

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 24 年 5 月 31 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360145

研究課題名（和文）10GHz帯対応共鳴周波数を有する大飽和磁化・超高異方性磁性薄膜デバイスの開発

研究課題名（英文）Development of Magnetic thin film devices with large saturation magnetization and high anisotropy field with resonance frequency above 10 GHz

研究代表者

中川 茂樹（NAKAGAWA SHIGEKI）

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：60180246

研究成果の概要（和文）：

対向ターゲット式スパッタ法で適当な下地層上に形成したFeCoB薄膜は異方的な残留歪みにより500 Oeの高い異方性磁界を誘起する。この効果はB添加量が5%程度で最大となった。また、極薄のSi/NiFe層でFeCoB層を分割した多層膜ではNiFe層の(111)配向度が向上し、FeCo結晶子の(110)配向度が向上した。また、多層化によりブロッホ磁壁の発生が抑制できる磁区制御技術の開発に成功した。強磁性共鳴周波数は膜の異方性磁界で決まる値に一致し、最高で9.2GHzとすることができた。

研究成果の概要（英文）：

FeCoB films prepared on Ru underlayer using oblique incidence of sputtered particles have high in-plane magnetic anisotropy H_k of 500 Oe. There is an anisotropic residual stress which is an origin of the in-plane magnetic anisotropy. Such anisotropic crystalline structures may affect to the anisotropic residual stress in FeCoB layer on Ru underlayer. B content of around 6 at.% is appropriate to induce such an anisotropic residual stress. Multilayered structure with Si/NiFe is effective to reduce Bloch type domain walls. The FeCoB films with H_k of 500 Oe revealed 9.2 GHz of resonance frequency.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,600,000	2,280,000	9,880,000
2010年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2011年度	1,900,000	570,000	2,470,000
総計	14,000,000	4,200,000	18,200,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：大飽和磁化・高磁気異方性・FeCoB・異方性磁界・高共鳴周波数・磁歪・高周波透磁率

1. 研究開始当初の背景

高速・大容量データ通信が特徴である，次世代携帯電話，衛星放送，次世代無線 LAN，Wireless USB などには C バンド（4～8 GHz）や X バンド（8～12 GHz）の周波数帯の電磁波が使用される．磁性薄膜がこの周波数帯の電磁波に追従するためには，飽和磁化 B_s (T) の磁性膜を H_{eff} (A/m) の印加磁場中で， H_{eff} と直交する方向に変動磁場を印加した場合の次式で示される共鳴周波数 f_r が上記周波数帯より高くなければならない．

$$f_r \approx 3.14 \times 10^7 \sqrt{B_s \cdot H_{eff}}$$

この H_{eff} に相当する磁場は，磁性膜中の磁気異方性エネルギーによる異方性磁界 H_k に担わせている．したがって，飽和磁化 B_s が高く異方性磁界 H_k も高い強磁性薄膜が得られれば，10 GHz 程度の周波数で使用可能な高透磁率材料が得られることになり，この周波数帯を使用する機器の効率化・小型化が促進される．

2. 研究の目的

FeCo 系薄膜のさらなる一軸磁気異方性の改善を行うことにより，10 GHz 帯での強磁性共鳴周波数を有する薄膜の実現を行う．また，高周波デバイスの試作を行い，開発した薄膜が 10 GHz 帯域で使用可能であることを実証する．薄膜材料の高 B_s と高い磁歪定数を両立する材料組成の探索を行い，磁気異方性の原因になっていると思われる結晶子の異方的配列構造をより効率よく実現させる下地層の材料・作成法の改良や，磁区構造制御用の反強磁性層の導入や多層化を行う．そのため以下のことを主として行った．

- (1) FeCo系薄膜のB添加量制御による高残留異方性歪みの実現
- (2) 多層化による磁区構造制御
- (3) 膜微細加工の導入とその影響の評価
- (4) 高周波応答の高調波発生の確認

