

Fe-Ga 多結晶薄膜における高周波磁気特性の Ga 組成による変化

Change in High Frequency Magnetic Properties of Fe-Ga Polycrystalline Thin Films with Ga Composition

川辺 泰之*・遠藤 恭**,***・宮崎 孝道****

*東北大学大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-04 (〒980-8579)

**東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

***東北大学高等研究機構先端スピントロニクス研究開発センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

****東北大学工学部, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-04 (〒980-8579)

Y. Kawabe*, Y. Endo*, **,***, T. Miyazaki****

*Graduate School of Engineering, Tohoku University, 6-6-04 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

**Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

***Center for Science and Innovation in Spintronics, Organization Advanced Studies, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

****Faculty of Engineering, Tohoku University, 6-6-04 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

This paper reports the effect of Ga composition on the static and dynamic magnetic properties of 10-nm-thick Fe-Ga polycrystalline films. As for the static magnetic properties of these films, the saturation magnetization ($4\pi M_s$) decreased as the Ga composition increased. This feature is similar to that of Fe-Ga bulk alloy. The saturation magnetostriction (λ_s) also increased as the Ga composition increased, but these values were lower than those of Fe-Ga bulk alloy. As for their dynamic magnetic properties, the damping constant (α) decreased from 0.034 to 0.012 as the Ga composition increased, suggesting that the magnetization of Fe-Ga films with Ga compositions below 25 at.% switched slowly in the high frequency range. Therefore, the effect of Ga composition on α and λ_s is opposite between the two, indicating that this feature differs from those in Ni-Fe and Fe-Si binary alloy films.

Keywords: Fe_{100-x}Ga_x films, magnetostrictive material, static magnetic property, dynamic magnetic property

1. はじめに

電気磁気効果は、信号処理技術に応用されるマイクロ波共振器、位相変調器、フィルタを創製するうえで重要である^{1)–3)}。この効果は、最近、エネルギー高効率な磁性ランダムアクセスメモリ(MRAM)やスピン波論理演算素子の基本原理として適用され、磁気ひずみを有する強磁性体を含む強磁性体/誘電体複合構造における電圧誘起ひずみ現象として具現化されている⁴⁾。このようなナノスケールの高周波磁気デバイスの創製には、巨大な磁気ひずみを有する磁性薄膜材料、すなわち磁歪薄膜材料の開発が急務である。

デバイス応用上での要求は、弱磁界で大きく変形することである。しかしながら、Fe, Co, Niなどの強磁性体の場合、磁気ひずみを有しているものの、その大きさは最大でも10 ppmと小さく、デバイス応用には遠く及ばない。それに対して、テルフェノール-D(Terfenol-D; Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y})が大きな磁気ひずみを有し、その大きさが1000 ppmを超えることが報告され⁵⁾、超磁歪材料として研究開発が古くから進められてきた^{6), 7)}。しかしながら、希土類金属を用いているために非常に高価であり、機械的にもろく、加工性、耐食性に乏しいといった問題があげられている。

テルフェノール-Dに替わる材料として、米国海軍研究所で開発されたガルフエノール(Galfenol; Fe₈₁Ga₁₉)が注目さ

れている⁸⁾。Fe₈₁Ga₁₉合金は結晶性を有し、最大約350 ppmの磁気ひずみが発生する⁹⁾。この値はテルフェノール-Dと比べて低いものの、機械特性に優れ、加工性が良く、かつキュリー温度が高いといった特長を有している。その一方で、磁気ひずみの大きさはGa組成および結晶方位に依存することから、これらのパラメータの制御が課題となっている。

これまでFe-Gaバルク合金に関する研究が、磁歪アクチュエータや変換機器への応用を見すえて盛んに行われてきた。これらの研究では、主に結晶構造と磁気ひずみの関係について報告されている¹⁰⁾。また、Fe-Ga合金薄膜に関する研究は、Fe-Ga単結晶もしくはエピタキシャル膜では高周波磁気デバイス応用を見すえて、磁気ひずみと高周波磁気特性の膜厚およびGa組成依存性について報告されている^{11)–14)}。一方で、工業的に作製が簡便でガラス基板等に製膜可能な多結晶膜では、構造と静的磁気特性のGa組成依存性に関する知見^{15), 16)}はすでに報告されているものの、高周波磁気デバイス応用を見すえた高周波磁気特性に関する報告はなく、膜厚およびGa組成に対する系統的な知見が得られていない。

