Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁場誘起運動に及ぼす Al 基板厚さ依存性

中野 良^{1,*} 松村 義人² 西 義武^{1,2}

¹東海大学大学院工学研究科

²東海大学大学院理工学研究科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 72, No. 5 (2008), pp. 371-375

© 2008 The Japan Institute of Metals

Thickness Dependence of Aluminum Substrate on Magnetic Field Induced Bending Motion of Compressive Magnetostrictive Fe_{2.4}Sm Alloy Film

Ryo Nakano^{1,*}, Yoshihito Matsumura² and Yoshitake Nishi^{1,2}

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

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

Thickness dependence of aluminum substrate on magnetic field induced bending motion of Fe_{2.4}Sm alloy thin film prepared by direct current magnetron sputtering process was investigated. The residual gas pressure before argon sputtering and the sputtering pressure of argon gas (5 N) were less than 3.3×10^{-4} Pa and 2.0×10^{-1} Pa, respectively. The thickness of the Fe_{2.4}Sm films deposited was about 2.1 μ m. Bending motion of Fe_{2.4}Sm alloy film largely depended on substrate thickness. The large bending motion induced by magnetic field and its high susceptibility were found in the compressive magnetostrictive Fe_{2.4}Sm alloy film on aluminum thin sheet.

(Received November 22, 2007; Accepted February 12, 2008)

Keywords: compressive magnetostriction, susceptibility, aluminum, iron-samarium, direct current magnetron sputtering

1. 緒 言

磁性材料の磁歪効果が発見された当初は、振動子材料や音響変換機として研究が盛んであったが、磁歪が 10 ppm 程度と小さく、応用範囲が狭いため、現在では PZT などの圧電材料が高感度運動機能材料として実用化されている¹⁾。しかし近年、希土類-鉄系 RFe₂ 構造を持つ金属間化合物系合金結晶が 1000 ppm 以上の超磁歪を示すことが知られている²⁾。超磁歪材料は、高い応答性、大きな発生応力、低電圧駆動が可能、さらに駆動には磁場を用いるため非接触でリモートコントロールが可能である特徴も有し、次世代のセンサーやアクチュエータへの応用も強く期待されている³⁻⁵⁾。その中でも圧縮(負)磁歪合金である FeSm 合金薄膜は低印加磁場での圧縮磁歪を示す⁶⁾。

マグネトロンスパッタ法は薄膜作製方法として工業的に広く用いられている方法の一つである。スパッタガス圧や基板温度に関連した成膜条件を変えることで、作製した薄膜の組織が変化することが知られている⁷⁾。さらに、我々は今までに、超磁歪材料が薄膜運動機能素子としても優れた特性を示すことを報告してきている⁸⁻¹³⁾。

一般に、Fe-Sm 超磁歪合金薄膜の基板はシリコンを用

い、複合化し、曲げ運動を評価してきた¹¹⁻¹³⁾。しかし、実用化を考え、大きな運動を得るためには、シリコンよりも、剛性の低い基板材料を用いることも効果的な手法として考えられる。このことにより、磁場による曲げ運動に対する変形抵抗が小さくなり、大きな運動が得られる可能性がある。そこで本研究では、基板材料を現在使用しているシリコンに比べて剛性の低い、アルミニウムを基板として用いた。さらに、基板厚さを変化することにより、Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁場により発現する磁化が誘起する圧縮運動歪と、その感度に関するアルミニウム基板の厚さ依存性を検討することを目的とした。

2. 実 験 方 法

試料作製には DC マグネトロンスパッタリング法を用いた。ターゲットには純度 99.8%、直径 75 mm、厚み 3 mm の Fe₂Sm 合金ターゲットを使用した。Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の成膜条件は到達真空度 3.3×10^{-4} Pa 以下、スパッタリングガスはアルゴン(純度 5 N)でアルゴンガス圧 0.1 Pa、スパッタ電力 100 W、成膜時間 3.6 ks、基板-ターゲット間距離 60 mm、基板温度 423 K で行った。これは最も大きな磁歪が得られる基板温度、スパッタリングガス圧の成膜条件を参考に決定した⁸⁻¹³⁾。

