研 究

GHz 帯に共鳴周波数を有する FeCoB/NiFe/Si 薄膜の透磁率特性

松鶴 利光, 橋本 篤人, 中川 茂樹

東京工業大学電子物理工学専攻, 〒152-8552 目黒区大岡山 2-12-1-S3-42.

High Frequency Characteristics of FeCoB/NiFe/Si Thin Films with Resonance Frequency in the GHz Range

Toshimitsu Matsuu, Atsuto Hashimoto and Shigeki Nakagawa

Dept. of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552, Japan

Received November 2, 2007

SYNOPSIS

Recently the development of the magnetic devices has been expected in the high frequency applications. The soft magnetic films with large saturation magnetization and high anisotropy field H_k have been required. In this study, FeCoB/NiFe/Si thin films deposited by Facing Targets Sputtering (FTS) system have saturation magnetization of 2 T and H_k of 20 kA/m, and exhibited high ferromagnetic resonance (FMR) frequency of 6.0–7.0 GHz in permeability characteristics. For improvement of high frequency permeability characteristics, we reduced the thickness of FeCoB soft magnetic layer. The results showed that damping constant was reduced and exhibited smaller loss capability. When changing of the FeCoB thickness, we investigated the change of anisotropy field H_k and FeCoB (110) lattice spacing in the perpendicular direction, which indicated that there was correlation between each other. From this relationship, we examined the origin of anisotropy field H_k .

KEY WORDS

ferromagnetic resonance, anisotropy field, permeability characteristics, soft magnetic film, damping constant

1 緒 言

近年, 携帯電話などの電子機器の小型化, 高速化, 高周波化が進んでおり, インダクタやトランスなどの磁気デバイスでは高周波帯域まで高い透磁率 μ を維持することが求められている. 高い透磁率 μ を得るためには高飽和磁化を有する材料が基本的に必要であり, 数GHz以上の高周波化に対応するためには, より高い強磁性共鳴周波数を持つことや駆動周波数において損失が小さいことが必要となる. 高い強磁性共鳴周波数を得るには材料が高飽和磁化かつ高異方性磁界を有することが必要とされている. 飽和磁化は物質により決定される値であるので, 特に異方性磁界を高くすることが高周波数領域で高い透磁率の実数部 μ' を実現することに必要とされる^{1,2)}. また, 動作周波数領域の高周波化を図るためには, 透磁率の虚部 μ'' ができるだけ共鳴周波数付近でのみ急峻な変化をすることも求められている.

本研究ではGHz帯以上に共鳴周波数を持つ薄膜の作製を図り, 強磁性共鳴周波数をより高くすることや透磁率特性の改善を目指した. この特性を実現するために, 2 T以上の高飽和

磁化を有するFeCoBを用い, 軟磁気特性を改善するために下地層としてNiFe/Siを用いたFeCoB/NiFe/Si薄膜を対向ターゲット式スパッタ法によって作製した³⁾. この膜では, 20 kA/m程度の高異方性磁界, 1 kA/m程度の低保磁力, 磁化容易軸方向の角形比が1程度と優れた軟磁気特性を有し, それにより6~7 GHz程度の高い強磁性共鳴周波数を持ち, Landau-Lifshitz-Gilbertの式から導出したシミュレーション結果とほぼ一致する結果が得られたことを確認した⁴⁾. また, 透磁率特性の改善を目指して, FeCoB層をより薄くしたところ, 共鳴周波数付近での μ'' の変化が急峻になり, 損失を示すダンピング定数 α が低減するという結果をLandau-Lifshitz-Gilbertの式から導出した式と測定結果より得ることができた⁵⁾. FeCoB層をより薄くすることによる透磁率特性の改善が確認され, 高い共鳴周波数を維持するには高異方性磁界を持つことが必要であるから, 本報告ではFeCoB層が高異方性磁界を維持したまま, どれだけ薄くできることが可能であるかについて検討した. この結果, FeCoB層の膜厚変化に対して異方性磁界の大きさとFeCoB(110)面の垂直方向の格子面間隔に関係性が確認