3. 研究の方法

試料は図1に示す対向ターゲット式スパッタ法を用いてスライドガラス上に成膜を行った．膜堆積には Ru や $\text{Fe}_{67}\text{Co}_{29}\text{B}_4$ 合金ターゲットを用い，同一チャンバー内で室温にて堆積を行った．磁気特性は振動試料型磁力計（VSM）により測定を行い，結晶構造は X 線回折（XRD）を用いて評価した．高周波透磁率特性は本研究経費で購入した設備備品であるキーコム株式会社製マイクロストリップライン法高周波透磁率測定装置を用いて測定を行った．

4. 研究成果

(1) FeCo系薄膜のB添加量制御による高残留異方性歪みの実現

対向ターゲット式スパッタ法はプラズマの生成・閉じ込め効率が高いため，通常より1桁程度低いガス圧領域で膜堆積できることである．低ガス圧で膜堆積を行った場合は，ターゲットからスパッタ放出された粒子はほぼ無衝突で膜堆積面に到達する．このスパッタ粒子の斜め入射効果と面内での異方的な入射頻度によって，特定の条件下で FeCoB 膜面内に非常に大きな一軸磁気異方性が誘起されることをみいだした．これらの異方性発現のメカニズムとともに，異方的残留応力や結晶配列が形成される要因について考察を行った．

面内磁気異方性の発現

図2にガラス基板上に成膜した FeCoB 単層膜，Si/NiFe/FeCoB 三層膜および Ru/FeCoB 二層膜の面内磁化特性を示す．FeCoB 単層膜では異方性はほとんど発現せず，保磁力も比較的高い．しかし，Ru 下地層導入時においては 500 Oe という高い異方性磁界が観測された．また，Ru 下地においての保磁力が大幅に減少している．

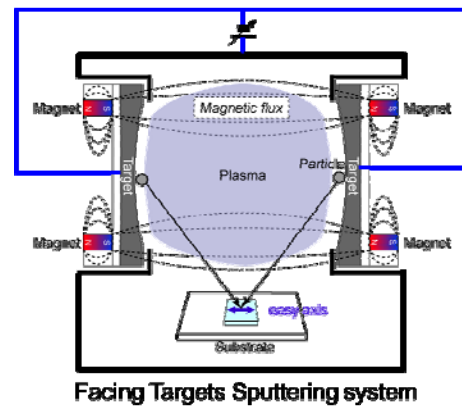


図1 対向ターゲット式スパッタ装置概略図

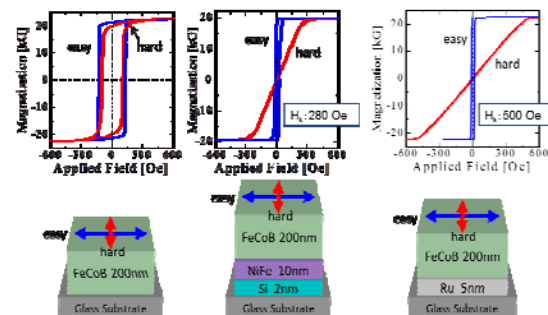


図2 FeCoB 単層膜，Si/NiFe/FeCoB 三層膜および Ru/FeCoB 二層膜の面内磁化特性

異方的残留応力

このような面内一軸磁気異方性の発現の起源として FeCoB 層内部に存在する残留内部応力差が考えられる．膜内部に応力差が存在すると、FeCo の磁歪定数が正であることから逆磁歪効果により伸張方向に磁化容易軸が現れる．図 3 に In-plane XRD における散乱ベクトルの方向となる φ 方向を変化させた場合の Ru/FeCoB 膜の FeCo(110) 回折線近傍のダイアグラムを示す．この組成の FeCoB 膜は bcc 相の(110)面優先配向を示す．困難軸方向を散乱ベクトル方向とする HA ($\varphi = 0^\circ$) 方向から、容易軸方向を散乱ベクトル方向とする EA ($\varphi = 90^\circ$) 方向に向かうにつれて、徐々に回折ピークが低角側にシフトしており、これは膜中の結晶子が困難軸方向よりも容易軸方向に面間隔が広がっていると解釈できる．一方 図 4 は FeCo(200) 回折線の In-plane XRD パターンの φ 方向による変化を示している．困難軸方向を散乱ベクトルとする HA ($\varphi = 0^\circ$) 方向には比較的大きな回折強度が得られるが、これと直交する EA (容易軸) 方向では回折強度が低下している．これらの X 線回折結果から、図 5 のように容易軸方向に沿った面内(110)格子面間隔は 2.037 Å、面内(100)方向の格子面間隔が 2.831 Å とわかる．この結晶子歪みから内部応力 σ を求め、