基板にはシリコンと、アンカー効果を得るためにエメリー

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

紙 2000 番で表面を研磨したアルミニウム板 (99.9 mass%) を用いた。基板厚さは、シリコンが 280 μm 、アルミニウムが 100, 200, 300 μm とした。組成分析はエネルギー分散型 X 線分光法 (EDS: EMAX-5770, HORIBA) を用いた。構造解析には薄膜 X 線回折装置 (XRD: Cu K α 線; X'Part-MRD, PHILIPS) を用いた。膜厚測定は表面形状測定装置 (DEKTAK³, 日本真空株式会社) を用いた。磁歪測定は光格子法を用い、面内方向に ± 1.2 MA/m の磁場を印加した。

3. 実験結果

Fig. 1 にシリコンと厚さの異なるアルミニウム基板上に蒸着された $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜におけるまでの印加磁場と角度の関係を示す。なお角度 α は、後述の式 (4) にて与えられるパラメータ d を $\tan^{-1} d$ にて求めた値である。アルミニウム基板上に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、印加磁場 400 kA/m において基板厚さ 100 μm で 3.1 mrad, 200 μm で 2.3 mrad, 300 μm で 1.1 mrad の角度となり、基板厚さが薄いほど角度が大きいことを確認した。また、シリコン基板上に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、0.4 mrad となった。この結果、アルミニウム 100 μm の薄い基板を用いた $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金運動機能薄膜では磁場により誘起された運動が大きく、それに比べてアルミニウム 200 μm と 300 μm 、シリコン基板 280 μm の厚い基板を用いた運動機能薄膜では磁場により誘起された運動が非常に小さいことが、直接的にわかる。

Fig. 2 に Al 基板厚さ 100 μm , 200 μm , 300 μm , Si 基板厚さ 280 μm における $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜の X 線回折図を示す。なお、参考のために図上方に ICDD カードの結晶ピーク強度比を示す¹⁵⁾。Fig. 2 より、アルミニウム以外、特に大

きな結晶ピークは観察されず、アモルファス構造特有の X 線回折パターンを確認した。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、又は微結晶を含む可能性もある。この結果より、残留ガス等に由来する Sm_2O_3 等の酸化物結晶相が観察されず、磁歪に及ぼす酸化物の影響はほとんど無いと考えられる¹¹⁾。

4. 考 察

4.1 磁場誘起運動歪のアルミニウム基板厚さ依存性

$\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜をアルミニウム基板上に蒸着した薄膜運動素子試料全体の磁場が誘起した運動歪を次式から算出した。

$$\varepsilon_M = \frac{\eta}{\rho} \quad (1)$$

η は中立面からの距離、 ρ は中立面までの曲率半径で、次式より求められる値である。

$$\eta = \frac{t_s + t_f}{2} \quad (2)$$

$$\rho = R + \frac{t_s + t_f}{2} \quad (3)$$

t_s , t_f はそれぞれ基板および薄膜の厚さである。

また、 R は曲率半径であり、次式より求められる。

$$R = \frac{l^2 + d^2}{2d} \quad (4)$$

l は固定端から反射ビームスポットまでの距離、 d は試料の反り角である。

さらに基板の変形抵抗を R_d とし、次式を用いて算出した。

$$R_d = G_S \times t_s \quad (5)$$

Fig. 1 Magnetic field dependent apparent angle (α) of $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ on Al substrate of each thickness of 100 μm ($\circ$), 200 μm ($\triangle$) and 300 μm ($\diamond$), respectively, together with Si ($\square$) substrate of 280 μm in thickness.

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ film prepared on substrate of each thickness of 280 μm (Si), 100 μm (Al), 200 μm (Al) and 300 μm (Al), respectively, together with standard X-ray references of ICDD cards.

ここで G_s は基板の剛性率であり次式により求められる。

$$G_s = \frac{E_s}{2(1 + \nu_s)} \quad (6)$$

なお E_s は基板のヤング率, ν_s は基板のポアソン比である。

Fig. 3 に曲率半径より算出した磁場誘起運動歪(磁場印加により誘起された運動歪)を示す。Fig. 3 より磁場誘起運動歪は基板厚さが薄くなるほど磁場誘起運動歪が大きくなることを確認した。アルミニウム基板上に成膜した Fe_{2.4}Sm 合金薄膜は、印加磁場 400 kA/m において基板厚さ 100 μm で 53 ppm, 200 μm で 25 ppm, 300 μm で 16 ppm, シリコン 280 μm の基板上に成膜した Fe_{2.4}Sm 合金薄膜は、6 ppm の磁場誘起運動歪を示した。基板の厚さを薄くすると、曲げ変形抵抗力が小さくなり、予想どおり、運動機能薄膜素子の磁場誘起運動歪が増大した。

