日本応用磁気学会誌 23, 1221-1224 (1999)

# SrM薄膜における磁気特性のターゲット組成依存性

Dependence of the Magnetic Properties of Sr Ferrite Films on the Compositional Ratio of the Target

> 森迫昭光・松本光功・斉藤誠 信州大学工学部,長野市若里 500(〒380-8553) A. Morisako, M. Matsumoto, and M. Saitoh Faculty of Engineering, Shinshu University, 500 Wakasato, Nagano 380-8553 (1998 年 10 月 14 日受理、1999 年 1月 21 日採録)

Hexagonal strontium ferrite (SrM, SrFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>) thin films were deposited by dc sputtering with a target composition ratio N (the ratio of Fe/Sr in  $SrFe_NO_Y$ ) in the range of 8 to 14. It was found that the target composition N necessary for the preparation of SrM films with a stoichiometric composition is around 9. Preferential orientation of the c-axis in films deposited at a substrate temperature of 600  $^\circ\!\! C$  was observed most strikingly for films prepared with a target composition of around 9. The saturation magnetization and coercivity in the perpendicular direction were about 260 emu/cc and 3.5 kOe, respectively, when the film was prepared with a target composition ratio N of 8. The surface grain size observed by scanning electron microscope was about 150 nm.

Key words: strontium ferrite, recording media, c-axis orientation, high-density magnetic recording, perpendicular recording

## 1. はじめに

マグネトプラムバイト型構造をもつ六方晶ストロンチウ ムフェライト(SrM)薄膜はバリウムフェライト薄膜と同様 に c 軸を磁化容易軸とし,耐磨耗性に優れ化学的に安定で あり,次世代の長手方向<sup>1),2)</sup>・垂直方向<sup>3)</sup>の高密度磁気記録 媒体として注目されている.そしてさまざまな研究が行わ れている<sup>4)-6)</sup>.

我々は薄膜作製時の基板温度の効果を調べた<sup>6)</sup>.この薄 膜の組成比 Fe/Sr(*N*<sub>film</sub>)を測定したところターゲットの組 成比 Fe/Sr(*M*とは異なることがわかった.本研究では化学 量論組成の SrM 薄膜を得るための条件ならびにターゲット 組成 *N*を変化させた時の SrM 薄膜の結晶学的性質・磁気的 性質について検討を行った.

#### 2. 実験方法

薄膜の作製には DC マグネトロンスパッタ装置を用いた. ターゲットには、SrFe<sub>N</sub>O<sub>x</sub>(*N*=12 が化学量論組成)において *N* が 8 から 14 の焼結体を用いた.焼結は仮焼成(約 1000 ℃), 二次焼成(約 1150 ℃)そして本焼成(約 1350 ℃)を空気中で 行った.焼結体ターゲットは酸化物絶縁体であり, DC スパ ッタ法ではプラズマを維持することができない.ここでは、 アルゴン雰囲気中で 800 ℃で約一時間熱処理することによ って、還元処理を施して導電性を付与して直流放電が可能 なようにしている.使用したターゲットは直径が 10 cm,厚 さは8 mm である. チャンバー内を $3.0 \times 10^{-6}$  Torr 以下に排 気後,酸素およびアルゴンを導入した. スパッタガス圧を 2.0 mTorr とし,スパッタ中の酸素分圧を0.2 mTorr とし た.投入電力を40 Wとし,基板には熱酸化 Si を用い,基 板温度を600 ℃,膜厚を150 nm とした.

結晶構造は Cu-K<sub>a</sub>線を用いた X 線回折装置によって評価 し,薄膜表面の構造は電界放射型走査電子顕微鏡(SEM)を用 いて観察した.薄膜中の組成分析は電子線マイクロアナラ イザ(EPMA)を用いた.磁気特性は最大印加界 10 k0eの試料 振動型磁力計を用いて膜面に対して垂直方向と面内方向に 測定した.

