Ni-Fe-Nb (50Ni-Fe 組成) 合金薄膜の軟磁気特性

Soft Magnetic Properties of Ni-Fe-Nb Alloy Films with Nearly 50 wt%Ni Concentration

高橋 研・上住洋之・島津武仁・佐藤武信*・高橋 実*・脇山徳雄

東北大学工学部電子工学科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 (〒980)

*東北特殊鋼(株), 仙台市太白区長町 7-20-1 (〒982)

Migaku Takahashi, H. Uwazumi, T. Shimatsu, T. Sato*, Minoru Takahashi* and T. Wakiyama

Dept. of Electronic Engng., Tohoku University, Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980

*Tohoku Steel Co., Ltd., 7-20-1, Nagamachi, Taihaku-ku, Sendai 982

The relation between soft magnetic properties and local anisotropy fluctuation, which is strongly connected with the microstructure of the films, was systematically examined for Ni-Fe-Nb alloy films with nearly 50 wt%Ni. According to the micromagnetic ripple theory by Hoffmann, effective magnetic anisotropy U^{eff} in each of the grains decreases drastically with increases in the number of grains N within the coupling volume. Experimental results show local anisotropy fluctuation for Ni-Fe-Nb alloy films strongly depends on U^{eff}/K_u , and it decreases with decreasing U^{eff}/K_u . Therefore, to realize high initial permeability in these films, it is necessary to increase N within the coupling volume by decreasing the size of the grains. In the case of Ni-Fe-Nb alloy films, decreasing the size of the grains less than 200Å to obtain high initial permeability more than 2000 is needed.

Key words: 55~61 wt%Ni, 0~4 wt%Nb, bal. Fe thin film, initial permeability, induced uniaxial anisotropy, local anisotropy fluctuation, coupling volume, decrease of grain size

1. はじめに

筆者らは, 80 wt%Ni 組成近傍の Ni-Fe 合金へ Nb を添加した薄膜で, 非常に高い実効透磁率 (300Å の膜厚で $\mu_{\text{eff}}=3500$) が実現され, これが, 優れた配向性に伴う磁氣的に均質な薄膜状態に起因することをすでに明らかにした¹⁾. そこで今回は, Nb 添加に伴う薄膜の構造の変化と軟磁性との相関を明らかにするため, 結晶磁気異方性および磁歪定数が比較的大きいが, 約 1.6 T と高い飽和磁束密度を有する 50 wt%Ni 組成近傍の Ni-Fe 合金薄膜に着目し, 実験を行った. 今回は, 主として Ni-Fe-Nb 合金薄膜における初透磁率と, 誘導磁気異方性および薄膜の局所的な異方性の分散と膜の微細構造との関連性について詳細な検討を行った.

2. 実験方法

成膜は d.c. マグネトロンスパッタ法により, 結晶化ガラス基板 (水冷) 上に行った. 成膜条件として, Ar 圧を 6~50 mTorr まで変化させ, 膜厚は 3000Å 一定とした. 成膜には, Fe と Ni の重量比が 58:42 と等しく, Nb 量を 0~5 wt% まで変化させた合金ターゲットを用いた. 薄膜の組成分析は, E.P.M.A. により行った. 実効透磁率 μ_{eff} の測定は, フェライトコアを用いたインダクタンス法により行い, μ_{eff} 値はほぼ初透磁率に一致する. また構造解析は X 線回折法により行った. 異方性磁界 H_k および局所異方性分散量を間接的に表す量である構造因子 S は, Hoffmann により提唱された動的微分磁化率の計測^{3), 4)}によりそれぞれ求めた. 試料の熱処理は, 200°C~500°C まで 100°C ごとに, 保持時間 1 時間, 昇降温速度 200°C/h の条件下で, 無磁場中で行った.

3. 実験結果および考察

3.1 μ_{eff} と K_u との関係

Fig. 1 に Ni-Fe-Nb 合金薄膜の成膜直後の状態における, 磁化困難軸方向での 5 MHz での実効透磁率 μ_{eff} の Ar 圧依存性を示す. 図より, 0 および 2 wt%Nb の薄膜における μ_{eff} 値は, Ar 圧の減少に伴い単調に増加しているのに対し, 4 wt%Nb の薄膜における μ_{eff} は, 10~20 mTorr の高い Ar 圧の領域で緩慢な極大値, 約 1600 を示し, その後, Ar 圧の減少に伴いわずかに減少することが分かる. また Nb 量に関しては, 特に Ar 圧の高い領域において, Nb 量の増加に伴い μ_{eff} が増加する傾向にあることが分かる.

