# 基板公転スパッタ Fe -AI- O 軟磁性膜の磁気異方性

Magnetic Anisotropy for Soft Magnetic Fe-Al-O Alloy Films Prepared by the Planetary Sputtering System

池田正二・久保宮敬幸・松岡正昭・田河育也・上原裕二・兼 淳一・近沢哲史

富士通(株), ストレージプロダクト事業本部, コンポーネント事業部, 長野市北尾張部 36 (〒381-8501)

S. Ikeda, T. Kubomiya, M. Matsuoka, I. Tagawa, Y. Uehara, J. Kane, and A. Chikazawa

Magnetic Component Division, Storage Products Group, Fujitsu Ltd., 36 Kitaowaribe, Nagano 381-8501

We examined the magnetic anisotropy of Fe-Al-O films with Bs~1.8T and  $\rho \sim 1 \mu \Omega$  m. The films were sputtered using the compacted target of Fe and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powders. The magnetic anisotropy of the as-deposited Fe-Al-O films strongly depends on Ar pressure during sputtering. That is, the phase of easy axis shifts to 90 degree as the pressure increase. The Fe-Al-O films have an anisotropic film morphology such as grain shape and crystal orientation. It seems that the origin of uniaxial magnetic anisotropy in the Fe-Al-O films closely relates to the following factors. i) Magnetic anisotropy which directly originates in the anisotropic microstructure. ii) Magnetoelastic effect causing by anisotropic residual stress which is induced to the anisotropic microstructure.

Key words: Fe-Al-O film, sputtering, soft magnetic properties, microstructure, magnetic anisotropy, magnetoelastic effect

### 1. はじめに

Fe-酸化物系の軟磁性グラニュラー膜は、高い比抵抗 ρ と異方性磁界H<sub>k</sub>を有するためGHz帯の高周波デバイスへ の応用が期待されている. このような Fe 系グラニュラー 合金の磁気異方性は, 強磁性結晶粒間の異方的な粒界相を 介した交換結合によるものと推察されている<sup>1.2)</sup>.一方, Fe-Co 系のグラニュラーにおいては磁場中成膜がなされ, 成膜時の異方性が磁場中熱処理により制御可能である, す なわち誘導磁気異方性が支配的であるという報告もあり <sup>3,4)</sup>, グラニュラー合金の磁気異方性の起源については未だ 不明確である.以前に我々は HDD のライトヘッド磁極へ の応用を考慮し、 $\rho \sim 1 \mu \Omega m$  で  $B_s=1.8 \sim 2 T$  を有する Fe-Al-(O/N)軟磁性膜について報告している <sup>5.6</sup>. B<sub>s</sub>=1.8~2 T となる合金組成領域ではα-Fe粒子中にAl, O, N が固溶し 明確なグラニュラー構造とはなっておらず、このような非 磁性添加元素の少ない合金系における異方性の起源を検 討することは、 グラニュラー合金系の異方性発現機構との 比較上も興味深い. また, 短ヨーク化などの磁極形状適正 化により<sup>7</sup>,  $Bs = 1 \sim 1.5 \text{ T}$ ,  $\rho = 0.2 \sim 0.4 \mu \Omega \text{m}$  程度のパー マロイが現状もヨーク材料として用いられているが、Fe-Al-O 膜は Bs, ρ 共に高いことから, 次世代 HDD への応用 上優位性を有しており、そのため、異方性の機構を検討す ることは量産上の異方性制御・管理においても重要であ

る. そこで、本研究では、量産成膜手法として一般的な基 板公転スパッタにより  $Bs\sim1.8$  T,  $\rho\sim1\mu\Omegam$  を有する Fe-Al-O 膜を作製し、その磁気異方性の要因を検討するこ とを目的とした.