### 3. 実験結果

ー般にスパッタ法においてはターゲット組成と薄膜の組 成はほぼ同様のものと考えられているが、酸化物のスパッ タでしかも高温での薄膜作製においては、必ずしもこれは 正しくない.成長過程にある薄膜面に対するプラズマから の影響が大きい二極スパッタ法では、ターゲット表面で反 跳した高エネルギ中性粒子やプラズマ中の放電イオンの衝 撃による薄膜構成元素の再スパッタあるいは高基板温度に 起因する熱蒸発などを常に考慮しなければならない.本研 究ではまずターゲット組成と薄膜の組成に関する評価を行 った.

Fig.1 に, それぞれの組成比 Nのターゲットを用いて作 製した場合の SrM 薄膜中の組成比 N<sub>film</sub>を示す. 図中破線で 示した線はターゲット組成と薄膜組成が同一の場合である. 図からわかるように、Nが8の場合はN<sub>film</sub>が7.5となり、こ の破線の下すなわちターゲットの組成に対してわずかにSr リッチな薄膜が形成される.一方,Nが9以上の場合は、タ ーゲット組成に対しては Sr が減少し Fe リッチな薄膜とな る. 高周波二極スパッタ法で形成されたバリウムフェライ ト薄膜においても放電ガスイオン衝撃や熱蒸発のためにバ リウムが欠損することが明らかになっている."本研究に おいてもNが9以上ではこのような影響のためにSr が減少 したものと思われる. しかしながら Nが 8 以下の Sr リッチ なターゲットでは Nが 7.5 と約 0.5 程増加する結果となっ ており、この原因については現在のところ不明である.同 図からターゲット組成比が 9 付近で, 化学量論組成 (N<sub>film</sub>=12)に近い薄膜が作製されることが明らかになった.

Fig.2 に、それぞれの組成比 Nのターゲットを用いて作 製した SrM 薄膜の X線回折ダイアグラムを示す. Nが 8 も しくは 12 以上の場合では c 面からの回折線以外に (107),(116),(217)面などの回折線も観察され、薄膜はラ ンダムな結晶配向になっていることがわかる. Nが 9,10 の 場合はわずかに(107)面からの回折線が観察されているが c 面からの回折線が強く, c 軸が膜面に垂直に優先的に配向 している.

Fig.3 に,それぞれの組成比 N のターゲットで作製したSrM 薄膜の c 軸配向指数  $fc^{8)}$ を示す. fc は配向性を示す指数であり,X 線回折ダイアグラムにおいて c 面からの回折線のみが観察される場合は fc = 1.0 となり, c 面からの回 折線が全く観察されない場合は0 となる. 同図からわかる ように Nが9,10 のターゲットを用いて作製した薄膜ではほ ぼ完全な c 軸配向膜となっている.



Fig.1 Dependence of the composition ratio of Fe to Sr in films  $(N_{\text{film}})$  on that in targets  $(\mathcal{N})$ .



Fig. 2 XRD diagrams of SrM films prepared with various target composition ratios N.

Fig.4に,(008)面のロッキングカーブから求めた c 軸配 向分散角 Δ θ<sub>50</sub>のターゲット組成比依存性を示す.組成比 N が 8,9 の場合, Δ θ<sub>50</sub>は約 4.5°であり,Nの増加に伴っ て増加することがわかる.リングヘッドで記録する場合, 記録磁界は面内成分と垂直成分を持ついわゆるベクトル磁 界である.このような記録磁界に対して垂直方向にシャー プな磁化遷移を記録するためには,異方性磁界が大きいこ とが必要であるとともに,磁化容易軸すなわち c 軸が垂直 方向に配向し,その配向分散が小さいことが必要である. 組成比 Nが 8 から 9 において配向分散の小さな SrM 薄膜が 形成されることがわかった.



Fig. 3 Dependence of the c-axis orientation factor (fc) on N.



Fig.4 Dependence of  $\varDelta \theta_{50}$  on N.

日本応用磁気学会誌 Vol. 23, No. 4-2, 1999



Fig. 5 Dependence of the saturation magnetization (Ms) on  $\it N.$ 



Fig. 6 Dependence of the coercivity (Hc) on N.

