

ポリイミド上に作製した Co 系アモルファス合金薄膜の軟磁性に関する研究

加茂 芳邦 (東北学院大学工学部電気工学科)

1. まえがき

現在の電子機器は、小型化、低電力化、高周波化、デジタル化が急速に進展し、それに伴いさまざまな電子素子の多くが集積化されている。しかし、インダクタやトランス等は、その小型化、高周波化が遅れている現状であり、集積化を目標としてそれらを軟磁性薄膜やアモルファスファイバーで実現しようとする研究が盛んに行なわれている。

我々も以前より薄膜を用いた複合インダクタの試作に関する研究を行なってきたが、閉磁路を作るのにヨークとしてフェライトを用いていたため、寸法が大きくなる傾向にある^{1)・2)}。

実際に、メガヘルツ周波数帯用のインダクタやトランス用薄膜素子を試作する場合、種々困難な課題が多く残されている。その一つが高周波領域で使用可能な高い透磁率を有する材料の開発である。ポリイミドフィルム上のアモルファス軟磁性材料で試作した巻磁心としては、CoZrMo 系のものが報告されている^{3)・4)}。しかしながら、軟磁性を決定する最も重要な要因である磁気異方性に関しては、その制御の方法あるいは熱安定性については調べられていない。

これらの問題を解決するために、RF スパッタ法により $7.5 \mu\text{m}$ と非常に薄いポリイミド基板に CoZrTa Nb 系アモルファス合金薄膜を作製し、低損失薄膜磁心材料としての基礎的な特性を明らかにしてきた^{5)~14)}。

本研究では、まず、ポリイミド基板に作製した CoZrTa Nb 系アモルファス合金薄膜の最適熱処理を検討することによって、ガラス基板と同等の軟磁性が得られることについて述べる。次に、軟磁性が得られることを踏まえ、トロイダル形状の磁心を試作し、このトロイダル磁心の磁気異方性を制御するための熱処理方法とインダクタンス、透磁率等の周波数特性との関連を調べ、更に大振幅励磁による磁心損失、渦電流損失等を調べた。さらに、今後のインダクタ、トランス等への適用についての可能性について述べる。

2. 実験方法

CoZrTa Nb 系アモルファス合金磁性薄膜は、RF スパッタ法を用いて作製した。膜作製条件は、アルゴンガス圧、 3×10^{-3} Torr、スパッタ電力 300 W とした。膜厚は $1 \sim 3 \mu\text{m}$ の単層膜である。基板は、磁気測定用として、耐熱ガラス (松浪ガラス #7059) とポリイミドシート (東レ・デュボン社製 $7.5 \mu\text{m}$) を、飽和磁歪測定用として薄板ガラス (松浪ガラス #

100)を用いた。ターゲットは、 $\text{Co}_{82.5}\text{Zr}_{15.5}\text{Ta}_4\text{Nb}_8$ 合金ターゲットを用いた。得られた膜に磁気異方性を付けるため、 2×10^{-6} Torr 以下の真空中で、直流磁界 3.2×10^4 A/m を加えながら、 $100 \sim 600$ °C の温度範囲で1時間熱処理を行なった。また、透磁率を高める適度の異方性磁界を得るため、 300 °C、 3.2×10^4 A/m で30分～4時間回転磁界中で熱処理した。

これら磁性膜をガラスおよびポリイミド基板上に作製した試料を熱処理した後、VSM (Vibrating Sample Magnetometer) によって保磁力 H_c 、異方性磁界 H_k 、飽和磁化 M_s 等を測定した。

インダクタンスの測定および損失測定には、それぞれアルミナ巻心 (外形10 mm, 内径6 mm, 幅3 mm, 磁性膜巻数 2.5 ターン) と (外形17 mm, 内径13 mm, 幅6 mm, 磁性膜巻数5 ターン) の2つを用いて行なった。

