UDC 621.793.12: 621.3.049.7-416: [546.65+546.7

論文

52-A72

同時スパッタリングによる希土類-遷移金属系アモルファス膜の作製

非会員 山 本 寛 (東工大)
 正 員 直 江 正 彦 (東工大)
 正 員 山 中 俊 一 (東工大)

1. ま え が き

重希土類-鉄属遷移金属系合金は特異な磁性を示すので、これまで多くの物性的研究がなされてきたが、最近、応用に関する研究も盛んになってきた。特に、磁気バブル材料や熱磁気書き込み媒体として良好な特性を示す Gd-Co 系や Tb-Fe 系のアモルファス薄膜に関する研究と⁽¹⁾⁻⁽⁸⁾、電気音響変換子や弾性波伝搬媒体に適した大きな磁気ひずみや ΔE 効果(磁界印加によりヤング率 E の変化する現象)を示す TbFe₂ や DyFe₂ などのレーベス (Laves) 相化合物に関する研究が盛んである⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。

これらのアモルファス薄膜はスパッタリング法や真空蒸着法により作製できるが、広い面積あるいは厚い膜の得られる点では普通スパッタリング法の方が有利である。しかし、これまでのスパッタリングでは一般に合金ターゲットを用いており、それは普通碲石位の大きさで、実用に供し得るような広い面積にわたって厚さ・組成ともに均一な膜は得られるに至っていない。従って、何らかの方法で十分大きなターゲットを構成することがまず問題となる。また、レーベス相化合物は高効率の薄膜トランジューサや遅延時間可変の遅延素子などの弾性表面波デバイスへの応用が有望であるが、この場合も素子として使える程度に大きな単相バルクの作製が難しいことと、バルクの表面層の

みを利用することを考えると、大きなターゲットを構成し、十分広い面積にわたって均一な薄膜を作製し、これを用いる方が有利である。

先に、筆者らの研究室では Ta 円板上に適当な形の Ti 板を置いた複合ターゲットを用いて、Ti 板の寸法や枚数を変えることにより、Ta と Ti の表面占有比を調整し、同時スパッタリング法によって種々の組成の合金薄膜を作製することに成功した⁽¹²⁾。本研究は、同様な方法により所望の組成、広い面積にわたって組成・厚さともに均一な Gd-Co 系および Tb-Fe 系のアモルファス膜を作製することを試みたものである。ターゲットの構成様式を工夫し、スパッタリング条件を適当に選ぶことにより、ターゲットと同程度の面積にわたって均一なアモルファス膜が得られ、更に金属間の表面占有比を調整することにより、望みどおりに、しかも再現性よく膜の組成を制御することができた。また補償組成に近い膜では、これまでに報告されている合金ターゲットの高周波スパッタ膜のものと様々な形状磁区構造が見られ、バブル磁区の形成も可能であった。

以下に、本研究で試みた種々なターゲットの複合様式および同時スパッタリング法の詳細を示し、得られた膜の組成、構造および二、三の磁気的性質について今までに得られた結果を述べる。

2. 試料膜の作製

〈2・1〉 スパッタリング法 第1図に試料膜の作製に用いた二極グロー放電スパッタリング装置の概略を示す。基板とターゲットの間隔は約 47mm で、それらを固定しているターゲット台(陰極)と基板ホル

Preparation of Rare Earth-Transition Metal System Amorphous Films by Co-sputtering. By Hiroshi Yamamoto, Non-member, Masahiko Naoe, Member & Syunichi Yamanaka, Member (Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology).

山本 寛: 非会員, 東京工業大学大学院電気工学専攻博士課程
 直江正彦: 正員, 東京工業大学工学部電気・電子工学科助教授
 山中俊一: 正員, 東京工業大学工学部電気・電子工学科教授

第 1 図 二極グロースパッタリング装置の概略

Fig. 1. Schematic of diode glow discharge sputtering apparatus.

