

# 成膜方式による鉄薄膜の物理的諸特性

日大生産工(院) 秋庭 雄二  
日大生産工 新妻 清純, 移川 欣男

## 1.はじめに

純鉄は磁性材料分野の最も根本的な材料の一つであり、磁性体の中でも大きな飽和磁化を有する事から、軟質ならびに硬質磁性材料として単体のみならず磁性合金の構成元素としても非常に重要である。特に、その純鉄は高飽和磁化、高透磁率を有している<sup>1)</sup>ことから、高密度磁気記録用ヘッド材料として着目されてきた。一方、純鉄薄膜の結晶構造や磁氣的電氣的特性は、成膜方法によって異なることが知られている<sup>2-5)</sup>。したがって、高純度の鉄薄膜の成膜方法による磁氣的電氣的性質の相違を明確にすることはそれらの磁性材料の特性を評価する上で、極めて重要なことである。

そこで、本研究では、純度 99.999%の Fe 箔を母材としてイオンビームスパッタリング(IBS)法、電子線(EB)蒸着法ならびに高周波(RF)マグネトロンスパッタリング法等で Fe 薄膜を作製し、それらの成膜方式による物理的諸特性の相違について明確にすることを目的とした。

## 2.実験方法

試料の作製方法として純度 99.999%の Fe 箔をターゲットとして用い、次の方法で成膜した。IBS法では、IBS装置のチャンパー内の真空度を  $1.33 \times 10^{-3}$  Pa以下まで高真空排気した後、Arガス雰囲気中でガス圧  $2.4 \times 10^{-2}$  Pa、投入電圧 6kV、投入電流 3mA、成膜速度 0.002nm/secとして薄膜を作製した。次にEB蒸着法として、チャンパー内の真空度を  $4.0 \times 10^{-4}$  Paとし、投入電圧 4kV、成膜速度を 0.20nm/secとして薄膜を作製した。RFスパッタ法では、チャンパー内の真空度を  $4.0 \times 10^{-4}$  Pa以下まで高真空排気した後、Arガス雰囲気中でガス圧を 1.0Pa、投入電力 50W、0.18nm/secとして薄膜を作製した。また、いずれの試料も膜厚 200nm一定とし、基板として磁気特性、薄膜表面観察、結晶構造並びに電氣抵抗率の測定にはソーダライムガラス基板、組成分析ならびに状態分析には無酸素銅基板を用いた。

試料の測定方法として、組成分析並びに状態分析には電子線マイクロアナライザ(EPMA)、

飽和磁化  $M_s$  及び保磁力  $H_c$  の測定には振動料型磁力計(VSM)、実効透磁率  $\mu_e$  の測定にはインピーダンスアナライザによるフェライトヨーク法、垂直磁気異方性  $K$  の測定にはバランシングコイル型トルク計、電氣抵抗率の測定には直流 4 端子法、結晶構造解析には Cu-K $\alpha$  を線源とする X 線回折装置(XRD)、表面形状の観察には原子間力顕微鏡(AFM)、膜厚の測定には繰返し反射干渉計、重量測定にはマイクロ天秤をそれぞれ用いた。

## 3.実験結果および考察

### 3.1 EPMA による組成分析および状態分析

ターゲットである鉄箔並びに各成膜方法によって無酸素銅基板上に成膜した Fe 薄膜に、EPMA を用いて定量分析を行った。定量分析より得られた組成分析結果を Table1 にそれぞれ示す。表より成膜された試料は、何れもターゲットである鉄箔よりも不純物濃度が増加する傾向を示した。特に、N 並びに C が増加していることが分かる。また、IBS 法で成膜された試料において、Al の顕著な増加が認められた。これは IBS 装置のガン部分に使用されている Al 製のアパチャーが、成膜時にターゲットと共にスパッタされることにより、薄膜に Al が混入したものと考えられる。

Table1 Chemical composition of iron foil and thin films prepared by each methods by means of EPMA.

