高入射角斜め蒸着膜のローレンツ顕微鏡による磁区像

Lorentz Microscopic Images of Magnetic Domains of Oblique Incidence Ferromagnetic Films Deposited at Grazing Angles

塚原園子 電子技術総合研究所, 茨城県新治郡桜村梅園 1-1-4

S. Tsukahara

Electrotechnical Laboratory, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki-ken

Stripe domains parallel to the incident vapour axis are characteristic to oblique incidence films of grazing angles. The mean magnetization of the domain has a dominant in-plane component parallel to the incident axis and a minor perpendicular component.

It is common to the stripe domains in the Fe-Ni and Fe-Co alloy films examined that there exist both in-plane and perpendicular magnetization ripples with different wave lengths, the minimum of which is about 2–300 Å, which is due to distribution of the easy axis of the shape anisotropy of columnar grains. Long range ripples extend crossing numbers of stripe domains and have structural correlation with the wall structure.

The domain walls of the stripe domains consist of Bloch and Néel type wall fragments with different signs alternately arranged along the wall.

Columnar grains composed of several crystalline grains influence exchange interaction and magnetostatic interaction of the spin system, which explains the domain structure qualitatively.

1. 緒 言

強磁性金属の斜め蒸着膜には入射角に依存してその大きさと容易軸が変化するような一軸磁気異方性が形成され、その異方性の入射角依存の傾向は広い範囲の組成において共通である¹⁻⁸⁾。

蒸着膜の結晶は一般に下地から蒸気入射方向に向って柱状に成長し、斜め蒸着膜の柱状粒は入射角に依存する角度で膜面より傾いていることが厚膜のレプリカ写真で明らかにされた^{7,9)}。高入射角の蒸着膜に共通な入射方向に平行な膜面内容易軸を持つ異方性の原因を柱状構造に求めることは多くの報告が等しく認めている。

斜め蒸着膜の磁区構造も入射角依存の変化を示し、高入射角の膜には斜め蒸着膜においてのみ形成される幅

1000~3500 Å の特徴的な縞状磁区構造がある¹⁰⁾。磁区構造およびその磁化過程との関連は 100 kV のローレンツ顕微鏡で調べられた¹¹⁻¹³⁾。微細な磁氣的構造は、高圧の顕微鏡を用いると同じ厚さの膜についてより明瞭に識別できる。200 kV のローレンツ顕微鏡像から、未検討であった縞状磁区内および磁壁内のスピン分布を求めることを本稿の中心とする。高入射角の膜は一軸異方性に加えて高い保磁力をもつので¹⁴⁾、これが磁気テープ材料に応用され始めている。その磁区構造を調べ直すことも意味があると考える。

2. 実験方法

0 ~ 100 NiFe および 50CoFe 合金を $10^{-5} \sim 10^{-6}$ Torr の真空中で電子銃加熱をして、入射角 $0 \sim 85^\circ$ で斜め蒸着を行なった。下地には $50 \sim 350^\circ\text{C}$ のガラスおよび岩塩 (100) 劈開面を用い、膜の厚さは $100 \sim 15000$ Å の間で変えた。膜厚は光の繰り返し干渉で、組成は EPMA で、磁気異方性は高感度トルクメータにより測定した。岩塩下地上の膜を水中で剝離して、200 kV の透過電子顕微鏡 (H-700H) により結晶粒およびローレンツ顕微鏡像を観察し

Fig. 1

Incident angle dependence of in-plane uniaxial anisotropy K_u in the thickness range 300–3000 Å.

The curves are drawn through the center of thickness dependent values, where smaller value corresponds to smaller thickness. The variation range is shown by a vertical bar at an incident angle for each curve.

た. Fig. 1 に示すように, 直交座標において膜面に垂直に z 軸をとり, z 軸に対して角度 α で蒸気が入射する時, その膜面への投影方向を y 軸にとる.

