

スリットパターン化した CoFe 系高飽和磁化膜の磁気特性と異方性磁界制御

Magnetic Properties and Anisotropy Field of Slit-Patterned CoFe Films
with High Saturation Magnetization

荒木 和幸・宗像 誠・並河 雅志・八木 正昭・島田 寛*

崇城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)

*東北大学多元物質科学研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

K. Araqui, M. Munakata, M. Namikawa, M. Yagi, and Y. Shimada*

Energy Electronics Laboratory, Sojo Univ., 4-22-1 Ikeda, Kumamoto 860-0082

* Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

In order to obtain magnetic thin film cores for MMIC (Monolithic Micro-wave Integrated Circuit) inductor, slit patterned CoFe thin films with high saturation magnetization more than 23 kG was fabricated on glass substrate. Annealing effects on the magnetic properties of the film were investigated. The anisotropy field H_k more than 200 Oe was induced together with soft magnetic properties corresponding to GHz-frequency driving. For the much higher driving frequency range of GHz, the H_k is found to be controllable, according mainly to demagnetizing field estimated from geometries of the slit patterned film with the higher saturation magnetization.

Key words: magnetic thin film, high saturation magnetization, demagnetizing field, slit patterned films,

1. はじめに

無線LANやBluetoothに代表される高速、大容量通信機器は、現在1~3 GHzで動作している。さらにこの動作周波数は次世代のGHz帯集積回路の開発に向けて3~6 GHzに高周波化されつつある^{1), 2)}。

一方、集積回路に用いる空芯インダクタの小型化が急務の課題となっている。この課題解決法の一つとして、薄膜磁心を適用して磁束を収束させることにより低面積化する方法が提案され、これまでに薄膜磁心材料およびインダクタデバイスの試作開発が行われている³⁾⁻⁵⁾。

しかし、従来の磁心膜の場合、次世代の動作周波数では共鳴損失が大幅に増加するため、その適用はほとんど困難である。この問題克服のためには、(1)式に示すように磁心膜の飽和磁化 $4\pi M_s$ および異方性磁界 H_k を共に大きくすることによって、共鳴周波数

$$f_r = \gamma \times (M_s H_k / \pi)^{1/2} \quad (1)$$

を大幅に引き上げ、共鳴損失を低減する必要がある。ここで、 γ はジャイロ磁気定数である。

23 kG以上の高飽和磁化を示すbcc-CoFe合金膜は、高周波化および高透磁率が要求される磁気ヘッドや磁心への実用が期待され、低保磁力化や異方性磁界の制御のための研究が多く行われている⁶⁾⁻⁷⁾。特に次世代のGHz帯高周波磁心については、200 Oe以上の異方性磁界を付与できれば高飽和磁化を生かした低共鳴損失化と高透磁率が可能であると見込まれるが⁸⁾、これまでの報告では

100 Oe程度の異方性磁界しか得られていない。

本研究では、bcc-CoFe合金膜にスリット加工を施し、高飽和磁化を反映させた大きな反磁界を誘導することにより、200 Oe以上の異方性磁界を得ることを試みた⁹⁾。その結果、次世代のGHz磁心創出の端緒となる異方性磁界制御の可能性を見出したので報告する。

2. 実験方法

製膜は、二元同時RFマグネトロンスパッタ法¹⁰⁾により、Coターゲット(純度 99.99 at. %, 直径 100 mm × 5 mm)、Feターゲット(純度 99.99 at. %, 直径 100 mm × 5 mm)を用いてAr雰囲気中で行った。この製膜法では、円筒型電極の側面に基板が配置され、円筒の中心軸を回転軸として基板が電極とともに回転する。上記の二種類のターゲットはこの円筒電極の側面に対抗した配置をとり、各ターゲットからのスパッタ原子が円筒電極の高速回転によって基板上に混合しながら堆積される。円筒電極は原子一層分堆積する間に4回転(140 r.p.m.)以上回転させた。膜の原子組成比は各ターゲットへの投入電力の比率を変化させて調整し、エネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いて分析した。製膜前の到達真空度は 9×10^{-8} Torr以下とし、製膜時のAr圧力を3 mTorr、膜厚を $0.5 \mu\text{m}$ とした。基板にはガラス(松波ガラス製 #7059, 45 mm × 45 mm × 1 mm)を用い、製膜中は水冷した。製膜後は、 3×10^{-6} Torr以下の真空中で800 Oeの直流磁界を印加しながら、200~500 °Cで回転磁界中または一方向磁界中で80分間熱処理した。一方向磁界中熱処理については容易磁化軸方向に磁界を印加した。

