Fe-Co-Nb 合金薄膜の磁気特性

Magnetic Properties of Fe-Co-Nb Thin Films

佐藤文隆・宮崎照宣

東北大学工学部, 仙台市青葉区荒巻字青葉 (〒980)

F. Sato and T. Miyazaki

Faculty of Engng., Tohoku Univ., Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980

The dependence of soft magnetic properties on the composition and annealing temperature was studied for sputtered $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Nb}_y$ ($0 \leq x \leq 1.0$, $0 \leq y \leq 0.2$ in weight fraction) films. The films with $y \geq 0.16$ are amorphous while the films with $0 \leq x < 0.8$, $y < 0.6$ and $0.8 \leq x \leq 1.0$, $y < 0.6$ are of b.c.c. and f.c.c. structure, respectively. The lattice constant of the b.c.c. films increases with Nb content. The coercivity of the films annealed at 773 K for 3600 s exhibits a minimum of 400 A/m around $y=0.05$ and $x=0.3-0.8$. The corresponding permeability and saturation magnetic flux density are 800 and 2 T, respectively. Coercivity depends much on the expansion of lattice constant due to the addition of Nb and exhibits a minimum when the lattice constant of Fe-Co film is expanded 0.2%.

Key words: thin films, coercivity, effective permeability, high saturation magnetic flux density, lattice constant, Fe-Co-Nb alloy.

1. はじめに

磁気記録の高密度化に伴い、記録媒体に高保磁力を有する材料が使用されるようになり、したがって高い飽和磁束密度を有し、かつ高周波においても高透磁率を示す薄膜ヘッド材料が要求されている。また、ヘッド作製時のガラス溶着などのため磁気特性は 700 K 以上での熱処理に対しても安定でなければならない。このような軟磁性膜の生成を目的として、 $\text{Fe}^{1),2)}$ 、 $\text{Fe-Co}^{3),4)}$ 、 $\text{Fe-Hf-C}^{5)}$ 、 $\text{Fe-(Zr, Hf, Nb, Ta)}^{6)}$ などの単層膜、Fe系組成変調膜⁷⁾、 $\text{Fe/Fe-Ni}^{8)}$ 、 $\text{Fe/SiO}_2^{9)}$ 、 $\text{Fe/Fe-Co}^{10)}$ などの多層膜、等々について研究が行われ、Fe基合金薄膜で優れた軟磁気特性が得られている。これらより高い飽和磁束密度を有する軟磁性を薄膜としてはFe-Co合金が期待されるが、現在までFe-Co合金については、その大きい磁歪などのために十分な軟磁気特性は得られていない³⁾。

本研究では、高い飽和磁束密度を有し、熱的に安定な

軟磁性薄膜を生成することを目的として、第3元素としてFe-Ni合金に加えることによりその軟磁気特性を向上させることができたNb^{11),12)}を加えたFe-Co-Nb三元系合金の磁気特性および膜の構造を調べ、両者の関係について検討した。

2. 実験方法

試料はrfスパッタ法により以下の条件で作製した。用いたターゲットの形状は直径90 mmで厚さは1 mm (Fe, Co)と5 mm (Fe-Co-Nb: Nb<16 wt%)である。Fe-Nb, Co-Nb, Fe-Co-Nb (Nb≥16 wt%)のターゲットは10×10 mm²のNbのシートをFe, Co, Fe-Co-Nbの上にのせた複合ターゲットを用いた。作製した膜の組成はターゲットの組成値で $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Nb}_y$ ($0 \leq x \leq 1.0$, $0 \leq y \leq 0.24$: 重量比)である。基板にはスライドガラスを用いた。真空度、 6.7×10^{-5} Pa以下に排気した後、Arを数Pa導入し、これを再び排気することを3回繰り返した後Ar圧を1.6 Paとした。スパッタ時の投入電力は0.02 W/mm²とした。また基板とターゲット間隔を60 mmとした。スパッタ時間により膜厚を設定し、膜厚段差計により測定した。この結果、膜の堆積速度は0.06~0.108 nm/s、膜厚は400~700 nmであった。

作製した膜の構造解析にはCu-K α 線を線源としたX線ディフラクトメータを用いた。b.c.c.相の膜についてディフラクトパターンの(110)面の回折角から格子定数を求めた。またこの回折線の半値幅からSherrerの式を用い、平均の結晶粒径を求めた。履歴曲線は振動試料型磁力計(最大印加磁界: 8~1273 kA/m)を用いて測定し、飽和磁束密度、保磁力を求めた。実効透磁率はフェライトコアをヨークに用いたインダクタンス法(7ターン)により磁化困難軸方向に周波数10 MHz、約0.4 A/mの磁界を印加して測定した。膜の熱処理は 1.3×10^{-3} Pa以下の真空中で、磁化容易軸方向に26.3 kA/mの磁界を印加し、所定の温度(573~823 K)で1時間保持し、

Fig. 1 Crystalline structure of sputtered Fe-Co-Nb films. (a) as-sputtered, (b) annealed at 673 K for 3600 s, (c) annealed at 773 K for 3600 s. (○, b.c.c. phase; △, amorphous phase; ▲, b.c.c. + amorphous phase; ●, f.c.c. phase; ⊙, b.c.c. + f.c.c. phase; ▲, f.c.c. + amorphous phase; □, hexagonal phase.)