初透磁率 μ_i は、LCRメータ (YHP4275A) と RFインピーダンスアナライザ (YHP4191A) を使用した。構造解析は X 線回折で、膜厚測定は、サーフコーダ (SE-40A) を用いて評価した。また、CoZrTaNb 系薄膜の膜構造に及ぼす下地膜の影響を調べるために、SEM (Scanning Electron Microscope) により表面の観察を行なった。

インダクタンス、初透磁率等は、RF インピーダンスアナライザ (YHP4194 A) で100 MHz まで測定した。また、鉄損計測システム (MMS - 0375 : 凌和電子製) により、1～15 MHz の範囲で、B-H ループ、磁心損失 W_c 、渦電流損失 W_e 等を実験より求めた。

作製した磁性膜の飽和磁束密度 $4\pi M_s$ は約0.8 T, 磁歪定数 λ_s は -1.3×10^{-6} 以下であり、結晶化温度 T_x は $500 \sim 600$ °C の間にある。

3. 実験結果および考察

Fig. 1に、(a) ガラス基板上と (b) ポリイミド基板上に作製した CoZrTaNb 系合金薄膜の X 線回折パターンを示す。図に示されるように、熱処理前の合金薄膜は (a) ガラス、(b) ポリイミドともに、 $40 \sim 50$ (deg.) 範囲でアモルファス特有のハローパターンを示すことが分かる。

Fig. 2に、CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜のアモルファス相の安定性を調べるため、熱処理温度 T_a を変化させた場合の X 線回折パターンを示す。図は、ガラス基板上に作製した磁性膜を無磁界中 $100 \sim 600$ °C で熱処理した結果を示す。アモルファス特有のハローパターンは、 T_a が約 500 °C 付近まで見られるが、この付近において、膜が部分的に結晶化し始めていることが認められる。 600 °C では明らかに結晶化していることが認められる。このことより、磁性膜の結

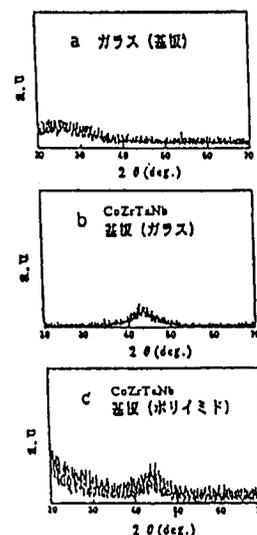


Fig. 1 ガラスおよびポリイミド上の CoZrTaNb 系薄膜の X 線回折図

晶化温度 T_x は $500 \sim 600$ °C の間にあると考えられる。

Fig. 3に、ガラスおよびポリイミド基板上に作製した磁性膜を、直流磁界 3.2×10^4 A/m 中で、1時間熱処理したときの保磁力 H_c と熱処理温度 T_a の関係を示す。図より、ポリイミド上では、ガラス上に比べて H_c は高いが充分な軟磁性を保持していることが分かる。ポリイミド上の H_c は、 T_a が 300 °C 付近まではほぼ一定であるが、 400 °C 以上の熱処理温度では上昇し始めており、ガラス基板のものと異なる傾向を示すことが分かる。

ポリイミド基板上的薄膜の熱処理温度 T_a の増加に伴う保磁力 H_c の増加の原因について調べるために、ポリイミド基板上に作製した CoZrTaNb 系薄膜の表面を SEM を用いて観察した結果を Fig. 4 に示す。熱処理温度 500 °C の膜は他の熱処理温度の膜とは明らかに異なっていることが分かる。 400 °C 以下の熱処理温度では、膜表面は、ほぼ作製における膜と同じ状態であることが分かる。しかし、 500 °C では、ガス放出、炭化等によると思われる凹凸が現われ、これが、保磁力増加の原因となっていると考えられる¹⁵⁾。

