日本応用磁気学会誌 23, 1381-1384 (1999)

# (CoFeB)-(SiO<sub>2</sub>)系アモルファス高電気抵抗膜の磁気特性

Magnetic Properties of Highly Electrical Resistive (CoFeB)-(SiO<sub>2</sub>) Amorphous Films

宗像 誠, 八木 正昭, \*島田 寛

熊本工業大学・エネルギーエレクトロニクス研究所, 熊本市池田 4-22-1 (● 860-0082)

\*東北大学・科学計測研究所,仙台市青葉区片平 2-1-1 (画 980-8577)

M.Munakata, M.Yagi and \* Y.Shimada

KIT Energy Electoronics Laboratory, 4-22-1 Ikeda, Kumamoto 860-0082 \*Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

(1998年10月15日受理,1999年1月21日採録)

(CoFeB) –(SiO<sub>2</sub>) amorphous magnetic films for magnetic cores of micro-magnetic power devices were deposited on glass substrates by a synchronous dual-rf magnetron sputtering method. The relation between the magnetic properties and resistivities of the films and core losses was investigated. Highly electrically resistive soft magnetic  $\text{Co}_{66.6}\text{Fe}_{7.4}$  B<sub>26</sub>–SiO<sub>2</sub> films with low core losses in the high–frequency range were obtained by reducing the hysteresis losses. The films exhibited an anisotropy field of 40 Oe, a permeability of 200 and a saturation magnetization of 7.3 kG. The core loss of the films for a coercivity of 0.20 Oe and a resisitivity of 200  $\mu \Omega$  cm was less than 1 J/m<sup>3</sup> at 1 MHz,  $B_m = 0.1$  T, as good as that of Co-based ultra-thin soft magnetic amorphous ribbons.

Key words : (CoFeB)–(SiO<sub>2</sub>) film, high electrical resistiv– ity, soft magnetic properties, amorphous structure, hysteresis losses, core loss

## 1. はじめに

近年, 薄膜インダクタの実用化に伴って, ワンチップスイッチ ング電源のデバイス特性および作製プロセスの研究<sup>1),2),3)</sup> が盛ん に行われ, 数 MHz ~数 10MHz で動作する低損失, 高透磁率を 有する高周波薄膜磁心材料への要求が益々高まっている<sup>4)</sup>.

著者らは以上の要求に応えるため、大振幅磁界下で作動する 低損失な高電気抵抗薄膜磁心の開発を目的として、デバイス作 製プロセスで多用されるポリイミド基板にFe-Al-O系高電気抵 抗膜を作製し、ガラス基板と同様に高電気抵抗軟磁性膜が実現 できることを明らかにした<sup>9)</sup>.しかし、それらの膜の鉄損は、渦 電流損失に比べてヒステリシス損失がはるかに大きく、大振幅 磁界下ではヒステリシス損失を優先して低減する必要があるこ とを報告した<sup>9)</sup>.このヒステリシス損失を低減するためには、 結晶の微細化によって磁気異方性を低減するナノ結晶グラニュ ラー膜だけではなく、元来低い磁気異方性を持つアモルファス 高電気抵抗膜<sup>9</sup>についても検討する必要がある. そこで本研究では、電気抵抗率で金属の10 倍程度,固有保磁力 0.3 Oe 以下の(CoFeB)-(SiO<sub>2</sub>)系アモルファス高電気抵抗 膜をガラス基板上に試作した結果、ヒステリシス損失の低減に よって鉄損が Co 基超急冷極薄アモルファス薄帯<sup>®)</sup>と同程度ま で大幅に低減できることがわかったので報告する.

## 2. 実験方法

成膜は二元同時rfマグネトロンスパッタ法により, Co<sub>66.4</sub>Fe<sub>7.6</sub>B<sub>26</sub>ターゲット(純度99.9%, 直径100mm×厚さ5 mm)とSiO<sub>2</sub>ターゲット(純度99.99%, 直径100 mm×厚さ5 mm)を用いてAr雰囲気中で行った.SiO<sub>2</sub>の添加量は, Co<sub>66.4</sub>Fe<sub>7.4</sub>B<sub>26</sub>ターゲットへの投入電力を350W に固定し,SiO<sub>2</sub> ターゲットへの投入電力を変えながら調整した. 膜中のSiO<sub>2</sub> の体積比率SiO<sub>2</sub>vol.% は各ターゲットの成膜速度から概算し た.到達圧力は2.0×10<sup>-7</sup>Torr以下とし,成膜時のAr圧力は 3~9 mTorr, 基板 – ターゲット間距離は40~70 mm, 成 膜速度は65~120 Å/min, 試料の膜厚は1~2  $\mu$  mとした.

