銅基板の両側に Fe-Pd (引張)-Fe-Sm (圧縮) 磁歪薄膜を蒸着した三層運動素子の見掛けの磁歪とその感受率

高橋 啓 介^{1,*} 松村 義 人² 西 義 武^{1,2}

¹東海大学大学院工学研究科金属材料工学専攻

²東海大学連合大学院理工学研究科総合理工学専攻

J. Japan Inst. Metals, Vol. 70, No. 8 (2006), pp. 654–657

© 2006 The Japan Institute of Metals

Apparent Magnetostriction and Its Susceptibility of Composite Mover Device Constructed with Both Positive (Fe-Pd) and Negative (Fe-Sm) Magnetostrictive Thin Films on Each Side Surface of Copper Substrate

Keisuke Takahashi^{1,*}, Yoshihito Matsumura² and Yoshitake Nishi^{1,2}

¹Department of Metallurgical Engineering, Graduate School of Engineering, Tokai University, Hiratsuka 259-1292

²Unified Graduate School of Science and Technology, Tokai University, Hiratsuka 259-1292

Composite mover device constructed with both positive and negative magnetostrictive thin films on each side surface of copper substrate are prepared by direct current magnetron sputtering process. The magnetic field induced the mover strain (apparent magnetostriction) of composite mover film at 1200 kA/m of magnetic field is 1800 ppm and is two times larger than the sum of magnetostriction values of Fe-Pd positive and Fe-Sm negative magnetostrictive thin films.

(Received May 11, 2006; Accepted July 5, 2006)

Keywords: samarium, palladium, iron, composite, magnetostriction, susceptibility, mover film, direct current magnetron sputtering

1. 緒 言

近年、希土類-鉄系のラーベス型金属間化合物結晶が 1000 ppm を超える磁歪を示す超磁歪材料であることが広く知られ、特に Fe₂Sm や Fe₂Tb がある¹⁾。これらの超磁歪材料は PZT に代表される圧電セラミックスに比べて 10 倍～100 倍の大きな歪みを生じ、圧電セラミックスに比べて低電圧で駆動し、薄膜化が容易である。また非接触でリモートコントロールが可能であることから、マイクロデバイスとしてセンサやアクチュエータへの応用が期待されている^{2,3)}。すでに実用化されている薄膜として Terfenol-D (Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂) があり、海洋トモグラフィの低周波音源に利用されている⁴⁾。しかし、Fe₂Sm や Fe₂Tb、および Terfenol-D は耐食性が低く、大気中での放置により酸化し易く、その良好な磁歪特性を失う可能性が高い欠点がある。一方、引張(正)磁歪材料である Fe-Pd 合金は良好な耐食性を示し、低磁場での高い磁歪感受率を保持する磁歪材料である⁵⁾。

本研究グループはマグネトロンスパッタリング法により、合金薄膜を形成し、膜の組織が Thornton model の Zone T 領域において超微細な針状組織が得られ磁歪感受率が高くなることを圧縮(負)磁歪材料である Fe-Sm 合金薄膜で確認してきた⁶⁻⁹⁾。また、Fe-Tb と Fe-Sm 合金の複合薄膜素子に

ついて、単一素子として仮定した場合の見かけの磁歪感受率が向上することを確認している¹⁰⁾。そこで、本研究では引張(正)磁歪材料であり、耐食性に優れた Fe-Pd 合金薄膜と、圧縮(負)磁歪材料である Fe-Sm 合金薄膜の銅基板上への複合化に伴う磁歪とその磁歪感受率について検討を行った。

2. 実 験 方 法

Fe-Pd 合金薄膜および Fe-Sm 合金薄膜の成膜には DC マグネトロンスパッタリング装置を用いた。Fe-Pd 合金薄膜作製時のターゲットは Fe 板 (99.9%) 上に Pd チップ (99.9%) を導電性樹脂により接着したチップターゲットを使用した。Fe-Sm 合金薄膜作製時のターゲットは Fe 板 (99.9%) 上に Sm チップ (99.9%) を導電性樹脂により接着したチップターゲットを用いた。組成は Fe 板上に貼り付ける Pd チップおよび Sm チップの量を変えることにより制御した。Fe-Pd 合金薄膜の成膜条件は残留ガス圧 3.0×10^{-4} Pa, スパッタリングガスはアルゴン(純度 5N)でスパッタガス圧 0.2, スパッタ電力 200 W, 成膜時間 3.6 ks, 基板-ターゲット間距離 90 mm, 基板温度は 423 K にて成膜を行った。一方で、Fe-Sm 合金薄膜の成膜条件は残留ガス圧 2.4×10^{-4} Pa, スパッタリングガスは Fe-Pd 合金薄膜作製時と同様にアルゴンを用いてスパッタガス圧 0.5, スパッタ電力 200 W, 成膜時間 3.6 ks, 基板-ターゲット間距離 90 mm, 基板温度は 423 K にて成膜を行った。

