## X/Co-Fe-B 薄膜における

# 飽和磁気ひずみおよびダンピング定数の膜厚による変化

田中 治憲, 宮崎 孝道, 枦 修一郎, 遠藤 恭 (東北大学)

## Change in saturation magnetostriction and damping constant of X/Co-Fe-B thin films with thickness

H. Tanaka, T. Miyazaki, S. Hashi, Y. Endo (Tohoku University)

#### はじめに

Co-Fe-B 薄膜は高い飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ )を有していることから, MTJ 素子を用いた高感度磁気ひずみ検知 素子への応用が期待されている<sup>1)</sup>. これまでの研究では, (Co<sub>35</sub>Fe<sub>65</sub>)<sub>x</sub>B<sub>100-x</sub>薄膜における  $\lambda_s$ は, B 組成の増加に ともない減少することが報告されている<sup>2)</sup>. また, 10 nm 厚の Co-Fe-B 薄膜の  $\lambda_s$  値は約 31 ppm と<sup>1)</sup>、バルク 値 (約 20 ppm)<sup>3</sup>に比べて高くなることが報告されている. しかしながら, Co-Fe-B 薄膜における  $\lambda_s$ の膜厚 依存性や下地層効果などについては不明瞭な点が多い。これに加えて, STT-MRAM やスピントルクダイオー ドなどのスピントロニクス素子の創製にあたり, Co-Fe-B 膜は素子の一部を構成し, その動的磁化挙動の重 要なパラメータであるダンピング定数 ( $\alpha$ ) について理解する必要がある. 本研究では, 異なる下地層上に製 膜した Co-Fe-B 薄膜における  $\lambda_s$ および  $\alpha$  について系統的に理解するために, それらの膜厚依存性について詳 細に検討する.

#### 実験方法

Co-Fe-B 薄膜および下地層はRFスパッタリングおよびDCマグネトロ ンスパッタリングを用いて製膜した.ここで,下地層(X)にはCu,Ti および Pt を選択した. 膜構成に関しては,Glass Sub./X(50 nm)/ Co40Fe40B20(3-30 nm)とした.

作製した薄膜の結晶構造および表面形状解析は,XRD および AFM を 用いて行った.XRD より,Co-Fe-B 薄膜の結晶構造はアモルファスであ ることがわかった.磁気特性評価は,VSM,光てこ法による高感度薄膜 磁気ひずみ測定装置および B-FMR 測定装置を用いて行った.

#### 実験結果および考察

図1に下地層(X)の異なる Co-Fe-B 薄膜における  $\lambda_s$ の膜厚依存性を 示す.下地層によらず、 $\lambda_s$ は膜厚の増加にともない増加する傾向を示し た.また、いずれも  $\lambda_s$ 値はバルク値と比較して高く、製膜時の応力誘起 によるものと考えられる.図2からわかるように、下地層により  $\alpha$ の膜 厚依存性は異なった.すなわち、X=Cuの場合、 $\alpha$ は膜厚の増加にとも ない緩やか減少した.また、X=Tiの場合、膜厚の増加にともない減少 し、その後一定となった.バルク値に対する  $\alpha$ の増大は、異方性分散な どの磁気的不均一性によるものと考えられる.X=Ptの場合、 $\alpha$ は7.5 nm 厚以下では約0.03であり、10 nm 厚以上では約0.01 となった.他の下地 層に比べて $\alpha$ が高く、スピンポンピングに由来するものと考えられる<sup>4</sup>.

以上より、 $\lambda_s$ は下地層による依存性はなく、いずれもバルク値に比べ て高くなった.一方で、 $\alpha$ は下地層により大きく依存することがわかった.



Fig. 1. Effect of underlayers on saturation magnetization.



Fig. 2. $\alpha$  of Co-Fe-B thin films on different underlayers.

