

# 熱アシスト磁気記録媒体用スパッタリングターゲット材の開発

Sputtering Target Material for Heat Assisted Magnetic Recording Media

矢ヶ部 秀隆\*

Hidetaka Yakabe

太田 元基\*

Motoki Ohta

福岡 淳\*\*

Jun Fukuoka

齊藤 伸\*\*\*

Shin Saito

\* 日立金属株式会社  
金属材料事業本部

Advanced Metals Division,  
Hitachi Metals, Ltd.

\*\* 日立金属株式会社 安来工場

Yasugi Works, Hitachi Metals, Ltd.

\*\*\* 東北大学大学院 工学研究科

Graduate School of Engineering,  
Tohoku University

熱アシスト磁気記録媒体の軟磁性下地膜 (SUL: Soft-magnetic Under Layer) を成膜するためのスパッタリングターゲット材を開発した。ファインメットの組成 (Fe-Nb-B-Si-Cu 合金) における Nb 量, B 量を適正化することで, このターゲット材を用いて成膜した SUL は, 加熱後も高い飽和磁束密度 ( $B_s$ ) と低い保磁力 ( $H_c$ ) を有しており, 広い加熱温度域にわたって低い  $H_c$  を得ることができる。さらに, 本開発のターゲット材はノジュールの生成を抑制できる金属組織であり, スプラッシュが少ない SUL の成膜が期待できる。

A sputtering target material for depositing a Soft-magnetic Under Layer (SUL) for heat-assisted magnetic recording media has been developed. The resulting SUL has a high saturation magnetic flux density ( $B_s$ ) and a low coercivity ( $H_c$ ) following heating over a wide temperature range. Furthermore, since nodule formation is suppressed, the SUL can be deposited with few splashing effects.

● **Key words** : heat assisted magnetic recording, soft-magnetic under layer, target material

● **Production Code** : Fe-Nb-B-Si-Cu alloy

● **R&D Stage** : Prototype

## 1. 緒言

携帯機器や IoT の普及によるデジタル情報量の増加を背景に, ハードディスクドライブ (HDD: Hard Disk Drive) には高記録密度化が求められている<sup>1)</sup>。一方で, 現在主流の HDD は垂直磁気記録方式 (PMR: Perpendicular Magnetic Recording) であるが, この記録方式では記録密度の増大は限界に近づいている。この理由は, HDD に必要な「高記録密度化」, 「熱安定性」, 「記録容易性」の 3 つの要素を両立することが難しいためであり, 次世代はこれらの 3 要素を満足できる熱アシスト磁気記録方式 (HAMR: Heat Assisted Magnetic Recording) が有望視されている<sup>2)</sup>。図 1, 図 2 に HAMR の記録概念図およびドライブの概略図をそれぞれ示す。HAMR の記録層には  $L_{10}$  型 Fe-Pt 合金が使用される。しかし, 記録層の保磁力  $H_c$  が磁気ヘッドの記録磁界よりも大きいため情報の記録ができない。そのため, 磁気ヘッドに搭載された加熱レーザーによる熱減磁作用により, 記録層の  $H_c$  を小さくして情報を記録し, その後の冷却により記録情報を保持する方式である。図 2 の記録媒体の層構成は簡

略化して示しているが, ガラス基板上に軟磁性下地層 (SUL: Soft-magnetic Under Layer), 中間層, 記録層が積層された多層構造である。SUL の役割は磁気ヘッドと記録媒体との間で磁気回路を形成することであり, SUL には優れた軟磁気特性 (高い飽和磁束密度  $B_s$  および低い保磁力  $H_c$ ) が要求される。