3. 磁気異方性

一軸異方性定数 K_u の符号は, 面内磁化容易軸が x 軸である時を正に, y 軸にある場合を負にとることにする. 測定した K_u の入射角依存性を 4 つの組成について Fig. 1 に示す. 下地は 50°C のガラスで, 入射角は 2° 間隔に変え, それぞれ厚さ $300 \sim 3000 \text{ \AA}$ の間での K_u 値からその中心値のみを示した. K_u は組成, 膜厚, 下地温度に応じて大幅に変化する. Fig. 1 では各組成において厚さ変化で生ずる K_u 値の幅を縦線で例示した. Ni など磁歪定数が負の組成では K_u は常に負であり, 磁歪定数が正の組成では入射角の増加に伴い正の最大値を通して負となるような K_u の変化がある. 組成, 膜厚, 下地温度を一定にした K_u の入射角依存性は, 実験したすべての範囲に共通である. ガラスおよび岩塩下地上の膜の間にも本質的な差はみられない. ただし, 下地による膜の歪みが異方性に寄与して, 膜を下地から離すと磁歪定数の正負に応じて負の K_u が増減する. したがって, 電顕用試料の K_u の入射角依存性は磁歪の正負に応じて Fig. 1 の曲線を下または上へ移動させた傾向となっている.

4. 縞状磁区の微細構造

入射角 $62^\circ \sim 72^\circ$ および $450 \sim 1800 \text{ \AA}$ の組合せの広い範囲の膜において, その消磁状態の磁区が y 方向に長く, 幅の揃った縞状磁区となる. 膜面上の入射方向は下地の小突起物などの影響によって容易に決定できる (Fig. 5 参照).

この縞状磁区の特徴はすでに報告しており, Fig. 2 のモデルにまとめられる¹²⁾. すなわち, この縞状磁区は磁

化の波状変化ではなくて, 一定磁化方向を持つ磁区とこれを境する磁壁で構成される. 磁区の中で磁化は y および z 成分を持ち, 隣り合う磁区間の磁化は反平行である.

膜全面が曲型的な縞状磁区である 50 NiFe 膜 (厚さ $660 \text{ \AA}$, 入射角 62°) の焦点ずらし量 Δf と倍率を大幅に変えた 5 枚の写真を Fig. 3 に示す. 焦点ずらしのコントラストは磁区・磁壁構造に依存し, 白い収束像と黒い発散像とは磁壁の位置に交互に並ぶ. この膜では磁区幅が約 $1300 \text{ \AA}$ であるから, Δf が約 1 mm 以上の像では画面全体が焦点ずらしのコントラストで占められる. 収束・発散のいずれの像においても y 軸に沿って $200 \sim 500 \text{ \AA}$ 間隔で濃淡が繰り返されている. Fig. 3 (b), (c) では発散像は x 方向にジグザグに振れていることがみえる. また Fig. 3 (b) では写真上の一部に矢印に示したように, 磁区の中が径 $2 \sim 300 \text{ \AA}$ の部分によって x, y 両方向に嵌め込み細工のように区切れていることもわかる. Δf が大きいと, 収束像における y 方向への濃淡の繰り返しが目立つが, 同時に, 同一濃度の白い点が縞状磁区を何本も横ぎって x 方向に連なっている (Fig. 3(d)). 倍率を低くするとその平面的連続性がよりはっきりと表われる (Fig. 3(e)).

Fig. 2 に示すような膜面より傾いた磁化を持つ磁区を境する磁壁について従来検討されていないようである. ネール磁壁型, プロッホ磁壁型, その中間構造の磁壁, さらにそれぞれの磁壁内のスピン回転向きの極性まで含

Fig. 3

Typical contrasts in a series of Lorentz micrographs with different defocusing lengths Δf of a 50 NiFe film of $660 \text{ \AA}$ with an incident angle 62° .

(a) $\Delta f = 0$, (b) $\Delta f = -0.8 \text{ mm}$, (c) $\Delta f = +1.2 \text{ mm}$, (d) $\Delta f = +2.1 \text{ mm}$ and (e) $\Delta f = +3.5 \text{ mm}$.

Fig. 4

A fine structural model of the negative stripe domains. (a) a domain wall and (b) magnetization ripples and domain walls.