	Fe foil	IBS	EB	RF
O(wt%)	0.021	0.027	0.019	0.007
N(wt%)	0.117	0.406	0.245	0.150
C(wt%)	0.628	2.189	2.208	1.984
Si(wt%)	—	0.078	—	0.021
Co(wt%)	0.058	0.221	0.004	0.258
Al(wt%)	0.005	1.906	—	0.022
Cu(wt%)	—	—	—	—
Fe(wt%)	99.171	95.173	97.524	97.559
Total(wt%)	100.000	100.000	100.000	100.000

次に、定量分析では測定が困難であるArについて、EPMAを用いて状態分析を行った結果をFig.1に示す。図より、IBS法及びRFスパッタ法で成膜した試料から、Ar-Kの標準波長である、 $\lambda = 0.419\text{nm}$ 付近からのピークが認められた。このことから、成膜時にスパッタガスを用いるIBS法並びにRFスパッタ法で成膜された試料中には、微量なスパッタガスが残留することが明らかとなった。

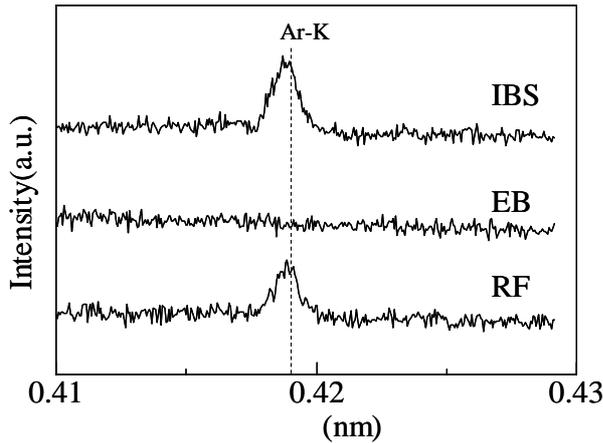


Fig.1 Chemical composition of iron thin films prepared by each methods by means of EPMA.

### 3.2 VSMによる磁気特性

ターゲットであるFe箔ならびに各成膜方法によって、ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜の飽和磁化 $M_s$ および保磁力 $H_c$ についてTable2にそれぞれ示す。表より、飽和磁化 $M_s$ は薄膜化することによって鉄箔の飽和磁化値  $2.70 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ よりも減少する傾向を示し、薄膜化された試料においてはIBS法で成膜された試料において、最大値  $2.61 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ を示した。保磁力 $H_c$ は、薄膜化することによって鉄箔の保磁力  $0.666 \text{kA/m}$ よりも増加する傾向を示し、薄膜化された試料においては、IBS法で成膜された試料において最小値  $0.956 \text{kA/m}$ を示した。

Table2  $M_s$  and  $H_c$  of iron foil and thin films prepared by each methods.

	Fe foil	IBS	EB	RF	Standard value
$M_s$ [ $\times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ ]	2.70	2.61	2.52	2.43	2.74
$H_c$ [kA/m]	0.666	0.956	1.003	7.678	0.0716

### 3.3 比実効透磁率 $\mu_r$ の周波数依存性

各成膜方法によって、ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜の比実効透磁率 $\mu_r$ の周波数依存性をFig.2に示す。図より全ての試料において比実効透磁率 $\mu_r$ は周波数 $f=4\text{MHz}$ 付近まで一定でその後減少する傾向を示した。比実効透磁率 $\mu_r$ はIBS法で成膜された試料において最も高い値を示し、 $f=10\text{MHz}$ においては $\mu_r=143$ を示した。

