Fe-Ta-N 薄膜の軟磁性のターゲットバイアス依存性

Dependence of Soft Magnetic Properties on Target Bias for Fe-Ta-N Films

佐藤勝裕・高橋 聡・荘司弘樹*・増井卓也*・高橋 研*

山形ミツミ(株), 山形市立谷川 1-1059-5 (☎990-22)

*東北大学工学部電子工学科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 (☎980-77)

M. Sato, S. Takahashi, H. Shoji, T. Masui, and M. Takahashi

Yamagata Mitsumi Co., Ltd., 1-1059-5, Tachiyagawa, Yamagata 990-22

*Dept. of Electronic Engng., Tohoku Univ., Aoba-ku, Sendai 980-77

Fe-Ta-N films (saturation magnetic flux density $B_s = 1.6$ T) were fabricated by the RF magnetron sputtering method at various target self-bias voltages V_{dc} (between -100 V and -500 V). The effects of V_{dc} on the magnetic properties and structures were examined. As a result, this fabrication technique was found to be useful for (1) derivation of excellent soft magnetic properties (high initial permeability $\mu' = 9000$ at 1 MHz and coercive force $H_c = 0.05$ Oe) within the film thickness range of $0.3 \sim 4.0$ μm ; (2) progress of amorphousness in an as-deposited state, and resulting homogeneous crystallization; and (3) realization of the same excellent magnetic softness as found in permalloy films.

Key words: Fe-Ta-N films, target self-bias voltage, permeability, coercive force, crystallization

1. はじめに

磁気記録の高密度化に伴い、高保磁力を持つ記録媒体に対する十分な書き込み能力と、良好な再生能力を合わせ持つ磁気ヘッド材料が必要とされている。このような要求のもと、センダスト、Co 系アモルファス合金薄膜などに代わる高飽和磁束密度、高透磁率材料として、鉄系微結晶薄膜材料の研究・開発が盛んに行われた^{1)~8)}。なかでも、Fe-Ta-N 系薄膜は最も代表的な材料として、DC マグネトロンスパッタ法⁸⁾、RF2 極スパッタ法^{9), 7)}などにより研究され、成膜条件、磁気特性などの報告がなされている。しかしながら、この材料の軟磁性を安定に導出するためには、この合金系の特徴である微結晶粒の均一な組織と磁気特性の関係についてのさらなる知見が必要と思われる。

筆者らはスパッタ圧力・投入電力などの成膜条件を一定に保ちつつ、ターゲットのセルフバイアス電圧, V_{dc} , のみを変化させる RF マグネトロンスパッタ法 (バイアス電圧変化法) でセンダスト膜を作製した結果、微細な

結晶粒からなるセンダスト薄膜が得られ、1.25 T の大きな飽和磁束密度を保持しながら高い透磁率を持つ特性を得た⁹⁾。

このバイアス電圧変化法では、他のスパッタ条件および薄膜の組成を一定に保ちながら薄膜の構造のみを変化させることが可能である。そこで本論文ではこの成膜手法を採用し、Fe-Ta-N 薄膜においてセルフバイアス電圧の変化が軟磁気特性ならびに膜構造、磁気異方性などに与える影響について検討した。

2. 実験方法

薄膜は RF マグネトロンスパッタ装置により、Fe_{87.5}-Ta_{12.5} (at%) 合金ターゲットを用いて作製した。膜組成は Fe_{72.6}Ta_{10.4}N₁₇ (at%) であり、 V_{dc} によらずほぼ一定である。基板には水冷した結晶化ガラス (熱膨張係数: $\alpha = 135 \times 10^{-7}$) を使用した。

成膜条件は成膜圧力を 6×10^{-3} Torr, 投入パワーを 500 W, 成膜時の全ガス流量 (Ar+N₂) に対する N₂ 流量比を 6% 一定とした。以上の条件下、バイアス電圧 V_{dc} を $-100 \sim -500$ V, 薄厚を $0.3 \mu\text{m} \sim 4 \mu\text{m}$ までの範囲で変化させ薄膜を作製した。成膜後の熱処理は 5×10^{-6} Torr 以下の真空中で 20 kA/m の磁場を一方方向に印加しながら、300°C から 600°C の温度範囲で各 1 時間行なった。