第 1 表 代表的なスパッタリング条件

Table 1. Typical sputtering parameters.

スパッタリング条件	直 流		高 周 波 Ⅲ
	I	II	
印 加 電 圧 [kV]	3.3	2.5	0.9
槽 内 圧 力 [mTorr]	40	45	5
放 電 電 流 [mA]	13	20	150
プラズマ収束磁界 [Oe]	0	100	100

ダ(陽極)は両方とも水冷できるようになっている。基板には 26mm×76mm×1mm のマイクロライドガラスを用いた。コイルはプラズマ収束用のもので、100 Oe までの磁界を印加できる。スパッタリング槽内を圧力が 1 μ Torr 以下になるまで排気した後、Ar ガス(純度 99.99% 以上)を導入し、所定の圧力を保つように流入量を調整した。

放電方式としては直流と 13.56 MHz 高周波の両方を試みた。それらの代表的なスパッタリング条件を第 1 表に示す。シャッターを閉じたまま 1~2 時間のプレスパッタリングを行ない、ターゲット表面の酸化層と槽内の残留不純物ガスを十分取除いた後シャッターを開き、約 100 $\text{\AA}/\text{min}$ のたい積速度で本スパッタリングを開始した。メスパワー吸収スペクトルの観測と磁気ひずみの測定のために、特に 10~50 μm の厚い膜を作製したが、それ以外の目的には厚さ 1~3 μm の薄膜を作製して試料とした。組成分析は、すべての試料に対して、けい光 X 線法により直径 1.5cm の円内に含まれる膜の平均値を調べ、更に一部の試料に対しては直径 1~10 μm の電子ビームを走査しながら EPMA 法により局部的組成変動を調べた。

〈2.2〉 複合ターゲット 第 2 図に本研究で検討した 4 種類のターゲット構成様式の概略を示す。例え

第 2 図 複合ターゲットの構成様式

Fig. 2. Constructions of composite targets.

ば、Gd-Co 系では Gd 円板上に図示の形状の Co 片を重ねた。まず Ti-Ta 系合金膜の作製において、組成制御の点で良好な結果を与えた(a)および(b)様式の複合ターゲットを用いて同時スパッタリングを行なった⁽¹³⁾。得られた膜の組成については、他の様式のものとともに次章で詳細を述べるが、第 2 表に示すように望みどおり厳密に組成を制御することはできなかった。

この原因として、第一に Ta と Ti のスパッタ率や電子放出係数が同程度であるのに対して、希土類のスパッタ率や電子放出係数が遷移金属のそれらに比べて大きく違うことが考えられる。また、ターゲット面が一様にスパッタされていないことも原因の一つとして挙げられる。例えば、(c)様式のターゲットを用いたときの直流スパッタリングによる Gd 円板の侵食深さと Co 片の減少重量を測定して調べたエッチング速度は、第 3 図のような半径方向分布を示した。この結果から、ターゲットの円周端から 5~6mm 内側が中央

第 3 図 ターゲット面上の半径方向のスパッタ・エッチング速度分布

Fig. 3. Distribution of sputter-etching rate in the radial direction at the surface layer of the target.

部の2倍以上の速さでスパッタされることがわかった。従って、(a)や(b)様式では面積比を変えると実効の面積比も変わり組成を制御できない。小林氏¹⁴⁾も同様に(a)および(b)様式に基づいて、80 mm ϕ $\times$ 5 mm の Fe 円板上に 3~5 mm ϕ $\times$ 1 mm 程度の小さな希土類円板を乗せた複合ターゲットを高周波スパッタリングして、Gd-Fe 系や Tb-Fe 系のアモルファス膜を作製し磁気バブルの形成に成功している⁽¹⁴⁾。しかし、構成金属の表面占有比と膜組成の間に厳密な対応性が確立できないのみならず、広い面積にわたって均一な膜は得られていない。これは Fe 板の上に厚さ 1 mm もある希土類小円板を多数置いたため、スパッタリングを行なう入射イオンに対して影になる部分が生じ、それらの配置状態によって Fe のスパッタ実効面の広さや形状が変化したためと思われる。そこで(c)様式のように、59 mm ϕ $\times$ 5 mm の Gd 円板上に厚さ 0.1 mm、1辺 4 mm の正方形の Co 薄板をほぼ一定の間隔で配置したモザイク状複合ターゲットを用いたところ、これと同程度の広さにわたって組成・厚さともに均一な膜を得ることができた⁽¹⁵⁾。しかし、このように極めて薄い小片は、最初規則正しく並べる作業だけでも困難なうえに、消耗による交換をたびたび行なわねばならず、やっかいである。

