高周波大振幅励磁界における軟磁性薄膜の透磁率測定と特性表示法

Frequency and Field-Intensity Dependences of Permeability of Soft Magnetic Films and their Expression Method

小俣雄二・越後紀康

松下電器産業(株)磁気記録研究所, 守口市八雲中町 3-15 (〒570)

Y. Omata and N. Echigo

Magnetic Recording Res. Lab., Matsushita Electric Ind. Co., Ltd., 3-15 Yagumonaka-machi, Moriguchi 570

Permeabilities of soft magnetic films (sputtered CoNbTaZr) were measured under the wide range of field amplitude (8 mOe~8.5 Oe) with high frequencies (10k~1 MHz). In order to display the frequency (f) dependence of permeability simultaneously with its field-intensity (H_{ex}) dependence, an expression method for permeability characteristics was proposed employing the display of contour-lines of permeability values on the H_{ex} - f plane. It was found that the contour-line patterns reflect the technical magnetization process of the soft magnetic films at each area on H_{ex} - f plane. Especially in the case of film having uniaxial magnetic anisotropy, behaviors and implications of the contour-line patterns were investigated. The permeabilities and the magnetization processes are different from those under different magnetic exciting ways, even at the same values of H_{ex} and frequency. This difference may be attributed to the irreversible movement of magnetic domain walls.

Key words: soft magnetic film, high frequency, magnetization process, Co-Nb-Ta-Zr, permeability, movement of domain wall, amorphous

1. ま え が き

磁気ヘッド用軟磁性薄膜の透磁率の測定は磁気ヘッドの特に再生特性に大きく関わることから、励磁界の大きさに無関係で主に磁化回転機構に従う初透磁率範囲での測定が中心に行われてきた。また、その測定周波数についても最近の高密度、広帯域化記録の動向を反映して 10 MHz 以上の測定が一般的となってきた^{1)~3)}。

一方、磁気ヘッドの記録時におけるコア材料には飽和磁界に至るまでの大振幅の励磁界が上記と同様な高周波下において印加される。このような高周波大振幅励磁界での磁化過程としては、一般的には磁化回転だけでなく広範囲の磁壁の移動が伴っており、これはさらにヘッド素子中の磁性膜の磁区構造にも依存している。

ここでは軟磁性薄膜の高周波 (最大 1 MHz) における透磁率測定を従来の初磁化範囲から大振幅励磁界範囲 (最大 8.5 Oe) まで拡大させて行った。各周波数条件および励磁界条件における透磁率測定の結果から両条件における軟磁性膜の技術磁化過程を反映する情報が得られると予想されることから、両条件に対する特性表示法を含めて検討した。

2. 実験方法

透磁率の評価に用いた試料はすべて非磁性ガラス基板 (2 mm × 17 mm) 上に sputtering 蒸着によって成膜された $\text{Co}_{85}\text{Nb}_{10}\text{Ta}_2\text{Zr}_3$ 4 元系非晶質膜⁵⁾ ($B_s = 10$ kGauss) を用い、蒸着直後または磁界中 (回転磁界, 固定磁界, 磁界強度 500 Oe, 回転は 120 rpm) 熱処理後、実験測定を行った。

試料膜の膜厚はすべて 2.5 μm のものを用いた。

試料の透磁率の測定には 30-turn coil (3.2 mm 径, 長さ 5 mm) と Ni-Zn フェライトを組み合わせた Yoke 法によって、LCR-meter (YHP, HP-4284A) を用いて coil に試料を入れたときと入れないときとの定電流測定による impedance 差および位相差から複素透磁率 (μ' および μ'') に分けて測定を行った。

試料は 60 Hz の交流消磁を行った後、透磁率測定を始めた。周波数は 10 kHz, 30 kHz, 60 kHz, 100 kHz, 200 kHz, 400 kHz, 600 kHz, 800 kHz, 1 MHz の 9 通りの各周波数においてこの順番に coil に流す電流を 0.1 mA から 100 mA までの定電流 (計算値で 8 mOe から 8.5 Oe までの磁界強度に相当) に保ちながら透磁率測定を行った⁶⁾。

飽和磁界の大きさを見積るために薄膜の BH-Tracer によって 60 Hz の BH 曲線を調べた。

透磁率測定結果の妥当性を調べるため高周波磁化曲線も測定した。トロイダル基板 (内径 4 mm, 外径 8 mm) 上に形成した上記の軟磁性薄膜に 21-turn ずつの B,

Fig. 1 Dependence of permeability on field intensity. (a), μ' ; (b), μ'' .

