



研究ノート

Fe-Si-Al 薄膜の イオンプレーティング

大前伸夫*, 梅野正隆**

Fe-Si-Al 系合金のうちで、10wt% Si, 5wt% Al, balance Fe 程度の組成をもつものはセンダストと呼ばれており、オーディオ及びビデオのヘッド材料として注目されている。磁気ヘッド材料に要求される条件としては、ヘッド効率増大のために高透磁率 μ を有していること、ヘッド帯磁の解消とヒステリシス損失減少のために保磁力 H_c が小さいこと、高保磁力記録磁化のために飽和磁束密度 B_s が大きいこと、損失を減少させるために電気比抵抗 ρ が大きいこと、耐摩耗性に優れていること、加工特性が良好なこと、また温度変化に強いことなどを挙げることができる。センダストは上記の条件の大部分を満足しており、アモルファス材料と並んで工業的にもその用途が増加してきている。しかしながら著しい脆性を示すことから複雑な加工が困難なことや、比抵抗がフェライトに比べて小さいため渦電流損失を小さくするには20 μ m程度に薄くしなければならないことなどが問題とされてきた。このような背景からセンダストの薄膜化が注目されるようになり、真空蒸着法やスパッタリング法によるコーティングが試みられてきたが、現在まで実用的に満足できるような結果は得られていないようである。筆者らの研究室ではイオンプレーティング法を用いてFe-Si-Al系磁性合金薄膜の作成を行っているが、上記の2方式も含めてPVDにおける最大の問題としては、やはりいかにして蒸発源（あるいはターゲット）と同じ組成をもつ薄膜をコーティングするかということにある。イオンプレーティング法の特徴としては、付着特性が優れていること、付着速度が速いこと、またつきまわり性が良好であることなどを

挙げることができる。このような利点をうまく活用すれば、複雑な形状を有する基板や絶縁材料、あるいはセラミックスにも実用に耐えるFe-Si-Al磁性薄膜を作成することは可能であろうと期待される。

今回の実験に用いたイオンプレーティング装置の主要部は2系統のタングステンボート蒸発源と直流高圧電源印加装置、グロー放電維持用Arガス導入ポート等から成り、6インチ油拡散ポンプによる排気で到達真空度は 4×10^{-4} Paである。蒸発用材料としては99.99%純度のFeとAl、また O_2 濃度 $15 \sim 18 \times 10^{23}$ atoms/m³のSiウエハを用い、融点が比較的接近しているFeとSiを同一のポートに入れ、Alはもう一方のポートに装着した。基板としてはNaCl(100)またはスライドガラスを使用し、前者は透過電子顕微鏡観察試料に、後者はVSMあるいはベクトルインピーダンスメータによる磁気特性の測定に供した。

表1は蒸発源に設定したFe, Si, Alの組成と作成したイオンプレーティング薄膜をAESによって組成分析した結果とを対比したものであるが薄膜中のSiの割合が極端に低くなっている。この原因はFeとSiの蒸発速度の違いによるもので、Siの蒸発速度がFeよりも約1ケタ大きいこと（パイロメータで測定したタン

表1 Composition of the ion-plated Fe-Si-Al films deposited at 4Pa Ar with 700V discharge voltage.

	Composition at the Vapor Sources Fe : Si : Al [wt%]	Composition of Film as Analyzed by AES* Fe : Si : Al [wt%]
#1	85 : 10 : 5	90.1 : 3.9 : 6.0
#2	75 : 15 : 10	92.5 : 2.3 : 5.2
#3	70 : 20 : 10	86.9 : 5.4 : 7.7

*C, O and Ar were excluded for calculating the composition.

*大前伸夫 (Nobuo OHMAE) 大阪大学, 工学部, 精密工学科, 助手, 工学博士, 精密測定学

**梅野正隆 (Masataka UMENO) 大阪大学工学部, 精密工学科, 教授, 工学博士, 精密測定学

表2 Magnetic properties of the ion-plated films deposited at 4Pa Ar with 700V discharge voltage.