## 2. 実験方法

Fe-Al-O 薄膜試料は, RF マグネトロンスパッタ装置において、Fe と Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>粉末との焼結ターゲットを用いAr ガス 雰囲気中のもと 10 rpm で基板公転し、基板側に磁場印加 せずにスパッタされた.ターゲット中の Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>混合量は 2.2 wt%とした.応力の異なる試料を得る目的で 0.1 - 0.7 Pa 範 囲において Ar 圧力を変化させた.ガラス基板は成膜中水 冷した.膜厚は約 0.7  $\mu$ m である.磁気特性は *B-H* ループ トレーサーおよび VSM により測定した.ウェハー内での 異方性の分散状態は光源のビーム径 1mm で Kerr 効果によ り観測した.印加磁界 80 kA/m でトルク曲線の飽和を確認 し、磁気異方性は定量した.磁歪は試料に 240 kA/m を印 加し光てこ法により測定し,残留応力  $\sigma$  は無磁場での試料 の反りより算出した.透磁率は shielded loop coil 法によ り測定した.膜構造は透過型電子顕微鏡(TEM),制限視野 電子回折(SAD)により観察した.

#### 3. 実験結果および考察

3.1 Fe-Al-O 膜の磁気異方性

Fe-Al-O 膜の成膜条件を変え,異方性の付与状態を調査 した. Fig.1 はスパッタ装置の模式図であり,基板ステー ジが静止・回転ともに可能な成膜装置を使用している.







**Fig. 2** *B-H* curves measured along easy axis and hard axis for Fe-Al-O films sputtered at 0.2 Pa and 0.6 Pa.



**Fig. 3** Distribution state of easy axis for as-deposited Fe-Al-O films detected in wafer area of 5 inch in diameter.

成膜圧力 0.2 Pa と 0.6 Pa とで基板公転成膜した Fe-Al-O 膜の *B*-*H*曲線を Fig.2 に示す. 0.2 Pa と 0.6 Pa で成 膜した膜においては,それぞれ,困難軸の異方性磁界  $H_{kh}$ が 1.6 kA/m と 3.2 kA/m の一軸磁気異方性を有する.また, 困難軸および容易軸の保磁力は 100 A/m 以下であり良好 な軟磁性を示している.しかしながら,0.2 Pa で成膜され た膜においては,基板ステージの公転方向(周方向)A が容 易軸,径方向 B が困難軸であるのに対し,0.6 Pa では B 方向が容易軸,A 方向が困難軸になる.すなわち,磁気異 方性の方向が成膜圧力に依存して 90°遷移している.

異方性分散の状態を検討するために、5 in.直径のウェハ ー内9点で磁化容易方向を Kerr 効果により検出し Fig.3 に示した.比較のために、基板をターゲット上で静止させ 成膜した膜の結果も合わせて示す.ターゲット上でウェハ ーを静止させ、0.6 Pa で成膜することにより、磁化容易方 向はウェハー中心から放射状となる.これは、スパッタ粒 子の入射角に依存した異方的な膜組織に起因しているこ とが示唆される<sup>1)</sup>.公転成膜の場合には、0.2 Pa で成膜す ることにより、公転方向 A(基板ステージの周方向)が磁化 容易方向となる.一方、0.6 Pa で公転成膜することにより、 基板ステージの径方向 B が磁化容易方向となり、これらの 結果からも異方性の 90° 位相シフトがウェハー全面にお いて確認できる.なお、0.2 Pa,0.6 Pa ともにスキュー角は ウェハー内において±5°以下で、磁気的一様性を有する 膜が得られている.公転成膜により磁化容易方向が揃う理



Fig. 4 Torque curves of Fe-Al-O films sputtered at various pressures.



**Fig. 5** Uniaxial anisotropy constant  $K_{u1}$  as a function of the Ar pressure in as-deposited Fe-Al-O films.

由としては、公転時におけるスパッタ粒子の入射角の平均 化や断続成膜による柱状粒の成長抑制などが挙げられる. しかしながら、成膜圧力による異方性の遷移についてはス パッタ粒子の入射状態のみでは説明できない.

上記の成膜圧力変化による異方性の挙動を検討するために、0.1 Pa-0.7 Pa の範囲において成膜した膜においてトルク曲線を測定した結果を Fig.4 に示している.  $\phi$ は、径方向と印加磁場の成す角度である. この図から、0.3 -0.4 Pa 付近の圧力において、トルクの位相が 90°シフトしていることがわかる. これらのトルク曲線において二軸( $4\phi$ )成分は一軸( $2\phi$ )成分より 2 桁ほど小さくほぼ一軸磁気異方性となっている. そこで、トルク曲線から、一軸磁気異方性定数 K<sub>u1</sub>を求め成膜圧力に対し整理したのが Fig.5 で



Fig. 6 Ar pressure dependence of (a) the magnetostriction constant  $\lambda$ , and (b) the residual stress  $\sigma$ .