Fig. 2 Frequency characteristics of permeability at various exciting fields.

H-coil を巻線し、広帯域 tracer (岩通電子 SY-8617 A) を用いて 10 kHz~1 MHz の周波数、最大 5 Oe までの磁界の各範囲において測定した。

3. 透磁率の励磁界および周波数依存の表示法

Fig. 1(a), (b) は上記の実験方法によって、透磁率の励磁界依存性を 10 kHz から 1 MHz の各一定周波数を parameter にして as-sputtered Co-Nb-Ta-Zr 非晶質膜について調べた結果である。(a) は μ' 、(b) は μ'' のそれぞれ励磁界依存を示している。

励磁界の小さな初透磁率範囲では μ' 、 μ'' の励磁界依存性は共に周波数 parameter による違いは少ない。励磁界が大きくなってくると ($H_{ex} > 0.08$ Oe), 主に広範囲の磁壁の移動から生じる異常渦電流によって、測定周波数による透磁率の励磁界依存性の相違が顕著になってい

くことがこのような測定によって分かる。

一方、Fig. 1 の測定結果は励磁界強度を parameter とした 10 kHz~1 MHz の透磁率の周波数依存性として Fig. 2 のように表し直すことができる (図中には 0.08 Oe から 4.99 Oe までの励磁界を parameter とした)。Fig. 2 には μ' の周波数特性のみを示した。

このように透磁率の測定結果は励磁界、周波数の両条件に対する依存性として評価することができ、そのいずれもが磁気ヘッド素子などへの応用に関して、軟磁性薄膜の磁化過程の重要な情報を示す。

そこで、Fig. 1 および Fig. 2 のような軟磁性薄膜の透磁率の励磁界強度および励磁界周波数の両条件に対する依存性を同時に表すため、Fig. 3(a) のように透磁率の励磁界依存を示す図をその parameter 周波数間隔で順に並べ、透磁率-励磁界強度-周波数の直交する 3 次元座標 (対数座標) を考えた。

さらにこの座標上に表した透磁率等高線を Fig. 3(b) のように透磁率軸上からみて、励磁界強度 (H_{ex}) 軸-周波数 (f) 軸の直交する 2 軸からなる平面上に表すことを試みた (Fig. 3(b) に示した例は Fig. 1 の測定値による)。Fig. 3(b) の透磁率等高線を μ' 、 μ'' の各複素透磁率に分けて同様な直交 H_{ex} - f 面上に表した結果が Fig. 4(a), (b) である。

Fig. 4 のような透磁率の表示法によれば、任意の励磁界強度条件、周波数条件における透磁率の値が即時に読みとることができるだけでなく、後に述べるように透磁率等高線の形態から、測定した軟磁性薄膜の各測定条件における磁化機構の特徴を推測することも可能である。

Fig. 4 の測定値 (すなわち Fig. 1 の測定) の妥当性を調べるために、Fig. 1 で用いた試料と同時に蒸着した試料 (Fig. 1~4 の試料と同様に as-sputtered Co-Nb-Ta-Zr 膜) による高周波磁化曲線の測定結果を Fig. 5 に示

す。

Fig. 5(a) の磁化曲線は一定周波数 50 kHz において、Fig. 5(b) に示すように 50 mOe から最大 5 Oe まで励磁界強度を順に 6 段階に大きくさせていったときの各 BH 曲線を重ね合わせたものである。

50 kHz の一定周波数で励磁界を徐々に大きくしていった場合、Fig. 5(b) の 1~2.5 Oe 付近までの磁化曲線において透磁率 $\mu=1000$ に相当する傾きを示している

Fig. 3 (a), A concept of μ - H_{ex} - f 3-dimensional coordinates (b), "A permeability contour diagram".

が、これは Fig. 4(a) 図中の破線で示した $f=50$ kHz 一定線上の透磁率値とほぼ一致していることが分かった。

4. 透磁率等高線の形態と磁化機構

Fig. 4 で示したような透磁率等高線の形態は各励磁界および周波数条件での透磁率値だけでなく、それらの条件における磁化機構の特徴も反映していることが予想される。

ここでは透磁率等高線の形態と軟磁性膜の技術磁化過程との関連を調べる目的で一軸磁気異方性を誘導させた非晶質膜の磁化容易軸および磁化困難軸方向の透磁率の測定を行い、その結果を上記の透磁率等高線による表示法で表した。