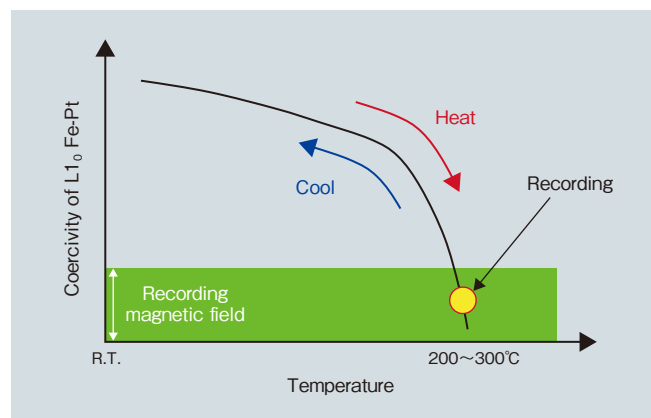


図 1 HAMR の記録概念図

Fig. 1 Conceptual diagram of recording on HAMR

● ファインメット, FINEMET は日立金属株式会社の登録商標です。

そして、記録媒体の製造プロセス温度は、PMRとHAMRで大きく異なる。これは、記録層の成膜温度に起因し、PMRで用いられるhcp構造のCo-Cr-Pt合金は室温成膜であるため、記録層の下層に位置するSULが高温に加熱されることはないが、HAMRのL1<sub>0</sub>型Fe-Ptは、Fe-Ptを規則合金化させるために600～700℃の加熱成膜が必要である。そのため、記録層の下層に位置するSULも記録層の成膜時には600～700℃に加熱される<sup>3)</sup>。ここで、PMR用のSULはFeやCoといった磁性元素にアモルファス形成能を有するNb, Ta, MoやWを添加した合金が用いられているが、加熱を想定した材料設計ではないため、加熱により粗大な結晶が析出してH<sub>c</sub>が増大し軟磁気特性が劣化する。従って、PMR用のSULをHAMRに使用することはできない。

本論文ではFe-Pt記録層の成膜温度に加熱された後も、軟磁気特性に優れた、高B<sub>s</sub>で低H<sub>c</sub>のHAMR用SULの開発に関して報告する。さらに、開発した組成において、磁気記録媒体に用いるSUL形成用のターゲット材に適した金属組織を検討したので報告する。

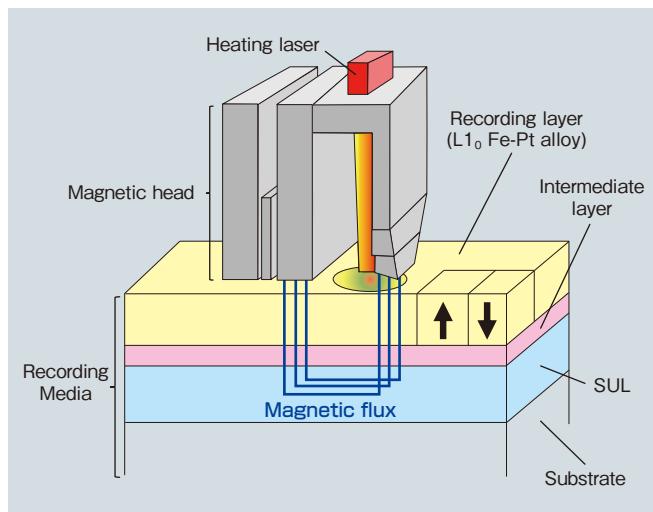


図2 ドライブの概略図  
Fig. 2 Schematic of HAMR drive

## 2. ターゲット材の組成開発

### 2.1 開発方針

高B<sub>s</sub>、低H<sub>c</sub>の軟磁性材料としてファインメット<sup>®</sup>が知られている<sup>4), 5)</sup>。代表組成は、原子比率でFe<sub>bal.</sub>-Si<sub>13.5</sub>-B<sub>9</sub>-Nb<sub>3</sub>-Cu<sub>1</sub>であり、リボン鋳造後のアモルファス相を550℃に加熱して微結晶を析出させ、粒径10～20 nmをコントロールすることで優れた軟磁気特性を発現する。ここで、HAMR用のSULにおいても、記録層の成膜時にSULが加熱されることを利用して微結晶を析出させ、粒径を制御することで優れた軟磁気特性を発現できる可

能性がある。しかし、SULが加熱される温度は、ファインメットの加熱温度より高いため、SUL用に組成を適正化する必要がある。そこで、SULを加熱する前のアモルファス相を安定化させることで粗大な結晶粒の析出を抑制し微結晶化できると考え、アモルファス形成元素であるNbおよび、Bを増加させる検討を行うこととした。

