Fe-Ta-N 系薄膜の磁気特性に及ぼす基板バイアス効果

Substrate Bias Effect on the Magnetic Properties of Fe-Ta-N Films

名古久美男・青倉 勇*・山西 齊*・榊間 博・小佐野浩一

松下電器産業(株)磁気デバイス研究所, 守口市八雲中町 3-1-1 (〒570)

*松下電器産業(株)生産技術本部, 門真市松葉町 2-7 (〒571)

K. Nago, I. Aokura*, H. Yamanishi*, H. Sakakima and K. Osano

Magnetic Devices Res. Lab., Matsushita Electric Ind. Co., Ltd., 3-1-1, Yagumo-nakamachi, Moriguchi 570

*Production Engng. Co-op. Div., Matsushita Electric Ind. Co., Ltd., 2-7, Matsuba-cho, Kadoma 571

The effects of substrate bias on magnetic properties and structures were investigated for FeTa-N films deposited by a new sputtering method. Films sputtered with an RF bias of less than 80 W exhibit good soft magnetic properties and have a fine-grained microstructure consisting of α -Fe and TaN. The direction of the in-plane magnetic anisotropy for the films changes with the bias applied to the substrate. For those prepared with an RF bias of more than 100 W, the soft magnetic properties deteriorate because of the change of the fine grain microstructure from bcc-Fe to fcc- γ' -Fe₃N (Ta). Substrate bias-sputtered FeTa-N/SiO₂ multilayered films were also prepared in which the anisotropy direction of each FeTa-N layer was different from that of the adjacent FeTa-N layer. The resultant multilayered films show isotropic high permeability and excellent frequency response, and are suitable for laminated-type head core materials.

Key words: substrate bias, FeTa-N films, FeTa-N/SiO₂ multilayered films, isotropic high permeability, frequency

1. はじめに

近年、磁気記録の高密度化に伴い、媒体の高保磁力化、記録信号の短波長化、磁気ヘッドの狭ギャップ・狭トラック化といった研究が行われ、これに対応する磁気ヘッド材料として、高飽和磁束密度と高透磁率を有する軟磁性合金膜の研究が盛んに行われている。筆者らは、高飽和磁束密度を有する共晶組成近傍の Fe-(Ta, Nb, Zr)-N 系微結晶軟磁性膜の研究を行い¹⁾、RF2 極スパッタ法で作製した Fe-Ta-N 系薄膜は、無磁界中熱処理において、等方的な高透磁率を示すことをすでに報告した²⁾。

この Fe-Ta-N 系薄膜は等方的な高透磁率が要求される積層型磁気ヘッドに適しているが、量産化のために

ターゲットを大型化すると、斜め入射などの影響で基板位置によっては膜面内の透磁率に異方性を生じることが考えられる。また、Fe-Zr-N 系などの微結晶軟磁性膜は Co 基非晶質膜に比べて、VHF 帯における透磁率の損失が大きいことが報告されている^{3), 4)}。積層型磁気ヘッドの再生効率を更に向上させるためには、Fe-Ta-N 薄膜と絶縁膜を交互に積層した軟磁性多層膜の VHF 帯における透磁率を等方的に向上させる必要がある。

一方、軟磁性膜を形成する基板にバイアスを印加しながら成膜すると、イオン衝撃あるいはこれに伴う温度上昇が、膜構造を変化させ磁気特性に影響を及ぼすことが知られている⁵⁾。

そこで、本稿では、積層型ヘッドへの応用を考え、量産性を考慮した新方式のスパッタ法により、Fe-Ta-N 系薄膜を作製し、その膜の構造、磁気特性、透磁率の等方性、および絶縁膜との軟磁性多層膜の VHF 帯透磁率に及ぼす基板バイアス効果について検討を行ったので報告する。

2. 実験方法

Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。ターゲットの両サイドに永久磁石が配置され、磁界発生用の磁気回路を形成する。個々の永久磁石は、磁界強度を変化させることができるように、数個の小片の磁石で構成されており、ターゲット表面に平行方向の磁界強度はターゲットの中心線(図中 L)に対して左右対称で、その磁力線の方向が反対になるように配置されている。また、基板には RF バイアスが印加できるようになっている。

通常のマグネトロンスパッタ法では、ターゲット表面の漏洩磁界の観点から、比較的厚い高 B_s の鉄系ターゲットを放電させることが困難であったが、本方式のスパッタ法では厚い鉄系ターゲットにおいても放電が可能である。また、本方式のスパッタ法ではエロージョン傾

Fig. 1 Schematic view of the new sputtering apparatus.

