電気機械変換薄膜素子用 Tb-Fe スパッタ薄膜の磁歪

Tb-Fe Sputtered Films with Large Magnetostriction for Use in Magnetomechanical Thin-Film Devices

林 嘉隆・本田 崇*・山口正洋・荒井賢一

東北大学電気通信研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980)

*(株)トーキン仙台研究所, 仙台市太白区郡山 6-7-1 (〒982)

Y. Hayashi, T. Honda*, M. Yamaguchi and K. I. Arai

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980

*Sendai Research Laboratory, Tokin Corporation, 6-7-1 Kohriyama, Taihaku-ku, Sendai 982

We examined the magnetostriction and coercive force of amorphous Tb-Fe films while varying the sputtering conditions (rf input power, Ar gas pressure, Tb content, and so on). Here we discuss the possibility of obtaining both soft magnetic properties and large magnetostriction in this system. Soft magnetic properties and large magnetostriction were obtained simultaneously in sputtered Tb-Fe thin films prepared with a composition of 45~50 at% Tb-Fe, Ar gas pressure of 4 mTorr, and rf power of 200 W. This material has a strong potential for use in magnetomechanical thin-film devices.

Key words: Tb₂Fe_{1-x} (x=0-0.6), sputtering conditions, large magnetostriction, soft magnetic thin films

1. ま え が き

希土類(R)遷移金属(T)間化合物のうちR-T₂の構造を持つ立方晶ラーベス相化合物は大きな磁歪を示し、その中でも特にTb-Fe₂合金は10⁻³から10⁻⁴程度の巨大な磁歪を有することが知られている¹⁾。

これらの材料は結晶磁気異方性が大きい弱磁界で大きな磁歪を得ることは困難であり、アクチュエータやセンサなどへの応用のためには結晶磁気異方性を低減させる必要がある。その方法として、R-Fe合金では希土類元素の種類により、結晶磁気異方性定数K₁が正、負いずれにも変化することからTb-Dy-Feの3元合金で適当に組成を選ぶことにより、K₁を小さくすることが試みられている²⁾。しかし、これらはバルク材料に関する検討であり、薄膜磁歪材料に関する検討はほとんど行われていない。

一方、最近、超小形磁気デバイスを目指した薄膜素子の研究が盛んに行われているが、これらは磁歪零近傍となるパーマロイ、Co系アモルファスを用いたインダク

タやトランスなどがほとんどである^{3)~6)}。これに対し、弱磁界で大きな歪が得られるような、高磁歪でかつ軟磁性を備えた薄膜材料があれば、バルク材料では実現できなかった超小形のアクチュエータやセンサなど、超小形電気機械変換素子用の材料となり得る。

これらの理由により、本研究ではスパッタ法によるTb-Fe高磁歪薄膜の軟磁性化について基礎的な検討を行った。

スパッタ法で作製したTb-Fe合金はアモルファス構造になることが知られており⁷⁾、アモルファスは結晶磁気異方性を持たないため軟磁性化には有効であると考えられる。また、スパッタ膜の構造、特性はその製膜条件により大きく変化することが考えられる。そこで、組成、rf印加電力、Arガス圧、基板温度などの製膜条件の違いによる磁歪、抗磁力などの変化を調べ、その軟磁性化の可能性について検討する。

2. 実験方法

Tb-Fe薄膜はrfマグネトロンスパッタ法により作製した。ターゲットは純Feターゲット(99.99%)上にTbチップをのせた複合ターゲットとした。Tbチップの数量、占有面積などターゲット構成を変化させて製膜を行い、膜組成を制御した。製膜時のスパッタ条件は、rf印加電力100~400 W, Arガス圧4~40 mTorr, 膜厚1 μm, 基板は水冷もしくは基板温度の影響を調べるため、300℃までの加熱を行った。抗磁力は振動試料型磁力計で最大印加磁界18 kOeのもとで膜の面内方向に測定した。磁歪は最大印加磁界16 kOeのもとで、膜の伸縮にともなう微小変位ΔDを三端子電気容量法⁸⁾により測定し、次式⁹⁾により求めた。

$$\lambda = \frac{2}{3} \cdot \frac{\Delta D(1+\nu_s)E_s t^2}{3L^2 E_d(1-\nu_s)} \quad (1)$$

