²⁾. これらの軟磁性の熱安定性は, M-(C, N) の成長が始まる温度まで安定であり, 900 K まで軟磁性が保たれる.

なお, ナノクリスタル構造でも誘導磁気異方性が見られる場合がある. Fe-(Ta-N) では, $K_1 = 3 \times 10^2 \text{ J/m}^3$ 程度の大きさの磁気異方性が磁場中熱処理によって形成される¹³⁾. これは, Fe の格子間に残留する余分な N の移動によって引き起こされていると推測されている. また, 飽和磁歪は, α -Fe の多結晶構造から類推される程度の飽和磁歪, あるいはそれ以下になっていて, 十分に低くできる¹⁴⁾.

4. グラニュラー構造材料

薄膜で (Fe, Co, Ni)-M(M=IV_A~VI_A)-(C, N) の組合せでナノクリスタル構造ができることになると, さらに O, F などでも可能ではないかと考えたくなる. 実際, 薄膜軟磁性材料研究はこの方向に進み, M-(N, O, F) の場合には, M-(N, O, F) の微結晶でなくアモルファス相が (Fe, Co, Ni) の微結晶を囲んだ構造になり, 高電気抵抗という大きな特徴をもつ軟磁性材料 (グラニュラー薄膜) が得られることがわかった. グラニュラー構造の相分離の過程は, 原理的にはナノクリスタルと同じであるが, その速度が非常に遅く, 強磁性微粒子をアモルファス酸化物, フッ化物が囲んだ構造になる. その巨視的な抵抗率は金属に比べて 1~2 桁高い. なお, 微粒子間にはアモルファス相に残留する強磁性成分を介して交換結合が働いていて, これが軟磁性を実現している点は, ナノクリスタルと同じ原理が働いている. その構造は Fig. 10 のようなものと考えられている. 強磁性金属の微粒子の周囲は酸化物 (あるいは窒化物,

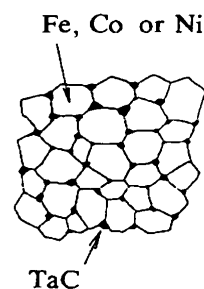


Fig. 9 Model of the nanostructure of magnetically soft (Fe, Co, Ni)-TaC films.

フッ化物)であるが、相分離は完全でなく、酸化物を介した微粒子間の交換結合が残っている。この構造の $H_c \propto D^6$ の関係をナノクリスタルと比較すると、同じ D に対して H_c は高い位置にくる (Fig. 9 の◆)。これは、交換結合を仲介する酸化物の強磁性が弱く、同じ D の微粒子に対して L_{ex} が小さいためと解釈できる。強磁性金属の含有量をさらに減らすと、微粒子は交換結合がなくなって磁気的な孤立状態になり超常磁性が現れ、微粒子間のトンネル伝導電子による巨大 MR が観測されることはよく知られている。この強磁性金属の含有率を飽和磁化で表し、抵抗率との関係を見ると Fig. 11 のようになり、酸化物が増えると厚くなり、また抵抗率も上がっていることを示している。この高い電気抵抗は応用面から非常に興味をもたれている。軟磁性の高い透磁率によって表皮深さが小さくなり、高周波では薄膜形状でも渦電流損失が無視できなくなる。表皮深さ δ は、比透磁率が 1000、抵抗率が $10 \mu\Omega\text{cm}$ 、比誘電率が 1、周波数を 1 GHz と仮定すると、 $\delta = 0.16 \mu\text{m}$ となり、非常に薄い膜しか使えない。これに対し、抵抗率が $10^3 \mu\Omega\text{cm}$ になると、 δ は $1.6 \mu\text{m}$ になる。この大きさは、磁気ヘッドの動作周波数の急速な上昇に対応できるものであるが、Fig. 11 で示したように飽和磁化に限度がある。ただし、この図では飽和磁歪が数 ppm 以下の組成に限定しており、磁歪の増大を無視すれば、飽和磁化の増大は可能である。

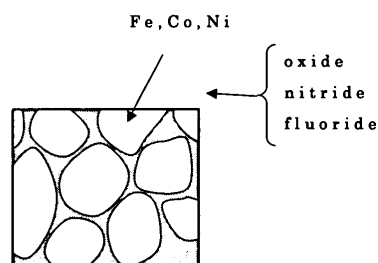


Fig. 10 Model of the nanostructure of granular films.