* 東海大学大学院生 (Graduate Student, Tokai University)

基板には板厚 50 μm の銅板(99.9%)を用いた. この基板の両面のそれぞれに, Fe-Pd 合金薄膜および Fe-Sm 合金薄膜を成膜した.

組成分析はエネルギー分散型 X 線分光法(EDX)を用いた. 組成分析の結果, Fe-39.5 at%Pd と Fe-27.0 at%Sm の合金の薄膜であった. 構造解析には薄膜 X 線回折装置を用い X 線の入射角度(α)を 0.5° 一定にした α - 2θ 法で行った. 膜厚測定は表面形状測定装置を用いた. 膜厚は Fe-Pd 合金薄膜が $2.3 \pm 0.3 \mu\text{m}$, Fe-Sm 合金薄膜が $2.7 \pm 0.2 \mu\text{m}$ であった. 磁歪測定は光挺子法を用い, 面内方向に $\pm 1200 \text{ kA/m}$ の磁場を印加して測定を行った.

磁歪は光挺子法に適用される式(1)を用いて算出した¹¹⁾.

$$\lambda_{//} = \frac{d \cdot t_s^2 \cdot E_s (1 + \nu_s)}{3 t_f \cdot L_0^2 \cdot E_f (1 - \nu_f)} \quad (1)$$

式中の d は次の式(2)で求められる値である.

$$d = \frac{L_0 \cdot D_0}{2L} \quad (2)$$

この式で, L_0 は固定端から反射ビームスポットまでの距離(m), D_0 は反射ビームスポットの移動距離(m), そして L は試料から測定器までの距離(m)である. なお, 複合運動素子については, 二種類の磁歪薄膜が, 同一面に存在し, 同一運動を行うと仮定した. すなわち, 式(1)の t_s と t_f は基板厚さ($5.0 \times 10^{-5} \text{ m}$)と Fe-Pd 合金および Fe-Sm 合金の薄膜における厚さ($2.3 \times 10^{-6} \text{ m}$, $2.7 \times 10^{-6} \text{ m}$)の和, E_s と E_f は銅基板のヤング率(110 GPa)と Fe-Pd 合金および Fe-Sm 合金薄膜のヤング率(113.75 GPa, 40 GPa)¹²⁾の平均値, ν_s と ν_f は銅基板のポアソソ比(0.348)と Fe-Pd 合金および Fe-Sm 合金薄膜のポアソソ比の平均値を 0.4 であると仮定して計算を行った¹⁰⁾.

3. 実験結果

3.1 Fe-Pd 合金と Fe-Sm 合金薄膜の磁歪

Fig. 1 に別々の銅板上に蒸着された Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の印加磁場 1200 kA/m までの磁歪の関係を示す. Fe-Pd 合金薄膜は, 印加磁場 1200 kA/m において約 200 ppm の磁歪を示し, シリコン基板上に蒸着した場合¹³⁾と比較して小さかった. 一方で, Fe-Sm 合金薄膜は印加磁場 100 kA/m まで急激に収縮し, 200 kA/m 付近において最大の $850 \pm 50 \text{ ppm}$ の圧縮(負)磁歪値を得た. 一方, 印加磁場 1200 kA/m まで圧縮磁歪の値は小さくなり, 約 700 ppm の圧縮磁歪を示した.

3.2 複合磁歪薄膜の組織

Fig. 2 に Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜各試料の室温における XRD 回折図形を示す. なお, 参考のため図の上方に ICDD カードのピーク強度比を示す¹⁴⁾.

