

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25年 5月 27 日現在

機関番号：37401
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22560310
 研究課題名（和文）巨大一軸異方性磁界を誘導した 20GHz 超動作のマイクロ波電磁界収束材料の開発
 研究課題名（英文）The Development of Micro-Wave Magnetic Thin Film Materials for the Operating over 20 GHz with Inducing of a Giant Uni-axial Anisotropy Magnetic Field
 研究代表者 宗像 誠 (MUNAKATA MAKOTO)
 崇城大学・情報学部・教授
 研究者番号：10183112

研究成果の概要（和文）：マイクロ波電磁界収束材料としてカールセルスパッタ法による原子堆積機構をナノ界面下地層の表面エネルギーと Co-Fe の結晶配向から解析し、希土類を添加から誘導される結晶磁気異方性が一軸磁気異方性となり得ることを示した。CoFeSmB/X 膜の製作開発を行った結果、20 GHz 動作相当以上の当初予定の数 kOe の巨大一軸異方性磁界を誘導することができた。

研究成果の概要（英文）：The micro-wave magnetic thin film materials of CoFeSmB/X for the operating over 20 GHz were researched and developed according to analysis of atomic deposition. A giant uni-axial anisotropy magnetic field of several kOe was induced in accordance with operating over 20 GHz.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 ・ 電気電子材料工学

キーワード：巨大一軸磁気異方性、マイクロ波電磁界収束材料、高周波数領域（20-30 GHz）動作、（磁性体／誘電体）ハイブリッド積層構造

1. 研究開始当初の背景

電磁界収束材料は、伝送路の短縮やインダクタ・キャパシタ素子のマイクロ化・集積化・多機能化のために必須で有効な材料である。

本研究で目指す新しいマイクロ波電磁界収束材料は、現在未踏の高周波数領域（20-30 GHz）で働く材料であるが、申請者らが最近報告した 5-10 GHz 域の材料特性が現在まで国内外をリードした最高記録になっている。

以上の点を、特に 2-5 kOe 程度の一軸異方性磁界（巨大一軸異方性磁界）について理論的・実験的に解析を行い、デバイス化に

有効な電磁界収束材料の創生ための製膜技術を確立しようと着想している。

2. 研究の目的

本研究は、次のとおり、世界初の高周波数 20-30 GHz で高透磁率・超低損失で働く、巨大一軸異方性磁界と高飽和磁化とを合わせ持つ特異な[磁性体／誘電体]ハイブリッド積層構造の新しいマイクロ波電磁界収束材料を開発することを目的としている。

以上の目的の計画開始初年度においては、研究代表者が世界最高の強磁性共鳴周波数

(FMR) 10 GHz 超を達成した CoFe ナノ結晶膜の磁気共鳴 (FMR) 周波数を引き上げるため、Sm ほか希土類元素の添加を行い、硬質磁石磁性に由来する大きな結晶磁気異を高精度で一軸配向化させる下地層の製膜条件を求め、それらの製膜機構と巨大一軸異方性との因果関係を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 製膜方法

製膜は、カルーセル (英: メリーゴーランド) スパッタ法 (三元同時 RF マグネトロンスパッタ法) により、各ターゲットを用いて通常 Ar 雰囲気中で行われる。同図に示すように、円筒型電極の側面に基板が配置され、円筒の中心軸を回転軸として基板が電極とともに高速回転 (140.r.p.m) することによって各粒子が基板上に混合しながら堆積する。Ru 下地層の作製においても、同じ回転速度の円筒型電極の水冷基板に、同じ圧力の Ar 雰囲気中で行われる。製膜した試料の評価は as-deposition 状態で行い、静磁気特性には試料振動型磁力計 (VSM) を用い、構造解析には 2θ および $\theta/2\theta$ による X 線回折 (XRD) を用いて行った。膜面の観察と表面の凹凸測定には、3次元 SEM (3DSEM) を用いた。

