

誘導結合 rf プラズマ支援マグネトロンスパッタ法による ギャップ用 AlN 膜の作製

Preparation of AlN Films as Insulation Gap Layers for MR Heads by Magnetron Sputtering Enhanced with an Inductively Coupled rf Plasma

森田 正・山本直志・倉内利春・松浦正道

日本真空技術(株) 筑波超材研, つくば市和台 29 (300-4247)

T. Morita, T. Yamamoto, T. Kurauchi, and M. Matsuura

Tsukuba Institute for Super Materials, ULVAC Japan, Ltd., 29 Wadai, Tsukuba 300-4247

(1998 年 10 月 15 日受理、1999 年 1 月 21 日採録)

AlN films for use as insulative gap layers for MR or GMR heads were prepared by magnetron sputtering enhanced with an inductively coupled rf plasma at various substrate temperatures. AlN films deposited on substrates at room temperature were found to have amorphous structure and to possess poor corrosion resistance to hot water. On the other hand, AlN films prepared on 200°C substrates were crystallized to some extent and displayed good corrosion resistance. All the AlN films, regardless of the substrate temperature, behaved as insulators. The breakdown electric fields of the AlN films were all about 0.6 GV/m and leakage currents were about 10^{-8} A/mm² (10V). The AlN films prepared at 200°C were concluded to be suitable for application in MR and GMR heads.

Key words: inductively coupled plasma, sputtering, high thermo-conductivity, AlN, insulative gap layer

1. はじめに

近年ハードディスクの著しい記録密度の向上に伴う再生用 MR ヘッド素子の極薄化・微細化により、素子自身からの発熱とそれによる素子温度の上昇が問題となってきた。これは、再生ヘッドの極薄化・微細化により高抵抗化した MR 素子から発生する熱量が増加しているものの、絶縁ギャップ層に用いている熱伝導率の小さい Al₂O₃ 膜が熱障壁となり放熱を妨げているためと考えられる。そこで現在、Al₂O₃ に代わる高熱伝導率を有するギャップ材料の探索がなされている。

高熱伝導率を有する絶縁性の材料としては SiC, BeO, AlN, BN などの化合物が知られており、これらはいずれも Al₂O₃ と比較して 1 桁以上大きな熱伝導率を有している¹⁾。従来のヘッド作製プロセスへの適用を考えた場合、代替材料としては Al₂O₃ と同等の絶縁耐圧、熱膨張率を有していることが必要となる。これらのうち AlN は 3-5 族半導体であるが低い比抵抗値 ($>10^{-16}$ Ωm) と Al₂O₃ に近い熱膨張率を有する材料である。これまで AlN のバルク材料としての利用例としては、その高熱伝導率を利用した電子部品実装基板があり²⁻⁴⁾、薄膜材料での用途としては圧電素子、表面弾性波 (SAW) 素子への応用がある^{5,6)}。しかし、これら薄膜素子用 AlN 膜作製プロセスでは、良好な結晶性を発現させるため成膜温度として 400~500°C 以上の高温を必要としており、ヘッド作製プロセ

スへの適用が可能な 200°C 以下での良質な AlN 膜の報告例はほとんどない。さらに、AlN は常温大気中では熱力学的に不安定で大気中の O₂ や H₂O と結合しやすいため、表面積の大きな薄膜ではその化学安定性が危惧される。この化学安定性は、ヘッド作製プロセスへの応用を考える上で極めて重要であり、その特性向上には、ダングリングボンド等の欠陥の少ない結晶性に優れた薄膜が必要と考えられる。

我々はこれまでに、スパッタ粒子のイオン化率が高い成膜法である誘導結合 rf プラズマ支援マグネトロンスパッタ法⁷⁾を用いることにより高結晶配向 AlN 膜の作製⁸⁾や緻密で高絶縁性を有する Al₂O₃ 膜の作製^{9,10)}が可能であることを報告してきた。そこで本報告ではこの成膜法を用いて、成膜温度 200°C 以下の低温での良質な AlN 膜作製を試み、得られた膜の再生ヘッドギャップ層への適用の可能性を検討した。