測定には Fig. 1 の測定に用いた試料と同時に 20 mm × 20 mm の方形基板上に成膜した非晶質 Co-Nb-Ta-Zr 膜を用いた。試料には 395°C、30 分の回転磁界中熱処理を行った後、引き続いて同じ温度において 15 分の固定磁界中熱処理を行うことで一軸磁気異方性を誘導させた。次に透磁率の測定方向が磁化容易軸および磁化困難軸となるように二つの短冊状基板に切り出して両試料の透磁率測定を行った。Fig. 6(a), (b) にそれぞれ磁化容易軸、困難軸方向の測定結果を μ' のみについて示す。

Fig. 6(a) の磁化容易軸方向の測定結果においては特徴として透磁率等高線が非常に密に現れており、およそ 0.1~1 Oe 励磁界範囲付近の飽和磁界 (H_s ; Fig. 6 中の 60 Hz の BH 曲線から見積られる) に至る大振幅励磁界での広範囲の磁壁の移動による急激な磁化の増加を反映していると考えられる。

Fig. 4 Complex permeability contour diagrams. (a), μ' ; (b), μ'' .

Fig. 6(b) の磁化困難軸方向の測定結果においては透磁率等高線が少なく、励磁界強度および周波数条件の広い範囲において透磁率の変化が小さいことを示している。

また、ここでは透磁率等高線が高磁界側を除くと励磁界軸方向へ並ぶ傾向がみられ、励磁界強度によらない磁化回転機構を主とする磁化困難軸方向の一般的な磁化機構とよく対応している。

異方性軸の方向と関係なく Fig. 6(a), (b) の大励磁界側にみられる周波数軸 (f 軸) に平行な等高線は、励磁界の大きさが Fig. 6 中の BH 曲線 (60 Hz) で示したように飽和磁界 (容易軸方向で約 1 Oe, 困難軸方向で約 3 Oe) を上回ったことによるものである。

同じ試料であっても異方性の誘導で、透磁率測定方向によって磁化機構が異なることにより Fig. 6 のようにそれぞれ特徴をもった透磁率等高線の形態を示していることが上記のような表示法の特徴としてみられた。

次に、磁気異方性の誘導によってしだいに透磁率等高線の形態が変化していくようすをさらに詳しく調べることを試みた。

二つの短冊基板上に蒸着した上記と同じ非晶質 Co-Nb-Ta-Zr 膜を、両基板とも 395°C、30 分の回転磁界中熱処理によって磁気異方性を非常に小さくさせた後、165°C、285°C、395°C の各温度において順に、それぞれ 30 分ずつの固定磁界中熱処理を行い一方は透磁率の測定方向が磁化容易軸に、他方が磁化困難軸になるように一軸異方性を誘導した (試料の H_k は 60 Hz の BH 曲線の測定から熱処理温度とともに増加することを確認)。

Fig. 5 B-H curve at high frequencies ($f=50$ kHz) under several field-intensity conditions. (a), superposed; (b), individual B-H curves.

Fig. 6 μ' contour diagram for the specimen having the uniaxial magnetic anisotropy and BH-curves at 60 Hz. (a), magnetic easy direction; (b), magnetic hard direction.

Fig. 7 Change of μ' contour diagram accompanied with increasing uniaxial anisotropy. (a)~(d), easy axis; (e)~(h), hard axis.

各温度の熱処理後、異方性軸の異なる両試料の透磁率測定を行った。Fig. 7(a) および (e) は二つの短冊状試料の回転磁界中熱処理後の透磁率測定結果である (μ' のみ表示)。Fig. 7 上段 (b), (c), (d) は順に熱処理温度を 165°C, 285°C, 395°C と継続して変えた固定磁界中熱処理によって (a) の試料にしたいに大きく磁気異方性を誘導していったときの磁化容易軸の透磁率 (μ') の変化を示したものである。また下段 (f), (g), (h) は同様に固定磁界中熱処理の温度を変えていくことで (e) の試料に磁気異方性をしたいに大きく誘導していったときの磁化困難軸方向の透磁率 (μ') の変化を示したものである。上段の磁化容易軸方向では透磁率等高線が H_k の増加とともにしたいに密集してゆき、励磁界が大振幅になるにつれ、より急激に磁化の大きさの変化が生じるようになっていくようすが分かる。

一方、磁化困難軸方向では H_k の増加とともにしたいに透磁率等高線の数が減少し、最終的には (h) のように本測定条件範囲では条件によらないでば一定の透磁率値を示すようになることが分かる (等高線が消失)。