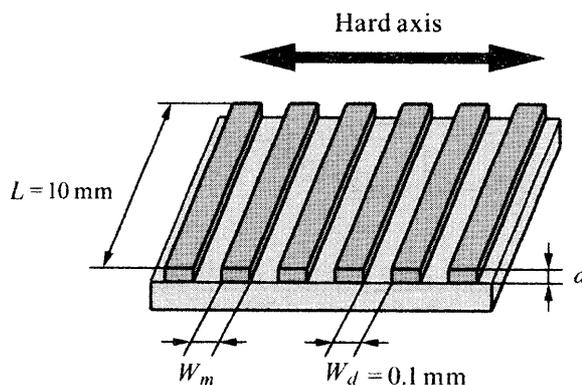


Fig.1 A schematic view of the slit patterned CoFe films.

膜のスリット加工にはダイシングソー (Disco 社製, DAD 321) を用い, Fig. 1に示すようにスリットの長さ L を 10 mm, スリット幅 W_d を 0.1 mm にそれぞれ固定し, スリットの間隔を調整して磁性膜の幅 $W_m = 1 \sim 0.075$ mm とし, $L \times W_m$ の短冊形状膜を作製した. また, 葉巻型回転楕円体近似で求められる反磁界より H_k を計算し, 測定により得られた H_k と比較した.

3. 実験結果

3.1 飽和磁化と Fe 原子組成

Fig. 2は, As-dep.状態, 熱処理温度 $T_a = 400$ °C の熱処理後における膜および代表的なバルク状態の試料における $4\pi M_s$ と Fe 原子組成比 X との関係を示す. 両者の膜では $X = 80 \sim 82$ at.% において約 23 kG 以上の高飽和磁化が観測され, 熱処理後においてもその値にほとんど変化が見られないことがわかる. このことは, As-dep. 状態で高飽和磁化の CoFe 単相が生成されており, 少なくとも $T_a = 400$ °C まではその状態が保たれていると考えられる. バルク状態では, $X = 65$ at.% で最大値 $4\pi M_s = 24.5$ kG を示し, $X = 85$ at.% において $4\pi M_s = 23$ kG となるまでだだらかに減少する結果が報告されている. また, これまでに報告された CoFe 系のスパッタ膜についても, $X = 66 \sim 72$ at.% において $4\pi M_s = 24.0 \sim 24.5$ kG が報告されているが^{11), 12)}, この結果においては得られていない.

3.2 保磁力, 異方性磁界の熱処理依存性

3.2.1 回転磁界中熱処理効果

スリット加工前の As-dep. 状態の膜に回転磁界中熱処理を施し, その効果について調べた. Fig. 3 (a), (b) は, 異方性磁界 H_k , 困難磁化軸および容易磁化軸方向の保磁力 H_{ch} , H_{ce} の熱処理温度 T_a 依存性をそれぞれ示す. As-dep. 状態において $H_k = 100$ Oe の顕著な一軸磁気異方性が基板の移動方向に対して垂直に観測され, 保磁力については $H_{ch} = 15$ Oe, $H_{ce} = 30$ Oe が得られている. H_k については Fig. 3(a) の太線に示すように, 同じ製膜条件下においても試料ごとにばらつきを示すが, その容易磁化軸方向はスパッタ装置の回転円筒アノードの回転方向と常に一致している.

H_k は T_a の増加に伴って単調に減少し, $T_a = 350$ °C 以上ではほとんど消失して等方性を示すことが観測される. これに対応して, H_{ch} および H_{ce} は As-dep. 状態から減少し,

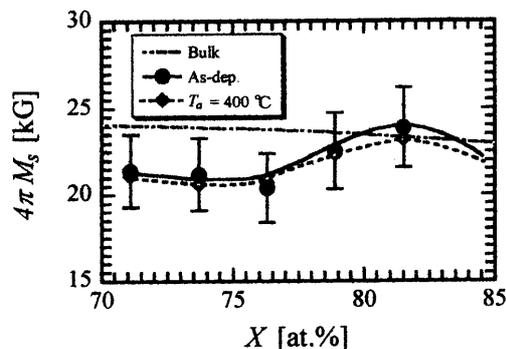


Fig. 2 Fe at.% (X) dependence of saturation magnetization for the films in as-deposited state and after annealing at 400°C.