Fig. 2 Dependence of H_c on the RF bias applied to the substrate for Fe-Ta-N films.

域を均一にすることができるため、バッチ間の再現性に優れ、マグネトロンスパッタ方式と比較するとターゲット利用効率は4倍以上改善される。

ターゲット材にはFe-Ta合金を用い、Ar-N₂混合ガス中で水冷したセラミックス基板上に成膜した(膜厚約2.5 μ m)。RF投入電力は2 kW、全圧0.53 Paとし、窒素分圧対全圧比は4%とした。基板に印加したRFバイアスは0~150 Wの範囲で変化させた。

また、Fe-Ta-N/SiO₂軟磁性多層膜においては、SiO₂絶縁膜の厚みを0.05~0.15 μ m、Fe-Ta-N系薄膜の膜厚を0.5~3 μ mの範囲で変化させた。

熱処理は、真空中にて、無磁界中において、550°Cで1時間行った。

膜の組成分析は、RBSにより行い、構造解析はCu-K α によるX線回折、および透過型電子顕微鏡(TEM)により行った。飽和磁束密度は振動試料型磁力計で、保磁力

Fig. 3 Dependence of λ_s and B_s on the RF bias applied to the substrate for Fe-Ta-N films.

Fig. 4 Dependence of film composition on the RF bias applied to the substrate for Fe-Ta-N films.

はB-Hループトレーサで測定し、透磁率は1ターンの8の字コイル法、およびベクトルインピーダンスメーターで測定した。また、磁歪の測定は光てこ法により行った。

3. 実験結果および考察

3.1 磁気特性のRFバイアス依存性

Fig. 2にRFバイアス0~150 Wで作製したFe-Ta-N系薄膜の保磁力(H_c)のRFバイアス依存性を示す。図より、バイアス80 Wまでは、無バイアス膜と同様、良好な軟磁性($H_c < 20$ A/m)を示すが、バイアスが100 W

Fig. 5 Change in the in-plane magnetic permeability (μ') for Fe-Ta-N films with RF substrate bias as a parameter. $\theta=90^\circ$ is the direction along the line, L, in Fig. 1.

以上になると、急激に軟磁気特性が劣化する。

Fig. 3 に RF バイアスに対する飽和磁束密度 (B_s) と飽和磁歪 (λ_s) の関係を示す。バイアスに対して B_s に大きな変化は見られず、約 1.6 T の値を示している。また、 λ_s は無バイアス膜で約 -5×10^{-7} の小さな値を示し、バイアス 80 W まではほとんど変化していないが、バイアスが 100 W 以上になると、急激に負磁歪の値が大きくなり、150 W では約 -5.5×10^{-6} の値を示す。

そこで、このバイアスに対する磁気特性の変化が、膜組成の変化によるものか検討した。Fig. 4 に RF バイアスと膜組成の関係を示す。図より、無バイアスで作製した膜の組成は $\text{Fe}_{79.7}\text{Ta}_{10.4}\text{N}_{9.9}$ (at %)、バイアス 100 W で作製した膜の組成は $\text{Fe}_{80.4}\text{Ta}_{11.3}\text{N}_{8.3}$ (at %) であり、RF バイアスの増加とともに膜中 Fe 及び Ta 含有量は若干増加し、N 含有量は若干減少するが、その変化は 1 at% 程度であり、膜組成はバイアスに対してほとんど変化していないことが分かる。したがって、バイアス 100 W 以上での軟磁気特性の急激な劣化は、膜組成に起因するものではない。

次に、良好な軟磁性が得られた、バイアス 0~80 W で作製した膜の透磁率の等方性について検討した。一例として、Fig. 1 に示した基板位置 (A) および (B) における膜の透磁率 (1 MHz) の膜面内の変化を Fig. 5 に示す。膜面内の透磁率の等方性は基板位置によって異なり、図

Fig. 6 Change in the X-ray diffraction patterns for Fe-Ta-N films with RF substrate bias as a parameter.