### 2.2 実験方法

SULの磁気特性評価として試料振動型磁力計(VSM: Vibrating Sample Magnetometer)、析出結晶の定性および粒径評価としてX線回折(線源: Co Kα)、透過型電子顕微鏡(TEM: Transmission Electron Microscope)によりSULの断面観察を行った。SULの成膜はキャノンアネルバ社製C-3010を使用し、2.5インチの耐熱ガラス基板(HOYA社製N105X)に膜厚40 nmのSULを投入電力1,000 W, Arガス圧0.6 Paにて形成した。その後、SULをランプ加熱により1×10<sup>-4</sup> Pa以下の真空中で600～700℃に加熱した。また、使用したターゲット材は、原子比率でFe<sub>bal.</sub>-Nb<sub>x</sub>-B<sub>y</sub>-Si<sub>13.5</sub>-Cu<sub>1</sub>とし、xを3～7at%, yを11.5～17.5at%の範囲で変化させた。

### 2.3 実験結果および考察

#### 2.3.1 軟磁気特性

図3は、Nb量を変化させた場合のB<sub>s</sub>とH<sub>c</sub>である。各SULにおいて、加熱温度の上昇によるB<sub>s</sub>の大きな変化は見られず、各加熱温度においてNbの増加に比例してB<sub>s</sub>は単調に減少する。一方、すべてのNb量においてH<sub>c</sub>は加熱温度の上昇に伴い増加する。Nbが最も少ないx=3ではファインメットと同じ組成のターゲット材を用いて成膜したSULであるが、600℃を超えると急激にH<sub>c</sub>

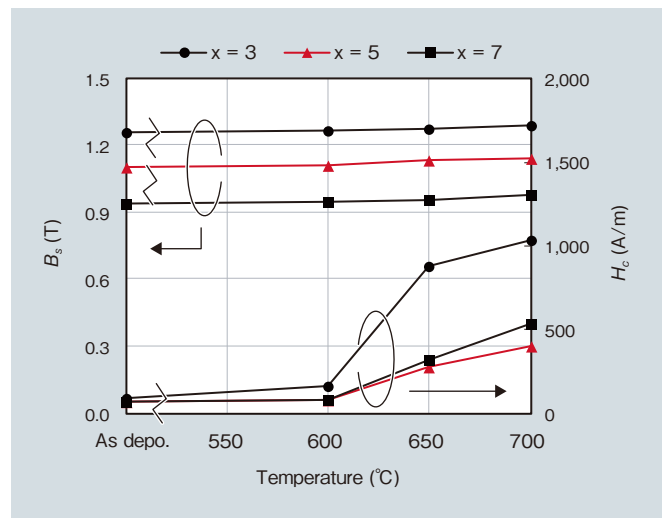


図3 加熱温度とB<sub>s</sub>とH<sub>c</sub>の関係(Fe<sub>bal.</sub>-Nb<sub>x</sub>-B<sub>9</sub>-Si<sub>13.5</sub>-Cu<sub>1</sub>)  
Fig. 3 Relationship between heating temperature and B<sub>s</sub>, H<sub>c</sub> (Fe<sub>bal.</sub>-Nb<sub>x</sub>-B<sub>9</sub>-Si<sub>13.5</sub>-Cu<sub>1</sub>)

が増加し、700°C加熱後は1,035 A/mに増大する。また、 $x=5$ と $x=7$ を比較すると、Nbが少ない $x=5$ で低い $H_c$ が得られている。従って、以降のターゲット材の組成はNb量を5at%に固定して、B量を変化させて実験した。図4にB量を変化させた場合の $B_s$ と $H_c$ を示す。 $B_s$ は $y$ の増加に伴い減少し、加熱温度の上昇による大きな変化は見られない。また、 $H_c$ は $y=14.5$ で最も小さく、Bが最も多い $y=17.5$ では $H_c$ が増加する。以上の結果から、 $x=5$ 、 $y=14.5$ にて、700°C加熱後に $B_s=1.0$  T、 $H_c=112$  A/mの優れた軟磁気特性が得られている。

以上の軟磁気特性の結果に関して、SULの析出相の同定分析および結晶粒径との関係を調査した。これは、ファインメットのような微結晶軟磁性材料では、粒径は $H_c$ に強く影響し、金属間化合物が析出すると磁壁移動のピンニングサイトとなり、 $H_c$ が増加することが知られているためである<sup>6)</sup>。

