レーザーアブレーション法で作製した Ni-Fe 細線の磁気特性

Magnetic Properties of Ni-Fe Wires Prepared by Pulsed Laser Ablation

牧内孝志・前田賢司・相撲健史・高興涛・大越正敏

九州工業大学情報工学部, 飯塚市川津 680-4 (〒820-8502)

T. Makiuchi, K. Maeda, T. Sumou, X. T. Gao, and M. Ohkoshi

Faculty of Computer Science, Kyushu Institute of Technology, Kawazu 680-4, Iizuka, Fukuoka 820-8502

Ni-Fe wires with widths $> 80 \mu\text{m}$ were prepared by a pulsed laser ablation method, in which the wire was formed by making use of re-ablation of the deposited film. The coercivity is found to increase with decreasing wire width in both the length and width directions. The wires become difficult to magnetize with decreasing wire width. These results are explained in terms of the particular structure of the wire, which is composed of fine particles.

Key words: Ni-Fe wire, laser ablation, fine particles, coercivity

1. はじめに

近年, GMR ヘッドやヘッドディスクインターフェースなど, 技術の進歩によりハードディスク装置などの磁気記録デバイスの記録密度はめまぐるしく向上してきている. さらに高密度化を進めるには微細加工技術の進展, およびその微細領域での磁性材料の諸特性に関する詳細な研究が必要となっているため, ナノオーダーの磁性細線の作成・研究などが活発に進められている¹⁾. 我々はエキシマレーザーを用いたアブレーション法によって磁性薄膜の作製を行っており, その高エネルギー粒子付着の特徴を報告してきた²⁾. ナノ秒パルス幅のレーザーアブレーションで放出されたパルス粒子ビームはプラズマを形成し, 高速電子, 原子とイオン, クラスタなどが含まれていて高い運動エネルギーを持っている. この方法は低温基板に結晶性の良い薄膜を作製できることが知られており, 磁性微粒子の作製にも応用されているが³⁾, レーザーアブレーション法を細線状磁性薄膜の作製に直接適用した研究は少ない⁴⁾.

本研究では, レーザーパルス毎の基板への薄膜形成と, 基板に付着した薄膜の再アブレーションを組み合わせるといふ新しい方法により, 幅が $80 \mu\text{m}$ 以上の細線状 Ni-Fe 薄膜を作製し, 細線幅が磁気特性に与える影響を調べた. 幅が細くなるにしたがって保磁力が顕著に増大することがわかったので報告する.

2. 実験方法

真空度 10^{-6} Torr のチャンバー内において, 焦点距離 100 mm の石英レンズで集光した波長 248 nm , パルス半値幅

27 ns の KrF エキシマレーザーを Fig. 1(a)のようにマスクと石英基板を挟んで $\text{Ni}_{45}\text{Fe}_{55}$ ターゲットに照射し, 石英基板上に Ni-Fe 薄膜を室温で作製した. 基板とターゲットは 20 mm 離れており, 基板でのレーザー照射面積は $4 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$ である. レーザーのエネルギーは 250 mJ , 繰り返し周波数は 1 Hz とした. パルス毎の薄膜堆積速度は 0.01 nm/pulse であった.

最初のパルスレーザー光は基板を通過してターゲットに照射され, アブレーションによって基板に薄膜が堆積する. 次のパルスレーザー光はマスクによって隠された細線周辺に堆積している薄膜を再アブレーションによりエッチングし, ターゲットを照射してアブレーションによって基板に薄膜が堆積する. この繰り返しにより, マスクによって隠された部分には薄膜が1本の細線状に成長する. マスクの幅を変えることにより, 幅 W が $80 \mu\text{m} - 1.4 \text{ mm}$ の細線状 Ni-Fe 薄膜を作製した. 長さ L は $4 - 8 \text{ mm}$, 膜厚は $\sim 50 \text{ nm}$ である. 作製した幅 $120 \mu\text{m}$ の細線状 Ni-Fe 薄膜の光学写真を Fig. 1(b)に示す. 細線周辺には最後のレーザーパルスによる Ni-Fe が 0.01 nm 堆積しているが, 磁気特性の測定には影響を及ぼさないと考えられる.

Fig. 1 (a) Experimental setup with a focused laser for ablation. (b) Optical photograph of deposited Ni-Fe wire with $120 \mu\text{m}$ width.