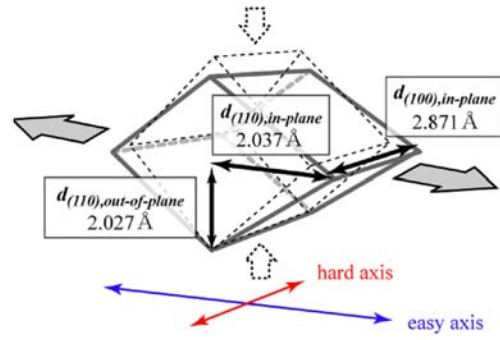


図 5 Ru/FeCoB 膜の結晶歪みの概念図

FeCoB のヤング率を 220GPa として計算すると $\sigma = 0.75$ GPa となり、実測した飽和磁歪定数 $\lambda = 3.2 \times 10^{-5}$ を用いると、磁気弾性エネルギーは 3.8×10^5 erg/cc となる．これが一軸磁気異方性エネルギーの起源であるとして見積もった異方性磁界の大きさは実測値 500 Oe とほぼ同程度となる．このことから高異方性磁界の発現原因の一つが結晶歪から生まれた磁気弾性エネルギーであるといえる．

方向性結晶配列

このような結晶歪が起こる原因は完全には明らかではないが、容易軸とターゲットの対向方向が一致することから、対向ターゲット式スパッタのターゲットと基板の位置関係から生まれるスパッタ粒子の斜め入射が影響を及ぼしているものと考えられる．

図 6 は Ru/FeCoB 膜の異方性磁界 H_k の FeCoB 膜作製時の Ar ガス圧依存性である．ガス圧が 2 mTorr 以下では非常に高い異方性磁界を発現するが、4 mTorr 以上では急激に低下してしまう．膜作製時のガス圧が低ければ、ターゲットからスパッタ放出された粒子はほぼ無衝突で膜堆積面に到達する．このスパッタ粒子の斜め入射効果と面内での異方的な入射頻度によって、FeCoB 膜面内に非常に大きな異方的な残留応力が誘起されたものと解釈している．膜の成長機構がこのようにスパッタ粒子の斜方入射を積極的に利用して変化が与えられることが確認されたの

