磁性膜の微細パターン化による磁気異方性の制御 Control of Magnetic Anisotropy by Micro-patterning Magnetic Thin Films

末沢健吉, 山口正洋, 荒井賢一, 島田 寛*, 田邊信二**, 伊東健治**

東北大学電気通信研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

*東北大学科学計測研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

**三菱電機先端技術総合研究所, 尼崎市塚口本町 8-1-1 (〒661-0001)

K. Suezawa, M. Yamaguchi, K. I. Arai, Y. Shimada*, S. Tanabe**, and K. Ito**.

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

*Research Institute of Scientific Measurements, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

**ATC Mitsubishi Electric Corp., 1-1, Tsukaguchi-Honmachi 8-chome, Amagasaki, Hyogo, 661-0001

(1999年 10月 29日受理, 2000年 1月 25日採録)

Micro-patterned narrow parallel rectangles of soft magnetic films shift the intrinsic ferromagnetic resonance frequency of the films toward higher frequency ranges because of the increase in shape anisotropy energy. As a results, loss generation at the intrinsic ferromagnetic resonance frequency can be decreased. The hard axis of magnetization of a single film substrate can be bi-directional if bi-directional parallel rectangles are micro-fabricated. This is quite useful in enhancing the inductance of magnetic thin-film inductors and transformers having rectangle planar spiral coils; the direction of the magnetic hard axis of the film and parallel each other at each leg of the spiral.

Key words:

shape anisotropy, single domain structure, ferromagnetic resonance frequency, annealing without magnetic field

1. はじめに

我々はこれまで携帯移動体端末機器の受信回路中において 0.8GHz~1.9GHz 帯域で使用されている薄膜インダクタの小形化を検討してきた¹⁾。薄膜インダクタは正方形のスパイラルコイルから成る。抵抗率 $\rho \geq 100 \mu\Omega\text{cm}$ を有し使用周波数帯域で $\mu_r' \geq 100$, μ_r'' が小さい磁性膜をコイル上に絶縁層を一層介して 0.1 μm 積むことで実用的なレベルである 20%~30%のインダクタンスの上昇が可能である見通しが得られている²⁾。この条件を満たすためには磁性膜は使用周波数帯域での自然共鳴損失を抑えるのに十分な一軸磁気異方性エネルギーを持つ必要がある。この要求に対し我々は磁性膜を細長い短冊状に微細パターン化し反磁界で磁気異方性エネルギーを制御する試みを行ってきた^{1), 3)}。一方、一軸異方性膜をそのまま適用するとコイル 4 辺において励磁方向と磁性膜の磁化困難軸方向を一致させることは不可能である。しかし反磁界で磁性膜の磁化容易軸方向を制御し以上のことが可能であるならばインダクタ上の磁性膜を 100%使用可能になりインダクタンスを上昇させる上で非常に有利になる。そこで微細パターン化による磁化容易軸方向の制御について検討を行なった。

2. 磁気異方性の制御の原理

過去に逆磁歪効果を利用し磁性膜の磁化容易軸方向の制御を行なった例がある⁴⁾。本研究では磁性膜を Fig. 1 に示すように互いに直交する短冊状に加工し、反磁界で磁化を各々の短冊長手方向に向け、その状態で熱処理を施すことで磁化容易軸を目的とする 2 方向に誘導することを考えた。Fig. 1 より明らかなように磁化容易軸の方向を 45° 範囲で制御可能であれば、互いに直交する方向に磁化容易軸を誘導可能である。

Fig. 1 Rectangles formed at right angles to each other.

3. ドメイン構造の計算

以上に述べた原理で磁性膜の磁化容易軸方向を制御するには、形状異方性で膜中の磁化をほぼ一方向に揃えることが必要である。そこで本章で短冊状磁性膜中の磁区構造について検討する。短冊状磁性膜中の磁化は静磁エネルギーの出現を避けるため短冊内部で閉じていると推察される。この仮定に基づく、短冊内部でとりうる磁区構造として Fig. 2 に示す (a) 多磁区構造, (b) 単磁区構造が考えられる。ここで短冊の長さは長手方向端部の磁区構造への影響が無視できる位十分に長いとしている。(a) 多磁区構造は短冊の側面では磁化が長手方向が短冊中央部では磁気異方性エネルギーを下げるために磁化が磁性膜の磁化容易軸方向を向き、結果として短冊内の磁化容易軸の向きを制御できないケースである。

Fig. 2 Theoretical magnetic domain structures in rectangle magnetic film. (a) Closure domain structure, (b) Single domain structure. $\leftarrow$ shows magnetization, θ shows angle between easy axis and length directions.

