

# イオンビームスパッタ法による Fe-Co 系 薄膜の作製とその磁気特性

星 陽 一\* 直 江 正 彦\*\*

## Deposition of Fe-Co thin films by ion beam sputtering and their magnetic properties

Youichi HOSHI and Masahiko NAOE

Iron-cobalt alloy thin films (0~54 at. % Co-Fe) were deposited by using an ion beam sputtering apparatus, and their magnetic properties were investigated in detail.

All of the films have large saturation magnetization above 20 kG. The films deposited at substrate temperature  $T_s$  of about 75°C have large perpendicular magnetic anisotropy field  $H_{k\perp}$  ( $>110$  Oe) and high coercive force  $H_c$  ( $>50$  Oe). While, the increase of  $T_s$  leads a significant decrease in both  $H_{k\perp}$  and  $H_c$ . The perpendicular magnetic anisotropy of the film deposited at  $T_s$  above 250°C disappears completely, and the films with Co content of 50-54 at.% have the lowest  $H_c$  as low as 5 Oe. The increase of  $T_s$  from 75°C to 250°C also causes the change in the internal stress of the films from compressive stress to tensile stress along with a growth of crystallites in the films. Annealing the films in a vacuum has nearly the same effect on the changes of the magnetic properties and internal stress of the films as the increase of  $T_s$ . These changes in magnetic properties with  $T_s$  or annealing temperature are considered to be mainly caused by the change of stress induced magnetic anisotropy energy, since the Fe-Co alloy film has a large positive magnetostriction constant.

### 1. 序 論

近年の磁気記録における記録密度の向上にはめざましいものがあるが、情報量の増大は、さらに高い記録密度の実現を要求している。このような要求に答えるため、薄膜技術により得られる磁性薄膜を磁気記録媒体として用いる試み<sup>1~4)</sup>や従来の長手記録方式に代って膜面垂直方向に磁化することによって情報を記録する垂直磁気記録方式に

より高密度記録を実現するための試み<sup>5~7)</sup>が精力的に行なわれている。しかしながら、高い記録密度を実現するためには記録媒体のみならず記録・再生に用いる高性能磁気ヘッドの開発が必要・不可欠である。このような磁気ヘッドの高性能化を実現するためには高い飽和磁化を持ち、熱的にも化学的にも機械的にも安定な軟磁性材料の開発が必要である。そこで本研究では 20 kG 以上の高い飽和磁化を持ち、かつ熱的にも安定な軟磁性薄膜を開発することを目標として、磁性材料中最大の飽和磁化を持つことが知られている Fe-Co 系合金<sup>8)</sup>の薄膜をイオンビームスパッタ法を用いて

\* 電子工学科 講師

\*\* 東京工業大学, 工学部, 助教授  
昭和 60 年 9 月 24 日受理

形成し、その磁気特性を調べた。

その結果、これらの膜は 20 kG 以上の高い飽和磁化を持つものの、室温基板上に堆積した膜はいずれの組成においてもかなり大きな垂直磁気異方性を持ち、数十~200 Oe の保磁力を示した。一方、基板温度の上昇に伴ない膜の垂直磁気異方性は減少し、軟磁気特性の改善が認められたが、保磁力は最低でも 5 Oe 程度とまだかなり大きく、磁気ヘッド用の軟磁性材料として用いるためには今後、第 3 元素の添加や膜形成条件等の面から、さらに軟磁気特性を改善するための検討が必要と考えられた。

以下に詳細を示す。

## 2. 膜試料の作製および評価法

図 1 に本研究で用いたイオンビームスパッタ装置の概略を示す。本装置は低電圧アーク放電形イオン源内で生成されスパッタ槽内に引き出されたイオンをターゲットに負の高電圧を印加することでターゲットに衝突させスパッタを行なう。真空

槽内を  $3 \times 10^{-6}$  Torr 以下に排気した後、イオン源を通じてアルゴンガス (純度 99.999%) を槽内に導入し、1 時間の前スパッタの後、シャッターを開けて、厚さ約  $0.4 \mu\text{m}$  の膜をスライドガラス基板上に形成した。この時のスパッタ所用時間は 3 時間であった。主な膜形成条件を表 1 に示しておく。膜の組成は図 1 (b) 中に示した可変抵抗 R により各ターゲットに入射するイオンの量を調節することで制御した。