Fig. 7 Relationship between the uniaxial anisotropy constant  $K_{ul}$  and the magnetoelastic anisotropy constant  $K_{elastic}$ .

ある. K<sub>ul</sub>は径方向 B と容易方向が一致した場合に正とし, 容易方向が周方向 A となる場合は負として定義する. Kui は成膜圧力の増加とともに 0.3-0.4 Pa 付近で符号が負か ら正となり、ほぼ直線的に変化している.一般に、スパッ タ膜の残留応力が成膜圧力に依存していることはよく知 られている.そこで、この Ku1の圧力に対する挙動を、磁 気弾性に伴う磁気異方性から考察するために,磁歪定数 λ と残留応力 σ を測定し, Fig. 6 (a), (b)に示した. なお, λ, σはともにB方向で測定した. λは成膜圧力とともに若干 減少傾向にあり、6·8×10<sup>-6</sup>程度の正磁歪を示す.一方, 残留応力 σは 0.5-0.6 Pa 間で圧縮応力(σ < 0)から引張り 応力( $\sigma > 0$ )に変化する.これらの値から、等方磁歪と仮 定し磁気弾性に伴う磁気異方性定数 3/2 λ σ を求めた. Fig. 7は、 $K_{ela} = 3/2\lambda \sigma$ とトルク曲線から求めた実質の一軸磁 気異方性定数 K<sub>u1</sub>との関係を表している. 図中破線は 3/2 λ σ そのものが異方性に起因している場合を仮定したも のであるが、実際の  $K_{u1}$ は  $3/2\lambda \sigma$ と比例関係にはあるが、  $3/2\lambda \sigma < 0$ の領域で符合が変わっている. したがって,  $\lambda \sigma$ の効果のみでは $K_{u1}$ の圧力に対する挙動を説明するこ とは困難である.この結果において,直線近似式は,K<sub>u1</sub>=  $\Delta K_e$ +K'となる.ここで、 $\Delta K_e$ =0.42 $K_{ela.}$ , K'=2.3 kJ/m<sup>3</sup>

日本応用磁気学会誌 Vol. 26, No. 6, 2002



(a) Low pressure (  $\sigma < 0$ )

(b) High pressure ( $\sigma > 0$ )

**Fig. 8** Schematic illustrations of the anisotropy for Fe-Al-O films made by the planetary sputtering system.



Fig. 9 Real part of permeability  $\mu$ ' as function of the Ar pressure.

である. K'は B<sub>s</sub>=1.8 T とすると H<sub>k</sub>~2.6 kA/m に相当し, 応力がゼロの場合においても径方向Bを容易軸とする異 方性が存在することを意味する.また,K,,は Fig.7 中の BH 積(●)とほぼ一致していることから, 面内異方性であ ると考えられる.以上の結果から,異方性の付与状態を Fig.8(a),(b)に模式化する.低い成膜圧力(<0.2 Pa)の場合 には、圧縮応力が大きくこれに起因した異方性が優勢 (△Ke>K)となり見かけ上, 基板ステージの周方向Aが容 易軸となる.一方,高い成膜圧力(>0.5 Pa)の場合には, 引張り応力となり∆K<sub>e</sub>と K'が同方向になるために基板ス テージの径方向 B が容易軸となる.このことは透磁率の測 定結果とも矛盾しない. Fig. 9 は 300 MHz で困難軸にお いて測定した透磁率の実数部 µ'であるが、0.3 から 0.4 Pa の異方性が遷移する圧力範囲では、μ'は B-H曲線より求 めた  $Bs/H_{kh}$ と大きく異なり、 $\Delta K_e$ が優勢となる < 0.2 Pa, および∆K。と K'の位相が一致する>0.5Pa の範囲では Bs/H<sub>th</sub>に漸近している. すなわち, 0.3 から 0.4 Pa の成膜圧 力範囲での透磁率の実測値 µ'と Bs/Hkh との大きな隔たり は、 ΔK。が K'と同程度で異方性の分散が大きいためと推 察される.



