日本応用磁気学会誌 23, 1445-1448 (1999)

磁場中熱処理による薄膜MI素子の特性改善

Improvement in the Properties of a Layered Thin Film Magneto-Impedance Element by Annealing under a Magnetic Field

山寺秀哉・森川健志・西部祐司・太田則一・野々村裕 (株)豊田中央研究所、愛知県長久手町(〒480-1192) H. Yamadera, T. Morikawa, Y. Nishibe, N. Ohta, and Y. Nonomura Toyota Central Research & Development Laboratories, Inc., *Nagakute-cho, Aichi, 480-1192* (1998年10月9日受理、1999年1月21日採録)

The temperature properties of layered thin film magnetoimpedance (MI) elements composed of FeCoSiB/Cu/FeCoSiB were investigated for use in a magnetic sensor that remains stable under temperature change. The properties of the layered thin film MI elements as deposited were changed by increasing the temperature or by establishing a temperature cycle of 25 °C-100 °C. When these MI elements were annealed under a magnetic field at the most suitable temperature, which was 150 °C lower than the curie tempaerature of the magnetic film, the change in the MI properties due to the temperature increase or the temperature cycle was decreased. In particular, the change in inductance due to the temperature increase was small when the Fe4Co74SisB14 zero magnetostriction magnetic film was used in the layered thin film MI element.

Key words : magneto-impedance effect (MI effect), magnetic field, soft magnetic, thin film, annealing, temperature property

1. はじめに

5年ほど前に、毛利らにより1MHz以上の高周波電流が通 電されたアモルファス磁性ワイヤにおいて、外部磁界によ りインピーダンスが鋭く変化する磁気-インピーダンス効 果(MI効果)が見い出された¹⁾。MI効果は新しい磁界原理 として注目され、この効果を利用することにより高分解能 な磁界センサの実現の期待され、論文・学会等でMI効果を 利用した磁界センサが報告されている^{2)~5)}。

我々も、MI効果を利用した積層型薄膜MI素子を提案 し、10 Oe程度の外部磁界に対して1~40 MHzでのインピー ダンス変化率が数100%になる高分解能な薄膜磁界センサ を実現した^{6)~9)}。一方、このセンサを応用(特に自動車用 途において)する上では、MI特性の温度依存性・耐熱性を 低減して素子を安定化する必要があるが、これまでに薄膜 MI素子の温度特性や安定性に関する報告例はみられない。

本論文は、MI効果を利用した高分解能な薄膜磁界センサ の応用を目的として、積層型薄膜MI素子の温度特性と磁場 中熱処理による特性改善の検討を述べたものである。

2. 実験方法

2.1. 素子の構造と作製

作製した積層型薄膜MI素子をFig.1に示す。導体層は低 抵抗であるCu、磁性層は負磁歪Co73Si12B15または零磁歪の Fe4Co74Si8B14とした。磁性層に2種類の組成を用いたの は、異方性磁界が小さく外部磁界に対する透磁率変化の高 いCo73Si12B15と、磁歪の影響を受けない零磁歪組成のFe 4 Co74Si8B14を比較するためである。外形寸法は、磁性膜幅 1mm、長さ1mm、導体膜幅0.1mmである。膜厚は、下部磁 性膜が2µm、導体膜が3µm、上部磁性膜が2µmである。 磁性膜には素子幅方向が容易磁化方向となるように、一軸 磁気異方性を付与している。素子はRFマグネトロンスパッ タ法によりコーニング7059ガラス基板上に、磁性膜、導体 膜、磁性膜の順に成膜することにより作製した。素子のパ ターン形成にはメタルマスクを用いた。また、磁性膜に一 軸磁気異方性を付与するために、磁界中成膜を行った。磁 界は基板両端に磁石を配置することにより、膜面の素子幅 方向と平行に105 Oe加えた。

2.2. 磁場中熱処理

積層型薄膜MI素子の特性改善のための手法として、磁場 中熱処理を実施した。薄膜MI素子の特性改善のためには、 外部磁界に対する磁性膜の幅方向の高周波透磁率を温度に 対して安定化させることが重要であるが、これには、素子 の磁化容易軸方向に適当な磁場中熱処理を施して、一軸磁 気異方性と磁区構造の安定化を行うことにより改善できる と考えた。磁場中熱処理条件を、Table 1に示す。



Fig. 1 Layered thin film Magneto-Impedance element.

