

NiFe/FeCo/NiFe 高飽和磁化薄膜の構造と軟磁気特性

Soft Magnetic Properties and Microstructure of NiFe/FeCo/NiFe Thin Films with Large Saturation Magnetization

片田裕之・島津武仁・渡辺 功・村岡裕明・中村慶久
東北大学電気通信研究所, 仙台市青葉区片平 2 丁目 1-1 (〒980-8577)

H. Katada, T. Shimatsu, I. Watanabe, H. Muraoka and Y. Nakamura

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577

The soft magnetic properties of NiFe/FeCo/NiFe sandwich films with high saturation magnetization are discussed in relation to the microstructure. Ta/NiFe/FeCo/NiFe/Ta films prepared using the UHV sputtering process show bcc-(110) preferred grain orientation with the <110> direction sharply perpendicular to the film plane in the FeCo layer. It was revealed that thin NiFe film with a thickness of only 3 nm works effectively as a seed layer of FeCo film to control the microstructure, resulting in a significant reduction of the coercivity. The best thickness of the FeCo layer in order to realize both soft magnetic properties and high saturation magnetization was found to be ~100 nm. Film deposition in Ar + N₂ plasma reduced the grain size, but did not lead to further improvement of the soft magnetic properties. The large lattice strain induced by N₂ addition is likely to degrade the soft magnetic properties.

Key words: FeCo films, NiFe/FeCo/NiFe sandwich films, high saturation magnetization, soft magnetic properties, preferred grain orientation, lattice strain

1. はじめに

近年、記録密度の急激な増加あるいは磁性薄膜インダクタの小型化・高性能化に伴い、ハードディスク用記録ヘッドあるいは薄膜インダクタなどに、高い飽和磁束密度を有する薄膜が求められるようになってきている。FeCo 膜は、2.45T という非常に大きな磁束密度を示すが、線磁歪が大きいため、軟磁気特性の導出は容易では無いとの報告もある¹⁾。

しかし、近年、FeCo 膜を NiFe 膜で挟み込んだ薄膜が 2.4T の高い飽和磁束密度を有し、かつ非常に優れた軟磁気特性を示すことが Sun 等²⁾により報告されている。また、吉川等は³⁾、適切なシード層上に製膜した結晶性の極めて高い FeCo 合金膜は単膜でも優れた軟磁気特性を示すことを報告している。しかし、線磁歪が極めて大きい FeCo 合金膜において優れた軟磁気特性が得られる機構については明らかではない。さらに、Sun 等の報告では、スパッタリング法による製膜時に窒素を添加することで軟磁気特性が得られている。これには、窒素添加雰囲気中で作製した Fe 薄膜の場合^{4,6)}と同様に、窒素添加による結晶粒の微細化が軟磁性の導出に関与している^{7,8)}可能性があるが、その機構は明確ではない。今回は NiFe で挟み込んだ FeCo 合金膜において軟磁気特性が得られる機構の解明、ならびに軟磁気特性の導出を目的として検討した。

2. 実験方法

試料は、東北大学電気通信研究所付属工場で作製した UHV の dc マグネトロンスパッタ装置により製膜した。装置の到達真空度は 1×10^{-10} Torr 以下、プロセスガス中の不純物濃度が 1 ppb 程度であり、一般のスパッタ装置に比較して 3 桁程度優れた清浄度(製膜中の換算不純物濃度で約 1.8×10^{-8})で製膜することが可能である。

基板にはコーニング 7059 ガラス基板を用いた。一部の実験では、石英基板ならびに Si(100)単結晶基板を用いた。シード層ならびに保護層として 5 nm の Ta 膜をそれぞれ用いた。FeCo 層は 25at%Co-Fe, 30at%Co-Fe の組成について検討した。NiFe 層には 79at%Ni-Fe 組成を用いた。基板表面に 660 Oe の直流磁界を印加しながら製膜を行った。試料の熱処理は試料の磁化容易軸方向に 200 Oe の直流磁界を印加させながら真空中で行った。熱処理温度は 180 °C および 200 °C とした。磁化曲線は VSM により、試料の一軸磁気異方性の大きさはトルク磁力計により、いずれも膜面内で測定した。薄膜磁歪は、光楕子法により測定した。構造解析は X 線回折法により行った。

