

SiO₂を含有するスーパーセンドスト(I)系薄膜の

結晶構造と軟磁気特性

日大生産工（院） ○王 鋒

日大生産工 新妻 清純・移川 欣男

1.はじめに

近年、磁性材料を応用した HDD などのストレージデバイスは大容量化が進んでおり、垂直記録方式における高密度記録、高速応答性を有する材料の開発は望まれている。特に、書き込み用薄膜ヘッド用材料においては、高飽和磁束密度、低磁歪、低保磁力、高電気抵抗率であり、高周波帯域での損失などが少なく、高い実効透磁率を有することが求められている。

6.0wt%Si-4.0wt%Al-3.2wt%Ni-bal.Feの組成を有するスーパーセンドスト(I)[SS(I)]合金は優れた軟磁気特性を有しているため¹⁾、書き込みヘッドに適した磁性材料であると言える。金属磁性粒子と非磁性絶縁体からなるナノグラニューラー構造磁性薄膜は、粒径がナノスケールの金属磁性粒子と、それを取り囲む非磁性絶縁体の粒界からなる構造を有するため、高周波における軟磁気特性、トンネル型磁気抵抗効果(TMR)などを有することが報告されている²⁾。

そこで、本研究では、RFマグネトロンスパッタリング法を用いて、アルゴンガス雰囲気中で、SiO₂を添加することによりナノグラニューラー構造を有するSS(I)系薄膜の作製を試み、SS(I)系薄膜の軟磁気特性に及ぼす結晶構造等の影響について検討を行った。

2.実験方法

SiO₂を含有するSS(I)系薄膜の作製にはRFマグネトロンスパッタ装置を用いた。装置の概略をFig.1に示す。

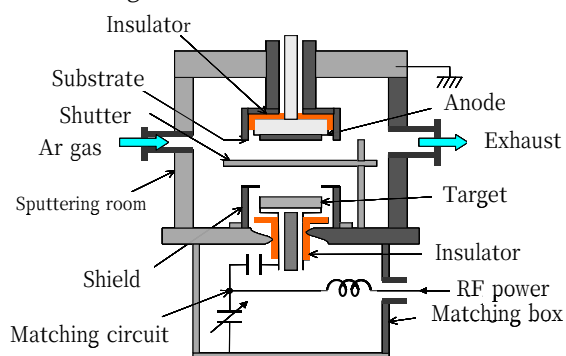


Fig.1 Schematic diagram of RF magnetron sputtering apparatus.

真空チャンバー内にターゲットである陰極とそれに対向するように基板ホルダの陽極が設置され、高周波プラズマ放電とターゲット下部に設置された磁石による印加磁場により基板上に薄膜が堆積するようになっている³⁾⁴⁾。SS(I)系薄膜試料を作製する際には6.7wt%Si-4.5wt%Al-3.2wt%Ni-bal.Feの組成を有する合金ターゲットを用いた。薄膜にSiO₂を添加するため、SiO₂チップをターゲット上で中心より25mmの円周上に等間隔に配置させた⁵⁾。その後、チャンバー内を4.0×10⁻⁴Pa以下まで高真空排気し、純Arガスを用いてチャンバー内の圧力を4.0Paとし、投入電力が400Wの条件で、放電させた。SiO₂チップと

Crystal Structure and Soft Magnetic Properties of Super Sendust (I)

System Thin Films Containing SiO₂

Feng WANG, Kiyozumi NIIZUMA and Yoshio UTSUSHIKAWA

ターゲットの面積比を 3.14%, 3.98%, 4.72%, 6.28%, 7.08%, および 7.86%と変化させ、膜厚を 1 μ m となるように成膜した。

なお、基板には磁気特性ならびに結晶構造解析にはソーダライムガラス基板を、定性、定量分析には無酸素銅基板をそれぞれ用い、基板加熱は行わなかった。作製したSS(I)系薄膜試料の飽和磁化 M_s ならびに保磁力 H_c の測定には振動試料型磁力計(VSM)、結晶磁気異方性の測定にはバランシングコイル型トルク計、比実効透磁率 μ_r の測定にはフェライトヨーク法、組成分析ならびに定量分析には電子線マイクロアナライザ(EPMA)、結晶構造解析にはCu-K α を線源とするX線回折装置(XRD)、表面観察には原子間力顕微鏡(AFM)、膜厚の測定には繰り返し反射干渉計、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による定量分析

種々のSiO₂チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜のEPMAによる定量分析の結果をTable1に示す。

Table1 Chemical composition of SS(I) system thin films on area ratio of SiO₂ chip for target.