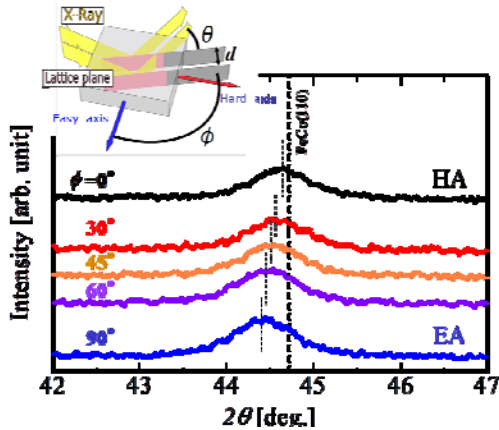


図 3 Ru/FeCoB 膜の FeCo(110) 回折線の In-plane XRD

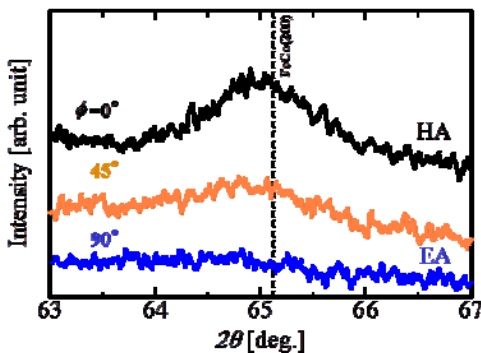


図 4 Ru/FeCoB 膜の FeCo(100) 回折線の In-plane XRD

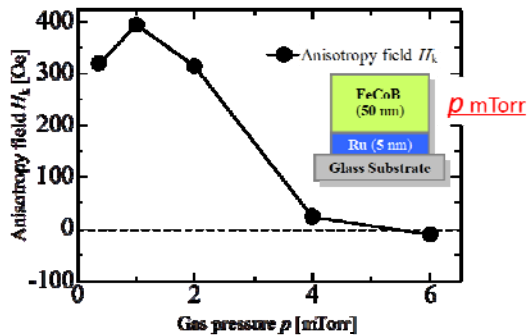


図 6 異方性磁界 H_k の FeCoB 膜作製時の Ar ガス圧依存性

は今後の応用において、磁性膜のみならず他の材料の薄膜にも適用できる新たな制御技術が開発できたことになる。

B 添加量依存性

Ru 下地層上に形成した FeCoB 膜の Out-of-plane XRD 回折パターンの B 添加量依存性から、B 添加量 10at%程度までの膜厚方向の(110)面間隔の B 添加量依存性を示したのが図 7 である。B 添加量の増大とともに、格子面間隔が縮小していることがわかる。

図 8 は面内 XRD で評価される面内方向の(110)格子面間隔の B 添加量依存性である。B

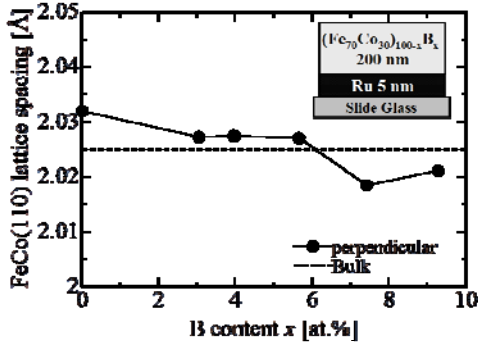


図 7 Ru 下地層上の FeCoB 膜の(110)面間隔の B 添加量依存性

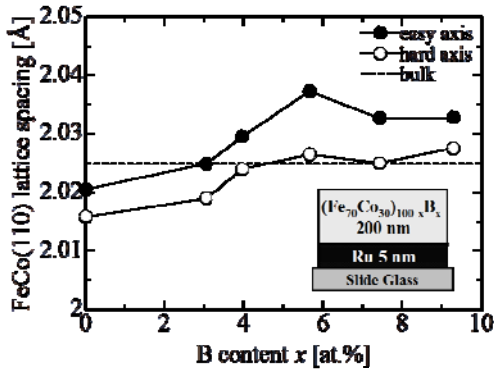


図 8 Ru/FeCoB 膜の (110)面間隔の B 添加量依存性

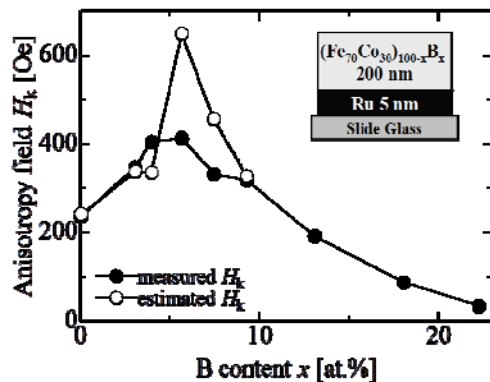
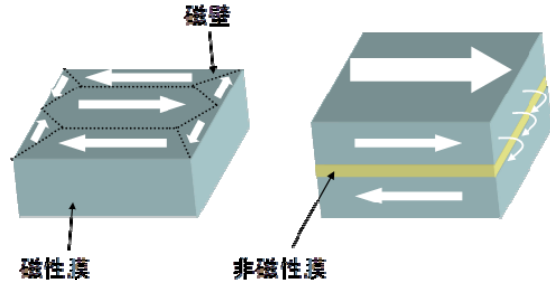


図 9 Ru/FeCoB 膜の異方性磁界 H_k と実測された異方性磁界の B 組成依存性

添加量が増えるに従い、面内方向の(110)面間隔は広がっていき、5.6at%程度の場合に残留歪は最大となっている。この残留歪差を用いて計算した異方性磁界 H_k と実測された異方性磁界の B 組成依存性は計算値 (estimated) と実測値 (measured) は図 9 に示されるように概ね一致していた。

