

C-6

熱酸化 Si 基板/Fe 界面における Fe 化合物形成による磁気特性への寄与

Afection to Magnetic property due to Fe compound formation at the thermally oxidized Si substrate-Fe interface

○小松田恭祐¹, 塚本新²*Kyouusuke Kmatsuda¹, Arata Tsukamoto²

Abstract $L1_0$ -FePt ordered alloys have been studied for application to higher density magnetic recording media for next generation. We have reported that Pt / Fe thin films deposited on a thermally oxidized Si substrate can be isolated as $L1_0$ -FePt by rapid thermal annealing (RTA) and rapid cooling process (RCP) [1][2]. However, in the present method, it is necessary to raise the composition ratio of Fe in comparison with Pt in order to generate large retention force derived from $L1_0$ -FePt. As the cause, the existence of FeO generated in process was suggested [3]. In this report, assuming that the origin of FeO is caused by the interface between the substrate and Fe thin film, the generation of FeO and its contribution were examined by depositing only Fe thin films on the substrate surface.

1. 背景

次世代の高密度磁気記録媒体への応用として $L1_0$ -FePt 規則合金ナノ微粒子の研究が精力的に行われている。 $L1_0$ -FePt 規則合金は一軸磁気異方性 K_u に優れ、記録ビットを超微細化しても熱雑音に強いという特長を持つ。この媒体の高速作製方法として、熱酸化 Si 基板上に製膜した Fe / Pt 薄膜に対して、急速昇降温熱処理 (Rapid Thermal Annealing : RTA and Rapid Cooling Process : RCP) を施すことによって高密度な $L1_0$ -FePt 孤立ナノ微粒子群が得られることを報告している[1][2]。しかし、現状の作製プロセスでは原子量論組成比である 50 : 50 に比べ Fe を数 at % 増量しないと保磁力 H_C と飽和磁化 M_s が軟磁性的特性となり、 $L1_0$ -FePt で期待される値に達しない[3]。これは、熱酸化 Si 基板表面に付着している酸素を含む残留分子が、成膜された Fe と化学反応することによって生じる反強磁性 FeO 相とそれによる Pt 過多が引き起こす反強磁性 Pt_3Fe 相の生成が主因ではないかと示唆する結果を報告している[3]。ただし、FeO 等 Fe 化合物の生成機構および生成箇所について詳細は不明であった。

2. 目的

FeO 等の Fe 化合物生成の原因について、大気中にて熱酸化処理した Si 基板表面の残留不純物を主要因とし、基板 / Fe 界面にて生じるものと考えた。そのため本研究の目的として、成膜チャンバー内にて熱酸化 Si 基板表面にアッシング (ashing) 処理を施すことで不純物除去を行い、その上で金属磁性層 Fe / Pt を成膜した際の磁気特性や結晶性の測定することで、基板 / Fe 界面での Fe 化合物相の存在とその寄与度についての検討を行うことにある。本報告では、熱酸化 Si 基板上に直接 Fe を成膜し、結晶構造解析と磁気特性評価を行った結果を報告する。

3. 実験方法

比較・検討を行うために Figure 1 に示すよう 3 種類の試料を作製した。(i) 熱酸化 Si 基板表面に Fe 積層厚 $t_{Fe} = 1.88$ nm とし成膜した膜、(ii) 熱酸化 Si 基板表面に $t_{Fe} = 1.88$ nm の Fe を成膜した後、SiN 積層厚 $t_{SiN} = 3$ nm とし成膜した膜、(iii) 熱酸化 Si 基板表面に $t_{Fe} = 5.26$ nm の Fe を成膜した後、

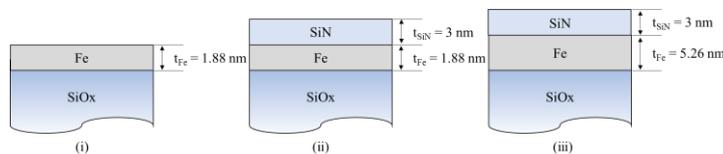


Figure 1 Layer designs of Fe and SiN thin film.

さらに酸化防止のために $t_{SiN} = 3$ nm の SiN を成膜した膜の 3 種類である。なお、Fe の成膜は DC マグネトロンスパッタリング法、SiN の成膜は RF マグネトロンスパッタリング法により行った。作製した試料に対して結晶構造解析には X 線解析装置 (X - Ray Diffraction : XRD)、磁気特性評価には超伝導量子干渉素子式振動試料型磁力計 (Superconducting Quantum Interference Device Vibrating Sample Magnetometer : SQUID VSM) を用いて検討を行った。

4. Fe 薄膜における結晶構造解析

as - depo (アニール等は行わず、成膜したまま) の状態で結晶化した Fe が形成されているのか、さらには、FeO 等の Fe 化合物相が存在しているのかを評価するために、結晶構造解析を試みた。Figure 2 に作製した Fe 薄膜の $2\theta - \theta$ 測定 X 線回折パターンを示す。

1 : 日大理工・学部・電子、2 : 日大理工・教員・電子

Figure 2 より (i) $t_{Fe} = 1.88$ nm の Fe 薄膜では, bcc-Fe 構造で期待される (011)面に相当するピークは確認されなかった. また, SiN 酸化防止膜を施した, $t_{Fe} = 1.88$ nm の Fe 薄膜 (ii) と $t_{Fe} = 5.26$ nm の Fe 薄膜 (iii) のいずれにおいても Fe 由来と考えられるピークは確認できなかった. また, 予想される FeO 等の Fe 化合物相のピークも確認されなかった. その原因としてはまず, Fe の結晶化が不十分であった可能性が挙げられる. また, Fe (011)面に相当するピークにおいては同じ原理で Fe を $t_{Fe} = 20$ nm 積層した際にピークが確認できたという研究報告があり^[4], 今回の積層厚において XRD の解析分解能以下となった可能性も考えられる.

