非晶質 Co 系合金多層膜の高周波特性

High-Frequency Magnetic Properties of Amorphous-Co-Based Multilayers

三寺正雄・白川 究・増本 健*

電気磁気材料研究所, 仙台市太白区八木山南 2-1-1 (〒982)

*東北大学金属材料研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980)

M. Mitera, K. Shirakawa, and T. Masumoto*

The Research Institute for Electric and Magnetic Materials, 2-1-1 Yagiyama-minami, Taihaku-ku, Sendai 982

*Institute for Materials Research, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980

The frequency dependence of complex permeability was investigated in $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}/\text{SiO}_2$ ($x=0.01-0.14$) multilayered films. In order to obtain an excellent micro-magnetic core for the high-frequency range over 100 MHz, we measured the frequency dependence of the real and imaginary components of permeability (μ' and μ''), the composition dependence of the magnetostriction (λ), the magnetic flux density (B_s), and the anisotropy field (H_k), and calculated the efficiency index ($Q=\mu'/\mu''$) and the performance index ($\mu' \times Q$).

Multilayered films with total magnetic film thickness of 1 mm were fabricated by RF sputtering.

The magnetostriction constant of these films as deposited changed from negative to positive at $x=0.03$. The positive range was expanded to $x=0.01$ after annealing at 200°C and 250°C. The permeability at 200 MHz linearly decreased with increasing iron rich side was lowered by annealing. The maximum value of $\mu' \times Q$ ($=13000$) at 200 MHz was obtained at $x=0.03$ in the deposited state.

The present results emphasize that the high performance index occurs at 200 MHz in positive magnetostriction film.

Key words: multilayered film, high frequency, magnetic loss, magnetostriction

1. はじめに

著者らは、これまでにミリからサブミリオーダーの寸法をもつ高周波対応の薄膜磁気素子に用いる多層膜磁心の研究を行ってきた。そこでは、非晶質磁性層と絶縁層で構成される多層膜の作製条件を検討し、高周波特性を向上させるための積層条件や磁心形状および寸法と損失の関係などを明らかにして報告している^{1), 2)}。

薄膜磁気素子を用いる目的には、素子形状の小型化や平坦化はもとより動作周波数の高周波化によって電磁パワーや信号の変換効率を向上させることなどがある。一方、磁心の駆動方法としては、低周波帯域で動作させる場合には電磁パワーの変換を目的としているために、主に大振幅で励磁し磁壁移動に伴う磁化の変化を利用するが、高周波帯域で動作させる場合には銅損や磁心損失を抑制する目的で主に小振幅の励磁による磁化回転を利用している。磁気ヘッドは、~MHz 帯域で動作する磁気素子の代表例であるが、磁心の組成は作製プロセスにおける内

部応力の変化に伴う磁心の特性の劣化などを考慮して、磁歪が 0 に近い組成に限定されている。しかし、さらに高い周波数帯域における高周波特性と磁歪の関係については十分明らかにされていない。

一般に、磁心の高周波化に対応するためには、高飽和磁化ならびに高い異方性磁界を有する磁心が望まれる。しかし、高飽和磁化および磁歪 0 の条件を同時に満たす組成の選択は容易でない。

したがって、著者らは、Co と Fe の比を変えることで磁歪を負から正に変えることができる Co-Fe-Si-B 系合金を用いた多層膜を作製し、まず組成と磁歪、飽和磁化、および異方性磁界の関係を明らかにし、さらに 50~500 MHz の周波数帯域における複素透磁率の周波数依存性と磁歪の関係について検討することにした。

2. 試料作成法および実験方法

多層膜は、直径 75 mm の $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}$ 合金 ($x=0.01-0.14$) と SiO_2 のターゲットを用い、RF マグネトロンスパッタ装置でフォトレジストを用いてパターンニングされた厚さ 0.5 mm のガラス基板 (コーニング 7059) 上に作製した。磁性層となる $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}$ 合金のスパッタ条件は、測定試料の長手方向が磁化困難方向となるように 60 Oe の静止磁界を加え、Ar のガス圧を 3 mTorr とした。また、絶縁層となる SiO_2 の場合には、Ar と酸素の混合ガスを用いてガス圧を 6 mTorr とした。また、投入電力は双方とも 200 W とした。得られた多層膜は、磁性層の厚さを 0.1 μm 、 SiO_2 の厚さを 0.05 μm とし交互に $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}/\text{SiO}_2$ の形で 20 層積層されたものである。透磁率測定に用いた試料は、多層膜をリフトオフ法によって幅 0.1~1 mm、長さ 2 mm に分割し、幅方向に 100 μm 、長手方向に 100 μm の間隔をおいて数個から数 10 個配列したものである³⁾。また、磁歪測定に用いた試料は、幅 10 mm、長さ 20 mm の多層膜である。磁歪の測定は、レーザー光を用い、一端で支持された試料に 0.3 Hz の磁界変化によって生じるたわみを光挺子の原理に基づいて観測する方法で行った。また、飽和磁化および異方性磁界の測定は試料振動型磁力計を用いて行い、透磁率測定は幅 7.5~11.5 mm、長さ 15 mm のパラレルラインとネットワーク/スペクトラムアナライ

Fig. 1 Concentration dependence of the magnetostriction (λ) for single-layered and multilayered films.