2. 実験方法

本研究では、ターゲットには Al (99.999%)、反応性ガスには N₂ を用いて反応性スパッタ法により AlN 膜を作製した。成膜装置の概要を Fig. 1 に、成膜条件を Table 1 に示す。成膜装置の到達圧力は 1.2×10^{-4} Pa で、排気系にはクライオポンプを用いた。本法では直流スパッタを採用しており、スパッタ用直流電源は、ターゲット上でのチャージアップによる異常放電を防止するためのアークキラー回路 (Arc Killer Circuit: AKC) を経由してカソードに接続されている。誘導結合放電用コイルの終端は、放電中のプラズマ

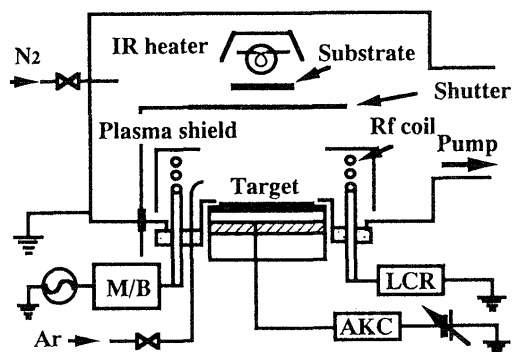


Fig. 1 Schematic diagram of the magnetron sputtering system with an inductively coupled rf plasma. M/B: Matching box, LCR: LCR circuit, AKC: Arc killer circuit

Table 1 Experimental conditions for the preparation of AlN films by magnetron sputtering enhanced with an inductively coupled rf plasma.

Target:	Al
Total pressure:	0.11 Pa
N ₂ partial pressure:	$2 \times 10^{-2} - 3 \times 10^{-2}$ Pa
Cathode power:	DC 240 W
Rf coil power:	20 - 40 W
Substrate temperature:	R. T. - 200°C
Target/substrate distance:	350 mm
Deposition rate:	$2.5 \times 10^{-2} - 3.3 \times 10^{-2}$ nm/s

電位を制御するためのインピーダンス調整用 LCR 回路を経由して接地されている。基板には比抵抗が数百 Ω m 以下の Si (100) ウエハーを用いた。Si 基板はフローティング電位に保ち、基板の加熱は赤外線ランプで行った。この基板加熱は、膜の結晶性改善による耐水性向上を主な目的とした。得られた AlN 膜の物性評価法として屈折率はエリブソメトリで、化学組成はオージェ電子分光法 (AES) 並びにラザフォード後方散乱法 (RBS) で決定した。また、膜の結晶配向性には X 線回折法 (XRD) を、膜の微細構造観察には高分解能電子顕微鏡 (HRTEM) による膜断面観察を行った。AlN 膜の電気特性としては 2 端子法による I-V 測定より得られる絶縁破壊電界強度及びリーク電流量で評価した。2 端子法の測定に際し下部電極には Si 基板を利用し、上部電極にはスパッタ Au 膜 (0.25mm 角×50nm 厚) を用いた。作製した膜の耐水性は、温水浴中に浸した膜の単位時間当たりのエッチング量で評価した。エッチング量は、触針式表面粗さ計にて測定した。

3. 実験結果

3.1 AlN 薄膜の物性

まず初めに化学量論組成の AlN 膜を作製するために必要な N₂ ガス分圧を膜の屈折率との関係により調べた。N₂/Ar 圧力比 (以下 N₂ 分圧比と呼ぶ) 1/3.3 以上で屈折率 n が 2.05 の透光性の膜を得る事ができた。この値以上に N₂ 分圧比を大きくしても屈折率には変化がなかった。しかし、N₂ 分圧比を小さくした場合は、屈折率が 2 未満となり膜は褐色に着色した。また、この膜は導電性があった。これらの N₂ ガス分圧依存性は基板温度 (室温～200°C) によらなかった。N₂ 分圧比が 1/3.3 の膜を RBS により組成分析した結果を Fig. 2 及び Table 2 に示す。室温で成膜した AlN

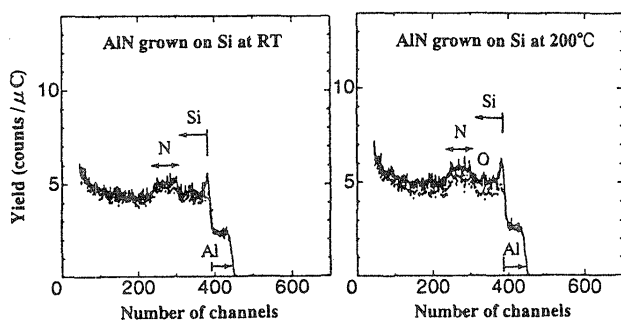


Fig. 2 RBS spectra of AlN films.

