高抵抗 Fe-Al-O 薄膜の透磁率特性

Permeability Properties of Highly Resistive Fe-Al-O Films

李 衛東・北上 修・島田 寛・石山和志*・荒井賢一*

東北大学科学計測研究所・*東北大学電気通信研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (☎980-77)

W. D. Li, O. Kitakami, Y. Shimada, K. Ishiyama,* and K. I. Arai*

Research Institute for Science Measurement, and *Research Institute for Electrical Communication, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-77

Fe-Al-O films with a nano-granular structure were fabricated by RF magnetron sputtering. The films exhibit good magnetic softness together with high electrical resistivity. However, they have relatively large deterioration of the initial permeability at high frequencies. In an attempt to explain this peculiar behavior, dispersion of magnetic anisotropy in the films was measured by biaxial Vibrating Sample Magnetometer (VSM), but a theoretical calculation taking account of this anisotropy dispersion resulted in poor agreement with the experiments. Other possibilities such as the existence of a weak ferromagnetic phase, which may dominate the initial permeability, or strong damping of the spin precession, which may occur in the nano-granular structure, were also investigated, but none explained the peculiar behavior of the permeability. The results of this investigation suggest that the dielectric property of the granular film should be studied as a possible cause of this peculiar behavior.

Key words: high resistivity, soft magnetic properties, permeability, high frequency, anisotropy dispersion, Fe-Al-O, nano-granular film

1. はじめに

近年, 高周波帯域で利用する磁心材料として, 高電気抵抗軟磁性薄膜の研究が盛んに行われている¹⁾. こうして高周波磁心材料に求められる特性としては, 高電気抵抗率(ρ), 高飽和磁化($4\pi M_s$), 低磁歪(λ_s)が求められ, さらに自然共鳴周波数を上げるために適度な異方性を付与することも要求される. これらの要件を満たす材料の一つに, 磁性金属とセラミックスから成るグラニュー型高電気抵抗率膜があり, 最近活発に研究が進められている^{2)~7)}. しかしながら, この材料の高周波領域における磁氣的挙動については不明な点が多く, また高電気抵抗のグラニュー膜で観察される大きな高周波損失の原因についても, 弱い強磁性の相の存在が示唆されるなど議論は定性的なものにとどまっている. そこで, 本研究では Fe-Al-O グラニュー型高電気抵抗軟磁性膜の高周波領域における初透磁率を測定し, 異方性分散との関連を理論, 実験の両面から調べるとともに, 他に考えられるいくつかの要因について考察した.

2. 実験方法

Fe-Al-O 薄膜試料は, Fe+Al₂O₃ チップ複合ターゲットを用いて, アルゴンガス雰囲気中における RF マグネトロンスパッタ法により作製した. 到達真空度は 2.0×10^{-6} Torr 以下, 成膜時のアルゴンガス圧力は 4 mTorr 一定とし, 試料作製を行った. 純 Fe ターゲット (直径 100 mm) の上に 39 個の Al₂O₃ チップ (直径 10 mm) を均等に置いて複合ターゲットとした, 基板としては松浪製 S1215 ガラス基板を用い, 基板温度は水冷とした. 試料サイズは直径 8 mm, 膜厚 $3 \mu\text{m}$ (異方性分散測定用は $0.8 \mu\text{m}$) とした. また, 熱処理は, 8×10^{-6} Torr の真空中で直流磁場 ($H_{\text{ex}} = 600$ Oe) を印加しながら, 300°C, 380°C, 400°C の温度で 1 時間行った. 試料の磁気特性は試料振動型磁力計 (VSM), 磁歪は光挺子法, 初透磁率は 1 ターンコイル法⁸⁾, 異方性分散は二軸 VSM⁹⁾ より測定した. 構造解析は Cu-K α 線を用いた X 線回折 (XRD) により行った. 電気抵抗率は直流 4 端子法, 組成分析は電子線プローブ分析 (EPMA) により評価した.

3. 実験結果および考察

3.1 磁気特性および電気抵抗率

as-made 状態における Fe-Al-O 膜の磁気特性および電気特性は, 組成がほぼ一定 (Fe₅₀Al₁₉O₃₁) であるにもかかわらず,

Fig. 1 Dependence of the saturation magnetization $4\pi M_s$ on the electrical resistivity ρ and annealing temperature T_a .

Fig. 2 Dependence of the hard axis direction coercivity H_c on the electrical resistivity ρ and annealing temperature T_a .

Fig. 3 X-ray diffraction patterns of Fe-Al-O films as-made and annealed at 380°C and 400°C.

