センダストスパッタ膜の内部応力

Internal Stress for Sputtered Sendust Films

石綿延行・新海 茂*・浦井治雄

日本電気(株)ビデオ開発センター, 川崎市宮前区 4-1-1 (〒216)

*関西日本電機(株), 大津市晴嵐 2-9-1 (〒520)

N. Ishiwata, S. Shinkai* and H. Urai

Video Technology Development Center, NEC Corporation, 4-1-1 Miyamae-ku, Kawasaki 216

*Development Division, NEC Kansai, 2-9-1 Seiran, Otsu 520

It has become clear that internal stress (σ) for thermal treated Sendust films is changed by treatment temperature, thermal expansion coefficient (α) for substrates and oxygen content in the film. Measured α value for low oxygen content Sendust film is 169×10^{-7} . Calculated σ values, by using the α value of the Sendust film, show good agreement with measured ones.

Key words: Sendust film, internal stress, sputtering, thermal expansion

1. はじめに

センダスト膜は約 10 kG の飽和磁束密度と優れた軟磁気特性に加えて、高い硬度、耐蝕性、耐熱性を有することから、高密度な記録再生を必要とする磁気ヘッドに実用化されている。センダスト膜の透磁率は磁歪および応力を介して変化することが知られている¹⁾。そのため、磁歪、応力を制御することは透磁率の高いセンダスト膜を得るために必要である。また、応力制御は磁気ヘッドの加工歩留りの向上のためにも重要である。

真性的な磁歪定数, λ_{100} , λ_{111} などは DO_3 相での組成により、また、薄膜全体としての磁歪 λ はさらに、結晶粒の配向を変化させることにより制御される²⁾。また応力は、基板、成膜条件、熱処理条件により変化すると考えられ、それぞれ膜中での応力を変化させる要因としては、基板ではその熱膨張係数、成膜では成膜条件や膜中に混入する不純物、熱処理では処理温度や処理時間が挙げられる。

本報告ではセンダストスパッタ膜の膜内応力と熱処理条件、基板の熱膨張係数および膜中の不純物との関係を調べた。この結果に基づき、センダスト膜の応力を変化させる要因とその制御方法について検討を行った。

2. 実験

RF マグネトロンスパッタ法によりセンダスト膜を、アルゴンガス圧 3 mTorr, 基板温度 250°C の条件で成膜した。

ターゲットとしては、残留酸素濃度 20 ppm を含む溶融ターゲットおよび 100 ppm の焼結ターゲットを用いた。基板としては Si(100) 面 (熱膨張係数 35×10^{-7}) および CaTiO_3 -NiO 系セラミックス (熱膨張係数 136×10^{-7} , 141×10^{-7}) を用いた。センダスト膜厚は 5 μm とした。応力の熱処理温度に対する依存性をニュートン環法により、Ar ガス雰囲気中で試料の昇温、降温を行い測定した。また、室温での応力は光楕子法により測定した。膜中の酸素、窒素などの不純物混入量は二次イオン質量分析法 (SIMS) により評価した。

3. 結果と考察

3.1 熱処理に伴う膜内応力の変化

Fig. 1 に (100)Si 基板上での残留酸素濃度 20 ppm ターゲットによるセンダスト膜の応力の熱処理過程での変化を三通りの実験条件について示した。すなわち、成膜直後の A 点の応力と各温度にある膜を、500°C の B 点および 600°C の C 点まで 30°C/min で昇温した後、すぐに 30°C/min で降温した場合、および同様の速度で、600°C の C 点まで昇温し、1 時間保持した後の D 点から降温した場合である。

A 点で示される成膜直後の膜内応力は約 1 GPa であった。応力は温度上昇に対し線型に引張力 (正) から圧縮力 (負) へと変化した。この膜内応力の熱処理温度に対する変化直線の傾きは、基板と膜の熱膨張係数の差で決定されと考えられる。昇温過程において、B 点から C 点間での応力変化は、A 点から B 点までの応力の温度に対する直線的な変化から、応力緩和によるずれを

Fig. 1 Temperature dependence of internal stress for FeSiAl films deposited on (100)Si.