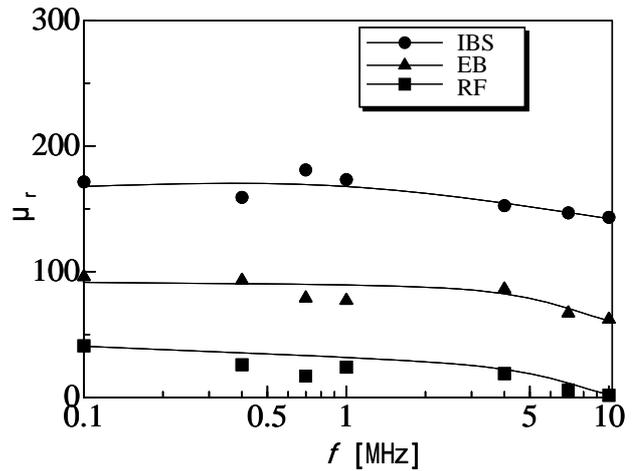


Fig.2 Frequency dependence of  $\mu_r$  on iron thin films prepared by each methods.

### 3.4 垂直磁気異方性 $K$ の特性

各成膜方法によって、ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜の垂直磁気異方性 $K$ の特性をTable3にそれぞれ示す。表より垂直磁気異方性 $K$ は、IBS法で成膜した試料において最小値、 $K = 16.3 \times 10^5 \text{KJ/m}^3$ を示した。これらの結果と保磁力 $H_c$ ならびに比実効透磁率 $\mu_r$ との相関について考えると、IBS法によって成膜された試料において、垂直磁気異方性 $K$ は最小値を示し、それに伴い保磁力 $H_c$ が最小値、比実効透磁率 $\mu_r$ が最大値を示している。このことは、IBS法によって成膜された試料において磁気異方性が分散されたことによるものと考えられる。

Table3  $K$  of iron thin films prepared by each methods.

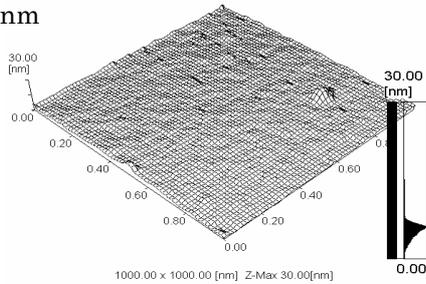
	IBS	EB	RF
$K$ [ $\times 10^5 \text{J/m}^3$ ]	16.3	24.5	30.0

### 3.5 AFMによる表面観察

各成膜方法によって、ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜のAFMによる表面観察

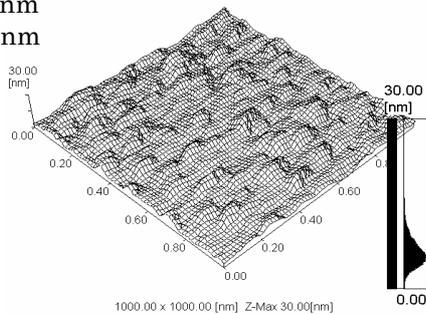
結果について Fig.3(a) ~ (c)にそれぞれ示す。図より面平均粗さ  $R_a$  は,IBS 法で成膜された試料において 1.525nm と最小値を示した。また,EB 法,RF 法で成膜された試料においては,IBS 法で成膜された試料よりも粒径が大きくなっていることが視覚的にも確認でき,このことが垂直磁気異方性の増加に寄与したものと考えられる。

$R_a$  :1.525nm  
 $h_{max}$  :18.45nm



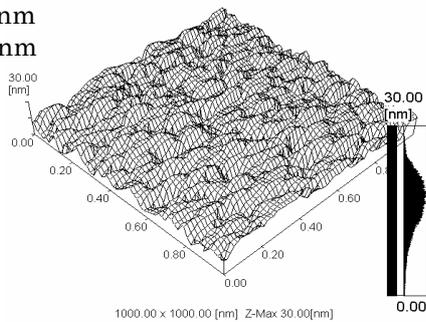
(a) IBS method

$R_a$  :1.798nm  
 $h_{max}$  :16.07nm



(b) EB method

$R_a$  :3.706nm  
 $h_{max}$  :27.18nm



(c) RF method

Fig.3 AFM image of iron thin films prepared by each methods.