Fig. 1, 2 の白丸のように大きくばらつく。このような特性のばらつきは、熱処理により抑えられ、飽和磁化は若干増加するとともに、電気抵抗率は $1000 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 程度に低下する。また、保磁力も 380°C のアニール（図中▲印）で 1 Oe 程度にまで低下し、比較的良好な軟磁気特性を示す。Fig. 3 にアニールによる XRD パターンの変化を示す。as made およびアニール後のいずれの場合でも、 $\alpha\text{-Fe}(110)$ 付近に回折ピークが存在するが、as made 状態ではわずかに (110) の低角側にピーク中心を有する。これは、bcc 格子の Fe サイトの一部が原子半径の大きい Al により置換されたためと考えられる。アニールにより、ピーク中心は $\alpha\text{-Fe}(110)$ に一致するようになり、Fe はほぼ $\alpha\text{-Fe}$ 単相として存在することがわかる。このとき Al と O の組成はほぼ 1:1.5 であることが確認されているので、Al は Al_2O_3 という酸化物に近い状態で $\alpha\text{-Fe}$ とともに膜中に共存しているものと考えられる。

3.2 透磁率特性および異方性分散

Fig. 4 は、アニール前後の代表的な $M-H$ 曲線である。なお、この場合、我々は特に高抵抗膜の磁氣的挙動に着目していたことから、アニール温度を 300°C とすることにより、電気抵抗の低下を抑えた。この図より、as made およびアニール後の試料

Fig. 4 Magnetic hysteresis curves of an Fe-Al-O film.

Fig. 5 Frequency dependence of the permeability for Fe-Al-O films.

Fig. 6 Anisotropy dependence of the permeability for Fe-Al-O films.

は、いずれも一軸異方性を有することがわかる。このアニール後の試料に対し、初透磁率の周波数特性を測定した結果が Fig. 5 である。この図からわかるように、 μ' は高周波領域で著しく減衰し、また μ'' も比較的に低い周波数領域から大きな値を示すことがわかる。それと同時に 300 MHz 以上の高周波領域で μ'' が著しく減少するのも、この材料の特徴の一つである。こうした測定を異なる H_k を持つ複数の試料に対して行い、VSM から求めた H_k と 1 MHz での初透磁率から見積もった $H_k (=4\pi M_s/\mu)$ を比較した結果が Fig. 6 の□である。Fe-Al-O 膜の初透磁率は、分散のない理想的な一軸異方性モデルから予想される μ' の値よりかなり低い値となっていることがわかる。そこで、この理想的な一軸異方性からズレを説明するために、二軸 VSM⁹⁾ による異方性分散の測定を行った。Fig. 7 は測定結果の一例である。この結果から、Fe-Al-O 膜は角度分散のみならず大きな強度分散を有することがわかる。この強度分散の中心値

Fig. 7 Anisotropy dispersion in an Fe-Al-O film after annealing at 300°C in a dc magnetic field for an hour.

Fig. 8 Frequency dependence of the permeability for an Fe-Al-O film. The broken lines show the results of calculation using anisotropy dispersion and a damping constant α of 0.02.

は Fig. 6 の黒丸に示したように、1 MHz での初透磁率から求めた H_k とほぼ一致する。Fig. 7 の角度および強度分散をすべて考慮に入れて⁹⁾、透磁率の周波数特性を計算した結果が Fig. 8 の---である。計算は、Landau-Lifshitz の式に基づいて導出される薄膜の式に、さらに異方性分散を考慮したものである^{8), 9)}。これを Fig. 8 の実験値と比較すると、異方性分散を考慮に入れても、初透磁率の周波数特性、特に高周波数領域における挙動を説明することはできない。これらのことから、本研究で用いた高抵抗グラニュー膜の高周波数領域における挙動を、単純に異方性分散で説明することは、困難なように思われる。

以上のように、高電気抵抗 Fe-Al-O グラニュー膜で観察される初透磁率の周波数特性は、異方性分散を考慮に入れた理論計算によっても、再現することはできない。特に、計算結果に比べ、測定される μ' の高周波数領域における減衰は著しく、また磁氣的損失を示す μ'' も低周波数領域から著しく高い値を示す。このような理論計算と実験値の違いを生み出すもう一つの可能性としては、ここで行った異方性分散測定では検出できないような低い H_k の強磁性相の存在の可能性が考えられる。そこで、この可能性を確かめるために、直流バイアス磁界中での

Fig. 9 Frequency dependence of the permeability for an Fe-Al-O film. An external bias field of 5.0 Oe is located parallel to the hard axis direction.

初透磁率の挙動を調べた。すなわち、試料困難軸方向に弱いバイアス磁界を印加して、低い H_k の相を飽和させた状態で測定すれば、高周波数領域における μ' の低下、そして低周波数領域における異常損失が消失するものと考えられる。ただし、バイアス磁界 (H_b) は、膜の平均的異方性磁界 (約 20 Oe) より十分小さくなるよう、5 Oe 以下の領域で検討を行った。その結果、 H_b に対しては、初透磁率の周波数特性は依存していないことがわかった。一例として、Fig. 9 に $H_b = 5.0$ Oe の μ - f 特性を示すが、 μ' および μ'' の周波数依存性は、 $H_b = 0$ Oe (Fig. 5) の場合とほとんど変わらないことがわかる。このことより、Fe-Al-O 膜の μ - f 特性の理論と実験結果の相違は、異方性分散測定で検出できないような低い H_k の相の存在に起因するものではないと考えられる。