4.2 磁歪のアルミニウム基板厚さ依存性

Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪(λ)は光楕子法に適用される次式を用いて算出される場合が多い¹⁴⁾。

$$\lambda_{//} = \frac{d \cdot t_s^2 \cdot E_s (1 + \nu_f)}{3 t_f \cdot l^2 \cdot E_f (1 - \nu_s)} \quad (7)$$

前式中の d は次式で求められる値である。

$$d = \frac{lD}{2L} \quad (8)$$

これらの式で、 l は固定端から反射ビームスポットまでの距離(1 mm), D は反射ビームスポットの移動距離(最大 9.2 mm), そして L は試料から測定器までの距離(1.45 m)である。式(7)の t_s と t_f はアルミニウム基板厚さ(100, 200, 300 μm)と Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の厚さ(2.1 μm), E_s と E_f はアルミニウム基板のヤング率(69 GPa)と FeSm 薄膜のヤング率(40 GPa), ν_s と ν_f は基板のポアソン比(0.33)と FeSm 薄膜のポ

アソン比(0.40)である^{16,17)}。また、シリコン基板の厚さは $280 \pm 20 \mu\text{m}$, ヤング率は 130 GPa, ポアソン比は 0.28 である¹⁸⁾。なお Fe_{2.4}Sm 合金薄膜には、バルクのヤング率とポアソン比を用いているが、バルクと薄膜という差以外はほとんど同じと仮定して考察している。

Fig. 4 に、磁歪の計算結果を示す。印加磁場 400 kA/m においてアルミニウム基板厚さ 100 μm で 2900 ppm, 200 μm で 2800 ppm, 300 μm で 2700 ppm の磁歪を確認した。厚さ 280 μm のシリコン基板上に成膜した Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪が、印加磁場 400 kA/m において 1350 ppm であるのに比べ、アルミニウム基板上に成膜した Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪は大きく発現したことがわかる。これは、シリコン基板はヤング率が高いため磁歪が発現しにくいのに対し、アルミニウム基板はヤング率が低いため、より大きな磁歪が発現できると説明した。さらにアルミニウム基板の表面粗さによりアンカー効果が得られたため、Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪の力が、より基板に伝わった可能性も否定できない。なお、シリコン基板の表面粗さは、最低谷底から最大山頂までの高さ(最大高さ)が 0.024 μm , アルミニウム基板の表面粗さは 100 μm で 1.0 μm , 200 μm で 0.8 μm , 300 μm で 1.0 μm であった。さらに、負磁歪材料として 2100 ppm の大きな磁歪を示す Fe₂Sm 単結晶よりも大きな磁歪を示すことを確認した¹⁹⁾。

基板厚さ変化により、磁歪の値は大きく変わらない結果が得られている。さらに、どの基板厚さの試料においても、印加磁場 400 kA/m で磁歪はほぼ飽和していた。これは、磁歪薄膜を拘束しているのは柔らかいアルミニウム基板の表面のみであり、アルミニウム基板の柔らかさにより磁歪薄膜が自由に磁歪運動することを示している。これに対し、磁場誘起運動歪は試料全体の歪を曲率半径から算出しているため、

Fig. 3 Magnetic field dependent magnetic field induced strain (ϵ_M) of Fe_{2.4}Sm on Al substrate of each thickness of 100 μm ($\circ$), 200 μm ($\triangle$) and 300 μm ($\diamond$), respectively, together with Si ($\square$) substrate of 280 μm in thickness.

Fig. 4 Magnetic field dependent magnetostriction (λ) of Fe_{2.4}Sm on Al substrate of each thickness of 100 μm ($\circ$), 200 μm ($\triangle$) and 300 μm ($\diamond$), respectively, together with Si ($\square$) substrate of 280 μm in thickness.