Fig. 5に、Fig. 3のポリイミド膜 $1 \mu\text{m}$ について、直流磁界 3.2×10^4 A/m、 300 °C 中で、1時間熱処理した後、 3.2×10^4 A/m、 300 °C の回転磁界中で as made ~ 4h 熱処理した場合の異方性磁界 (H_k) と保磁力 (H_c) の時間変化を示す。図より、 H_k は時間に対し指数関数的に減少し、 H_c は2時間まではほぼ一定であるが、4時間で約倍の値となった。これは、Fig. 3と同様な理由で H_c の上昇が起こっているものと考えられる。

以上のことから、CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜試料では、Fig. 3の熱処理後、 300 °C、2h、回転磁界中で熱処理を行なうと厚み $1 \mu\text{m}$ の膜に対しては、 $H_k \approx 88$ A/m、 $H_c \approx 16$ A/m の値が得られ磁心材料として優れた特性を有することが分かった。これらの結果に基づき、以下では、薄膜をトロイダル形状にしたときの磁心としての特性を調べた。

Fig. 6に、外形 10 mm、内径 6 mm、幅 3 mm のポピン

(アルミナ: AP-960) に RF スパッタ法で作製した磁性膜を直接巻つけ磁界中熱処理を行なう方法を示す。

図において、(a)、(b) は直流磁界中熱処理法を示す。(a) は、熱処理中に外部磁界 H_{ex} をアルミナ

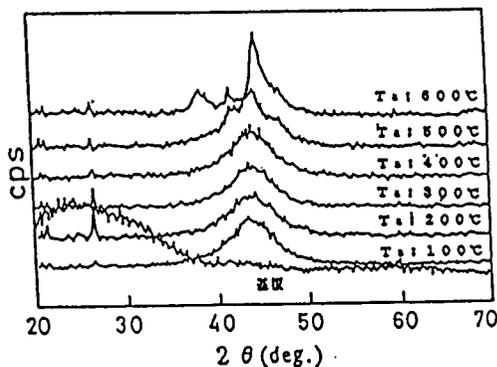


Fig. 2 CoZrTaNb 系薄膜の熱処理温度

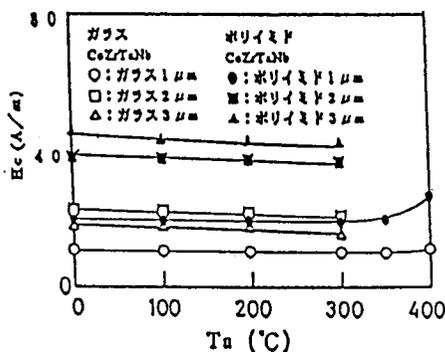


Fig. 3 保磁力と熱処理温度の関係

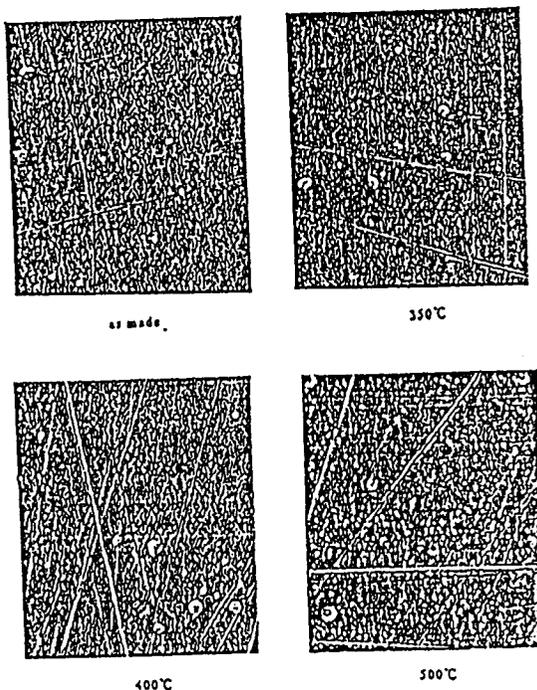


Fig. 4 ポリイミド上の CoZrTaNb 系薄膜の SEM 写真

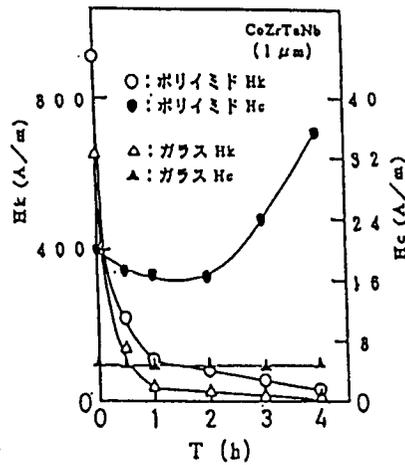