されたので、これをもとに異方性磁界の起源についての検討した。

2 試料および実験方法

2.1 作製試料

本実験で用いた試料は、飽和磁化の高い FeCo に軟磁気特性を改善するために B を添加した FeCoB を軟磁性膜として用い⁶⁾、軟磁気特性改善用の下地層として NiFe, Si をそれぞれ 10 nm, 2 nm 堆積させた NiFe/Si 二層シード層を用いた。用いた FeCoB ターゲットの組成比は Fe₆₇Co₂₉B₄ で、FeCoB は bcc(110) 優先配向結晶膜となっている。基板にはガラス基板を用い、FeCoB 膜厚は 10 ~ 800 nm の間で実験に応じて適宜変化させた。成膜法として対向ターゲット式スパッタ法を用い、背圧は 2.0×10^{-4} Pa、スパッタガスは Kr ガス 0.13 Pa、基板温度は常温にて成膜を行った。作製した膜はターゲットの向き合う方向を磁化容易軸方向とする面内磁気異方性を示す。

2.2 実験方法

作製した薄膜の飽和磁化 M_s や異方性磁界 H_k などの磁気特性の評価には振動試料型磁力計 (VSM) を用い、結晶構造解析には X 線回折装置 (XRD) を用いて測定を行った。高周波透磁率特性の評価には、1 MHz ~ 9 GHz まで測定できる高周波透磁率測定装置 PMM-9G1 を東北大学山口研究室の御協力を得て測定を行った⁷⁾。高周波透磁率測定では、磁化困難軸方向に交流磁場を印加して測定を行った。これは磁性体の磁化過程が磁化容易軸方向では磁壁移動、磁化困難軸方向では回転磁化過程になると考えられ、高周波領域の磁化過程においては磁壁移動による損失の発生を抑制するためである。

2.3 高周波透磁率特性のシミュレーション

強磁性体の磁化 M が磁界 H 中に置かれた時の動的過程を表す式として、磁気回転比を γ として次式の Landau-Lifshitz-Gilbert の式が知られている。

$$\frac{dM}{dt} = -\gamma M \times H + \frac{\alpha}{M} \left(M \times \frac{dM}{dt} \right) \quad (1)$$

右辺の第 2 項目は磁化が磁界をかけた方向に収束するために生じる損失を表すのに現象論的に付加された項であり、 α がギルバートのダンピング定数と呼ばれ、物質中の欠損やスピン-フォノン相互作用、渦電流などに起因する損失を表している。この式を薄膜に適用し、印加磁界方向を困難軸方向として解くと

$$\mu_i = \frac{M_s(1 - \omega^2/\omega_0^2) - j4\pi\lambda\omega/\omega_0^2}{\mu_0 H_k(1 - \omega^2/\omega_0^2)^2 - (4\pi\lambda\omega/\omega_0^2)^2} \quad (2)$$

となる^{1,4)}。ここで、 ω_0 は共鳴周波数、 $\lambda = (\alpha\gamma M)/(4\pi\mu_0)$ である。さらに、Maxwell 方程式を用いて μ' と μ'' に関する周波数応答の関係式を導くことができる。この式は飽和磁化、異方性磁界、膜厚などの測定結果より求められる値とダンピング定数 α を用いることで周波数と透磁率の関数として表せる⁴⁾。ここで、 μ' の低周波帯における値を μ' 、 μ'' の共鳴周波数における値を μ_r とすると

$$\mu'_i = \frac{M_s}{\mu_0 H_k} \quad (3)$$

$$\mu''_i = \frac{M_s}{\mu_0 H_k} \frac{2\pi f_r}{4\pi\lambda} = \frac{M_s}{\mu_0 H_k} \frac{2\pi f_r \mu_0}{\alpha\lambda M} \quad (4)$$

