異方性分散を持つ軟磁性薄膜の磁気特性評価

Evaluation of the Magnetic Properties of Soft Magnetic Thin Films with Magnetic Anisotropy Dispersion

石山和志・豊田明久・荒井賢一

東北大学電気通信研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-77)

K. Ishiyama, A. Toyoda, and K. I. Arai

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-77

We used bi-axial VSM to evaluate the anisotropy dispersion of a rotational-field-annealed CoZrNb thin film that shows an almost isotropic $M-H$ curve. It was demonstrated that the isotropic properties of this film resulted from wide-angle dispersion of the anisotropy. Using the measured H_k of the film, we calculated the frequency dependence of the permeability, and found that the calculated value agrees well with the measured one. We also calculated the magnetic torque curve, using the measured magnetic anisotropy dispersion of a CuMo-permalloy film. The calculated curve also agrees well with the measured curve.

Key words: soft magnetic thin film, anisotropy dispersion, anisotropy field, bi-axial VSM, permeability, magnetic torque

1. はじめに

軟磁性薄膜の異方性にはその角度、大きさ共に膜内で不均一性（異方性分散）が生じることが知られており、これが軟磁性薄膜の特性を決定する要因の一つとなっている。異方性分散に関する検討は、短波長の異方性分散であるリップルと、長波長の異方性分散であるスキューとに分けて議論されている。これら二つの異方性分散にはそれぞれ異なった評価法が必要であるが、本論文では磁気デバイス作製に用いられる薄膜の特性の均一性を評価することを目的として、長波長の異方性分散であるスキューに着目した。

異方性分散の測定法としては、 90° トルク法^{1), 2)}、パルス法³⁾、 135° トルク法⁴⁾、ヒステリシスループ法⁵⁾、強磁性共鳴法⁶⁾など多数の方法がすでに提案されている。しかしながらこれらの方法は、分散量を試料の体積割合や磁化量などで定量的に表現することは不可能であった。そこで我々は、2軸VSMを用いた異方性分散測定法を提案した⁷⁾。これは、磁界印加方向に垂直方向の磁化のスイッチングを利用して異方性磁界を計測する方法であり、ある特定の異方性の方向と強度を有する磁化量が定量的に測定できることが特徴である。

一方、従来の方法では角度分散測定と強度分散測定が完全に独立ではないため、それぞれが測定値に影響を及ぼし合い、分散が広いほど測定誤差が大きくなってしまふ。しかしながら2軸VSMを用いた測定法では、強度分散と角度分散がそれぞれ独立に測定できるため、分散の極めて大きい試料においても正

確な測定が可能であると考えられる。そこで本論文では、回転磁界中熱処理を施すことにより異方性の角度分散を大きくし、見掛け上等方的に近い特性を持たせた試料を用い、その異方性分散を測定した結果について述べる。

さらに本測定法では試料の全磁化量に対してその異方性の角度と強度の分散が測定できるため、試料をそれぞれ異方性の角度と強度の異なる多数の領域の集合体と考えることにより、試料全体の磁気特性を算出することができる。本論文では異方性分散測定結果から透磁率ならびに磁気トルク曲線をそれぞれ算出し、それらを実測値と比較することにより本測定法の妥当性を検討した。

2. 実験方法

本論文で用いた試料は、CoZrNb 薄膜ならびに CuMo パーマロイ薄膜であり、その形状はいずれの膜でも直径 10 mm, 厚さ $0.1\mu\text{m}$ である。2軸VSMを用いた異方性分散測定では反磁界が測定に大きな影響を与えるが、直交磁化曲線の計測によりこの形状による反磁界の影響は無視できることを確認した⁸⁾。

いずれの薄膜も、厚さ 1 mm の間接水冷されたガラス基板上に rf スパッタ法を用いて成膜した。Ar ガス圧ならびに rf 印加電圧はそれぞれ CoZrNb 薄膜では 20 mTorr, 200 W, CuMo パーマロイ薄膜で 8 mTorr, 200 W とした。成膜後、異方性を制御するために、CoZrNb 薄膜は 500 Oe の磁界中で 60 rpm で回転させながら 400°C で 1 時間、CuMo パーマロイ薄膜は無磁界中で 400°C , 1 時間の熱処理をそれぞれ行った。

異方性分散は 2軸VSMを用いて測定した⁷⁾。その際 CoZrNb の異方性分散の強度分散は磁界を 0.5 Oe ステップで増加させながら印加して測定し、角度分散は 5° おきに 1° 範囲で測定した。CuMo パーマロイ薄膜の測定では磁界を 0.2 Oe ステップで増加させながら測定し、角度分散は 1° おきに 1° 範囲で測定した。

透磁率はストリップラインコイルを用いた薄膜パーミアンス測定装置を用いて測定した。 $M-H$ カーブは VSM を用いて測定した。磁気トルク曲線は 2軸VSMを用いて計測した磁界印加方向と直角方向の磁化成分 $M_\perp$ から以下のように算出した。磁気トルク T は磁化 M と印加磁界 H ならびにそれらの成す角度 θ から次のように算出される。