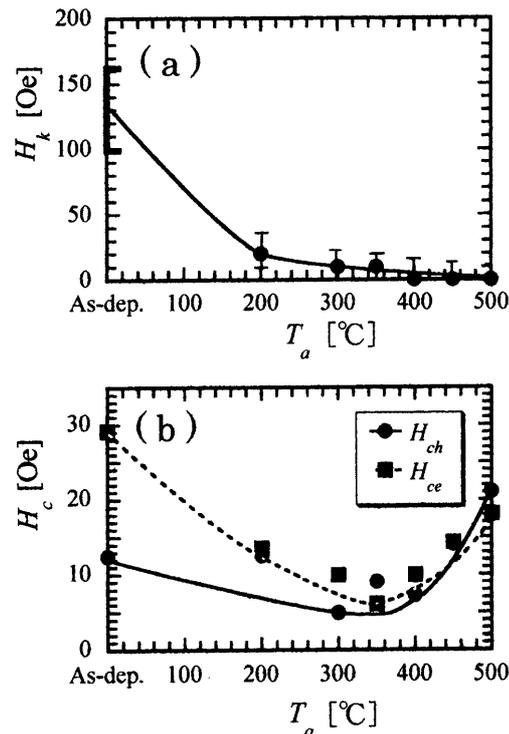


Fig. 3 Annealing temperature dependence of (a) H_k , (b) H_{ch} , and H_{ce} with rotating-field annealing.

$T_a = 350 \sim 400$ °C で 10 Oe 以下の最小値をとる.

このことから, 10 Oe 以下までの低保磁力化と磁気特性の等方化が, $T_a = 350 \sim 400$ °C の範囲で可能であることがわかる.

3.2.2 一方向磁界中熱処理効果

Fig. 4 (a), (b) は, スリット加工前の膜に一方向磁界中熱処理を行ったときの H_k および H_{ch} , H_{ce} の T_a 依存性をそれぞれ示す. H_k は Fig. 3(a) と同様に $T_a = 200$ °C までは単調に減少してほとんど等方的な値を示すが, $T_a = 200$ °C 以上では増加に転じ, $T_a = 450$ °C 付近では数 10 Oe 程度まで増加する. $T_a = 200$ °C の H_k の減少は, 熱処理中の印加磁界の有無に依存しないことから, 磁界による誘導磁気異方性ではなく, 歪み, 内部応力などの緩和に起因すると考えられる. 一方, $T_a = 200$ °C 以上の H_k の増加は, Fig. 3(a) に示した回転磁界中熱処理の場合には減少していることから, 磁界による誘導磁気異方性であると考えられる. $T_a = 350 \sim 400$ °C では 10 Oe 以下の低い H_{ch} が得られている.

以上の結果, $T_a = 300 \sim 400$ °C の範囲で H_{ch} を 10 Oe 以下に保ちながら H_k を 20 ~ 60 Oe の範囲で誘導できることがわかった.

3.3 結晶構造

Fig. 5 は As-dep. 状態, $T_a = 350$ °C および $T_a = 400$ °C の膜の XRD パターンをそれぞれ示す. とともに高飽和磁化を示す bcc-CoFe 単相のピークが観測され, これらはこれまでに報告されている XRD パターンとよく一致している¹⁰⁾. Fig. 2 に示したように熱処理後も飽和磁化が一定であることに加え, ピーク位置やピーク強度比に変化がないことから, bcc-CoFe 単相は As-dep. 状態から形成され, 熱処