(2) 計算モデルと計算方法

本シミュレータでは、膜の形成および堆積の様子を解析するために、自由気体分子運動論を用いたモンテカルロシミュレーションを適用した。シミュレーションプロセスを以下のように実行し、スパッタ粒子の輸送過程、基板面 (壁面) へ到達する粒子の入射位置やエネルギー・角度の分布を求めた。

① 装置空間のモデル化と要素化

装置のターゲット電極と円筒型基板電極の空間配置は、三次元 CAD (Computer Aided Design) によりモデル化し、JMAG を用いてそれらの形状データや粒子が飛来する空間を要素化した。

② スパッタ粒子の放出

スパッタ粒子の放出位置は、実験値から得られるエロージョン分布によって指定し、各ターゲット位置から $1/\cos\phi$ (放出角度 ϕ は、ターゲットに対する法線とのなす角度) の割合で放出させた。

③ 平均自由行程の計算

スパッタ粒子とガス粒子は質量とエネルギー、電荷によって指定し、スパッタ粒子の平均自由行程は、粒子密度 n と散乱断面

積 σ の逆数 $1/(n\sigma)$ [m] および速度の (Boltzmann) 分布関数を指定した。

④ 衝突・散乱過程

ガス (Ar) 粒子のスパッタ粒子に対する入射方向は等方的であると仮定し、確率的に入射方向を定めると同時に、二粒子の重心系での散乱角の分布や二粒子間の衝突の反発係数などを仮定した。

4. 研究成果

(1) 下地層を適用した CoFe/Ru 二層膜の磁気特性

Fig.1 (a), (b) に CoFe 単層膜 (a) と Ru 下地層の厚さ 20\AA の CoFe/Ru 二層膜 (b) における M-H 曲線を示す。二層膜の M-H 曲線においては、単層膜に比べて H_k の著しい増加が見られ、単層膜の約 3 倍 (1000 Oe) の大きな H_k が得られている。このことは、下地層が H_k の増加を促し、膜面内の一軸磁気異方性を大きくする効果があることを示す。得られた異方性磁界の大きさはこれまで報告されている CoFe 膜および CoFeB 膜の値の 2~50 倍程度であり、静磁気特性から見られる範囲では経験的に膜厚方向および膜面内方向にマイクロな範囲で分散が少なく考えられる明瞭な一軸磁気異方性を示している。この異方性磁界と飽和磁化 23kG から予想される強磁性共鳴周波数は 10GHz 以上で、高周波比透磁率も約 20 に達する。

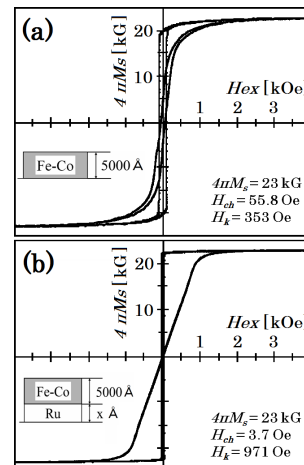


Fig. 1 M-H loops along easy and hard axes of magnetization for CoFe single layer (a), and CoFe/Ru double layer (b), with the underlayer thickness of 20\AA .

Fig.2 に、Fig.1 (a), (b) の M-H 曲線をそれぞれ持つ CoFe 単層膜、CoFe/Ru 二層膜の (110) 配向の分布 (a), (b) を示す。 ϕ は、

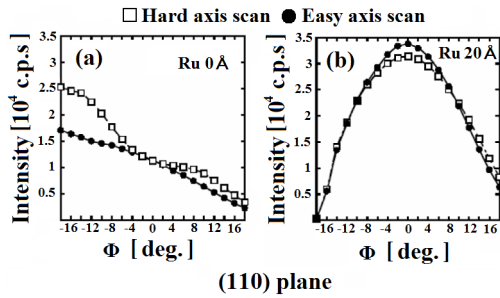


Fig. 2. (110) orientation profiles of φ for CoFe single layer (a) CoFe/Ru double layer (b), with the underlayer thickness of 20 Å.