**Fig. 10** (a) TEM image and (b) SAD pattern for Fe-Al-O film sputtered at 0.6 Pa.

## 3.2 Fe-Al-O 膜構造

上述した ΔK<sub>e</sub>, K'の要因を 膜構造の面から検討するた めに, 膜面でのTEM および SADにより, 膜構造について調 査した. Fig.10(a) はFe-Al-O膜のTEM像であり, 縞状の異 方的結晶組織が観察される.結晶粒の長軸方向は基板ステ ージの径方向Bとなっている.また,電子ビーム径100 nm で得られた SADパターン (Fig.10(b)) においては, α相に 対応する回折リングが観られているが,そのリング方向に よってコントラストに差異が認められる.これは,面内で 結晶配向が異方的であることを示唆している.したがって, スパッタ粒子の斜め入射や斜影効果により生じた異方的 な結晶組織や結晶配向などの膜構造がK'に原因し<sup>8-10)</sup>,ま た,異方的な膜構造によって応力が異方的に生じている可 能性がある.以上のことより, 成膜圧力の変化に伴う異方 性の90°遷移は,

i) 異方的な膜構造に起因した異方性,K'

ii) 異方的応力による磁気弾性効果, ΔK。

の2つの異方性成分を考慮することで定性的には説明可能 と思われる.一般に応力の要因としては基板と膜との熱膨 張係数の差による熱応力と膜自体の内部応力の2種が挙げ られるが、本成膜においては基板温度の上昇を基板水冷に より70<sup>°</sup>C程度以下に抑制したため、膜自体の内部応力が主 因と考えられる.しかしながら、内部応力の詳細な機構は 不明であるため、異方的な応力については少量添加元素 (Al,O)の固溶状態や偏析状態なども含め更に検討が必要で ある.また、Fe-Al-Oグラニュラー軟磁性体においては微 結晶化により磁歪は平均化され10<sup>-6</sup>程度の低磁歪となっ ているが、今回の膜では $\lambda = 6 \sim 8 \times 10^{-6}$ であり、 $\lambda \sigma$ の効 果がグラニュラー合金と比較しより顕著となっているも のと思われる.したがって、このような高**B**a軟磁性材料の デバイス応用上は、成膜時およびデバイス加工時の応力制 御が重要である.

#### 4. まとめ

0.1・0.7 Pa で基板公転成膜した Bs~1.8 T Fe・Al-O 膜 において、0.3・0.4 Pa 付近の成膜圧力で磁気異方性の 90° 遷移が見られた.この挙動は、磁気弾性に伴う磁気異方性 のみでは説明できず、応力ゼロにおいても基板公転ステー ジの径方向を容易軸とする異方性成分を考慮することで 定性的には説明可能となる.TEM および SAD の結果から は、結晶組織・結晶配向の異方的な膜構造が示唆される. この異方的な微細構造に直接起因した異方性や間接的に 誘因された異方的応力が成膜圧力による異方性遷移の要 因と考えられる.

# 文 献

- W. D. Li, O. Kitakami, and Shimada; J. Appl. Phys., 83, 6661 (1998).
- W. D. Li, K. Kato, O. Kitakami, and Shimada : J. Magn. Soc. Jpn., 22, 449 (1998).
- S. Ohnuma, N. Kobayashi, T. Masumoto, S. Mitani, and H. Fujimori: J. Appl. Phys., 85, 4574 (1999).
- 4) H. J. Lee, S. Ohnuma, N. Kobayashi, S. Mitani, and H. Fujimori : J. Magn. Soc. Jpn., 24, 687 (2000).
- 5) S. Ikeda, Y. Uehara, I. Tagawa, N. Takeguchi, and M. Kakehi: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 3470 (2000).
- 6) S. Ikeda, I. Tagawa, and Y. Uehara : J. Magn. Soc. Jpn., 24, 911 (2001).
- 7) I. Tagawa, and Y. Uehara : J. Magn. Soc. Jpn., 25, 199 (1998).
- W. Takakura, S. Ikeda, and Y. Ueda: *Mater. Trans. JIM.*, 34, 881 (2001).
- 9) J. Hong, S. X. Wang, and K. Rook: *IEEE Trans. Magn.*, 34, 1444 (1998).
- 10) S. X. Wang and J. Hong: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 782 (1999). **2001 年 10 月 6 日受理, 2002 年 4 月 17 日採録**