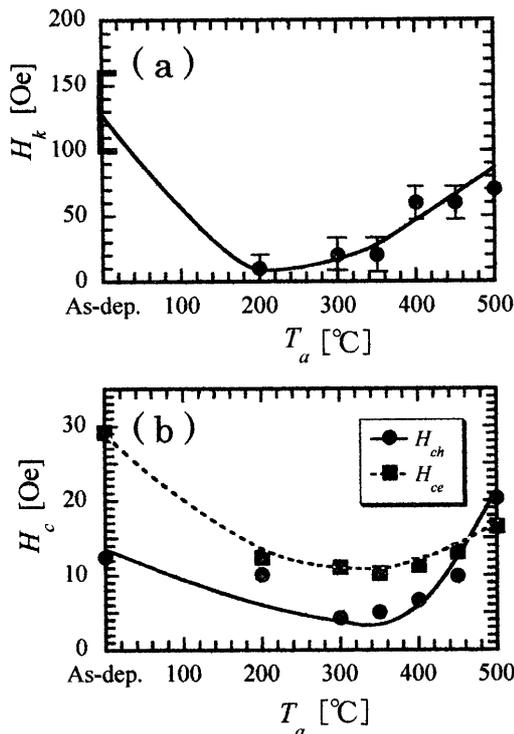


Fig. 4 Annealing temperature dependence of (a) H_k , (b) H_{ch} , and H_{ce} with static field annealing.

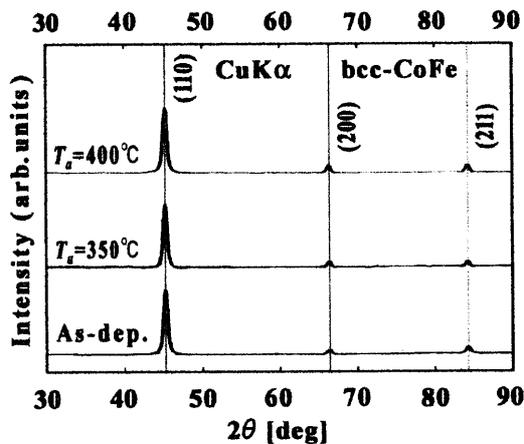


Fig.5 Annealing temperature dependence of XRD patterns of the film.

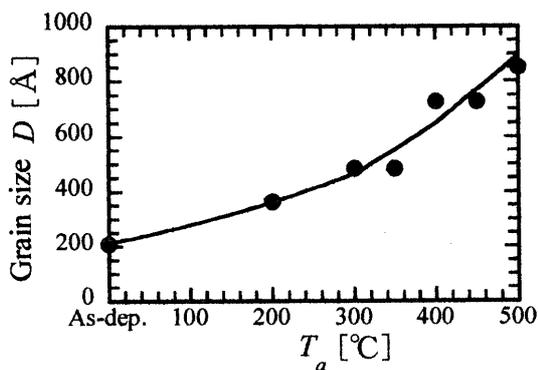


Fig. 6 Annealing temperature dependence of grain size.

理後においても同じ構造が保たれていると考えられる。また、これらのパターンの(110)ピークのロックング曲線測定の結果、特殊な配向はなく、ほとんど無配向で T_a に依存しないことが確認されている。

一方、ピークの半値幅は T_a に依存し、 T_a の増加に対して減少している。Fig.6 はScherrerの式¹³⁾ を用いてピーク半値幅から結晶子の大きさ D を求めたものである。 D は As-dep.状態から $T_a = 500$ °Cの範囲で、200 Åから700 Åまで単調に増加している。 $T_a = 400$ °C以上における H_{ch} および H_{ce} の増加は、 D の増加によると推察される¹⁵⁾。

3.4 スリット加工膜の異方性磁界

Fig. 2において飽和磁化が最大となる $X = 79.6$ at.%の膜にスリット加工を施し、保磁力の減少と誘導磁気異方性の付与をするため $T_a = 400$ °Cで熱処理を行った。Fig. 7は、スリット加工した膜(短冊形状膜)の H_k と寸法比 L/W_m ($L = 10$ mm:固定)との関係を、回転磁界中熱処理のみを行った場合(●)および回転磁界中熱処理の後、一方向性磁界中熱処理を行った場合(■および□)について示す。