(2) 多層化による磁区構造制御



(a) FeCoB 単層膜 (b) 二層構造膜

図 10 FeCoB 単層膜(a)と二層構造膜の磁区構造の模式図

FeCoB膜は結晶構造を有するために磁壁を形成する。図10(a)に示す様に単層膜においてはBloch磁区が形成される。そこで、図10(b)に示す様に磁性膜と磁性膜の間に非磁性膜を挿入することで上下の磁性膜の磁化の向きを反平行として磁壁の少ない単層膜構造を形成させる。(a) Ru(5 nm)/FeCoB(25 nm)/Ru(5 nm)/FeCoB(25 nm)膜、(b) Ru(5 nm)/FeCoB(25 nm)/Si(5 nm)/FeCoB(25 nm)膜、(c) Ru(5 nm)/FeCoB(25 nm)/NiFe(5 nm)/FeCoB(25 nm)膜の磁化特性を調べたところ、Ru膜やNiFe膜をFeCoB膜の中間に挿入することによる磁気特性に大きな変化は見られない。これらのことから2層構造の裏打ち層の作製目的を達成できたと考えられる。

(3) 膜微細加工の導入とその影響の評価

異方性歪みが顕著な膜厚依存性を示すことから、薄膜成長機構との関連があると考えられる。薄膜の内部応力によって片持ち梁状の基板が微小変位することをレーザ変位計で測定できる図11のような簡易装置を試作した。

図12に片持ち梁基板のたわみ量から求めた膜中の応力の膜堆積時間依存性を示す。Tiターゲットを用い、作製時のガス圧を0.3mTorrから3.0mTorrまでパラメータとしている。(a)の実線がターゲット間を結ぶ線に平行な方向で、(b)の点線が(a)と直交方向の内部応力を表す。特に直交方向の異方性の作製時ガス圧による違いが大きいことがわかる。また、膜堆積時の比較的初期段階までは応力が大きく変化するが、その後はほぼ一定値を取る傾向があることや、飽和に達する膜厚などが異なることなどが示唆され、膜の堆積過程が作製時

のガス圧や、基板内の方向によって異なることが示唆される。

(4) 高周波応答の高調波発生の確認

FeCoB のような大飽和磁化薄膜が面内一軸方向に高い磁気異方性を持てば、強磁性共鳴周波数 f_r が高くなり、10GHz 程度の高周波に追従する強磁性薄膜が得られる。

図 13 は 500 Oe の高い H_k を有する Ru/FeCoB 二層膜の高周波透磁率測定の結果である。高周波磁界を困難軸方向に与えた際の比透磁率の周波数依存性を示している。○と△はそれぞれ比透磁率の実部と虚部を示す。Ru/FeCoB 膜は 9.2 GHz という高い f_r を有していることが分かる。式(1)を用いて、 $4\pi M_s$ を 22 kG、 H_k を 500 Oe とし計算したところ f_r は 9.3 GHz となることから、計算結果と実測値は良い一致を示している。