表 1 膜堆積条件

イオン加速電圧	3 kV
ターゲット入射イオン電流	20 mA
基板温度	75~350°C
基板	スライドガラス
膜組成	0~54 at.% Co-Fe

膜の磁気特性は振動試料形磁力計 (VSM) を用いて、膜の組成は X 線マイクロアナライザ (EPMA) を用いて、さらに膜の構造は X 線回折法により評価した。また、膜が基板より受けてい

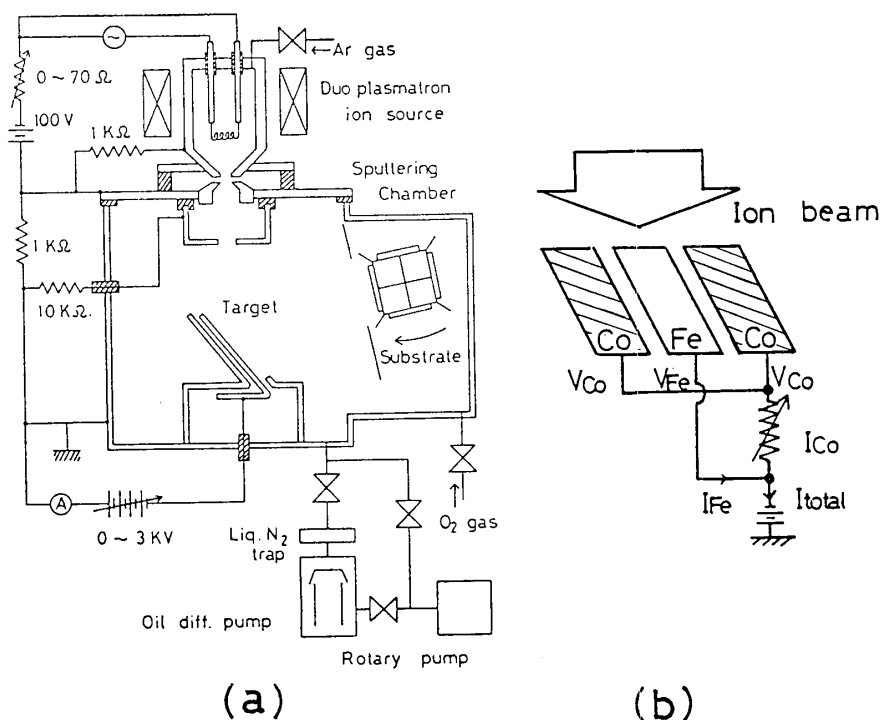


図 1 膜試料の作製に用いたイオンビームスパッタ装置とターゲットへの電圧印加法

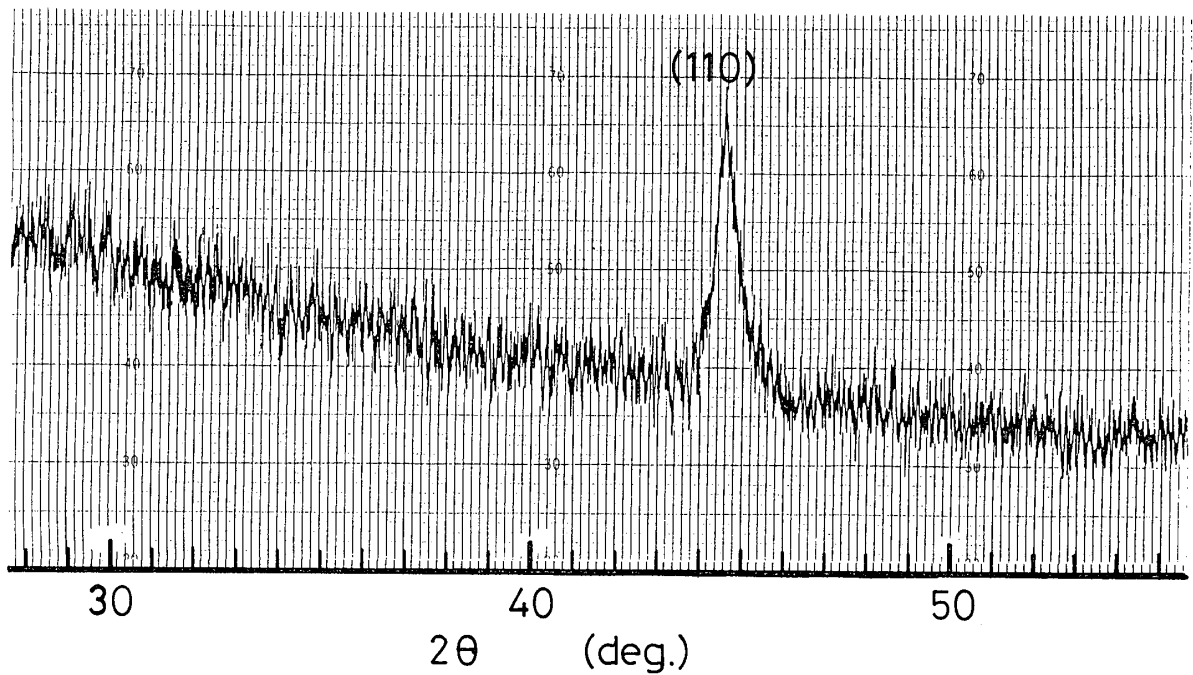


図2 イオンビームスパッタ法により得られた Fe-Co 合金膜の X線回折ダイヤグラム

る応力（内部応力）は膜の堆積により基板に生じた変形を測定することによって評価した。さらに、膜の磁気特性を改善するため、 $4 \times 10^{-6}$  Torr 以下の真空中で1時間の熱処理を行ない、磁気特性の変化を調べた。

うに bcc 構造の (110) 面からの回折ピークのみが認められる X線回折ダイヤグラムを示し、bcc 構造の多結晶膜となっているものと考えられた。図3に組成による (110) 面の面間隔  $d_{(110)}$  の変化