3. 結果および考察

3.1 構造

Fig. 1 には、Ta/NiFe(5 nm)/Ta/glass substrate 薄膜、ならびに、Ta/NiFe(5 nm)/Fe₇₀Co₃₀(100 nm)/NiFe(5 nm)/Ta/glass substrate 薄膜の X 線回折の結果を示す。本論文での膜構成の表記は、膜の上面側から表記するものとし「glass substrate」は、これ以降は省略する。図中には、この FeCo 複合膜のロッギングカーブも示してある。UHV で作製した NiFe 膜は膜厚 5 nm と非常に薄いにもかかわらず fcc(222)面からの回折線が観察されており、非常に優れた配向性を有している。このような NiFe 膜の上に製膜した FeCo 膜も bcc(110)面の非常に良い配向性を示し、bcc<110>方向の角度分散は、半値幅で約 2 度となっていることがわかる。

一方、この NiFe 膜でサンドイッチ構造とした FeCo 膜の薄膜磁歪は 30at%Co 組成で約 30×10^{-6} 、25at%Co 組成で約 20×10^{-6} と非常に大きな値を示した。そのため、基板と膜の界面における磁気弾性効果が軟磁気特性に与える影響が懸念されたが、熱膨張係数 α がコーニング 7059 ガラス基板 ($\alpha = 46 \times$

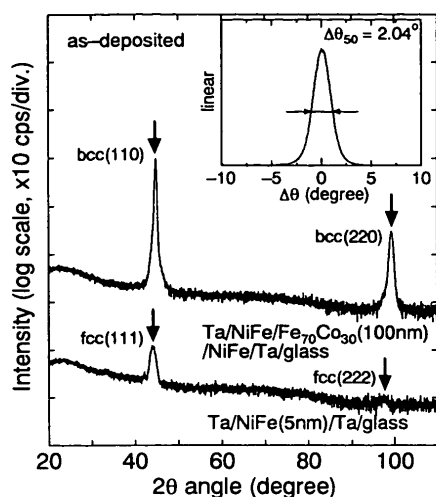


Fig. 1 X-ray diffraction patterns of Ta/NiFe (5 nm)/Ta and Ta/NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀ (100 nm)/Ta (5 nm) films.

10⁻⁷/K)と大きく異なる石英基板 ($\alpha \sim 0$ /K)ならびに自然酸化膜の付いた Si(100)単結晶基板上に FeCo/NiFe 複合膜を製膜した場合でも、軟磁気特性に大きな差は観察されなかった。そのため、これ以降の結果はコーニング 7059 ガラス基板を用いた結果を示す。

3.2 NiFe 層の効果

Table 1 には、種々の膜構成で作製した Fe₇₀Co₃₀と NiFe の複合膜について、膜構成と磁化困難軸方向の保磁力 H_c^{HA} の関係を示した。また、Fig.2 には Ta/NiFe(5 nm)/FeCo(100 nm)/NiFe(5 nm)/Ta 薄膜の磁化困難軸方向ならびに磁化容易軸方向の磁化曲線を示した。

FeCo 膜を Ta 上に直接製膜した薄膜の H_c^{HA} の値は 50 Oe を超えている。しかし、わずか 3 nm の NiFe 膜の上に FeCo を製膜することで H_c^{HA} は 3 Oe 程度まで急激に低下し、Fig. 2 に一例として示したような明瞭な一軸性の磁気特性を示した。ここで、Table 1 に示したように、下層の NiFe 膜の厚みを 20 nm まで増加させても H_c^{HA} はほとんど変化せず、ほぼ同程度の値を示している。また、X 線回折の結果、わずか 3 nm の NiFe 膜を FeCo の下層に用いることで、FeCo 膜の bcc-(110) 面からの X 線の回折強度は3倍程度に増加していた。したがって、下層の NiFe 膜は、FeCo 膜の配向等の構造を制御するシード層として軟磁気特性の導出に寄与しており、その厚みは僅か 3 nm でも十分であることがわかる。一方、Table 1 に示したように、NiFe 層を FeCo 上に製膜しても、 H_c^{HA} はほとんど変化せず、軟磁気特性向上の上で大きな効果は観察されていない。なお、Sun 等の報告では、窒素添加雰囲気中で薄膜を作製することで軟磁気特性が向上している²⁾が、我々の実験結果では、FeCo 層、あるいは、NiFe と FeCo の両方を窒素添加雰囲気中で作製しても、薄膜の H_c^{HA} は低下せず、逆に若干増加する傾向にある。

