Fe-Al-Si 層を持つ積層膜の軟磁気特性

Soft Magnetic Characteristics of Multilayered Films with Fe-Al-Si Layers

行徳 明・富安 弘・小林 深

九州松下電器(株)磁気応用技術センター, 熊本県玉名郡菊水町大字高野 1080 (☎865-01)

A. Gyoutoku, H. Tomiyasu and F. Kobayashi

Applied Magnetic Engineering Center, Kyushu Matsushita Electric Co., Ltd.,
1080, Takano, Kikusui-cho, Tamana-gun, Kumamoto 865-01

Magnetic properties of Fe-Al-Si/Fe, Fe-Al-Si/Fe-Si and Fe-Al-Si/Ni-Fe multilayered films prepared by using RF sputtering equipment, were investigated. These multilayered films have initial permeability of more than 1000 without post-annealing; especially Fe-Al-Si/Fe and Fe-Al-Si/Fe-Si multilayered films have high saturation magnetic flux density B_s of more than 14 kG. For Fe-Al-Si/Ni-Fe multilayered film, magnetic properties are nearly constant and independent of the layer thickness. On the other hand, the thinner the thickness of each layer in Fe-Al-Si/Fe and Fe-Al-Si/Fe-Si multilayered films, the lower the coercivity is. In these films, the change in coercivity with the thickness of each layer seems to be affected by lattice distortion and crystal structure rather than crystallite size.

Key words: multilayered films, high saturation magnetic flux density, layer thickness, crystal structure, crystallite size, lattice distortion.

1. はじめに

磁気記録の高密度化の要求に対応するためには、高い飽和磁束密度、高い初透磁率を共に有する磁気ヘッド用軟磁性薄膜が必要である。高い飽和磁束密度を得るには、Fe を主成分とする必要があるが、Fe は結晶磁気異方性および磁歪が大きい。そこで、Fe-C/Ni-Fe¹⁾、Fe/SiO₂²⁾などの積層膜や Fe-N³⁾、Fe-Si-N⁴⁾などの窒化膜によって、高飽和磁束密度と良好な軟磁気特性が実現されてきている。

我々は、MIG ヘッド用軟磁性薄膜材料として、Fe-Al-Si 薄膜に着目し研究を続けてきた⁵⁾。Fe-Al-Si 薄膜は異方性が小さくほぼ等方的な膜であり、耐熱性、耐摩耗性にも優れているが、500°C 程度の熱処理が必要不可欠である。さらに、膜厚依存性が大きく薄膜になるほど軟磁気特性が劣化するため、Ni-Fe 膜に比べ積層用磁性薄膜としては不適当であると考えられていた。しかしな

がら、数百Å程度の膜厚では熱処理しなくても1 Oe 程度の良好な軟磁気特性を示すことが明らかとなったので、Fe 膜との積層化に着目し、検討を行った。その結果、16 kG の高い飽和磁束密度、1000 以上の初透磁率を有する優れた軟磁性薄膜であることが確認された⁶⁾。

本論文では、Fe 膜以外に Fe-Si 膜、Ni-Fe 膜と Fe-Al-Si 膜との積層化を試み、その磁気特性について調べた。また、層厚によってこれら積層膜の磁気特性は強く影響されるが、この原因についても検討を行った。

2. 実験方法

積層膜は RF スパッタリング装置を用い、 8×10^{-7} Torr 以下に排気した後、同一真空装置内で交互に成膜することにより作製した。Table 1 に主な成膜条件を示す。ほとんどの試料の膜厚は $0.6 \mu\text{m}$ 一定としているが、必要に応じて変化させている。膜の飽和磁束密度は振動試料型磁力計 (VSM)、保磁力は B-H ループトレサにより測定し、初透磁率は 1 mOe の励磁場でジャント・コア法によるインピーダンスの測定により求めた。なお、試料は熱処理を施していない状態で、これら磁気特性の評価を行った。膜の結晶構造は、Cu-K α を線源とする X 線回折装置を用いて測定した。

Table 1 Sputtering conditions

Target composition	10.5wt%Si-8wt%Al-balFe 3.5wt% Si-Fe 99.9% Fe 80wt%Ni-Fe 99.9% AlN
Power density	8.8 (W/cm ²)
Gas pressure	15 (mTorr)
Substrate temperature	300 (°C)
Film thickness	0.6 (μm)

Table 2 Magnetic properties of multilayered and single layer films without annealing

Sample	H_c (Oe)	μ_i (10MHz)	B_s (KG)
Fe-Al-Si/Fe	0.8	1300	16
Fe-Al-Si/Fe-Si	0.6	2500	14.5
Fe-Al-Si/Ni-Fe	0.4	3800	10.5
Fe-Al-Si	12	200	11.5
Fe	4.3	400	21
Fe-Si	4.1	600	18
Ni-Fe	0.8	1400	9.5

Fig. 1 Frequency dependence of initial permeability for multilayered films.