### 3. 結果と検討

#### 3.1. 膜の構造

本研究で得られた膜はほとんど図2に示したよ

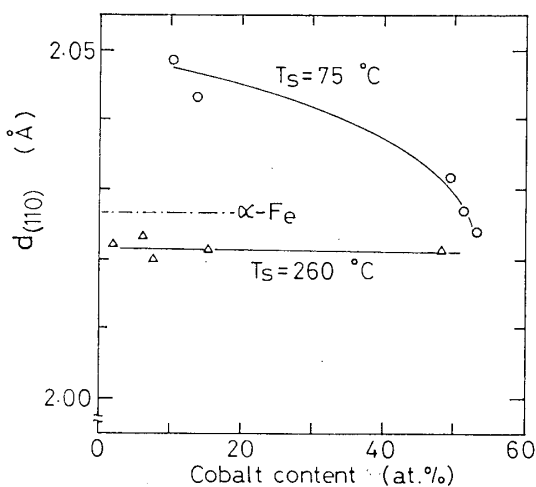


図3 (110) 面の面間隔  $d_{(110)}$  の Co 濃度依存性

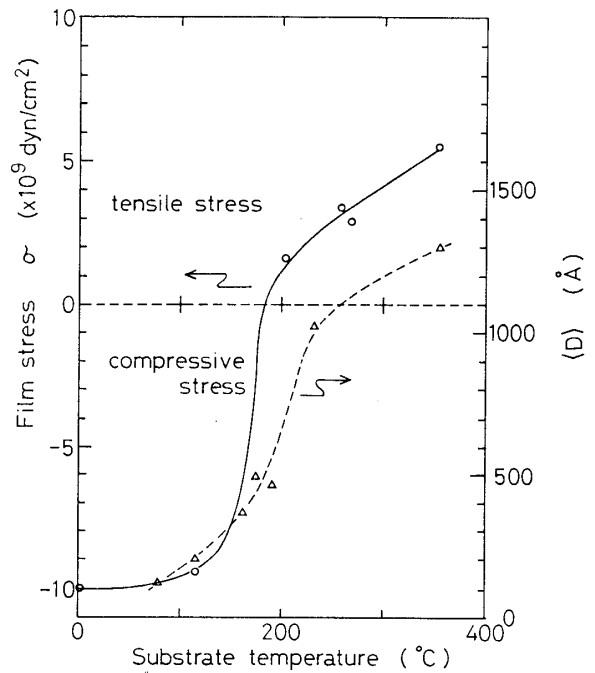


図4 膜が基板より受ける応力  $\sigma$  および平均結晶粒径  $\langle D \rangle$  の基板温度による変化

の様子を示す。Co 濃度が増加するにつれて基板加熱なし（膜形成中の基板温度 75°C）で形成した膜の  $d_{(110)}$  は減少するが、加熱基板上に形成した膜の  $d_{(110)}$  は組成に依存せず、ほぼ一定の値を取る。基板温度により膜が基板より受ける応力  $\sigma$  および平均結晶粒径  $\langle D \rangle$  が図 4 のように変化することを考慮すると、基板温度による  $d_{(110)}$  の違いは主に内部応力の違いにより生じているものと