3.3 FeCo 膜厚依存性

Fig. 3 には、Ta/NiFe(5 nm)/Fe₇₀Co₃₀(20 nm)/NiFe(5 nm)/Ta 薄膜の磁化困難軸方向近傍の磁化曲線を一例として

Table 1 Values of H_c^{HA} for various NiFe /Fe₇₀Co₃₀/NiFe films. In the table, "N" denotes the film deposition in Ar+N₂ plasma with N₂/Ar = 5%.

Ta (nm) (protecting)	NiFe (nm)	Fe ₇₀ Co ₃₀ (nm)	NiFe (nm)	Ta (nm) (seed layer)	H_c^{HA} (Oe)
---	---	100	---	---	53.6
---	---	---	3	---	3.4
5	5	100	5	---	2.7
---	---	100	20	5	4.2
---	---	100	5	---	3.4
5	5	100N	5	---	5.2
5N	5N	100N	5N	---	6.5

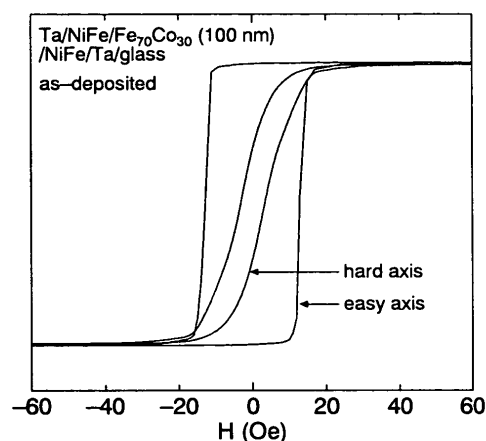


Fig. 2 Magnetization loops along the hard and easy axes of magnetization for Ta/NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀ (100 nm)/Ta (5 nm) films.

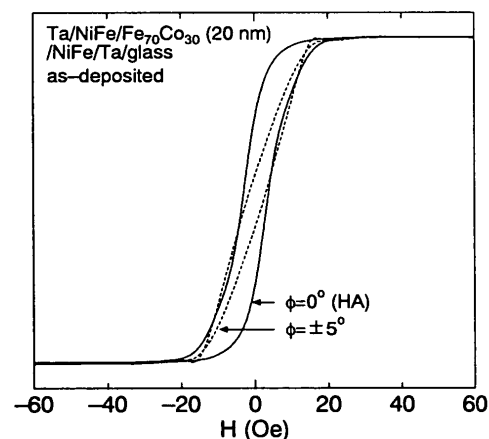


Fig. 3 Magnetization loops along the axes close to the hard direction of magnetization in Ta/NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀ (20 nm)/NiFe (5 nm)/Ta film.

示した。図中には、保磁力の角度依存性の対称性から決定した磁化困難軸方向(図中 $\phi=0^\circ$ に相当)における磁化曲線と、磁化困難軸から $\pm 5^\circ$ の角度に磁界を印加した場合の磁化曲線が示してある。FeCo 膜が薄い薄膜の磁化困難軸近傍の磁化曲線は、印加磁界の方向を磁化困難軸から両側に僅かにずらすことで形状が大きく変化し、保磁力が若干低下する。Fig.

3においても、 $\phi = \pm 5^\circ$ における磁化曲線はほぼ一致しているが、その保磁力が $\phi = 0^\circ$ における値よりも小さくなっていることがわかる。これは、FeCo層の磁化容易軸に対し、NiFe層の磁化容易軸が数度程度ずれているためであると考えられる。この磁化容易軸のずれはFeCo層の厚みに依らず存在すると推察されるが、FeCo層が厚くなるとFeCo層の磁化量が相対的に増加するため磁化曲線上には表れ難くなってきている。なお、本論文における磁化困難軸方向の保磁力 H_c^{HA} の値は、保磁力の角度依存性の対称性から軸方位を決定して求めた値であり、FeCo層の軟磁性によりほぼ決定されているものと考えられる。