以上の結果をふまえて(d)のような扇形片を置く様式を考案した⁽¹⁶⁾。このターゲット面上ではその中心に関する同心円上の金属占有比が同じになっているため、第3図に示したような半径方向のエッチング速度分布によるトラブルを防ぐことができる。またスパッタ粒子がプラズマ中で十分に混合・拡散されるので、扇形片をあまり細くしなくてもよい、すなわち片数を15枚程度にすれば十分である。実際に EPMA を用いて局所的な組成変動を調べたところ、ばらつきは $\pm 0.5\%$ 以内であった。更に、この様式では全体の表面占有比を容易に、しかも厳密に調整することもできるので、次章で示すように所望の組成を持つ膜を再現性よく作製できるようになった。

化学的に活性な希土類円板上に、安定で加工が容易な遷移金属の薄板を置く方が有利と考えられたので、前述のように、Gd-Co 系複合ターゲットとしては直径 59 mm ϕ で厚さ約 5 mm の Gd (純度 99.9%) 円板上に Co (純度 99.99%) の薄板や小片を配置したものを用いた。しかし Tb-Fe 系では、Gd と同程度の円板を作る大きさの Tb 板を入手できなかったため、やむを得ず Fe (純度 99.9%) の円板上に Tb (純度 99.9%) 片を置いたものを用いた。

〈2・3〉 スパッタリングガスの純化 希土類は化

第4図 希土類板の表面層の酸化によるトラブル

Fig. 4. Troubles by oxidation of the surface layer of rare-earth plates.

第5図 アルゴンガス純化装置

Fig. 5. Ar gas purifier.

学的に極めて活性であり、遷移金属や両者の合金に比べずっと酸化されやすい。合金ターゲットのスパッタリングガスとして十分使える市販の高純度アルゴンガス(公称純度 99.98%)を、そのまま槽内に導入してスパッタリングを行なったところ、複合ターゲットにおける単体希土類板の表面層が酸化されてしまった。そのため、例えば(b)様式の Gd-Co 系ターゲットをスパッタすると、第4図(a)に示すようなターゲットと同様なパターンが膜面上に現われた。スポットの部分はかなり酸化されており、これは前に述べたように希土類の電子放出係数が大きく、スパッタリング中ターゲットからの高エネルギー電子の多数がそこに集中的に衝突するため、その周辺部のガラス基板を融解するほど高温になるためである。このことはスパッタ中スポット部に発光の見られることから推測できる。また(d)様式の Tb-Fe 系ターゲットは、扇形の Tb 片が酸素侵入による表面層膨張のために、同図(b)に示すように湾曲してしまった。そこで市販のアルゴンガスを第5図に概略を示すような純化装置を通過させることによって、水分、窒素、酸素などの活性不純物ガスの量を 1/100 以下に減らしたところ、ターゲット表面層の酸化が完全に防止され、それらのトラブルが生じなくなった。

3. 膜の組成

〈3・1〉 組成制御 合金ターゲットを用いる方法

では、スパッタリング条件を変えることによって組成制御を行なっているが、本研究では複合ターゲットの構成金属の表面占有比を変えることによって、より厳密な組成制御が可能かどうか調べた。スパッタリングから膜たい積までの複雑な過程を考えると、一つのパラメータだけを任意に変えられない（例えば、槽内圧力一定で、印加電圧を変えると放電電流も変わる）前者の方法よりも、使用装置にとって最適なスパッタリング条件下で、構成金属の表面占有比を変えるだけで組成制御できる後者の方が容易で、しかも確実な方法と思われる。