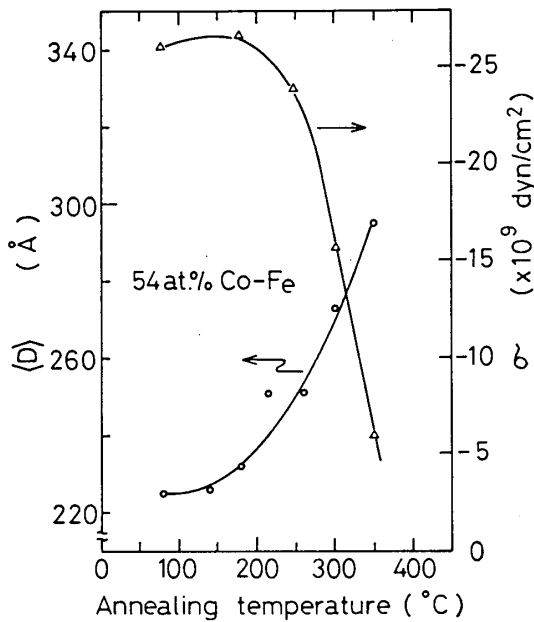


図 5 熱処理温度による平均結晶粒径  $\langle D \rangle$  および内部応力  $\sigma$  の変化

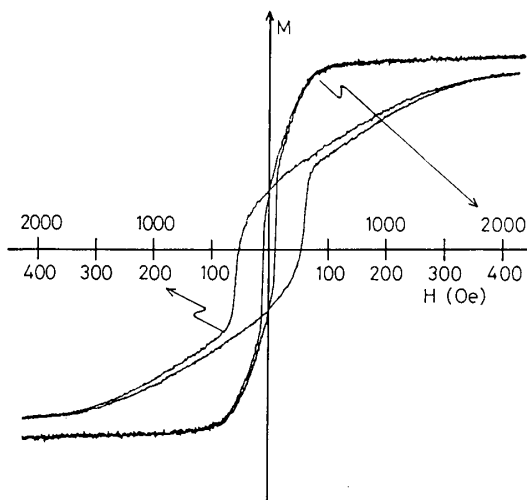


図 6 基板加熱を行なわないで形成した膜の M-H 曲線

考えられる<sup>9)</sup>。

真空中熱処理による粒径  $\langle D \rangle$  および内部応力  $\sigma$  の変化の一例を図 5 に示す。熱処理温度の上昇に伴ない粒径  $\langle D \rangle$  の成長が起こり、その結果として圧縮応力が急減することが分る<sup>10)</sup>。

### 3.2. 磁気特性

基板加熱を行なわないで形成した膜はすべて図 6 のような垂直磁気異方性を有する膜特有の M-H 曲線を持ち、膜の保磁力  $H_c$  および垂直磁気異方性磁界  $H_{k\perp}$  は図 7 のように Co 濃度が増加するにつれて単調に増加する傾向を示した。