保磁力 H_c 、飽和磁束密度 B_s は VSM による計測で求めた。透磁率の実部 μ' はフェライトヨークによるインダクタンス法で求めた。磁気異方性は動的微分磁化率法^{10), 11)}の計測により評価した。

3. 結果および考察

3.1 磁気特性

(i) 熱処理温度依存性

Fig. 1 に一例として、ターゲットセルフバイアス電

圧, V_{dc} , -100 V, -500 V の条件下で作製された薄膜 (薄厚 $4\text{ }\mu\text{m}$) の B_s および μ' の熱処理温度依存性を示す。

-100 V 下で作製された薄膜の B_s は, 熱処理温度によらず, 成膜直後から 600°C までのすべての熱処理範囲でほぼ 1.6 T から 1.7 T の一定値を示す。一方, -500 V 下で作製された薄膜の B_s は 400°C の熱処理温度でいったん減少した後 (約 0.6 T), 450°C の熱処理温度で急激に上昇し約 1.6 T となる。この熱処理温度に対する B_s の変化は薄膜の電気抵抗の温度依存性の測定から, 非晶質から結晶質への相変化によって引き起こされていると判断できる。 B_s の値は薄膜の構造を直接的に反映していると考えられることから, 熱処理に伴う B_s の変化が大きい高い V_{dc} 下で作製された薄膜では, 低 V_{dc} 下で作製された薄膜より大きな構造変化が熱処理により引き起こされていると考えられる。

一方, 成膜直後の μ' は V_{dc} の値によらず, ほぼ零と非常に小さい値を示した。 -100 V の電圧下で作製された薄膜の μ' は 400°C から 600°C までの熱処理により 2000 から 3000 程度の値を示す。一方, -500 V 電圧下で作製された薄膜の μ' は成膜直後のほぼ零の値から 400°C の熱処理温度の範囲ではほとんど変化せず, 400°C から 500°C の熱処理で急激に大きくなり, 500°C から 600°C の熱処理後, μ' は 7000 から 9000 程度の値を示した。この μ' の熱処理による変化の傾向は, B_s の変化の傾向とよく対応しており, 高透磁率の出現は薄膜の非晶質から結晶質への構造変化に強い相関があることがわかる。このようにターゲットへの V_{dc} の印加は薄膜の

微細構造に強く影響を及ぼしていることがわかる。

(ii) V_{dc} 依存性

Fig. 2 に, 一例として成膜直後 (as depo.) と 500°C 熱処理後の B_s の V_{dc} 依存性を示す。 -100 V 下で作製された成膜直後の薄膜の B_s の値は 1.6 T と大きな値を示す。一方, -200 V 以上の条件下で作製された薄膜の成膜直後の B_s は 1.0 T 以下の小さな値となる。このように, V_{dc} が絶対値で大きくなるにつれ, 成膜直後の B_s の値は徐々に減少する傾向を示した。このことは薄膜の微細構造に V_{dc} が強い相関を持ち, V_{dc} の印加は薄膜の非晶質化を促進させているものと考えられる。 500°C , 1 時間熱処理後の薄膜の B_s の値はいずれのバイアス電圧下で作製された薄膜においても約 1.6 T の同程度の値となり, 顕著な V_{dc} 依存性はみられなくなる。このことより, 熱処理に伴う非晶質から結晶質への結晶化により生じる巨視的な強磁性析出物 (α -Fe) は V_{dc} によらずほぼ同様と考えられる。

Fig. 3 に成膜直後と 500°C 熱処理後の薄膜 ($4\text{ }\mu\text{m}$ 厚) の保磁力 H_c の V_{dc} 依存性を示す。いずれの V_{dc} 下で作製された薄膜の H_c も成膜直後は $600\sim 800$ A/m 程度の大きな値を示すが, 500°C 熱処理後の薄膜の困難軸方向の H_c は 16 A/m 以下と極めて小さくなり良好な軟磁性を示すようになる。特に, V_{dc} が -200 V 以上の条件下で作製された薄膜の 500°C 熱処理後の H_c は 4 A/m 程度の極めて小さな値を示した。