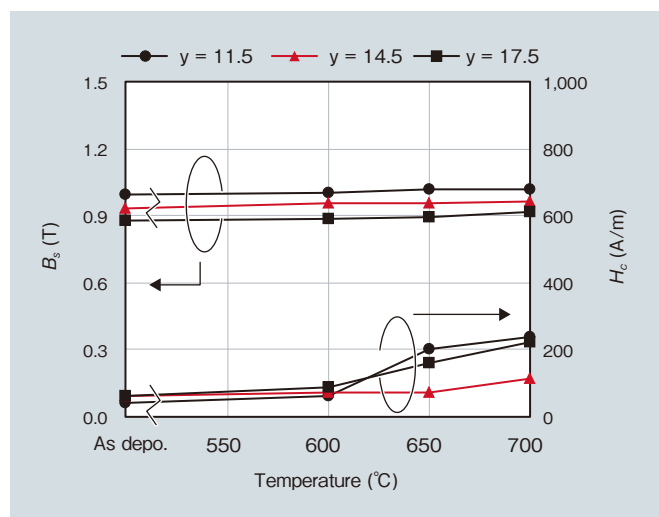


図4 加熱温度と $B_s$ と $H_c$ の関係 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
Fig.4 Relationship between heating temperature and  $B_s$ ,  $H_c$  ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )

### 2.3.2 析出相

図5 (a) (b)は、それぞれ $x=3\sim 7$ における加熱無しの状態であるAs depo.および700°C加熱後のX線回折プロファイルである。いずれもAs depo.ではハローピークでありアモルファス相であるが、加熱によりbcc Fe (110)に起因する回折ピークが観測されるのみで、金属間化合物は析出していないことがわかる。bcc Fe (110)の回折角は、理論値よりも高角側にシフトしているのは、FeにSiが固溶し格子定数が小さくなっていると考えられる<sup>7)</sup>。また、 $x=7$ の回折ピーク強度は小さくブロードであることからアモルファス相が多く残り、一部のみが結晶化した部分結晶化組織になっていると予想される。従って、図3において $x=5$ で $H_c$ が最も小さく $x=7$ で

は増加する原因は、過剰なNb添加による部分結晶化により、アモルファス相と結晶相の境界で磁壁移動がピンニングされているためと考えられる。以上より、 $x=3\sim 7$ のいずれにおいても金属間化合物は析出していないものの、部分結晶化による組織の不均一性によっても $H_c$ が増加する。次に、図6 (a) (b)は、それぞれB量を変化させた場合であり、As depo.ではいずれもアモルファス相であり、加熱によりbcc Fe (110)に起因する回折ピークが観測される。一方、 $y=17.5$ では $\text{Fe}_{23}\text{B}_6$ の金属間化合物に起因する回折ピークが観測されることから、図4において、 $y=14.5$ と比較して $y=17.5$ で $H_c$ が大きくなる原因として、過剰なB添加により金属間化合物が析出するためと考えられる。以上により、低い $H_c$ を得るには金属間化合物の析出抑制に加え、部分結晶化のような不均一組織を抑制することが必要であることがわかる。

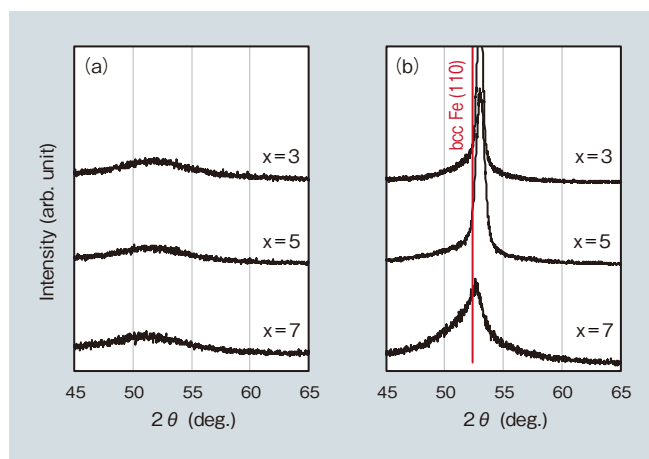


図5  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_x\text{-B}_9\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ のX線回折プロファイル  
(a) As depo. (b) 700°C加熱後  
Fig.5 XRD profiles for  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_x\text{-B}_9\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ : (a) as depo., (b) after 700°C heating