Fig. 1 M - H curve of rotational field annealed CoZrNb thin film.

$$T = M \cdot H \cdot \sin \theta \quad (1)$$

ここで、磁化の磁界に対する垂直方向成分 $M_{\perp}$ が計測できれば、磁気トルクは

$$T = M_{\perp} \cdot H \quad (2)$$

と表される。そのため一定の大きさの回転磁界を印加しながら $M_{\perp}$ を計測することにより、磁気トルク曲線が得られる。

3. 実験結果ならびに考察

3.1 角度分散の大きい試料の異方性分散と透磁率

Fig. 1 に回転磁界中熱処理した CoZrNb 薄膜の M - H ループを示す。ここでは測定方向を変えながら MH ループの計測を行い、ループの立ち上がりの最も急峻であった方向を容易軸、立ち上がり傾斜の最も小さい方向を困難軸とした。回転磁界中熱処理により容易軸、困難軸方向の特性差が小さくなり、膜の特性は見掛け上等方的に近い。この等方的特性の原因を検討するために、異方性磁界の向きと大きさに分離して異方性分散測定を行った。結果を Fig. 2 に示す。横軸に異方性磁界の大きさ、縦軸に磁化容易軸の方向をとり、それぞれの異方性磁界の大きさと向きを持つ磁化量を高さ方向に等高線で示した。この磁化量は特定の異方性磁界の大きさと向きを有する部分の膜全体に占める体積比と理解することもできる。同図より磁化容易軸方向は $+35^{\circ} \sim -50^{\circ}$ の広い角度範囲に分散していること、すなわち異方性の角度分散が極めて広いことがわかる。ここで縦軸の 0° とは、Fig. 1 で容易軸の MH ループを測定した方向である。従来報告されてきた異方性分散測定法は、理想的な一軸異方性からのわずかなばらつきを想定した方法であるため、Fig. 2 で示されるような広い角度分散を有する試料の異方性分散の測定は不可能であった。さらに、見掛け上等方的な試料の異方性磁界の大きさを正確に見積ることは困難であった。しかしながら 2 軸 VSM を用いた方法により、広い角度分散により見掛け上等方的に見える試料であっても、その異方性分散測定が可能であることが明らかとなった。

Fig. 1 からわかるようにこの試料の容易軸方向と困難軸方向

Fig. 2 Magnetic anisotropy dispersion of rotational field annealed CoZrNb thin film.

Fig. 3 Calculated and measured permeability of rotational field annealed CoZrNb thin film.

との磁気特性の差、すなわち膜全体の異方性エネルギーは小さく、等方的に近い特性を有している。しかしながら、この等方的性質は異方性の広い角度分散により生じたものであることが Fig. 2 より理解される。すなわちこの膜には $1 \sim 5$ Oe 程度の異方性磁界が存在し、その結果、透磁率の周波数依存性はこの異方性磁界によって決まる強磁性共鳴の影響を受けると考えられる。

そこでこの異方性分散測定結果をもとに透磁率の周波数依存性を計算した。計算方法は既報⁷⁾のとおりである。すなわち試料を異方性の向きと大きさの異なる多数の領域からなる集合体と考え、それぞれの領域の磁化量が異方性分散測定により得られているとした。そして各領域の透磁率は、ランダウ-リフシッツの運動方程式から得られる式に渦電流損失を考慮して算出され

Fig. 4 M - H curve of CuMo-permalloy thin film.

た式^{9), 10)}を用いて計算した。さらに試料全体の透磁率は、各領域の透磁率とその領域の試料全体に対する体積比との積を計算し、全領域の合計を算出することで求めた。計算のために必要な物質定数は文献値^{10), 11)}を用いた。

計算結果と実測値との比較を Fig. 3 に示す。実線は異方性分散測定結果から算出した計算値であり、プロットが測定値である。両者は極めて良い一致を示すことがわかる。このことから、本実験により計測された異方性の方向と異方性磁界の大きさの分布は妥当であると言える。さらに、見掛け上等方的特性を有する試料においても、その等方性が異方性の広い角度分散により生じている場合、異方性磁界により決定される強磁性共鳴が存在し、特性の周波数特性はそれにより決定されることが示された。

3.2 異方性分散測定結果と磁気トルク曲線

前項で明らかとなったように、異方性分散測定結果から、試料を異方性の向きと大きさの異なる多数の領域の集合体と考え、磁気特性が算出できる。そこで本項では、磁気異方性の基本測定の一つである磁気トルク曲線を同様の考え方のもとに異方性分散結果から算出し、実測値と比較した結果について述べる。

用いた試料は成膜後、無磁界中で熱処理した CuMo パーマロイ薄膜である。 M - H カーブを Fig. 4 に示す。成膜時に誘導された一軸異方性が熱処理後も残っていることが理解される。なお、この測定において磁化容易軸方向は後述の磁気トルク曲線の計測により決定した。

この試料の異方性分散測定結果を Fig. 5 に示す。この測定では任意方向を 0° として測定した。この結果からわかるように、異方性の角度分散はほぼ $+30^\circ$ 付近でピークをとっており、この方向が平均的磁化容易軸方向であると推定される。

この異方性分散測定結果を用いて磁気トルク曲線の算出を行った。すなわち前項で透磁率の周波数特性を算出した際と同様に、試料を異方性の向きと強度の異なる多数の領域の集合体と考え、それぞれの領域が一軸異方性を有する単磁区構造であるとすると、異方性分散測定によりある特定の H_k と容易軸方向

Fig. 5 Magnetic anisotropy dispersion of CuMo-permalloy thin film.

