Fe/Al 積層膜の磁気特性

Magnetic Properties of Fe/Al Multilayered Films

松本光功・栄岩哲二・坂口秀治

信州大学工学部, 長野市若里 500 (〒380)

M. Matsumoto, T. Haeiwa and S. Sakaguchi

Faculty of Engng., Shinshu Univ., 500, Wakasato, Nagano 380

The structures and magnetic properties of Fe/Al multilayered thin films prepared by DC magnetron sputtering have been investigated. The crystal structures and magnetic properties of the films were found to depend on the thickness ratio of Fe and Al ($=d_{\text{Fe}}/d_{\text{Al}}$). The lattice constant increases with decreasing $d_{\text{Fe}}/d_{\text{Al}}$, because solid solutions of Fe and Al are formed in the interface layer. For the thickness ratio below 3, the lattice constant increases discontinuously and the saturation magnetization of iron layer decreases rapidly with decreasing $d_{\text{Fe}}/d_{\text{Al}}$. In the region of the thickness ratio below 3, ordered structures such as Fe_3Al seems to be formed resulting in the decrease of H_c and the increase of the resistivity with decreasing $d_{\text{Fe}}/d_{\text{Al}}$ in the film. In the condition of $d_{\text{Fe}}=18\text{\AA}$ and $d_{\text{Al}}=6\text{\AA}$, the magnetic properties of $H_c=1\text{ Oe}$, $M_s=1200\text{ emu/cc}$ were obtained.

1. はじめに

磁気記録の高密度化に伴い、ヘッドコア材料は高飽和磁束密度、低保磁力および薄膜化が望まれている。さらに高周波特性の改善も重要な課題である。高周波での損失は主にうず電流損失であり、高周波特性を改善するために、材料の高比抵抗化が望まれている。高い飽和磁束密度が期待でき、メタルとしては比較的高い比抵抗をもつ鉄系の軟磁性体として FeAl 合金がある。中でも Fe_3Al 合金はパーマロイに比べ、耐摩耗性が高いことからヘッドコア材料として用いられた¹⁾が、軟磁気特性が得られる組成範囲が狭いこともあってその薄膜化は困難であった²⁾。一方、新素材の開発をめざして始められた人工格子・多層膜技術は、拡散により合金化する固溶系材料の組成調整手段としても有望である³⁾。Fe/Al 積層膜では、Fe/Al 境界層において相互拡散により合金層あるいは固溶層の形成が期待できる。さらに多層化による磁気特性および比抵抗の改善も期待できる。

本研究では、固溶系である Fe-Al 二元系を取り上げ、DC マグネトロンスパッタ法を用いて積層化を試みた。

合金および固溶層の影響を調べるために、Al-1 層の膜厚を $6\text{\AA}$ 一定とした極めて薄い領域で、Fe-1 層の膜厚を数原子層から十数原子層の範囲で制御し、その結晶構造、磁気特性および比抵抗について検討した。

2. 実験方法

Fig. 1 に実験装置の構成図を示す。薄膜堆積方法としてデュアルターゲット式 DC マグネトロンスパッタ法を用いた。基板ホルダーが Fe, Al 両ターゲット上を一定の速度で回転し、Fe, Al が一定の厚さで交互に堆積する。基板温度の上昇を防ぐため基板ホルダーを水冷した。成膜条件を Table 1 に示す。Fe, Al の堆積速度を投入電力で制御し、各々の膜厚を変えた。Fe の堆積速度は、投入電力を $8\sim 45\text{ W}$ と変えることにより $50\sim 300\text{ \AA/min}$ の範囲で制御し、Al は $50\text{ \AA/min}$ の堆積速度が得られるように投入電力を 12 W に一定とした。

作製した薄膜は、磁気的性質を試料振動形磁力計で、結晶学的性質を Cu-K α による X 線回折装置で、膜厚を触針式粗さ計でそれぞれ調べた。

3. 結果と考察

Fig. 2 に積層構造の模型を示す。基板上に Al/Fe 積層

Fig. 1 Schematic diagram of a DC planar magnetron sputtering apparatus with the dual targets.

Table 1 Sputtering conditions

Target purity	Fe : 99.9% Al : 99.999%
Target size	100 mm ϕ
Ar gas pressure	8 mTorr
Sputtering Power	Fe : 8 ~ 45 W Al : 12 W
Deposition rate	Fe : 50 ~ 300 Å/min Al : 50 Å/min
Substrate	Glass
Substrate temp.	r.t. (water cooled)
Substrate rotation	1 r.p.m.

Fig. 2 Schematic diagram of Fe/Al multilayered film structure.