$W_m = 0.5 \sim 1$ mm ($L/W_m = 20 \sim 10$)の範囲では、回転磁界中熱処理のみの場合は $H_k = 0$ Oe, さらに一方向性磁界中熱処理を行った場合は $H_k = 10 \sim 20$ Oeがそれぞれ観測される。この範囲では形状異方性による反磁界は小さいので、一方向性磁界により誘起された異方性磁界が出現していると考えられる。 $W_m = 0.10$ mm以下($L/W_m = 100$ 以上)では反磁界による H_k が誘導され、 $W_m = 0.08$ mm($L/W_m = 133$)で $H_k = 220 \sim 250$ Oeを示す。一方向性磁界中熱処理を行った場合の H_k は、回転磁界中熱処理のみの H_k に比べ、磁界により誘導された分だけ重畳的に大きくなっていると考えられる。

また、 W_m を円筒部の直径とした葉巻型回転楕円体近似から計算した値(図中実線)と比較したところ、その変化の傾向すなわち反磁界による H_k の増加傾向はほぼ一致している。計算値との差は、近似に用いた葉巻型円筒の直径 (W_m) が膜厚と大きく異なるためであり、より正確には有限要素法などの磁界解析¹⁷⁾が必要である。

以上の結果は、スリット加工膜の高飽和磁化に対応して大きな反磁界¹⁵⁾ が誘導されたことを示すと考えられる。

一例として、Fig. 8 に $H_k = 250$ Oeの膜(Fig.7の(□)の点)の $M-H$ 曲線を示す。明瞭な一軸磁気異方性が、スリット加工膜の長手方向が容易磁化軸と一致するように誘導されていることがわかる。また H_{ch} , H_{ce} については、熱処理

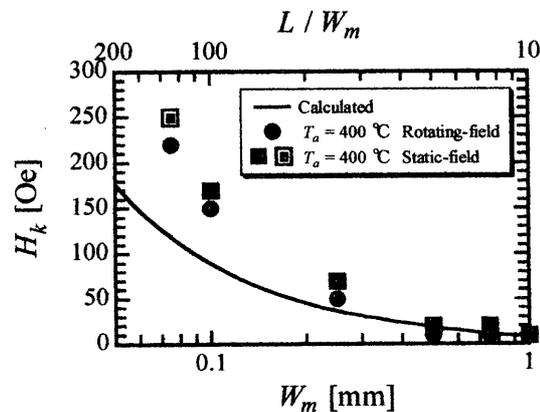


Fig.7 W_m and rectangle ratio dependence of anisotropy field.

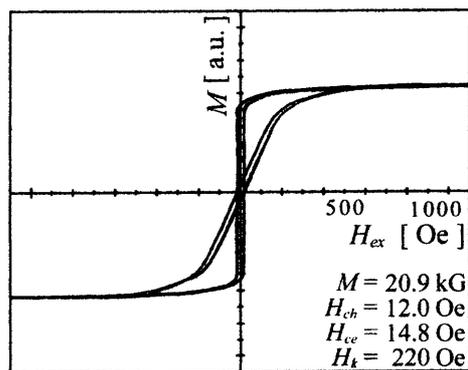


Fig. 8 M - H curve of slit patterned CoFe films after static field annealing.

によって10 Oe程度の値が得られており、高周波においては十分に磁心特性を示し得る低い保磁力が得られている¹⁶⁾。

以上に示した H_k は、 M - H 曲線より求められた試料全体の平均的な値であるが、実際の高周波特性においては初磁化範囲の微視的な H_k の効果がより支配的であり、微視的な H_k の分散や磁区構造などの影響があることが知られている^{17),18)}。10 GHz程度の共鳴周波数を得るには400~500 Oeの H_k が必要であると試算される⁹⁾が、実際に得られた H_k よりさらに大きな値を得るには、磁区構造と高周波透磁率との関連も詳しく検討する必要がある。

4. まとめ

回転円筒型二元同時マグネトロンスパッタ法により高飽和磁化のCo-Fe膜を作製し、その磁気特性を調べた結果、以下の知見が得られた。

- 1) Fe原子組成比 80~82 at. %において、23 kG以上の高飽和磁化を有するbcc-CoFe単相の結晶質膜が得られた。この膜の結晶子の大きさは約600 Åであり、ほとんど無配向であった。
- 2) 膜の保磁力および異方性磁界の熱処理効果を調べた結果、最適熱処理温度350~400 °Cを見出した。これによって回転磁界中においては10 Oe以下の保磁力で等方性磁化膜が得られ、一方向磁界中では10 Oe以下の保磁力と20~数十 Oeの異方性磁界が誘導されることがわかった。
- 3) 形状比133 ($L/W_m = 10 \text{ mm} / 0.075 \text{ mm}$)のスリット加工膜において、250 Oeの異方性磁界が誘導され、高飽和磁化によるより大きな反磁界がより大きな異方性磁界を得るために有効であることがわかった。