Gd-Co 系複合ターゲットのスパッタ膜の組成を $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ （すなわち Co 濃度を $X(\text{at. \%})$ ）、Co のターゲット表面占有率を A_{Co} 、Gd のそれを $A_{\text{Gd}} (= 1 - A_{\text{Co}})$ で表わし、Co のスパッタリング率を S_{Co} 、Gd のそれを S_{Gd} とし、基板上での付着率 D をそれぞれ D_{Co} および D_{Gd} の記号で示すこととする。構成金属間に特に顕著な化学的相互作用がないとみなせば、それらの間には次の関係が成立つものと考えられる。

$$X = \frac{1}{1 + \frac{A_{\text{Gd}} \cdot S_{\text{Gd}} \cdot D_{\text{Gd}}}{A_{\text{Co}} \cdot S_{\text{Co}} \cdot D_{\text{Co}}}} = \frac{1}{1 + \frac{A_{\text{Gd}}}{A_{\text{Co}}} \cdot \frac{1}{K_{\text{Co/Gd}}}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで $S_{\text{Co}} \cdot D_{\text{Co}} / S_{\text{Gd}} \cdot D_{\text{Gd}}$ をみかけのスパッタ率比とみなし、 $K_{\text{Co/Gd}}$ で表わした。各ターゲット構成様式における A_{Co} と X および $K_{\text{Co/Gd}}$ の関係について、直流 I のスパッタリング条件（第 1 表）の場合の代表例を第 2 表に示す。 $|\Delta K_{\text{Co/Gd}} / \Delta A_{\text{Co}}|$ の値に現われているように、下の様式ほど異なる A_{Co} の値に対する

第 2 表 Gd-Co 系におけるターゲット表面占有比と膜組成の関係

Table 2. Relation between the ratio of metal areas at the target surface and the film composition for Gd-Co system.

	ターゲット様式	ターゲット	スパッタ膜 Co 濃度 $X(\text{at. \%})$	見かけのスパッタ率比 $K_{\text{Co/Gd}}$	$ \Delta K_{\text{Co/Gd}} / \Delta A_{\text{Co}} $
		Co 面占有率 $A_{\text{Co}}(\%)$			
a	短冊	54	56	1.08	0.027
		60	58	0.92	
b	穴あき円板	65	74.6	1.58	0.038
		70	76.4	1.39	
c	モザイクチップ	61.5	73.9	1.78	0.0049
		80	88.2	1.87	
d	扇形片	44	60.8	1.97	0.0021
		58	72.8	1.94	

$K_{\text{Co/Gd}}$ の違いが少なく、膜の組成制御がしやすい。なお、同じ槽内圧力・印加電圧の下で、単元ターゲットをスパッタリングした場合の、それぞれの膜たい積量から算出したスパッタ率比 $K'_{\text{Co/Gd}}$ の値は約 1.40 である。(c)、(d)様式の $K_{\text{Co/Gd}}$ がそれぞれ、 $K'_{\text{Co/Gd}}$ より 0.4~0.5 大きいのは、前述の Co 片の厚みにより生じる影のため、Gd のスパッタリングに有効な面積がターゲット上の占有面積よりかなり狭くなっているためと思われる。また(a)様式では Co 短冊の数が少なく、その厚みによる影部分が少ないことや、第 3 図に示したような最侵食部分（円周端より 5~6mm 内側）を Gd が占有していることが、(a)の $K_{\text{Co/Gd}}$ 値を $K'_{\text{Co/Gd}}$ (≈ 1.40) より 0.4 程度低くしたとみなせる。(b)様式の $K_{\text{Co/Gd}}$ は $K'_{\text{Co/Gd}}$ との間に一定の大小関係がないのみならず違いが大きい。これは、あけた穴の位置のわずかな違いや、半径方向のスパッタリング速度分布が原因と思われる。