### 3.6 電気抵抗率 の特性

ターゲットであるFe箔ならびに各成膜方法によって,ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜の常温における電気抵抗率を Table4 に示す。表より薄膜化された試料は全てターゲットであるFe箔よりも電気抵抗率が增加する傾向を示し,成膜した試料においてはIBS法で成膜された試料で最も低い電気抵抗率  $=3.95 \times 10^{-7} \Omega \cdot m$ を示した。

Table4 of iron foil and films prepared by each methods.

	Fe foil	IBS	EB	RF	Standard value
[ $\times 10^{-8} \cdot m$ ]	15.9	39.5	77.7	63.4	9.71

### 3.7 X線回折装置による結晶構造解析

ターゲットである Fe 箔ならびに各成膜方法によって,ソーダライムガラス基板上に成膜した Fe 薄膜の X線回折図形を Fig.4 にそれぞれ示す。図より Fe 箔においては  $2\theta=41.67^\circ$  付近に  $-Fe(110)$ ,  $2\theta=65.01^\circ$  付近に (200),  $2\theta=82.33^\circ$  付近に (211),  $2\theta=98.94^\circ$  付近に (220),  $2\theta=116.38^\circ$  付近に (310)からの回折線がそれぞれ認められた。成膜方法による相違に関しては, IBS 法及び EB 着法で成膜された試料では  $-Fe(110)$ , (211)からの回折線が,RF スパッタリング法で成膜された試料ではターゲットと同じ  $-Fe(110)$ , (200), (211), (220), (310)からの回折線がそれぞれ認められた。また,ターゲットである Fe 箔では(200)からのピークが第一ピークであったのに対し,各成膜方法によって成膜された試料では全て(110)からのピークが第一ピークとなる傾向を示し,成膜方式によって Fe 薄膜の配向性ならびに結晶方位が異なることが明らかとなった。

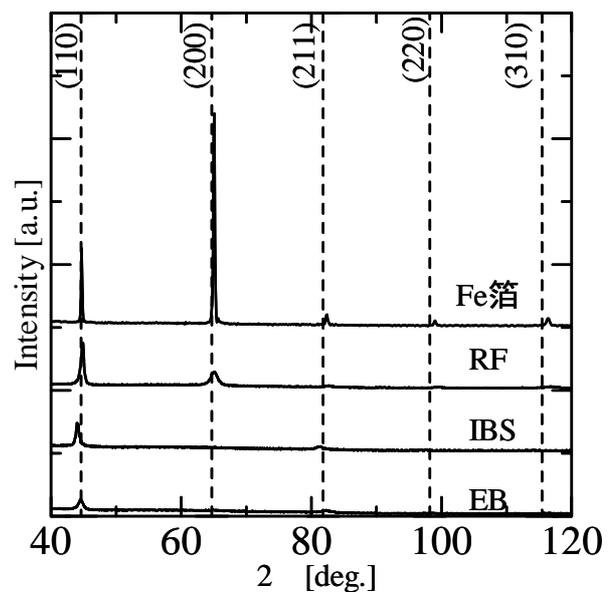


Fig.4 X-ray diffraction patterns of iron foil and thin films prepared by each methods.

次に、Fig.4のX線回折図形より、各成膜方法によって、ソーダライムガラス基板上に成膜したFe薄膜の格子定数 $a$ 、(110)面からの回折線より面間隔 $d_{(110)}$ 値ならびにX線の平均結晶粒径 $t_{(110)}$ 値をそれぞれ算出した結果をTable5に示す。表より、面間隔 $d_{(110)}$ 値はRFスパッタリング法で成膜された試料において、標準値との歪率が-0.543%と最も大きい値を示した。また、X線の平均結晶粒径 $t_{(110)}$ 値はIBS法で成膜された試料において26.4nmと最小値を示し、面平均粗さ $Ra$ の挙動と対応していることが分かった。

ここで、磁気特性とX線回折の結果の相関性について考える。一般に面間隔の標準値との歪が大きくなると応力が増大し、応力が増大することで保磁力が増加することが知られている。表より面間隔 $d_{(110)}$ 値について標準値との歪が最も大きい値を示したRFスパッタリング法で成膜された試料において、最も応力が大きくなり、保磁力の顕著な増加に寄与したものと考えられる。

Table5 Interplaner spacing  $d_{(110)}$ , lattice constant  $a$  and X-ray average grain size  $t_{(110)}$  for iron thin films prepared by each methods.