昇降温速度を 100 K/h とした。

3. 実験結果ならびに考察

3.1 膜の構造

Fig. 1 に X 線ディフラクトパターンから得た膜の結晶構造の組成依存性を示した。(a) 図にはスパッタしたままの膜の構造を示したが、Nb が 15 wt% 以上ではアモルファス膜、 $0 \leq \text{Nb} \leq 10 \text{ wt\%}$, $0 \leq \text{Co} \leq 83 \text{ wt\%}$ の広い組成範囲で、b.c.c. 構造であった。また各回折ピークの強度比からは、強い結晶配向はみられなかった。次に 673 K, 773 K で焼鈍した膜構造を各々図 (b), (c) に示した。アモルファス膜は焼鈍することにより結晶化し始めるが、Nb 濃度が 24 wt% と高い膜では 823 K での焼鈍でも完全には結晶化しなかった。図 (a), (b), (c) を比較して明らかなように焼鈍することにより b.c.c. 相の範囲が広がり、同相が広い範囲にわたって熱的に安定であることが分かる。

Fig. 2, 3 には b.c.c. 相の膜の格子定数を組成に対して示した。Fig. 2, 3 の横軸はそれぞれ Co 濃度 X , Nb 濃度 Y である。スパッタしたままの膜では、Fig. 2 にみるように Fe-Co ($Y=0$) の膜の格子定数の組成変化は図中に破線で示したバルクのそれ¹³⁾とほぼ同じである。Fe と Co の比を一定として Nb を加えた膜では、Fig. 3 に示したように $Y=0.05$ から 0.16 と Nb が増加するのに比例して、格子定数が大きくなる。 $Y=0.16$ の膜の格子定

Fig. 2 Lattice constant as a function of X (weight fraction) for sputtered $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Nb}_y$ films.

数は $Y=0$ のそれより約 2% 大きくなっている。このように Fe, Co に比べ原子半径が約 8% 大きい Nb の濃度に比例して、格子定数が大きくなることから、この b.c.c. 相の膜では Fe-Co に Nb が固溶していると考えられる。

次に焼鈍による格子定数の変化を見ると、Nb を加えることにより増加した格子定数が焼鈍によって減少し、 $Y=0$ の値に近づく。この格子定数の減少は高 Co 濃度、高 Nb 濃度の組成でより大きい。これは、Fe-Co に固溶していた Nb のうち過飽和に固溶していた Nb が析出し、格子定数が減少すると考えられる。しかし X 線回折の結果からは Nb がどのような形で析出しているかは明らかではない。

3.2 磁気特性

磁化曲線の測定結果から保磁力の小さい膜では膜面内

Fig. 3 Lattice constant as a function of Y (weight fraction) for sputtered $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Nb}_y$ films.

に一軸磁気異方性を示す膜があり、その磁化容易軸の方向はスパッタ時のターゲットからの漏れ磁場の方向とほぼ一致した。Fe-Nb 膜では蛇形の磁化曲線が現れ、また Co-Nb 膜の磁化曲線は垂直磁気異方性を有する膜に特徴的な形を示した。アモルファス膜では保磁力は小さいものの、異方性磁界が大きく、スパッタしたままの 18 wt%Fe67 wt%Co16 Nbwt%では保磁力 80 A/m, 異方性磁界 3200 A/m であった。

Fig. 4 に磁化困難軸方向で測定した保磁力の組成依存性 (図 (a)) を等値線で示した。スパッタしたままの膜では、保磁力は Nb の増加とともにほぼ単調に減少する。焼鈍した膜では、図 (b), (c) にみるように Fe-Nb 側、Co-Nb 側の両組成で保磁力が大きくなっている。これに対し 20~70 wt%Fe の組成では、保磁力は小さく、Nb 濃度の増加とともに減少している。また、773 K で焼鈍した膜では Nb が 5 wt%, Co が 30~80 wt% の領域でも 0.5 kA/m 以下と小さくなっていることが分かる。この組成範囲では Nb の濃度が低いため、Fig. 5 に示したように 2 T の高い飽和磁束密度を有している。また交流透磁率も高く、67 wt%Fe29 wt%Co4 wt%Nb で最大値 800 を示した。しかし更に焼鈍温度を高く 823 K にすると、保磁力は増加した。

Fig. 5 に飽和磁束密度の組成依存性を示した。飽和磁

Fig. 4 Coercivity of sputtered Fe-Co-Nb films. (a) as-sputtered, (b) annealed at 673 K for 3600 s, (c) annealed at 773 K for 3600 s.