取扱った複合ターゲット構成様式のうち、(d)様式が構成の容易さに加えて組成制御の点でも一番優れている。 A_{Co} と X の関係を更に詳しく調べたところ、第 6 図に示すように各実験値が(1)式において直流法では $K_{\text{Co/Gd}}=1.93$ 、高周波法では $K_{\text{Co/Gd}}=2.90$ と仮定した曲線のごとく近くにあり、かなり厳密な組成制御も可能であることがわかった。ここで、高周波法において X が大きくなる、すなわち、見かけのスパッタ率比 $K_{\text{Co/Gd}}$ が 2.90 にもなるのは、一度たい積した膜表面の希土類が再び選択的にスパッタリングされるため⁽¹⁷⁾、見かけ上のたい積率 $D_{\text{Gd}}/D_{\text{Co}}$ が直流法のそれより低くなることによると考えられる。

第 6 図 扇形様式ターゲットにおける Co の表面占有率 A_{Co} とスパッタ膜中の Co 濃度 X の関係

Fig. 6. Relation between the occupation at the target surface of fan-shaped Co plates, A_{Co} and the Co concentration in the sputtered film, X .

(試料は高周波スパッタ膜)

第 7 図 基板中央からの距離 r に対する Co 濃度 X の依存性

Fig. 7. Dependence of Co concentration X on the distance r from the center of the substrate.

第 8 図 膜面内の局部的組成変動

Fig. 8. Composition fluctuation in the local areas at the film surface.

〈3・2〉 組成分布 膜面内での組成分布は、少なくともターゲットと対向した同面積にわたってほぼ均一であった。第 7 図は高周波スパッタ膜の組成がターゲット円板の中心の真上にあたる中央部分から周辺へ向って、どのように変化をするか調べた結果の一例である。中央部分から離れる（同図中では r の増大）につれて、大部分の試料では Co 濃度 X が単調に増加し、その変化率は約 0.03 at. %/mm と極めて小さい。直流スパッタ膜に対しても同様な結果が得られ、周辺へ向っての X 増加率は高周波スパッタ膜のそれよりやや高いが、最高でも 0.05 at. %/mm であった。

局部的組成変動も懸念されるので、EPMA によって膜の表面および断面を調べた。第 8 図は Gd-Co 系スパッタ膜の表面を約 $10\mu\text{m}\phi$ の電子ビームスポットでサンプリングした結果であり、第 9 図は Tb-Fe 系スパッタ膜の断面を、約 $20\mu\text{m}$ にわたって約 $1\mu\text{m}\phi$ のスポットで掃引した結果を示す。変動幅は 0.5 at. % 以下で測定誤差内にあり、組成が局部的にも十分均一であることが確かめられた。

〈3・3〉 放電条件の影響 膜の組成は、第 10 図に

第 9 図 Tb-Fe 系スパッタ膜の厚さ方向の組成変動

Fig. 9. Composition fluctuation in the direction perpendicular to the surface of the sputtered film of Tb-Fe system.

第 10 図 印加電圧に対するスパッタ膜組成 (Co 濃度 X (at. %)) の依存性

Fig. 10. Dependence of the film composition (Co concentration X (at. %)) on the applied voltage.

第 11 図 膜組成 (Co 濃度 X (at. %)) と投入電力の関係

Fig. 11. Relation between the film composition (Co concentration X (at. %)) and the supplied power.

示すように印加電圧によって著しく変化するが、第 11 図に示すように電圧を一定に保てば、投入電力をかなり大幅に増減しても組成変動は少ない。従って、これらの系で均一な組成を持つ膜を作製するには、できるだけ出力電圧を安定化した電源を用いてスパッタリングを行なった方がよい。

4. 膜の構造

〈4・1〉 見かけの構造 第 12 図に直流および高周

第 12 図 膜の表面および断面の電子顕微鏡写真
Fig. 12. Electron micrographs of the surface and the cross section of the sputtered films.