Fig. 5 回転磁界中熱処理による異方性磁界と保磁力の関係

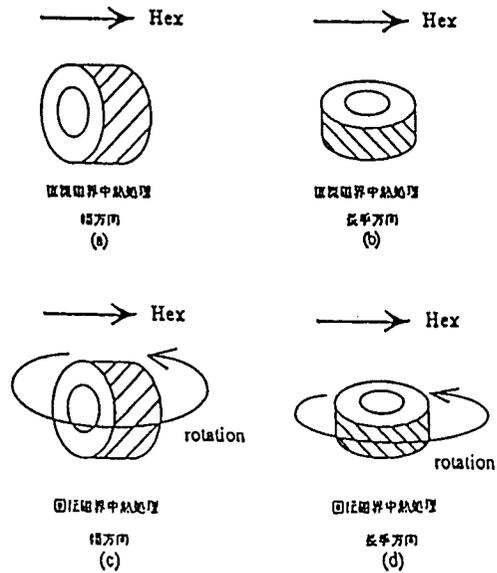


Fig. 6 アルミナピンによる熱処理

巻心の軸方向に印加した場合であり、(b)は、外部磁界 Hex をアルミナ巻心の軸方向に直角にした場合である。また、回転磁界中熱処理は、図の (c)、(d) に示すように、直流磁界中熱処理と同じ配置で試料を図示のように回転することによって行なった。

Fig. 7 に、磁性膜厚 $3 \mu\text{m}$ の場合の初透磁率 μ_i の周波数特性を示す。熱処理方法は、Fig. 6 に示した方法で行なった。このような磁界中熱処理を行なう場合、試料に印加される磁界分布は、平板状試料のような均一な磁界分布にはならないが、軸方向に弱い一軸異方性を付けられことは確かめている¹⁶⁾。図より、 μ_i は Fig. 6 の (a)、(c) の方法で熱処理たものが (b)、

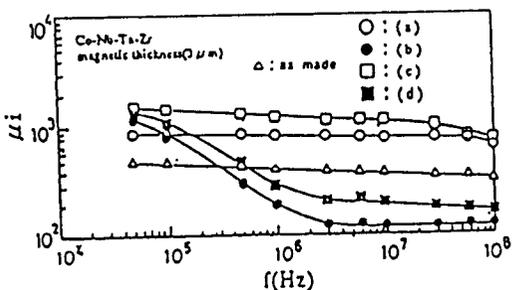


Fig. 7 初透磁率の周波数特性

(d) の場合より大きく、(a)、(c) 共に 50 MHz 付近まで一定の値が得られることが分かる。一方、(b)、(d) は、いずれも 100 kHz 付近から周波数特性が急激に減少することが分かった。

以上のことから、ポリイミド基板上にスパッタした CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜は、インダクタンス素子として使用する場合、トロイダル形状にした後、(a) の方法で熱処理後には、幅方向に強い一軸異方性が形成されているが、(c) の回転磁界中で熱処理すれば、その一軸異方性を弱めることができ、透磁率の値も大きく周波数特性の良い軟磁性材料が得られることが分かる。以後の実験は、(a) の熱処理を 300°C 、 1 h で行なった後、(c) を 300°C 、 2 h で行なったトロイダル磁心について行なうこととする。