基板にはガラス(松波ガラス製 #7059,45mm×45mm× 1mm)を用い,成膜中はこれを130 r.p.m.以上で水冷回転した.

熱処理は、 $3 \times 10^{-6}$  Torr 以下の真空中で1 kOe の直流磁界 中で20分行った.静磁気特性はVSM,電気抵抗は四端子法,構 造解析は平行ビーム光学系を用いた薄膜X線回折 (XRD) によ りそれぞれ行った.鉄損測定は薄膜用高周波 BH アナライザー ((株)科学技術研究所製)を用いて最大磁束密度 $B_m = 0.1$  T, 周波数0.5 ~3 MHzの範囲で行った.ヒステリシス損失はVSM により求めた.

#### 3. 実験結果

#### 3.1 磁気特性と電気抵抗率

Fig.1は、As-dep.の膜について、異方性磁界 $H_k$ , 飽和磁化  $4\pi M_s$ , 電気抵抗率 $\rho$ , 磁化困難軸方向の保磁力 $H_{cb}$ および磁 化容易軸方向の保磁力 $H_{ce}$ の膜中のSiO<sub>2</sub>体積比率依存性を示



Fig. 1 Dependence of the anisotropy field  $H_k$ , the saturation magnetization  $4\pi M_s$ , the electrical resistivity  $\rho$ , the hard axis direction coercivity  $H_{ch}$  and the easy axis direction coercivity  $H_{ce}$  on the SiO<sub>2</sub> vol. %.

す. SiO<sub>2</sub>vol. % が0 では,  $H_{ch} = 0.2$  Oe,  $\rho = 70 \mu \Omega$  cm,  $4\pi M_s = 9.3$  kG を示し, Co,Fe の原子組成から予想される低 磁盃のアモルファス合金膜の軟磁性が得られている<sup>6)</sup>. SiO<sub>2</sub>vol. % が20 までの範囲では  $H_c$ は0.2 Oe でほぼ一定であり,  $\rho$ は 10<sup>3</sup>  $\mu \Omega$  cm まで単調に増加する. 一方,  $H_k$ はこの範囲におい て 30 Oe から 50 Oe を示し,基板回転方向を磁化困難軸とす る一軸異方性が観測される. SiO<sub>2</sub>vol. % が20 から 30 の範 囲では, $\rho$ は増加を続けて10<sup>4</sup>  $\mu \Omega$  cm 以上に達する一方,  $H_k$ が 急激に減少するとともに $H_c$ が増加して軟磁性が失われる. SiO<sub>2</sub> vol. % が 30 以上の範囲では,  $H_c$ は増加から減少に転じ, ナ ノ結晶グラニュラー膜と同様に常磁性成分が増えた場合と同じ 傾向を示す<sup>5)</sup>. また,  $\rho$ も減少するが,この傾向はこれまで報告 されている抵抗値増大の傾向<sup>5),7)</sup>とは異なっている. 原因は不 明であるが,SiO<sub>2</sub>vol. % の大きい範囲で $\rho$ ,  $4\pi M_s$ の値のば らつきが目立つことに関連していると考えられる.

以上のことから, SiO<sub>2</sub> vol. % が 20 付近で高抵抗軟磁性が 得られることがわかった.

#### 3.2 磁気特性と結晶構造

Fig.2 は上述した試料の典型的な M-H 曲線 A,B,C とそれら の膜の XRD パターンを示す. A,B,C に対応して SiO<sub>2</sub> vol. %が



Fig. 2 M-H curves and XRD patterns of the films corresponding to A, B and C.

20,23,35の膜をそれぞれ示した.XRDでは,低入射角 θ= 1 deg.で固定したまま回折角20の回折強度を測定しているた め,基板からの回折線を含まない回折パターンが得られている. A,B,Cの回折パターンは20=45 deg.付近に Co-Fe系アモ ルファス合金膜のハローパターンを示している.Co-Fe系徴結 晶,Co-O系微結晶などのピークも観察されないことから,お そらく複相構造からなるアモルファス高抵抗膜が実現されてい ると推察される<sup>n</sup>.詳しくは透過電子顕微鏡による微視的構造の

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999

検討を要する. A,B,Cに示した M-H曲線は, Fig.1 に示したよ うにSiO<sub>2</sub>の添加量によって顕著に変化している. X R Dパター ンからそれらの磁気特性を直接に説明することは困難であるが, この複相構造の変化に起因した磁気特性を示すものと推察され る.