Table 2 Chemical composition of AlN films determined by RBS.

Substrate temperature	Element ratio N / Al	Yield Al:200°C — Yield Al:RT
R T	0.969	1.04 - 1.05
200°C	0.883	

膜の組成比 N/Al は 0.969 であり化学量論組成に近い膜であった。この膜の AES による膜の深さ方向組成分析結果を Fig. 3 に示す。N/Ar の強度比は膜中ほぼ一定であった。また、約 1at% の O が検出された。他方、200°C で作製した膜の N/Al 比は 0.883 となっており室温成膜時より小さな値を示した。しかし、このような膜でも着色していなかった。

AlN 膜 100nm の配向性を X 線回折法により測定した結果を Fig. 4 に示す。このとき基板温度による変化も調べた。室温成膜した膜では回折ピークは現れなかったが、基板温度 100°C の場合から、わずかに 35.9° 付近に六方晶である AlN の (002) 面回折ピークが現れ初め、150°C 以上で明瞭な回折ピークとなり良好な c 軸配向性を有していることがわかった。これらの膜の (002) 面の面間隔 d (002) は 0.2498nm で ASTM カードの値 0.2490nm よりわずかに大きかった。これらの基板温度依存性の結果より、AlN 膜は加熱により結晶化が促進されていることがわかった。

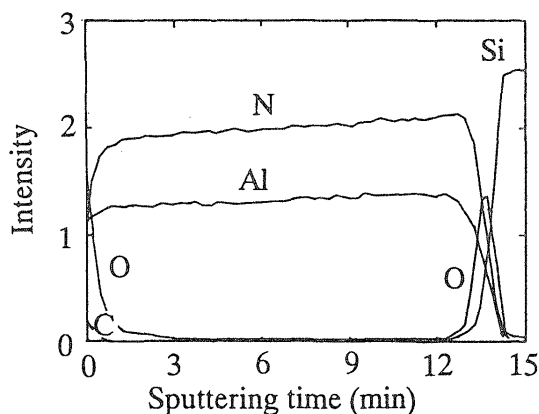


Fig. 3 AES depth profile of an AlN film.

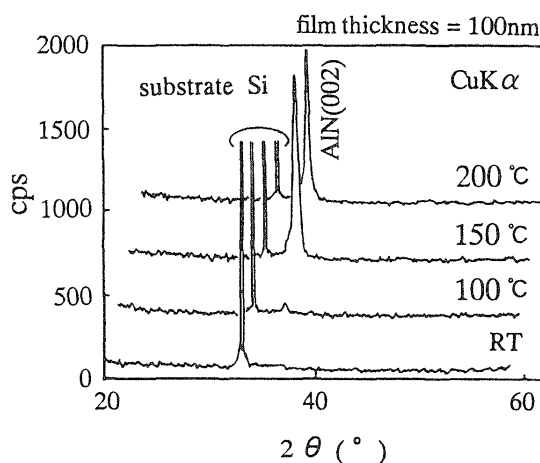


Fig. 4 X-ray diffraction patterns of AlN films.