5. 大振幅励磁界下での測定条件経路による依存性

これまで述べてきた直交する H_{ex} 軸-f 軸平面上での日本応用磁気学会誌 Vol. 14, No. 2, 1990

透磁率等高線による透磁率特性の表示を行うための測定法は実験方法でも述べたように、いずれも一定周波数において励磁界の大きさを増加させながら測定するパターンを低周波側から高周波側へ順に繰り返したものである。

この方法とは反対に一定励磁界強度のもとに周波数を増加させながら測定するパターンを小さな磁界側から大きな磁界まで順にこれを繰り返して測定を行うことも可能である。

同じ励磁界および周波数条件であっても、上記の測定法による透磁率値の違いが、特に不可逆な磁壁の移動を伴う大振幅の励磁界領域で現れることが予想される。Fig. 8 は一軸磁気異方性を誘導させた Co-Nb-Ta-Zr 非晶質膜の磁化容易軸方向の透磁率 μ' についてこれを調べたものである。(a) は上記の測定と同様に一定の周波数を parameter として励磁界の大きさを変えながら (小→大) 測定した結果を、(b) は (a) の測定の後、逆に一定の励磁界の大きさを parameter として周波数を変えながら (低→高) 測定した結果を示す。Fig. 8(a), (b) の比較から大振幅励磁界範囲において、同一試料の同じ測定励磁界、同じ測定周波数条件でもその条件に至る過程 (経路) が異なれば (励磁方法が異なれば)、得られる透

Fig. 8 Difference of permeability contour diagrams of the same sample due to the different scanning way of measurement. (a), changing field-amplitude (parameter, f); (b), changing frequency (parameter, H_{ex}).

磁率等高線の形態（すなわち磁化の大きさや磁化機構の特徴）が大きく異なる傾向が明確に現れていることが分かる。このことは飽和磁界付近の大振幅励磁界下での磁化機構として広範囲の不可逆な磁壁の移動が伴っており、試料内の磁区構造とこの磁壁速度が、周波数一定で磁界強度を変化させた場合と磁界強度一定で周波数を変化させた場合で、同一の励磁界および周波数条件に達したときに一致していないことが考えられる（詳細は未検討）。同様に同一試料の磁化困難軸方向でも両測定法による違いを測定した結果、上記のいずれの測定方法であっても等高線が存在しない一定の透磁率を示す結果が得られた（Fig. 8と同じ測定磁界および周波数範囲内で $\mu' = 1100 \pm 50$ ）。この結果は可逆的な磁化回転機構を中心とする困難軸方向の磁化機構と対応している。

以上のように大振幅励磁界下での透磁率測定においてはその測定条件の励磁過程の違いによって、得られる磁化状態に大きな差が生じ得ることが本報で述べてきた透磁率特性の表示方法でも明瞭に観測された。

6. ま と め

複素透磁率（ μ' , μ'' ）の励磁界（0.008～8.50 Oe）および周波数（0.01～1 MHz）依存性を同時に表示させるため、互いに直交する H_{ex} 軸、 f 軸による平面上に透磁率等高線として表示することを試みた。

本方法によれば幅広い条件での特性値の表示ができるだけでなく、透磁率等高線の形態は各条件における軟磁

性薄膜の磁化機構を反映することが分かった。

特に大振幅の励磁界下での広範囲の磁壁移動を伴う磁化過程領域と磁化回転を中心とする領域で透磁率等高線に特徴的な傾向がみられることが一軸磁気異方性膜の測定などから分かった。

また不可逆な磁壁移動を伴う大振幅励磁界下では同一の励磁界条件（ f , H_{ex} ）でもその条件に至る過程によって測定された透磁率の値が異なることが本表示法の測定条件経路による依存性から明らかにできた。

日頃の御支援頂いている磁気記録研究所 紙中所長、中村主担当に感謝致します。測定評価に関しては松下電子部品(株)研究所 松谷氏、YHP 西部支社の増田氏に御便宜を頂いた。両氏に御礼申し上げます。

文 献

- 1) P. A. Calcagno and D. A. Thompson: *Rev. Sci. Instrum.*, **46**, 904 (1975).
- 2) K. Kawakami *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-19**, 2154 (1983).
- 3) 小俣 他: 日本応用磁気学会誌, **12**, 347 (1988).
- 4) R. M. Bozorth: "Ferromagnetism", D Van Nostrand, N. J. (1951).
- 5) Y. Omata *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 2136 (1987).
- 6) 小俣 他: 電気学会マグネティック研究会, **MAG-89-123** (1989).

1990年1月10日受理, 1990年3月13日採録