第 3 表 理論密度と見かけの密度の比較

Table 3. The comparison between theoretical densities and apparent ones.

組 成	密 度 (g/cm^3)		
	ρ_a	ρ_x	ρ_d
GdCo ₂	8.85 ± 0.05	9.66	8.58
TbFe ₂	8.6 ± 0.05	9.05	7.99

波スパッタ膜の表面ならびに断面の電子顕微鏡写真を示す。どちらの膜もほとんど空孔がなく表面が平滑であるが、直流スパッタ膜では厚さ方向に柱状組織が存在し、表面にも不規則な凝集模様が見られた。これは直流法の方が膜面に高エネルギーの γ 電子が多数飛来し、基板温度がそれだけ上昇したためと思われる。しかし、膜の体積と重量から求めた見かけの密度 ρ_a を比較しても、放電方式による差異はほとんど見られなかった。

また組成がレーベス相の化学量論値である GdCo₂ および TbFe₂ に近い膜の見かけの密度 ρ_a 、それらのレーベス相化合物バルクの X 線密度 ρ_x と、Tao 氏らが各成分原子が剛体球であり、全く無秩序に分布した「理想的」CN 12 詰込み状態を仮定して算出した密度 ρ_d を⁽¹⁸⁾ 比較したところ第 3 表のようになった。GdCo₂ および TbFe₂ の ρ_a は、それぞれ ρ_x より 8% および 5% 程度低いが、それぞれの ρ_d より 3% および 8% 程度高い。従って、これらの膜中の原子間の結合は、成分金属がイオン化して規則配列した化合物と、中性原子が無秩序に詰込まれた集合体との中間状態にあるものと思われる。

〈4.2〉 結晶学的構造 まず表面反射の X 線および電子回折法により膜の結晶構造を解析した。X 線ダイヤグラム上では幅広いピークが一つしか現われず、電子回折パターンもハロー状になるので、膜はアモル

第 13 図 Gd-Co 系スパッタ薄膜の電子回折の強度曲線

Fig. 13. The intensity curves of electron diffraction on the sputtered thin films of Gd-Co system.

第 14 図 TbFe₂ アモルファス膜のメスバウアー吸収スペクトル

Fig. 14. Mössbauer absorption spectrum of TbFe₂ amorphous film.

ファスであるか 20 Å 以下の微結晶子からなるものと見なせる。また、抵抗率は $10^{-3} \sim 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ と普通の金属より 10^2 倍以上も高く、その温度係数が $1.1 \times 10^{-4} \text{ deg}^{-1}$ 程度と極めて小さい。更に真空中、350°C 程度で熱処理すると、一部結晶化して抵抗率が $1/2 \sim 1/3$ に減少し、その温度係数は 10 倍以上大きくなった。このようにスパッタしたままの膜の電気的性質もアモルファス特有のものであった。

結晶学的構造をもっと詳しく調べるために、コロジオン膜上に厚さ数百 Å の Gd-Co 系薄膜をスパッタして、透過法高分解能電子回折によるパターンを撮影し、フォトメータにより感光度に比例した強度曲線を得た。第 13 図にその結果の一部を示したが、Co 濃度 X が増加するにつれてピークを与える $\sin\theta/\lambda$ の値が小さくなることから、Gd の電子が Co の 3d 殻へ移動した結合の存在が考えられる。また、これらの

線からコヒーレントな部分を抽出して動径分布を調べたところ、原子の規則配列の程度は $10 \text{ \AA}$ 以下であると推定された。更に、 TbFe_2 スパッタ膜のメスバウアー吸収スペクトルを観測して、Fe を取り囲む原子群の分布状況を調べた (第 14 図)。このスペクトル: 単体 Fe およびレーベス相化合物の吸収ピーク位置の比較から、膜中の Fe の周りで Tb と Fe の数や割合が一定していないことがわかる。従って、複合ターゲットの同時スパッタ膜は、成分原子がかなりの *shortrange* でも無秩序配列した構造であることが明らかとなった。