現実の素子全体の運動を評価し、基板厚さによる依存性が見られたと考えている。すなわち、運動機能薄膜素子として実際に用いる場合、実際の運動変位は Fig. 1 の運動角度の変化や Fig. 3 の磁場誘起運動歪が近く、実際の機器では重要である。

4.3 磁歪感受率と磁場誘起運動歪感受率のアルミニウム基板厚さ依存性

Fig. 4 の磁歪曲線の傾きから運動機能素子の感度の指標になる磁歪感受率を計算した。Fig. 5 に基板厚さの異なる $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜の磁歪感受率の印加磁場 300 kA/m までにおける磁場依存性を示す。アルミニウム基板に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、印加磁場 20 kA/m において磁歪感受率は最大となり、100 μm で 25 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 200 μm で 27 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 300 μm で 23 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 280 μm のシリコン基板に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、20 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$ の磁歪感受率を確認した。また 160 kA/m の印加磁場で零に近づくことを確認した。

一方、Fig. 3 の磁場誘起運動歪曲線の傾きから運動機能素子の感度の指標になる磁場誘起運動歪の感受率を計算した。Fig. 6 に基板厚さの異なる $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜の磁場誘起運動歪に関する感受率の印加磁場 300 kA/m までにおける磁場依存性を示す。印加磁場 20~60 kA/m において磁場誘起運動歪の感受率が最大となる。アルミニウム基板に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、印加磁場 20 kA/m において基板厚さ 100 μm で 0.39 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 200 μm で 0.22 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 300 μm で 0.12 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 280 μm シリコンの基板に成膜した $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜は、0.08 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$ の磁場誘起運動歪感受率を示した。また、磁歪感受率と同様に、

160 kA/m の印加磁場で零に近づくことを確認した。さらに、Fig. 6 の磁場誘起運動歪の感受率では基板厚さが薄くなるほど値が大きくなることを確認した。これは、アルミニウムの板厚の低下に伴い、変形抵抗が低下したことによる。

磁歪では膜のみの歪を求めているので、基板厚さの影響がほとんど見られなかったと考察した。

一方、磁場誘起運動歪は複合薄膜の運動歪を求めているので、基板厚さの減少に伴い、基板の曲げ変形抵抗が減少し、磁場誘起運動歪が増加したと考察した。

磁歪と磁場誘起運動歪感受率は印加磁場 20~60 kA/m の時に最大となり 160 kA/m の印加磁場で零に近づくことを確認した。磁歪感受率では基板厚さによる大きな差は見られなかったが、磁場誘起運動歪感受率については基板厚さが薄いほど大きな値を示すことを確認した。

以上の結果よりアルミニウムを基板に用いることは、 $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 合金薄膜の特徴である高感受率、高磁歪を維持したまま、大きな磁場誘起運動歪を得ることを確認した。また、新たに磁場誘起運動歪とその感受率を用いて評価したことにより、磁歪材料の評価だけでなく、デバイスに用いる際の設計指標を提案した。

5. 結 論

DC マグネトロンスパッタリング装置を用い、 $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ 負磁歪合金薄膜を厚さの異なるアルミニウム基板上に蒸着し、運動機能薄膜素子を作製した。磁場印加により誘起された膜のみの運動歪である磁歪と、現実の機構設計因子に必要な試料全体の運動である磁場誘起運動歪を算出し、さらにそれぞれの感受率を計算し、検討した。1 MA/m の印加磁場にお

Fig. 5 Applied magnetic field dependent magnetostrictive susceptibility ($d\lambda_{//}/dH$) of $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ on Al substrate of each thickness of 100 μm ($\circ$), 200 μm ($\triangle$) and 300 μm ($\diamond$), respectively, together with Si ($\square$) substrate of 280 μm in thickness.

Fig. 6 Applied magnetic field dependent magnetic field induced strain ($d\epsilon_M/dH$) susceptibility of $\text{Fe}_{2.4}\text{Sm}$ on Al substrate of each thickness of 100 μm ($\circ$), 200 μm ($\triangle$) and 300 μm ($\diamond$), respectively, together with Si ($\square$) substrate of 280 μm in thickness.