本研究では、主にGa組成の異なるFe-Ga多結晶膜の高周波磁気特性に着目して、それらの特性についてブロードバンド強磁性共鳴(B-FMR)測定法を用いて評価し、得られ

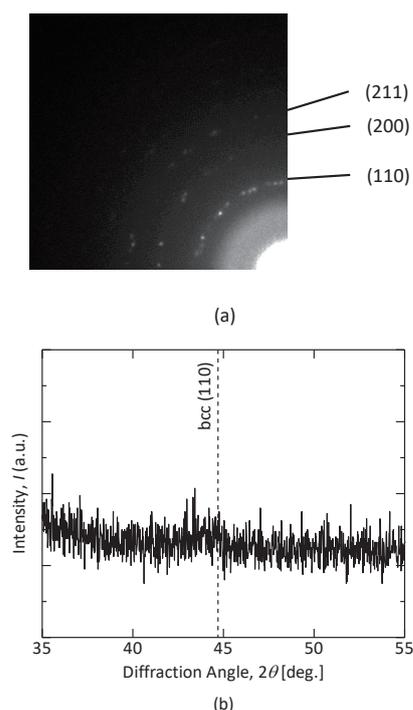


Fig. 1 Typical examples of (a) selected-area diffraction (SAD) pattern and (b) high angle x-ray diffraction profile of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ film with $x = 24.9$.

た結果について議論する。

2. 実験方法

$\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x(\text{Fe-Ga})$ 膜の作製には、DC マグネトロンスパッタ装置を用いた。スパッタ装置の製膜前真空度は 8.0×10^{-5} Pa 以下、製膜時の Ar ガス圧は 4.0×10^{-1} Pa とした。製膜に用いた基板は石英ガラスである。Fe-Ga 膜の膜厚は 10 nm に固定し、Ga 組成(x)を 18.5 ~ 33.4 at.% と変化させた。なお、膜の酸化を防ぐために 5 nm 厚の Cr 層を試料表面に積層した。

作製した膜の組成に関しては、あらかじめ膜厚 250 nm の Fe-Ga 膜を準備し、エネルギー分散型 X 線分析(EDX)を用いて決定した。作製した膜の構造に関しては、透過型電子顕微鏡(TEM)と X 線回折(XRD)を用いて評価した。それらの結果の一例を図 1 に示す。作製した膜の結晶構造は Ga 組成に関わらずランダム配向の bcc 多結晶であり、結晶粒径の小さい微結晶状態となっていることを確認した。

作製した膜の静的磁気特性に関しては、振動試料型磁力計(VSM)と光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪装置((株)東栄科学産業製)を用いて評価した。磁歪測定に関しては、試料の膜面内に十分に強い回転磁界(最大 175 Oe)を印加した。なお、その測定条件の詳細等については他の文献¹⁷⁾に記載済みである。また、高周波磁気特性に関しては、ベクトルネットワークアナライザとコプレーナウェーブガイド(CPW)を組み合わせた B-FMR 測定法を用いて評価した。本測定法(図 2)では、作製した膜の表面を CPW 上にのせた