(b) 単磁区構造は短冊内部のすべての磁化が形状異方性で長手を向くケースである。どちらの構造が実現するかはエネルギー的な安定度に依存すると思われる。そこで各々の磁区構造のエネルギーを計算より見積もった。多磁区構造における短冊の単位長さ、単位膜厚当たりの磁気エネルギー密度 σ_{multi} (erg/cm²) は

$$\sigma_{\text{multi}} = \frac{K_u \sin \theta}{f} (w_m - x) + \frac{2}{f} \left\{ \frac{\sigma_\theta}{\sin \frac{\theta}{2}} + \frac{\sigma_{\pi-\theta}}{\cos \frac{\theta}{2}} \right\} + \frac{2\sigma_{180}}{f \sin \theta} \frac{x}{w_m - x} \quad (1)$$

(1) 式で表される。(1) 式中の f は、(2) 式の関係がある。

$$f = \tan \frac{\theta}{2} + \frac{1}{\tan \frac{\theta}{2}} \quad (2)$$

単磁区構造の場合のエネルギー密度 σ_{single} (erg/cm²) は、(3) 式で表される。

$$\sigma_{\text{single}} = K_u \sin^2 \theta w_m \quad (3)$$

(1) 式中の σ_θ , $\sigma_{\pi-\theta}$, σ_{180} は磁壁のエネルギー面密度 (erg/cm²) である。磁壁のエネルギー面密度の計算には磁気異方性エネルギー、交換エネルギー、静磁エネルギーを考慮し、磁壁内の磁化回転は一樣として近似している。ここで静磁エネルギーは楕円体近似で評価している。以上のモデルに従うと磁壁のエネルギー面密度は与えられた試料膜厚 t_m 、磁壁間の磁化のなす角、磁壁に対する磁気異方性の向きに対して求まる⁴⁾。本計算では個々の磁壁 σ_θ , $\sigma_{\pi-\theta}$, σ_{180} に対し Neel, Bloch 両磁壁モデルに基づきを計算しエネルギー値の小さい方を選択している。 K_u は磁性膜の磁気異方性エネルギー定数 (erg/cm³)、 θ は磁性膜の磁化容易軸と短冊長手方向のなす角、 w_m は短冊の幅である。 x は 180° 磁壁が存在する領域であり計算時には $d\sigma_{\text{multi}}/dx=0$ つまり σ_{multi} が最小値をとる条件より求まる。式(1),

(3) から明らかなように w_m , θ が変化すると両エネルギー密度の大小関係は変化することが予想される。実際の計算結果は後に実験結果と合わせて示す。

4. 実験方法

本研究では磁性膜の成膜は rf スパッタ法により Co₈₈Nb₁₂Zr₃ ターゲット (純度 99.9%, 直径 3inch × 厚さ 5mm) を用いて Ar 雰囲気中で行なった。投入電力は 200W, 到達真空度は 1.0×10^{-7} Torr 以下とし、成膜時の Ar 圧は 20mTorr とした。スパッタ装置内部に数 Oe の静磁界が存在するので成膜直後の段階で $H_k = 10$ Oe の一軸磁気異方性が磁性膜に付与されている。基板には 25 mm × 25 mm × 1 mm 厚のカバーガラスを使用し成膜中は水冷を行なっている。試料膜厚は薄膜インダクタに適用する際の膜厚と同等の 0.1 μ m 一定とした。ここでは同一基板上に直交する 2 方向に磁化容易軸を誘導することが目的なので一枚の 25 mm × 25 mm 磁性膜上に Fig. 3 に示すような 3.9 mm × 3.9 mm の範囲内に長さ 3.9mm × 幅 w_m の短冊が幅方向に間隔 d_m で並ぶ構造をしている微細パターンを短冊が互いに直交するよう複数配置し作製した。短冊内に働く形状異方性の大きさは短冊の長さ、幅 w_m 、間隔 d_m 、膜厚 t_m によって制御可能である^{5)~7)}。ここでは幅は $w_m = 10$ μ m もしくは 20 μ m と他のパラメータは $d_m = 0.6$ μ m, $t_m = 0.1$ μ m, $l_m = 3.9$ μ m とした。微細パターン化プロセスは電子ビーム露光器 (ELIONIX ELS-3700 ECA-6s) で描画を行ないイオンミリングで加工を行なった。熱処理は到達真空度 7×10^{-6} Torr 以下の雰囲気中で温度 400 °C, 時間 1h で行なった。試料の M-H 特性は VSM, 透磁率の周波数特性はパーミアンスメータ⁸⁾ を用いて評価した。

Fig. 3 View of rectangle patterns.