となるので、(3), (4) 式よりダンピング定数は

$$\alpha = (2\pi f_r \mu_0 \mu'_i) / (\gamma M_s \mu''_i) \quad (5)$$

で表すことができる。上記の式中の各値は磁気特性と透磁率特性の測定値から算出することが可能であるので、ダンピング定数も測定結果から求めることができる。よって、高周波透磁率特性のシミュレーションが先ほどの式から可能となり、今回はこれを用いて測定結果と比較した。

3 実験結果および考察

3.1 高周波透磁率特性

本研究で作製した FeCoB(800nm)/NiFe(10nm)/Si(2nm) 薄膜について磁気特性を Fig.1 に示す。このグラフからこの膜は面内方向において磁化容易軸と磁化困難軸を持つ面内磁気異方性を有することがわかり、飽和磁化が 2.05 T、異方性磁界が 21.5 kA/m という高い飽和磁化と高い異方性磁界が確認された。また、磁化容易軸、困難軸ともに低保磁力を有し、容易軸の角形比はほぼ 1 である優れた軟磁気特性を持つことも確認できる。この磁気特性から計算できる強磁性共鳴周波数の理論値は次式より 6.6 GHz 程度になることが予測される。

$$f_r = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{\frac{M_s H_k}{\mu_0}} \quad (6)$$

Fig.2 中のプロット点は実際に測定した透磁率の実部 μ' と虚部 μ'' の周波数特性である。Fig.2 中の実線および破線は飽和磁化や異方性磁界の値から求めたシミュレーション結果を示している。実測値とシミュレーション値は μ' が 3 ~ 5 GHz のときと 7 GHz 以上の負の値をとるときに多少のずれを生じてはいるが、ほぼ同様な特性を得ていることが確認された。共鳴周波数の理論値は 6.6 GHz であったのに対し測定値では 6.3

Fig.1 M-H characteristics of FeCoB (800nm)/NiFe (10nm)/Si (2nm) thin film.

Fig.2 Change of complex permeability of FeCoB(800nm)/NiFe(10nm)/Si(2nm) thin film as a function of frequency. Solid and dashed lines correspond to μ' and μ'' of calculated value.

Fig.3 Change of complex permeability of FeCoB(200nm)/NiFe(10nm)/Si(2nm) thin films as a function of frequency. Solid and dashed lines correspond to μ' and μ'' of calculated value.

GHzとなったが、これは共鳴周波数の理論値の計算が H_k の値が数 100 A/m 変化すると 0.1 GHz 程度違ってきてしまうことから誤差範囲内と考えている。

次に、FeCoB層を薄膜化することによって高周波透磁率特性の改善を図った。Fig.3に基板及び下地層はFig.2の試料と同様にFeCoB膜厚だけを800 nmから200 nmに変化させたFeCoB(200nm)/NiFe(10nm)/Si(2nm)薄膜についての高周波透磁率特性を示す。ここで、FeCoB膜厚が200 nmの磁気特性は800 nmのときと同様で、飽和磁化が1.95 T、 H_k が20.5 kA/mであった。この場合の共鳴周波数の理論値は6.3 GHzである。共鳴周波数付近での μ'' の変化はFeCoB膜厚が200 nmのほうが800 nmに比べて急峻であることがわかる。これは、 μ'' の値が増加し始める周波数が800 nmでは1 GHzを超えたあたりであるのに比べ、200 nmでは3 GHzを超えたところから増加し始めていることや共鳴周波数における μ'' の値が800 nmでは100程度であるのに比べ、200 nmでは400程度に増加していることから確認できる。(5)式で計算されるダンピング定数で検討してみると、測定した磁気特性と高周波透磁率特性の

Fig.4 Change of anisotropy field H_k as a function of the FeCoB thickness.