## 謝辞

本研究を行うにあたり, 試料作製および測定の一部に関して, 東北大学多元物質研究所 岡本 聡 教授, 菊池 伸明 助教のご協力を得ました. ここに深謝します. 本研究の一部は, 東北大学先端スピントロニクス 研究開発センター, 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター, 東北大学国際集積エレクトロニ クス研究開発センターの支援により行われた. また, 本研究の一部は, 科研費(No. 17H03226)の補助のもとで 行われた.

#### 参考文献

1) D. Wang et al, J. Appl. Phys., Vol.97, No.10, 10C906 (2005). 2) C. L. Platt et al, IEEE Trans. Mag., Vol. 37, No. 4 (2001)

3) R. C. O'Handley, Modern Magnetic Materials Principles and Applications, John Wiley & Sons, Inc., NY, USA, (1999).

4) H. Lee et al, J. Phys. D, Vol. 41, 215001 (2008).

17pB - 7

# (Fe<sub>0.75</sub>Ga<sub>0.25</sub>)<sub>100-x</sub>B<sub>x</sub>膜における構造と磁気特性の B 組成依存性

遠藤恭,川辺泰之,村松省吾,宮崎孝道(東北大学)

Dependence of Structure and Magnetic Properties on the B Composition for  $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$  Films

Y. Endo, Y. Kawabe, S. Muramatsu, T. Miyazaki (Tohoku Univ.)

## はじめに

情報通信技術に関連する高速・小型・エネルギー高効率なデバイスの創製に向けて,強大な磁気ひずみを有 する Fe-Ga 膜がその材料候補として期待されている<sup>1)</sup>. 我々はこれまでに Ga 組成の異なる Fe-Ga 多結晶膜の 構造と磁気特性に関して詳細に検討し, Ga 組成の増加ともに飽和磁気ひずみが増加するものの, FMR 線幅 が広がり面内有効ダンピング定数が高くなることを明らかにした<sup>2,3)</sup>. これらの結果は, Fe-Ga 多結晶膜を情 報通信技術に関連する新規デバイスへ応用するためにはそれらの軟磁気・高周波磁気特性を改善する必要が あることを意味している.本研究では, Fe-Ga 膜における磁気特性の改善のために半金属元素の添加による 効果を検討した.すなわち,半金属元素として Bを選択して, B 添加した Fe-Ga 膜の構造と磁気特性の B 組 成依存性について検討した.

## 実験方法

50 nm 厚の (Fe<sub>0.75</sub>Ga<sub>0.25</sub>)<sub>100-x</sub>B<sub>x</sub> (Fe-Ga-B) (0≤x≤14.9) 膜を石英 基板上に DC マグネトロンスパッタ装置を用いて作製した. 作 製した Fe-Ga-B 膜の構造および組成は, XRD, TEM および EDX を,また磁気特性は, VSM, 光てこ法を用いた高感度薄膜磁 歪装置およびブロードバンド FMR 測定法を用いた評価した.

#### 結果および考察

B 組成の異なる Fe-Ga-B 膜の X 線回折パターンを図1に示す. いずれのB組成においても回折角44°付近に弱いピークが観測 された.これらの結果は、Fe-Ga-B 膜の結晶構造が B 組成によ らず主に(110)配向した bcc 構造であることを示唆している. こ のような結晶構造を有する Fe-Ga-B 膜における磁気特性を詳 細に検討した.図2(a)に示すように、飽和磁気ひずみ(ん)は B組成を増価させると若干減少し,8.2at.%以上のB組成範囲で は増加する傾向が見られた. ん値は 9.4 at.%以上の B 組成範囲 では Fe-Ga 多結晶膜<sup>2,3)</sup>よりも高くなった. この原因は bcc 格 子中の格子間位置に B 原子が存在することによるものと考え られる. また, 図 2(b)からわかるように, 面内有効ダンピング 定数(α<sub>1</sub>)は, B 組成 4.7 at.%を除いて B 組成の増加にととも に減少した. α// 値はいずれの場合も B を添加しない Fe0.75 Ga0.25 膜に比べて低く, とりわけ B 組成 13.6 at.%以上では Co-Fe-B 膜やゼロ磁歪組成の Ni-Fe 膜とほぼ同等となった. 以上の結果 から, Fe-Ga 膜は 10 at.%以上の B を添加することにより磁気 特性を改善させることができることがわかった.