この結果, Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜各試料において銅基板上の Fe-Pd 合金薄膜には, fcc(111)面に強く配向した相と弱いピークの fct(002)相の二相が共存していることが確認できた. Fe-Sm 合金薄膜では大きな結晶ピークが観察されず, アモルファス構造特有の X 線回折パターン

Fig. 1 Magnetic field dependent magnetostriction curves of Fe-Pd (Δ) and Fe-Sm ($\square$) films, respectively.

Fig. 2 XRD patterns of Fe-Pd and Fe-Sm alloy films, respectively.

を確認した. 但し, このアモルファス相はガラス構造と断定するわけではなく, 結晶ピークが確認できない程度の微結晶構造, または微結晶を含む可能性もある. なお, EDX 面分析結果の範囲では偏析や濃度揺らぎは観察されず, 試料中の元素濃度の分布は均質であった.

3.3 複合磁歪薄膜の見掛けの超磁歪

Fig. 3 に Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の複合薄膜運

Fig. 3 Magnetic field dependent apparent magnetostriction (λ) values of composite film ($\circ$), Fe-Pd ($\triangle$) and Fe-Sm ($\square$) films, respectively. Composite experimental value ($\bullet$) is for calculated sum of magnetostriction values of Fe-Pd ($\triangle$) and Fe-Sm ($\square$) films, respectively.

動素子の磁場印加により誘起された運動歪(見かけの磁歪)の結果を示す。

50 kA/m 以下の磁場における複合薄膜の見かけの磁歪は、Fe-Pd 合金薄膜および Fe-Sm 合金薄膜両方の磁歪の平均値以下である。50 から 300 kA/m の印加磁場で複合薄膜運動素子の運動歪は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪の平均より大きくなる。さらに、印加磁場が 300 kA/m をこえると複合薄膜運動素子の見掛けの磁歪である運動歪は 1200 kA/m で 1800 ppm に到達した。

4. 考 察

4.1 複合化と見掛けの超磁歪

印加磁場 1200 kA/m において、シリコン基板を用いた場合に比べ¹³⁾、Fig. 3 に見られる銅基板上に蒸着した Fe-Pd 合金薄膜は約 200 ppm の小さい磁歪を示した。これは、熱膨張係数がシリコンに比較して大きな銅に蒸着しているため。スパッタ中に温度上昇し、冷却する際に基板中に圧縮内部応力が生じ、その結果、最大磁歪量が減少する可能性がある。さらに、基板の銅が印加磁場により反磁性を示し、隣接する Fe-Pd 合金薄膜の磁化率が低下し、磁歪も低下する可能性も否定できない。

一方で、Fe-Sm 合金薄膜の圧縮磁歪特性が極大値を示した後、緩やかに減少している。この現象は、280 μm のシリコン基板に対し 50 μm と薄い銅基板を用いているために、圧縮磁歪が基板の反りを、より大きくする効果が働いている可能性がある。さらに、本研究においては、膜面内に磁化により生じた試料の反りを測定している。このため、磁場の増加により磁歪による変形量が大きくなり基板の反りが大きくなった結果、膜面内を通る磁束が減少して見かけ上の圧縮磁歪が減少することも理由である可能性がある。なお、こ

の現象も反磁性を示す銅基板が、隣接する Fe-Sm 合金薄膜の磁化率を低下させ、磁歪を低下させる可能性も否定できない。

Fig. 3 の結果から、50 kA/m 以下の低磁場における複合磁歪薄膜の見かけの磁歪は以下のように説明した。複合磁歪薄膜の低磁場での見掛けの磁歪は、Fe-Pd 合金薄膜および Fe-Sm 合金薄膜双方の磁歪の平均値に近く、低い値を示す。このことから、複合化することで単純に磁歪を足した値にはならないことが明らかになった。よって引張(正)-圧縮(負)磁歪材料の複合運動素子を製造する際は、それぞれの磁気特性を考慮しなければならない。