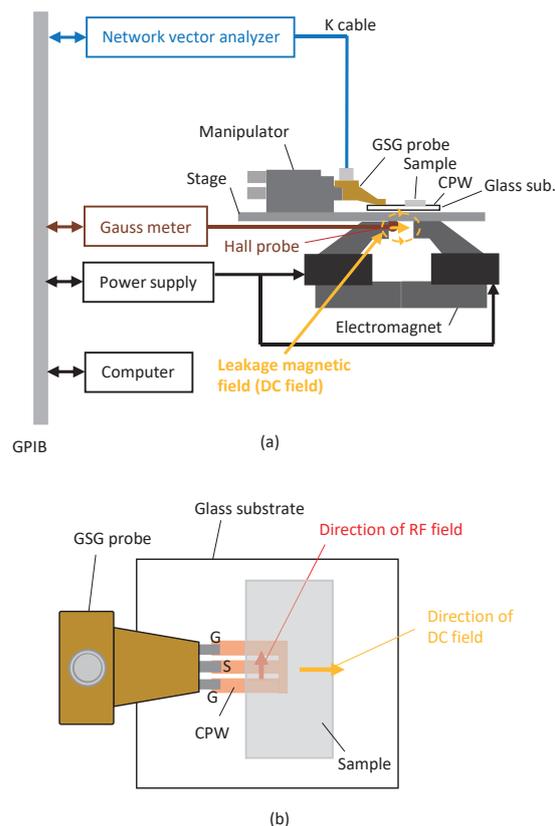


Fig. 2 (a) A schematic diagram of the broadband ferromagnetic resonance (B-FMR) measurement system. (b) The layout drawing of a sample, a CPW, and a GSG probe. Arrows represent direction of RF field and DC field.

状態で、CPW と VNA を高周波プローブと高周波ケーブルを介して接続させ、CPW の S パラメータについて測定周波数($f_{\text{Res}} = 9 - 18$ GHz)を固定し高周波磁界(RF field)と直交方向に外部磁界(DC field)を変化させながら VNA を用いて測定した¹⁸⁾。B-FMR 測定時の印加磁界方向は膜面内の任意の方向とし、最大磁界は 3 kOe とした。これらの磁気特性は、すべて室温で評価した。

3. 結果

まず 10 nm 厚の Fe-Ga 膜における静的磁気特性を検討した。図 3 に示すように、磁化曲線の形状はいずれの Ga 組成においても外部磁界の向きに依存して異なる形状となった。とりわけ、保磁力の Ga 組成に対する低減は膜面内の結晶粒径に関連していると考えられる。これらの結果を用いて、Fe-Ga 膜の残留磁化比(M_r/M_s)と飽和磁化($4\pi M_s$)を評価した。それらの結果を Ga 組成(x)に対して図 4 にまとめた。なお、記載されている 0° および 90° は、膜面内に印加した外部磁界の任意の方向とその直交方向を示している。 M_r/M_s は、いずれの Ga 組成においても外部磁界の向きに依存し、変化している。これらの結果は、異方性によるものと考えられるが、その起源については定かではなく今後検

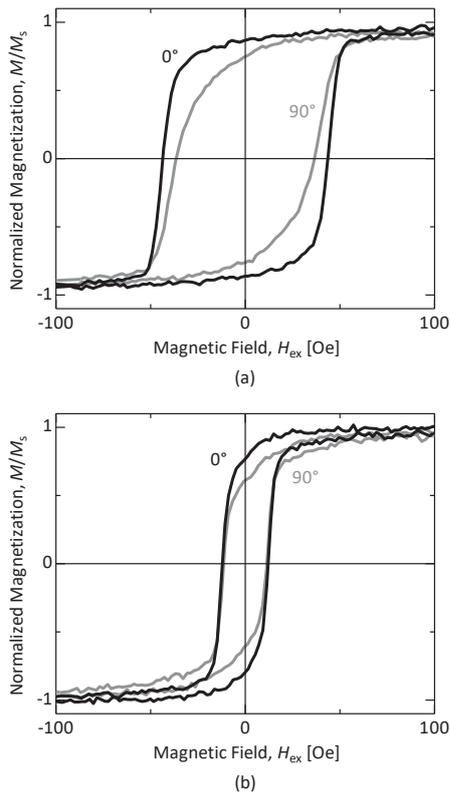


Fig. 3 Typical examples of M - H curves in 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with (a) $x = 18.5$ and (b) $x = 33.4$. Black lines denote M - H curve when H_{ex} was applied along in-plane arbitrary directions of Fe-Ga films. Gray lines denote M - H curve when H_{ex} was applied along in-plane lateral directions of Fe-Ga films.

