電子ビーム蒸着法で作製した Fe/Al₂O₃ 多層膜の電気抵抗^{*1}

上田 勇治¹ 高倉 亘^{1,*2} 池田 正二²

¹室蘭工業大学工学部電気電子工学科

²富士通株式会社 ファイル研究部

J. Japan Inst. Metals, Vol. 64, No. 10 (2000), pp. 878-881

© 2000 The Japan Institute of Metals

Electric Resistance of Fe/Al₂O₃ Multilayered Films Prepared by an Electron Beam Evaporation Method

Yuji Ueda¹, Wataru Takakura^{1,*2} and Shoji Ikeda²

¹Muroran Institute of Technology, Muroran 050-8585

²File Memory Laboratory, Fujitsu Ltd, Atsugi 243-0197

The processing speed of the computer needs speeding up because of an increase in the packing density, and the frequency for recording should shift to the higher side. The eddy current loss is brought about by the use of the high frequency, and it can be reduced by increasing the electrical resistivity of the material. The multilayers produced by alternate combination of the metal and the insulator is thought to be as one of the effective methods for preparing the high resistivity material. In this work, the electrical resistivity of the Fe/Al₂O₃ multilayers produced by varying the thickness of the Fe and Al₂O₃ films have been discussed. Moreover, in order to produce the magnetic anisotropy the film was prepared by varying the incidence angle of the vapor deposition. The resistivity increases with increasing Al₂O₃ thickness. The resistivity shows a tendency of having a maximum value in the vicinity of angle $\theta=45^\circ$ with further falling and rising behavior. On the other hand, the resistivity ratio has a maximum value around the angle of 45° and afterwards decreases gradually. Theoretical values obtained by considering atomic arrangement and experimental results are in agreement.

(Received April 25, 2000; Accepted August 21, 2000)

Keywords: iron/aluminium oxide, multilayer, electric resistance, obliquely deposition

1. 緒 言

近年、磁気記録の周波数帯は、記録密度の増加、コンピュータの処理速度の増加などに伴い、高周波側に拡張してきている¹⁾。したがって、コンピュータ用のハードディスク装置などに使用されている磁気記録ヘッドには、高周波特性に優れた軟磁性が必要とされる。特に、情報信号を記録媒体に与え記録するための電磁誘導型磁気ヘッドのコア(磁心)としては、磁界変化に対して容易に追従する高透磁率、高飽和磁束密度の他に、自然共鳴周波数を上げるため、適当に制御された磁気異方性を付与することが必要である²⁾。また、磁束を高めるためには磁心の膜厚を増加させる必要があり、低抵抗すなわち渦電流損失が問題となってくる。これは、材質の高抵抗化により低減させることが可能である。高電気抵抗材料の開発に際しては、組成や構造を変化させる方法、あるいは、金属と酸化物との組合せによる多層膜において、膜厚および積層数を変化させて作製することなどが考えられる。ま

た、斜め蒸着した薄膜における磁気異方性³⁾については知られているが、電気的性質についてはほとんど知られていない。このことは、磁気異方性を検討するうえでも重要である。

本研究の目的は、強磁性金属と酸化物とを組合せた Fe/Al₂O₃ 多層膜を電子ビーム蒸着法によって蒸着方向を変化させて作製し、その電気的性質について検討することである。

2. 実験方法

Fe/Al₂O₃ 多層膜は電子ビーム蒸着法を用いて、5 mm×5 mm のガラス基板上に Fe, Al₂O₃ をそれぞれ交互に蒸着し、各層の厚さを制御しながら作製した。このとき、平均膜厚を Fe は 1.5~3 nm, Al₂O₃ は 0.4~2 nm の範囲で変化させ、積層数 10~30 の膜を作製した。また、蒸着方向と基板面法線とのなす角 θ は、 $\theta=0^\circ\sim75^\circ$ の範囲で変化させた。電気抵抗は直流四端子法を用いて測定した。磁気異方性は、振動試料型磁力計(VSM)で測定した磁化曲線より求めた。

^{*1} 2000年3月29日日本金属学会春期大会において発表

^{*2} 室蘭工業大学大学院生(Graduate Student, Muroran Institute of Technology)

3. 実験結果および考察

3.1 抵抗率の Al₂O₃ 膜厚依存性

Fig. 1 は, $[\text{Fe}(x \text{ nm})/\text{Al}_2\text{O}_3(y \text{ nm})]_{10}$ において, Al₂O₃ 膜厚を変化させた場合の膜面方向の抵抗率を示したものである. 抵抗率は, Al₂O₃ 膜厚の増加に伴い直線的に増加し, 同じ Al₂O₃ 膜厚において Fe 膜厚を 3 nm から 1.5 nm へと薄くした場合には膜厚の影響によって抵抗率が増加した. 膜面方向の抵抗率は $10^{-7} \sim 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$ の範囲で変化させることができた.

