(CoFeB)-(SiO₂)系アモルファス高電気抵抗膜の磁気特性

Magnetic Properties of Highly Electrical Resistive (CoFeB)-(SiO₂) Amorphous Films

宗像 誠, 八木 正昭, *島田 寛

熊本工業大学・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・科学計測研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (☎ 980-8577)

M. Munakata, M. Yagi and * Y. Shimada

KIT Energy Electronics Laboratory, 4-22-1 Ikeda, Kumamoto 860-0082

*Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

(1998年10月15日受理, 1999年1月21日採録)

(CoFeB)-(SiO₂) amorphous magnetic films for magnetic cores of micro-magnetic power devices were deposited on glass substrates by a synchronous dual-rf magnetron sputtering method. The relation between the magnetic properties and resistivities of the films and core losses was investigated. Highly electrically resistive soft magnetic Co_{66.6}Fe_{7.4}B₂₆-SiO₂ films with low core losses in the high-frequency range were obtained by reducing the hysteresis losses. The films exhibited an anisotropy field of 40 Oe, a permeability of 200 and a saturation magnetization of 7.3 kG. The core loss of the films for a coercivity of 0.20 Oe and a resistivity of 2200 $\mu\Omega\text{cm}$ was less than 1 J/m³ at 1 MHz, $B_m = 0.1\text{ T}$, as good as that of Co-based ultra-thin soft magnetic amorphous ribbons.

Key words : (CoFeB)-(SiO₂) film, high electrical resistivity, soft magnetic properties, amorphous structure, hysteresis losses, core loss

1. はじめに

近年, 薄膜インダクタの実用化に伴って, ワンチップスイッチング電源のデバイス特性および作製プロセスの研究^{1), 2), 3)}が盛んに行われ, 数 MHz ~ 数 10 MHz で動作する低損失, 高透磁率を有する高周波薄膜磁心材料への要求が益々高まっている⁴⁾.

著者らは以上の要求に応えるため, 大振幅磁界下で動作する低損失な高電気抵抗薄膜磁心の開発を目的として, デバイス作製プロセスで多用されるポリイミド基板に Fe-Al-O 系高電気抵抗膜を作製し, ガラス基板と同様に高電気抵抗軟磁性膜が実現できることを明らかにした⁵⁾. しかし, それらの膜の鉄損は, 渦電流損失に比べてヒステリシス損失はるかに大きく, 大振幅磁界下ではヒステリシス損失を優先して低減する必要があることを報告した⁶⁾. このヒステリシス損失を低減するためには, 結晶の微細化によって磁気異方性を低減するナノ結晶グラニューラ膜だけではなく, 元来低い磁気異方性を持つアモルファス高電気抵抗膜⁷⁾についても検討する必要がある.

そこで本研究では, 電気抵抗率で金属の10倍程度, 固有保磁力 0.3 Oe 以下の (CoFeB)-(SiO₂) 系アモルファス高電気抵抗膜をガラス基板上に試作した結果, ヒステリシス損失の低減によって鉄損が Co 基超急冷極薄アモルファス薄帯⁸⁾と同程度まで大幅に低減できることがわかったので報告する.

2. 実験方法

成膜は二元同時 rf マグネトロンスパッタ法により, Co_{66.4}Fe_{7.6}B₂₆ ターゲット (純度 99.9%, 直径 100 mm × 厚さ 5 mm) と SiO₂ ターゲット (純度 99.99%, 直径 100 mm × 厚さ 5 mm) を用いて Ar 雰囲気中で行った. SiO₂ の添加量は, Co_{66.4}Fe_{7.6}B₂₆ ターゲットへの投入電力を 350 W に固定し, SiO₂ ターゲットへの投入電力を変えながら調整した. 膜中の SiO₂ の体積比率 SiO₂ vol. % は各ターゲットの成膜速度から概算した. 到達圧力は 2.0×10^{-7} Torr 以下とし, 成膜時の Ar 圧力は 3 ~ 9 mTorr, 基板-ターゲット間距離は 40 ~ 70 mm, 成膜速度は 65 ~ 120 Å/min, 試料の膜厚は 1 ~ 2 μm 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, 成膜中はこれを 130 r.p.m. 以上で水冷回転した.