3. 実験結果および考察

3.1 磁気特性

Table 2 に種々の組合せの厚さ $0.6\mu\text{m}$ 膜の磁気特性を示す。なお、積層膜の層厚はすべて $100\text{\AA}$ 一定である。Fe 膜、Fe-Si 膜共に単層膜では、良好な軟磁気特性は得られていない。Fe-Al-Si 膜と積層することによって、保磁力 H_c 1 Oe 以下、初透磁率 μ_i 1000 以上の優れた軟磁気特性が得られ、Fe 膜や Fe-Si 膜などの飽和磁束密度 B_s の高い磁性材料との組合せにより、14 kG 以上の高い飽和磁束密度 B_s が得られる。また、Fig. 1 に示す初透磁率 μ_i の周波数依存性の結果から、高周波特性にも優れた軟磁性薄膜である。このように、Fe-Al-Si 膜を用いた積層膜では Fe 膜以外に Fe-Si 膜、Ni-Fe 膜との積層によっても、低い保磁力と高い初透磁率を示す優れた軟磁気特性を示すことがわかった。

3.2 層厚依存性

Fig. 2 に層厚比 1:1 の積層膜における層厚と保磁力 H_c の関係を示す。すべての積層膜において層厚が薄いほど保磁力 H_c は小さくなり、層厚 $100\text{\AA}$ では 1 Oe 以下

Fig. 2 Layer thickness dependence of coercivity for multilayered films. The each layer thickness is same.

Fig. 3 Layer thickness dependence of coercivity for multilayered films. Thickness of Fe-Al-Si films is $100\text{\AA}$.

を示している。

Fig. 3 には、Fe-Al-Si の層厚を $100\text{\AA}$ 一定とした場合の、層厚と保磁力 H_c の関係を示す。Fe-Al-Si/Fe 積層膜、Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜では層厚の増加に従い保磁力 H_c は増加するが、Fig. 2 で示した結果と比べると保磁力 H_c の増加は小さいものとなっている。これは、Fe 層、Fe-Si 層だけでなく、Fe-Al-Si 層も厚さによって磁気特性が影響を受けることを示している。これに対し、Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜は層厚に依存せず一定の保磁力 H_c を示しており、この範囲の厚さにおける Ni-Fe 層の磁気特性は変化していないと考えられる。ところで、膜厚が薄いほど結晶粒径は微細になり磁気特性は向上すると考えられるが、厚さが $100\text{\AA}$ ~ $500\text{\AA}$ の単層膜の保磁力 H_c は、Fe-Al-Si 膜は 1.6 Oe、Fe 膜は 2.5 Oe、Fe-Si 膜は 2.1 Oe であり、この範囲での膜厚の変化に対する保磁力 H_c の変化は観察されなかった。しかしながら、積層膜とした場合には層厚によって磁気特性の変化が認められたため、この原因を次の三つの観点から調べた。

(1) 結晶構造

Fig. 4 Relationships between peak intensity and layer thickness for multilayered films.

(2) 格子不整合 (応力)

(3) 結晶粒径

以下に、層厚の変化に伴うこれらの要因と磁気特性の関係について述べる。

まず、X線回折によって積層膜の結晶構造を調べた。Fe-Al-Si/Fe 積層膜と Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜の X 線回折ダイアグラムには、それぞれ Fe(110) 面、Fe-Si(110) 面および Fe-Al-Si(211) 面に対応するピークが現れた。また Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜では、Ni-Fe(111) 面と Fe-Al-Si(110) 面に対応するピークが現れた。Fig. 4 に Fe(110) 面と Fe-Si(110) 面および Ni-Fe(111) 面に対応するピークの強度の層厚依存性を示す。各層厚を変化させても、Fe 層、Fe-Si 層および Ni-Fe 層の全層厚を $0.3\mu\text{m}$ と一定としているため、結晶構造が変化しなければピーク強度の値は一定となるはずであった。図より、層厚の減少によって、ピーク強度は変化しており、結晶構造の変化が確認された。Fig. 3 の結果と比較すると Fe-Al-Si/Fe 積層膜と Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜ではピーク強度が低いほど磁気特性は向上することがわかる。ピーク強度が低くなれば、軟磁気特性が向上する原因は明らかでないが、以前報告した⁷⁾ Fe-Al-Si 単層膜においても、(211) 面のピーク強度が低い方が、良好な磁気特性が得られることから、回折面が異なっているものの同様の効果によって積層膜の磁気特性が結晶構造に左右されていると考えられる。一方、Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜では、結晶構造が変化しているにもかかわらず、磁気特性は変化していない。

次に、積層膜の Fe(110) 面、Fe-Si(110) 面の面間隔および Ni-Fe(111) 面の面間隔と保磁力 H_c の関係を Fig. 5 に示す。なお、図中には応力が小さいと考えられるバルク材の Fe、Fe-Si および Ni-Fe の面間隔も併せて示している。Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜は応力に依存せず、一

Fig. 5 Plane spacing dependence of coercivity for multilayered films.