3.2 斜め蒸着による抵抗率の入射角依存性

従来より, 斜め蒸着法によって作製された薄膜に発生する磁気異方性は蒸着方向に依存することが知られている.

Fig. 2 は, Al₂O₃ 膜厚を 2 nm 一定とし, Fe 膜厚を変化さ

Fig. 1 Al₂O₃ layer thickness dependence of resistivity.

Fig. 2 Magnetization curve vs. Fe thickness in obliquely deposited Fe/Al₂O₃ multilayers.

せて作製した Fe/Al₂O₃ 多層膜の磁化曲線を示したものである. Fe 膜厚が 3 nm の試料においては x 方向に比べ y 方向のヒステリシスが極端に小さくなる顕著な磁気異方性が現れた. このような方法で強磁性薄膜の磁気異方性を調べることは, 単層では微弱な信号で検出が困難であっても強磁性金属と非磁性物質との多層化によって, もし, 強磁性金属層間に相互作用がないとするならば, 情報量を増幅させ得るので, 有益な手段と考えられる.

Fig. 3 は, θ を変えながら作製した試料における x 方向および y 方向の抵抗率 ρ_x, ρ_y を示したものである. ここで, 常に $\rho_y > \rho_x$ であり, $\theta = 45^\circ \sim 55^\circ$ の範囲において, 抵抗率の減少する異常性が見られた. 原子が蒸着方向に沿って直線的に膜面内で堆積するものと仮定すれば, 膜面に対して垂直方向から蒸着した場合においては x 方向および y 方向の原子間隔は等しい. 一方, 斜め蒸着の場合には, 蒸着方向に垂直な方向の原子間隔が蒸着直後での膜面内において, θ に依存して y 方向に広がる. 更に, x 方向においても θ に依存する変化が現れる理由は, 熱振動などに起因する原子の拡散によって, x 方向においても θ に依存する原子配列状態の変化を生ずるためである. 原子配列状態と抵抗率との関連性についての考察は後述する.

Fig. 4 は基板温度 400°C で作製した膜の結果であるが, Fig. 3 とほぼ同様な傾向を示した. しかし, ρ_x, ρ_y およびその差は基板温度が室温で作製されたものよりも小さい. これらの原因は, 基板の温度上昇によって原子の拡散がより進行したものと考えられる.

Fig. 5 は抵抗率の比 ρ_y/ρ_x を Fig. 3 と Fig. 4 から求めたものである. Fig. 3 と Fig. 4 においては $\theta = 45^\circ \sim 55^\circ$ の範囲において抵抗率の異常性を示すのに対し, Fig. 5 では $\theta = 45^\circ$ でのみ極大をとる単調な変化を示す. このことは, Fig. 3 と Fig. 4 における抵抗率の異常性の原因が斜め蒸着効果に付随

Fig. 3 Resistivity as a function of the oblique incidence angle θ . (Substrate temperature: Room temperature).

する本質的な現象(膜面内の原子配列状態)であると考えられる。

Fig. 6(a)は、蒸着直後の非平衡状態における原子配列状態を Fig. 2 に示す膜の x 方向から見た断面図を θ の変化とともに示したものである。斜め蒸着の場合において、蒸着方向に垂直な面で密に配列するものが、基板面上において原子間距離が θ の増加に伴い y 方向に広がる。(b)は、蒸着直後の非平衡状態から時間経過の後、熱振動などの影響により密で安定な平衡状態に移行した原子配列状態を(a)に対応させて示したものである。平衡状態において、原子で囲まれる斜線部分の面積を $S(\theta)$ とする。(c)は、破線で示す非平衡状態(原子の中心 O)から実線で示す平衡状態(原子の中心 O')へ移行する過程を示したものである。ここで、非平衡の蒸着角度を θ とし、平衡状態の角度は ϕ とした。(c)において、蒸着方向に対する垂直な方向の原子間距離がすべて原子の直径に等しいものとするれば、 θ と ϕ との関係は次式のようになる。

$$\phi = \sin^{-1}(1/2 \cos \theta) \quad (0 \leq \theta \leq \cos^{-1} 1/\sqrt{3}) \quad (1)$$