図 7 には基板温度  $T_s=260^\circ\text{C}$  で形成した膜の  $H_c$  と飽和磁化  $4\pi M_s$  の組成依存性も示してある。これより明らかなように基板加熱を行なわないで形成した膜に比べるとすべての組成範囲において小さな  $H_c$  の膜が得られている。特に Co 濃度 50~54 at.% 付近で小さな  $H_c$  の膜が形成されることがわかる。また  $4\pi M_s$  は Co 濃度にはさほど依存せずに 20 kG 以上の大きな値を持つ。一方、基板温度を上昇させてゆくと図 8 に示したように膜の保磁力  $H_c$  は急激に減少し、垂直磁気異方性も消失する。基板温度上昇に伴う垂直磁気異方性の消失と  $H_c$  の減少は結晶粒子の成長（図 4 参照）により磁壁移動が容易になると同時

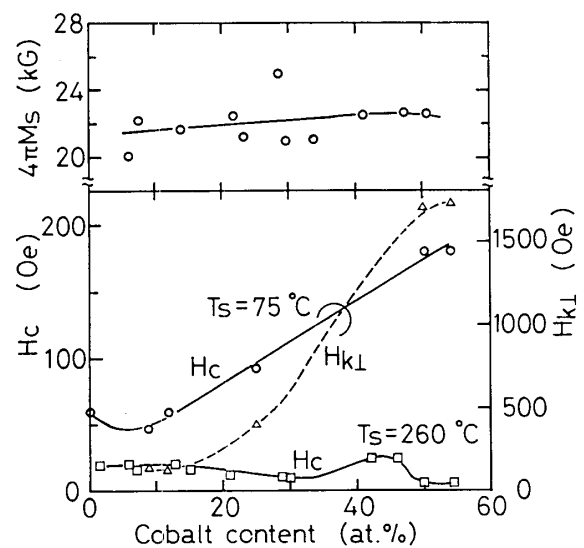


図 7 Co 濃度による保磁力  $H_c$ 、垂直磁気異方性磁界  $H_{k\perp}$  および飽和磁化  $4\pi M_s$  の変化

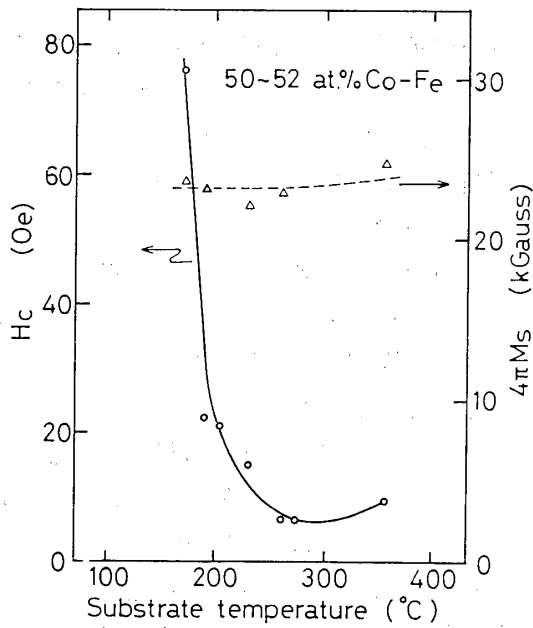


図 8 基板温度による保磁力  $H_c$  および飽和磁化  $4\pi M_s$  の変化

に粒子の形状磁気異方性に起因する垂直磁気異方性が消失したため、さらに膜の内部応力が圧縮力から引張力に変化したため(図4参照) 応力誘導による垂直磁気異方性が消失したことにより起こ

ったものと考えることができる。

真空中熱処理による  $H_c$  および  $H_{k1}$  の変化を図9に示したが、この熱処理温度  $T_a$  の上昇に伴なう  $H_c$  および  $H_{k1}$  の減少も基板温度  $T_s$  の上昇による  $H_c$ ,  $H_{k1}$  の減少と同様に結晶粒子の成長や内部応力の変化(図5参照)から定性的に説明できる。