Fe-Sm 合金薄膜は Fe-Pd 合金薄膜にくらべ飽和磁歪量が非常に大きいことから、内部応力の磁気異方性への寄与が大きく無視できない。したがって、磁気弾性エネルギーが磁気特性に大きく影響を与える¹⁵⁾。このため、正磁歪材料である Fe-Pd 合金薄膜が基板に対して与える圧縮内部応力は基板の反対面に存在する Fe-Sm 合金薄膜に対して引張内部応力として働き、負(圧縮)磁歪材料である Fe-Sm 合金薄膜に対して引張内部応力が付加された結果、面内磁気異方性が減少し、低磁場での磁歪が減少はするものの、飽和磁歪が増加した可能性が高い¹⁶⁾。なお、微小磁場では、複合磁歪膜中の銅基板が磁場印加により反磁性を示し、外側に隣接する Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の磁化率が低下すれば、見掛けの磁歪低下に寄与することも完全には否定できない。

さらに、50 から 300 kA/m の印加磁場で複合薄膜運動素子の運動歪は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪の平均値から和に相当する値に遷移し、印加磁場が 300 kA/m をこえると複合薄膜運動素子の見掛けの磁歪である運動歪($\circ$)は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪の和($\bullet$)をはるかに越え、Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜における磁歪の総和値の倍となり、1200 kA/m の磁場において、この実験値は 1800 ppm に到達した。

これは磁場印加が強くなるに従い、外側に隣接する Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の磁化率が増大し、内側に挟んだ銅基板の反磁性の磁化率も増大する。もし、大きな磁場が印加されると、複合薄膜運動素子の強磁性合金薄膜と中心部の銅基板に磁気回路が形成され、磁極が消え、外部に磁界が放出され難くなるために、磁化率が大きくなれば、見掛けの磁歪が巨大な値である 1800 ppm になることに寄与する可能性がある。すなわち、複合磁歪薄膜素子中への銅基板の内蔵が巨大な磁歪を誘起した理由となり得る可能性がある。

実際は銅板を挟み、両面にそれぞれの合金の薄膜層が複合運動素子の磁場による運動作用を発現しており、Fe-Pd 合金薄膜は引張応力を銅板に与え、Fe-Sm 薄膜は圧縮応力を銅板に与えている。しかしながら、本研究では、複合運動素子の見掛けの磁歪を式(1)で算出するために、二種類の磁歪薄膜が、同一面上に存在し、同一運動を行うと仮定している。この仮定では磁歪による作用力が加算され、磁歪も加算されることから、現状では比較的実態に近い状態である。しかし、磁場により運動した状態において、Fe-Pd 合金薄膜では引張応力が働くためヤング率は低下し、Fe-Sm 合金薄膜では圧縮応力によりヤング率は高まる可能性が高い。さら

Fig. 4 Applied magnetic field dependent magnetostrictive susceptibility of composite film (○), Fe-Pd (△) and Fe-Sm (□) films, respectively. Composite experimental value (●) is for calculated sum of magnetostriction susceptibility values of Fe-Pd (△) and Fe-Sm (□) films, respectively.

に試料厚さだけでなく、ポアソン比の磁場依存性も十分推定できる。これらのことから、式(1)の E_s , t_s と v_s の値が複合素子の磁歪の値に大きな影響を与える可能性があることは否定できない。さらに、2つの界面に分散し接触する引張(正)と圧縮(負)の磁歪を、同一符号(方向)の一界面で計算することは、必要以上に大きな応力を界面で伝達することになる。そのため大きな磁場印加時の超磁歪状態では、特に大きな誤差の原因になりうるので、注意深い検討が必要であり、磁歪算出方法の根本的な研究が待たれる。

4.2 複合磁歪薄膜の磁歪感受率

Fig. 4に Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の各磁歪感受率、Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の磁歪感受率の相加値(●)、および複合薄膜各試料の磁歪感受率(○)を示す。磁場の印加によりいずれの試料も磁歪感受率が小さく零に近づくことがわかる。50 kA/m までの微小印加磁場では Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪感受率の和は複合薄膜運動素子の見掛けの磁歪感受率より高い。

正磁歪材料である Fe-Pd 合金薄膜が基板に対して与える圧縮応力は基板の反対面に存在する Fe-Sm 合金薄膜に対して引張内部応力として働く。負磁歪材料である Fe-Sm 合金薄膜に対して引張応力が加わった結果、面内磁気異方性が減少し、低磁場での磁歪感受率が鈍くなる。さらに、微小磁場では複合薄膜運動素子中の銅基板の反磁性により外側の磁歪薄膜の磁化率が低下し、磁歪感受率が鈍くなる。