Fig. 4 には成膜直後および 500°C 熱処理後における薄膜 ($4\text{ }\mu\text{m}$ 厚) の 1 MHz および 5 MHz での μ' の V_{dc} 依存性を示す。成膜直後では, いずれの V_{dc} 下で作製さ

Fig. 1 Dependence of μ' on the annealing temperature for Fe-Ta-N films (fabricated at V_{dc} values of -100 V and -500 V, respectively).

Fig. 2 Changes in the saturation magnetic flux density, B_s , as a function of the bias voltage, V_{dc} , for Fe-Ta-N films in an as-deposited state and after annealing at 500°C , respectively.

Fig. 3 Changes in the coercive force, H_c , as a function of the bias voltage, V_{dc} , for Fe-Ta-N films in an as-deposited state and after annealing at 500°C, respectively.

れた薄膜においても μ' は V_{dc} によらずほぼ零となり、軟磁性を示さない。しかしながら、 V_{dc} として -400 V、-500 V 下で作製された 500°C 熱処理後の薄膜の μ' は 1 MHz で約 9000、5 MHz で約 6000 もの大きな値を示し、磁気ヘッド材料として利用するのに十分な軟磁性を示した。

(iii) 膜厚依存性

Fig. 5 に -100, -300, -500 V の V_{dc} 下で作製された 500°C 熱処理後の Fe-Ta-N 薄膜の μ' (1 MHz) の膜厚依存性を示す。図には、比較のため同一手法下 ($V_{dc} = -400$ V) で作製された Fe-Al-Si 薄膜の結果も合わせて示した。

Fe-Ta-N 薄膜の μ' は膜厚によらず、-100 V 下で作製された薄膜では 3000 程度、-300 V 下で作製された薄膜では 6000~7000、-500 V 下で作製された薄膜では 8000~9000 とほぼ一定の大きな値を示した。

これらの結果を Fe-Al-Si 薄膜と比較すると、0.3 μm もの非常に薄い膜厚下でも、Fe-Ta-N 薄膜の μ' は約 8000 もの大きな値となり、Fe-Al-Si 薄膜の μ' に比較して 10 倍以上と驚異的に大きいことがわかる。この事実は、膜厚の薄い領域下での両者の合金組織の均一性の違いが直接的に μ' に反映していることを示唆している。

以上のように、RF スパッタ法におけるターゲットバイアス電圧変化法では Fe-Ta-N 薄膜において同一組成を保ちながら、 $H_c = 4$ A/m, $\mu' = 9000$ 程度の軟磁気特性を誘導することが可能であり、軟磁気特性導出に非常に有効な手法であることがわかった。

3.2 V_{dc} および熱処理に伴う薄膜の構造変化

Fig. 6 に、成膜直後および 500°C 熱処理後の薄膜の X

Fig. 4 Changes in the initial permeability, μ' , as a function of the bias voltage, V_{dc} , for Fe-Ta-N films in an as-deposited state and after annealing at 500°C, respectively.

Fig. 5 Changes in the initial permeability, μ' , as a function of the film thickness for Fe-Ta-N films fabricated at V_{dc} value of -100 V, -300 V, and -500 V, respectively.

線回折パターンを V_{dc} の変化に対して示す。

-100 V 下で作製された成膜直後の薄膜では、微結晶状態の α -Fe (110) 面からの回折線が見られる。一方、-200 V 以上の条件で作製された成膜直後の薄膜では明確な α -Fe からの回折線は検出されず、非晶質的な構造が実現されていることがわかる。

一方、500°C 熱処理後の場合、-100 V 下で作製された薄膜では Ta-N のブロードな回折線および α -Fe (110) 面からの回折線が明瞭に観測される。一方、-200 V 以