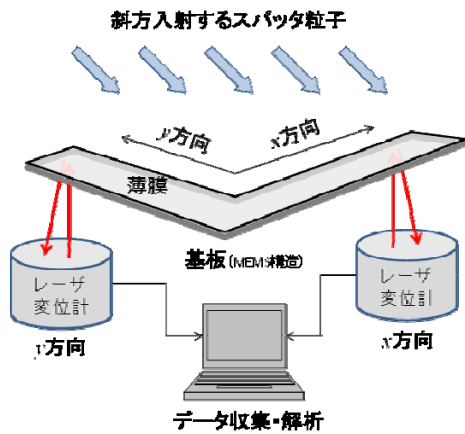


図 11 2次元面内応力「その場」観測・評価装置の原理図

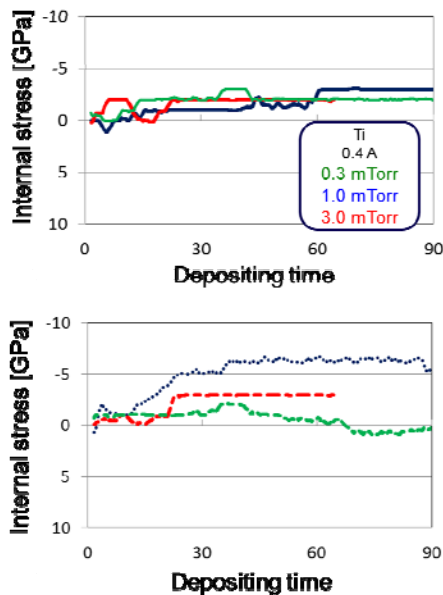


図 12 Ti 膜堆積時の内部応力の膜堆積時間依存性

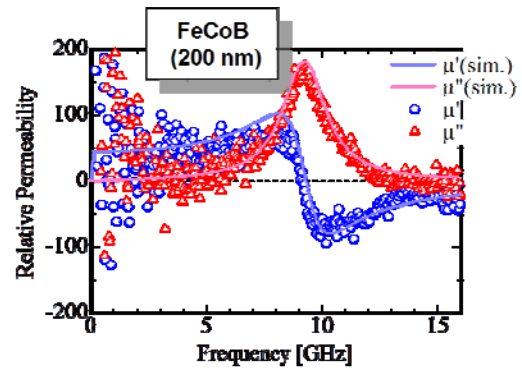


図 13 Ru/FeCoB 高異方性膜の高周波透磁率評価例

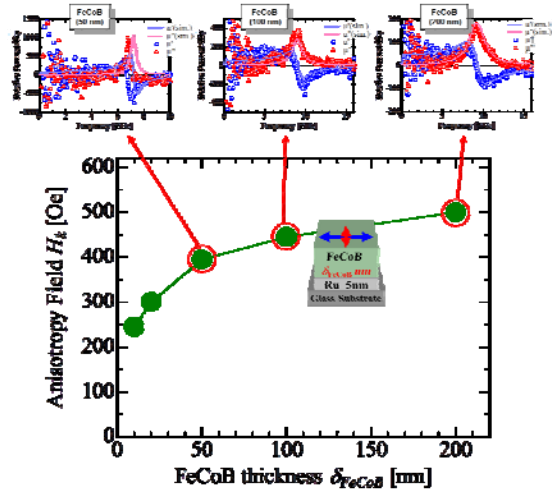


図 14 Ru/FeCoB 高異方性膜の異方性磁界の膜厚依存性と高周波特性

図 14 は Ru 下地膜上の FeCoB 薄膜の異方性磁界の膜厚依存性と、代表的な膜厚における高周波応答を示したものである。膜の成長とともに異方性磁界が高くなり、共鳴周波数も高周波数側にシフトしていき、共鳴半値幅は増加していった。これは膜厚増加による吸収損失の増加が一因と考えられる。しかしながら、膜厚方向の不均一さによる因子も考えられるため、今後はさらに成膜時の異方性誘起メカニズムを解明する必要があると考えられる。

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 18 件)

中川 茂樹, "斜方入射スパッタ粒子を利用して作製した高異方性磁界を有する FeCoB 膜", 日本磁気学会誌(まぐね), 査読有, Vol.7.No. 1, 2012, 26-32

Shunsuke Gomi, Yasuhiro Mashiko, Kenichiro Hirata, Satoshi Matsunuma, Inoue Tetsutaro, Tsugihiko Doi, Shigeki Nakagawa, "Effect of laminated crystalline FeCoB soft magnetic underlayer for perpendicular magnetic recording tape media", Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.109 No. 7, 2011, 07B746-1-3

S. Gomi, Y. Mashiko, K. Hirata, S. Matsunuma, T. Inoue, T. Doi, T. Watanabe, S. Nakagawa, "Fabrication of perpendicular magnetic recording tape media with a data capacity of over-50TB using Si/NiFe/FeCoB soft magnetic underlayers", Physics Procedia, 査読有, Vol.16C, 2011, 63-67

Naoaki Miyamoto, Keisuke Mamiya, Shigeki Nakagawa, "Evaluation of Magnetization Interaction at the Interface between FeCo and TbFeCo for p-MTJ", Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 266 巻, 2011, 012099-1~4

Kenichiro Hirata, Shunsuke Gomi, Yasuhiro Mashiko, Shigeki Nakagawa, "Direct observation of an anisotropic in-plane residual stress induced by B addition as an origin of high magnetic anisotropy field of Ru/FeCoB film", Journal of Applied Physics, 査読有, 107 巻, 2010, 09A323-1~3