めると、様々な磁壁構造が考えられる。Fig. 3 で指摘したコントラストの特徴を満足する磁壁構造として **Fig. 4** (a) のモデルを提示する。磁壁中心が x 磁化成分を持つ極性の異なる磁壁片 a と a' によって像の y 方向の濃淡が、中心部で膜面より θ_0 だけ傾いた磁化成分を持つ磁壁片の極性の異なるもの b と b' によってジグザグする像が説明される。 a と a' または b と b' のような磁壁の極性反転による磁壁エネルギーの減少があるとすれば、 a または a' と b または b' とが交互に繰り返すのは必然的な構造である。このような構造は高入射角斜め蒸着膜の縞状磁区に特有で、通常の磁区を持つより低い入射角の膜の像では観察されない。

平均の磁化が y 軸にある薄膜の x 磁化成分リップルは像面では y 軸に直交な線として、 z 磁化成分リップルは y 軸に平行な縞として観察される。Fig. 3 (b) にみられる縞状磁区の中を細分する $2 \sim 300 \text{ \AA}$ の像はこれらの磁化リップルによるものと考えられる^{*}が、これは短範囲の構造であるから $4f$ の大きいまたは低倍率の像では見えない。Fig. 3(d), (e) ではこれに代わって長波長磁化リップルの像が縞状磁区を越えて x 軸方向に広範囲に連なる線としてみえている。長波長リップルはこれが横ぎる磁壁内のスピン分布と関連している。

Fig. 4 (b) は磁区内の磁化リップルと磁壁構造を併せた縞状磁区の二次元的スピン分布で、平均の磁化分布は Fig. 2 に等しく、微細な磁氣的コントラストも満足させるモデルである。磁化の揃った径 $2 \sim 300 \text{ \AA}$ 以下の面積部分が構成単位となっていて、これが y 方向に強く結合して細長い磁区を形成する。磁区内の微細構造として垂直磁化リップル、これと波長の異なる面内磁化リップル、および短波長で極性の反転を繰り返す磁壁がこのモデルに含まれている。

このモデルの構成単位として柱状粒の集合が対応するものと考えられる。室温蒸着膜の正焦点像を **Fig. 5** に示

Fig. 5

Transmission electron micrograph of a 81.5 NiFe film with a high angle of incidence, 75° . Chains of small grains of a $510 \text{ \AA}$ film elongate into two perpendicular axes to form columnar grains.

^{*} 透過電子顕微鏡の焦点ずらし像におけるコントラストの原因は単一ではない。焦点ずらし像にも結晶面ごとに異なるような回折コントラストが存在するが、結晶粒の寸法がここで問題にしている構造の寸法よりずっと小さいから、この効果は一応除外してよいであろう。

膜の厚さが $100 \text{ \AA}$ 程度の凸凹を持つとき、その像には焦点のずれせ方の過・不足で反転するようなコントラストが凸凹部の輪郭として表われる。これは電子線の屈折効果で説明される¹⁵⁾もので、磁氣的構造に関係ない。

斜め蒸着膜の表面は柱状粒による凸凹があるから、その焦点ずらし像には屈折効果によるコントラストが生ずる。同時に、同じ構造が磁化リップルの原因ともなっていて、磁氣的なコントラストも現われる。結局、数 $100 \text{ \AA}$ の最小面積を単位とするコントラストは磁氣的および屈折効果の重量したものである。

観察される部分のコントラストに磁氣的寄与が含まれると結論する論拠は、同一視野が磁化状態の変化によって異なるコントラスト分布を示すことである。複数の結晶粒の集合が磁氣的に同一の極性を示すと考えているが、その極性は磁化状態で反転し得る。一方、形状によるコントラストは磁化状態の変化に対して反転しない。

す。81.5 NiFe 膜 (膜厚510Å, 入射角75°) の100Å以下の微小な結晶粒が, 突起物の影で示される入射方向に細長く連なると同時に, これと直角な方向にもより短い範囲で連なりがある様子が Fig. 5 に観察される。同一組成のより厚い膜では細かい柱状粒が重なり合う。