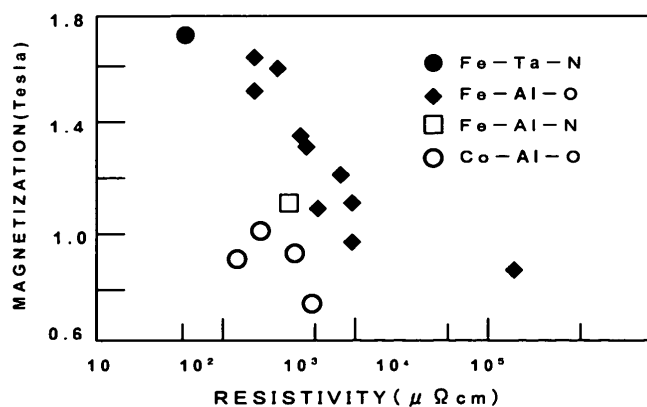


Fig. 11 Relation between saturation magnetization and resistivity for various granular films.

軟磁性材料を高周波で低損失で使うためには、渦電流を抑えるための高い電気抵抗に加えて自然共鳴が起こる周波数を高くする必要がある。幸いにしてグラニュー構造には高い抵抗率に加えて、面内に強い一軸磁気異方性が形成される。よく知られているように、共鳴周波数と透磁率の間には、Sneek の限界と呼ばれる関係があるが、薄膜では、通常の一軸磁気異方性に加えて、薄膜の形状磁気異方性が加わるので、その共鳴周波数は飽和磁化に依存して高くなる。薄膜の共鳴周波数は¹⁵⁾

$$\omega_0^2 = 2K_u \cdot \gamma^2 / \mu_0 \quad (7)$$

で表される。ここで、 γ : 磁気回転比、 μ_0 : 真空の透磁率である。これによれば、 $K_u = 10^2 \text{ J/m}^3$ では、 f_r は 120 MHz となり、バルク材料に比べてはるかに高い。しかし、GHz 帯では共鳴損失 (μ'') が無視できなくなる。したがって、GHz 帯で低損失の軟磁性を実現するには、一軸磁気異方性 K_u を高くする必要がある。Co-Al-O 系のグラニュー薄膜では、 $H_k = 20,000 \text{ A/m}$ に達し、このときの f_r は、数 GHz にある¹⁶⁾。このような強い磁気異方性は、パーマロイやアモルファス合金で見られる原子対の異方的分布、すなわち擬似双極子モデルでは説明できない。また、磁気弾性効果でも説明が難しい。その原因については、まだはっきりとはわかっていないが、以下のような実験結果が得られている。

Fe-Al-O のスパッター膜では、スパッター粒子の入射方向に依存して、 $H_k = 15,000 \text{ A/m}$ 程度の一軸磁気異方性がつく。これは膜内に柱状構造が形成され、その形状異方性によると考えるのが自然であるが、その磁気異方性定数 K_u の温度変化を測定すると、 M_s^2 の温度変化とは一致しない。しかし、弱い交換結合でつながった微粒子が柱状構造を作っていると仮定すると (Fig. 12), K_u の温度変化を説明できることがわかった。これに対し Co-Al-O 系ではさらに強い磁気異方性が観測され、磁場中熱処理によりその方向が制御できることが知られている¹⁶⁾。磁場中熱処理により誘導できる磁気異方性は、Fig. 12 のモデルでは説明できない。しかし、微粒子間の交換結合が磁場中熱処理によりその方向を変えるのではないかという仮説がある。

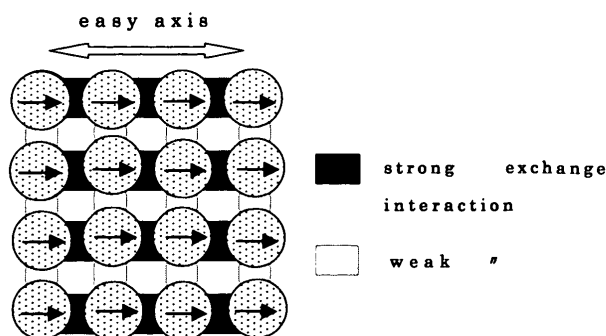


Fig. 12 Model of the microscopic structure of granular films with strong magnetic anisotropy.