熱処理は, 3×10^{-6} Torr 以下の真空中で 1 kOe の直流磁界中で 20 分を行った. 静磁気特性は VSM, 電気抵抗は四端子法, 構造解析は平行ビーム光学系を用いた薄膜 X 線回折 (XRD) によりそれぞれ行った. 鉄損測定は薄膜用高周波 BH アナライザー ((株) 科学技術研究所製) を用いて最大磁束密度 $B_m = 0.1\text{ T}$, 周波数 0.5 ~ 3 MHz の範囲で行った. ヒステリシス損失は VSM により求めた.

3. 実験結果

3.1 磁気特性と電気抵抗率

Fig. 1 は, As-dep. の膜について, 異方性磁界 H_k , 飽和磁化 $4\pi M_s$, 電気抵抗率 ρ , 磁化困難軸方向の保磁力 H_{cb} および磁化容易軸方向の保磁力 H_{ce} の膜中の SiO₂ 体積比率依存性を示

Fig. 1 Dependence of the anisotropy field H_k , the saturation magnetization $4\pi M_s$, the electrical resistivity ρ , the hard axis direction coercivity H_{ch} and the easy axis direction coercivity H_{ce} on the SiO_2 vol. %.

す。 SiO_2 vol. % が 0 では、 $H_{ch} = 0.2$ Oe、 $\rho = 70 \mu\Omega \text{ cm}$ 、 $4\pi M_s = 9.3$ kG を示し、 Co, Fe の原子組成から予想される低磁歪のアモルファス合金膜の軟磁性が得られている⁶⁾。 SiO_2 vol. % が 20 までの範囲では H_c は 0.2 Oe でほぼ一定であり、 ρ は $10^3 \mu\Omega \text{ cm}$ まで単調に増加する。 一方、 H_k はこの範囲において 30 Oe から 50 Oe を示し、 基板回転方向を磁化困難軸とする一軸異性が観測される。 SiO_2 vol. % が 20 から 30 の範囲では、 ρ は増加を続けて $10^4 \mu\Omega \text{ cm}$ 以上に達する一方、 H_k が急激に減少するとともに H_c が増加して軟磁性が失われる。 SiO_2 vol. % が 30 以上の範囲では、 H_c は増加から減少に転じ、 ナノ結晶グラニューラ膜と同様に常磁性成分が増えた場合と同じ傾向を示す⁵⁾。 また、 ρ も減少するが、 この傾向はこれまで報告されている抵抗値増大の傾向^{5), 7)}とは異なっている。 原因は不明であるが、 SiO_2 vol. % の大きい範囲で ρ 、 $4\pi M_s$ の値のばらつきが目立つことに関連していると考えられる。

以上のことから、 SiO_2 vol. % が 20 付近で高抵抗軟磁性が得られることがわかった。

3.2 磁気特性と結晶構造

Fig. 2 は上述した試料の典型的な M-H 曲線 A, B, C とそれらの膜の XRD パターンを示す。 A, B, C に対応して SiO_2 vol. % が

Fig. 2 M-H curves and XRD patterns of the films corresponding to A, B and C.

20, 23, 35 の膜をそれぞれ示した。 XRD では、 低入射角 $\theta = 1$ deg. で固定したまま回折角 2θ の回折強度を測定しているため、 基板からの回折線を含まない回折パターンが得られている。 A, B, C の回折パターンは $2\theta = 45$ deg. 付近に Co-Fe 系アモルファス合金膜のハローパターンを示している。 Co-Fe 系微結晶、 Co-O 系微結晶などのピークも観察されないことから、 おそらく複相構造からなるアモルファス高抵抗膜が実現されていると推察される⁷⁾。 詳しくは透過電子顕微鏡による微視的構造の

検討を要する。A,B,Cに示した M - H 曲線は、Fig.1に示したように SiO_2 の添加量によって顕著に変化している。XRDパターンからそれらの磁気特性を直接に説明することは困難であるが、この複相構造の変化に起因した磁気特性を示すものと推察される。

Aは高電気抵抗と軟磁性が得られる典型的な M - H 曲線を示し、これまで報告されている軟磁性複相アモルファスの構造⁹⁾を示しているものと考えられる。Bの M - H 曲線は、 SiO_2 vol. %が増加して H_k が急激に減少する過程で見られる M - H 曲線である。

Fig. 3 Dependence of the magnetic properties, electric resistivity, and XRD patterns on the annealing temperature T_a for CoFeB-SiO₂ films.