 Table 1
 Annealing conditions under a magnetic field.

| Magnetic film | C073Si12B15 | Fe4C074Si8B14 | | | |
|----------------|----------------------------|----------------------------|--|--|--|
| Temperature | 217°C, 263°C, 282°C, 317°C | 230°C, 280°C, 330°C, 380°C | | | |
| Magnetic field | 1 kOe | 2 kOe | | | |
| Atmosphere | Не | Ar | | | |
| Time | 30 min | 30 min | | | |

1445

2.3. 評価方法

薄膜MI素子の温度特性の評価は、恒温槽内に素子をセッ トし、25℃,50℃,75℃,100℃でのMI特性(外部磁界:H extに 対するインピーダンス:Z、インダクタンス:L、抵抗: R)をインピーダンスアナライザーで測定することにより評 価した。素子の駆動条件は、周波数:1 MHz、駆動電流: 9.5 mAp-pで、外部磁界:Hextは、0~50 Oeである。また、 磁性膜のキュリー温度は、同一組成の磁性単層膜のM-H特 性の温度依存性をVSMにより測定することにより求めた。

3. 実験結果

3.1. MI特性の温度依存性

Fig. 2に、FeCoSiB/Cu/FeCoSiB素子のMI特性の温度依存性 を示す。まず(a)のL-Hext特性に注目する。素子温度を上昇さ せていくと、特性の変化が2点見られる。第1点は、Lのピー ク値:Lpeakが減少すること、第2点はピークを示す磁界: Hpeakが減少することである。これらの温度依存性に見られ る上記2点の特徴の原因を推測すると、測定中は素子温度を 上昇させた状態で磁性膜の困難磁化方向に磁界を印加した 状態であるため、困難磁化方向に弱い磁場中熱処理効果が 現れたためと思われる。また、Hext=0 OeのLの変化率は非 常に小さく、その値は1%にも満たない。次に、(b)のR-Hext特性に注目する。こちらもL特性と同様に、素子温度の 上昇に伴ってRのピーク値:R peakとH peakが減少する。Lの場 合と異なる点は、抵抗分の大部分をしめるCuの抵抗が正の 抵抗温度係数をもつため、Hext=0 OeあるいはHext>20 Oeの 場合でもR値は一致せず、高温になるほどR値が高くなるこ とである。

Fig. 3に、Fig. 2の温度特性を測定した後に再び25℃で測定 した素子特性を示す。この場合も、温度特性の測定後に出 力特性が劣化する。この温度サイクルによる素子特性の劣 化は、温度特性測定中(測定時間は約2時間)に素子に加 えられた温度と、素子の長さ方向に加えられた0~50 Oeの 外部磁界:Hextにより素子の磁性層の異方性分散が大きくな



Fig. 2 Dependence of MI properties on the temperature of FeCoSiB/Cu/FeCoSiB elements.



of FeCoSiB/Cu/FeCoSiB elements.