Fig. 8 に、最大磁束密度を 0.1 T 一定とし、膜厚 $3 \mu\text{m}$ の場合の $1 \sim 15 \text{ MHz}$ における 1 周期あたりの磁心損失 W_c の周波数依存性を示す。図に示す \circ は (a) の熱処理、 \square は (c) の熱処理、 \bullet は (b) の熱処理、 \blacksquare は (d) の熱処理の結果を示す。図より、(a)、(c) で熱

処理した試料の磁心損失は、(b), (d) で熱処理した場合より小さくなる事が分かる。また、(a), (c) : (b), (d) とともに直流磁界より回転磁界で熱処理した場合の方が磁心損失は小さくなるが、周波数 3 MHz 付近から直線的に増加し始める事が分かる。この増加は、渦電流損失が大きくなるためと考えられる。一方、3 MHz 以下の周波数範囲の値は、直流ヒステリシス損失が大きいため、ほぼ一定の値となると推測される^{17), 18)}。

Fig. 9 に、膜厚 3 μm 一定とし、最大磁束密度を 0.1 ~ 0.4 T の場合の一周期当たりの渦電流損失 W_e の周波数依存性を示す。同図を見ると 0.5 ~ 2 MHz の周波数範囲では、 $W_e = f^{0.97}$ の関数で増加し、2 ~ 15 MHz の周波数範囲では、 $W_e = f^{1.1}$ の関数で増加することが分かる。膜厚 3 μm の CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜磁心の渦電流損失に対して、 $W_e \propto B_m^2$ の関係がこの式に適用できると仮定すれば、膜厚 3 μm の CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜磁心の渦電流損失は、0.5 ~ 2 MHz の周波数範囲で、 $W_e \propto f^{0.97}$ であり、2 ~ 15 MHz の周波数範囲で $W_e \propto f^{1.3}$ となり、 $W_e \propto f$ の関係が成立すると考えられる^{18), 19)}。

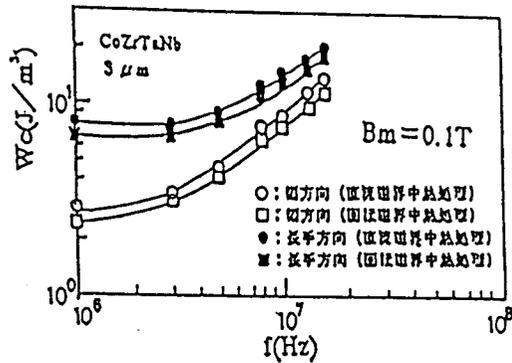


Fig. 8 磁心損失の周波数特性

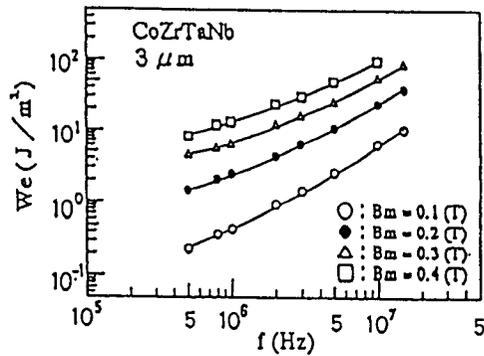


Fig. 9 渦電流損失の周波数特性

以上のことから、CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜磁心の渦電流損失は、従来の Mn - Zn 系フェライト磁心、パーマロイ磁心、FeCoSiB 系による磁心等と比較しても低い値となり、非常に小さい鉄損の磁心が得られることが分かった。また、2 MHz 付近で渦電流損失の特性が変わっているが、この理由は、磁壁数 n の違いに関係しているものと思われ、今後磁区観察やその他の検討が必要である。