さらに, これらの薄膜に無磁場中での熱処理を行った場合, いずれの薄膜においてもその μ_{eff} は, 熱処理温度の上昇に伴い単調に減少し, 特に 400°C 以上の熱処理により急激に減少する²⁾.

Fig. 1 Change of the value of μ_{eff} against the Ar pressure for Ni-Fe-Nb alloy films with different Nb concentration.

一方、これらの薄膜において成膜直後に誘導されている一軸磁気異方性定数 K_u は、その絶対値が非常に大きく (約 $3 \sim 6 \times 10^3$ erg/cc)、また磁化容易軸の方向は、Nb 量及び成膜時の Ar 圧、また無磁場中での熱処理により極端に変化する²⁾。

このような一軸磁気異方性と μ_{eff} との相関を調べるため、0~4 wt%Nb を含む薄膜における、成膜直後および 500°C までの無磁場中熱処理後での、 K_u と μ_{eff} との関係を Fig. 2 に示した。同図中には、 K_u のみにより定まる、一軸単磁区微粒子を仮定した一斉磁化回転に伴う初透磁率を、それぞれの薄膜の飽和磁化値 $M_s = 1000 \sim 1100$ emu/cc を用いて計算した値を灰色の領域で示した。

図より成膜直後の状態の薄膜における μ_{eff} 値 (図中□の領域) は、 K_u の減少に伴い増加していく傾向にあるが、その値は一斉磁化回転に伴う計算値に比較してわずかに小さく、80 wt%Ni 組成近傍の Ni-Fe-Nb 合金薄膜の場合¹⁾とは異なっている。さらに、熱処理温度の上昇に伴い μ_{eff} 値は低下し、特に 400°C 以上の熱処理後の薄膜の μ_{eff} 値は、一斉磁化回転に伴う計算値に比べ非常に小さく、 K_u とは無相関であることが分かる。

3.2 μ_{eff} と構造因子 S との関係

膜の異方性分散に伴う局所的減磁界と μ_{eff} との相関について検討を行うため、局所異方性分散量を間接的に示す量である構造因子 S と μ_{eff} との相関について検討を行った。

Fig. 3 には、成膜直後および熱処理後の 4 wt%Nb を含む薄膜における S と μ_{eff} の関係を示す。同図中には、4 wt%Nb を含む薄膜の S 値の無磁場中での熱処理温度依存性を、挿入図として示した。挿入図より、いずれの Ar 圧で作製された薄膜においても、 S は熱処理温度の

Fig. 2 Relation between the value of μ_{eff} and K_u for Ni-Fe-Nb alloy films. Calculated value of initial permeability by assuming the ideal uniform process in an uniaxial single domain particle is also shown.

上昇に伴い単調に増加していることが分かる。さらに、成膜直後および 300°C までの熱処理後の薄膜における μ_{eff} の値は、 S と強い相関を示さないのに対し、400°C 以上での熱処理の場合には、 S が増加するに従い、 μ_{eff} は減少し、 μ_{eff} 値が S 値と相関を持つことが分かる。

筆者らによるこれまでの Fe 基結晶質軟磁性薄膜の実験から、 S 値が約 10×10^{-3} erg/cm² 以上の場合、薄膜の μ_{eff} 値は、巨視的な H_k により生ずる一斉磁化回転を仮定して求めた初透磁率の計算値 ($4\pi M_s / H_k$) より低く、一般に S の増加に伴い、 μ_{eff} 値は徐々に $1/S^2$ に比例して低下することが分かっている⁵⁾。したがって、Ni-Fe-Nb 合金薄膜において、成膜直後の状態でさらに高い μ_{eff} 値を実現させ、かつ熱処理に伴う μ_{eff} 値の低下を抑えるためには、 S の変化の起因を明らかにし S 値を低減させることが必要である。

3.3 局所異方性分散を決定する主な原因

動的微分磁化率の解析により得られる構造因子 S は次式で表される³⁾。

$$S = K_s \cdot \sigma \cdot D / \sqrt{n}$$

ここで、 K_s は局所異方性を表し、これは各結晶粒の、結晶磁気異方性エネルギー定数、 K_1, K_2 、および磁歪に基づく磁気弾性的なエネルギー項により変化する。また、 σ は結晶配向の均質性を表す指数、 D は結晶粒径、 n は膜厚方向の結晶粒数を表す。したがって S を低減させるためには、局所異方性 K_s の低下、配向性の向上、結晶粒の微細化、の三つが非常に重要であることが分かる。