ザーを用いて 50~500 MHz の周波数範囲で行った⁴⁾.

3. 実験結果および考察

Fig. 1 には, Co に対する Fe の置換量 X に伴う磁歪の変化を示す。ここで, 測定における最大磁界を ± 100 Oe とした。図において, ●印は単層膜, ○印は多層膜である。熱処理前の飽和磁歪は, Fe の置換量が増加するのに伴って -5×10^{-6} から $+15.3 \times 10^{-6}$ 範囲で直線的に増大していく傾向を示すのがわかる。単層膜と多層膜では, 磁性層の膜厚や基板あるいは SiO_2 に拘束されている状態の違いがある。このような, 形態の違いが膜の内部応力に影響を与え, その影響によって磁歪が変化することも考えられる。しかし, 磁歪の実測値に負側でわずかの差が認められたにすぎない。成膜後の膜に存在すると推測される内部応力を熱処理で緩和された状態でそれぞれの膜の磁歪を比較するために, 200°C および 250°C で各 1 時間の熱処理を 1400 Oe の静止磁界中で行った。その結果, 多層膜の磁歪は, 処理温度の増大に伴って負から正の方向に移行することが明ら

Fig. 3 Concentration dependence of the saturation flux density (B_s) and anisotropy field (H_k).

かとなった。

一般に, 磁性体を磁心として利用できる周波数の上限は, 主に飽和磁束密度と異方性磁界の大きさで決まる自然共鳴の周波数となることから⁵⁾, 自然共鳴による損失の少ない高周波材料にはこれらの値の高いことが望まれる。そこで, 多層膜の飽和磁束密度と異方性磁界を測定することにした。Fig. 2 には熱処理を施さない状態における多層膜のヒステリシス曲線の代表例を示す。測定に用いた試料の形状は, 1 cm 角で, 膜厚 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ の直方体であるが, 曲線の反磁界補正を行っていない。図から, 保磁力は $x=0.01$ の磁歪の負側では 0.35 Oe , $x=0.10$ の正側で 0.70 Oe と磁歪の負から正への変化に伴って保磁力が増加する傾向を示している。磁歪の変化に伴う保磁力の増加は, 磁界中成膜時と成膜後の磁歪の差や膜と基板の熱膨張差などによって生じた内部応力が誘導磁気異方性エネルギーを高めた結果と考えられる。一方, 飽和磁束密度は 5 kOe の磁界で測定した。また, 異方性磁界はヒステリシス曲線から求めた。その結果をまとめて Fig. 3 に示す。図において, x を 0.01 から 0.14 まで増加することで飽和磁束密度はおおよそ 11.5 kG から 12.5 kG

Fig. 2 Magnetization curves of $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})/\text{SiO}_2$ ($x=0.01, 0.05$, and 0.1) multilayered films.

Fig. 4 Frequency dependence of the complex permeability μ' , μ'' .

Fig. 5 Concentration dependence of the real components of permeability μ' .

まで約 10% 増大する, また異方性磁界は 21 Oe から 26 Oe まで約 20% 増大することがわかる。したがって, 自然共鳴の周波数を高めるには Fe 濃度の高い磁歪正側の多層膜が良いことになる。しかし, 上限の周波数を下げる渦電流や磁心形状その他多くの要因があるため磁心の組成選択においてはこれらの要因にも留意する必要がある。

一般に, 優れた磁心材料は高透磁率と低損失を兼ね備えたものでなければならない。そこで, これらの多層膜の複素透磁率について検討した。高周波特性の代表例として, 磁歪が 0 に近い $x = 0.04$ の $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}/\text{SiO}_2$ 多層膜の 50 MHz から 500 MHz における複素透磁率 μ' , μ'' の周波数依存性を Fig. 4 に示す。複素透磁率の実数部 μ' は, 50~200 MHz の周波数範囲では 470 のほぼ一定の値であるが, それより高い周波数範囲ではわずかに増加する傾向にある。その原因として, 薄膜磁性体の高周波帯域における磁化挙動を飽和磁化, 異方性磁界, 電気比抵抗などから予測する計算式⁶⁾から導かれる約 1.5 GHz の遮断周波数に近づくことで μ' が増加することが考えら

Fig. 6 Concentration dependence of the efficiency index (Q) and the imaginary components of permeability μ'' .