Fig. 10 に、最大磁束密度を 0.1 T 一定とし、膜厚 3 μm の場合の 1 ~ 15 MHz における 1 周期あたりの実効透磁率 μ_e の周波数依存性を示す。図より、周波数特性は 15 MHz 付近までほぼ一定の特性を示し、(a), (c) で熱処理した試料の実効透磁率は、(b), (d) で熱処理した試料に比べ約 1.5 倍以上大きいことが分かる。更に、(a), (c) で熱処理した試料の実効透磁率の周波数特性は、約 2000 で 15 MHz まで、ほぼ一定の値が得られるが (b), (d) で熱処理

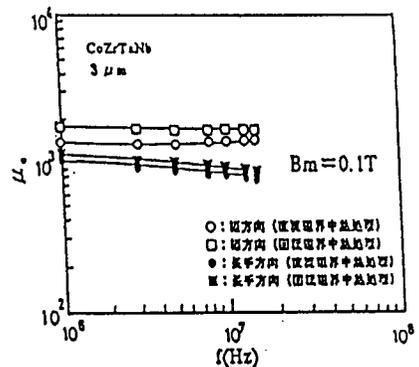


Fig. 10 実効透磁率の周波数特性

した薄膜による磁心は、1～15 MHz 範囲で単調に減少することが分かった。

Fig. 1 1 に、トロイダル形状のアルミナ巻心と CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜厚 $3 \mu\text{m}$ で構成したインダクタンスの周波数特性および計算結果の結果を示す。アルミナ巻心に磁性膜を 2.5 回巻き、巻き線は 0.2ϕ のジュンフロン線を 26 回巻いて測定した。磁性膜の熱処理は、Fig. 6 の (a) の方法で行なった。図より、磁性膜厚 $3 \mu\text{m}$ の場合、50 MHz 付近までほぼ $1 \mu\text{H}$ 一定の L が得られ、空心の場合の約 1.5 倍のインダクタンスの値が得られることが分かる。また、円形断面近似の式に直流磁界中熱処理で得られた透磁率の値を入れて計算した結果、等価回路による測定値と良く一致することが確認できた。

Fig. 1 2 に、抵抗 R の周波数特性の測定結果を示す。測定方法は、インダクタンス L の周波数特性と同様の形状でかつ熱処理条件も同じ値で行なった。 R は 10 MHz 付近から急激に増加することが分かる。空心コイルと比べると、このインダクタンスの損失は、鉄損と銅損がほぼ 1 : 1 であり、磁心損失と共に銅損の低下も検討しなければならない。