#### 謝辞

本研究の一部は,科研費基盤研究(B)(No. 17H03226)の補助 と,東北大学 CSRN,東北大学 CSIS,東北大学 CIES および ASRC の支援のものと行われた.



Fig. 1. X-ray diffraction (XRD) patterns of 50-nm thick  $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$  films with various B compositions.



Fig. 2. Change in (a) saturation magnetostriction  $(\lambda_s)$  and (b) in-plane effective damping constant  $(\alpha_{//})$  of 50-nm thick  $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$  films with B composition (x).

<u>参考文献</u> 1) B. K. Kuanr et al., JAP, **115**, 17C112 (2014)., 2) YE et al., JMMM, **487**, 165323 (2019)., 3) Y. Kawabe et al., JMSJ **3**, 34 (2019) (Japanese).

# Ga 組成の異なる Fe-Ga-B 薄膜における 構造と静的・動的磁気特性に関する研究 <sub>村松省吾、宮崎孝道、遠藤恭</sub>

## (東北大学)

Study on the structure and static and dynamic magnetic properties of Fe-Ga-B thin films with various

#### Ga composition

#### Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo

#### (Tohoku Univ.)

#### はじめに

巨大な飽和磁歪を有する Fe-Ga 合金薄膜は高速かつ小型な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている。 我々はこれまでに Fe-Ga 多結晶薄膜における静的・動的磁気特性の Ga 組成による変化を検討し、それらの保 磁力とダンピング定数が高くなることを報告した<sup>(1)</sup>。この結果は Fe-Ga 多結晶薄膜を高周波磁気デバイスへ 応用するためには、それらの磁気特性を改善する必要があることを示している。そこで本研究では、Fe-Ga 膜 の軟磁性化および高周波磁気特性の改善を目指して、B を添加した Fe-Ga-B 薄膜を作製し、Ga 組成の異なる Fe-Ga-B 薄膜の構造と静的・動的磁気特性について検討・議論する。

#### 実験方法

10 nm 厚の Fe<sub>85.1-x</sub>Ga<sub>x</sub>B<sub>14.9</sub>(x=17.8 – 27.7)をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。作製した試料の組成に関しては EDX および飽和磁化値から算定した。表面形状については AFM を、結晶構造については XRD および TEM を用いて評価した。また、静的・動的磁気特性については VSM、光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪測定装置およびブロードバンド FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

### 実験結果

Fe-Ga-B薄膜における容易軸方向の保磁力( $H_c$ )およびダ ンピング定数( $\alpha$ )の Ga 組成依存性を図 1 示す。 $H_c$ に関し ては Ga 組成に依存せずほぼ一定となり 10 Oe 程度であっ た。これらの値は先行研究のアモルファス Fe-Ga-B 膜(1 Oe)<sup>(2)</sup>に比べて高く、その原因は製膜法の違いによるものと 考えられる。また、これらの値は Fe-Ga 多結晶膜(50 Oe)<sup>(1)</sup> に比べて非常に低い値となった。 $\alpha$  に関しては Ga 組成の 増加に対して 21.8 at.%まではほぼ一定であり、24.5 at.%で 極小を取り、さらに Ga 組成を増加させると増加した。こ れらの値は 0.006 – 0.010 であり、Fe-Ga 多結晶膜(0.04)に 比べて一桁ほど低くなった<sup>(3)</sup>。



Fig.1 Dependence of coercivity and damping constant on Ga composition

以上の結果は Fe-Ga 合金への B の添加が Fe-Ga 多結晶 膜の軟磁性化および高周波磁気特性を改善させることができることを表している。

謝辞 本研究の一部は、JSPS 科研費 JP17H03226 の助成と、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター(CIES)、

東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS),東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN) および情報ストレージ研究推進機構(ASRC)の支援のもとで行われました.