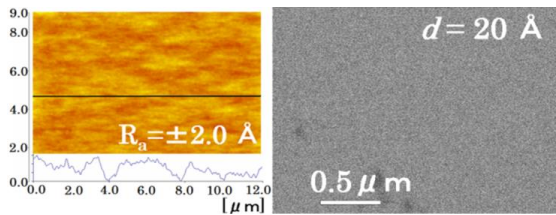


Fig.3. 3DSEM surface image of the Ru underlayer and the scanning profile of asperity for $d=20$ Å, before CoFe layer was deposited.

結晶面の法線と膜面の法線とのなす角度で、極点図形における角度 α に相当する。さらに、極点を中心とする回転の角度 β は、膜の容易磁化軸方向および困難磁化軸方向に対応している。Fig. 2 (a), (b) では、下地層が (110)面の配向を起こさせていることがわかる。下地層無し (a) : (Ru 0 Å) の場合ほとんど配向が見られないのに対し、下地層 (b) : (Ru 20 Å) がある場合は容易磁化軸方向および困難磁化軸方向においても同程度に $\varphi=\pm 16^\circ$ の範囲に分布している。

Fig.3 は $d=20$ Å の Ru 下地層表面の 3DSEM 像を示す。ガラス基板の表面は、全面に渡って非常に細かい凹凸コントラストを示す Ru 層で覆われていることが観察される。観測される表面の粗さも $\pm 2.0\text{-}2.5$ Å 程度で島状の構造は見られない。このことは、下地層物質のガラス基板に対する表面エネルギーが非常に小さくなり、配向が促進されていることがわかった。

Fig.4 (a), (b) にカーセルスパッタ法と二極スパッタ法の Ru 下地層の計算による膜厚分布を示す。粒子数を膜厚とした。同図 (a) は、基板の回転角度 α 毎に粒子数を計測することによってカーセルスパッタ法の基板移動を再現した。同図 (b) は、基

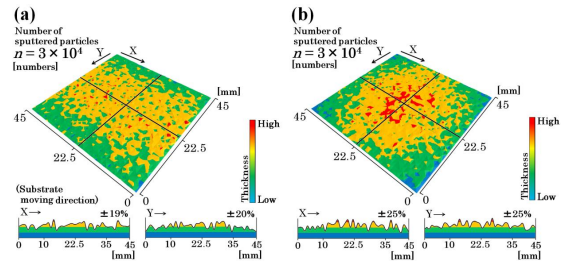


Fig.4 Calculated Distribution of Ru films thickness for the carousel sputtering method (a) and the diode sputtering method (b).

板位置をターゲット正面 ($\alpha = 0^\circ$) で固定し、粒子数を計測した。膜の成長を左右する表面エネルギーは、一般に単位面積当たりの結合の強さで表わされるが、ここでは、表面積を表面エネルギーとして比較を行った。

同図 (a) のカーセルスパッタ法における膜表面の粗さは $\pm 19\sim 20\%$ であり、実験結果 Fig.3 における下地層表面の粗さとほぼ一致している。この値は、同図 (b) の二極スパッタ法の粗さ $\pm 25\%$ と比べて約 $\pm 5\sim 6\%$ 低く、表面エネルギー (表面積) においても、カーセルスパッタ法 (a) は二極スパッタ法 (b) に比べて約 10% 低い。この結果は、基板移動の有無によって下地層の表面エネルギーが減少することを示している。

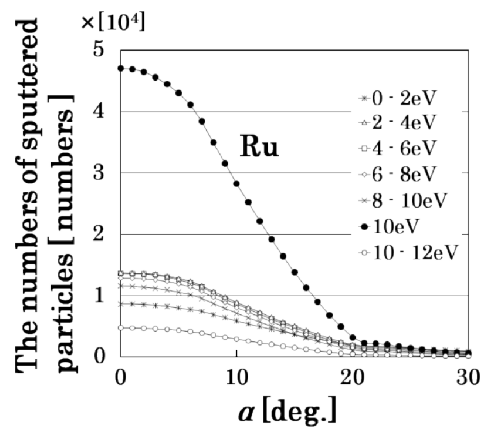


Fig. 5 The numbers of sputtered particles of Ru depending on the α of incident deg..