討していく。また、 $4\pi M_s$ に関しては、Ga 組成の増加にともなって 16.3 kG から 12.7 kG まで減少した。この挙動は、不規則相を有するバルク合金の結果(破線)¹⁰⁾と類似していて、非磁性元素である Ga の割合が単調に増加したことによるものと考えられる。

図 5 に Fe-Ga 膜における飽和磁気ひずみ(λ_s)の Ga 組成による変化を示す。Ga 組成が増加すると、 λ_s は増加した。これらの値は、およそ 20 – 60 ppm であり、 $\text{Fe}_{81}\text{Ga}_{19}$ バルク合金(約 350 ppm)⁹⁾や Fe-Ga 多結晶膜(最大約 90 ppm)¹⁶⁾と比べると低くなった。Fe-Ga バルク合金では、[100]の磁気ひずみが[111]に比べて非常に大きくなるのがすでに報告されている^{8), 9)}。したがって、磁気ひずみが低くなった原因としては、Fe-Ga バルク合金の報告から薄膜の結晶方位が主に[111]を向いているものと考えられる。また、Fe-Ga 多結晶膜との差異は、構造解析評価の結果をもとにして考えると、作製した Fe-Ga 膜における膜面内の結晶粒径が小さく微結晶状態となっているためと考えられる。

次に、Fe-Ga 膜の高周波磁気特性を検討するために、B-FMR 測定法を用いて Ga 組成の異なる Fe-Ga 膜の FMR スペクトルを測定した。それらの一例を図 6(a)に示す。い

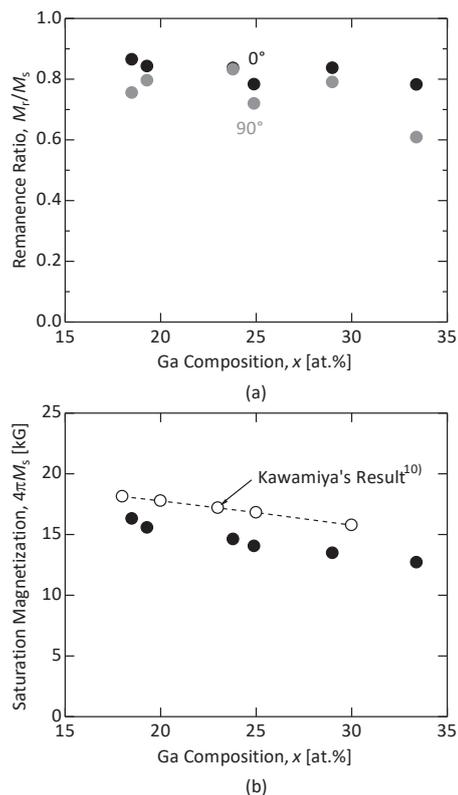


Fig. 4 Change in (a) remanence ratio (M_r/M_s) and (b) saturation magnetization ($4\pi M_s$) of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with Ga composition (x). Black circles indicate M_r/M_s when H_{ex} was applied along in-plane arbitrary directions of Fe-Ga films. Gray circles indicate M_r/M_s when H_{ex} was applied along in-plane lateral directions of Fe-Ga films.

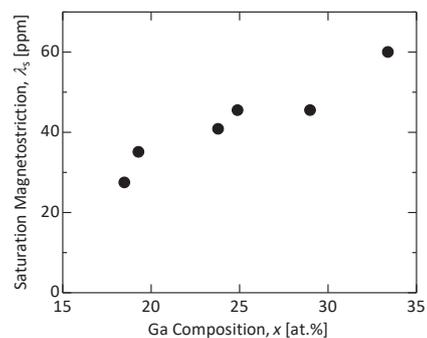


Fig. 5 Dependence of saturation magnetostriction (λ_s) on Ga composition (x) for 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films.

ずれの Ga 組成においてもディップ(FMR ピーク)を観測でき、周波数の増加とともに、高磁界側へシフトした。また、ピークの半値幅は周波数の増加とともに広がった。これらのピークが観測される外部磁界(H_{ex})とピークの半値幅(ΔH)を、ローレンツ関数¹⁹⁾によるフィッティングから決定した。まず、共鳴周波数の 2 乗(f_{Res}^2)と H_{ex} の関係を図 6(b)に示す。 f_{Res}^2 の H_{ex} に対する挙動は、実線で示した Kittel の