ただし、 E_s, E_f, ν_s, ν_f は基板、薄膜のそれぞれのヤング率、ポアソン比、 t は基板の厚さは、 L は試料の長さ、 d は膜厚である。ヤング率とポアソン比は製膜条件により変化することも考えられるが、ここでは室温時の Tb-Fe₂ 合金の値を用いた。膜構造は X 線回折により測定し、明確な回折線がみられないときは、その膜はアモルファス構造であると考えた。膜組成は EPMA により同定した。

3. 実験結果

3.1 磁歪、抗磁力の製膜条件依存性

Fig. 1 は組成を、バルク材料で大きい磁歪をもつ 33 at% 付近に固定した時の抗磁力と rf 印加電力および Ar ガス圧との関係を示したものである。この図によると、抗磁力は Ar ガス圧が低く rf 印加電力が高いときに小さくなる傾向がある。また、これらの印加電力、Ar ガス圧の範囲においては X 線回折により膜はアモルファス構造であることが確認されている。40 mTorr の膜はこの傾向とは逆に印加電力が大きい方が抗磁力が大きい。これらの膜は、X 線回折から判断すると、結晶化はしていないが、ガス圧が高いため酸化などの影響を受けていることが考えられる。

なお、rf 印加電力が 400 W 以上になると酸化物が生成されることが X 線回折により観測されたため、400 W 以下の条件で実験を行った。また、Ar ガス圧については、膜中に Ar や O₂ などのガスが取り込まれるのを防ぐために低ガス圧で製膜を行うことが望ましい。しかし、4 mTorr 未満では製膜中のプラズマの放電状態が不安定となるため製膜は 4 mTorr 以上で行った。

また、これらの膜の磁歪は rf 印加電力と Ar ガス圧に対する明確な依存性はみられなかった。

次に、基礎的な製膜条件の重要なものの一つとして基

Fig. 1 Dependence of the coercive force of Tb-Fe films on the rf power and Ar gas pressure.

板温度が挙げられる。そこで、基板温度を水冷のものから 300°C までの加熱条件のもとで膜を作製しその抗磁力、磁歪がどのように変化するかを調べた。組成は 32.6 at% Tb-Fe とした。

Fig. 2 は抗磁力の基板温度依存性を示したものである。抗磁力は 150°C まで一定であるがそれ以上の温度では増加し、250~270°C で最大値をとる。また、300°C では急激に減少している。

Fig. 3 は膜の磁歪の基板温度依存性を示している。磁歪の場合も 150°C まではほぼ一定の値をとるが、それ以上の温度では基板温度の上昇とともに磁歪の値は増加し、250°C 付近で最大となり、300°C では急激に小さくなっている。

これらの原因を調べるために行った X 線回折の結果を Fig. 4 に示す。この図によると、200°C までは変化は観測されていないが、250°C、270°C のものでは Tb₂O₃、 γ -Fe₂O₃ などの酸化物が析出しているのがみられる。300°C では酸化物の回折線がかなり強くみられるようになり、また、 α -Fe の (110) 回折線がみられ、Fe の単体が

Fig. 2 Dependence of the coercive force of Tb-Fe films on the substrate temperature.

Fig. 3 Dependence of the magnetostriction of Tb-Fe films on the substrate temperature.

図4:

Fig. 4 X-ray diffraction patterns of Tb-Fe films prepared at various substrate temperatures.

Fig. 5 Magnetostriction as a function of the applied field for a 36.1 at% Tb-Fe film.

析出しているのがわかる。Fe は Tb-Fe に比べ抗磁力、磁歪ともかなり小さいため、この膜の抗磁力、磁歪とも急激に小さくなったと考えられる。

次節では、比較的低抗磁力となった 200 W, 4 mTorr, 基板水冷の条件において、組成を変化させた場合の磁歪と異方性について述べる。

3.2 磁歪、異方性の組成依存性

Fig. 5 は、磁界と磁歪の関係を示したもので、磁界に対して、磁歪は緩やかに増加しており、本研究の目的とする小さい磁界で大きい歪が得られるような膜とはなっていないことがわかる。これは、膜の異方性に原因があると考えられる。これらの膜の $M-H$ ループは、Fig. 6 のように膜面に対し垂直方向に磁化容易軸を持っているため、面内方向に磁界を印加しても磁化が困難なため歪

Fig. 6 Hysteresis loop of 36.1 at% Tb-Fe film.