膜を Al, Fe の順で 150 周期積層した。Al のスパッタ条件を一定としているので、全試料とも Al 各層の膜厚は同じと考え、Al 一層の膜厚 (以下 d_{Al}) は同一スパッタ条件で Al のみを堆積させた薄膜の全膜厚から求めた。Fe 一層の膜厚 (以下 d_{Fe}) は全膜厚から Al の全膜厚を差し引いて求めた。その結果、 $d_{Al}=6\text{Å}$ 、 $d_{Fe}=6\sim35\text{Å}$ となった。

3.1 結晶構造

Fig. 3 に Fe/Al 積層膜 ($d_{Fe}=18.8\text{Å}$) と、Fe ターゲットだけを用いた積層膜と同一条件で作製した Fe 単層膜 ($d_{Fe}=18.3\text{Å}$) の中角領域における X 線回折パターンの例を示す。両積層膜はともに積層周期は 150 回であり、Fe の全膜厚はほぼ等しい。Fe 単層膜は $2\theta=44.8^\circ$ 付近に、 $\alpha\text{-Fe}(110)$ からの回折ピークが出現する。図より Fe/Al 積層膜は Fe 単層膜に比べ低角側にピークがシフトし、面間隔が広がっていることがわかる。さらに回折ピークは低角側で、わずかに裾を引きブロードになる。

Fig. 3 Examples of X-ray diffraction patterns for Fe/Al multilayered film and Fe single-layered film with Cu-K α radiation.

Fig. 4 に $\alpha\text{-Fe}(110)$ の X 線回折ピークより計算した $\alpha\text{-Fe}$ の格子定数 a と平均粒径 $\langle D \rangle_{(110)}$ の堆積比依存性を示す。堆積比が 5~1 と減少するに従い a は増加する傾向にあるが、堆積比 3 を境に不連続に変化することがわかる。 $\langle D \rangle_{(110)}$ は堆積比 3~6 ではほぼ一定の値をとるが、堆積比 3 以下では結晶粒径が減少傾向を示しはらつく。

Fe-Al は全組成域で固溶体を作り、さらに Fe_{3-1}Al などの規則格子をもつことがわかっている⁴⁾。いま、Fe/Al の積層面において相互拡散が起こると考えると、Fe 一層は最大でも十数原子層であるから、境界層が全体に占める割合は高いと考えるべきである。Fe 層厚が減少するとともに境界層の Fe·Al の組成は、Al 側へ移動する。FeAl の固溶体は、 $\text{Al} \leq 23\text{at\%}$ までは連続的に固溶するので、格子定数は連続的に変化すると思われる。このことは Fig. 4 の $d_{Fe}/d_{Al} \geq 3$ で、連続的に格子定数が変化することに対応する。さらに Al 濃度が増加すると、規則相である Fe_3Al が形成されるため、格子定数は不連続に変化する。したがって、 $d_{Fe}/d_{Al} \approx 3$ での格子定数の不連続な変化は、 Fe_3Al が形成されるためではないかと考えられる。また、境界層では Fe 層から Al 層にかけて、組成は連続的に変わるはずである。したがって、Al

Fig. 4 Dependences of a and $\langle D \rangle_{(110)}$ on the thickness ratio $d\text{Fe}/d\text{Al}$.

層近くでは、Al リッチな固溶体および規則格子が、形成される可能性がある。回折ピーク低角側でのブロードな裾引きは、Al リッチ側の固溶層の影響であると考えることができる。

3.2 磁気的性質

Fig. 5 に薄膜の全体積から計算した飽和磁化 M_s (○) と、Fe のみの体積から計算した飽和磁化 $M_{s(\text{Fe})}$ (●) の堆積比依存性、あわせて膜内に常磁性体の Al が入ることによる M_s の単純希釈曲線を示した。本スパッタ装置で基板を固定して作製した Fe 単層膜の飽和磁化が 1500 emu/cc であることから、単純希釈曲線は 1500 emu/cc に全体積中の Fe 体積の割合をかけて求めた。まず $M_{s(\text{Fe})}$ に注目すると、堆積比 3~6 では $M_{s(\text{Fe})} = 1500$ emu/cc で一定である。これは Fe 単層膜の飽和磁化に等しい。しかし、堆積比 3 以下では $M_{s(\text{Fe})}$ が減少する。この結果、 M_s は堆積比 3 以下で、単純希釈曲線よりはずれてその値は小さくなる。

結晶構造で述べたように Fe/Al 境界面では、相互拡散により固溶層が形成され、堆積比の減少とともに固溶層の占める割合が増加する。堆積比 3 以上すなわち Fe が十数原子層以上では、Fe 層の厚さに比較して拡散層の厚さが無視できると考えると、 $\alpha\text{-Fe}$ の飽和磁化 1500 emu/cc が支配的である。しかし、堆積比 3 以下すなわち Fe が十数原子層以下になると相互拡散層での Al の組成が増加し、格子定数の不連続な変化と、X 線回折ピークの低角側でのブロードな裾引きが示すように、 Fe_3Al と思われる規則相と、さらに Al リッチな固溶相が出現する。FeAl 合金は Al ≤ 30 at% の組成領域での

Fig. 5 Dependences of M_s and $M_{s(\text{Fe})}$ on the thickness ratio $d\text{Fe}/d\text{Al}$.