<u>参考文献</u> (1) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), **3**, 34-38 (2019). (2) J. Lou et al, Appl. Phys. Lett. **91**, 182504(2007). (3) Daniel B. Gopman et al., IEEE TRANSACTIONS, VOL. 53, NO.11, (2017).

## アモルファス Fe-B 軟磁性微粒子の高周波磁気特性 村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭 (東北大学) Study of magnetic properties of amorphous Fe-B soft magnetic particles Keita Murata, Takamichi Miyazaki, Hiroshi Masumoto, Yasushi Endo

## (Tohoku Univ.)

#### <u>はじめに</u>

電子機器の高周波化が進むにつれて、GHz 帯における電磁ノイズ抑制体(NSS)の需要が高まっている。 一般的な NSS は、フェライトや磁性粉を樹脂に含んだシート状の構造となっているが、抵抗率が低く、渦電 流損失によって GHz 帯において NSS 特性が低下する問題が指摘されている。我々のグループでは、これま でに水溶液還元反応法を改良した合成法で作製した Fe-B-P や Co-Fe-B などのアモルファス軟磁性合金微粒 子の構造・磁気特性を検討し<sup>(1)</sup>、高抵抗率かつ良好な軟磁気特性が得られることを報告してきた。

本研究では、新たに高い飽和磁束密度(Bs)の高い Fe-B アモルファス合金を選択し、アモルファス Fe-B 軟磁性微粒子の合成法とそれらの構造・磁気特性について検討した。

#### <u>実験方法</u>

アモルファス Fe-B 微粒子の合成法は、水溶液還元反応法を改良した方法であり、鉄塩を含む水溶液中に 還元剤となる NaBH<sub>4</sub>を攪拌しながら滴下することで微粒子を得ることができる。

合成した微粒子の形状観察および構造解析に関しては、SEM および TEM を用いた。また、それらの磁気 特性に関しては、微粒子とバインダーに用いた絶縁体の樹脂との Vol.%を 50%:50%としてコンポジット材

を作製し、それらを用いて VSM および複素透磁率測定装置により評価した。

#### <u>実験結果</u>

図1は合成した Fe-B 微粒子における SEM 像の一例である。形状は分散した粒径で、平均粒径 *D*<sub>50</sub>はとなった。合成法を調整することにより、所望の *D*<sub>50</sub>を有する Fe-B 微粒子の合成が可能であることを確認した。また、合成した微粒子における TEM 像においてハローパターンが観測されたことから、これらの結晶構造はアモルファス状態であることがわかった。

また、合成した微粒子における磁気特性に関して、飽和磁化( $\sigma$ s) は  $D_{50}$ に関係なくほぼ一定で、それらの値は 130~150 emu/g となっ た。保磁力(Hc)は平均粒径  $D_{50}$ の増加にともないおおむね  $D^{-1}$ に沿 って減少した。図 2 は複素透磁率の虚部をフィッティングおよび解 析して導出した  $D_{50}$ による Fe-B 微粒子における共鳴ピーク周波数

( $f_{FMR}$ ) と線幅 ( $\Delta f_{FMR}$ )の変化である。 $f_{FMR}$  は  $D_{50}$ の増加にともない 2.5 GHz から 1.7 GHz へ減少した。これらはいずれも L~S バンド内 に存在した。また、 $\Delta f_{FMR}$  は 5G に利用される 3~6 GHz を包含してい た。以上より、合成したアモルファス Fe-B 軟磁性微粒子は GHz 帯 における NSS への応用が期待できることと考えられる。



Fig. 1. SEM image of amorphous Fe-B particles



#### 謝辞

本研究の一部は, JSPS 科研費 JP19K21952 の助成と, 東北大学国際集

積エレクトロニクス開発センター(CIES),東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)および東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)の支援のもとで行われました.