実際に、Co-Al-O に Pd を添加すると、Pd は Al-O のアモルファス相に局在し、同時に誘導磁気異方性は強くなる¹⁷⁾。Pd は磁氣的に偏極しやすい元素であることを考えると、微粒子間の交換結合に関与して誘導磁気異方性を強めている可能性がある。

5. ヘテロアモルファス構造

上で述べたグラニューラー構造では、強磁性金属微粒子と酸化物（あるいはフッ化物、窒化物）が完全には相分離していない状態にあり、微粒子間の交換結合により軟磁性が実現されている。ヘテロアモルファス構造では、Fig. 10 の構造において金属微粒子もアモルファス相であり、微粒子間の交換結合がなくても軟磁性が得られる。この構造は唐門らによって報告され¹⁸⁾、Fe-B のアモルファス微粒子が B-N のアモルファス相に囲まれている。最近では、(Fe-Co-B)-(Si-O) で一連の高電気抵抗膜が報告されている¹⁹⁾。この構造では、アモルファス相を得るための組成の制約から、飽和磁化の高いものを作ることは困難であるが、絶縁性のマトリクスを増やすことにより非常に高い電気抵抗が期待できるので、応用面では興味深い材料である。

6. 人工的ナノ構造と軟磁性

以上の 4 種類の軟磁性材料は、それぞれ特徴があり、それを活かした応用研究が現在も活発に続けられている。しかし、磁気素子あるいは磁気デバイスの観点から見ると、薄膜化、スケールダウン、さらなる高周波化による高度な集積化が急速に進み、材料の磁氣的性質をいじるだけでは、対応しきれなくなっている。そこで、人工的に構造を作り、これに対応する方策について述べる。

1) 多層膜と軟磁性

1960 年の *Nature* 誌にパーマロイ蒸着膜を SiO を中間膜として多層にすると、 H_c が劇的に低下するという記事が載っている²⁰⁾。この効果は、その後詳しく調べられ、多層膜では隣接する磁性層間の静磁氣的結合によって磁壁の対が形成され、磁壁抗磁力が低下することが示された。この軟磁性改善の効果は高周波では磁壁移動速度に限界があり、数 MHz 以上では役に立たない。しかし、多層構造にはもっと単純な効能があり、スケールダウン、高周波化に役立っている。Fig. 13 は、そのモデルである。軟磁性薄膜の大きさが数 $10\ \mu\text{m}$ 以下になると、数 μm 以下の厚みの薄膜でも形状磁気異方性が大きな影響をもつようになり、図 (a) のような磁区構造ができる。この構造は強磁性体の外部に漏れる磁束を減らす構造であるが、図の長さ方向の透磁率は低下し、またその周波数特性も劣化する。図 (b) の多層膜では、強磁性でない中間層があり、上下の強磁性層は端部の磁束で静磁氣的に結合している。これによって漏れ磁束が少なくなり、磁区構造は簡単なものになって透磁率の低下が起こらなくなる。中間層には、SiO₂ などの絶縁

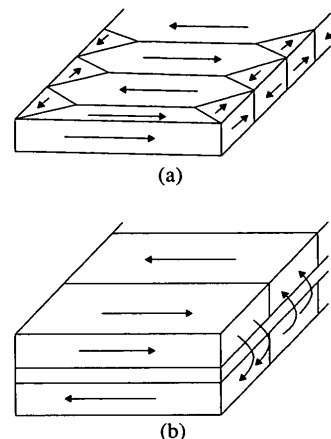


Fig. 13 Illustration of the domain structure of films with (a) single layer structure and (b) multilayer structure.

物が使われ、渦電流を抑制する役目もしている。上下の強磁性層の静磁氣的結合は、中間膜が薄いほど強くなり、より微小な磁気素子が可能になる。これまでの報告では、SiO₂ などのセラミクス中間層では 2 nm 付近が下限であるが、金属中間層ならば 1 nm 程度は可能であろう。

この多層膜構造に起こる特異な特性としては、高透磁率からくるインダクタンスと多層構造によるキャパシタンスによる共振現象が観測されている²¹⁾。この現象については理論解析も行われていて、素子が微小化するに伴ってキャパシタンスの寄与が減り、数十 μm の大きさでは問題を起こさないことが予測できる。また、各強磁性層の磁気異方性の方向を人工的に分散させた多層膜（複合異方性膜）では、等方的に透磁率の高い薄膜を作れることが報告されている²²⁾。また、最近の MRAM の研究では、軟磁性薄膜のナノ秒での高速磁化反転モードが興味をもたれている。高速の大振幅反転では、一様な磁化回転モードでなく不均一な反転が起こることが知られており²³⁾、その反転速度については不確定な支配要因が残っている。多層膜構造は、大振幅反転の高速化に効果があることが 1960 年代に報告されているが²⁴⁾、その機構は明らかにされていないままになっている。