作製した細線状 Ni-Fe 薄膜の磁気特性は振動試料型磁力計を用い, 長さ, 幅, および膜面垂直方向に最大 15 kOe の磁界を印加して測定した. 比抵抗 ρ は最大 5 kOe の磁場を細線の長さ方向に測定電流と平行になるように印加して

四端子法で測定した。抵抗変化率 $MR \text{ ratio } [\%]$ は $(\rho - \rho_0)/\rho_0$ から算出した。 ρ_0 は $H = 0$ (消磁状態) での比抵抗である。それぞれの測定は同じサンプルを用いた。細線の構造は走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した。

3. 結果と考察

細線幅が $1400 \mu\text{m}$, $450 \mu\text{m}$, $120 \mu\text{m}$ の長さ方向、幅方向、膜面垂直方向の磁化曲線を Fig. 2, 3, 4 にそれぞれ示す。また、長さ方向、幅方向、膜面垂直方向に印加した磁場をそれぞれ H_L , H_W , H_Z とする。細線幅 W が細くなるにつれて長さ方向、幅方向とも保磁力が大きくなり、残留磁化が小さくなるのがわかる。また、磁化曲線の形状を比較すると $1400 \mu\text{m}$ の磁化曲線に比べて $450 \mu\text{m}$ の磁化曲線の方が長さ方向と幅方向とも形状がなだらかになっており、さらに細線幅の細い $120 \mu\text{m}$ の磁化曲線になると、形状がかなりなだらかになり、細線幅が細くなるにつれて長さ方向と幅方向とも飽和に達するのに必要な磁場が大きくなって磁化しにくくなっているのがわかる。長さ方向と幅方向とで磁化曲線の形状には顕著な差がみられない。

細線の幅を細くしていくと、長さ方向の反磁界係数が減少し長さ方向が磁化されやすくなるはずであるが、長さ方向と幅方向では磁化曲線の形状はほぼ一致していた。細線状薄膜面垂直方向の磁化曲線は Fig. 4 のようにヒステリシスがなく最も磁化困難方向であることがわかる。Fig. 5 に細線状 Ni-Fe 薄膜における長さ方向と幅方向の保磁力の細

Fig. 2 Magnetization curves along the length direction of Ni-Fe wires for $W = 1400$, 450 , and $120 \mu\text{m}$.

Fig. 3 Magnetization curves in the direction of the Ni-Fe wire for $W = 1400$, 450 , and $120 \mu\text{m}$.

Fig. 4 Magnetization curves normal to Ni-Fe wires for $W = 1400$, 450 , and $120 \mu\text{m}$.

線幅依存性を示す。細線幅が細くなるにつれて両方向とも保磁力は大きくなり、長さ方向と幅方向の保磁力はほぼ同じ値であることがわかる。この結果は、細線の外形形状よりも内部構造が磁気異方性と保磁力を支配していることを示唆している。

残留磁化 M_r の飽和磁化 M_s に対する比 M_r/M_s と細線幅 W との関係を Fig. 6 に示す。これより、 W が小さくなるにつれて M_r/M_s は小さくなる傾向がみられる。つまり、細線幅が細くなるにつれて磁化しにくくなっている。やはり、長さ方向と幅方向とでは顕著な違いは見られなかった。

Fig. 5 Dependence of the coercivity H_c on the wire width W . Dotted line is a guide for the eye.

Fig. 6 Dependence of M_r/M_s on the wire width W .

長さ方向と幅方向とで H_c および M_r/M_s に顕著な違いがないこと、また、細線幅が細くなるにつれて磁化しにくくなっていることを詳しく見るために、磁化のし易さを表わす指標として、磁化の値が飽和磁化の半分になる磁場を $H_{50\%}$ と定義した。この $H_{50\%}$ が大きくなると磁化曲線がなだらかになり磁化しにくいことになる。 $H_{50\%}$ と細線幅との関係を Fig. 7 に示す。これより、細線幅が太い時 $H_{50\%}$ は小さく、細くなるにつれて $H_{50\%}$ が大きくなっているが、 $300 \mu\text{m}$ 付近以下ではほぼ 1 kOe になっていることがわかる。やはり、長さ方向と幅方向とで $H_{50\%}$ にも殆ど差がなく、 W が小さくなると磁化しにくくなることを示している。

以上の特異な結果は、細線の外形形状よりも内部構造が磁気特性を支配しているためと考えられるので、SEM に

より細線構造を調べた。その結果、細線状 Ni-Fe 薄膜はサブミクロンサイズの粒子から構成されていることが分かった。粒径の細線幅依存性を Fig. 8 に示す。レーザーアブレーション法によって作製した細線状 Ni-Fe 薄膜は細線幅を細くしていくことによって構成粒子の直径は小さくなっていくことが分かる。微粒子においては、直径が小さくなるにつれて保磁力が大きくなることはよく知られている⁵⁾ので、今回作製した細線状 Ni-Fe 薄膜の保磁力が細線幅の減少とともに増大したのは、細線内部の粒子直径が小さくなるためと考えられる。幅が $120 \mu\text{m}$ の細線状 Ni-Fe 薄膜の SEM 写真を Fig. 9 に示すが、粒径はかなり均一で約 30 nm であることが分かる。

Fig. 7 Dependence of $H_{50\%}$ on the wire width W . Dotted line is a guide for the eye.