今回の Ni-Fe-Nb 合金薄膜の場合、X 線回折法による構造解析の結果、薄膜の配向性に関しては、いずれの薄

Fig. 3 Relation between the value of μ_{eff} and S for Ni-Fe-Nb alloy films with 4 wt%Nb. Inset figure shows annealing temperature dependence of S for Ni-Fe-Nb alloy films with 4 wt%Nb.

膜も非常に強い(111)配向を示しており、熱処理などによる配向の変化は観測されない。したがって、上述の熱処理などによる S の変化(Fig. 3)は、配向の乱れに伴うものではないことが推察される。

そこで S の変化と強い相関があることが予想される結晶粒径と、 S との相関について詳細な検討を行った。

Fig. 4には6 mTorrで作製された0および4 wt% Nbの薄膜における、(111)回折線の半値幅から求めた結晶粒径の熱処理温度依存性を示す。図より、0 wt%Nbの薄膜の結晶粒径は、熱処理温度の上昇に伴い、特に400°C以上で急激に増大している。一方、4 wt%Nbの薄膜の結晶粒径は、熱処理によっても変化せず、Nbの添加は熱処理に伴う粒成長を抑制する効果があることが分かる。しかしながら、Nbの添加されたこれらの薄膜においては、結晶粒径の熱処理に伴う変化と S の熱処理温度依存性との間には強い相関は見られず、 S の変化は、単なる結晶粒径の変化だけからも、説明されない。

一方、Hoffmannの微視的リップル理論⁹⁾によれば、数100Å程度の結晶粒径よりなる軟磁性薄膜において、各結晶粒内の磁化は、結合領域と呼ばれる領域内の結晶粒の磁化と磁氣的に結合している。そのため、各結晶粒内の磁化の向きは、結晶粒の結晶磁気異方性の磁化容易軸の方向と一致しておらず、巨視的に誘導されている異方性磁界の方向にはほぼ平行に並んでいる。

この結合領域は、磁化容易軸方向を短軸、磁化困難軸方向を長軸とする楕円となる。この楕円の長軸と短軸の長さは、 K_u 、交換定数 A 、飽和磁化 M_s 、および膜厚 d により決定され、結合領域の面積は、 $K_u^{5/4}$ の逆数に比例

Fig. 4 Change of the mean diameter of grains against the annealing temperature for Ni-Fe-Nb alloy films.

する。この結合領域内における、磁化の磁氣的結合に伴い、各結晶粒の実効的な磁気異方性 U^{eff} は、結合領域内の結晶粒数 N および各結晶粒の薄膜面内方向の磁気異方性エネルギー U を用いて、 $U/\sqrt{N}$ で表されるため、各結晶粒の磁気異方性の磁化過程に対する寄与は見掛け上極端に低下する。

したがって、 U^{eff} の K_u に対する比 U^{eff}/K_u の値は、各結晶粒の磁気異方性が局所的な磁化の向きに与える寄与の度合いを示し、配向・粒径の均質性の乱れとともに、異方性分散量を決定する主因となる。ここで U^{eff}/K_u の値は、 $K_u^{3/8}$ の逆数および結晶粒径 D に比例する。

Fig. 5には、 S の結晶粒径に対する依存性を示した。また同図中には、実験により求められた各試料の K_u 値より決定された、 K_u の等値線を同様に示した。

K_u を考慮しない場合、結晶粒径と S との間に強い相関は見られず、単なる結晶粒径の変化だけでは S の変化を説明することはできない。しかしながら、結合領域の大きさが等しい K_u の等値線に沿って見ると、結晶粒の微細化に伴い S が低下することが分かる。また、結晶粒径が一定ならば K_u の増加に伴い S が低下している。これは、 K_u で決定される結合領域内の結晶粒数が増加することにより、 S が減少することに対応している。

このような、 S の結晶粒径に対する変化と、 U^{eff}/K_u の変化との相関を見るために、Fig. 6には、本実験に用いたNi-Fe-Nb合金薄膜における飽和磁化、交換定数の値を用い、膜厚を3000Åとして計算した U^{eff}/K_u の結晶粒径に対する変化を、 K_u をパラメータとして示した。ここで、各薄膜が(111)配向であることを考慮し、面内で磁化が回転するときの結晶磁気異方性エネルギー $U_{(111)}$ の値として 1×10^3 erg/ccを採択した。図中には模式的に、 K_u と結晶粒径を仮定した場合の、結合領域

Fig. 5 Change of the value of S against the mean diameter of grains for Ni-Fe-Nb alloy films. The magnitude of K_u in each film is shown in the figure.