み強磁性を示す⁴⁾ことから、堆積比 3 以下の領域では Fe_3Al などの磁気モーメントの小さな合金の飽和磁化が支配的となり $M_{s(\text{Fe})}$ が減少する。 $M_{s(\text{Fe})}$ が小さくなり始める堆積比 3 付近での M_s は、1200 emu/cc である。

Fig. 6 に、面内の磁化容易軸方向ならびにそれと直角方向で測定した保磁力 H_c の堆積比依存性を示す。角形比の面内角度依存性は Fig. 6 の容易軸方向で最大値をとり、直角方向で再び小さなピークをもつ。最小値は基板移動方向より 10° ずれたところとすることがわかった⁵⁾。本論文では、最も大きな角形比をもつ方向を磁化容易軸と定義する。堆積比が 6 から 3 に減少すると H_c も減少する。この堆積比では容易軸より直角方向の H_c の方が小さい。堆積比が 3 以下では、微妙な成膜条件の差に敏感になり、小さな H_c を与える方向は一定しない。 H_c の小さい方をとると、ほぼ 1 Oe である。容易軸となる方向は、堆積比 3 以上では基板の移動方向に対してほぼ直角方向、すなわち回転運動する基板の半径方向である。しかし、堆積比 3 以下ではその方向が定まっていない。磁気異方性の原因としては、Fe 一層の厚さが大きくなると、基板がターゲット上を通過する際スパッタ粒子の基板への斜め入射による影響が無視できなくなり、異方性の方向が定まると考えている。堆積比が 3 以下で H_c が小さくなるのは、全積層膜中の FeAl 系合金の割合が増加し、さらに粒子が微細化するためではないかと思われる。

3.3 電気的性質

Fig. 7 に比抵抗の堆積比依存性を示す。比抵抗は堆積比の減少とともに増加する。特に堆積比 3 以下で急激に増加することがわかる。堆積比が減少し拡散層での Al

Fig. 6 Dependences of H_c in the easy axis direction (E.A.) and in the direction perpendicular to E.A. on the thickness ratio $d\text{Fe}/d\text{Al}$.

Fig. 7 Dependence of resistivity ρ on the thickness ratio $d\text{Fe}/d\text{Al}$.

組成比が増加すると、Fig. 4 に示すように粒径が小さくなり粒界散乱が増加すること、および積層界面での不規則格子による界面散乱が増すことが、比抵抗増加の原因であると考えられる。このような比抵抗の大幅な増加は、うず電流損失を抑えて高周波特性の改善に寄与する。

4. おわりに

デュアルターゲット式 DC マグネトロンスパッタ法により Fe/Al 積層膜を作製し、結晶構造、磁気特性および比抵抗の堆積比依存性について検討した。結果をまとめると、Fe-Al 境界面付近には相互拡散による固溶層が存在し、固溶層では連続的に組成が変化していると考えられる。Fe 一層が約 $18\text{\AA}$ 以下では、 $\alpha\text{-Fe}$ 単体の特性より FeAl 拡散層の特性の方が支配的となる。Fe 体積で計算した飽和磁化は減少し始め、 H_c は 1 Oe 程度に低下する。一方、比抵抗は急激に増加する。堆積比 3 付近 ($d\text{Fe} = 18\text{\AA}$, $d\text{Al} = 6\text{\AA}$) で $H_c = 1\text{ Oe}$, $M_s = 1200\text{ emu/cc}$ の軟磁性が得られた。堆積比 2 以下では、比抵抗は Fe_3Al 合金の $150\text{ }\mu\Omega\cdot\text{cm}$ に比較して 3 倍以上大きくなり、周波数特性の改善が期待される。このことはヘッドコア材料として有望である。

最後に、日ごろ貴重な助言をいただいている信州大学森迫昭光助教授、ならびに試料作製および測定に協力いただいた清水稔巳君に感謝します。

文 献

- 1) 増本, 齊藤: 日本金属学会誌, **8**, 359 (1948); *Rep. RITU*, **A3**, 523 (1951); **A4**, 321 (1952).
- 2) 松本, 森迫: 日本応用磁気学会学術講演概要集, 247 (1984).
- 3) 新庄: 固体物理, **21**, 582 (1986); 日本応用磁気学会誌, **10**, 442 (1986).
- 4) M. Hansen: *Constitution of Binary Alloys*, p. 90, McGraw-Hill, New York (1958).
- 5) 坂口, 清水, 栄岩, 松本: 電子情報通信学会信越支部大会講演論文集, p. 23 (1988).

1988 年 11 月 22 日受理, 1989 年 2 月 10 日採録