Fig. 5 に AlN 膜断面の HRTEM 像及び電子線回折像を示す。室温成膜した膜の場合、柱状構造等はほとんど観察できなかったが電子線回折像においてはスポットが現われていた。先の X 線回折の結果と合わせて考えるとこの膜は非常に細かい多結晶の膜と考えられる。一方、加熱成膜した膜では、柱状の構造及び個々の柱の中に明瞭な格子像が観察され、電子線回折像においては (002) 回折線の位置にリング状のパターンが観察された。これらの結果及び X 線回折の結果から、加熱成膜により膜の結晶化及び配向性が促進されている事がわかった。ただし、格子像に散見されるモアレや電子線回折像のリング状パターンの存在よりこの膜の応力が大きいことが推察された。AlN 膜の密度については、RBS 測定により求められる膜厚及び Al 存在量に比例する散乱収量から計算できる。このようにして各成膜温度で得られた膜の密度の相对比较より、加熱成膜において得られた膜の方が 4~5% 緻密化している事がわかった (Table 2 参照)。

3.2. AlN 膜の耐水性

当初危惧された AlN 膜の化学的安定性を調べるために温水浴に浸して膜の変化を観たところ、膜がエッチングされる事が観察された。これらの結果を Fig. 6 に示す。室温成膜により作製した膜は、30°C 程度の微温水中に短時間浸しただけで膜の色調が変化した。しかし、そのまま浸しつづけても膜のエッチングは起きず、この色調の変化は膜の極表面が酸化したためと推察された¹¹⁾。この膜のエッチングは温水浴温度が 70°C 付近から始まり、温度が高くなるにつれ急激に増大していった。他方、成膜時に基板を加熱した AlN 膜の場合、温水浴温度 60°C 以下では色調変化は観察されなかったが、70°C 付近からはエッチングが開始した。この基板加熱の効果は、90°C 高温温水浴温度でのエッチング速度に大きな差として現れ、成膜時の基板加熱が AlN 膜の耐水性改善に効果がある事がわかった。

3.3. AlN 膜の電気特性

得られた膜の I-V 特性を Fig. 7 に示す。また、図中には比較の為、本装置で O₂ を用いた反応性スパッタ法で基板を加熱せずに成膜した Al₂O₃ 膜の I-V 特性も合わせて示してある。膜厚 40nm の AlN 膜は、基板温度によらず 24V の絶縁破壊電圧を示し、絶縁破壊電界 0.6GV/m を有する絶縁性材料であることがわかった。AlN 膜の比抵抗については Al₂O₃ と同等であると報告されており¹⁾、我々の AlN 膜でも印加電圧が低い内は Al₂O₃ 膜とほぼ同等であった。しかし、印加電圧が高くなるにつれてそのリーク電流値は急激に大きくなり Al₂O₃ 膜と異なる挙動を示した。I-V 特性に及ぼす基板加熱による効果としてリーク電流値は半桁程小さくできたが、その他の特性値には大きな差は見られなかった。これらの I-V 特性は破壊電界以下ではほぼ可逆的に変化した。

4. 考察

本スパッタ法にて得られた AlN 膜は、ほぼ化学量論組成に近い膜と言えるが基板加熱により膜の N/Al が下がった。これは成膜中に雰囲気より O₂ が膜中に取り込まれたためと考えられる。膜の屈折率については化学量論組成近傍では 2.05 で、N が欠損するとその値が小さくなり、膜も褐色に着色すると考えられるが、