また、 $S(\theta)$ は次式のようになる。

$$S(\theta) = K \sin\{2 \sin^{-1}(1/2 \cos \theta)\} + \text{const.} \quad (K \text{ は定数}) \quad (2)$$

$S(\theta)$ は $0 \leq \theta \leq \cos^{-1} 1/\sqrt{3}$ の範囲において、 $\theta = 45^\circ$ のみ極大をとる単調な変化を示す。また、Fig. 3, Fig. 4 で極小を示した θ の値は $\cos^{-1} 1/\sqrt{3} \approx 55^\circ$ に近い。膜面内の抵抗率 ρ が原子配列状態に依存するものと仮定すれば、 ρ は原子で囲まれる部分の面積 $S(\theta)$ の関数となる。すなわち、 ρ は θ

Fig. 4 Resistivity (ρ) as a function of the oblique incidence angle θ . (Substrate temperature: 400°C).

Fig. 5 Resistivity ratio (ρ_y/ρ_x) as a function of the oblique incidence angle θ .

Fig. 6 Schematic representation of the atomic arrangement state against oblique incidence angle θ .

Fig. 7 Resistivity comparison between theoretically and experimentally obtained values. Solid line is the result obtained from equation (3). Broken line is the result shown in Fig. 3.

に依存し、原子の拡散の度合に起因することになる。ここで、 $55^\circ \leq \theta < 90^\circ$ の範囲では、原子で囲まれる部分の面積は常に等しく、 $S(\theta=55^\circ)$ であるので、抵抗率の原子拡散に伴う効果は $0^\circ \leq \theta \leq 55^\circ$ の範囲に限定されて現れる。 $\theta \geq 55^\circ$ の範囲における抵抗率は、 θ の増加に伴い急激な単調増加を示す。膜厚の厚い場合には、抵抗率は膜厚とともに単調な変化を示す。これに対し、平均膜厚が一原子以下となり極端に薄くなると、原子が不連続に分布し、膜厚としての意味をもたず、いわゆる、臨界膜厚以下になると抵抗率は急激に増加する。この臨界膜厚に対応する蒸着角度を θ_d とする。したが

って、抵抗率 $\rho(\theta)$ を次式のように書くことができる。

$$\rho(\theta) = \alpha S(\theta) + \beta T(\theta) \quad (\alpha, \beta \text{ は定数}) \quad (3)$$

ここで、 θ_d において発散する関数 $T(\theta)$ は次式のように近似する。

$$T(\theta) = -A(\theta - \theta_d)^{-1} \quad (A > 0) \quad (4)$$

θ を θ_d に限りなく近づけることによって、抵抗率が急激に増加する。

Fig. 7 は、式(3)で計算される抵抗率 ρ の角度 θ 依存性を示したものである。図中には、Fig. 3 で示される実験結果も破線で同時に示した。計算値は実験結果とかなりの程度一致する傾向が見られた。

4. ま と め

(1) Fe/Al₂O₃ 多層膜において、抵抗率が $10^{-7} \sim 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$ 程度の抵抗材料を作製することができた。

(2) 抵抗率は蒸着時の蒸着角度 θ に依存し、 $\theta=45^\circ$ で極大をとる。(抵抗率の比 ρ_y/ρ_x の蒸着角度依存性は $\theta=45^\circ$ のみで極大をもつ単調な変化を示す。)

(3) 蒸着方向および膜面内の方向に依存する抵抗率は原子配列状態から計算された結果と一致する。

文 献

- 1) T. J. Klemmer, K. A. Ellis, L. H. Chen, B. van Dover and S. Jin: J. Appl. Phys., **87**(2000), 830-833.
- 2) A. Hosono and Y. Shimada: J. Magn. Soc. Jpn., **12**(1988), 295-298.
- 3) K. Okamoto, T. Hashimoto, K. Hara and E. Tatsumoto: J. Phy. Soc. Japan., **31**(1971), 1374-1379.