れる。また, μ'' においても同様である。

各試料の複素透磁率の周波数依存性から求めた 200 MHz における μ' および μ'' の Fe 濃度依存性を Fig. 5 および Fig. 6 に示す。Fig. 5 において, 熱処理前および熱処理後の μ' は共に x が 0.01 から 0.14 まで増加するのに伴って 500 から 360 の範囲で減少している。また, 熱処理によって μ' は熱処理前と比べて磁歪負側で増加し, 磁歪正側では減少する傾向が認められる。この傾向は, 熱処理温度が高くなるにつれて顕著となる。 μ'' の組成依存性は Fig. 6 に示すように Fig. 5 の μ' の組成依存性によく対応して減少している。このことは, 透磁率の減少すなわち磁化の変化量が少ないほど損失も少なくなることを意味している。また, 熱処理による透磁率の変化は, 非晶質磁性膜の各層が熱処理によって内部に構造緩和が起こること⁷⁾, また基板や SiO_2 による拘束で生じる膜の内部応力の緩和が起こることなどによって増大することが予測される。一方, 熱処理に伴う磁歪の増大が透磁率を減少させることも考えられる。このように, 熱処理による二つの影響が競合し結果的に透磁率が減少したものと考えられる。次に, これらの多層膜の透磁率における実効成分と損失成分の比から求めた効率 $Q (= \mu'/\mu'')$ について検討した。Fig. 6 に示すように, Q の値は熱処理の前後にかかわらず x の増加に伴って増加している。しかし, 各組成における Q の値は熱処理前の状態で最も大きく, また 200 °C の 250 °C の熱処理ではほぼ同じ値を示す。Fig. 5 と Fig. 6 の比較より x の増加に伴い μ' は低下するがそれに増して μ'' の減少が大きいため Q は増大している。このように, 互いに異なる透磁率や効率を示す材料の性能を比較する場合には性能指数として透磁率と効率の積 $\mu' \times (\mu'/\mu'')$ が用いられている。Fig. 7 には, 多層膜の 200 MHz における性能指数を示す。図において, 性能指数は熱処理を施す前の状態では Fe 置換量が多い

Fig. 7 Concentration dependence of the performance index.

磁歪正側で緩やかなピークを示し、その最高値は $x=0.05$ で約13000である。しかし、250℃までの熱処理によって約12000まで低下し、ピーク値はむしろFe置換量の少ない磁歪負側にシフトし、Fe置換量による変化量が小さくなる。このように、磁歪正側の比較的広い範囲で高い性能指数が得られたことについては、磁歪の増大に伴って透磁率 μ' 、 μ'' は共に減少していくが、上で述べた理由から Q は増大していき結果として μ' と Q の積が磁歪負側に比べて大きな値になったといえる。

以上の結果から、ミリオオーダーの寸法をもつ $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}$ と SiO_2 からなる多層膜磁心の組成選択において、透磁率、飽和磁束密度、および異方性磁界をある程度任意に選択できることが明らかになった。しかし、磁歪が正の磁心材料は応用上好ましくないとされている。薄膜磁気素子作製の工程でコイル、絶縁層、および磁心を積層する、また絶縁層やパターンニングに用いるレジストを硬化させる熱処理を行う必要が

ある。しかし、積層や熱処理は磁心の特性に変化を与える可能性がある。そのために、 $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}$ 系で磁歪が正の材料を応用する際には、磁心に接する絶縁層の平坦化や熱処理温度を250℃以下に限定するなどの点に留意する必要がある。

4. ま と め

スパッター法で $(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_{82}(\text{Si}_{0.52}\text{B}_{0.48})_{18}$ と SiO_2 の多層膜を作製して、組成と磁歪、飽和磁束密度、異方性磁界、および透磁率の関係を調べ、以下の知見が得られた。

- 1) 磁歪は、Fe置換量の増加に伴って正の方向に増大していく。また、熱処理によって負側の磁歪が正側に移行した。
- 2) 磁歪正を示す組成の透磁率 μ' は、Fe置換量の増加に伴って減少していき、熱処理によって、さらに減少の度合いを増した。性能指数は、熱処理前の状態で $x=0.05$ の磁歪正の側で最大を示した。

謝 辞 本研究の推進に当たり、総括的指導をなされた(財団法人)電気磁気材料研究所理事長の増本 剛氏に深く感謝致します。

文 献

- 1) 三寺正雄, 野瀬正照, 寺坂正二, 白川 究, 松本文夫, 藤森啓安, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **18**, 425 (1994).
- 2) 白川 究, 三寺正雄: 電気学会論文誌 A, **114**, 811 (1994).
- 3) 白川 究, 三寺正雄, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **19**, 405 (1994).
- 4) 木村卓也, 三寺正雄, 寺坂正二, 野瀬正照, 松本英敏, 松本文夫, 藤森啓安, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **15**, 497 (1993).
- 5) 飯田修一, 岩崎俊一, 岩間義郎, 小林 寛, 桜井良文, 長島富雄, 渡辺昭治 編: 磁性薄膜工学, p. 150 (丸善, 東京, 1977).
- 6) 神保睦子, 網島 滋, 内山 晋: 日本応用磁気学会誌, **14**, 289 (1994).
- 7) 増本 健 編著: アモルファス金属の基礎, p. 121 (オーム社, 東京, 1982).

1995年10月16日受理, 1996年1月12日採録