Fig. 5 に入射エネルギーをパラメータとして Ru 粒子の基板の回転角度 α (Ru ターゲット 0° 正面) と粒子数を示す。ここで、 $\alpha = 0^\circ$ におけるエネルギー値は、二極スパッタ法のエネルギー分布を示している。二極ス

パッタ法では、10eVの放出エネルギーを維持している粒子が全粒子数の約半数の43%を占める。これは、粒子の平均自由行程がターゲットと基板との距離よりも長いためである。他の57%の粒子は、Arとの衝突によってエネルギーを失ったことを意味する。

一方、カールセルスパッタ法では、Arと衝突する粒子が全体の71%まで増加する。これは、基板移動によってターゲットと基板との距離が増加し、スパッタ粒子とガスとの衝突確率が増加したためである。これらの低エネルギー ($0 \leq E < 10$ [eV]) 粒子の増加は、入射角度の等方化および基板全体に均等に粒子が入射することを示唆しており、Fig.4で示した膜厚を形成する重要な要因となっていると考えられる。

以上の結果から、カールセルスパッタ法においては、他のスパッタ法に比べ、下地層による表面エネルギーの減少効果が有効に働き、さらに磁性薄膜の異方性入射効果も促進され、膜厚方向においても顕著なコラムナー構造や凹凸が生じにくい製膜機構になっており、多層構造を形成すること無く膜面内において分散の少ない一軸磁気異方性が得られる可能性（メリーゴーランド原子堆積効果と命名）を明らかにした。

(2) 下地層を適用した CoFeSmB/X 膜の静磁気特性

=====

本研究課題の実施期間中には、東北大地震による共同研究者らの周辺共同研究停滞、および中国からの希土類元素Sm輸出のストップによる材料ターゲット価格の急騰のため、1年3ヶ月に渡り CoFeSmB/X 膜の製作開発が遅延した。そのため、論文・講演発表も遅延しており、薄膜の原子組成および下地層の元素は、論文発表後明示する予定であるが、現今ではこの表示言及に留まる。

この項では、現今実験的に詳細を探索して明らかにする必要があるが、研究目的である巨大一軸磁気異方性についてはほぼ達成されたことを成果として報告する。

=====

(1)に記した新規知見情報から CoFe の Fe または Co を、SmおよびBで置換し、下地層はRuではなくX原子(論文発表後明示す

る予定としている)として理論的探索も含め、CoFeSmB/X膜の製作開発を行った。

Fig.6にCoFeSmB/X膜の静磁気特性を示す。当初の目的の5kOe程度の巨大一軸磁気異方性(異方性磁界)が得られている。

ただし、結晶構造・結晶配向構造などについては現今においても前記緒事情から追求中である。

この静磁気特性は、理論的にも実験的にも当初目的の20GHz動作の電磁界収束材料創生の要諦を満たしている。しかしながら、実際のGHz高周波特性(高周波透磁率については測定方法皆無で、研究代表者が連携しているスウェーデン工科大学(グリシンら)や岡山大学(河本ら)が精力的に実

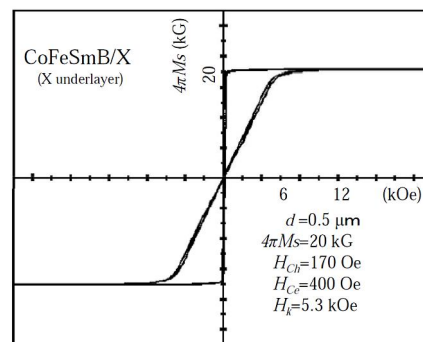


Fig.6 *M-H* loops along easy and hard axes of magnetization for CoFeSmB/X double layer of the underlayer X.

