

氏名	塚 原 園 子 つか はら その こ
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	論 理 博 第 248 号
学位授与の日付	昭 和 43 年 7 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	<b>Electron Microscopic Studies on Origins of Magnetization Ripples in Ferromagnetic Thin Films</b> (強磁性薄膜の磁化リップル起原に関する電子顕微鏡的研究)

論文調査委員 (主 査) 教授 高木秀夫 教授 可知祐次 教授 水渡英二 教授 高田利夫

### 論 文 内 容 の 要 旨

強磁性金属薄膜の磁区構造は平均するとほぼ同じ方向に磁化した大きい磁区があり、この磁区内には磁化方向の細かいゆらぎが波状に存在する。このような磁区内の微細構造、すなわち磁化方向の分散をリップルと呼んでいる。その波長と振幅は微結晶粒の大きさにもよるが、それぞれ  $10^3\text{\AA}$  と  $10^\circ$  前後の大きさが観測されており、したがって透過型電子顕微鏡法による観察が最も有力である。リップル構造の原因は微視的な磁化容易軸のランダムな分布に関係があると考えられる。70~80%Ni-Fe 合金(パーマロイ)の蒸着膜は、蒸着の際に誘導された単軸磁気異方性、 $K_u$  が磁区の平均磁化方向をきめるが、磁区内に存在する微結晶粒の結晶磁気異方性、 $k_c$  がリップルを生起すると考えられていた。(Kは巨視的異方性を、 $k$  は微視的のそれを示す。)しかし、結晶磁気異方性  $K_c$  がほとんど0の単結晶膜にもリップルが観察され、また微結晶の  $k_c$  のみでは説明できないリップルがいろいろ存在する。そこで、著者はまず電子顕微鏡で観察されるリップル像およびそれより導かれるリップルの定量化について詳細に検討し、つぎにリップルが存在するための条件を各種の磁気特性をもつ試料について系統的に追求した。

透過型電子顕微鏡による方法としては defocus 法、shadow image 法および slit 法を検討している。defocus 法は倍率も高く、リップルの観察に主として用いている。この場合、defocus 量を増すと結晶粒の像のコントラストは減少するが、リップル等の磁氣的コントラストが新たに加わってくることを利用したものである。それで、コントラストの重畳したのが観察されるので、これが分離できるかどうかを前者のみの現われる銅の膜を用いて調べている。結晶粒の像のコントラストは defocus 量とともに指数関数的に減少するが、その様子は結晶粒の大きさに大きく依存する。一方磁氣的コントラストは defocus 量に比例して増加するはずである。実験では結晶粒の大きい場合両コントラストの分離は困難であるが、結晶粒約  $100\text{\AA}$  以下のときは、磁氣的コントラストが優先することが観測され、リップルの波長と振幅の角度を定量的に求めることができた。粒の大きさの異なる膜の間のリップルの様子を定量的に比較することは難しい。shadow image 法は defocus 法に比べて倍率が小さいが、測定されるものには根本的差はな

い。この方法では、試料に磁場をかけ、また試料の温度を上げることができるので、リップルの磁場効果および温度効果を求めることができる。Slit 法では磁化の強さに比例したコントラストを得ることができるが、分解能が小さく、リップルの観察には適当でないと述べている。

つぎに磁性薄膜試料としてこれまでよく調べられていたパーマロイ以外に、鉄、ニッケル、コバルト、ニッケル・コバルト合金をも用いて観察している。かくして、結晶磁気異方性、 $K_c = k_c (0 \sim 5 \times 10^5 \text{erg/cm}^3)$ 、磁歪 $\lambda_s (0 \sim 4 \times 10^{-5})$ 、膜厚 (200~2,000Å)、結晶粒(10Å~数 $\mu$ )、微結晶方位の揃い方 (0~100%)、粒子の形状異方性、 $k_s$ 等の磁氣的パラメーターの種々の組み合わせについて系統的に調べている。磁歪は、格子欠陥、熱処理などによる微視的內部応力が存在すると、それとの相互作用によって微視的磁気弾性異方性、 $k_s$ を生ずる。以上の微視的異方性の大きさが  $10^4 \sim 10^5 \text{erg/cm}^3$  になると、リップルの生起の原因となる。リップルの振巾や波長は結晶粒の大きさ、内部応力の範囲に応じて変化する。膜の厚さは厚くなると、厚さの方向にも磁化方向は均されてリップルは弱くなる。さて、 $k_c = 0$  で結晶方位の等方的なパーマロイ膜にしばしばリップルが消えることはすでに報告されているが、 $k_c = 0$  の 5%Co—Ni の合金では、 $k_c, k_s$  ともに 0 の条件が充たれないからである。 $k_c$  の大きい膜はこれがリップルの原因となっている。例えば鉄薄膜において結晶方位の揃い方の小さいものはリップルが観察されるが、80%以上方位が揃うと、リップルが消える。同様に磁歪の大きい膜では  $k_s$  が原因となる。例えば結晶方位が100%揃ったニッケル膜にはリップルが現われる。またリップルの見えなかったパーマロイ膜 ( $k_c = 0, k_s = 0$ ) を加熱、再結晶させると、リップルを生ずる。これは結晶粒の形状異方性、 $k_s$ によるものと考えられている。

単結晶薄膜はブロック試料を化学研磨によって作られたものであるが、このリップルは  $k_c$  が小さいほど、 $\lambda_s$  が小さいほど顕著であり、研磨面の状態に依るので、形状異方性によるものであると述べている。