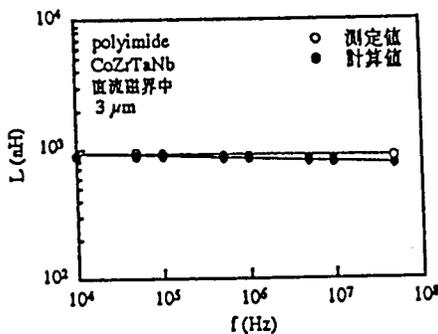


Fig. 1 1 磁性膜 $3 \mu\text{m}$ の測定値と計算値によるインダクタンスの周波数特性

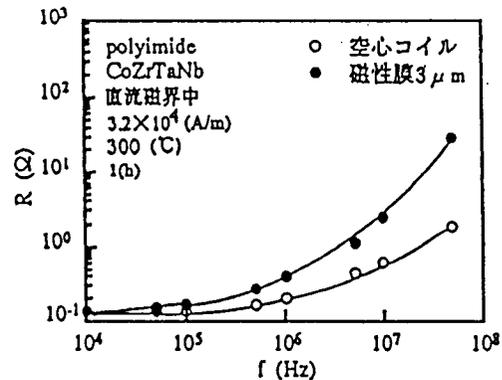


Fig. 1 2 抵抗の周波数特性

以上のことより、実効透磁率 μ_e の低下が少ないことを反映してインダクタンスの値は、50 MHz 付近までほぼ一定であることが分かった。

4. むすび

- (1) ポリイミド上でも優れた軟磁気特性が得られることを見いだした。
- (2) トロイダル形状の磁心を構成し、熱処理法を検討した結果、直流磁界中熱処理後回転磁化中で熱処理すれば、磁気異方性の小さい磁性膜が得られることが分かった。
- (3) 損失を測定した結果、CoZrTaNb 系アモルファスは、スーパーマロイ、FeCoSiB 系アモルファスや Mn-Zn フェライト等より小さい損失の磁心材料であることが分かった。
- (4) インダクタンスを試作した結果、100 MHz 付近まで透磁率に比例した周波数特性の良い特性が得られた。

また、CoZrTaNb 系アモルファス合金薄膜の比抵抗は、 $1.4 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$ であることから、トロイダル形状の場合のインダクタンスの値を改善するためには、磁性層の断面積の増加や渦

電流の減少をも考慮した磁性膜と非磁性膜を中間膜とした多層化にすれば可能であると推察される。

最後に、本研究にご援助頂いた石田（實）記念財団に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 加茂芳邦, 島田寛: 第14回応用磁気学会講演概要集, 11aG-2, 515 (1990)
- 2) 加茂芳邦, 島田寛: 電気学会マグネティックス研究会, MAG-91-55, 41 (1991)
- 3) 奥野光, 小林俊夫, 榊 陽: 電気学会マグネティックス研究会, MAG-89-135, 39 (1989)
- 4) 奥野光, 桐田利彦, 榊 陽: 電気学会マグネティックス研究会, MAG-90-38, 39 (1990)
- 5) Kamo. Y., Shinaki. K. and Yutaka. S.: J.Appl.Phys., 64, 10, pp. 5673-5675 (1988-11)
- 6) 加茂芳邦・島田 寛: 応磁学会誌, 13, 2, pp. 355-358 (1989-4)
- 7) 加茂芳邦・星 守・島田 寛: 第11回応磁学会概要集, 1pC-10 (1987-11)
- 8) 加茂芳邦・島田 寛: 第12回応磁学会概要集, 30aG-1 (1988-9)
- 9) 加茂芳邦・島田 寛: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-88-230, pp. 103-109 (1988)
- 10) 加茂芳邦・島田 寛: 第14回応磁学会概要集, 11aG-3 (1990-10)
- 11) 加茂芳邦・島田 寛: 第15回応磁学会概要集, 31pD-1 (1991-10)
- 12) 加茂芳邦・島田 寛: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-90-111, pp. 35-42 (1990-9)
- 13) 加茂芳邦・島田 寛・坂本幸隆: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-92-205, pp. 121-128 (1992-9)
- 14) 加茂芳邦・島田 寛・坂本幸隆: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-94-13, pp. 103-111 (1994-3) 5)
- 15) 加茂芳邦・島田 寛: 応磁学会誌, 16, 2, pp. 421-424 (1992-4)
- 16) 加茂芳邦・菊地新喜・島田 寛: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-91-55, pp. 41-49 (1991-6)
- 17) 八木正昭, 佐藤俊郎, 榊 陽, 沢 孝雄, 猪俣 孝一郎: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-87-62 (1987)
- 18) 八木正昭: 日本応用磁気学会研究会試料, 76-5 (1992-7)
- 19) 奥野 光, 榊 陽: 電子情報通信学会論文誌, J75-C- || No. 1, pp. 1-7 (1992)
- 20) 野口 潔, 本田裕二, 成宮義和: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-92-6 (1991)

発表論文

- 1) 加茂芳邦・島田 寛・坂本幸隆: 平成5年度電気関係学会東北支部連合大会, 1H4
- 2) 加茂芳邦・島田 寛・坂本幸隆: スピニクス特別研究会, 93-6-15
- 3) 伊藤博喜・赤間典子・加茂芳邦・藤崎春雄: 平成6年度電気関係学会東北支部連合大会, 1B12