Fig. 4には、Ta/NiFe(5 nm)/Fe₇₀Co₃₀/NiFe(5 nm)/Ta薄膜の H_c^{HA} ならびに磁化容易軸方向の保磁力 H_c^{EA} を、FeCo膜厚に対して示した。FeCo層が10 nmの薄膜の H_c^{HA} は約6 Oeと大きい、FeCo膜厚の増加とともに H_c^{HA} は急激に低下している。 H_c^{HA} は50~100 nmのFeCo膜厚において緩やかな極小値を示し、FeCo膜厚をさらに増加させると再び増加している。一方、異方性磁界 H_k の値は、膜厚10 nmにおいて約20 Oeの高い値を示すが、 H_c^{HA} の場合と同様に50~100 nmのFeCo膜厚において緩やかな極小値を示し、膜厚400 nmでは40 Oeまで再び増加していた。

FeCo層が薄い領域において H_c^{HA} が高い原因は、FeCoの線磁歪が極めて大きいことから、NiFe層との界面近傍におけるFeCoの不均質な格子歪みによる磁気弾性的な効果であると推察される。これに対し、膜厚が100 nm以上の領域で軟磁気特性が劣化する原因は明らかではないが、膜厚400 nmでは40 Oeもの H_k を有するにもかかわらず、磁化曲線が膜面内ではほぼ等方的 ($H_c^{HA} = H_c^{EA}$) となっている。このことは、膜厚の増加による結晶成長に伴い膜内部の応力が増加し、軟磁気特性が劣化していることを示唆している。以上のことから、今回の実験条件では、軟磁気特性と高い飽和磁化値が両立できるFeCoの厚みは約100 nmであることがわかる。

3.4 窒素添加の効果

Fig. 5は、Fe₇₀Co₃₀層の膜厚を100 nmに固定し、Fe₇₀Co₃₀層の製膜時にのみ窒素添加を行った Ta/NiFe(5 nm)/Fe₇₀Co₃₀-N(100 nm)/NiFe(5 nm)/Ta膜の H_c^{HA} の値を、Arに対する窒素流量比 N_2/Ar に対して示す。またFig. 6には、これらの薄膜について、FeCo層のbcc-(110)面のX線回折線の半値幅からScherrerの式を用いて求めた結晶粒径 D の値も示した。なお、bcc-(110)面からの回折線には、下層NiFe膜のfcc-(111)面からの回折線が重畳しているが、その相対強度が低いため、回折パターン上でfcc-(111)面からの回折線を差し引いて解析している。

N_2/Ar を10%まで増加することで、 D は約400 Åから半分以下に低下している。 N_2/Ar が10%を超えると、FeCoの窒化物の回折線が観測されるようになり、飽和磁化の値も25%以上低下した。一方、 N_2/Ar の増加により H_c^{HA} は増加し、10%で極大を示した後で再び低下している。今回の実験範囲では、 M_s 値が低下しない範囲では、窒素添加による軟磁気特性の向上は見られなかった。これは、25at%Co-Feの場合も同様であった。

Fig. 7には、FeCo層厚を100 nmに固定したTa/NiFe(5

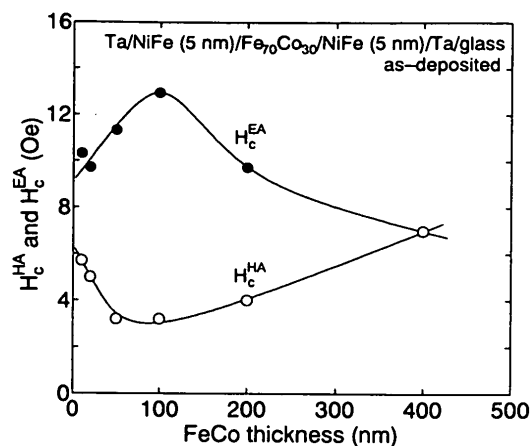


Fig. 4 Values of H_c^{HA} and H_c^{EA} for Ta/NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀/NiFe (5 nm)/Ta films, as a function of the thickness of the FeCo layer.