2) パターン化膜

グラニューラー膜やヘテロアモルファス膜では高い電気抵抗と H_k によって数 GHz での薄膜インダクタ磁心²⁵⁾、EMC 対策用薄膜²⁶⁾ への応用が検討されているが、 H_k が強ければ共鳴周波数は高くなるが、その分透磁率は低下してしまう。これを補うために膜を厚くすると、渦電流を抑える抵抗率が足りなくなる。現在までに開発されてきた軟磁性薄膜では、これらにすべて対応し、さらに数十 GHz まで低損失膜として動作できるものは見当たらない。この問題に対処できる可能性をもつ方法として、薄膜インダクタの研究で使われたパターン膜が提案されている²⁷⁾。Fig. 14 はその例である。(a) のパターン膜はグラニューラー膜など

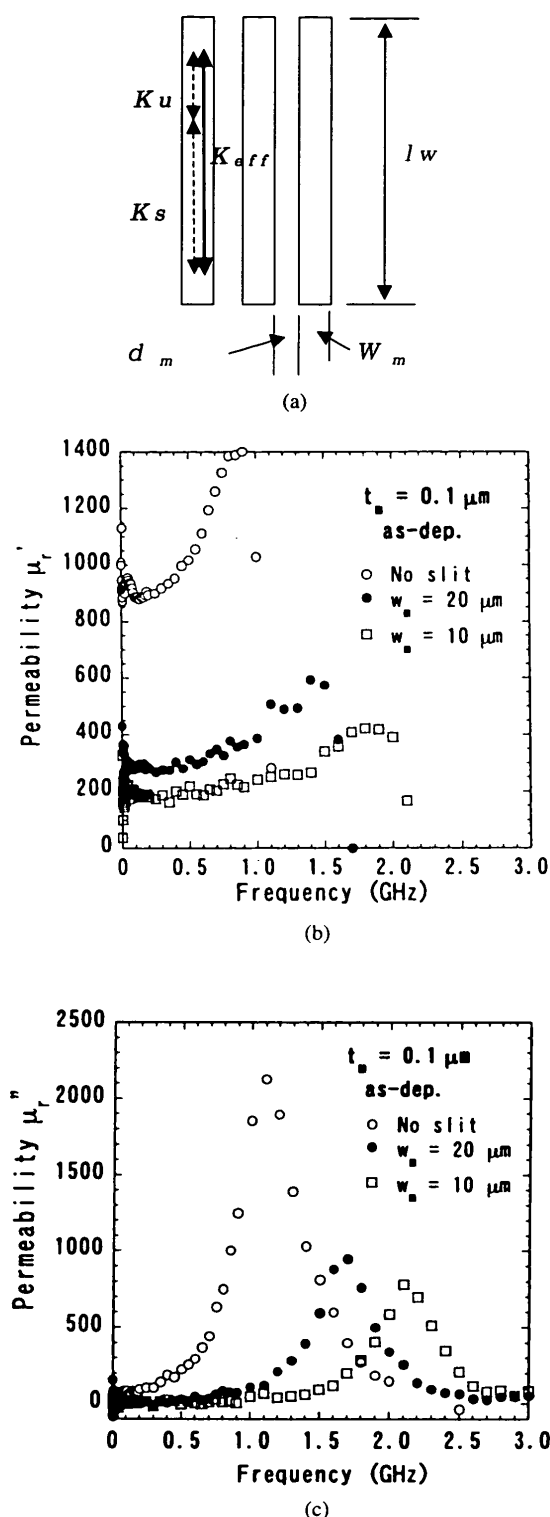


Fig. 14 (a) Configuration of the patterned film for high frequency permeability measurement. (b) Real part of permeability. (c) Imaginary part.