ったためと考えられる。一方、(b)のR-H ext特性において も、同様に特性が劣化している。

CoSiB/Cu/CoSiB素子でも同様の測定を行い、結果を Table 2とTable 3にまとめた。Table 2は、温度を25℃から 100℃まで上昇させたときの特性変化率であり、Table 3は その後再び25℃で測定した特性変化率である。まずTable 2025℃から100℃における変化率を見る。FeCoSiBと CoSiBを比較すると、Rの変化率には大きな差が見られな いが、Lの変化率に注目すると、FeCoSiBの方がLの変化 率が小さく、CoSiBの1/2程度の値となっている。この理 由としては、FeCoSiBが零磁歪組成の膜であることから、 基板と膜の熱膨張係数差に起因する磁歪による高周波透 磁率の変化の影響を受けにくいためと考えられる。次 に、Table 3の温度サイクルによる影響をみる。FeCoSiBと CoSiBを比較すると、Lの変化率に関しては大きな差が見 られない。またRの変化率を見ると、傾向が異なるが優劣 の判断が付かない。

以上のことから、MI特性の温度依存性を低減するため は、磁歪の影響の少ないFe 4Co74Si8B14膜を使用し、イン ダクタンスを検出するのがよいことがわかった。

3.2. 磁場中熱処理によるMI特性の変化

Fig. 4~7に、FeCoSiB/Cu/FeCoSiBを磁界中熱処理した 素子のMI特性を示す。まずFig. 4の 230℃処理の素子特性 を見ると、L、Rともに熱処理前の素子と同様な特性を示 す。Lはヒステリシスのない特性でHext=20 Oe付近で最大 値を示す。またRはヒステリシスが大きく、且つ外部磁界 に対する変化の小さい特性である。一方、Fig. 5の280℃ 処理の素子特性を見ると、熱処理による改善効果が見ら れる。Lはヒステリシスがなく、かつピーク磁界付近で急 峻な変化を示す特性となり、磁界感度が大きい。また Rは ヒステリシスがなく、かつ外部磁界に対する変化率の大 きな特性となる。磁場中熱処理の温度によって、R特性の ヒステリシスがなくなり磁界感度が大きく改善されると いう結果は興味深いが、この現象の正確な原因は明らか でない。さらに熱処理温度を高くしたFig. 6の 330℃処理 の素子特性を見ると、素子特性は劣化し始める。 Hext=0の 時のLが大きくなり、かつその変化率が小さくなる。ま た、それ以下の熱処理温度では見られなかった L特性のヒ ステリシスが現れる。また、Rに関しても同様に変化率が 減少し、Rのピークが観測されなくなる。さらに高温で熱 処理を行ったFig.7の380℃処理の場合には、完全にMI特

Table 2. Changes in MI properties caused by a temperature change from 25 $^{\circ}$ C to 100 $^{\circ}$ C.

| | Inducta | ince cha | nge(%) | Resistance change(%) | | | |
|--------------------|---------------|----------|---------------|----------------------|-------|---------------|--|
| Device | Peak value | Hpeak | Zero point | Peak value | Hpeak | Zero point | |
| CoSiB/Cu/CoSiB | -26 | -17 | 0 | -18 | -10 | +21 | |
| FeCoSiB/Cu/FeCoSiB | -11 | -10 | 0 | -21 | -10 | +20 | |

Table 3. Changes in MI properties caused by a temperature cycle between $25 \degree$ C and $100\degree$ C.

| | Inductance | change(%) | Resistance change(%) | | |
|--------------------|------------|-----------|----------------------|-------|--|
| Device | Peak value | Hpeak | Peak value | Hpeak | |
| CoSiB/Cu/CoSiB | -10 | -12 | -10 | -17 | |
| FeCoSiB/Cu/FeCoSiB | -8 | -9 | -22 | -10 | |

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999



性が消失し、外部磁界による L及びRの変化は全く見られ なくなる。これは、アモルファス層と比較して保磁力の大 きな強磁性微結晶である fcc-Coの析出によるものであるこ とが、TEM観察からわかっている。

これらの結果を、外部磁界による L、Rの変化幅(絶対 値)としてFig. 8のグラフにまとめた。Fig. 4~7でみてき たように、熱処理によるL-Hext曲線形状の変化は顕著であ るが、このFig.8の整理方法では、Lの変化幅そのものには 大きな違いが見られない。一方 R変化をみると、顕著な熱 処理効果があることがわかる。 280℃まで熱処理温度を上 げていくとR変化幅は増加していき、330℃以上ではR変化 幅が急激に減少する。280℃熱処理においてはL変化幅及び Rの変化幅も最大となることから、最適な熱処理温度は 28 0℃であると判断できる。一方、別の単層膜で測定した FeCoSiB 膜のキュリー温度は 430℃であった。素子の最適 熱処理温度:280℃と膜のキュリー温度との差は 150℃であ る。この温度差の値は CoSiB素子(最適熱処理温度:217 ℃、キュリー温度:370℃)でも同様であった。

磁場中熱処理素子の温度特性 3.3.