A は高電気抵抗と軟磁性が得られる典型的な M-H曲線を示 し、これまで報告されている軟磁性複相アモルファスの構造<sup>の</sup>を 示しているものと考えられる.BのM-H曲線は,SiO<sub>2</sub> vol.%が 増加してH<sub>k</sub>が急激に減少する過程で見られるM-H曲線である.



Fig. 3 Dependence of the magnetic properties, electric resistivity, and XRD patterns on the annealing temperature  $T_a$  for CoFeB-SiO<sub>2</sub> films.

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999

この曲線は磁歪あるいは垂直磁気異方性がある場合の特徴を示 している.この膜では歪み取り熱処理の効果も顕著に見られない ことから、このような特徴は膜厚方向の複相構造に由来する微 視的な形状異方性に起因すると考えられる<sup>10)</sup>.SiO<sub>2</sub> vol.%が さらに大きい領域では、Cの*M*-H曲線のように曲線の傾きが減 少して保磁力も低下する.この傾向は、ナノ結晶グラニュラー 高電気抵抗膜の場合と同様に<sup>5)</sup>、非磁性アモルファス相による磁 気的相互作用の分断と常磁性成分の増加に起因するものと考え られる.

#### 3.3 磁気特性と電気抵抗の熱処理依存性

熱処理による磁気特性の改善の効果を調べるために, Fig. 3 は Fig. 2 A に示した高抵抗軟磁性膜の磁気特性および XRD パ ターンの熱処理依存性を示す.磁気特性および電気抵抗は熱処 理温度  $T_a$ が 300 °C 以下では変化しないことから,デバイス作製 プロセスにおいても熱的に十分安定であると考えられる. $T_a$ が 300 °C 以上の範囲では, $H_x$ および  $\rho$ が減少するとともに $H_c$ は急 増して軟磁性が失われる.この過程において, XRD パターンに はアモルファス構造を示すプロードピークのほかに, 2  $\theta$ が 21 deg.付近にピークが現れ,何らかの構造の変化があると考えら れる.しかし,このピークがCo-O, Si-O および B-O 系の微結 晶によるものかは明確ではなく,なお詳しい検討を要する.

以上の結果, 熱処理による*H<sub>k</sub>*の制御および軟磁気特性の改善 効果は認められなかった.

### 3.4 高周波磁気特性と鉄損

Fig. 2 A に示した高電気抵抗軟磁性膜の高周波 B-H曲線の 一例を Fig. 4 に示す.最大磁束密度 B<sub>m</sub> = 0.1 T,周波数 f = 1 MHz で磁化困難軸方向に磁界を印加して測定したものである.



Fig. 4 Example of a B-H curve of CoFeB-SiO<sub>2</sub> film in the high-frequency range.

この曲線は保磁力の低い直線的なレーリー曲線となっており, 大振幅磁界下においても異方性磁界を反映した一定の傾きをも つ.保磁力  $H_{mc}$ は 0.031 Oe で固有保磁力の 15 % を示してい る.パワー磁気デバイス用の薄膜磁心では,インダクタコイル の Q 値および銅損と関連して $\mu$ が大きいことが望ましい<sup>11)</sup>が, この膜の透磁率 $\mu$ は207と小さく, $H_k$ の低減による $\mu$ の改善が 今後の課題であると考えられる. $\mu$ は測定した周波数範囲内 (0.5 ~ 3 MHz) でほとんど一定であり,複素透磁率 $\mu$ " も $\mu$ " の 1/100 以下であった.

Fig. 5 は高周波 B-H曲線の面積から求めた一周期あたりの 鉄損  $W_c$ の周波数依存性を示す.図中には市販の高周波フェラ イト (TDK (株),PC40 相当),著者らがこれまで報告した Fe<sub>46</sub>Al<sub>21</sub>O<sub>33</sub>高電気抵抗膜<sup>50</sup>( $H_c$ =0.9 Oe  $\rho$  = 1700  $\mu$  Q cm, 膜 厚2.0  $\mu$  m),CoFeCrSiB 極薄アモルファス薄帯<sup>30</sup>( $H_c$ =0.02 Oe, $\rho$  = 120  $\mu$  Q cm,厚さ4.8  $\mu$  m)と比較してCoFeB-SiO<sub>2</sub> 膜の鉄損を黒丸印で表した.