定の保磁力 H_c を示している。これに対し、Fe-Al-Si/Fe 積層膜と Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜では、保磁力 H_c は (110) 面間隔に依存し、バルク材より小さい面間隔を有している方が小さな保磁力 H_c を示す。Fe 膜と Fe-Si 膜のように結晶磁気異方性の大きな膜では、格子歪をもたせバルク材よりある程度大きな面間隔を有した方が良好な軟磁気特性を示すという結果⁹⁾とは一致していない。また、これら積層膜では後の熱処理によって内部応力が緩和されバルク材と等しい面間隔、つまり応力が無い方が優れた軟磁気特性を示すという結果を得ている。この相違は、熱処理前後で内部歪み、結晶磁気異方性および磁歪定数の差異に起因すると考えられるが、バルク材と比べて小さな面間隔を有するほど良好な軟磁気特性を示す原因と併せて、今後詳しく調べる必要があると考えている。

以上の結果より、Fe-Al-Si/Fe 積層膜および Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜の磁気特性は、層厚の変化に伴う結晶構造および内部応力に強い影響を受けることがわかった。しかし、Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜の磁気特性は Ni-Fe 層厚には左右されない。これは、Ni-Fe 層が結晶磁気異方性および磁歪定数が小さいため、層厚の変化に伴う結晶構造および応力は積層膜の磁気特性に影響しないと考えられる。

Fig. 6 に積層膜の層厚と結晶粒径との関係を示す。これら結晶粒径は (110) 面からの回折ピークの半値幅より Scherrer の式を用いて求めた。比較のために単層膜および AlN 層との積層膜の結晶粒径も示している。なお、Fe-Al-Si および AlN の層厚は $100\text{\AA}$ 一定である。Fe-Al-Si と AlN の積層による微細化の効果を比較すると、AlN との積層膜は層厚の減少に従い結晶粒径は微細化しているが、Fe-Al-Si との積層膜では層厚に依存せずすべて $200\text{\AA}$ 程度の結晶粒径を示し、積層による微細化

Fig. 6 Relationships between crystallite size and layer thickness for various multilayered films.

の効果は少ない。これは、格子定数の非常に近い Fe-Al-Si と Fe, Fe-Si との積層膜では、各層が下地層の表面上でエピタキシャル的に成長するため、積層してもそれほど顕著な微細化の効果はない。それに対し、Fe-Al-Si と AlN とは格子定数の差が大きいため結晶成長が層境界で分断されるため、層厚が薄いほど結晶粒径は微細になるのではないかと考えられる。ところで、Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜では Ni-Fe(111) 面と Fe-Al-Si(110) 面のピークが現れる。これらピークが非常に近い角度位置に現れるため、それらの分離は不可能であり、Scherrer の式より結晶粒径を求めることはできなかった。しかしながら、Ni-Fe は Fe-Al-Si との格子定数の差はかなり大きいため、Fe, Fe-Si に比べて積層による微細化の効果は大きいと考えられる。

このように、Fe-Al-Si/Fe 積層膜および Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜においては、層厚の減少に伴う結晶粒子の微細化の効果は少ないため、磁気特性の層厚依存性は結晶構造と内部応力に主に関係していると考えられる。こ

れら積層膜においてさらに微細化が進めば、より優れた軟磁性薄膜の実現が期待できる。

4. まとめ

Fe-Al-Si 層を用いた積層膜の軟磁気特性を調べ、以下の結論を得た。

1) Fe 以外に Fe-Si, Ni-Fe 層との積層化によっても、熱処理無しで保磁力 1 Oe 以下、初透磁率が 1000 以上の優れた軟磁性薄膜を得ることができた。また、Fe, Fe-Si 層との積層膜では、14 kG 以上の高い飽和磁束密度を示した。

2) Fe-Al-Si/Fe 積層膜および Fe-Al-Si/Fe-Si 積層膜においては、単層膜と比べてある程度の結晶粒径の微細化は積層化によって可能であるが、層厚の減少に伴う微細化の効果は少ない。したがって、これら積層膜にみられる磁気特性の層厚依存性は結晶粒径の寄与は少なく、層厚の変化による結晶構造および内部応力に依存していると考えられる。また、Fe-Al-Si/Ni-Fe 積層膜には Ni-Fe 層厚の変化による磁気特性の変化は生じなかった。

文 献

- 1) T. Kobayashi, R. Nakatani and H. Nakamura: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-26**, 2338 (1990).
- 2) M. Senda and Y. Nagai: *J. Appl. Phys.*, **65**, 3151 (1989).
- 3) M. Takahashi and T. Shimatsu: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-26**, 1485 (1990).
- 4) M. Takahashi, H. Shoji, T. Shimatsu, H. Komada and T. Wakiyama: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-26**, 1503 (1990).
- 5) 行徳, 富安, 古賀, 小林: 日本応用磁気学会誌, **13**, 89 (1989).
- 6) 行徳, 富安, 小林: 日本応用磁気学会誌, **14**, 375 (1990).
- 7) 行徳, 富安, 古賀, 植村: 電子情報通信学会技術報告, **MR 89-18** (1989).

1990 年 12 月 4 日受理, 1991 年 2 月 28 日採録