生じた。600°C の C 点から 1 時間保持することによって、応力は D 点の -0.1 GPa 程度にまで緩和された。

次に、Fig. 1 の B, C, D の各点から降温すると、応力は温度に対し直線的に負から正へと変化し、B, C, D の各点に対応した応力が残留した。ただし、降温中、応力が 1 GPa 程度まで増大すると膜が破損したため、Fig. 1 では破損前までの直線を室温まで延長した時の応力を残留応力として示した。

Fig. 1 において成膜直後の膜を昇温する過程 (A~B) での直線部分の傾きと、500°C あるいは 600°C で熱処理した後に降温する過程での直線部分の傾きとは、ほぼ同等であった。センダストスパッタ膜は一般に熱処理によって α 相から DO_3 相へ変化する³⁾。Fig. 1 の B~C~D の応力緩和が顕著となる 500°C 以上での昇温過程では、構造緩和とともにこの α 相から DO_3 相への構造変化が起こっていることが予想される。さらにこの間では結晶粒成長も、熱処理温度の上昇や熱処理時間の延長とともに進行していると考えられる。しかしながら、Fig. 1 より、応力緩和が顕著でない 500°C 以下での昇温時、および B, C, D の各点からの降温時のいずれの直線の傾きも同程度であることから、センダスト膜の熱膨張係数は、上述した結晶構造の変化に関わらずほぼ一定であることが分かる。

Fig. 2 に、Fig. 1 の 600°C において時間とともに C 点から D 点へ応力が緩和する過程を、時間と応力との関係として示した。応力は時間の対数に対し直線的に減少している。この結果から、600°C で応力緩和によって応力がゼロとなるためには、Fig. 2 の場合、300 分の保持が必要と見積もられる。

以上の検討から、熱処理後の膜内応力は、熱処理する

Fig. 2 Internal stress relaxation at 600°C for FeSiAl films deposited on (100)Si.

温度、例えば Fig. 1 では 500°C や 600°C で、応力緩和が十分になされるならば、熱処理前の応力値に依存せず、熱処理温度と、降温過程での基板と膜との熱膨張係数の差により決定されることが明らかとなった。よって、熱処理後のセンダストスパッタ膜の応力は膜の熱膨張係数を知ることにより、基板の熱膨張係数と熱処理温度とから予測することが可能である。

センダスト膜の熱膨張係数 (α_0) は、熱膨張係数の異なる二種類の基板に成膜した膜の温度に対する応力の変化量 ($d\sigma/dT$) を、次式に代入することによって求めることができる。

$$\alpha_0 = \alpha_{(s)} - (d\sigma/dT) \cdot \{[1 - \nu_0]/E_0\} \quad (1)$$

ここで $\alpha_{(s)}$ は基板の熱膨張係数、 ν_0 と E_0 はそれぞれ膜のポアソン比とヤング率である。

Fig. 3 に、熱膨張係数が 35×10^{-7} と 141×10^{-7} の基板を用いたときの 600°C から室温まで降温したときの膜内応力の変化量 ($d\sigma$) を示す。Fig. 3 と (1) 式から α_0 として 169×10^{-7} が得られた。また、ポアソン比を 0.3 とした場合、 E_0 として 186 GPa が得られた。これはバルクセンダストのヤング率の約 200 GPa に比べて若干小さい値である。センダストスパッタ膜では一般に明瞭な柱状構造が形成される。本検討の試料においても膜の破断面の電子顕微鏡観察から柱状構造が形成されていることが確認されている。このセンダスト膜の柱状構造がバルクに比較したヤング率の低下の一因となっていると推察される。

Fig. 4 は、溶融ターゲットによりセンダスト膜を熱膨張係数が 141×10^{-7} の基板上に成膜し、550°C、600°C、650°C でそれぞれ 2 時間熱処理した後の、室温での応力の熱処理温度依存性を示す。併せて今回得られた α_0 値 (169×10^{-7}) から計算した応力値を示した。熱処理後の応力は引張力であり、処理温度とともに単調増加してい

Fig. 3 Temperature dependence of internal stress change for FeSiAl films deposited on different thermal expansion coefficient substrates.