5. Fe 薄膜における磁化曲線の特性検討

結晶構造的な評価が検出感度以下であったものと考え, 磁気特性による評価を試みた. Figure 3 に作製した 3 つの試料において室温 300 K で膜面水平方向へ ± 500 Oe の磁場印加を行い, VSM 計測した磁化曲線を示す. Figure 3 のグラフから求めた Fe 薄膜における飽和磁化 M_s 値とバルク状態の Fe が持つ M_s の文献値それぞれの値を Table 1 に示す. Table 1 の (ii) と Bulk-Fe との比較から $t_{Fe} = 1.88$ nm の膜厚を持つ Fe 薄膜の M_s の値が, Bulk-Fe が持つ値に対して約 1/2 に大きく減少していることが確認された. Figure 4 に, 作製した Fe 薄膜における単位面積当たりの磁気モーメント量 (飽和磁化 $M_s \times$ 膜厚 t_{Fe}) の膜厚依存性を示す. $M_s \times t_{Fe}$ の膜厚依存係数が M_s に相当し, バルク値と同程度であるが, 膜厚に依らず, 定数減少成分が存在することを明らかにした. これらより, 熱酸化 Si 基板上で成膜した段階で既に, 基板 / Fe 界面に局在した 1 nm 厚相当の磁気モーメントが発現しない領域が Fe 薄膜内で形成されることが示唆される.

6. まとめ

Fe 成膜時点での, 基板 / Fe 界面で生じるであろう FeO 等の Fe 化合物相の存在と寄与度を検討するために熱酸化 Si 基板上に Fe 薄膜および SiN 酸化防止膜からなる薄膜試料を作製した. 結晶構造解析では Fe 相のピークおよび Fe 化合物相のピークは検出できなかった. 作製試料の膜厚と飽和磁化値の関係から基板 / Fe 界面における異相の存在を示唆した. さらに, 膜厚と飽和磁化のグラフから 1 nm 厚に相当する磁気モーメントが発現しない領域が形成される可能性を明らかにした.

7. 謝辞

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構の助成および文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 (S1311020) の助成により行ったものである. 磁化曲線測定においては日本大学理工学部電子工学科・吉川大貴助手にご協力いただいた.

8. 参考文献

[1] Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J Appl. Phys 43 12, 8040 (2004)
 [2] A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame and K. Mizusawa, "J. Magn. Soc. Jpn.," 36, 62-65 (2012).
 [3] K.MIYOSI, Master's thesis,Nihon University Japan(2018)
 [4] H.Hachisuka, Master's thesis,Nihon University Japan(2018)

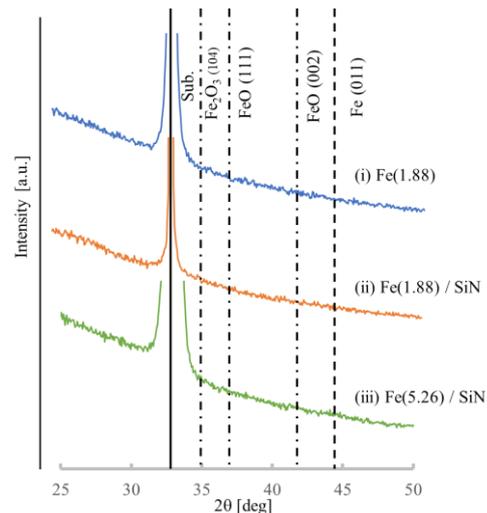


Figure 2 X-ray Diffraction pattern of each sample.

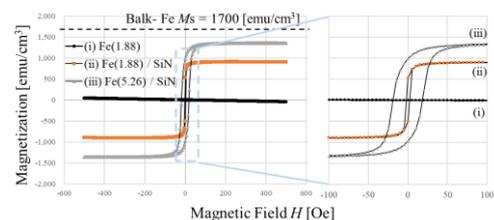


Figure 3 M-H loop of each sample at 300K.

Table 1 Saturation magnetization in Fe thin film.

試料 () 内は積層厚 [nm]	飽和磁化 M_s [emu/cc]
(i) Fe(1.88 nm)	-
(ii) Fe(1.88 nm) / SiN(3 nm)	905
(iii) Fe(5.26 nm) / SiN(3 nm)	1310
Bulk- Fe	1700

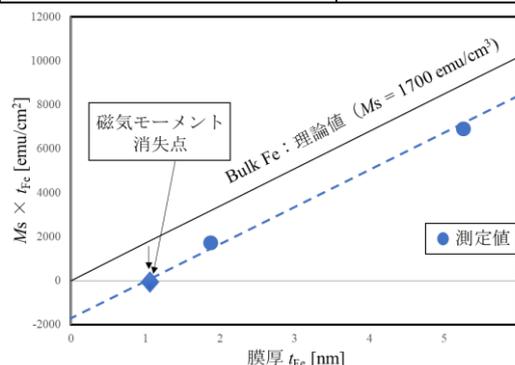


Figure 4 Relationship between film thickness t_{Fe} and saturation magnetization M_s .