験研究の途にある。強磁性共鳴周波数プロファイルについてはこれらの研究機関が世界でトップの計測技術を保持していると考えられ、今後の共同研究を予定している。)については今後の学問的な確認と計測評価方法の確立が必要である。

(3) 結果・成果のまとめ

- ①巨大一軸異方性磁界と高飽和磁化とを合わせ持つ特異なマイクロ波電磁界収束材料を開発した。
- ②CoFeSmB/X膜の製作開発の結果、ほぼ巨大一軸異方性磁界と高飽和磁化とを実現した。
- ③内外・社会の事情により研究遅延があったが、中途要因が有りながらも、所定の要件はほぼ達成した。(この成果は、発展的にさらなる公的研究資金源に申請予定)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 8 件)

- ① A. Sato, S. Yabukami, T. Ozawa, Y. MiYazawa, K. Yanagi, Y. Shimada, M. Munakata, and T. Shokawa : Measurment of Broadband Permeability in Thin Film by Using Microstrip Line Probe, (J. Magn. Soc. Jpn., 2012, Vol. 36, pp. 235-238) 査読有
https://www.jstage.ist.go.jp/article/msjmag/36/3/36_1205R012/_pdf
- ② 宗像誠 : The Magnetic Integration - An Approach for on-chip micro-devices with utilizing FMR of nano -structured magnetic thin film materials - (強磁性共鳴を利用した磁性薄膜材料からのアプローチ) : (エネルギーエレクトロニクス研究所論文報告 (産業応用編) Vol.18, 2012, pp. 19-51) 査読有
- ③ S. A. Manuilov, A. M. Grishin, and M. Munakata: Ferromagnetic resonance, magnetic susceptibility, and transformation of domain structure in CoFeB film with growth induced anisotropy (Journal of Applied Physics, 2011, Vol. 109, 083926, p. p. 1-13) 査読有
doi:10.1063/1.3559732
- ④ S. Yabukami, A. Sato, M. Munakata (9 名 9 番目) :Thin Film Permeability Evaluation Based on Skin Effect Using Meander-Type Probe Up to 10.6 GHz (IEEE Transaction on Magnetics Vol. 47, No10, 2011, pp. 2570-2572) 査読有
<http://www.tohoku-gakuin.ac.jp/faculty/engineering/elec/staff/yabukami.html>
- ⑤ R. Imaizumi, M. Munakata, M. Ohkoshi, K. Maki, S. I. Aoqui: Effect of Nano-Interface of Ru Underlayer in the Carrousel Sputtering Method (Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol. 36, 2011, No. 3, p. p. 487-490) 査読有
<http://www.mrs-j.org/pub/tmrsj/cont36-3.pdf>
- ⑥ 今泉 良一, 宗像 誠, 大越 正敏, 榎孝一郎 : カルーセルスパッタ法で作製した CoFe 系 GHz 帯磁性薄膜の異方性入射効果と原子配列 (電気学会 A 部門論文誌 131 巻 7 号, 2010, pp. 117-123) 査読有
<https://www.jstage.jst.go.jp/FF01S040Init/-char/ja/?sourceurl=%2Farticle>

%2Fieejfms%2F131%2F7%2F131_7_499%2F_pdf

- ⑦ M. Munakata, S-I. Aoqui, M. Ohkoshi (7 名 1 番目) : Crystal Orientation of $\text{Co}_{35}\text{Fe}_{65}$ Thin Film for the GHz Frequency Use with More than 10 GHz (J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 34, No. 3, 2010, pp. 248-253) 査読有
<https://www.jstage.ist.go.jp/brows/msjmag/-char/ja/>
- ⑧ 今泉良一, 宗像誠, 大越正敏 (5 名 2 番目) : カルーセルスパッタ法で作製した高異方性磁界を持つ CoFeB 膜におけるスパッタ粒子の異方性入射効果 (J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 34, No. 3, 2010, pp. 226-231) 査読有
<https://www.jstage.ist.go.jp/brows/msjmag/-char/ja/>