5. 膜の磁性

〈5・1〉 飽和磁化 膜組成と飽和磁化の関係は、合金ターゲットの場合の報告例⁽¹⁾と同様、補償組成で飽和磁化が最小となる V 形特性を示した。第 15 図で Gd-Co 系スパッタ膜の Co 濃度 X とグラムあたりの飽和磁化 σ_s [emu/g] の関係を示す。補償組成より Co 濃度が低い ($X < 0.79$) 領域で、高周波スパッタ膜の σ_s が直流のそれよりやや大きくなる以外、放電方式による顕著な差異は見られなかった。

〈5・2〉 磁区構造 $\sigma_s < 20 \text{ emu/g}$ の膜では、極性カー光学効果による磁区構造の観察が可能であった。第 16 図に Gd-Co 系スパッタ膜の磁区模様を代表例を示す。同図(c)のような磁気バブルの形成が可能であり、直流スパッタ膜では細長い変形バブルも見られた。

〈5・3〉 磁気ひずみ 結晶性バルクではレーベス相化合物が最大の磁気ひずみを示すので、これらの化学量論値 GdCo_2 および TbFe_2 に近い組成のアモルファス膜の磁気ひずみ特性を調べた。基板に付着したまま 2 ゲージ法によりひずみ量を測定し、板の屈曲効

果をも考慮した補正計算により膜自体の磁気ひずみ量を求めた⁽¹⁹⁾。第 17 図に示すように、膜の磁気ひずみ量は結晶性バルクのその 1/10 程度と小さく、使用ひずみゲージの精度が保証されている 5 kOe の磁界中でも飽和しなかった。これは上述のように、希土類原子の周りが全く無秩序な原子配列になっており、配位子場が平均化されるため、磁気弾性定数も結晶性バ

第 16 図 Gd-Co 系スパッタ膜の代表的磁区模様

Fig. 16. Typical magnetic domain patterns of Gd-Co sputtered films.

第 15 図 Gd-Co 系スパッタ膜の Co 濃度 X とグラムあたりの飽和磁化 σ_s の関係

Fig. 15. Relation between Co fraction X and saturation magnetization per gram, σ_s , of the sputtered films of Gd-Co system.

第 17 図 スパッタ膜の磁気ひずみ特性

Fig. 17. The magnetostriction characteristics of the sputtered films.

ルクのそれほど大きくないことによるものと思われる。

以上の結果は、本研究で得られたアモルファス膜が合金ターゲットを用いた膜とほぼ同程度の磁気的特性を持つことを示している。

6. む す び

本研究は単体金属板を組合せた複合ターゲットの同時スパッタリングにより、Gd-Co 系および Tb-Fe 系アモルファス膜を作製し、それらの組成、構造および性質を調べたものであるが、得られた結果をまとめると次のようになる。

(1) 複合ターゲットとして4種類の典型的な構成様式を考案し検討した結果、希土類円板上に遷移金属の扇形片を放射状・規則的に配置する様式は、スパッタリング率がかかなり違うこれら成分金属の膜組成制御に最適であることがわかった。

(2) しかも、この様式では大きなターゲットも構成でき、それと同程度に広い面積にわたって組成・厚さともに均一な膜が得られた。

(3) また、この構成のターゲットを用いれば、ターゲット表面における各金属の占有比を容易に、しかも大幅に変えられるので、どのようなスパッタリング条件のもとでも厳密で、再現性よく、連続的な膜組成の制御ができることがわかった。