Fig. 8 Dependence of grain size on the wire width W .

Fig. 9 SEM photograph of a Ni-Fe wire with $W = 120 \mu\text{m}$.

細線状 Ni-Fe 薄膜の長さ方向と幅方向とで磁化曲線が殆ど一致していることから、各粒子の結晶軸はランダムに分散していると推測されるが、細線幅が細くなるにつれて残留磁化が非常に小さくなり、磁化困難になる原因は不明である。これらに関して知見を得るため、比抵抗の磁場依存性を測定した。

比抵抗 ρ_0 の細線幅依存性を Fig. 10 に示す。細線幅が狭くなると ρ_0 は大きくなるが、 $300 \mu\text{m}$ 付近以下では顕著に増大することが分かった。磁気抵抗曲線の測定結果を Fig. 11 に示す。配向効果による零磁場近傍での比抵抗の極小と、強制効果による比抵抗の減少がみられる。外部磁場を 5 kOe まで印加した時の強制効果による MR 比 $|\rho_{5k} - \rho_0| / \rho_0$ を MR_{5k} とし、この MR_{5k} の細線幅依存性を Fig. 12 に示す。細線幅が細くなるにつれて MR_{5k} は大きくなる、つまり比抵抗の減少率が大きくなることがわかる。この結果は、細線幅が細いほど異方性分散が大きくなることを示唆している。

細線状 Ni-Fe 薄膜の幅を細くすると結晶粒径が小さくなり、かつ各粒子の結晶軸がランダムに分散する原因はまだよく分かっていないが、細線周囲に付着した薄膜の再アブレーション時に発生するプラズマの影響により、急速な熱処理効果を受けながら細線が形成されることに起因する可能性がある。急速な熱処理は結晶性を良くするだけでなく、結晶粒を小さくする効果のあることが報告されており^{6,7)}、本方法により作製した細線状 Ni-Fe 薄膜では細線幅が狭いほど、より高温の急速熱処理効果を受けていることが推測される。

Fig. 10 Dependence of resistivity on the width of Ni-Fe wires.

Fig. 11 Magneto-resistance effect of Ni-Fe wires.

Fig. 12 Dependence of MR_{5k} on the wire width W . Dotted line is a guide for the eye.

4. まとめ

レーザーアブレーション法により作製した細線状 Ni-Fe 薄膜の保磁力は幅が細くなると大きくなることがわかった。また、細線幅が細くなるにしたがって磁化曲線がなだらかになり磁化しにくくなることがわかった。さらに、細線状 Ni-Fe 薄膜の磁化曲線の形状は長さ方向と幅方向ともほぼ一致していた。この理由として、細線状 Ni-Fe 薄膜が微粒子構造になっていることが考えられる。細線幅を細く作製することで結晶粒が小さくなってランダムに分散する結果、磁化反転が容易に起こらなくなり保磁力が大きくなったと考えられる。粒子配向と磁気特性との関係など、さらに研究を続けていく必要がある。

文献

- 1) A. Maeda, T. Umemoto, K. Yamano and S. Takahashi : *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 1983 (1999).
- 2) K. Tagashira, A. Sakaue, S. Tomoeda, H. Ootao and M. Ohkoshi : *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 1253 (1999).
- 3) J. M. Gonzalez, M. I. Montero, L. Vazquez, J. A. M. Gago, D. Givord, C. de Julian, and K. O'Grady: *IEEE Trans. Mag.* **34**, 1108 (1998).
- 4) M. Hirano, K. Kawamura and H. Hosono: *Applied Surface Science*, **197-198**, 688 (2002).
- 5) F.E. Luborsky : *J. Appl. Phys.*, **32**, 171S (1961).
- 6) T. Suzuki, F. Sequeda, H. Do, T. C. Huang, and G. Gorman: *J. Appl. Phys.* **67**, 4435 (1990).
- 7) S. Luby, E. Majkova, M. Spasovaa, M. Jergela, R. Senderaka, E. D'Annab, A. Luchesh, M. Martinob, and M. Brunelc: *Thin Solid Films*, **311**, 15 (1997).

2002 年 10 月 7 日受理, 2003 年 1 月 17 日採録