SiO ₂ area ratio [%]	Chemical composition [wt%]				
	Fe	Si	Al	Ni	O
3.14	85.40	5.32	2.65	3.17	3.46
3.98	85.37	5.14	2.46	3.21	3.82
4.72	83.45	5.48	2.80	2.97	5.30
6.28	81.84	6.53	3.06	3.00	5.57
7.08	84.04	5.89	2.69	2.74	4.66
7.86	80.88	5.74	2.97	2.74	7.67

表より、Fe, Si, Al, Niの組成比はSiO₂の面積比の増加に伴って、顕著な変化が認められな

かった。Siの組成比はSS(I)合金ターゲットの組成比より低下したのは、Siのスパッタ率が低いためと考えられる。Oの組成比は、SiO₂の面積比 3.98~7.08%においては顕著な変化が認められなかったが、SiO₂の面積比 3.14%の 3.46wt%と比べると、SiO₂の面積比 7.86%では、7.66wt%と大量にOがSS(I)系薄膜に混入していることが認められた。

3.2 VSMによる磁気特性

種々のSiO₂チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜のVSMによる磁気特性をFig.2に示す。

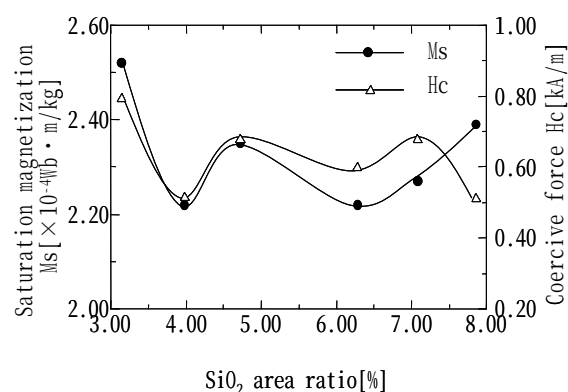


Fig.2 Dependence of saturation magnetization M_s and coercive force H_c on area ratio of SiO₂ chip for target.

図より、飽和磁化 M_s は、SiO₂の面積比が 3.14%の時、最大値 $M_s=2.52 \times 10^{-4}$ Wb · m/kgを示し、SiO₂の面積比が 3.98%の時、最小値 $M_s=2.22 \times 10^{-4}$ Wb · m/kgを示した。保磁力 H_c はSiO₂の面積比が 3.14%の時、最大値 $H_c=0.791$ kA/mを示し、SiO₂の面積比が 7.86%の時、最小値 $H_c=0.511$ kA/mを示した。SiO₂の面積比が 3.98~7.08%においては、飽和磁化 M_s と保磁力 H_c と共にSiO₂の面積比の増加に依存せず、顕著な変化が認められなかった。

3.3 比実効透磁率 μ_r ならびに垂直磁気異方性値 K_u のSiO₂の面積比依存性

種々のSiO₂チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜について、容易軸で周波数 $f=10$ MHzにおける比実効透磁率 μ_r ならび

に垂直磁気異方性値 $K_{\perp}$ の SiO_2 の面積比依存性をFig.3に示す。

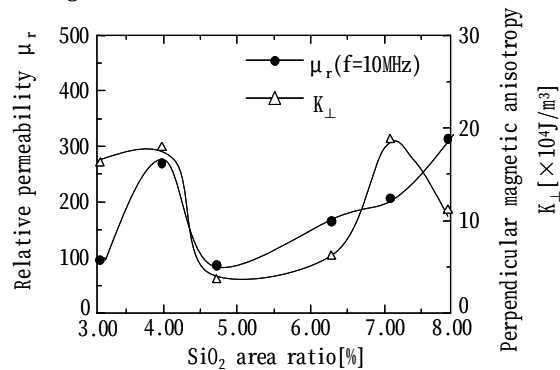


Fig.3 Dependence of relative permeability μ_r and perpendicular magnetic anisotropy $K_{\perp}$ on area ratio of SiO_2 chip for target.