いて、基板厚さにより Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪 λ に大きな差は見られないことを確認した。しかし、印加磁場 1 MA/m における Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁場誘起運動歪については、基板厚さが薄くなるほど磁場誘起運動歪が大きくなることを確認した。

印加磁場 1 MA/m において磁歪はアルミニウムの基板厚さ 100 μm で 2935 ppm, 200 μm で 2858 ppm, 300 μm で 2818 ppm, 磁場誘起運動歪は基板厚さ 100 μm で 53 ppm, 200 μm で 26 ppm, 300 μm で 17 ppm を示すことを確認した。

これはアルミニウム基板を研磨したことにより得られた表面粗さによってアンカー効果が得られたため、Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の磁歪の力が、シリコン基板に比べて、より伝わった可能性があることだけでなく、アルミニウムの低い弾性率が変形抵抗を低下させ運動歪を増大させたと説明した。

また、磁歪では膜のみの歪を求めているので、基板厚さの影響がほとんど見られなかったと考察した。

一方、磁場誘起運動歪は複合薄膜の運動歪を求めているので、基板厚さの減少に伴い、基板の曲げ変形抵抗が減少し、磁場誘起運動歪が増加したと考察した。

磁歪と磁場誘起運動歪の感受率は印加磁場 20~60 kA/m の時に最大となり 160 kA/m の印加磁場で零に近付くことを確認した。磁歪感受率では基板厚さによる大きな差は見られなかったが、磁場誘起運動歪感受率については基板厚さが薄いほど大きな値を示すことを確認した。印加磁場 20 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$ において磁歪感受率はアルミニウム基板厚さ 100 μm で 25 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 200 μm で 27 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 300 μm で 23 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 磁場誘起運動歪感受率は基板厚さ 100 μm で 0.39 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 200 μm で 0.22 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$, 300 μm で 0.012 ppm/kA $\cdot\text{m}^{-1}$ を示すことを確認した。

以上の結果よりアルミニウムを基板に用いることは、

Fe_{2.4}Sm 合金薄膜の特徴である高感受率、高磁歪を維持したまま、大きな磁場誘起運動歪を得ることを確認した。また、新たに磁場誘起運動歪とその感受率を用いて評価したことにより、磁歪材料の評価だけでなく、デバイスに用いる際の設計指標を提案した。

文 献

- 1) H. Wakiwaka and Y. Yamada: JPN. J. Appl. Phys. **25**(2001) 1425-1433.
- 2) A. E. Clark and H. S. Belson: Phys. Rev. **B5**(1972) 3642-3644.
- 3) M. Sahashi and T. Kovayashi: J. Acoustical Soc. Japan **466**(1990) 591-599.
- 4) V. Koeninger, Y. Matsumura, H. H. Uchida and H. Uchida: J. Alloy. Compd. **211/212**(1994) 581-584.
- 5) M. Wada and H. Uchida: J. Japan. Soc. Prec. Eng. **60**(1994) 1709-1710.
- 6) S. H. Lim, Y. S. Choi, S. H. Han, H. J. Kim, T. Shima and H. Fujimori: J. Magn. Magn. Mater. **189**(1998) 1-7.
- 7) J. Thornton: J. Vac. Sci. Tech. **A4**(1986) 3059-3065.
- 8) A. Kadowaki, S. Masuda, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 377-379.
- 9) A. Kadowaki, Y. Tsukayama, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 233-236.
- 10) A. Kadowaki, K. Takahashi, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 373-376.
- 11) S. Masuda, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 747-750.
- 12) K. Takahashi, S. Masuda, Y. Tsukayama, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **69**(2005) 671-675.
- 13) S. Masuda, Y. Matsumura and Y. Nishi: J. Japan Inst. Metals **70**(2006) 166-168.
- 14) A. C. Tam and H. Schroeder: IEEE trans. magn. **25**(1989) 2629-2637.
- 15) ICDD Card No. Al: 4-787, Sm₂O₃: 74-1989.
- 16) T. Suzuki and Y. Moriguchi: Titanium no ohanashi (Japanese Standards Association, 1995) pp. 61.
- 17) M. Rosen, H. Klimker, U. Atzmony and M. P. Dariel: Phys. Rev. **B 9**(1974) 254-258.
- 18) J. J. Wortman and R. A. Evans: J. Appl. Phys. **36**(1965) 153-166.
- 19) A. E. Clark and H. Eda: Magnetostrictive Materials (The Nikkan Kogyo Shinbun, Ltd., Tokyo, 1995) pp. 67.