〔学会発表〕(計 9 件)

- ① 宗像誠 : The Magnetic Integration ó An Approach for on-chip micro-devices with utilizing FMR of nano -structured magnetic thin film materials - (強磁性共鳴を利用した磁性薄膜材料からのアプローチ) : エネルギーエレクトロニクス研究所報告シンポジウム : 2012 年 10 月 6 日 崇城大学中山記念講演ホール (熊本県)
- ② 佐藤彰, 藪神信, 小澤哲也, 宮澤安範, 柳邦雄, 島田寛, 宗像誠, 塩川孝泰: マイクロストリップ方プローブによる膜透磁率計測の広帯域化 : 日本磁気学会学会術講会 : 2011 年 9 月 28 日 : 講演番号 4pD-1
- ③ M. Munakata, R. Imaizumi, M. Ohkoshi, K. Maki, and S.I. Aoqui: ffect of Nano-Interface of Ru and Cu Underlayer in the Carrousel Sputtering Method : IEEE. International Magnetics Conf.: MAGCON-09-02 ó 0280:4/29, 2011 in Taipei
- ④ Yabukami and M. Munakata: Thin film permeability evaluation based on skin effect using meander type probe up to 10.6 GHz, IEEE. International Magnetics Conf.:MAGCON-11-02-0270 : 4/25, 2011 in Tapei

- ⑤ R.Imaizumi, M.Munakata, M.Ohkoshi,
K.Maki, S.I.Aoqui : Anisotropically Incident
Effect of Sputtering Particles on Crystal
Orientation of $\text{Co}_{35}\text{Fe}_{65}$ Thin Films in the
Carrousel Sputtering Method : Twentyth The
Materials Research Society of Japan
Symposium / 20th MRS-J Symposium :
Kaiko Kinen-kan, Yokohama,
A-23-MS :December, 21, 2010
- ⑥ 今泉 良一, 宗像 誠, 大越 正敏, 榎
孝一郎 : カルーセルスパッタ法における
異方性入射粒子の形成と堆積に及ぼす下
地層の影響 : 電気学会マグネティックス
研究会 : 崇城大学 : 2010 年 12 月 17 日 :
講演番号 MAG-10-210
- ⑦ R.Imaizumi, M.Munakata, M.Ohkoshi,
K.Maki, S.I.Aoqui : Anisotropically Incident
Effect of Sputtering Particles on the High
Anisotropy Field of a CoFe Film in the
Carrousel Sputtering Method :Seventh
International Conference on Reactive
Plasmas / ICRP-7:MAISON DE LA
CHIMIE, Paris, France : October, 6, 2010 :
KWP. 00082
- ⑧ 今泉 良一, 宗像 誠, 大越 正敏, 榎
孝一郎 : カルーセルスパッタ法で作製し
た CoFeB 膜と CoFeSm 膜の異方性入射効
果 : 日本磁気学会学術講演会 : つくば国
際会議場 : 2010 年 9 月 4 日 : 講演番号
4pD-1
- ⑨ 今泉 良一, 宗像 誠, 大越 正敏, 榎
孝一郎 : カルーセルスパッタ法で作製し
た CoFeB 膜と CoFeSm 膜の異方性入射効
果 : 電気学会マグネティックス研究会 :
山崎製パン企業年金基金会館 : 2010, 8 月
3 日 : 講演番号 MAG-10-090

[その他]
ホームページ:
<http://www.sojo-u.ac.jp/research/soran>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宗像 誠 (MUNAKATA MAKOTO)
崇城大学・情報学部・教授
研究者番号 : 10183112

(2) 研究分担者

青木 振一 (AOKI SHINICHI)
崇城大学・情報学部・教授
研究者番号 : 70175727

(3) 連携研究者

大越 正敏 (Ohkoshi Masatoshi)
九州工業大学 情報工学部 教授
研究者番号 : 10989725 (平成 23 年度 退職
後も連携研究継続)