測定値から、800 nmでは $\alpha = 0.15$ であるのに対し、200 nmでは $\alpha = 0.04$ と低下していることがわかる。これよりFeCoB層を薄くすることによって損失が低減し、高周波透磁率特性の改善が図られたことがわかった。この要因として、高周波において影響が顕著になる渦電流損失に着目した。抵抗率 ρ は $0.34 \mu\Omega\text{m}$ 、動作周波数を7 GHzとすると、(7)式より、表皮厚さは $3.5 \mu\text{m}$ となり、今回の試料のFeCoB膜厚200, 800 nmでは試料全体に電磁界がかかっていると考えられ、そのときの渦電流損失は膜厚の2乗に比例するために、FeCoB層を薄くすることによるダンピング定数の低減は渦電流損失が減少した効果であると考えている。

$$\delta = \sqrt{\frac{2\rho}{\omega\mu}} \quad (7)$$

3.2 異方性磁界の起源

高周波透磁率特性の改善において、FeCoB層をより薄くすることが有効であることが確認できた。そこで、FeCoB層の膜厚を変化させたときの磁気特性、特に H_k の値の変化を測定した結果をFig.4に示す。またFig.5にFeCoB膜厚10 nmのときの磁気特性を示す。これを見ると、100 nm以上では H_k は多少のばらつきが生じているものの15~20 kA/m程度の高い値を維持しているが、50 nm以下になると徐々に減少していき、10 nmでは5 kA/mと H_k が明らかに小さくなった。この結果から、FeCoB膜厚200 nmのときと同様な H_k の値を維持するためにはFeCoB膜厚は50 nm程度は必要であることが確認され、これより薄い膜ではダンピング定数の低減は期待できるものの共鳴周波数が小さくなってしまい、より高い周波数で利用するにはあまり適したものでないといえる。また、FeCoB膜厚が薄いときに H_k が小さくなる理由としては、FeCoB層と下地層との界面付近と、ある程度の膜厚で堆積された部分との構造の違いが示唆される。

FeCoB層の膜厚変化に対してFeCoB(110)面の垂直方向の格子面間隔をXRDのピーク位置から測定した結果をFig.6に示す。100 nm以上ではほぼ同じ格子面間隔を示しているが、

Fig.5 M-H characteristics of FeCoB (10 nm)/NiFe (10 nm)/Si (2 nm) thin film.

50 nm 近傍以下においては垂直方向の格子面間隔が広がっており, 10 nm になるとその広がりが顕著になっている. Fig.4 の異方性磁界の変化とFig.6の垂直方向格子面間隔の変化が起こる FeCoB 膜厚はともに 50 nm 程度であり, なんらかの関係があることが示唆される.

そこで, FeCoB の膜厚変化に関して異方性磁界と垂直方向格子面間隔の関係を表したものを Fig.7 に示す. これを見ると, 異方性磁界が大きいと垂直方向格子面間隔が小さく, 異方性磁界が小さいときには垂直方向格子面間隔が大きくなっている相関関係が確認できる. これまでの研究の結果, 対向ターゲット式スパッタ法により作製される FeCoB 薄膜中に誘起される磁気異方性の起源については, 基板へのスパッタ粒子の斜方入射が磁化容易軸方向に格子面間隔を広げることで磁化容易軸方向と磁化困難軸方向との間に格子面間隔の差が生じ, この広がりによる異方的な内部応力の残留による逆磁歪効果によって異方性磁界が発生していると考えてきた⁸⁾. 今回は垂直方向の格子面間隔も異方性磁界の起源に関係あることが示唆された. 前述のように, 異方性磁界が大きいときには垂直方向の格子面間隔が小さく, 異方性磁界が小さいときには垂直方向の格子面間隔は大きくなっている. これを以前の結果とあわせて考えてみる. 垂直方向の格子面間隔が小さい場合は, 面内方向の格子面間隔としては大きくなることのできると考えられ, 容易軸方向と困難軸方向の応力の異方性を残存させやすいと考えられる. このため大きな面内一軸磁気異方性が誘起されると考えられる. 一方, 垂直方向の格子面間隔が大きいと面内方向の格子面間隔が広がることが制限されるために, 残留応力の異方性が低下し, 異方性磁界が低下したものと考えられる. このような異方性磁界の起源については, 今後, 下地層の効果とともに詳細な研究が必要となる.