図より，比実効透磁率 μ_r は SiO_2 の面積比が7.86%の時，最大値 $\mu_r=313$ を示し， SiO_2 の面積比が3.14%の時，最小値 $\mu_r=95.9$ を示した。また，垂直磁気異方性値 $K_{\perp}$ は， SiO_2 の面積比が7.08%の時，最大値 $K_{\perp}=18.76 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ を示し， SiO_2 の面積比が4.72%の時，最小値 $K_{\perp}=3.55 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ を示した。 SiO_2 の面積比の増加に伴って，比実効透磁率 μ_r は増加する傾向が認められたが，垂直磁気異方性値 $K_{\perp}$ は顕著な変化が認められなかった。

3.4 X線回折図形による結晶構造解析

種々の SiO_2 チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜のX線回折図形をFig.4に示す。

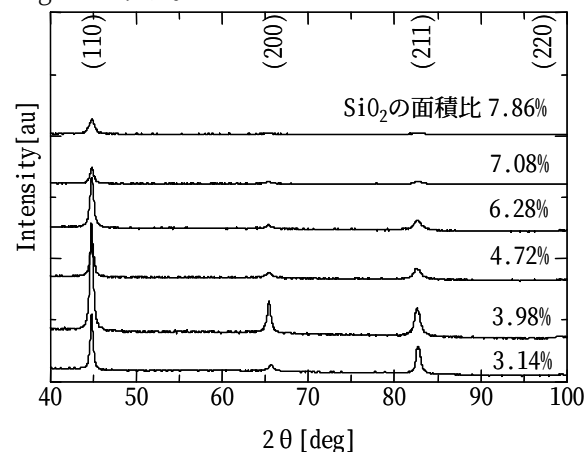


Fig.4 X-ray diffraction patterns of SS(I) system thin films.

図より， SiO_2 の面積比が3.14~7.08%においては， $2\theta=44.86^\circ$ 付近に(110)， $2\theta=65.55^\circ$ 付近に(200)， $2\theta=82.86^\circ$ 付近に(211)， $2\theta=99.62^\circ$ 付近に(220)からの回折線が認められ，ターゲットと同じ体心立方晶であることが明らかとなった。

また， SiO_2 の面積比が7.86%の時において，顕著な回折線が認められなかった。これは，Oの組成比が高かったため結晶性が悪くなったと考えられる。

3.5 AFMによる表面観察

種々の SiO_2 チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜のAFMによる表面観察をFig.5に示す。

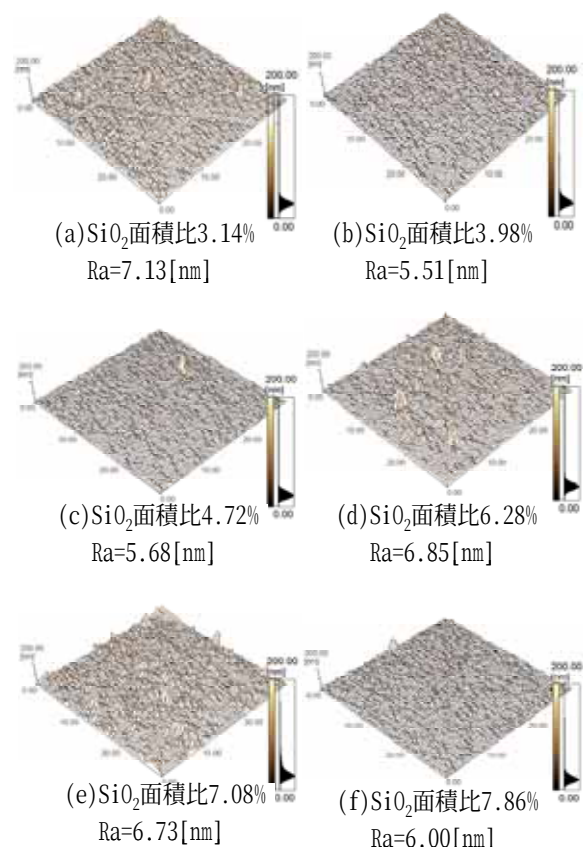


Fig.5 AFM image for SS(I) system thin films.