Fig. 4 Annealing temperature dependence of internal stress for FeSiAl films deposited on 141×10^{-7} thermal expansion coefficient substrate.

Fig. 5 Substrate thermal expansion coefficient dependence of internal stress for FeSiAl films.

る。計算値は測定値にほぼ一致するが、550°Cでは測定値よりもやや大きく、650°Cではやや小さい。この原因として、ここで求めた α_0 が室温から600°Cまでの値であるため、この値が室温から550°Cあるいは室温から

Fig. 6 Oxygen secondary ion counts depth profiles for FeSiAl films prepared from oxygen 20 ppm target and oxygen 100 ppm target.

Fig. 7 Oxygen secondary ion counts dependence of internal stress for FeSiAl films.

650°Cまでの α_0 とは若干異なることが考えられる。

Fig. 5は600°Cで2時間熱処理した後の室温での膜内応力の測定値と計算値の基板の熱膨張係数依存性である。応力は引張力であり、熱膨張係数の増大とともに減少する。計算値は測定値にほぼ一致する。

以上ように熱処理後の室温での膜内応力は熱処理温度と基板の熱膨張係数とにより制御が可能になった。

3.2 酸素混入に伴う膜内応力の変化

Fig. 6に、SIMSで評価した溶融ターゲットと焼結ターゲットによるセンダスト膜の膜中の酸素濃度の膜厚方向での分布を示す。SIMSにより検出された膜中の主な不純物は酸素、窒素、炭素であったが、酸素のターゲット依存が顕著であった。膜表面にはいずれの膜にも酸化層が存在するが、膜中では焼結ターゲット膜の酸素の二次イオンカウント数が溶融ターゲット膜のそれに比べて著しく高いことが特徴的である。

熱処理後の応力と酸素混入量との関係を Fig. 7 に示

す、基板の熱膨張係数は 136×10^{-7} である。酸素の二次イオンカウント数の増大とともに応力は減少している。また、カウント数が 100 以下では応力は一定である。この酸素の少ない膜は前項 3.1 で検討した膜に相当する。以上のように膜中への酸素混入によって膜内応力は変化する。しかしながら、ターゲット中の残留酸素濃度が 100 ppm と一定であっても、成膜された膜の熱処理後の膜内応力は -0.05 GPa から 0.52 GPa と大幅にばらつき、ターゲット中の残留酸素制御による応力制御は実際には困難であった。

以上の結果から、応力の制御性を向上させるためには、膜中の酸素混入を抑制し、基板の熱膨張係数と熱処理温度とで応力制御することが望ましいと考えられる。

4. ま と め

熱処理を施したセンダストスパッタ膜の膜内応力を検討した。その結果、センダスト膜の応力は熱処理温度、基板の熱膨張係数によって制御されること、膜中の酸素混入

を制御することによって応力の制御性が向上することが明らかとなった。センダストスパッタ膜の室温から 600°C までの熱膨張係数は 169×10^{-7} 、ヤング率は 186 GPa であった。

謝 辞 本研究に当たり御支援を戴きましたビデオ開発センター 吉田博士センター長、荒木 茂センター長代理に感謝致します。膜内応力の温度依存性測定に御援助戴きましたメカトロニクス研究部 多川課長に感謝致します。

文 献

- 1) K. Saito: *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 2942 (1990).
- 2) 高橋, 佐藤, 加藤, 脇山: 日本応用磁気学会誌, **11**, 303 (1987).
- 3) 井上, 辰巳, 田辺: 電子情報通信学会技術報告, MR91-25 (1991).

1991 年 11 月 11 日受理, 1992 年 1 月 30 日採録