束密度は 70 wt%Fe30 wt%Co で最大で、Nb の増加とともにほぼ単調に減少していく。しかも Nb 濃度の増加に対して飽和磁束密度の減少の割合は 30~50 wt%Co で最も小さい。一方 Fe-Nb においては Nb が 10 wt% から 17 wt% が増えると、2 T から 0.2 T へと急激に減少する。また、17 wt%Nb の飽和磁化は焼鈍することにより増加し、823 K での焼鈍後は約 0.8 T となった。

3.3 膜の構造と磁気特性

膜の結晶構造が b.c.c. 相である組成領域には、773 K の焼鈍で保磁力が極小を示し、交流透磁率も最大となった約 5 wt%Nb の組成が含まれる。また Nb < 10 wt% の組成では飽和磁束密度も 2 T と大きい。そこで、この Nb < 10 wt% の b.c.c. 相の膜についてその構造と磁気特性との相関について考える。

まず、結晶粒径についてみると、その大きさはスパッタしたままの膜で約 200 Å であり、特に組成による粒径の違いはみられない。そのため保磁力と結晶粒径の間には相関は認められない。一方、焼鈍による結晶粒の変化をみると、Nb を加えた膜の方が、加えない膜に比べ結晶粒径の増加が少なかった。

次に格子定数についてみると、Nb を加えることにより膜の格子定数が増加し、一方保磁力は減少している。そこで保磁力を格子定数の伸び率に対して示したのが Fig. 6 である。データ点は図中に示した 2 本の細い実線の間にある。この 2 本の実線のうち、上の実線に近いデータ点の組成は高 Fe 濃度または高 Co 濃度の組成であり、Fig. 4 でみると図中の左右両側の組成である。一方、下の実線に近いデータ点のそれは 50 wt%Co を中

Fig. 5 Saturation magnetic flux density B_s (T) of as-sputtered Fe-Co-Nb films.

心として、Fig. 4 でみると図中のFeとCoの中間の組成である。Nbを加えない場合に比べ格子定数が約0.2%増加した付近の膜で、保磁力が極小となる傾向がみられる。格子が歪むことによりFe-Co合金の磁気異方性ならびに磁歪が変化し、それに伴って保磁力が減少していると考えられる。今後、これらの点について検討していきたい。

4. ま と め

Fe-Co-Nb合金のスパッタ膜を作製し、組成、焼鈍による膜の結晶構造、保磁力の変化を調べた。

スパッタしたままの膜では、Nb $\geq$ 16wt%で、アモルファス、Nb<16wt%、Co<83wt%でb.c.c.構造であった。b.c.c.相における格子定数はNb<16wt%までNb濃度に比例して増加し、NbがFe-Coに固溶していると考えられる。焼鈍により過飽和に固溶していたNbが析出し、格子定数が減少する。

スパッタしたまま、焼鈍後のいずれの膜もNb濃度の増加とともに保磁力が減少した。特に773Kの焼鈍ではb.c.c.相である約5wt%Nbで保磁力が極小を示し、67wt%Fe29wt%Co4wt%Nbで約400 A/mであった。またこの時の交流透磁率は約800と最大値を示し、飽和磁束密度は約2Tであった。

b.c.c.相における保磁力の値は格子定数に相関し、Nbを加えない膜に比べ約0.2%大きくなった膜で極小となった。

謝 辞 本研究を行うに当たり、ターゲットを作製していただいた(株)東北特殊鋼 佐藤武信氏に感謝致します。

Fig. 6 Coercivity of sputtered Fe-Co-Nb films as a function of the expansion of the lattice constant, $(\Delta a/a_{Nb=0}) \times 100$ (%) ($\Delta a = a_{Nb} - a_{Nb=0}$).

す。なお、本研究は(財)岩谷直治記念財団ならびに(財)マツダ財団の援助により行われたものである。

文 献

- 1) 小園裕三, 小室又洋, 成重真治, 華園雅信, 杉田 信: 第10回日本応用磁気学会学術講演概要集, p. 414 (1986).
- 2) M. Kawarada, N. Koshino and S. Ogawa. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 2973 (1979).
- 3) 星 陽一, 直江正彦: 日本応用磁気学会誌, **10**, 315 (1986).
- 4) S. H. Liao: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23** 2981 (1987).
- 5) 長谷川直也, 斎藤正路: 薄膜第131委員会, 第153回研究会資料, p. 36 (1990).
- 6) N. Kataoka, M. Hosokawa, A. Inoue and T. Masumoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**, L462 (1989).
- 7) 井原慶太, 小佐野浩一, 榊間 博: 電子情報通信学会技術研究報告, **MR88-55**, 9 (1988).
- 8) M. Senda and Y. Nagai: *J. Appl. Phys.*, **65**, 3151 (1989).
- 9) M. Senda and Y. Nagai: *J. Appl. Phys.*, **65**, 1238 (1989).
- 10) R. Nakatani, T. Kobayashi, S. Otomo and N. Kumazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**, 937 (1988).
- 11) 高橋 研, 上住洋之, 島津武仁, 佐藤武信, 高橋 実, 脇山徳雄: 日本応用磁気学会誌, **14**, 305 (1990).
- 12) 佐藤文隆, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌, **15**, 47 (1991).
- 13) R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, p. 197, D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton (1951).

1990年12月3日受理, 1991年2月28日採録