柱状粒の形状と粒子相互間の磁氣的結合状態に依存して斜め蒸着膜の磁性が変化する。入射角の増加に伴って柱状粒の膜面からの傾きは増す⁹⁾ から, z 方向への粒子の重なりが増え, また, 膜の比表面積が激増する¹⁰⁾ ことから柱状粒間の構造的不連続部分が増すことがわかる。

x , y 方向に格子状に並んだ柱状粒が静磁的相互作用のみにより結合しているとしても, 厚い高入射角の膜の磁気異方性が説明できると報告されている⁶⁾。

ここでは, 膜は鱗状に重なった柱状粒で構成され, 柱状粒間は交換相互作用で結合する部分と静磁的相互作用により結合する部分が共存していると考えている。柱状粒の形状から生ずる y 軸を容易軸とする面内異方性は入射角に伴って増加し, 膜面に垂直な容易軸を持つ異方性は垂直入射で最大であり入射角の増加により柱の傾く分だけ垂直成分は小さくなる。一方, 柱状粒が形状異方性を発揮するための粒子の独立性は入射角増加によってより完全になる。したがって, Fig. 4 の構造の縞状磁区が特定の入射範囲でのみ形成されることは定性的に納得できる。

高入射角の斜め蒸着膜がこのような柱状構造を持つ限り, 柱状粒の形状に由来する異方性の大きさと磁化容易軸が微視的にゆらぎ, 磁化リップルが生ずることは明らかである。

垂直磁化成分の出ない程度により高い入射角の膜では, 不連続性のより顕著になった柱状粒による磁化リップルはその振幅が増し, 幅の揃った縞状磁区はできなくなる。

5. 結 論

入射角62°~75°, 厚さ450~1800Åの斜め蒸着膜に形成される蒸気入射方向に長くて幅1000~3500Å程度の特

微的な縞状磁区の中に, 2~300Åを最小の波長とするような面内および垂直磁化リップルが存在する。平均の磁化方向は磁区の長手方向に平行な面内成分と垂直成分を含み, 膜面より斜めを向いている。磁壁も2~500Åを単位にして, 符号の異なるネール型およびブロッホ型の磁壁が交代するような構造を持つ。これらは柱状粒が半独立的に重なる膜の構造と対応させて理解できる。

電子技術総合研究所の川勝久三材料部長には全般にわたって有益な議論をしていただいたことを感謝します。

〔参考文献〕

- 1) D. O. Smith, M. S. Cohen and G. P. Weiss: J. Appl. Phys., **31**, 1755 (1960).
- 2) M. S. Cohen: J. Appl. Phys., **32**, 87S (1961).
- 3) Z. Kamberská and V. Kamberský: Phys. Status Solidi, **17**, 411 (1966).
- 4) S. Ishimura, S. Tsukahara, H. Kawakatsu and T. Nagashima: J. Phys. Soc. Jpn., **22**, 336 (1967).
- 5) 塚原 園子, 国分明男, 小林博幸: 第2回「応用磁気」学術講演会 97 (1970).
- 6) E. Münster: IEEE Trans. Magn., **MAG-7**, 263 (1971).
- 7) K. Okamoto, T. Hashimoto, K. Hara and E. Tatsumoto: J. Phys. Soc. Jpn., **31**, 1374 (1971).
- 8) T. Hashimoto: J. Phys. Soc. Jpn., **41**, 454 (1976).
- 9) J. M. Nieuwenhuizen and H. B. Haanstra: Philips Tech. Rev., **27**, 87 (1966).
- 10) A. Baltz: J. Appl. Phys., **37**, 1485 (1966).
- 11) R. P. Ferrier and I. B. Puchalska: Phys. Status Solidi, **28**, 335 (1968).
- 12) S. Tsukahara: J. Phys. Soc. Jpn., **28**, 62 (1970).
- 13) I. B. Puchalska: Phys. Status Solidi a, **8**, 499 (1971).
- 14) D. E. Speliotis, G. Bate, J. K. Alstad and J. R. Morrison: J. Appl. Phys., **36**, 972 (1963).
- 15) K. Fukushima, H. Kawakatsu and A. Fukami: J. Phys. D; Appl. Phys., **7**, 257 (1973).
- 16) J. W. Swaine, Jr., and R. C. Plumb: J. Appl. Phys., **33**, 2378 (1962).