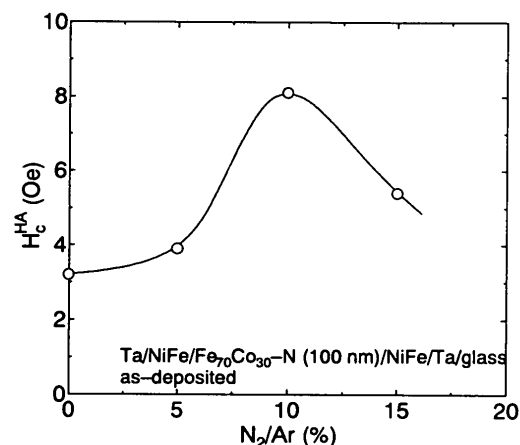


Fig. 5 Values of H_c^{HA} as a function of the N_2/Ar ratio for Ta /NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀-N (100 nm)/NiFe (5 nm) /Ta films.

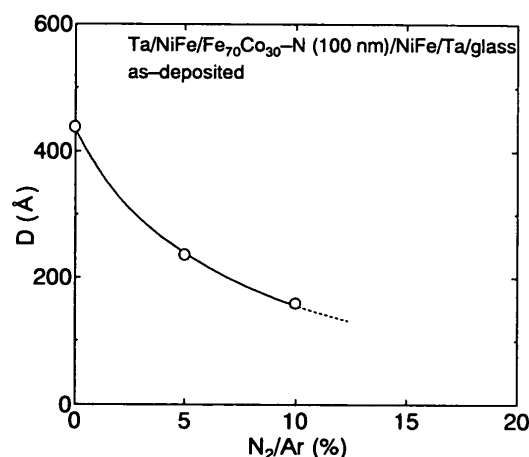


Fig. 6 Grain size D as a function of the N_2/Ar ratio for Ta/NiFe (5 nm)/Fe₇₀Co₃₀-N (100 nm) /NiFe (5 nm)/Ta films.

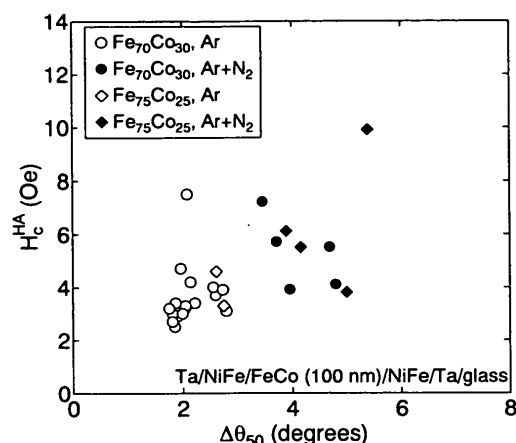


Fig. 7 Values of H_c^{HA} as a function of the distribution angle of the bcc- $\langle 110 \rangle$ direction, $\Delta\theta_{50}$, for Ta/NiFe (5 nm)/FeCo (100 nm)/NiFe (3-20 nm)/Ta films.

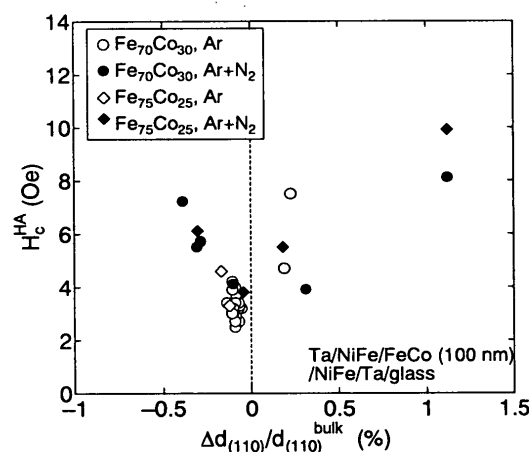


Fig. 8 Values of H_c^{HA} as a function of $\Delta d_{110}/d_{110}^{bulk}$ for Ta/NiFe (5 nm)/FeCo (100 nm)/NiFe (3-20 nm)/Ta films.