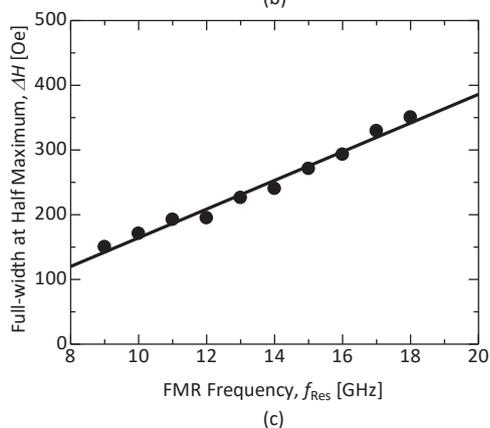
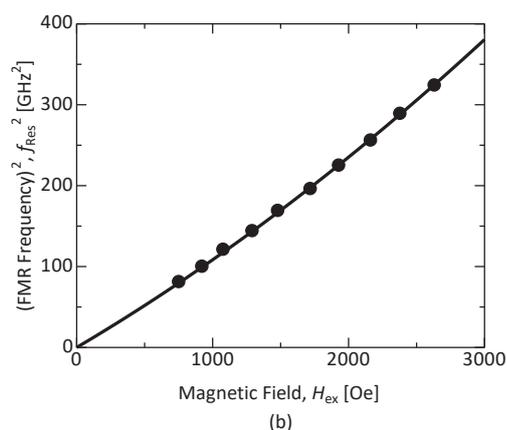
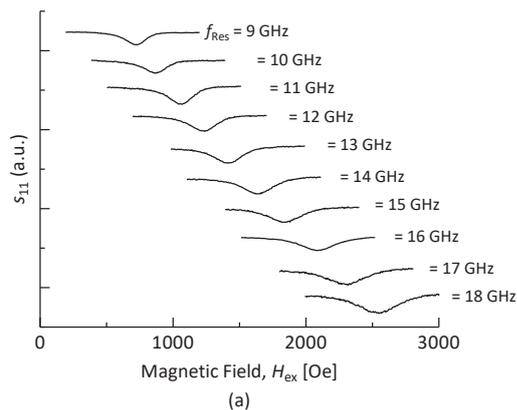


Fig. 6 (a) Typical examples of FMR spectra in 10-nm-thick $\text{Fe}_{81.5}\text{Ga}_{18.5}$ films. (b) Relationship between square of resonance frequency (f_{Res}^2) and resonance magnetic field (H_{Res}), (c) Relationship between full-width at half maximum (ΔH) and resonance frequency (f_{Res}) in 10-nm-thick $\text{Fe}_{81.5}\text{Ga}_{18.5}$ films. The solid lines in (b) and (c) represent the fitting curves by eqs (1) and (2), respectively.

関係式²⁰⁾

$$f_{\text{Res}}^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 H_{\text{ex}}(H_{\text{ex}} + 4\pi M_{\text{s,eff}}) \quad (1)$$

により説明できる。ここで、 γ はジャイロ磁気定数(0.0191 GHz/Oe²¹⁾、また $4\pi M_{\text{s,eff}}$ は面直方向の有効異方性磁界(す

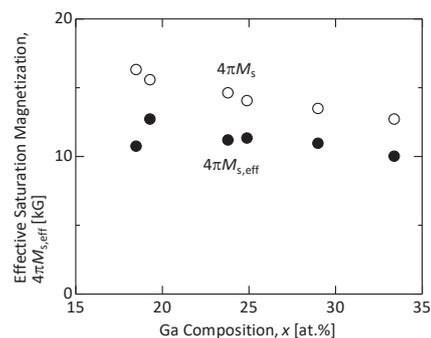


Fig. 7 Relationship between effective saturation magnetization ($4\pi M_{\text{s,eff}}$) and Ga composition (x) for 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films.

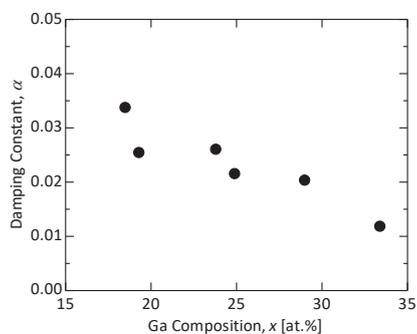


Fig. 8 Change in damping constant (α) of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with Ga composition (x).

