2元マグネトロンスパッタ法による TbFeCo 膜の作製

Preparation of TbFeCo Films by Two Source Magnetron-Sputtering

田中元治・近江文也・和多田篤行 (株)リコー技術本部, 沼津市西沢田 146-1 (〒410)

M. Tanaka, F. Ohmi, and A. Watada,

Techn. Div., Ricoh Co., Ltd., 146-1, Nishisawada, Numazu, 410

An investigation was made to evaluate the variation in the magnetic and magneto-optic properties of amorphous TbFeCo alloy films deposited by the two source magnetron-sputtering method as a function of sputtering parameters, such as rf input power, Ar pressure and substrate rotation.

With the variation of Ar pressure, saturation magnetization (M_s), coercivity (H_c) and deposition rate of amorphous TbFeCo alloy films changed. M_s reached the minimum value, although H_c and the deposition rate reached the maximum value at about 5 mTorr Ar. Using mass spectrometry to detect the ionic species in the glow discharge plasma, we found that the ion current for ionic species, such as Ar^+ , Fe^+ , Co^+ and Tb^+ , had the maximum value at about 5 mTorr Ar. These results indicate that the changes in the magnitude of M_s , H_c and deposition rate are due to the changes in sputtered atomic number.

With the variation of substrate rotation, M_s , the perpendicular magnetic anisotropy energy ($K_{\perp}$) and the Kerr rotation angle (θ_k) did not change above about 20 rpm but increased rapidly below this. This seems to be due to the changes of composition and structure in the micro area of the film; however, these were not detected by energy dispersive X-ray fluorescence analysis, Auger electron spectroscopy or reflection electron diffraction.

1. ま え が き

非晶質希土類-遷移金属磁性薄膜は、①垂直磁気異方性を示すので高密度記録ができる、②キュリー温度が低いので記録感度が高い、③結晶粒界がないので媒体ノイズが低いなどの特徴を有しており、光磁気メモリ材料として盛んに研究が行われている。今まで $\text{TbFe}^{1)}$, $\text{GdFeBi}^{2)}$, $\text{GdTbFe}^{3)}$, $\text{TbDyFe}^{4)}$, $\text{GdCo}^{5)}$, $\text{TbFeCo}^{6),7)}$ などの材料について検討が行われ、実用化研究も進んでいる。しかし、これらの材料は、磁気光学効果が十分でない、膜の安定性が良くないなどの問題点を有しており、いまだに十分な特性をもった材料は現れていない。

我々は、2元マグネトロンスパッタ法により TbFeCo 膜を作製し、磁気特性および磁気光学特性などを評価した結果、基板回転数を 20 rpm より低くすることにより、飽和磁化 M_s 、垂直磁気異方性エネルギー $K_{\perp}$ およびカー回転角 θ_k を大きくできることが分かったので報告する。

2. 実験方法

膜の作製には2元マグネトロンスパッタ装置を用いた。ターゲットは150mmφのFeCo合金円板およびTb

円板を用い、基板は1.2mm厚のガラスを用いた。基板ホルダーは水冷しており、最高 150 rpm まで回転できる。基板-ターゲット間距離は 65 mm で、膜はスパッタ室内を 1×10^{-6} Torr 以下まで排気した後、投入電力、Ar ガス圧および基板回転数を変化して作製した。膜厚は約 1000 Å とした。

飽和磁化 M_s および保磁力 H_c は振動試料型磁力計を用いて測定し、垂直磁気異方性エネルギー $K_{\perp}$ はトルクメータを用いて測定した。カー回転角 θ_k は基板側から He-Ne レーザ ($\lambda=633$ nm) を照射し、ファラデーセルを用いた対称角振動法により求めた。

3. 実験結果

Fig. 1 に FeCo ターゲットの投入電力を 400 W, Ar ガス圧を 5×10^{-3} Torr と一定にしたときの Tb ターゲットの投入電力に対する M_s および H_c の変化を示す。 M_s は Tb ターゲットの投入電力が増すにつれてほぼ直線的に減少し、175 W 付近で最小となったあと再び増加する。 H_c は M_s とは逆に Tb ターゲットの投入電力が増すにつれて急激に増加し、175 W 付近で ∞ となったあと急激に減少する。これは、175 W 付近に TbFeCo 膜の補償組成が存在し、TM rich の膜から RE rich の膜

Fig. 1 Dependence of saturation magnetization M_s and coercivity H_c on rf input power for Tb target at 400 W for FeCo.