#### <u>参考文献</u>

1) Y. Shimada, Y. Endo, M. Yamaguchi, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Imano, H. Matsumoto, and S. Yoshida, IEEE Trans. Magn., 45 (2009) 4298–4301.

# 急冷凝固法により作製した MnPt 合金の構造

江良 尚哉、佐藤 史和、佐々木 巌、飯久保 智、徳永 辰也、小川 俊文\* (九州工業大学、\*福岡県工業技術センター)

Structure of MnPt alloy produced by the quench solidification method

N. Era, H. Sato, I. Sasaki, S. Iikubo, T. Tokunaga, T. Ogawa\*

(Kyushu Institute of Technology, \*Fukuoka Industrial Technology Center)

#### 背景・目的

MnPt系合金は組成や温度領域により複雑な磁気構造を有する材料である。Mn がリッチな Mn<sub>3</sub>Pt は反強磁 性を示し、MnPt では常磁性の不規則相とネール温度約 1000 K の反強磁性の規則相を有する<sup>1)</sup>。また、Pt が リッチな MnPt<sub>3</sub> では強磁性を示す合金系として知られている<sup>2)</sup>。一方、ナノスケール化することにより、その バルク特性とは異なる独特の物理的および化学的特性を示す。小野らは、反強磁性体である MnPt を化学的 手法で作製し、MnPt がナノ粒子になることで強磁性を発現することを報告している<sup>3)</sup>。しかしその発現メカ ニズムは解明されていない。さらに、Lee らは同様に化学的手法により MnPt ナノ粒子の作製を試みたが、L1<sub>0</sub> 型の MnPt は得られず MnPt<sub>3</sub> が得られており、これが強磁性の要因であるとしている<sup>4)</sup>。このように化学的 手法で作製した MnPt ナノ粒子の磁性は不明な点が多い。そこでナノ構造 MnPt の磁気特性を調査するために 金属的手法に着目した。本研究では、単ロール式液体急冷凝固装置を用いて MnPt および B の添加をした MnPtB の急冷薄帯を作製し、構造等の調査を行った。

#### 実験方法

高純度 Mn, Pt, B 始発原料から真空アーク溶解炉(協立電機製作所)を用いて MnPt 母合金および MnPtB 母合金を作製した。この母合金を単ロール式液体急冷凝固装置(日新技研 NEV-A05)にて急冷処理した。冷却速度は直径 200 mm の銅ロールの周速度を変化させることによった。構造解析には全自動水平型多目的X線回折装置 (リガク SmartLab)、表面の解析には走査型電子顕微鏡(日本電子 JSM-6010Plus/LA)を使用した。

#### 結果

図1に MnPt 母合金および急冷薄帯の XRD 測定結果を示す。この結果 より母合金は MnPt 単相であることが確認できた。急冷薄帯のピークの 半値幅は母合金と比較し広がりを示しており、急冷することによる結晶 粒径の微小化が確認された。また、シェラー式により導出した急冷薄帯 結晶粒径は 20~30 nm であり先行研究<sup>3</sup>より大きい。本講演では MnPtB の評価も併せて発表を行う予定である。



図1 MnPt 母合金、急冷薄帯の XRD

#### 参考文献

41) 梅津 理恵、深道 和明、佐久間 昭正、まてりあ、2004 年 43 巻 10 号 pp. 831-839
2) 加藤 剛志、岩田 聡、網島 滋、内山 晋、日本応用磁気学会誌、1995 年 19 巻 2 号 pp. 205-208
3) K. Ono, R. Okuda, Y. Ishii, S. Kamimura, and M. Oshima, J. Phys. Chem. B, 2003, 107, pp. 1941-1942
4) D. C. Lee, A. Ghezelbash, C. A. Stowell, and B. A. Korgel, J. Phys. Chem. B, 2006, 110, pp. 20906-20911