の強い磁気異方性 K_u をもつ材料、もしくは多層構造によって、単磁区構造になるようにする。これに形状磁気異方性 K_s が加わり、透磁率を任意に設計できる。(b), (c) は、薄膜の厚さ $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ 、間隔 $d_m = 5 \mu\text{m}$ 、長さ $l_m = 3.9 \text{ mm}$ 、幅 $W_m = 10, 20 \mu\text{m}$ のときの μ' と μ'' の実測値であ

る。 W_m を変えることによって、共鳴周波数を大幅に変えることができる。特に、(b) の μ' を見ると、共鳴損失が始まる周波数がスリットなしの膜では 500 MHz 以下であるのに対し、 $W_m = 20 \mu\text{m}$ では 1.5 GHz 付近にあり、動作周波数の向上が著しい。また、渦電流損失はギャップにより大幅に抑制されるので膜厚を大きくとれるメリットがあり、透磁率の低下を補償できる。パターン化膜にはこのようにいくつかの優位性があるが、まだ研究段階である。

4. おわりに

軟磁性材料は、商用周波数付近では電磁鋼板が着実に進歩し、他の材料がこれに代わる可能性も少ないが、アモルファス、ナノクリスタルなどの材料はより高い周波数領域でさまざまな応用が広がっている。特に薄膜ではナノテクノロジー分野の拡大に伴って新しい応用の機会が生まれ、今後もより高い周波数帯域での材料開発が必要となる。紙面の制限で、ナノ構造と軟磁性の話題を書き尽くせなかったが、何かのヒントになれば幸いである。

文 献

- 1) 深道和明, 増本 健編: アモルファス合金, 第 1 章 (アグネ, 1981).
- 2) T. Masumoto: Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ., A, 29, 265 (1988).
- 3) 大友茂一他: 日本金属学会秋季大会要集, p. 23 (1983).
- 4) 近角聰信: 強磁性体の物理 (下), 第 5 章 (裳華房, 1984).
- 5) H. Fukunaga and K. Narita: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 24, 24 (1985).
- 6) 溝口 正: 磁気と磁性, 第 4 章 (培風館, 1995).
- 7) 熊坂登行ほか: 第 7 回日本応用磁気学会講演概要集, 70 pD-4 (1983).
- 8) 吉沢克仁, 山内清隆: 日本金属学会誌, 53, 241 (1989).
- 9) G. Herzer: *IEEE Trans. Magn.*, 25, 3327 (1989).
- 10) G. Herzer: *IEEE Trans. Magn.*, 26, 1397 (1990).
- 11) 長谷川直也, 齊藤正路: 日本応用磁気学会誌, 14, 313 (1990).
- 12) 島田 寛, 山田興治編: 磁性材料, 第 3 章文献リスト (講談社サイエンティフィック, 1999).
- 13) O. Shimizu, N. Nakanishi, and Y. Yoshida: *J. Appl. Phys.*, 70, 6244 (1991); 飯竹宣己, 島田 寛: 日本応用磁気学会誌, 15, 361 (1991).
- 14) 島田 寛, 山田興治編: 磁性材料, 第 3 章, p. 211 (講談社サイエンティフィック, 1999).
- 15) 島田 寛, 山田興治編: 磁性材料, 第 3 章, p. 149 (講談社サイエンティフィック, 1999).
- 16) 大沼繁弘, 三谷誠司, 藤森啓安, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, 20, 489 (1996).
- 17) 大沼正人, 宝野和博, 大沼繁弘, 小野寺秀博, 藤森啓安: 第 25 回応用磁気学会学術講演概要集, 25pC-1 (2001).
- 18) H. Matsuyama, H. Eguchi, and H. Karamon: *J. Appl. Phys.*, 67, 5123 (1990).
- 19) M. Munakata, M. Yagi, and Y. Shimada: *IEEE Trans. Magn.*, 35, 3430 (1999).
- 20) H. Clow: *Nature*, 194, 1035 (1962).
- 21) B. C. Web et al.: *J. Appl. Phys.*, 68, 4920 (1990).
- 22) 菅原英州ほか: 日本応用磁気学会誌, 16, 291 (1992).
- 23) 日本金属学会編: 薄膜・微粒子の構造と物性, 第 3 章, p.

242 (丸善, 1994).

- 24) F. B. Humphrey *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, 558 (1966).
- 25) M. Yamaguchi *et al.*: *J. Appl. Phys.*, 85, 7919 (1999). 山口正洋, 高橋祐一, 荒井賢一, 菊地新喜: 日本応用磁気学会誌, 22, 861 (1998).
- 26) S. Yoshida *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, 37, 2401 (2001).
- 27) 末沢健吉ほか: 日本応用磁気学会誌, 24, 731 (2000).

(2001 年 11 月 19 日受理)



島田 寛 しまだ ゆたか

昭 39 東北大学工学部電気工学科卒, 昭 46 Duke 大学大学院卒, 昭 47 東北大学科学計測研究所助手, 平 3 同教授, 現在に至る.

専門 磁性薄膜工学 (Ph.D.)