に変化しているためと考えられる。このように2元マグネトロンスパッタ法ではターゲットの投入電力を変化させることにより、種々の組成の膜作製が可能である。

Fig. 2(a) に Ar ガス圧に対する FeCo の堆積速度の変化を示す。投入電力は 400 W で基板固定の条件で作製・評価した。Ar ガス圧が 5×10^{-3} Torr 付近で最大の堆積速度を示し、それより低くても高くても堆積速度は小さくなる。

次に、Ar ガス圧に対する M_s および H_c の変化を Fig. 2(b) に示す。膜は投入電力 FeCo 400 W, Tb 125 W, 基板回転数 20 rpm の条件で作製した。 M_s は Ar ガス圧が 5×10^{-3} Torr 付近に最小値をもつように変化し、 H_c は Ar ガス圧が 5×10^{-3} Torr 付近に最大値をもつように変化する。これは、これらの膜が全て TM rich の膜であることから、Ar ガス圧が 5×10^{-3} Torr 付近で

Fig. 2 (a) Deposition rate of FeCo film and (b) saturation magnetization M_s and coercivity H_c of TbFeCo film as a function of Ar pressure.

RE 組成が増えるためと考えられる。

そこで、Ar ガス圧に対する堆積速度および磁気特性の変化の原因を調べるために、プラズマ中のイオン種の分析をマスフィルタを用いて行った。基板とターゲットとの間にオリフィス付単管を設け、差動排気法によりオリフィスから入ってくるスパッタ原子またはそのイオンを、直接マスフィルタに導入して、分析を行った。オリフィスの径は 0.1 mmφ で、マスフィルタのイオンソースを点火せず、直接入射してきたイオンを四種極電極で質量分析し、二次電子増倍管で増幅したものを測定した。

Fig. 3 に FeCo ターゲットをスパッタしたときのプラズマのマススペクトルを示す。イオン種として Ar^+ , Ar_2^+ , Fe^+ , Co^+ , H^+ が主に検出される。ここで、マススペクトルからの同位元素のピーク比は、同位元素の存在比にはほぼ一致しており、測定の正しさが確認できた。

FeCo ターゲットをスパッタしたときの種々イオン電流の Ar ガス圧依存性は Fig. 4 のようになる。各イオン種とも Ar ガス圧が 5×10^{-3} Torr 付近で最大のイオン電流を示し、それより低くても高くてもイオン電流は小さくなる。図示していないが、Tb ターゲットをスパッタしたときの Tb^+ イオンの Ar ガス圧依存性も同傾向にある。このイオン電流の変化は、先に示した Ar ガス圧に対する堆積速度および磁気特性の変化と一致し、堆積速度および磁気特性の変化がイオン電流つまりスパッタ量に起因していることが分かる。

Fig. 5 に M_s , K_1 および θ_k の基板回転数依存性を示す。膜は投入電力 FeCo 400 W, Tb 125 W, Ar ガス圧 5×10^{-3} Torr の条件で作製した。 M_s , K_1 および θ_k は共に基板回転数 20 rpm 以上では一定の値を示すが、20 rpm より下では低回転数になるほどそれぞれ大きな値を示す。特に M_s および K_1 において変化が大きく、 M_s

Fig. 3 Mass spectrum of the plasma during sputtering FeCo target in Ar.

Fig. 4 Ion current for various ionic species as a function of Ar pressure.

で約 70 emu/cc, K_1 で約 3×10^8 erg/cc 大きくなる。 θ_k も変化は小さいが、0.36 deg から 0.39 deg に増大する。

次に、基板回転数 5 rpm の場合と 20 rpm の場合の M_s および H_c の温度特性の変化を Fig. 6 に示す。室温付近での M_s および H_c の大きさは 5 rpm の方が大きく、基板回転数により異なるが、 M_s および H_c の温度上昇に伴う減少傾向はほぼ同じである。キュリー温度 T_c は共に 200°C 付近にあるが、5~10°C ぐらい 5 rpm 基板回転の方が高い。

このように、基板低回転数領域において磁気特性およ

Fig. 5 Substrate rotation dependence of saturation magnetization M_s , perpendicular magnetic anisotropy energy K_1 and Kerr rotation θ_k for TbFeCo film.