なわち、有効飽和磁化にあたる)を表している。したがって、Kittel の式によるフィッティングから、すべての Fe-Ga 膜の $4\pi M_{\text{s,eff}}$ を求め、Ga 組成に対してまとめた。その結果を図 7 に示す。 $4\pi M_{\text{s,eff}}$ は、Ga 組成の増加とともにゆるやかに減少した。この傾向は、VSM により得られた飽和磁化 ($4\pi M_{\text{s}}$) の挙動と類似している。しかしながら、それらの値は 10–12 kG 程度であり、 $4\pi M_{\text{s}}$ と比べると低くなった。これは、Fe-Ga 膜における面直方向の反磁界が負の表面異方性の影響で弱くなっていることによるものと考えられる²²⁾。

また、図 6(c) からわかるように、 ΔH は f_{Res} に対して線形的に増加した。この挙動は、実線で示した ΔH と f_{Res} の関係式²³⁾

$$\Delta H = \Delta H(0) + \frac{4\pi\alpha}{\gamma} f_{\text{Res}} \quad (2)$$

とほぼ一致している。ここで、 $\Delta H(0)$ と α は周波数ゼロの時の不均一磁界線幅とダンピング定数である。(2)式によるフィッティングから得られる傾きの値から 10 nm 厚の Fe-Ga 膜におけるダンピング定数(α)を求めた。図 8 に示すように、 α は Ga 組成の増加とともに 0.034 から 0.012 まで減少する傾向であった。また、 $\Delta H(0)$ は Ga 組成にあまり依存せず

それらの値は数十 Oe 程度となった。これらの結果から、Ga 組成が 33.4 at.% の膜を除いていずれの場合も α の値はゼロ磁気ひずみ近傍の Ni-Fe 合金(0.0081)²⁴⁾や Fe-Si 合金(0.0084)²⁵⁾といった軟磁性膜の α と比較すると、およそ 2.5 - 4 倍ほど高くなっている。また、Fe_{100-x}Ga_x 単結晶膜(0.0055 - 0.0064, $x = 20 - 28$)¹¹⁾の α と比較すると、いずれの Ga 組成においても高く、およそ 2 - 7 倍となっている。この原因は、異方性分散などの影響に由来する磁氣的不均一性だけでなく、大きな飽和磁気ひずみの影響にもよると考えられる。また、Ga 組成がおよそ 25 at.% 以下の場合における高い α は、磁化の反転速度が遅いことを示唆している。

さらに、 α の Ga 組成に対する減少傾向は λ_s の増加傾向と正反対となった。これに対して、Ni-Fe や Fe-Si 合金膜では α と λ_s は Ni 組成や Si 組成に対して増加する傾向にあり、ゼロ磁気ひずみ近傍の組成域で λ_s の符号に依存して α の λ_s に対する増加量が異なることが報告されている^{24), 25)}。したがって、Fe-Ga 膜の α と λ_s の関係は Ni-Fe や Fe-Si 合金膜の場合とは異なっていることがわかった。この原因については今後検討していく。

4. 結論

本研究では、10 nm 厚の Fe-Ga 多結晶膜における静的磁気特性および高周波磁気特性の Ga 組成による変化について検討し、以下の知見を得た。

静的磁気特性に関しては、 $4\pi M_s$ は Ga 組成の増加とともに減少し、それらの値は Fe-Ga バルク合金の値と類似している。 λ_s は Ga 組成の増加とともに増加し、その値は最大 60 ppm であり、Fe₈₁Ga₁₉ バルク合金(約 350 ppm)や Fe-Ga 多結晶膜(最大約 90 ppm)と比べると低くなった。Fe-Ga バルク合金との違いに関しては、薄膜の結晶方位が主に[111]を向いていることによるものと考えられる。また、Fe-Ga 多結晶膜との差異は、作製した Fe-Ga 膜における膜面内の結晶粒径が小さく微結晶状態となっているためと考えられる。

高周波磁気特性に関しては、その基本パラメータである α は Ga 組成の増加とともに減少した。また、Ga 組成が 33.4 at.% の膜を除いて、いずれの値もゼロ磁気ひずみ近傍の Ni-Fe 合金や Fe-Si 合金といった軟磁性膜の α と比較すると、およそ 2.5 - 4 倍ほど高くなった。特に、Ga 組成がおよそ 25 at.% 以下の場合には、これらの高い α はいずれも磁化反転速度が遅いことを示唆している。また、 α と λ_s の Ga 組成に対する挙動は正反対であり、Ni-Fe および Fe-Si 合金膜の場合とは異なっていることがわかった。