この曲線は磁歪あるいは垂直磁気異方性がある場合の特徴を示している。この膜では歪み取り熱処理の効果も顕著に見られないことから、このような特徴は膜厚方向の複相構造に由来する微視的な形状異方性に起因すると考えられる¹⁰⁾。 SiO_2 vol. %がさらに大きい領域では、Cの M - H 曲線のように曲線の傾きが減少して保磁力も低下する。この傾向は、ナノ結晶グラニューラー高電気抵抗膜の場合と同様に⁵⁾、非磁性アモルファス相による磁氣的相互作用の分断と常磁性成分の増加に起因するものと考えられる。

3.3 磁気特性と電気抵抗の熱処理依存性

熱処理による磁気特性の改善の効果を調べるために、Fig. 3はFig. 2 Aに示した高抵抗軟磁性膜の磁気特性およびXRDパターンの熱処理依存性を示す。磁気特性および電気抵抗は熱処理温度 T_a が300℃以下では変化しないことから、デバイス作製プロセスにおいても熱的に十分安定であると考えられる。 T_a が300℃以上の範囲では、 H_k および ρ が減少するとともに H_c は急増して軟磁性が失われる。この過程において、XRDパターンにはアモルファス構造を示すブロードピークのほかに、 2θ が21 deg.付近にピークが現れ、何らかの構造の変化があると考えられる。しかし、このピークがCo-O、Si-OおよびB-O系の微結晶によるものかは明確ではなく、なお詳しい検討を要する。

以上の結果、熱処理による H_k の制御および軟磁気特性の改善効果は認められなかった。

3.4 高周波磁気特性と鉄損

Fig. 2 Aに示した高電気抵抗軟磁性膜の高周波 B - H 曲線の一例をFig. 4に示す。最大磁束密度 $B_m = 0.1$ T, 周波数 $f = 1$ MHzで磁化困難軸方向に磁界を印加して測定したものである。

Fig. 4 Example of a B - H curve of CoFeB-SiO₂ film in the high-frequency range.

この曲線は保磁力の低い直線的なレーリー曲線となっており、大振幅磁界下においても異方性磁界を反映した一定の傾きをもつ。保磁力 H_{mc} は 0.031 Oe で固有保磁力の 15 % を示している。パワー磁気デバイス用の薄膜磁心では、インダクタコイルの Q 値および銅損と関連して μ が大きいことが望ましい¹¹⁾が、この膜の透磁率 μ は 207 と小さく、 H_k の低減による μ の改善が今後の課題であると考えられる。 μ は測定した周波数範囲内 (0.5 ~ 3 MHz) でほとんど一定であり、複素透磁率 μ'' も μ' の 1/100 以下であった。

Fig. 5 は高周波 B - H 曲線の面積から求めた一周あたり鉄損 W_c の周波数依存性を示す。図中には市販の高周波フェライト (TDK (株), PC40 相当)、著者らがこれまで報告した $\text{Fe}_{46}\text{Al}_{21}\text{O}_{33}$ 高電気抵抗膜⁵⁾ ($H_c=0.9$ Oe $\rho=1700 \mu\Omega\text{cm}$, 膜厚 $2.0 \mu\text{m}$), CoFeCrSiB 極薄アモルファス薄帯⁹⁾ ($H_c=0.02$ Oe, $\rho=120 \mu\Omega\text{cm}$, 厚さ $4.8 \mu\text{m}$) と比較して CoFeB-SiO_2 膜の鉄損を黒丸印で表した。