以上のようにイオンビームスパッタ法で形成した Fe-Co 合金膜はすべて 20 kG 以上の高い飽和磁化を持つが低基板温度で形成した膜はかなり大きな垂直磁気異方性と保磁力を持ち、軟磁性膜は得られなかった。しかし基板を加熱して 260°C 付近の基板温度で形成した膜では垂直磁気異方性は消失し、保磁力  $H_c$  も 5 Oe 程度とかなり小さな値を持つ膜が得られた。同様な軟磁気特性の改善は低基板温度で形成した膜を真空中で熱処理することによっても達成できた。しかし、薄膜ヘッド用の軟磁性薄膜として用いるためには、軟磁気特性をさらに改善することが必要と思われる。Fe-Co 合金の磁気ひずみ定数が純鉄の  $-8 \times 10^{-6}$  から Co 濃度の増加に伴なって増加してゆき、Co 濃度

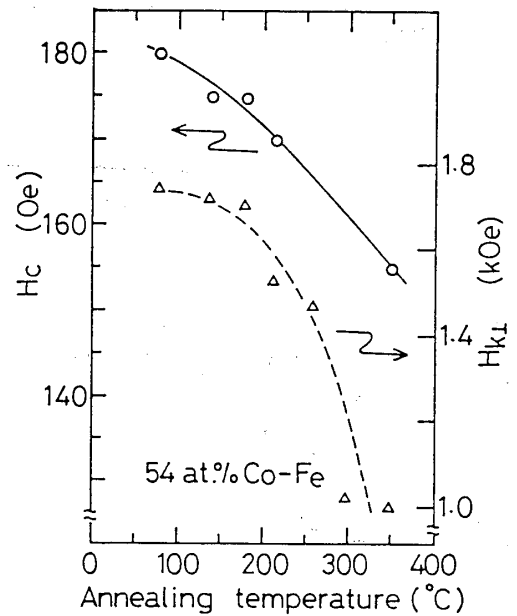
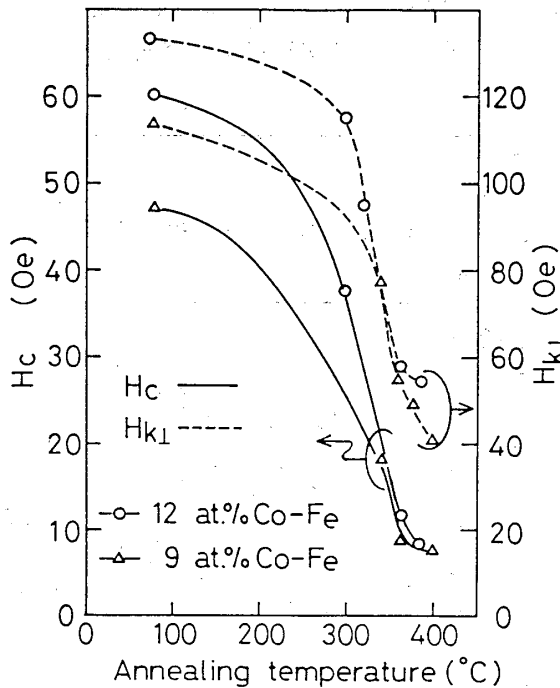


図 9 熱処理温度による保磁力  $H_c$  および垂直磁気異方性磁界  $H_{k1}$  の変化

2% 付近で 0, Co 濃度 50% 付近では  $+65 \times 10^{-6}$  とかなり大きな正の値を持つこと、膜の内部応力が基板温度や熱処理により図 4, 5 のように変化することを考慮すると、図 7 に示した保磁力  $H_c$  および垂直磁気異方性磁界  $H_{k1}$  の組成依存性や図 8, 9 に示した基板温度や熱処理温度による磁気特性の変化は、応力誘導磁気異方性エネルギー  $K_o$  ( $K_o = \frac{3}{2} \cdot \lambda_s \cdot \sigma$ ) の変化とよく対応していることが分る。つまり応力誘導による大きな垂直磁気異方性が誘起される条件 (内部応力  $\sigma$  が大きな圧縮力の場合) では  $H_c$ ,  $H_{k1}$  とともに大きくなり、応力誘導異方性が小さくなるにつれて  $H_c$ ,  $H_{k1}$  の減少, 消失が見られる。このことから, Fe-Co 合金膜において, より軟磁気特性に優れた薄膜を得るためには第 3 元素の添加等により磁気ひずみ定数を減少させることと, 内部応力が小さくなる膜の作製条件を見い出すことが必要と思われる。