謝辞 本研究を行うにあたり、東北大学大学院工学研究科 島田 寛 名誉教授に有益なご助言をいただきました。また、試料作製の一部および X 線回折測定を行うにあたり、東北大学多元物質科学研究所 北上 修 教授、岡本 聡 准教授、菊池 伸明 助教の協力を得ました。ここに深謝します。

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研究開発センター、および情報ストレージ研究推進機構(ASRC)の補助のもとで行われました。

References

- 1) Y. K. Fetisov, and G. Srinivasan, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 143503 (2006)
- 2) A. B. Ustinov, G. Srinivasan, and B. A. Kalinikos, *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 031913 (2007)
- 3) C. Pettiford, S. Dasgupta, J. Lou, S. D. Yoon, and N. X. Sun, *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 3343 (2007)
- 4) D. E. Parkes, L. R. Shelford, P. Wadley, V. Holy, M. Wang, A. T. Hindmarch, G. van der Laan, R. P. Campion, K. W. Edmonds, S. A. Cavill, and A. W. Rushforth, *Scientific Reports*, **3**, 2220 (2013)
- 5) A. E. Clark, *AIP Conference Proceedings*, **18**, 1015 (1974)
- 6) L. Sandlund, M. Fahlander, T. Cedell, A. E. Clark, J. B. Restorff, and M. Wun-Fogle, *J. Appl. Phys.*, **75**, 5656 (1994)
- 7) A. G. Jenner, R. J. E. Smith, A. J. Wilkinson, and R. D. Greenough, *Mechatronics*, **10**, 457-466 (2000)
- 8) A. E. Clark, J. B. Restorff, M. Wun-Fogle, T. A. Lograsso, and D. L. Schlagel, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 3238-3240 (2000)
- 9) M. Wuttig, L. Dai, and J. Cullen, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 1135 (2002)
- 10) N. Kawamiya, K. Adachi, and Y. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **33**, 5, 1318-1327 (1972)
- 11) B. K. Kuanr, R. E. Camley, Z. Celinski, A. McClure, and Y. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **115**, 17C112 (2014)
- 12) A. Butera, J. L. Weston, and J. A. Barnard, *J. Magn. Magn. Mater.*, **284**, 17-25 (2004)
- 13) A. McClure, S. Albert, T. Jaeger, H. Li, P. Rugheimer, J. A. Schaefer, and Y. U. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **105**, 07A938 (2009)
- 14) A. McClure, H. Li, and Y. U. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A924 (2010)
- 15) A. Javed, N. A. Morley, and M. R. J. Gibbs, *J. Magn. Magn. Mater.*, **321**, 18, 2877-2882 (2009)
- 16) N. A. Morley, A. Javed, and M. R. J. Gibbs, *J. Appl. Phys.*, **105**, 07A912 (2009)
- 17) Y. Endo, T. Sakai, T. Miyazaki, and Y. Shimada, *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 11, 2502305 (2017)
- 18) Y. Endo, and M. Yamaguchi, *Digests of the 39th Annual Conf. Magn. Jpn 2015*, 124 (2015)
- 19) G. Woltersdorf: "Spin pumping and two-magnon scattering in magnetic multilayers." Ph. D. thesis, Simon Fraser University (2004)
- 20) C. Kittel: *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, p.379, (John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, 2005)
- 21) R. Bozorth: *Ferromagnetism*, p.809, (John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, 2003)
- 22) C. L. Jermain, H. Paik, S. V. Aradhya, R. A. Buhrman, D. G. Schlom, and D. C. Ralph, *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 192408 (2016)
- 23) S. S. Kalarickal, P. Krivosik, M. Wu, C. E. Patton, M. L. Schneider, P. Kabos, T. J. Silva, and J. P. Nibarger, *J. Appl. Phys.*, **99**, 093909 (2006)
- 24) Y. Endo, Y. Mitsuzuka, Y. Shimada, and M. Yamaguchi, *J. Appl. Phys.*, **109**, 07D336 (2011)
- 25) Y. Endo, Private communication

2018年10月16日受理, 2018年12月7日再受理, 2019年3月2日採録