上の条件下で作製された薄膜では α -Feの(110)面および(200)面の回折線が検出されるようになる。

また図には示していないが、 -200 Vの条件下で作製された 400°C 熱処理後の薄膜では α -Feの(110)面からの回折線が検出されるが、 -300 V以上の条件下で作製された薄膜では α -Feからの回折線が観測されず成膜直後の回折パターンと一致している。このことは、比較的低い V_{dc} 下で作製された薄膜では、より低温の熱処理で α -Feの微結晶が折出し始めることに対応し、 V_{dc} の値により成膜直後の薄膜の非晶質状態が極端に異なることを意味している。

また、 α -Fe(110)面からの回折線の半値幅からSchererの式を用いて計算された α -Feの結晶粒径は、 4 nmから 5 nm程度を示し、顕著な V_{dc} 依存性を示さず、いずれの V_{dc} 下で作製された薄膜も α -Feの微細な結晶粒から成っていることがわかる。

3.3 磁気異方性

3.1～3.2で記述したように、Fe-Ta-N薄膜においては、

i) 熱処理後の薄膜の B_s の値は V_{dc} の値によらず一定値(約 1.6 T)を示すことから、折出物としての強磁性の相および合金組成は同一。

ii) 薄膜の配向性および平均結晶粒径と μ' の間には明確な関係は見られない。

ということが実験的にわかった。

したがって、 μ' の V_{dc} 依存性は単なる結晶粒の微細化および薄膜の組成という観点からだけでは説明できない。 μ' の V_{dc} 依存性を説明するためには、微細構造と関連づけた薄膜の微視的な磁気異方性の知見を得る必要がある。

Fig. 7に 500°C 熱処理後のFe-Ta-N薄膜(0.5 μm 厚)の異方性磁界 H_k 、局所異方性分散を示す構造因子 $S^{(12\sim14)}$ 、および S を考慮した実効的な異方性磁界 H_k^{eff} の V_{dc} 依存性を示す。ここで、 H_k^{eff} は次式で表される量である¹¹⁾。

$$H_k^{\text{eff}} = H_k \left\{ 1 + \frac{1}{4\pi\sqrt{2}} \cdot S \cdot \frac{M_s \sqrt{D}}{(A \cdot K_u)^{5/4}} \right\} \quad (1)$$

ここで

M_s : 飽和磁化, D : 平均結晶粒径,

A : 交換定数, K_u : 一軸磁気異方性定数($=M_s \cdot H_k/2$)である。

図に示したように、 H_k , S , H_k^{eff} とも V_{dc} の増大に伴い単調に減少している。特に、局所異方性分散量を示す構造因子 S の値は、 $V_{dc}=500$ Vで作製された薄膜では $10 \times 10^{-3} \text{ erg/cm}^2$ となり、ほぼパーマロイ薄膜と同程

Fig. 6 Changes in X-ray diffraction patterns related to V_{dc} for Fe-Ta-N films in an as-deposited state and after annealing at 500°C , respectively.

Fig. 7 Changes in the anisotropy field, H_k , H_k^{eff} and structure constant, S , as a function of V_{dc} for Fe-Ta-N films after annealing at 500°C .

度の値を示す。この S の値は、著者らが現在まで試みてきた一連のFe基微結晶薄膜(約 $S > 40 \times 10^{-3} \text{ erg/cm}^2$)^{15), 16)}の中でも極端に小さく、Fe-Ta-N薄膜の場合、 V_{dc} の印加により磁氣的微細構造の均質化が促進さ

Fig. 8 Relation between the experimentally obtained and calculated values of μ' .

Fig. 9 Changes in the anisotropy field, H_k , H_k^{eff} and structure constant, S , as a function of the film thickness for Fe-Ta-N films after annealing at 500°C.