CoFeB-SiO_2 膜 ($H_{ch}=0.2$ Oe, $\rho=2200 \mu\Omega\text{cm}$, 厚さ $1.6 \mu\text{m}$) の鉄損は 1 MHz で 0.96 J/m^3 を示し、フェライトよりも低く、 CoFeCrSiB 極薄帯に匹敵する低い損失を実現しており、 CoFeB-SiO_2 膜と同程度の厚みと ρ をもつ $\text{Fe}_{46}\text{Al}_{21}\text{O}_{33}$ 膜の約 1/7 となっている。 CoFeB-SiO_2 膜の鉄損が $\text{Fe}_{46}\text{Al}_{21}\text{O}_{33}$ 膜の約 1/7 に減少している主な理由は、両者のヒステリシス損失の大きな違いにあると考えられる。すなわち、 $B_m=0.1$ T におけるヒステリシス損失の測定値は、前者では $0.7 \sim 0.8 \text{ J/m}^3$ であるのに対し、後者では $4.9 \sim 6.0 \text{ J/m}^3$ であり、前者は後

をもっているため、非常に小さな渦電流損失が見込まれるが、本研究で得られた両者の鉄損値はほぼ等しくなっている。この理由は、後者の H_c が前者に比べて一桁以上小さく、ヒステリシス損失が CoFeB-SiO_2 膜の 1.3 ~ 1.4 % (0.01 J/m^3 以下⁸⁾) と非常に小さいこと、また磁化機構の差異などによるものと考えられる。

これらの定量的な関係については、膜のヒステリシス損失と渦電流損失との正確な分離、磁化機構の検討などが必要であり、今後の課題であると思われる。

4. まとめ

ガラス基板上に $(\text{CoFeB})-(\text{SiO}_2)$ 系膜を二元同時 rf マグネトロンスパッタ法で作製した結果、以下の知見を得た。

- 1) SiO_2 を混入することにより、高電気抵抗を有するアモルファス軟磁性膜を作製することができた。 SiO_2 vol. % が 20 において $\rho=2200 \mu\Omega\text{cm}$, $H_{ch}=0.20$ Oe, $H_k=40$ Oe, $4\pi M_s=7.3$ kG の特性が得られた。
- 2) 上記高抵抗軟磁性膜において、 $B_m=0.1$ T, $f=1$ MHz, $\mu=200$ で鉄損値 0.96 J/m^3 を得、ヒステリシス損失の大幅な低減によって Co 基極薄超急冷アモルファス軟磁性薄帯に匹敵する低損失膜が得られることがわかった。

謝辞 高周波 B - H 曲線および鉄損の測定に多大の御協力をいただいた (株) 仙台技術研究所 荒井、長谷川 両氏に深く感謝の意を表します。

文献

- 1) T.Sato, H.Tomita, A.Sawabe, T.Inoue, T.Mizoguchi, and M.Sahashi: IEEE Trans.Magn., 30, 217 (1994).
- 2) T.Serada, K.Tsukamoto, and T.Yachi: IPEC., 417, (1955).
- 3) 山沢清人, 駒井栄一, 早川康男, 畑内隆史, 牧野彰宏: 日本応用磁気学会誌, 21, 677 (1997).
- 4) 富田宏, 溝口徹彦: 日本応用磁気学会誌, 22, 437 (1998).
- 5) 宗像 誠, 山岡 雅則, 八木 正昭, 島田 寛: 日本応用磁気学会誌, 22, 669 (1998).
- 6) 宗像 誠, 山岡 雅則, 八木 正昭, 島田 寛: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-98-17, 25 (1998).
- 7) H.Matsuyama, H.Eguchi, and H.Karamon: J.Appl.Phys. 67, 5123 (1990).
- 8) M.Yagi and T.Sawa: IEEE Trans.Magn., 26, 1409 (1990).
- 9) R.Handley and C.Chou: J.Appl.Phys. 49, 1659 (1978).
- 10) 加藤和照, 武野幸雄, 北上修, 島田寛: 日本応用磁気学会誌, 21, 1088 (1997).
- 11) 菅原英州, 矢野健, 大槻悦男, 白川究, 増本健: マグネティックス研究会資料, MAG-98-252, 77 (1998).

Fig. 5 Frequency dependence of the core losses of the film and the other core materials.

者の 7 ~ 8 倍の値になっている。

他方、 CoFeB-SiO_2 膜と CoFeCrSiB 極薄帯を比較すると、前者は後者に対して膜厚 (板厚) が約 1/3 で、 ρ が約 10 倍の値