磁場中熱処理により素子出力特性を安定化させた素子の 温度特性を測定した。測定には、280℃で熱処理したFig.5



Fig. 8 Effect of annealing on FeCoSiB/Cu/FeCoSiB elements.



Fig. 9 Dependence of MI properties on the temperature of an FeCoSiB/Cu/FeCoSiB element before annealing.

Impedance : $Z(\Omega)$

Fig. 10 Dependence of MI properties on the temperature of an FeCoSiB/Cu/FeCoSiB element after annealing at 280 °C.

| | Inductance : L (%) | | | Resistance : R (%) | | | Impedance : Z (%) | | | Peak magnetic |
|------------------|--------------------|----------------------|-------------|--------------------|----------------------|-------------|-------------------|----------------------|-------------|----------------|
| | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | field : Hp (%) |
| After annealing | 0 | 6 | 7 | 12 | -9 | -14 | 13 | -2 | 78 | -7 |
| Before annealing | 25 | 10 | -27 | 15 | 11 | -96 | 14 | -4 | -52 | -13 |

Table 4 Changes in the MI properties of an FeCoSiB/Cu/FeCoSiB element caused by a temperature change from 25 °C to 100°C.

Table 5 Changes in the MI properties of an FeCoSiB/Cu/FeCoSiB element caused by a temperature cycle between 25 $^{\circ}$ C and 100 $^{\circ}$ C.

| | Inductance : L (%) | | | Resistance : R (%) | | | Impedance : Z (%) | | | Peak magnetic |
|------------------|--------------------|----------------------|-------------|--------------------|----------------------|-------------|-------------------|----------------------|-------------|----------------|
| | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | Zero point | Full-scale signal | Sensitivity | field : Hp (%) |
| After annealing | -8 | 1 | -6 | -3 | 3 | 34 | -3 | 11 | -49 | -4 |
| Before annealing | -25 | -3 | -55 | 1 | 77 | † | -1 | -11 | -87 | -6 |

† : Sign of sensitivity reversed.

果は顕著である。この結果から、磁場中熱処理により異方 性分散を低減して一軸磁気異方性を安定化させることによ り、素子の耐熱性も向上できることが明らかとなった。

4. まとめ

積層型薄膜MI素子の温度特性の評価と磁場中熱処理によ る特性改善の検討を実施した。その結果をまとめると、以 下の通りである。

(1) 未熱処理の積層型薄膜MI素子は、温度や温度サイクル によってMI特性が変動する。ただし、温度によるインダク タンス成分の変化率は、磁性膜に零磁歪のFe 4Co74Si8B14を 使用した方が低減できる。

(2)素子を磁性膜のキュリー温度よりも150℃低い最適な熱 処理温度で磁場中熱処理すると、MI特性は向上する。特 に、外部磁界による抵抗分の変化率が増大する。

(3) 最適温度で磁場中熱処理した素子は、温度や温度サイ

クルによるMI特性の変動を低減できる。特に、温度による インダクタンス成分の変化率が小さくなる。

(4)(1)~(3)の結果から、積層型薄膜MI素子のMI特性の温度 特性・耐熱性を向上させるためには、零磁歪組成の軟磁性 膜を使用し、インダクタンス検出をするのが有効である。