nm)/FeCo(100 nm)/NiFe(3~20 nm)/Ta 薄膜について、bcc- $\langle 110 \rangle$ 面の X 線回折のロッギングカーブの半値幅 $\Delta\theta_{50}$ と H_c^{HA} の関係について示した。図中には、二つの FeCo 組成に関して、純 Ar ならびに 10% までの窒素添加範囲において種々の製膜条件・熱処理条件下で作製した薄膜について示した。また Fig. 8 には、同様な試料について、FeCo 層の膜面に平行な bcc- $\langle 110 \rangle$ 面の歪み率と H_c^{HA} の関係を示した。ここで、bcc- $\langle 110 \rangle$ 面の歪み率は、無歪みのバルクの面間隔に対する値 $\Delta d_{110}/d_{110}^{bulk}$ として示した。

窒素を添加しない薄膜の $\Delta\theta_{50}$ は 2~2.5 度程度の範囲に分布しているが、組成の違いあるいは熱処理の有無の違いによる H_c^{HA} の大きな差が観察されない。一方、窒素添加により薄膜の $\Delta\theta_{50}$ は増加し 3~6 度の範囲に分布しており、 H_c^{HA} も若干大きくなっているが、 $\Delta\theta_{50}$ と H_c^{HA} の間には、強い相関はみられない。一方、 $\Delta d_{110}/d_{110}^{bulk}$ の値は、純 Ar 中で作製したほとんどの薄膜では -0.1 % 近傍の非常に狭い範囲に分布しており、 H_c^{HA} も比較的小さい。これに対し、窒素添加を行った試料の

$\Delta d_{110}/d_{110}^{bulk}$ の値は、製膜直後では正方向に、また熱処理により窒化物が膜中に微細に生成していると推察される試料では負方向に、それぞれ増加している。このような結晶歪みの増大に対応して、 H_c^{HA} が増加する傾向にある。これは、FeCo の線磁歪が大きいため、磁気弾性的な効果により膜の局所異方性分散量が増加するためであると推察される。

以上のことから、主に結晶粒の微細化を目的とした窒素添加効果は、軟磁性の導出に効果的に作用していない。これに関しては、UHV で製膜することで結晶粒径が相対的に大きいためであると推察される。しかし一方で、窒素添加による結晶歪みの増大による磁気弾性効果が、結晶粒径の微細化の効果を相殺している可能性もあるため、今後さらに詳しく検討する必要がある。

4. まとめ

高飽和磁化を有する FeCo 膜を NiFe 膜でサンドイッチ構造にした薄膜の構造と軟磁気特性の関係について検討した結果、下層の NiFe は、FeCo 層の構造を制御するシード層として軟磁気特性の導出に寄与しており、その厚みは僅か 3 nm でも十分であること、また、軟磁気特性と高い飽和磁化値が両立できる FeCo の厚みは約 100 nm であることが明らかとなった。一方、製膜中の窒素添加の影響についても検討を行ったが、軟磁気特性の向上には至られず、窒素添加により結晶格子の歪み率が増加すると軟磁気特性が劣化する傾向が見られた。

謝 辞

本研究の一部は、日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業(JSPS-RFTF 99R14401)、新エネルギー・産業技術総合開発機構地域コンソーシアム研究開発事業、ならびに SRC の支援により行われた。ここに深謝する。

また、UHV の dc マグネトロンスパッタ装置の作製にあたっては、東北大学電気通信研究所附属工場の渡辺博志氏ならびに高橋吉昭氏の御協力を得た。紙面をお借りして、謝意を表す。

文 献

- 1) T. Shimatsu, H. Uwazumi, M. Takahashi and T. Wakiyama, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **15**, 375 (1991).
- 2) N. X. Sun and S. X. Wang, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 2506 (2000).
- 3) M. Yoshikawa, S. Hashimoto, and H. Yoda, Digests of the 24th Annual Conference on Magnetism in Japan, 361 (2000)
- 4) M. Naoe, M. Yamagata and N. Terada, *IEEE Trans. Magn.*, **21**, 1900 (1985).
- 5) K. Kijima, N. Honda, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **12**, 317 (1988).
- 6) M. Takahashi, H. Shoji and T. Wakiyama, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **13** (Suppl. No. S1), 585 (1989).
- 7) H. Hoffmann, *J. Appl. Phys.*, **35**, 1790 (1964).
- 8) T. Shimatsu, M. Takahashi and T. Wakiyama, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **13** (Suppl. No. S1), 577 (1989).

2001 年 10 月 6 日受理, 2001 年 1 月 17 日採録