の増加が緩やかになると考えられる。応用を考えると膜面内に磁化容易軸があり、面内方向の伸びが磁界に対し敏感であること、つまり、磁界に対する磁化の立ち上がり急峻である方がよいと考えられる。これを実現するには、膜面内に磁化容易軸を持つような薄膜を作製する必要がある。3.1 で示したように垂直異方性を示す傾向は、スパッタ条件を変化させても変わらなかった。一方、組成変化にともない異方性が変化するという報告¹⁰⁾がある。そこで、組成変化にともない異方性、磁歪の変化について検討した。

膜の異方性は、15~45 at% Tb-Fe の領域では Fig. 6 の $M-H$ ループに示されているのと同様に膜面に対し垂直方向に磁化容易軸があることが観察され、Tb 量 15 at% 以下と 45 at% 以上では、膜面内に磁化容易軸があり、組成により膜の異方性が変化している。特に、45 at% 以上では Fig. 7 に示したように、面内方向の $M-H$ ループの立ち上がり良く、磁界に対し歪量の立ち上がりも良いことが期待できる。

そこで、Tb 量を変えた 3 種類の試料について磁界強度と磁歪の関係を調べた。H=15 kOe におけるアモルファス Tb-Fe 膜の磁歪の値は Tb 量 30~40 at% で最大値をとることが報告されている¹¹⁾が、弱磁界では Fig. 8 に示したように Tb 量が 45~50 at% の膜で磁歪の立ち上がりがよくなっているのがわかる。これは、この組成において磁化容易軸が膜面内にあり、Fig. 7 に見られるように $M-H$ ループが磁界に対して急峻に立ち上がっていることによると考えられる。また、この組成では抗磁力も 60~70 Oe と小さく、薄膜デバイス用材料として良好な特性を示している。

Fig. 7 Hysteresis loop of 46.9 at%Tb-Fe film.

Fig. 8 Magnetostriction as a function of the applied field for Tb-Fe films.

4. ま と め

1. rf印加電力が高く、Arガス圧が低いときTb-Fe薄膜の抗磁力は小さくなる傾向にある。

2. 基板温度は低いときTb-Fe薄膜の抗磁力は小さくなる。磁歪は基板温度250℃で最大となる。

3. 組成に対しては、45～50 at% Tb-Feで抗磁力60～70 Oe、磁歪 100×10^{-6} となった。

以上より、200 W, 4 mTorr, 基板水冷, 組成45～50 at% Tb-Feの条件で作製した膜は、抗磁力60～70 Oe、磁歪 100×10^{-6} 以上となることが明らかとなった。このTb-Fe薄膜は低磁界で大きい磁歪値が得られ、超小形のアクチュエータ、センサなどへの応用に向けて良好な特性を示すことが明らかとなった。

文 献

- 1) A. E. Clark and H. S. Belson: *Phys. Rev., B*, **5**, 3642 (1972).
- 2) R. Abbundi and A. E. Clark: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-13**, 1519 (1977).
- 3) N. Saleh and A. H. Qureshi: *Electron. Lett.*, **6**, 850 (1970).
- 4) K. Kawabe, H. Koyama and K. Shirae: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-20**, 1804 (1984).
- 5) 白川 究, 倉田啓明, 粕谷昌弘, 大沼繁弘, 鳥生次郎, 村上孝一: 日本応用磁気学会誌, **16**, 431 (1992).
- 6) M. Yamaguchi, S. Arakawa, H. Ohzeki, Y. Hayashi and K. I. Arai: *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 3015 (1992).
- 7) J. J. Rhyne, S. J. Pickart and H. A. Alperin: *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 1562 (1972).
- 8) M. O'Connor and H. S. Belson: *J. Appl. Phys.*, **41**, 1028 (1970).
- 9) E. Klokholm: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-12**, 819 (1976).
- 10) Y. Mimura and N. Imamura: *Appl. Phys. Lett.*, **28**, 746 (1976).
- 11) D. W. Forester, C. Vittoria, J. Schelleng and P. Lubitz: *J. Appl. Phys.*, **49**, 1966 (1978).

1992年11月18日受理, 1993年2月2日採録