れていることがわかる。したがって、 S の H_k に対する寄与分は極端に小さく、(1)式からわかるように H_k と H_k^{eff} とほぼ同様の値となる。

Fig. 8 には Fig. 7 で示した薄膜の周波数 1 MHz における μ' の測定値と Fig. 7 に示した H_k^{eff} をもとに磁化の一斉回転を仮定した場合の μ' の計算値 ($= 4\pi M_s / H_k^{\text{eff}}$) との対応関係を示した。

図に見るように、 μ' の測定値は計算値とほぼ一致することがわかる。これらのことから、今回の Fe-Ta-N 薄膜において、 V_{dc} の増加に伴う μ' の増加は S がパーマロイ並に小さいことを考慮すると、ほぼ H_k の変化に対応している。

また、Fig. 9 には Fig. 5 (μ' の膜厚依存性) に示した

-500 V の V_{dc} 下で作製された 500°C 熱処理後の薄膜の μ' の H_k , H_k^{eff} および S の膜厚依存性を示した。 H_k は膜厚によらずほぼ 100 A/m 程度の一定の小さな値を示す。また S の値は膜厚の減少に伴い、若干大きくはなるもののほぼパーマロイ薄膜と同程度の値となり依然小さい。この事実は著者らがすでに報告してきたセンダスト薄膜の場合とは大きく異なる¹⁷⁾。したがって、 S の H_k に対する寄与は小さく μ' の膜厚に対する変化 (Fig. 5) は、ほぼ H_k の変化に対応していることがわかった。

4. ま と め

RF マグネトロンスパッタリング法による成膜の際のターゲットバイアス電圧、 V_{dc} を変化させるバイアス電圧変化法により、Fe-Ta-N 薄膜を作製し、その磁気特性を調べた。その結果、バイアス電圧変化法は、

- ① 高透磁率の実現; V_{dc} の値を -100 V から -500 V へと増加させることにより、 μ' は膜厚 4 μm では 2000 から 9000、膜厚 0.3 μm では 2000 から 8000 へと増加、
- ② 非晶質化の促進、ならびに熱処理に伴う均一な微結晶の析出; すなわち、薄膜の異方性分散に依存する構造因子 S の低下 (パーマロイ薄膜と同等)、を可能にする。有効な手法であることがわかった。

文 献

- 1) 照沼幸一, 宮崎雅弘, 川島宏明, 寺園晃二: 日本応用磁気学会誌, **14**, 257 (1990).
- 2) 高橋 研, 駒場博則, 莊司弘樹, 島津武仁, 脇山徳雄: 日本応用磁気学会誌, **14**, 301 (1990).
- 3) 長谷川直也, 斎藤正路: 日本応用磁気学会誌, **14**, 313 (1990).
- 4) 大浦秀男, 渡辺恭志, 小野里紀夫: 日本応用磁気学会誌, **15**, 303 (1991).
- 5) 飯竹宜己, 島田 寛: 日本応用磁気学会誌, **15**, 361 (1991).
- 6) 名古久美男, 榊間 博, 井原慶太: 日本応用磁気学会誌, **15**, 365 (1991).
- 7) 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏: 日本応用磁気学会誌, **15**, 371 (1991).
- 8) N. Ishiwata, C. Wakabayashi, and H. Urai: *J. Appl. Phys.*, **69**, 5616 (1991).
- 9) 未発表
- 10) H. Hoffmann, *Phys. Stat. Sol.*, **33**, 175 (1991).
- 11) K. Kempter and H. Hoffmann, *Phys. Stat. Sol.*, **34**, 237 (1969).
- 12) H. Hoffmann: *J. Appl. Phys.*, **35**, 1790 (1964).
- 13) W. D. Doyle and T. F. Finnegan: *J. Appl. Phys.*, **39**, 3355 (1968).
- 14) T. Shimatsu, M. Takahashi, and T. Wakiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **13** (Suppl. No. S1), 577 (1989).
- 15) M. Takahashi and T. Shimatsu, *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 1485 (1990).

16) Migaku Takahashi and T. Shimatsu, *J. Magn. Magn. Mat.*, **101**, 11 (1991).

17) 島津武仁, 高橋 研, 上住洋之, 佐藤武信, 高橋 実, 脇山徳雄, 日本応用磁気学会誌, **13**, 281 (1989).

1994 年 4 月 25 日受理, 1994 年 7 月 15 日採録