5. 実験結果

5.1 短冊状磁性膜の磁壁構造

先に述べたように短冊膜内部の磁区構造の制御が磁化容易軸方向の制御を可能にする重要なポイントである。そこで作製した短冊状試料の磁壁構造をピット法で観察した。ならびに Fig. 2 に示した計算モデルにより磁区構造の予測を行ない比較検討した。計算時に用いた磁性膜の特性パラメータは、交換スティフネス定数 1×10^6 erg/cm, 磁気異方性エネルギー定数 3978.9 erg/cm³ (i.e. $H_k = 10$ Oe), 飽和磁化 765.7 gauss である。磁気異方性エネルギー定数と飽和磁化は CoNbZr 膜の M-H 特性から評価した。交換スティフネス定数は CoNbZr 膜の値が不明なので

$\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 膜の値を用いた。Fig. 5 に寸法 (a) $w_m = 10 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ (b) $w_m = 20 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ の各短冊膜を磁性膜の磁化容易軸から $\theta = 10^\circ \sim 90^\circ$ の範囲で傾けて作製した際に短冊膜が多磁区構造 (実線) 又は単磁区構造 (破線) を有した時の各磁気エネルギー密度の計算結果と短冊試料中の磁壁写真を示す。計算より Fig. 5 (a), (b) 両者とも θ が増大するにつれて多磁区構造のエネルギーは減少し単磁区構造は増大する。(a) より $w_m = 10 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ では $\theta = 10^\circ \sim 90^\circ$ の範囲で単磁区構造が優勢であり、 $w_m = 20 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ では $\theta = 10^\circ \sim 70^\circ$ では単磁区構造が優勢であるが $\theta \geq 70^\circ$ では多磁区構造が優勢であることが分かる。試料中の磁壁構造と比較すると (a) $w_m = 10 \mu\text{m}$, $d_s = 0.6 \mu\text{m}$ において $\theta = 45^\circ$ で単磁区構造が得られ $\theta = 70^\circ$ で単磁区と多磁区が混在した構造が得られた。 $\theta = 45^\circ$ では計算と合うが、

$\theta = 70^\circ$ では計算と合わない。磁壁エネルギー中の静磁エネルギー項の評価には回転楕円体近似を用いる、ならびに磁壁からの漏れ磁束は考慮されていないので磁壁のエネルギーが実際よりも高めに評価されているものと推察される。Fig. 4 (b) より $w_m = 20 \mu\text{m}$, $d_s = 0.6 \mu\text{m}$ では $\theta = 45^\circ$ で単磁区が得られ $\theta = 90^\circ$ で多磁区構造が得られた。この結果は計算と良く合致した。また多磁区における三角の還流磁区の頂角はほぼ直角であり $d_s = 0.6 \mu\text{m}$ の範囲では隣り合う短冊同士の静磁結合によって短冊中の磁化の向きが変化する様子は観察されない。以上の結果より膜厚 $0.1 \mu\text{m}$ の Co 系アモルファス膜に $\theta = 45^\circ$ で短冊長さ 3.9 mm 幅 $10 \mu\text{m}$, $20 \mu\text{m}$ 短冊同士の間隔 $d_s = 0.6 \mu\text{m}$ の短冊状に微細パターン化した膜では単磁区構造が観察され、内部の磁化の向きを磁化容易軸より 45° 範囲で制御できたと思われる。このことは同一磁性膜上で互いに直交する向きに磁化の向きを誘導できることを示すものである。

Fig. 4 Domain configuration in rectangular films and calculated energies of (—) closure domain structure and (---) single domain structure in Fig. 2 as a function of angle θ . θ is the angle between the direction of film's anisotropy (K_u) and shape anisotropy (K_d). The rectangle has (a) $w_m = 10 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$ and (b) $w_m = 20 \mu\text{m}$, $t_m = 0.1 \mu\text{m}$.

5.2 高周波特性

これらの単磁区構造を持ち磁化の方向制御に成功した短冊試料幅方向の透磁率特性の測定を行なった。Fig. 5 (a) に透磁率実部 μ_r' , (b) に透磁率虚部 μ_r'' の特性を示す。

Fig. 5 Frequency characteristic of permeability of rectangular films of various sizes, for which o : not patterned, $\bullet$: $20 \mu\text{m}$ wide and $\square$: $10 \mu\text{m}$ wide.