これらの結果は、高飽和磁化膜を用いれば、現状のスリット加工精度の範囲内で、さらに大きな異方性磁界(400~500 Oe)が得られる可能性を示すものであり、10

GHz程度の共鳴周波数を得るための有効性を示唆していると考えられる。

謝辞 製膜装置の部品設計製作の継続的な技術協力を頂いた斎藤マシン工業(株)社長 斎藤貞治氏、専務取締役阿部光成氏に深く謝意を表す。また、結晶構造の解析において多大な助言をいただいた閑リガクの三浦双葉氏、ならびに製膜や測定に逐次協力を頂いた学生の青木大生氏、清嶋輝彦氏に深く謝意を表す。

本研究の一部は、文部科学省平成15年科学研究費基盤研究(C)(2) (No. 15560285)の援助による。

References

- 1) M. Yamaguchi: *IEEE J.*, 123, 11, 716 (2003).
- 2) M. Yamaguchi and K. I. Arai: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 25, 59 (2001).
- 3) Teak-Soo Kim, K. Suezawa, M. Yamaguchi, K. I. Arai, Y. Shimada and Chong-Oh Kim: *IEEE Trans. Magn.*, 37, 4, 2255 (2001).
- 4) T. Kokai, T. Sato, K. Yamasawa, H. Karasawa and T. Sakuma: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 26, 4, 484 (2003).
- 5) K. Ikeda, K. Kobayashi, K. Ohta, R. Kondo, T. Suzuki and M. Fujimoto: *IEEE Trans. Magn.*, 39, 5, 3057 (2003).
- 6) K. Shintaku, K. Yamakawa and K. Ouchi: H. Fujimoto: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 27, 4, 367 (2003).
- 7) G. S. D. Beach, T. J. Silva, F. T. Parker, D. J. Smith and A. E. Berkowitz: *In Proc. of Intermag Conf.*, Boston, USA, Mar., FC-02 (2003).
- 8) S. Ikeda, K. H. Kim, M. Yamaguchi, K. I. Arai, H. Nagura, S. Ohnuma and Y. Shimada: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 27, 4, 594 (2003).
- 9) K. Suezawa, Y. Takahashi, M. Yamaguchi, K. I. Arai, Y. Shimada, W. D. Li, S. Tanabe and K. Ito: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 23, 4-2, 1637 (1999).
- 10) M. Namikawa, M. Munakata, M. Yagi, M. Motoyama, Y. Shimada, S. Yabukami, M. Yamaguchi and K. I. Arai: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 27, 4, 371 (2003).
- 11) K. Shintaku, K. Yamakawa, and K. Ouchi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 27, 4, 367 (2003).
- 12) H. Tomita, A. Sawabe, T. Sato, and T. Mizoguchi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 34, 1851 (1995).
- 13) B. D. Cullity, *Elements of X-Ray diffraction*, Massachusetts: Addison-Wesley Pub, Co, 94 (1977).
- 14) G. Herzer: *IEEE Trans. Magn.*, MAG-26, 1397(1990).
- 15) S. Chikazumi: *Physics of ferromagnetism*, Tokyo, Syokabo, 11 (1979).
- 16) M. Munakata, M. Motoyama, M. Yagi, Y. Shimada, M. Baba, M. Yamaguchi and K. I. Arai: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 25, 4, 919 (2001).
- 17) M. Munakata, M. Yagi, M. Motoyama, Y. Shimada, M. Baba, M. Yamaguchi and K. I. Arai: *IEEE Trans. Magn.*, 37, 4, 2258 (2001).
- 18) H. Kikuchi, N. Ajiro, M. Yamaguchi, K. I. Arai and M. Takezawa: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 25, 4-2, 975 (2001).

2004年3月10日受理、2004年7月20日採録