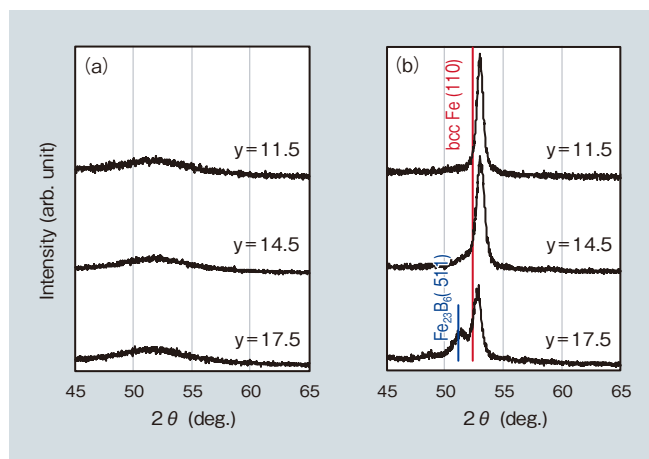


図6  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ のX線回折プロファイル  
(a) As depo. (b) 700°C加熱後  
Fig.6 XRD profiles for  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ : (a) as depo., (b) after 700°C heating

### 2.3.3 結晶粒径

次に、Nb, Bが結晶粒径に及ぼす影響について考察する。図7、図8はそれぞれNb量とB量を変化させた場合のSULにおいて、X線回折プロファイルのbcc Fe (110)の回折ピークの半価幅からシェラーの式を用いて算出した平均結晶粒径である。まず、Nb量の影響に関して、Nbが増加すると結晶粒径を微細化できるが粒径が急激に変化し、加熱温度による変化も大きいことから、Nb量だけの調整では粒径コントロールが困難なことがわかる。一方、B量を増加させることによっても粒径は小さくなり、Nb単独での粒径制御と比較して添加量、加熱温度によっても粒径変化は緩やかである。特に、 $y=14.5$ では600～700℃の温度域にわたって、ファインメットで適正とされる10～20 nmの結晶粒径が得られている。代表例として、 $x=5$ ,  $y=14.5$ の700℃加熱後におけるSULのマイクロ組織および $B-H$ 曲線を図9、図10に示す。

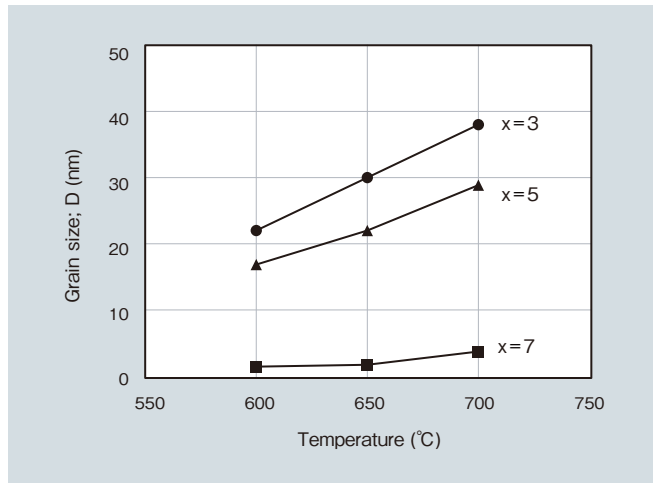


図7 加熱温度と結晶粒径の関係 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_x\text{-B}_9\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
Fig.7 Relationship between heating temperature and  $B_s$ ,  $H_c$  ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_x\text{-B}_9\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )

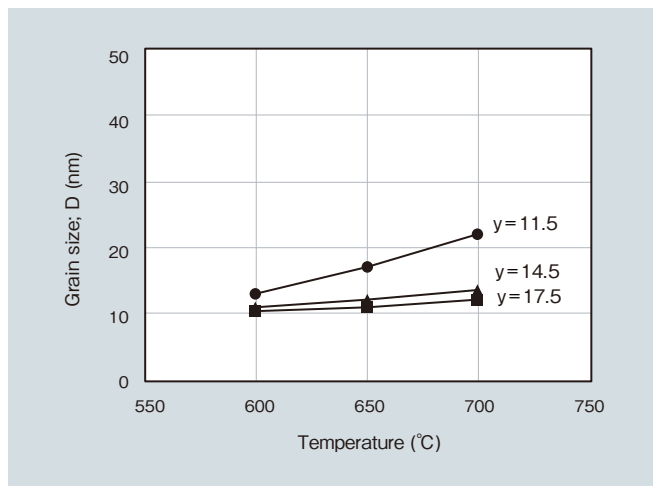


図8 加熱温度と結晶粒径の関係 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
Fig.8 Relationship between heating temperature and  $B_s$ ,  $H_c$  ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )

この結果から、SULは微結晶粒が均一に分散しており、このようなマイクロ組織とすることで優れた軟磁気特性が得られている。

Herzerによれば、リボンのように厚い軟磁性材では3次元モデルを用いて $H_c$ は結晶粒径Dの6乗、薄膜では2次元モデルを用いてDの2乗に比例して増加する<sup>8)</sup>。本実験におけるSULの膜厚は40 nmであり、リボンの一般的な厚さ(20,000 nm)の1/500の薄さである。図11は $H_c$ とDの関係であり、点線は3次元モデルまたは2次元モデルに従う場合、並びに本検討結果を添加量別にプロットしている。なお、図中のプロットは部分結晶化していると予想される $x=7$ 、金属間化合物が析出した $y=17.5$ は、結晶粒径以外の要因が $H_c$ に影響するため除外している。この結果から、本検討のSULは2次元の薄膜モデルに近く、 $H_c$ はDの3.5～1.7乗に比例しており、概ね2次元モデルに近くなっている。さらに、 $y=14.5$ ではDの1.7乗に比例しており、Dの依存性が最も小さい。このことから、開発材は600～700℃の広い加熱温度範囲で安定した低い $H_c$ が得られている。

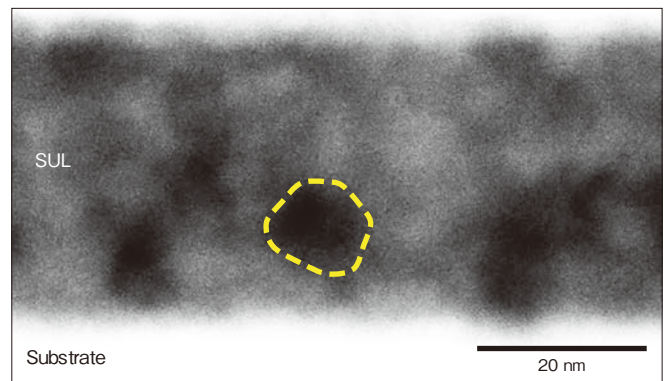


図9 700℃加熱後におけるマイクロ組織 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
Fig.9 Microstructure after 700°C heating ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )

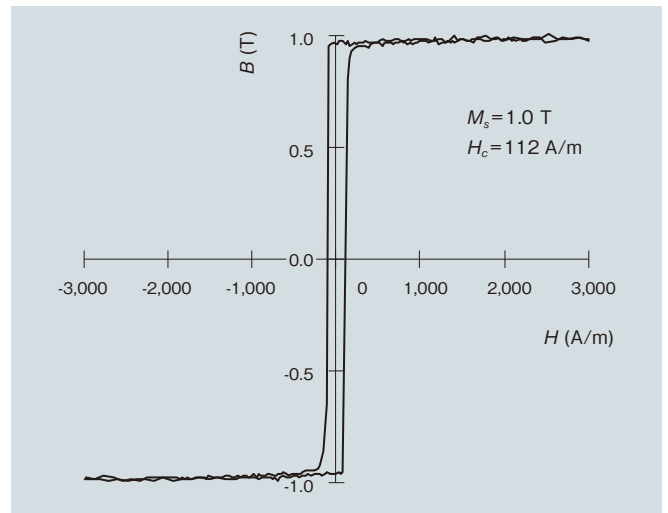


図10 700℃加熱後における $B-H$ 曲線 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
Fig.10  $B-H$  loop after 700°C heating ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )

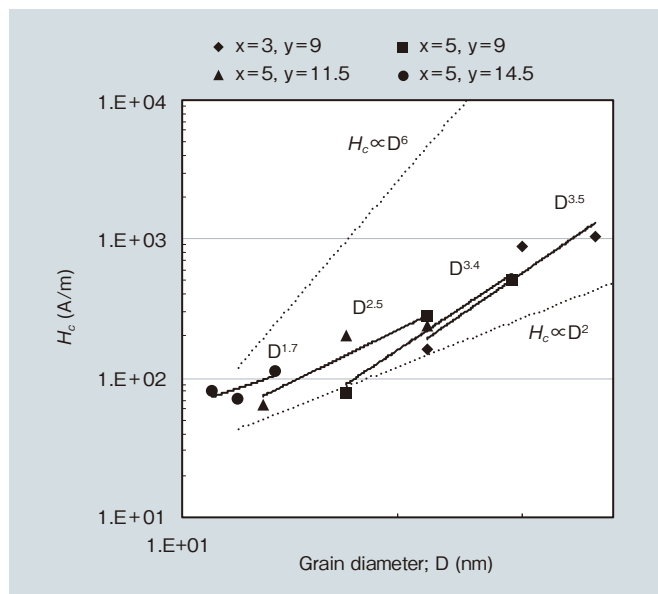


図 11 結晶粒径  $D$  と  $H_c$  の関係 ( $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_x\text{-B}_y\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$ )  
 Fig. 11 Relationship between grain size and  $H_c$

## 2.4 本項のまとめ

原子比率  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$  のターゲット材を用いて形成した SUL は、 $600 \sim 700^\circ\text{C}$  加熱後においても優れた軟磁気特性を有し、特に  $700^\circ\text{C}$  加熱後において  $B_s = 1.0 \text{ T}$ ,  $H_c = 112 \text{ A/m}$  が得られる。以上により、HAMR の記録媒体に用いる SUL 形成用ターゲット材の組成を見出すことができた。

## 3. ターゲット材の金属組織

### 3.1 要求特性

SUL は導電性のターゲット材を用いて、DC マグネトロンスパッタ法により成膜する。しかし、ターゲット材の金属組織によっては、ターゲット材のエロージョン部にノジュールと呼ばれる突起が形成され、これに起因してクラスター状の塊が SUL に付着し<sup>9)</sup>、記録媒体の品質上の問題となる。そのため、ノジュールの生成を抑制できるターゲット材組織が要求される。なお、エロージョン部とは、成膜によりターゲット材が消耗する部分のことである。

### 3.2 実験方法

ターゲット材の作製は熱間粉末焼結法とした。原料粉末に Fe, Nb, B, Si, Cu の 5 種の純元素粉末を混合した混合粉末を熱間焼結 (以下、純元素粉末混合法) および Fe-B-Si-Cu 合金ガスアトマイズ粉末と純 Nb 粉末を混合した混合粉末を熱間焼結 (以下、合金粉末混合法) し、各焼

結材からターゲット材を作製した。その後、ターゲット材をスパッタリングし、走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning Electron Microscope) を用いてエロージョン部のノジュールの有無を観察するとともに、エネルギー分散型 X 線分光法 (EDX: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) 分析を行った。

### 3.3 実験結果および考察

図 12 (a) (b) は、それぞれ純元素粉末混合法および合金粉末混合法により作製したターゲット材のエロージョン部の SEM 写真である。純元素粉末混合法では Fe, Si から成る母相中に Nb, Cu および B が点在している。また、円錐状のノジュール (黒色部) が多数観察され、頂点付近からは B のみが検出された。これは、母相を形成する Fe, Si の固溶体または金属間化合物や純 Nb や純 Cu と比較して、純 B のようなメタロイド元素は、電気抵抗が高く周囲に比べてスパッタレートが遅くなるためにノジュールが形成され、そこに電位が集中してアーク放電