Matsuu, T.; Hirata, K.; Gomi, S.; Hashimoto, A.; Matsunuma, S.; Inoue, T.; Doi, T.; Nakagawa, S., "Si/NiFe/FeCoB Crystalline SUL to Reduce Ru Intermediate Layer Thickness for CoPtCr-SiO Granular Perpendicular Magnetic Recording Media", IEEE Transactions on Magnetics, 査読有, 45 (10)巻, 2009, 3572 - 3575

Ken-ichiro Hirata, Atsuto Hashimoto, Toshimitsu Matsuu, Shigeki Nakagawa "Ru/FeCoB double layered film with high in-plane magnetic anisotropy field of 500 Oe", J. Appl. Phys., 査読有, 105 巻, 2009, 07A316- 07A318

(他 11 件)

[学会発表] (計 10 件)

饒平名礼生, 益子泰裕, 平田健一郎, 中川茂樹, "Ru/FeCoB における強磁性共鳴の FeCoB 膜厚依存性", 第 35 回日本磁気学会学術講演会 29pF-5. 2011/09/29, 新潟市 Shigeki Nakagawa, Yasuhiro Mashiko, Ken-ichiro Hirata, "Effect of B content on magnetic anisotropy field of FeCoB films with high ferromagnetic resonance frequency above 9 GHz" Intermag 2011 Taipei, 2011/04/29, 台北市(台湾) Shigeki Nakagawa, Yasuhiro Mashiko, Ken-ichiro Hirata, "FeCoB Films with High Ferromagnetic Resonance Frequency above 9

GHz induced by Anisotropic Residual Stress" 1st International Conference of AUMS (ICAUMS 2010) organized by the Asian Union of Magnetics Societies (AUMS), 2010/12/06, 濟州島 (韓国)

Yasuhiro Mashiko, Ken-ichiro Hirata, Shigeki Nakagawa "Effect of B addition on high anisotropy field of FeCoB films on Ru underlayers. 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials. FH-13. 2010/11/17, Atlanta (USA)

益子泰裕, 五味俊輔, 平田健一郎, 中川茂樹, "Ru/FeCoB 膜の B 添加による面内磁気異方性の改善", 第 34 回日本磁気学会学術講演会 7aD-9, 2010/09/07, つくば市 五味俊輔, 益子泰裕, 平田健一郎, 松沼悟, 井上鉄太郎, 土井嗣裕, 渡辺利幸, 中川茂樹, "2 層構造の結晶性 FeCoB 裏打ち軟磁性層を用いた垂直磁気記録テープの特性改善", 第 34 回日本磁気学会学術講演会 5aA-9, 2010/09/05, つくば市

Kenichiro Hirata, Shunsuke Gomi, Yasuhiro Mashiko, Shigeki Nakagawa, "Direct observation of an anisotropic in-plane residual stress induced by B addition as an origin of high magnetic anisotropy field of Ru/FeCoB film", The 11th Joint MMM-Intermag Conference, FE-08 2010/01/21, Washington, DC (USA)

平田健一郎, 五味俊輔, 中川茂樹, "高い面内異方性磁界を有する FeCoB 膜に及ぼす Ru 下地層の影響", 第 33 回日本磁気学会学術講演会, 2009/09/13, 長崎市

五味俊輔, 平田健一郎, 松鶴利光, 松沼悟, 井上鉄太郎, 土井嗣裕, 中川茂樹, "結晶性 Si/NiFe/FeCoB 裏打ち軟磁性層を用いた垂直磁気記録媒体", 第 33 回日本磁気学会学術講演会, 2009/09/12, 長崎市

Kenichiro Hirata, Toshimitsu Matsuu, Shunsuke Gomi, Shigeki Nakagawa "Directional Alignment of FeCo Crystallites in Si/NiFe/Ru/FeCoB Multilayer with High Anisotropy Field above 500 Oe", ICMAT2009 and IUMRS-ICA 2009, 2009/06/29, Singapore (Singapore)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1)研究代表者

中川 茂樹 (NAKAGAWA SHIGEKI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号: 60180246