Fig. 6 Temperature dependence of saturation magnetization M_s and coercivity H_c for TbFeCo films sputtered at 5 rpm and 20 rpm substrate rotation.

び磁気光学特性などの変化が顕著に現れている。この原因として膜組成および膜構造の変化が考えられる。変化の始まる 20 rpm の場合 1 回転当たり Tb が 1.2~1.5 Å, FeCo が 2.0~2.3 Å 付着し、それより低回転数になるにつれて 1 回転当たりの Tb および FeCo の付着量は増す。そのため基板回転数を 20 rpm より低くするにつれて、TbFeCo 合金の均一組成の単層膜からミクロ的な Tb rich 層と FeCo rich 層の交互積層膜へ構造変化すると考えられる。

Table 1 にエネルギー分散型蛍光 X 線分析法で求めた基板回転数による TbFeCo 膜の組成変化を示す。表中の数値は X 線強度 (単位: cps) で 5 回測定の実験値で表している。Fe, Co, Tb の各元素ともサンプル間で大きな値の変化はなく、測定精度を考慮すると組成の差は認められない。

Fig. 7 はオージェ電子分光法を用いて測定した基板回転数が 5 rpm の場合と 30 rpm の場合のデプスプロフ

Table 1 Film composition vs. substrate rotation obtained by energy dispersive X-ray fluorescence analysis. (unit: CPS)

S. ROTATION	Fe	Co	Tb
20 rpm	51.4	12.2	7.7
5 rpm	51.3	12.1	7.6
10 rpm	54.6	12.5	7.8
15 rpm	52.8	12.2	7.9
30 rpm	52.3	12.2	7.9
40 rpm	54.5	12.5	7.7
60 rpm	52.8	12.5	7.9

Fig. 7 Auger depth profile of TbFeCo film with SiN protective layer.

ファイルである。膜構成は基板の上に TbFeCo 層 $1000 \text{ \AA}$ 、その上に SiN 層 $1000 \text{ \AA}$ とする。SiN 層では Si, N の他に O, そして最表面で C が検出される。TbFeCo 層では Fe, Co, Tb の他に O が主に検出される。Fe, Co, Tb および O の存在比率は 5 rpm の場合も 30 rpm の場合もほとんど同じで、深さ方向の分布も共に界面付近を除くと均一である。

Fig. 8 は基板回転数が 5 rpm の場合と 30 rpm の場合の反射電子線回折パターン (加速電圧 75 kV) である。5 rpm の場合も 30 rpm の場合もハローパターンを示し、アモルファス構造をしている。

以上基板回転数による膜組成および膜構造の変化を調べたが、明確な違いは認められず、よりミクロな分析が必要とされる。

4. ま と め

2 元マグネトロンスパッタ法により TbFeCo 膜を作製し、磁気特性および磁気光学特性などを調べた結果、次のことが明らかになった。

(1) 投入電力の変化により種々の組成の膜作製が可能

Fig. 8 Reflection electron diffraction patterns of TbFeCo films sputtered at (a) 5 rpm and (b) 30 rpm substrate rotation.

である。

(2) Ar ガス圧の変化に伴う堆積速度および磁気特性の変化は、スパッタ量に起因していると考えられる。

(3) 基板回転数を 20 rpm より低くすると M_s , K_u および θ_k が大きくなる。膜全体としてのマクロ的な組成および構造には大きな差はみられないが、ミクロ的な組成および構造の違いが原因として考えられる。

文 献

- 1) S. Matsushita, K. Sunago, and Y. Sakurai: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **15**, 713 (1976).
- 2) P. Hansen and M. Urner-Wille: *J. Appl. Phys.*, **50**, 7471 (1979).
- 3) N. Imamura and C. Ota: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **19**, L731 (1980).
- 4) 太田, 高橋, 出口, 日向, 小林, 山岡: 日本応用磁気学会第 23 回研究会資料, 23-5, 39 (1982).
- 5) 小林, 戸上, 寺西: 第 5 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 20 aA-12 (1981).
- 6) H. Tsujimoto, M. Shouji, A. Saito, S. Matsushita, and Y. Sakurai: *J. Magn. Magn. Mat.*, **35**, 199 (1983).
- 7) 田中, 和多田, 近江, 鯉沼, 町田: 第 7 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 9 pA-4 (1983).

1984 年 12 月 17 日受理, 1985 年 1 月 16 日採録