CoFeB-SiO<sub>2</sub>膜( $H_{ch} = 0.2$  Oe,  $\rho = 2200 \mu \Omega$  cm, 厚さ 1.6  $\mu$  m)の鉄損は1 MHz で 0.96 J/m<sup>3</sup> を示し、フェライト よりも低く、CoFeCrSiB極薄薄帯に匹敵する低い損失を実現し ており、CoFeB-SiO<sub>2</sub>膜と同程度の厚みと $\rho$ をもつFe<sub>46</sub>Al<sub>21</sub>O<sub>33</sub> 膜の約1/7となっている、CoFeB-SiO<sub>2</sub>膜の鉄損がFe<sub>46</sub>Al<sub>21</sub>O<sub>33</sub> 膜の約1/7 に減少している主な理由は、両者のヒステリシス損 の大きな違いにあると考えられる. すなわち、 $B_m = 0.1$  Tに おけるヒステリシス損失の測定値は、前者では0.7 ~ 0.8 J/m<sup>3</sup> であるのに対し、後者では 4.9 ~ 6.0 J/m<sup>3</sup> であり、前者は後



Fig. 5 Frequency dependence of the core losses of the film and the other core materials.

者の7~8倍の値になっている.

他方、CoFeB-SiO<sub>2</sub>膜とCoFeCrSiB極薄薄帯を比較すると、 前者は後者に対して膜厚(板厚)が約1/3で、 $\rho$ が約10倍の値 をもっているため,非常に小さな渦電流損失が見込まれるが,本 研究で得られた両者の鉄損値はほぼ等しくなっている.この理 由は,後者のH<sub>c</sub>が前者に比べて一桁以上小さく,ヒステリシス 損失がCoFeB-SiO<sub>2</sub>膜の1.3~1.4% (0.01 J/m<sup>3</sup>以下<sup>8)</sup>)と 非常に小さいこと,また磁化機構の差異などによるものと考え られる.

これらの定量的な関係については, 膜のヒステリシス損失と 渦電流損失との正確な分離,磁化機構の検討などが必要であり, 今後の課題であると思われる.

#### 4. まとめ

ガラス基板上に(CoFeB)-(SiO<sub>2</sub>)系膜を二元同時rfマグネトロンスパッタ法で作製した結果,以下の知見を得た.

- 1) SiO<sub>2</sub>を混入することにより,高電気抵抗を有するアモ ルファス軟磁性膜を作製することができた.SiO<sub>2</sub> vol.%が 20において $\rho$ =2200  $\mu$  Ω cm,  $H_{ch}$ =0.20 Oe,  $H_{k}$ =40 Oe,  $4 \pi M_{s}$ =7.3 kG の特性が得られた.
- 2) 上記高抵抗軟磁性膜において、 $B_m = 0.1$  T, f = 1 MHz,  $\mu = 200$  で鉄損値 0.96 J/m<sup>3</sup>を得,ヒステリシス損失の 大幅な低減によって Co 基極薄超急冷アモルファス軟磁性 薄帯に匹敵する低損失膜が得られることがわかった.

謝辞 高周波 B-H曲線および鉄損の測定に多大の御協力をいた だいた(株)仙台技術研究所 荒井,長谷川 両氏に深く感謝の意を 表します。

#### 文献

- T.Sato,H.Tomita,A.Sawabe,T.Inoue,T.Mizoguchi, and M.Sahashi: IEEE Trans.Magn., 30,217 (1994).
- 2) T.Serada, K.Tsukamoto, and T.Yachi: IPEC., 417, (1955).
- 3)山沢清人,駒井栄一,早川康男,畑内隆史,牧野彰宏:日本 応用磁気学会誌,21,677 (1997).
- 4) 富田宏, 溝口徹彦: 日本応用磁気学会誌, 22, 437 (1998).
- 5) 宗像 誠,山岡 雅則,八木 正昭,島田 寬:日本応用磁気学会 誌,22,669 (1998).
- 宗像 誠,山岡 雅則,八木 正昭,島田 寛:電気学会マグネティックス研究会資料,MAG-98-17,25 (1998).
- 7) H.Matsuyama, H.Eguchi, and H.Karamon: J.Appl.Phys. 67,5123 (1990).
- 8) M.Yagi and T.Sawa: IEEE Trans.Magn., 26,1409 (1990).
- 9) R.Handley and C.Chou : J.Appl.Phys. 49, 1659 (1978).
- 10)加藤和照,武野幸雄,北上修,島田寛:日本応用磁気学会誌, 21,1088 (1997).
- 11) 菅原英州,矢野健,大槻悦男,白川究,増本健:マグネティッ クス研究会資料,MAG-98-252,77 (1998).

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999