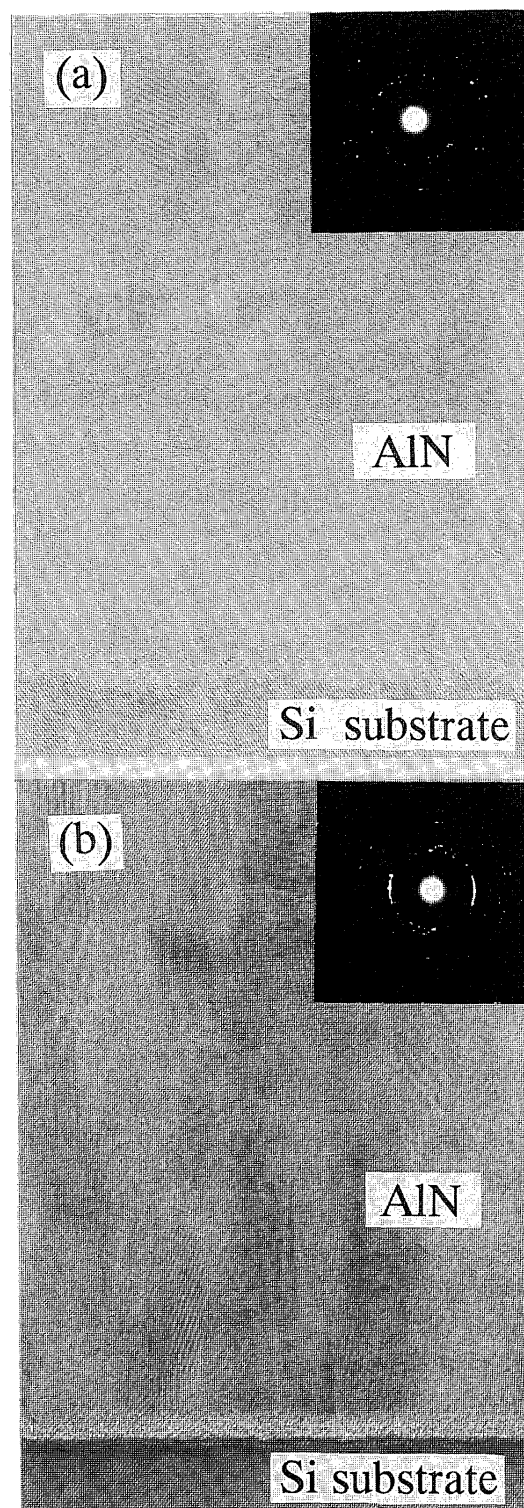


Fig. 5 TEM micrographs and TED patterns of AlN films at (a) RT and (b) 200°C.

O が混入したと思われる膜についてのそれらの関係は不明である。他方、膜構造や物性は基板の加熱により大きく変化した。基板加熱により膜の結晶化及び配向性の促進や膜の緻密化が図れた。また、膜の耐水性も改善する事ができた。耐水性の向上に及ぼす結晶性向上等の効果の詳細については今後解明して行く予定である。これら結晶化及び配向性促進は本来の目的である高熱伝導率を有

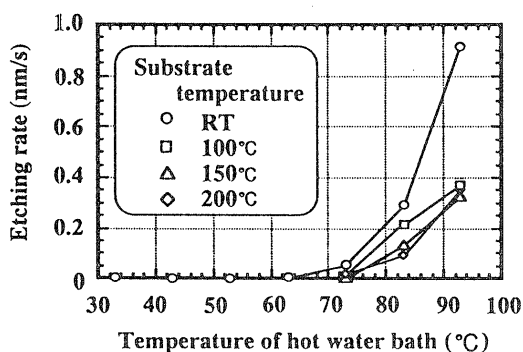


Fig. 6 Etching rate of AlN films with hot water.

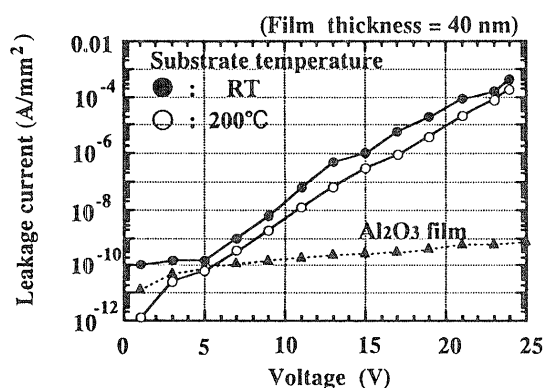


Fig. 7 I-V characteristics of AlN films.

する膜を作製するために極めて重要と考えられる。すなわち非金属材料である AlN の伝熱は格子振動による伝達であるため、膜中の不純物を減らす事はもちろん欠陥・空孔・粒界などの格子振動を乱す因子が少ない事が必要である。膜の結晶化・緻密化の促進は、これらの負の要因を減らす上で大きな効果が期待できる。Kuo ら¹²⁾のグループは種々の単結晶基板上に AlN 膜をエピタキシャル成長させ、基板の種類による熱伝導率の変化を報告している。それによれば、基板の種類や面方位により AlN 膜の結晶化度が変化し熱伝導率に大きな影響を及ぼしている。今後我々は AlN 薄膜の熱伝導率測定に取り組み、本スパッタ法による AlN 膜の結晶化・緻密化が熱伝導率にどのような影響を持つかについて定量的な検討を進める予定である。