#### 4. 結 論

イオンビームスパッタ法を用いて Fe-Co 合金薄膜 (Co 濃度 0~54 at.%) を作製し, その磁気特性を調べた。本研究で得られた結果をまとめると以下のようなになる。

(1) 得られた膜はすべて bcc 構造の多結晶薄膜であった。

(2) 膜が基板より受ける応力  $\sigma$  は膜堆積時の基板温度  $T_s$  の上昇に伴ない圧縮応力から引張応力に変化した。低基板温度で形成した膜を真空中で熱処理することによっても圧縮応力から引張応力への変化が見られた。

(3) 得られた膜はすべて 20 kG 以上の大きな飽和磁化を持っていたが他の磁気特性は組成および  $T_s$  に強く依存し, 低い  $T_s$  では垂直磁気異方性が顕著で保磁力  $H_c$  が大きな膜しか得られなかった。しかし  $T_s$  の上昇に伴なって垂直磁気異方性の消失と  $H_c$  の減少が起こり, 軟磁気特性が改善された。

(4) 低い  $T_s$  で形成した膜を真空中で熱処理することによっても  $T_s$  を上昇させた場合と同様

な軟磁気特性の改善が認められた。

(5) 組成,  $T_s$  および熱処理による磁気特性の変化は主に膜が基板より受けている応力によって生ずる応力誘導磁気異方性によって説明でき, 軟磁気特性を改善するためには特に応力誘導による垂直磁気異方性を消失させることが重要であることが分った。

本研究で得られた Fe-Co 膜の磁気特性は薄膜ヘッド用の軟磁性膜として用いるには不十分なものであったが, 内部応力が小さく, かつ磁歪定数も小さな膜の作製法及び合金系を検討することで高飽和磁化の Fe-Co 系軟磁性膜が実現できるものと思われる。

#### 謝 辞

本研究を進めるにあたり本学工業化学科の小川誠講師, 写真工学科の白井靖男講師には X 線回折, 膜厚計測の面で多大の便宜を計っていただきました。ここに深く感謝致します。また実験等に協力された 59 年度卒業研究生の前嶋満君, 武田知久君, 稲橋寿文君に感謝する。

#### 参 考 文 献

- 1) D. E. Speliotis, G. Bate, J. K. Alstad and J. R. Morrison: J. Appl. Phys., **36** (1965) 972.
- 2) J. S. Judge, J. R. Morrison and D. E. Speliotis: J. Appl. Phys., **36** (1965) 948, **37** (1966) 1158.
- 3) 飯島, 篠原: National Technical Report, **25** (1979) 1064.
- 4) 田子, 佐藤, 西村: 電々公社通研実用化報告, **28-10** (1979) 121.
- 5) S. Iwasaki and Y. Nakamura: IEEE Trans. Mag., **MAG-13** (1977) 1272.
- 6) S. Iwasaki, Y. Nakamura and K. Ouchi: IEEE Trans. Mag., **MAG-15** (1979) 1456.
- 7) M. Matsuoka, M. Naoc and Y. Hoshi: J. Appl. Phys., **57** (1985) 4040.
- 8) R. M. Bozorth: Ferromagnetism. (Van Nostrand Reinhold Co., 1951) p. 194, p. 664.
- 9) R. C. Sun, T. C. Tisone and P. D. Cruzan: J. Appl. Phys., **44** (1973) 1009.
- 10) P. Chaudhari: J. Vac. Sci. Technol., **9** (1971) 520.