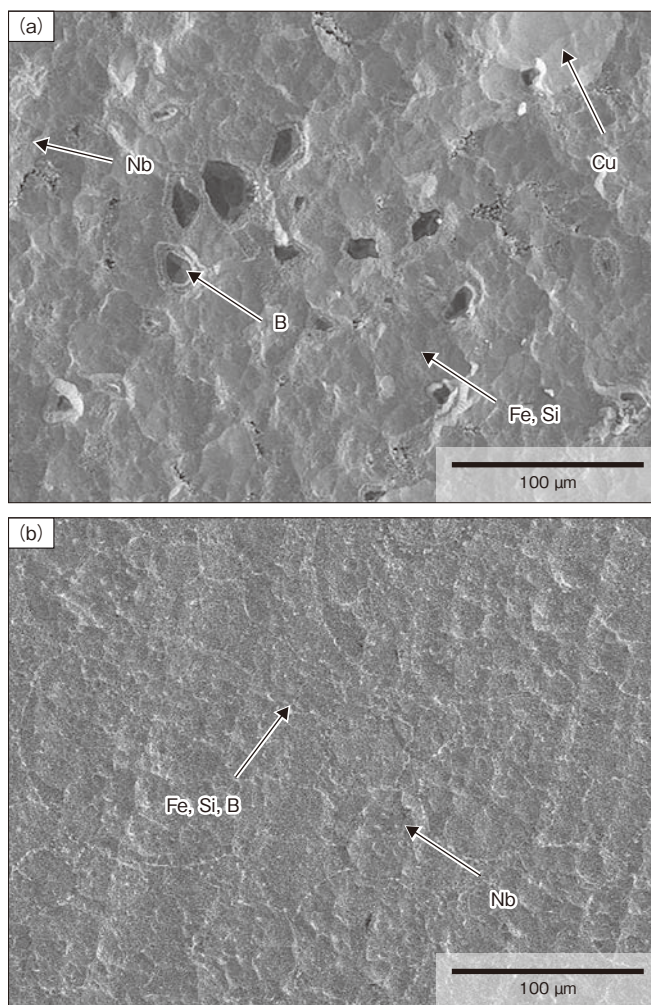


図 12 エロージョン部の SEM 写真 (a) 純元素粉末混合法 (b) 合金粉末混合法

Fig. 12 SEM images of erosion area: (a) pure powder mixing method, (b) alloy powder mixing method

を起こすとともにノジュールが破壊され、クラスター状の塊が膜に付着すると考えられる。一方で、合金粉末混合法で作製したターゲット材ではノジュールは観察されず、主に Fe, Si, B から成る母相および、純 Nb で構成されていることがわかる。なお、Cu は微量であるため検出されていない。これにより、合金粉末混合法では、B は Fe, Si との固溶体もしくは、金属間化合物として存在しており、純 B のような電気抵抗が高い相として存在しないためノジュールを抑制できると考えられる。

### 3.4 本項のまとめ

粉末焼結法によりターゲット材を作製するにあたり、原料粉末として Fe-B-Si-Cu 合金粉末と純 Nb 粉末の混合粉末を用いることで、ターゲット材の組織中に電気抵抗が高い純 B が存在しないため、ノジュールが少ないターゲット材を作製することができる。

## 4. 結言

HAMR の記録媒体に用いる SUL を形成するためのターゲット材の開発を行い、以下の結論を得た。

- (1) ターゲット材の原子比率を  $\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{-Nb}_5\text{-B}_{14.5}\text{-Si}_{13.5}\text{-Cu}_1$  とすることで、加熱後においても優れた軟磁気特性を有した SUL を得ることができる。
- (2) ターゲット材の金属組織において、B を合金化させることでノジュールの生成を抑制することができる。

## 引用文献

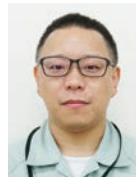
- 1) 堀内: IDEMA Japan News (2017), p.3.
- 2) 富士時報: Vol.84, No.1, (2011), p.88.
- 3) 片岡, 他: 富士時報, Vol.83, No.4, (2010), p.252.
- 4) 吉沢, 他: 日本金属学会会報, 第 28 卷, 第 4 号, (1989), p.301.
- 5) 吉沢, 他: 日本金属学会誌, 第 55 卷, 第 5 号, (1991), p.589.
- 6) 清水, 他: 日本金属学会誌, 第 78 卷, 第 9 号, (2014), p.364.
- 7) 稔野, 他: 鉄と鋼, 第 56 卷, 第 10 号, (1970), p.73.
- 8) 太田, 他: 磁気便覧, 日本磁気学会編, 丸善出版, (2016), p.235 ~ 236.
- 9) 高橋, 他: 表面技術, 50 卷, 9 号, (1999), p.15.



**矢ヶ部 秀隆**  
Hidetaka Yakabe  
日立金属株式会社  
金属材料事業本部  
冶金研究所



**太田 元基**  
Motoki Ohta  
日立金属株式会社  
金属材料事業本部  
冶金研究所  
博士 (工学)



**福岡 淳**  
Jun Fukuoka  
日立金属株式会社  
安来工場



**齊藤 伸**  
Shin Saito  
東北大学大学院 工学研究科  
電子工学専攻 教授  
博士 (工学)