他方、本研究で得られた AlN 膜の電気特性に関しては、0.6GV/m の絶縁破壊電界値を有する絶縁性材料であることがわかった。また、その I-V 特性については低印加電界でのリーク電流量は Al₂O₃ 膜と同等であったものの高印加電圧状態でのそれは急激に上昇し印加電圧により膜の比抵抗値に変化のあることがわかった。このような比抵抗の印加電圧による変化は従来からのギャップ材料であるアルミナ膜には見られなかった現象である。また、基板加熱により AlN 膜の結晶化・緻密化向上など大きく変化しており化学組成も変化していたが、I-V 特性には大きな変化が現れなかった。今のところ AlN 膜の電気伝導機構はほとんど未解明のため、これらの現象が 3-5 族化合物半導体材料としての AlN 特有の現象なのか、セラミックス材料に共通な現象も含まれているのか全く不明である。今後の機構解明が必要である。

以上述べてきたように 200°C に加熱した基板上に作製した膜厚 40nm の AlN 膜は、リーク電流では実用素子の印加電圧である 10V 以下において Al₂O₃ 膜とほぼ同等の値であり、絶縁破壊電圧においても Al₂O₃ 膜をわずかに上回る値が得られている。また、ヘッド加工プロセス上重要な耐水性は、温水浴温度 90°C のエッチング速度で約 0.3nm/s と低い。以上の結果より、本法で作製した AlN 膜は、次世代のヘッド用絶縁膜として適用の可能性が十分あると見なせよう。

5. まとめ

誘導結合 rf プラズマ支援マグネトロンスパッタ法を用いての反応性スパッタ法で AlN 膜を作製し以下の結果を得た。

(1) 本スパッタにより作製した AlN 膜は絶縁性材料としての特性を有し、40nm の AlN 膜の場合、電界破壊強度は 0.5~0.6 GV/m、リーク電流は印加電圧により大きく変化し 10⁻¹²~10⁻⁴ A/mm² であった。成膜時の基板加熱は AlN 膜の電気特性に対し大きな影響は及ぼさなかった。

(2) 基板加熱による AlN 膜への効果として、膜の結晶化及び配向性の促進、膜の高密度化が起きていた。

(3) 室温成膜の AlN 膜は耐水性に乏しかったが、100°C 以上の基板加熱により改善することができた。

これらの結果より本スパッタ法で作製される AlN 膜は、次世代の再生ヘッドギャップ膜への適用が期待できることがわかった。

謝 辞 AlN 膜の RBS 測定をしていただくと共に多くの有益な議論をしていただいた電子技術総合研究所量子放射線部小林直人氏ならびに小倉雅彦氏に御礼を申し上げます。

文 献

- 1) 米屋勝利: セラミックス, 26, 725 (1991).
- 2) 谷口人文, 倉元信行: セラミックス, 26, 733 (1991).
- 3) 上野文雄, 柘植章彦: セラミックス, 26, 744 (1991).
- 4) 倉元信行, 谷口人文, 沼田吉彦, 麻生功: 窯業協会誌, 93, 517, (1985).
- 5) 伊藤昭夫, 三沢俊司: 真空, 15, 214 (1972).
- 6) 松岡茂登, 星陽一, 直江正彦: 電子通信学会論文誌, 68, 548 (1985).
- 7) 松浦正道, 山本直志, 森田正, 倉内利春: 真空, 38, 255 (1998).
- 8) T. Yamamoto, T. Morita, T. Kurauchi, M. Hakomori, S. Misawa, T. Uchiyama and M. Matsuura: 13th International Vacuum Congress/9th International Conference on Solid Surfaces, p.250 (Yokohama, 1995).
- 9) 森田正, 山本直志, 倉内利春, 松浦正道: 応用磁気学会誌, 21, 569 (1998).
- 10) 森田正, 山本直志, 倉内利春, 松浦正道: 真空, 38, 255 (1998).
- 11) 栗原保敏, 荻原寛: セラミックス, 26, 764 (1991).
- 12) P. K. Kuo, G. W. Auner, Z. L. Wu: Thin Solid Films, 253, 223 (1994).