中基板位置 (A) では、無バイアスで等方的な高透磁率を示すが、図中基板位置 (B) においては、無バイアスでは異方性を生じ、バイアス 20 W で等方性膜になり、バイアス 80 W では再び異方性が生じ、その向きは 0 W と比較して 90° 回転している。また、いずれの基板位置においても、バイアス 80 W では異方性の向きは一方に揃っていることが分かる。このように、基板へのバイアス印加は、透磁率の異方性の制御に有効な手法であると考えられる。

3.2 膜構造

次に、RF バイアスの印加による磁気特性の変化を膜構造との関連で検討する。Fig. 6 に RF バイアス 0~150 W で作製した膜の X 線回折パターンを示す。図より、バイアス 0~80 W で作製した良好な軟磁性を示す膜は、 α -Fe の微結晶に TaN の微粒子が混在した bcc 微結晶相である¹⁾が、バイアス 100 W では γ' - $\text{Fe}_4\text{N}(\text{Ta})$ fcc 微結晶相が出現し、Fe の bcc 微結晶相との共存状態に

Fig. 7 TEM cross-sectional images of an Fe-Ta-N film.

Fig. 8 In-plane magnetic permeability (μ' , μ'') of a substrate bias-sputtered FeTaN/SiO₂ multilayered film.

なる。そして、さらに、RF バイアスを 150 W に増加すると、 γ' -Fe₄N(Ta)fcc 微結晶単相に遷移することが分かる。

したがって、RF バイアス 100 W 以上での軟磁気特性の急激な劣化、及び磁歪の急激な変化の一因は γ' -Fe₄N(Ta)fcc 微結晶相の出現によるものであると考えられる。

次に、基板位置、および RF バイアス印加による透磁率の異方性の変化の原因について検討する。異方性の起源が、斜め入射等の形状異方性によるものであると考え、膜断面の透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。

一例として、Fig. 5 に示した一軸異方性を有する基板位置 (B) における無バイアス膜の断面 TEM 像を Fig. 7 に示す。Fig. 7 の (a) は α -Fe (110) 回折線からとった暗視野像であり、(b) は TaN の (111) 回折線からとった暗

Fig. 9 Frequency response of permeability (μ' , μ'') for a single-layered FeTaN film and substrate bias-sputtered FeTaN/SiO₂ multilayered films ———, single layer; ———, SiO₂ 0.05 μ m; — · —, SiO₂ 0.1 μ m; · · · · ·, SiO₂ 0.15 μ m.

視野像である。これらの結果から、結晶粒径約 5~10 nm の α -Fe の微結晶と約 1~3 nm の TaN の超微粒子が均一に分散した金属組織になっており、斜め入射による指向性、および柱状組織などは観察されなかった。

また、この異方性は磁歪によって誘導されたものではなく、静磁界中で熱処理を施した場合²⁾と同様、Fe 原子と Fe 原子間に侵入した N 原子の方向性配列によるものであると考えられる。異方性の起源については、今後の詳しい検討が必要と考えられる。

3.3 基板バイアス FeTaN/SiO₂ 複合異方性多層膜

以上の結果より、基板にバイアスを印加して、Fe-Ta-N 系薄膜を作製することにより、無磁界中熱処理においても膜面内の透磁率の異方性の制御が可能であることが

Fig. 10 Frequency response of permeability (μ' , μ'') for substrate bias-sputtered FeTaN/SiO₂ multilayered films ———, FeTaN 0.6 μm ; —, FeTaN 1 μm ; - · -, FeTaN 2.7 μm .

分かった。

一方、CoNbZr 磁性膜の間に絶縁膜を挟んだ軟磁性多層膜の成膜に際し、磁界中スパッタにより、各層の CoNbZr 磁性膜の磁気異方性方向をシフトさせて成膜した複合異方性膜の透磁率は等方的であることが報告されている⁶⁾。

また、筆者らは、Fe-Ta-N 系薄膜において、透磁率の膜厚依存性について検討し、膜厚約 1 μm 以下では無磁界中熱処理においては、等方的高透磁率が得られない ($\mu' < 1000$ at 1 MHz) が、静磁界中熱処理で一軸異方性を誘導させることにより、膜厚約 0.5 μm でも磁化困難軸方向では高透磁率 ($\mu' \geq 3000$ at 1 MHz) を示すことを報告している²⁾。

そこで以下では、Fe-Ta-N 系薄膜と SiO₂ 絶縁膜を交互に積層した軟磁性多層膜の VHF 帯における透磁率を等方的に向上させるために、基板にバイアスを印加することにより、各層の磁気異方性方向をシフトさせて作製した Fe-Ta-N 系薄膜と SiO₂ 絶縁膜を同一真空中で交互に積層した複合異方性多層膜について検討した。

各層の Fe-Ta-N 系薄膜の膜厚を 0.5 μm 、SiO₂ 絶縁膜の膜厚を 0.05 μm 、磁性層の総厚みを 5 μm とした基板バイアス複合異方性多層膜の 1 MHz、および 20 MHz における透磁率の膜面内の変化を Fig. 8 に示す。図より、基板バイアス複合異方性多層膜は、等方的な高透磁率を示すことが分かる。