薄膜の磁区構造はキュリー点より低い温度、 $T_{dc}$  で消失するが、それより少し低い温度で膜全面にリップルを示す。この温度では多くの微視的異方性がいずれも 0 に近づくから、リップルの原因となりえず、磁化の熱振動によるものであろうと推論している。これは室温ではリップルが見られなかった鉄単結晶膜を含む全ての薄膜で実現した。

リップルを抑制するものとして微視的異方性により大きい巨視的異方性が重畳すると、磁化リップルは減少する。例えば  $\lambda_s$  の大きいニッケル膜に一方向に張力を加えると、リップルが消え、 $K_c$  の大きい鉄単結晶膜では表面に凹凸が存在し ( $k_s$  が大きい) てもリップルが現われないことを見いだしている。

磁場を作用すると、リップルは変化し、平均磁場方向に平行な磁場中ではリップルは減少し、逆平行な磁場中では、リップルは増加するなどの現象を見いだしている。この磁場効果およびリップル抑制の  $K_c$  の効果については Hoffmann の理論があり、パーマロイの実験を一応説明している。

以上の結論として、 $T \ll T_{dc}$  の温度では、 $K(K_c, K_u, K_v) < k(k_c, k_s, k_s \text{ etc})$  のときリップルが生起し、 $K > k$  のとき消滅する。実際の多結晶膜や不完全単結晶膜ではリップルは薄膜の特徴といえると述べている。

参考論文 7 編は、すべて強磁性金属の蒸着膜に関するもので、斜め蒸着のときの下地温度や入射角によ

る効果、温度による磁区構造の変化、磁場中蒸着の単軸磁気異方性の組成依存性、新しく見いだした磁壁構造などを明らかにしたものである。

### 論文審査の結果の要旨

磁性薄膜の基礎研究は、記憶素子への応用もあって近年広く研究されている。薄膜は通常蒸着によって作られ、微小な結晶粒からできていること、膜厚の方向の反磁場係数が大きい ( $4\pi$ ) ので、膜面に平行に磁化しやすいことなどのため薄膜特有の磁気構造を示す。磁区の平均磁化方向に微細な磁化方向の変化、いわゆるリップル状磁化の現われるのもその一つである。リップルについては 70~80%Ni-Fe 合金 (パーマロイ) についての実験があり、そのリップルの構造および磁場効果等について、Hoffmann らの理論がある。これらの結果では、リップルは蒸着膜を構成する微結晶粒の結晶磁気異方性が微視的異方性として作用して生ずると考えられた。しかし、そのみでは説明できないリップルが、いくつか見いだされた。そこで、著者は各種磁気特性の異なる金属および合金についてリップル構造を系統的に検討した。

リップルの観察には透過型電子顕微鏡法を用いるのが最も有効であるが、観察されるリップル像と実際に存在すると考えられるリップル構造との関係はこれまで十分に吟味されているとは言えないので、著者はこの点を詳細に検討している。電子顕微鏡法として defocus 法、shadow image 法および slit 法をとりあげている。defocus 法は倍率も高く、リップルの観察に最も有力である、著者はこの方法を用いてリップル像のコントラストおよび波長が defocus 量とどのように変化するかを調べている。結晶粒の像のコントラストとリップルの磁氣的コントラストは常に重畳し、厳密には区別できないが、両者の defocus 量に対する依存性より、結晶粒の小さい場合には磁氣的コントラストが優先し、リップルの構造、すなわち、その波長および振幅の角度を求めることができることを見いだした。shadow image 法は defocus 法とほとんど根本的に差はなく、リップルの磁場効果および温度効果を観察している。slit 法はリップルの観測には余り適当でないと述べている。

リップルの原因をなす巨視的因子としては、磁区のもつ結晶磁気異方性、蒸着に際して誘導された単軸磁気異方性、外部応力と磁歪とによって生ずる磁気弾性異方性が考えられる。これに対し、微視的因子としては、微結晶粒の結晶磁気異方性、広義の格子欠陥により生じた内部応力と磁歪とによって生ずる磁気弾性異方性、結晶粒の形状による異方性などが考えられる。そのほか膜厚、結晶粒の大きさとその方向の揃い方などが問題となる。試料には、上の磁気特性のそれぞれ異なるもの、鉄、ニッケル、コバルト、鉄・ニッケル合金、ニッケル・コバルト合金を用いている。その結果微視的異方性が  $10^5 \text{erg/cm}^3$  位になると、リップル発生の原因となる。巨視的異方性が微視的異方性より大きくなると、リップルは減少し、ついには消滅するが、その様子は膜厚、微結晶粒の大きさ、その方向の揃い方によって変動する。また磁場の大きさおよび方向によってもリップルの増減が起こる。さらに温度効果を調べている。温度が上ると、磁区が消失する温度の手前でリップルが顕著に見られ、その温度では前記巨視的、微視的異方性のいずれも小さくなることから、磁化の熱振動によるものであろうと推論している。

参考論文 7 編も全て強磁性金属蒸着薄膜に関するもので、新しく見いだした磁壁の構造を明らかにしたものであり、薄膜特有の磁気異方性を論じたすぐれた労作である。

要するに、著者塚原園子は、磁性薄膜のリプル構造について詳細に検討しており、強磁性体磁化機構の研究分野において重要な貢献をなし、今後の発展に大きな示唆を与えている。また磁性についての豊富な知識と研究能力をもっていることが認められる。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値があるものと認められる。