文 献

- 1) 川島克裕、光沢隆、吉田史、毛利佳年雄、パニナ・ラリサ: 日本応用磁気学会誌, 17,423 (1993)
- 2) Y.Yoshida, T.Uchiyama, K.Mohri and S.Ohga : IEEE Trans. Magnetics, **29**, 3177 (1993)
- 3) 千田正勝、武井弘次、石井修、越本泰弘、戸島知之: 日本応用磁気学会誌, 19,465 (1995)
- 4) 比嘉孝治、内山剛、沈麗萍、毛利佳年雄、宇ノ木保元、 菊池和政:日本応用磁気学会誌, 21, 649 (1997)
- 5) 竹澤昌晃、中川英之、菊池弘明、我妻成人、石山和志、 山口正洋、荒井賢一:日本応用磁気学会誌, 21,661 (1997)
- 6) 森川健志、西部祐司、山寺秀哉、野々村裕、竹内正治、 多賀康訓:日本応用磁気学会誌,20,553 (1996)
- T.Morikawa, Y.Nishibe, H.Yamadera, J.Sakata, Y.Nonomura, M.Takeuchi and Y.Taga: IEEE Trans. Magnetics, 32, 3177 (1996)
- 8) T.Morikawa, Y.Nishibe, H.Yamadera, Y.Nonomura, M.Takeuchi and Y.Taga: IEEE Trans. Magnetics, 33, 4367 (1997)
- 山寺秀哉、西部祐司、森川健志、野々村裕: 電気学会論文誌A, 118-A, 689 (1998)

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999

は、データを見やすくするために25℃と100℃での測定結 果のみを示した。また、比較のためにFig. 9に未熱処理素 子の温度特性の測定結果を示し、Table 4にこれらの2つの 出力特性図から読みとった零磁界出力・変化幅(フルスケ ール(FS)出力)と磁界感度の25℃から100℃の温度変化に よる変化率をまとめた。まず、Fig. 10の280℃処理素子の 温度特性を見ると、温度による特性変動が少ないのはLで ある。零磁界出力値の変化率は0%であり、FS出力の変化 率が6%、感度の変化率が7%といずれも小さい。また、 Lピークを越えた磁界領域での温度変動は特に小さい。一 方、Rの零磁界出力はCu層の抵抗温度特性の影響を受ける ため12%上昇し、FS出力の変化率は-9%、感度の変化率 は-14%である。インピーダンス:Zに関しては、零磁界 付近ではRが支配的となるので、この影響を受け零磁界出 力の変化率は13%である。FS出力と磁界感度に関しては、 ピーク付近ではLとR双方の影響を受け挙動が複雑になる が、FS出力は-2%、磁界感度は13%の変化率である。ピ ーク磁界はL、R、Zの全てにおいて変動し、その変化率は いずれも-7%である。

の素子を用いた。測定結果を、Fig. 10に示す。この図で

上記の結果を、Fig.9の未熱処理素子とTable 4で比較す る。熱処理による温度特性の改善効果は大きく、ほとんど の項目において、280℃熱処理素子は未熱処理素子の温度 特性を上回っている。未熱処理素子ではLも温度により大 きく変動し、FS出力の温度変化率は10%、零磁界出力の温 度変化率は25%である。またピーク磁界の変化率は-13% であり、熱処理素子の約2倍である。また、R及びZの特性 プロファイルは、温度を100℃まで上昇させることにより 大きく変化し、ピークが2つあったものが1つに縮退してし まっている。

以上の結果から、280℃での磁場中熱処理により積層型 薄膜MI素子の出力特性の温度特性を低減できることが明ら かとなった。その中でも、温度による特性変化率が最も小 さいL-Hext特性を磁界センサとして用いるのが有効である ことも明らかにできた。

一方、磁場中熱処理には素子の耐熱性向上にも大きな効 果が見られる。Table 5で、温度特性の測定前後での特性変 化率を比較した。この結果を見ると、特にL、Rにおいて2 80℃処理素子の出力特性の変化率の低減効果が大きいこと がわかる。特にRのFS出力は、磁場中熱処理による改善効