図より，薄膜表面の粗さは SiO_2 の面積比が3.14%，6.28%ならびに7.08%において，大きくなっているが， SiO_2 の面積比の増加に伴う顕著な変化は認められなかった。

3.6 平均面粗さRaならびにX線の結晶粒径t値のSiO₂の面積比依存性

種々のSiO₂チップとターゲットの面積比で作製されたSS(I)系薄膜の平均面粗さRaならびにX線の結晶粒径t値のSiO₂の面積比依存性をFig.6に示す。

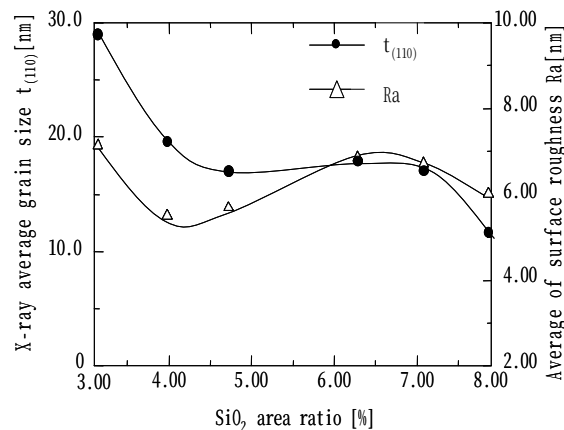


Fig.6 Dependence of average of surface roughness Ra and X-ray average grain size $t_{(110)}$ for SS(I) system thin films on area ratio of SiO₂ chip for target.

図より、平均面粗さRaはSiO₂の面積比が3.14%の時、最大値Ra=7.13nmを示し、SiO₂の面積比が3.98%の時、最小値Ra=5.51nmを示した。平均面粗さRaはSiO₂の面積比の増加に伴って顕著な変化が認められなかった。また、結晶粒径t値は、SiO₂の面積比が3.14%の時、最大値 $t=29.0$ nmを示し、SiO₂の面積比が7.86%の時、最小値 $t=11.7$ nmを示した。SiO₂の面積比が3.14~7.08%においてほぼ一定であったが、7.86%で明らかに小さくなったことが認められた。これはOの組成比が高かったため、微細結晶化されたためと考えられる。

4. まとめ

RFマグネトロンスパッタリング法により、Arガス雰囲気中でSiO₂チップとターゲットの面積比を3.14%、3.98%、4.72%、6.28%、7.08%、および7.86%と変化させ、作製したSS(I)系薄膜の軟磁気特性に及ぼす結晶構造等の影響について検討を行った。本実験の結果をまとめると次の通

りである。

1) 定量分析においては、SiO₂の面積比の増加に伴って、Siの組成比は顕著な変化は認められなかったが、Oの組成比はSiO₂の面積比が7.86%で高くなることが認められた。

2) SiO₂の面積比が3.14%の時、飽和磁化 M_s は、最大値 $M_s=2.52 \times 10^{-4} \text{ Wb} \cdot \text{m/kg}$ を示し、SiO₂の面積比が4.72%の時、垂直磁気異方性値 $K_{\perp}$ は最小値 $K_{\perp}=3.55 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ を示した。

3) 平均面粗さRaはSiO₂の面積比が3.98%の時、最小値Ra=5.51nmを示し、SiO₂の面積比の増加に伴う顕著な変化は認められなかった。

4) 結晶粒径t値は、SiO₂の面積比が7.86%の時、最小値 $t=11.7$ nmを示し、Oの組成比との相関が認められた。

5) Arガス雰囲気中で、SiO₂チップとターゲットの面積比を変化させ作製したSS(I)系薄膜では、SiO₂の面積比が7.86%の時、飽和磁化 M_s は $2.39 \times 10^{-4} \text{ Wb} \cdot \text{m/kg}$ 、保磁力 H_c は最小値0.511kA/m、比実効透磁率 μ_r は、最大値 $\mu_r=313$ を示し、最良の軟磁気特性と言える。

参考文献

- 1) 山本達治，移川欣男；日本金属学会誌，V01.40，N0.10，975(1975)
- 2) 田中陽一郎，彦坂和志，市原勝太郎；日本応用磁気学会会誌，V01.22，N0.10，(1998)
- 3) 金原繁：「スパッタリング現象」東京大学出版(1984)
- 4) 近藤 剛，新妻清純，移川欣男：「ナノ結晶を有する Fe-Si-Al-Ni 系薄膜の軟磁気特性」電気学会誌，120(2000)，174-179
- 5) 有村唯史，新妻清純，移川欣男：「RF 方式による Fe-Si-Al-Ni 系薄膜の微細化と軟磁気特性に関する研究」（平成 13 年度修士論文）