Fig. 6 Calculated and measured magnetic torque curves of CuMo-permalloy thin film.

β を有する磁化 $M(H_k, \beta)$ が測定されるため、高次項を無視すれば、一軸異方性定数 K_u が $(1/2)M \cdot H_k$ で表される¹²⁾ことと、磁化容易軸の方向が β であることを考慮して、 $M(H_k, \beta)$ によるトルク曲線は、

$$T = (1/2)M \cdot H_k \cdot \sin(2\theta - \beta) \quad (3)$$

と算出される¹³⁾。そこで、試料全体のトルク曲線は異方性分散測定により求めたすべての $M(H_k, \beta)$ に関して算出したトルク曲線を合計することにより算出される。その結果を Fig. 6 に実線で示す。縦軸は dyne-cm で示したトルク、横軸は角度である。算出されたトルク曲線はほぼ $+30^\circ$ に磁化容易軸があることを示しており、Fig. 5 に示した異方性分散測定結果でほぼ $+30^\circ$ 付近に異方性のピークがあったことと一致する。また Fig. 6 には試料のトルク曲線の実測値から抽出した 2θ 成分曲線も併せて点線で示した。両者は極めて良い一致を示しており、異方性分散測定結果より磁気トルク曲線が推定できることが明らかとなった。

本論文において、透磁率の周波数特性ならびに磁気トルク曲線を算出する際には、異方性分散を有する試料をある特定の異方性の強度と角度を有する領域の集合体であるとし、それら領

域間の相互作用が無視できると仮定している。これは本測定において用いた2軸VSMの検出部のノイズレベルが磁化量に換算して 3×10^{-6} emu程度であり、これ以上の磁化量を持つ領域すなわち $0.1 \mu\text{m}$ の厚さに対して 10^{-1}mm^2 オーダー以上の大きさの領域の反転を検出しているため、相互作用の影響が及ぶ範囲と比較して検出領域が十分大きく、相互作用の影響は無視できると考えられるためである。透磁率ならびに磁気トルク曲線の計算値と実測値が良い一致を示していることからこの仮定は妥当であると考えられる。

4. 結 論

2軸VSMを用いた方法により、異方性の強度分散と角度分散とを独立に評価できる。これを利用して軟磁性薄膜の異方性を評価した。さらに評価した異方性分散から膜全体の磁気特性を算出し、実測値と比較した。その結果以下のことが明らかとなった。

1. 広い角度分散の影響により等方的に近い特性を示す試料の異方性磁界が評価できた。それを用いて算出した透磁率の周波数特性は実測値と良い一致を示した。すなわち見掛け上等方的であっても異方性磁界は存在し、それによる強磁性共鳴が磁気特性に影響を与えることが明らかとなった。

2. 異方性分散測定結果から算出した透磁率の周波数特性ならびに磁気トルク曲線が実測値と良い一致を示した。このこと

は、局所的に測定した異方性から算出した特性の和が、試料全体を測定した値に等しいことを意味し、本測定による異方性分散の評価の妥当性を示すものである。

文 献

- 1) A. E. Berkowits and P. J. Flanders: *Acta Metall.*, **8**, 823 (1960).
- 2) 法橋滋郎: 第3回フェライト夏季セミナー講演概要集, **1-6**, 22 (1972).
- 3) D. O. Smith and K. J. Harte: *J. Appl. Phys.*, **33**, 1399 (1962).
- 4) R. Hasegawa, S. Uchiyama, and Y. Sakaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **3**, 671 (1964).
- 5) E. J. Torok, R. A. White, A. J. Hunt, and H. N. Oredson: *J. Appl. Phys.*, **33**, 3037 (1962).
- 6) S. Uchiyama, M. Masuda, and Y. Sakaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **2**, 621 (1963).
- 7) 石山和志, 豊田明久, 荒井賢一, 沖田和彦: 日本応用磁気学会誌, **19**, 329 (1995).
- 8) 豊田明久, 荒井賢一, 石山和志, 沖田和彦: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-94-89 (1994).
- 9) 細野彰彦, 島田 寛: 日本応用磁気学会誌, **12**, 295 (1988).
- 10) 前畠康宏, 綱島 滋, 内山 晋: 日本応用磁気学会誌, **13**, 307 (1989).
- 11) 島田 寛, 沼澤潤二, 米田与四郎, 細野彰彦: 日本応用磁気学会誌, **15**, 327 (1991).
- 12) 近角聡信: 強磁性体の物理(下巻), pp. 10-14 (裳華房, 東京, 1984).
- 13) 近角聡信: 強磁性体の物理(下巻), p. 18 (裳華房, 東京, 1984).

1995年10月16日受理, 1996年1月12日採録