およびその内部の結晶粒に関する概念図も示した。図より K_u 値が一定の場合、結晶粒の微細化に伴う結合領域内の結晶粒数の増加が U^{eff}/K_u を減少させることが分かる。また、同じ結晶粒径であっても、 K_u 値の増加に伴い U^{eff}/K_u が減少することが分かる。

このような U^{eff}/K_u の変化の傾向は、Fig. 5 で示した S の結晶粒径に対する変化の傾向と定性的に一致しており、 S の低下は、主として U^{eff}/K_u の低下に起因していることが分かる。これらの事実は、4 wt%Nb を含む薄膜において、熱処理に伴う粒成長が観測されない (Fig. 4) にもかかわらず S が増加する (Fig. 3) 主因は、熱処理による K_u 値の低下に伴う、 U^{eff}/K_u の増加であることを示唆している。

筆者らは、軟磁性薄膜の初透磁率の値が、 $4\pi M_s/H_k$ で与えられる、一斉磁化回転を仮定した計算値と一致するためには、 S の値を 5×10^{-3} erg/cm² 程度以下にする必要があることを明らかにしている⁵⁾。したがって、一斉磁化回転により 2000 程度の μ_{eff} 値を安定に得るためには、 K_u 値として約 3×10^3 erg/cc ($H_k = 6$ Oe に対応) に対応することから、Fig. 5 より約 200 Å 以下の結晶粒径を有する薄膜を実現させる必要があることが分かる。

一方、Fig. 5 中・印で示した 20 mTorr で作製された 4 wt%Nb を含む薄膜は、比較的大きな結晶粒径を有し、なおかつ小さな K_u 値を示しているにもかかわらず、他の薄膜に比べ小さな S 値が実現されている。したがって、これらの薄膜においては、結合領域内の結晶粒数の増加に伴う U^{eff}/K_u の減少だけではなく、他の要因により局所異方性分散量が低下しているものと推察され、この原因を探ることにより、結晶粒の微細化以外の効果で異方性分散量を低下させる物理的指針が得られることが

Fig. 6 Change of the calculated value of U^{eff}/K_u against the mean diameter of grains for Ni-Fe-Nb alloy films with 4 wt%Nb.

予想される。これらの薄膜は、20 mTorr と高いガス圧下で成膜されていることから、Nb の粒界への偏析などに伴い、Fe-N 薄膜と同様に、結晶の歪を介した磁気弾性効果が各結晶粒の結晶磁気異方性を見掛け上低減させる⁷⁾などの原因が考えられ、今後、検討する必要がある。

4. ま と め

① 結晶磁気異方性の大きな材料で良好な軟磁気特性を得るためには、結合領域内の結晶粒数の増加と、それに伴う U^{eff}/K_u の低下を必要とする。

また、Ni-Fe-Nb 合金薄膜で、2000 程度の初透磁率を安定に得るためには、約 200 Å 以下の粒径を実現する必要がある。

② 50 wt%Ni 組成近傍の Ni-Fe 合金薄膜への Nb 添加は、熱処理に伴う粒成長を抑制する効果がある。

最後に、結晶化ガラス基板を提供してくださった石塚ガラス(株)梅津理和部長に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 島津, 他: 日本応用磁気学会誌, 13, 281 (1989).
- 2) Migaku Takahashi, et al.: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 13, Suppl., S1, 743 (1989).
- 3) H. Hoffmann: *Phys. Stat. Sol.*, 33, 175 (1969).
- 4) K. Kempter and H. Hoffmann: *Phys. Stat. Sol.*, 34, 237 (1969).
- 5) T. Shimatsu, et al.: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 13, Suppl., S1, 577 (1989).
- 6) H. Hoffmann: *J. Appl. Phys.*, 35, 1790 (1964).
- 7) Migaku Takahashi, et al.: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 13, Suppl., S1, 585 (1989).

1990年1月11日受理, 1990年1月30日採録