次に、各層の Fe-Ta-N 系薄膜の膜厚を 0.5 μm 一定にし、SiO₂ 絶縁膜の膜厚を 0.05 μm 、0.1 μm 、0.15 μm と変化させ、磁性層の総厚みを 5 μm とした基板バイアス

複合異方性膜の透磁率の周波数依存性を Fig. 9 に示す。これらの多層膜は、すべて等方性膜であった。比較のために、膜厚 5 μm の等方性 Fe-Ta-N 単層膜についても同図に示した。図より、SiO₂ 絶縁膜の厚みが 0.05 μm でも単層膜に比べて、VHF 帯における透磁率は大きく改善され、SiO₂ 膜厚の増加に伴い、虚数部 μ'' は高域側にシフトし、実数部 μ' は VHF 帯で改善されていることが分かる。

一例として、各層の Fe-Ta-N 系薄膜の膜厚を 0.6 μm 、1 μm 、および 2.7 μm とし、SiO₂ 絶縁膜の膜厚を 0.05 μm 、0.15 μm とした場合の比較的厚い (総厚み約 20 μm) 等方性基板バイアス複合異方性多層膜 $[(\text{SiO}_2(0.15 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(0.6 \mu\text{m}))_1/(\text{SiO}_2(0.05 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(0.6 \mu\text{m}))_4]_6$ 、 $[(\text{SiO}_2(0.15 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(1 \mu\text{m}))_1/(\text{SiO}_2(0.05 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(1 \mu\text{m}))_2]_6$ 、および $[(\text{SiO}_2(0.15 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(2.7 \mu\text{m}))_1/(\text{SiO}_2(0.05 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(2.7 \mu\text{m}))_2]_6$ の透磁率の周波数依存性を Fig. 10 に示す。これらの軟磁性多層膜における SiO₂ 膜厚は、VHF 帯透磁率と軟磁性多層膜全体に占める磁性層の総厚みの減少に伴う B_s の低下を考慮して設計した。

$[(\text{SiO}_2(0.15 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(0.6 \mu\text{m}))_1/(\text{SiO}_2(0.05 \mu\text{m})/\text{FeTaN}(0.6 \mu\text{m}))_4]_6$ 多層膜は、50 MHz においても 1500 以上の等方的な μ' が得られている。

以上の結果より、基板バイアス FeTaN/SiO₂ 複合異方性多層膜は、無磁界中熱処理においても VHF 帯で等方的な高透磁率を示すことが分かった。

4. ま と め

量産性を考慮した新方式のスパッタ法により、Fe-Ta-N 系薄膜を作製し、その膜の構造、磁気特性、透磁率の等方性、および絶縁膜との軟磁性多層膜の VHF 帯透磁率に及ぼす基板バイアス効果について検討し、以下の結果を得た。

(1) 80 W までの RF バイアスを印加して作製した膜は、良好な軟磁性 ($H_c < 20 \text{ A/m}$) を示すが、バイアスが 100 W 以上になると、急激に軟磁性特性が劣化する。この劣化の一因は、 γ' -Fe₄N(Ta) fcc 微結晶相の出現によるものである。

(2) 基板への RF バイアス印加は、透磁率の異方性の制御に有効な手法である。

(3) 基板バイアス FeTaN/SiO₂ 複合異方性多層膜は、無磁界中熱処理において VHF 帯で等方的な高透磁率を示し、積層型磁気ヘッド材料として優れた特性を有している。

謝 辞 本研究の機会を与えて頂きました当社磁気デ

バイス研究所紙中所長，ならびに本研究を進めるに当たり御助力頂きました薄膜加工技術研究部池田部長，大西主担当に深謝致します。

文 献

- 1) 名古，櫛間，井原：日本応用磁気学会誌，**15**, 365 (1991).
- 2) K. Nago, H. Sakakima, K. Ihara and K. Osano: *IEEE*

Trans. Magn., **MAG-28**, 2943 (1992).

- 3) 島田，沼澤，米田，細野：日本応用磁気学会誌，**15**, 327 (1991).
- 4) 中西，清水，吉田：日本応用磁気学会誌，**16**, 590 (1992).
- 5) 山田，丸山，田中：日本応用磁気学会誌，**11**, 283 (1987).
- 6) 菅原，松本，藤森，増本：日本応用磁気学会誌，**16**, 291 (1992).

1992 年 11 月 17 日受理，1993 年 2 月 2 日採録