4 ま と め

本研究で作製した FeCoB/NiFe/Si 薄膜は 20 kA/m 程度の高

Fig.6 Change of FeCoB (110) lattice spacing $d_{(110)}$ in perpendicular direction as a function of FeCoB thickness.

Fig.7 Relationship between anisotropy field H_k and FeCoB (110) lattice spacing $d_{(110)}$ in perpendicular direction for FeCoB films with various thickness.

異方性磁界を有し, 6~7 GHz の高い強磁性共鳴周波数を得ることが確認された. 同様な磁気特性を有した膜において FeCoB 層をより薄くしたところ, 共鳴周波数付近での μ'' の変化が急峻になり, ダンピング定数 α の低減が確認され, FeCoB 層を薄くすることが高周波透磁率特性の改善に有効であることがわかった. また, FeCoB 層を薄くすることによる異方性磁界の変化を調べてみたところ, 50 nm 程度までは 200 nm のときとほぼ同様な磁気特性を維持できるが, さらに薄い領域では異方性磁界が急激に減少することがわかった. 同時に, FeCoB (110) 面の垂直方向格子面間隔は 50 nm 以下の領域において急激な広がりが確認され, 異方性磁界を大きくするには垂直方向の格子面間隔を小さくすることが有効であることが示唆された. 異方性磁界の発現するメカニズムについて, 今後さらなる解析が必要であろう.

謝 辞

本研究を進めるにあたり, 高周波透磁率特性を測定させていただいた東北大学山口正洋教授に深く感謝いたします.

文 献

- 1) A.Hosono and Y.Shimada: "Correlation between Magnetic Anisotropy and Permeability of Amorphous Multi-Layered Films", J. Magn. Soc. Jpn., 12(1988)295-298.
- 2) S.Ohnuma and S.Mitani: "Soft Magnetic Films with High Electrical Resistivity", J. Magn. Soc. Jpn., 19(1995)19-25.
- 3) A.Hashimoto, S.Ito and S.Nakagawa: "Improvement of in-plane anisotropy field in FeCoB/NiFe/Si thin films by Kr sputtering", J. Magn. Magn. Mat., 310(2007)2636-2637.
- 4) Y.Shimada, J.Numazawa, Y.Yoneda and A.Hosono: "Absolute Value Measurements of Thin Films Permeability", J. Magn. Soc. Jpn., 15(1991)327-330.
- 5) M.Namikawa, M.Munakata, M.Yagi, M.Motoyama, Y.Shimada, S.Yabukami, M.Yamaguchi and K.I.Arai: "GHz Permeability of Soft Magnetic Co-Fe-B Films with High Anisotropy Fields", J. Magn. Soc. Jpn., 27(2003)371-374.
- 6) M.Munakata, S.Aoqui and M.Yagi: "B-Concentration Dependence on Anisotropy Field of CoFeB Thin Film for Gigahertz Frequency Use", IEEE Trans. Magn., 41(2005)3262-3264.
- 7) M.Yamaguchi, Y.Miyazawa, K.Kaminishi and K.Arai: "A New 1 MHz-9 GHz Thin-Film Permeameter Using a Side-Open TEM Cell and a Planar Shielded-Loop Coil", Trans. Magn. Soc. Japan, 3(2003)137-140.
- 8) S.Kong, T.Okamoto and S.Nakagawa: "Microstructure and magnetic properties in FeCoB/NiFe double layer", J. Magn. Magn. Mat., 272-276(2004)2184-2185.