Fig. 4を参照すると、約 40 kA/m の印加磁場で複合薄膜運動素子の磁歪感受率は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪感受率の和に対応することを確認した。印加磁場が 40 kA/m 以上での複合薄膜運動素子の見掛けの磁歪感受率は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪感受率の和より明らかに高いことがわかる。

圧縮(負)磁歪材料である Fe-Sm 合金薄膜に対して引張応力が加わった結果、面内磁気異方性が減少することで、複合磁歪薄膜の磁歪感受率が各磁歪薄膜の感受率の和より高くなる。一方、磁場印加が強くなるに従い、外側に隣接する Fe-

Pd 合金薄膜と Fe-Sm 合金薄膜の磁化率が増大し、内側に挟んだ銅基板の反磁性の磁化率も増大する。しかし、大きな磁場が印加されると、複合薄膜運動素子の強磁性合金薄膜と中心部の銅基板に磁気回路が形成され、磁極が消え、外部に磁場が放出され難くなるために、磁化率が大きくなり、磁歪が増大する可能性も完全には否定できない。

5. 結 言

DC マグネトロンスパッタリング装置を用い、Fe-Pd 正磁歪合金薄膜と Fe-Sm 負磁歪合金薄膜を銅基板上に蒸着、運動機能素子を作製し、磁場印加により誘起された運動歪(見かけの磁歪)と磁歪感受率を評価した。50 kA/m 以下の印加磁場における複合薄膜の見かけの磁歪は、Fe-Pd 合金薄膜および Fe-Sm 合金薄膜両方の磁歪の平均値である。50 から 300 kA/m の印加磁場で複合薄膜運動素子の運動歪は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪の平均から和に遷移することを確認した。さらに、印加磁場が 300 kA/m をこえると複合薄膜運動素子の見掛けの磁歪である運動歪は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜の磁歪の和をはるかに越え、1200 kA/m で 1800 ppm に到達した。この実測値は Fe-Pd 合金薄膜と Fe-Sm 薄膜における磁歪の和の倍である。

複合磁歪薄膜素子中への Fe-Pd 合金薄膜が基板に対して与える圧縮応力が基板の反対面に存在する Fe-Sm 合金薄膜に対して引張内部応力として働き、巨大な磁歪を誘起した可能性が高い。

研究の遂行に協力いただいた東海大学工学部材料科学科 中野 良学士(現在：東海大学大学院工学研究科金属材料工学専攻)に感謝の意を表する。

文 献

- 1) A. E. Clark and H. S. Belson: Phys. Rev. **B5**(1972) 3642-3644.
- 2) Y. Hayashi and T. Honda, M. Yamaguchi and K. I. Arai: The Paper of Technical Meeting on Magnetism IEE Japan **MAG-93**(1993) 95-102.
- 3) J. J. Rhyne, S. J. Pickart and H. Alperin: Phys. Rev. Lett. **29**(1972) 1562.
- 4) I. Nakano: J. Jpn. Soc. Precision Eng. **60**(2001) 1711.
- 5) H. Yabe and Y. Nishi: Jpn. J. Appl. Phys. **42**(2003) 96-99.
- 6) A. Kadowaki, Y. Tsukayama, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 233-236.
- 7) A. Kadowaki, K. Takahashi, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 373-376.
- 8) A. Kadowaki, S. Masuda, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 377-379.
- 9) K. Takahashi, S. Masuda, Y. Tsukayama, A. Kadowaki, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 671-675.
- 10) S. Masuda, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **70**(2006) 166-168.
- 11) Andrew C. TAM, Senior Member, IEEE and Holger Schroeder: IEEE transactions on magnetism **25**(1989) 2629-2637.
- 12) A. E. Clark in E. P. Wohlfarth(ed): Ferromagnetic materials **1**, Chap. 7. (North-Holland, Amsterdam, 1980).
- 13) H. Yabe and Y. Nishi: J. Iron. Steel. Inst. **89**(2003) 93-98.
- 14) ICCD Card No. FePd : 02-1440, Cu : 04-0836.
- 15) S. Tsunashima, H. Takagi, K. Kamegaki, T. Fuji and S. Uchiyama: IEEE Trans. Magn. **MAG-14**(1978) 844-846.
- 16) F. Schatz, M. HirScher and M. Schnell: J. Appl. Phys. **76**(1994) 5380-5382.