(4) 直流法でも高周波法でも従来の合金ターゲットのスパッタ膜と同様な構造や磁気的性質を持ち、更に磁気バブルを形成し得るアモルファス膜を作製することができた。

以上のように、複合ターゲットの同時スパッタリング法は広い面積にわたって均一な希土類-遷移金属系合金膜の作製に適していることが明らかとなったので、今後この方法により電気機械結合係数の大きな三元の (Tb, Dy)-Fe 系化合物の均一な膜の作製を試み、表面弾性波デバイス用の高効率薄膜トランジューサを実現させたいと考えている。

終りに、実験の一部を担当された山口素行、西窪恵一、竹村哲夫ならびに松本信三の諸君に謝意を表す

る。また磁気ひずみ測定に際して御指導をいただいた千葉大学工学部 山口正恒助教授に深く感謝する。なお、本研究は文部省科学研究費の補助を受けて行なわれたことをここに付記し謝意を表する。

(昭和52年3月28日受付)

文 献

- (1) P. Chaudhari, et. al.: Amorphous Metallic Films for Bubble Domain Applications, *IBM J. Res. Developm.* **17**, 66(1973)
- (2) 白川他:「泡磁区材料としての Gd-Co 非晶質薄膜の作成と特性」信学部品材料研資 CPM 73-32 (昭 48)
- (3) R. Hasegawa: Static Bubble Domain Properties of Amorphous Gd-Co Films, *J. Appl. Phys.* **45**, 3109 (1974)
- (4) S. Matsushita, et al.: Thermo-magnetic Writing in Gd-Co Sputtered Films, *IEEE Trans. Magnetics* **MAG-11**, 1109 (1975)
- (5) H.C. Bourne, et al.: Effects of dc Bias on the Fabrication of Amorphous Gd-Co rf Sputtered Films, *ibid.* **MAG-11**, 1332 (1975)
- (6) N. Funakoshi: Composition Control of dc-Sputtered Amorphous Gd-Co Magnetic Thin Films, *Japan J. Appl. Phys.* **14**, 565 (1975)
- (7) S. Matsushita, et al.: Thermo-magnetic Writing Tb-Fe Films, *ibid.* **15**, 713 (1976)
- (8) 白川他:「Gd-Co スパッタ膜の作製と特性」電学論 A, **51**, 151 (昭 51-4)
- (9) A.E. Clark, et al.: Giant Room-Temperature Magnetostrictions in TbFe₂ and DyFe₂, *Phys. Rev.* **5**, 3642 (1972)
- (10) A.E. Clark, et al.: Properties of Rare-Earth-Iron Compounds, *J. Appl. Phys.* **44**, 2913 (1973)
- (11) A.E. Clark, et al.: Giant Magnetically Induced Changes in the Elastic Moduli in Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂, *IEEE Trans. Sonics Ultrasonics*, **SU-22**, 1, 50 (1975)
- (12) 大橋・山中:「同時スパッタリングによる Ta-Ti 薄膜の作製」信学論 *Trans. IECE*, **55-C**, 395 (昭 47)
- (13) 直江・山中:「同時スパッタリングによる Gd-Co アモルファス薄膜」昭 49 電子通信学会全大 278
- (14) 小林・今村・三村:「非晶質 Gd-Fe 合金膜の作製と静磁気特性」信学部品材料研資 CPM 74-85 (昭 49)
- (15) 山中・直江・竹村:「同時スパッタリングによる Gd-Co アモルファス薄膜」昭 51 電子通信学会全大 220
- (16) 山中・直江・山本:「同時スパッタリングによる Gd-Co アモルファス薄膜」昭 51 電気学会全大 352
- (17) J.J. Cuomo, et al.: Influence Sputtering Parameters on the Composition of Multicomponent Films, *J. Vac. Sci. Technol.* **12**, 79 (1975)
- (18) L.J. Tao, et al.: Charge Transfer and the Magnetic Properties of Amorphous Gd_{0.33}Co_{0.67}, *Solid State Commun.* **13**, 1491 (1973)
- (19) 山口・伊藤:「蒸着 Ni フェライト厚膜の磁気ひずみ特性」日本音響学会 3-4-1 (昭 44)