同図中の黒丸 (●) が幅 $20\ \mu\text{m}$ の短冊状試料の特性で白四角 (□) が幅 $10\ \mu\text{m}$ の短冊状試料の特性である。白丸 (○) は微細パターン化を行っていない試料の磁化困難軸方向の特性であり比較のため示した。Fig. 5 (a), (b) より短冊幅が狭くなるに従い μ_r はより高周波までフラットであり μ_r の共鳴ピークがより高周波側にシフトする様子が分かる。形状異方性により磁化の共鳴を制御できていることが分かる。

形状異方性で磁化方向の制御された試料中の磁化回転の一様性を評価するために、これらの試料の短冊長手方向に静磁界 $300\ \text{Oe}$ を印加しながら熱処理を施し試料中の磁化容易軸を完全に長手方向に誘導し理想的な軸磁気異方性を有する試料を用意し、熱処理前の周波数特性との比較を行なった。短冊幅 $w_s = 10\ \mu\text{m}$ 膜厚 $t_s = 0.1\ \mu\text{m}$ を有する試料に対する測定結果を Fig. 6 に示す。同図中の白丸 (○) は熱処理前、黒丸 (●) は熱処理後の特性であり、(a) が透磁率実部、(b) がその虚部の特性である。白丸と黒丸の相違は白丸においては磁性膜自身の磁気異方性が短冊長手より 45° なす方向を向いており黒丸の試料では膜自身の磁気異方性が短冊長手方向を向いていることである。同一試料であり、熱処理による飽和磁化の変化は見とめられないので熱処理前後で形状異方性の

強さは変化しない。ところが Fig. 6 (a), (b) より熱処理を施すことで試料の自然共鳴周波数が $2.1\ \text{GHz}$ から $2.3\ \text{GHz}$ に増加が見られた。考えられる理由として熱処理前の試料内部の磁化には形状異方性以外に 45° 異なる方向に働く膜自身の磁気異方性が存在するので、膜中において磁化の方向が局所的な分布を持っていると推測される。その結果、完全に一様な軸異方性を有する試料と比較し試料中に現れる磁極の分布が変化し磁化に働く実効的な形状異方性の強さが変化していると推測される。ただし Fig. 6 より熱処理前後における共鳴ピークはほぼ同じ形状をしていることが分かる。このことは形状異方性により膜中の磁化を制御できていることを示すものである。

6. まとめ

以上の結果より磁性膜を短冊状に微細パターン化することで生じる形状異方性と無磁界中熱処理を併用し同一基板上に磁化容易軸を互いに直交する方向に制御可能であることが分かった。また合わせて磁気異方性の強さも制御し高周波特性を改善できることが分かった。

文献

- 1) M. Yamaguchi, K. Suezawa, K. I. Arai, Y. Takahashi, S. Kikuchi, Y. Shimada, W. D. Li, S. Tanabe and K. Ito, *J. Appl. Phys.* (1999.6 in press).
- 2) S. Tanabe, Y. Shinki, M. Takada, M. Yamaguchi and K. I. Arai, *Technical Report of IEE Japan*, MAG-98-15 (1998).
- 3) M. Terasaka, M. Mitara, K. Shirakawa, F. Matsumoto, Y. Motoi, H. Fujimori and T. Masumoto, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **18**, 431-436 (1994).
- 4) S. Middelhoeck, *Ferromagnetic Domains in Thin Nickel Iron Films*, Ph. D. Thesis, University of Amsterdam, 1960.
- 5) O. Geoffroy, D. Givord, Y. Otani, B. Pannetier and F. Ossart, *J. Magn. Magn. Mat.*, **121**, 223 (1993).
- 6) S. J. Blundell, C. Shearwood, M. Gester, M. J. Baird, J. A. C. Bland and H. Ahmed, *J. Magn. Magn. Mat.*, **135**, L17 (1994).
- 7) A. Maeda, M. Kume, S. Oikawa and K. Kuroki, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **19**, 309-312 (1995).
- 8) S. Yabukami, M. Yamaguchi, K. I. Arai, H. Ando, A. Itagaki and M. Watanabe, *INTERMAG99, AQ-02* (April 1999, Kyongju, Korea).

Fig. 6 Effect of dispersion of magnetization on frequency characteristic of permeability.