以上述べたように、高電気抵抗 Fe-Al-O グラニュー膜で観察される高周波数領域における μ' の著しい減衰と μ'' の異常な増加は、単純な異方性分散や、これまで考えられてきたような弱い強磁性相の存在によるものとは考えにくい。さらに考えられる要因としては、ナノオーダーの構造的不均質性に寄因して損失が起る可能性である。グラニュー構造では、強磁性金属相とセラミクス相がナノオーダーで複雑に混合された状態に

Fig. 10 Frequency dependence of the permeability for an Fe-Al-O film. The broken lines show the results of calculation using anisotropy dispersion and a damping constant α of 0.2.

あり、このような状況下では、スピンの回転による損失もバルクの場合と異なったものになる可能性がある。そこで、上記の初透磁率の計算において、damping 定数 α を大きく変えて見た。その結果の例が Fig. 10 である。この図より、 α を Fe のバルク値 (0.02)⁸⁾ の 10 倍程度に設定することにより、 μ' はほぼ実測値と一致するようになる。しかし、 μ'' 項の違いは極めて大きく、 α の変化のみでは説明できないことがわかった。

以上、三つの可能性を挙げて実験、検討を行ったが、いずれも満足に説明できるものではなく、こうした複合系の高周波挙動を取り扱うには、これまで考慮されなかった誘電的性質が影響している可能性があり、現在検討中である。

4. ま と め

複合ターゲットスパッタ法により Fe-Al-O 薄膜を作製し、直流磁界中熱処理より、高飽和磁化 ($4\pi M_s = 9500\text{--}10500$ Gauss), 低保磁力 ($H_c < 1.5$ Oe), 高い電気抵抗率 ($\rho = 500\text{--}3500$ $\mu\Omega \cdot \text{cm}$), 飽和磁歪定数 ($\lambda_s = +1 \times 10^{-6}$) の軟磁性薄膜が得られた。この薄膜について、初透磁率を測定し、その異常な周波数依存性の原因について調べた結果、以下のことがわかった。

(1) 二軸 VSM 法により、異方性分散を測定し、これをもとに透磁率の理論計算を行った。しかし、理論値に比べ、グラニュー膜の μ' の減衰はより低い周波数で生じ、異方性分散だけでは説明できない。

(2) 弱い H_k を持つ強磁性相が初透磁率を決めている可能性を調べるため、直流バイアス磁界による初透磁率の変化を調べたが、バイアス磁界依存性はほとんど見られず、この可能性は否定できる。

(3) この膜の特殊な微細構造が損失を増大させる可能性を調べるため、damping constant α をパラメーターとして実測値のフィッティングを試みた。その結果、バルクの 10 倍程度

の値を設定することにより、 μ' の挙動を再現することができた。しかし、 μ'' 項については、依然として理論計算と実験値の差が大きい。

以上の結果から、初透磁率の異常な振舞を説明するためには、試料の複素誘電率の影響も可能性として考慮する必要があると考えられるので、現在検討中である。

謝 辞 本研究を遂行するに当たり、EPMA による組成分析を東北大学素材研究所 佐藤雄孝氏にお願いしました。また、異方性分散を含む透磁率の計算に当たっては、同大学電気通信研究所大学院生 吉田周作君に御協力頂きました。ここに併せて深く感謝の意を表します。

文 献

- 1) 三上寛祐, 西川幸男, 小俣雄二: 第 19 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 東京, 1995, p. 180 (日本応用磁気学会, 東京, 1995).
- 2) H. Karamon, T. Masumoto, and Y. Makino: *J. Appl. Phys.*, **57**, 3527 (1985).
- 3) 大沼繁弘, 古川伸治, 松本文夫, 藤森啓安, 高弘克巳, 永田晋二, 山口貞衛, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **18**, 303 (1994).
- 4) 李 衛東, 北上 修, 島田 寛, 武野幸雄: 日本応用磁気学会誌, **19**, 429 (1995).
- 5) 宮川長二, 島田 寛: 平成 4 年電気学会全国大会講演論文集, 東京, 1992, p. 1672 (電気学会, 東京, 1992).
- 6) H. Iwasaki, R. Akashi, and Y. Ohsawa: *J. Appl. Phys.*, **73**, 8441 (1993).
- 7) 早川康男, 広川久美子, 牧野彰宏: 日本応用磁気学会誌, **18**, 415 (1994).
- 8) 細野彰彦, 島田 寛, 沼澤潤二, 米田与志郎: 東北大学科学計測研究所報告, **39**, 27 (1990).
- 9) 石山和志, 豊田明久, 荒井賢一, 沖田和彦: 日本応用磁気学会誌, **19**, 329 (1995).

1995 年 10 月 16 日受理, 1995 年 11 月 22 日採録