	IBS	EB	RF	Standard value
Interplaner spacing $d_{(110)}$ [nm]	0.2029	0.2030	0.2015	0.2026
$d_{(110)}/d_{(110)}$ [%]	0.148	0.197	-0.543	0
lattice constant $a$ [nm]	0.2862	0.2863	0.2872	0.2866
X-ray average grain size $t_{(110)}$ [nm]	26.4	30.8	38.2	

#### 4.まとめ

純度99.999%のFe箔をターゲットとして、イオンビームスパッタリング(IBS)法、電子線(EB)蒸着法ならびに高周波(RF)マグネトロンスパッタリング法によってソーダライムガラス基板上に成膜されたFe薄膜の物理的諸特性に及ぼす成膜方式の影響について、それぞれ比較・検討を行った。本結果を要約すると次の通りである。

- (1) 成膜された試料は何れもターゲットである鉄箔よりも不純物濃度が増加する傾向を示した。
- (2) スパッタガスを用いて成膜された薄膜中には、スパッタガスのArが残留していることが明らかとなった。
- (3) 飽和磁化 $M_s$ および比実効透磁率 $\mu_r$ はIBS法で成膜された試料において最大値を示し、それぞれ $M_s = 2.61 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ ,  $f = 10 \text{MHz}$ において $\mu_r = 143$ を示した。
- (4) 保磁力 $H_c$ 、垂直磁気異方性 $K$ ならびに電気抵抗率はIBS法で成膜された試料において最小値を示し、それぞれ $H_c = 0.956 \text{kA/m}$ ,  $K = 16.3 \times 10^5 \text{J/m}^3$ ,  $= 3.95 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$ を示した。
- (5) 表面観察の結果ならびにX線の平均結晶粒径 $t_{(110)}$ 値から、RFスパッタリング法で成膜された試料において薄膜の粒径が増加し、垂直磁気異方性 $K$ の増加に寄与していることが明らかとなった。
- (6) X線回折の結果より算出された面間隔 $d$ 値についてRFスパッタリング法で成膜された試料において標準値との歪率が-0.543%と最大値を示した。このことから応力が最も大きくなり、保磁力の顕著な増加に寄与していることが分かった。
- (7) 成膜方式による物理的諸特性の依存性が明らかとなった。
- (8) 本実験条件では、IBS法で成膜されたFe薄膜において、最も優れた軟磁気特性を示した。

#### 参考文献

- 1) Richard M. Bozorth: 「Ferromagnetism」 IEEE PRESS
- 2) 佐藤文隆, 手束展規, 桜井判明, 宮崎照宣: 「Fe, Ni, Co 金属の結晶粒径と保磁力」 日本応用磁気学会誌, 17, (1993), PP.886 ~ 891
- 3) 岡本聡, 島田寛: 「スパッタビーム法によるFe単結晶膜の作製」 日本応用磁気学会誌, 17, (1993), PP.307 ~ 310
- 4) 岩坪聡: 「IBS法におけるスパッタガス種の鉄薄膜特性に及ぼす影響」 日本応用磁気学会誌, 24, (2000), PP.527 ~ 530
- 5) 秋庭雄二, 新妻清純, 移川欣男: 「成膜方式による鉄薄膜の磁気的電気的諸特性」 2004 電気学会基礎・材料・共通部門大会講演論文集, (2004), PP.30
- 6) 日本学術振興会薄膜131委員会編: 「薄膜ハンドブック」, (1983)