Fig.5に、SrM 薄膜の飽和磁化 Ms のターゲット組成比依存性を示す.ターゲット組成比 Nが 8,9 では化学量論組成に近い組成の薄膜が形成されることを上で述べたが、これらの薄膜では Ms は 260 emu/cc 前後であった.そしてターゲット組成比 Nが増加すると、すなわち薄膜中で Fe リッチな状態になると Ms は減少することが明らかになった.

Fig.6 に,保磁力 Hc のターゲット組成比依存性を示す. 垂直方向のHcは3.5 k0eからターゲット組成の増加に伴っ て減少し2.2 k0e前後になる.垂直方向のHc は面内方向の Hc の値と比較して高いが,ここで得られた薄膜は面内方向 のHc も 1.0 k0e前後と比較的高い値を示した.すなわち, これまで述べてきた結晶学的性質,特に配向性に関して垂 直記録媒体として適用を考える場合は,さらに改良の必要 があることを示唆している.



Fig. 7 Dependence of the squareness (S) on N.



Fig. 8 SEM micrographs of the SrM film surface.

Fig.7に,角形比 Sのターゲット組成比依存性を示す. 垂 直方向の Sはほぼ 0.6 前後の値を示しており,顕著な組成 比依存性は認められない.

Fig.8 に,各ターゲット組成で作製された薄膜の表面状態を示す.粒子形状はほぼ不定形の形状をしているが,平均粒子サイズは150 nm であった.現在のところ基板加熱温度が600 ℃と比較的高温であり,粒子は成長しやすい環境の作製条件となっている.それぞれの表面写真において,

粒子サイズの小さい数 10 nm 程度の微細粒子も観察される ことから,今後さらに作製条件を詳細に検討することによ って, 粒子の微細化は可能と思われる.

## 4. まとめ

本研究ではDCマグネトロンスパッタによるSrM薄膜のタ ーゲット組成と薄膜の組成の関係を明らかにした.その結 果,組成比 N =8 を除いて薄膜中ではSr が減少することが わかった.そして化学量論組成の薄膜を得るためのターゲ ット組成は N =9 付近であることがわかった.また結晶学的 な性質はターゲット組成が N =9,10 の時ほぼ c 軸配向して いることがわかった.高保磁力という観点からは、N =8 の ターゲットを用いることで Nが9以上のものよりも高い垂 直方向の保磁力約 3.5 k0e が得られた.この時飽和磁化は 約 260 emu/cc であった.しかしながら SEM で観察された表 面の平均粒子サイズは150 nm と非常に大きいものであった. 今後より詳細に薄膜作製条件,特に粒子の微粒子ならびに 均一化に着目した検討を加えて行くことによって,SrM 薄 膜の高密度磁気記録媒体への適用の可能性を明らかにす る. 本研究の一部は平成 10 年度科学研究費補助金(基盤研究 (B)展開)によって行われた.

## 文 献

- T. L. Hylton, M. A. Parker, M. Ullah, K. R. Coffey, R. Unphress, and J. K. Howard: *J. Appl. Phys.*, 75, 5960 (1994).
- 2) T. Suzuki, J. Zhu, and D. Speliotis: *IEEE Trans. Magn.*, MAG-31, 2746(1995).
- A. Morisako, M. Matsumoto, and M. Naoe: *IEEE Trans. Magn.*, MAG-22, 1146(1986).
- P. Papakonstantinou, M. O'Neill, R. Atkinson, I. W. Salter, and R. Gerber: J. Magn. Magn. Mat., 152, 10(1996).
- B. R. Acharya, S. Prasad, N. Venkataramani, N. Shringi, and R. Krishnan: J. Appl. Phys., 79, 1(1996).
- 6) A. Morisako, M. Matsumoto, S. Takei, and T. Yamazaki: *IEEE Trans. Magn.*, **33**, 3100(1997).
- A. Morisako, M. Matsumoto and M. Naoe: J. Magn. Magn. Mat., 54-57, 1657 (1986).
- 8) F.K.Lotgering: J. Inorg. Nucl. Chem., 9, 113(1959).