	Composition		Substrate	Saturation Flux	Residual Flux	Coercibility	Initial	Effective
	Fe : Si : Al [wt%]	Thickness [μm]	Temperature [K]	Density ; Bs [T]	Density ; Br [T]	Hc [A/m]	Permeability** μ_i	Permeability** μ_e
#1	90.1 : 3.9 : 6.0	1.8	440	1.03	0.12	14700	250	310
#2	92.5 : 2.3 : 5.2	1.3	440	0.71	0.14	13100	330	350
#3	86.9 : 5.4 : 7.7	1.5	440	0.73	0.12	10700	430	450
#4	94.1 : 3.6 : 2.3	1.2	580	0.82	0.15	10400	450	460
bulk	83.6 : 9.5 : 6.9	—	—	0.89	—	800*	110***	200***

*may not be true value due to the limitation of VSM

**measured at 0.5 MHz

***may not be true values because of the eddy current loss which occurs for a specimen of lmm thick

グステンボートの温度1696K近傍での値)に起因しており、このことから3つの独立な蒸発源が必要であることがわかる。また、AESの分析からは薄膜中の不純物としてC、OおよびArが検出され、このことはデポジション前にさらに高い真空度まで排気しておく必要性を示唆している。

Fe-Si-Al イオンプレーティング薄膜の透過電子顕微鏡観察からは、基板温度が580Kの場合でも30~100nm程度の微結晶で薄膜が形成されていることが明らかとなった。もちろん、これ以下の基板温度あるいは室温においてはさらに細かい微結晶が観察された。制限視野電子線回折からはイオンプレーティング薄膜がバルクセリダストと同様なDO₃型超格子構造をもつ微結晶の集まりであることが同定されたが、厳密にはDO₃型構造のFe原子とSi(またはAl)原子が一部置換した構造をとっているであろうと思われる。この結果、回折スポットから算出された格子定数は0.5652nmとなり、バルクセリダストの公表値0.5689nmよりわずかに小さな値となっている。

表2はイオンプレーティング薄膜の磁気特性を調べた結果を示している。ただし、飽和磁束密度Bs、残留磁束密度Br、保磁力HcはVSMによって測定したもので、外部磁界の方向は薄膜と水平になるようにとった。薄膜のBsはバルクの値に近いものが得られている。バルクセリダストのHcが800A/mと測定されたことからVSMではHcの絶対値を比較す

ることは困難であるが、イオンプレーティング薄膜のHcがバルクに比べて大きくなった理由としては単磁区粒子を含む微結晶薄膜となっていることと、薄膜と基板の熱膨張係数の差によって膜内に内部応力が存在していることなどが考えられる。また、薄膜と水平方向から直角方向へ徐々に外部磁界の方向を変化させてB-Hループを測定した結果、Fe-Si-Alイオンプレーティング薄膜は可逆回転と磁壁移動によって磁化することがわかった。このような場合には、単磁区粒子の存在や膜内応力の影響とともに、AESで検出されたOやC等の不純物によって保磁力が増加すると推定される。一方、透磁率としては周波数0.5MHzで測定した場合、400~500の値が得られた。さらに高周波数域では μ_i 及び μ_e の低下がみられたが、この原因は渦電流損失の増加によるものである。また、5 μm 以上の厚膜では膜中のコラム構造によって形状異方性が著しくなり、 μ_i が減少して約100程度となってしまった。

Fe-Si-Alイオンプレーティング薄膜中の不純物の影響を考えるために、薄膜を空气中で熱酸化させB-Hループの変化を測定した。その結果、Hcが7560A/mから16700A/mに増加し、Bsが1.08Tから0.43Tへと減少した。したがって、膜中に含まれる酸素が酸化物の核を形成してしまうと著しい磁気特性の劣下を招くことは明らかである。

上記のような実験結果をふまえて、長時間ベークアウト直後のイオンプレーティング装置の

ウォールをスパッタクリーニングし、Ar 純度 99.999%以上の放電ガスを使用し、さらに基板温度を 600K 近くまで上昇させ、表 1 の結果から推定して蒸発源における Fe, Si, Al の組成比を 68:25:7 としてイオンプレーティングを行った薄膜は $B_s=1.1T$, $H_c=2400A/m$, $\mu_i=550$ (0.5MHz) とかなり良好な磁気特性を示した。

このような実験的検討と反省点をふまえ、筆者らの研究室ではターボ分子ポンプ排気による超高真空イオンプレーティング装置を設計、製作した。これにより、残留ガス混入の影響を少なくするとともに、3系統の蒸発源を組み入

れ、Fe, Si, Al の蒸発速度の独立制御を行っている。また、基板温度についてもさらに高温まで加熱できるものを設計して、薄膜の結晶粒を大きくしようとするとともに、複数個の膜厚モニターも配備して実験を進めている。センダストとして最も優れた磁気特性を示すとされる 9.62wt % Si, 5.38wt % Al, balance Fe の組成 (たなみに、この組成では $\mu_i=35100$, $H_c=4 A/m$ と報告されている) のイオンプレーティング薄膜の作成を目指すとともに、基板として非磁性フェライトや結晶化ガラスも使用してイオンプレーティング薄膜の磁気特性を評価しようとしている。

