Preparation of magnetostrictive Fe-Al thin film using by plasma process

プラズマプロセスを用いた Fe-Al 磁歪薄膜の作製

Konosuke MURAMATSU and Yoshihito MATSUMURA

Department of Applied Science, Graduate School of Engineering, Tokai University, 1117 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa, 259-1292 Japan

TEL:81-0463-58-1211 (ex: 4909) Fax:81-0463-58-9461 e-mail: ncc1701d@keyaki.cc.u-tokai.ac.jp

(Received 17, January 2005 Accepted 16, May 2005)

Magnetostrictive characteristics of Fe-Al alloy thin films formed by an ion plating process were discussed. Fe-17 at%Al alloy thin films formed by the ion plating process at 333 K and 532 K showed the larger magnetostriction of 90 ppm at 15 kOe than that of pure Fe with lattice expansion. The film sample prepared at 523 K showed the higher magnetostrictive susceptibility at low magnetic fields than that of the film sample prepared at 333 K.

Keywords : Fe, Al, thin film, ion plating, magnetostriction, magnetostrictive susceptibility, substrate temperature,

I. INTRODUCTION

希土類-鉄系磁歪材料は大きな発生応力、高応答速度、高キュリー温度、非接触動作が可能等の特徴を有する。^{1,2,3} また、希土類-鉄系磁歪材料を薄膜化することにより容易に小型化が可能なため、マイクロマシンの動力源への応用が期待される。⁴

我々はこれまでにさまざまな成膜プロセスを用いて希土類-鉄系薄膜 (Tb-Fe, TbFe₂, Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂...) について研究を行ってきた。^{1,2,3} 一般的に希土類-遷移金属系材料は脆く、酸化しやすいという問題がある。そこで、この問題を改善するため新たな材料が求められている。

A. E. Clark らにより Fe-17 at%Ga 単結晶は室温で高い磁歪感受率を示すと報告された。^{5,6} これらのような体心立方構造 (bcc) を持つ鉄系材料は希土類-鉄系と比較して高い靱性と耐食性を有することから近年注目されている。また、我々は Fe-Ga 薄膜に関していくつかの研究報告をしてきた。^{7,8} しかし、Ga は低融点・高蒸気圧であるため非常に扱いにくいという欠点を持ち、また高価である。一方、Fe-Al 合金は古くから磁気特性や機械的特性などについて研究されているが、⁹ Al が希土類や Ga に比べて非常に安価であるためふたたび注目されてきている。^{10, 11} しかし、Fe-Al 合金の薄膜及び磁歪特性に関する報告はなされていない。

そこで、本研究ではプラズマプロセスを用いた成膜手法の一つであるイオンプレーティング装置を用いて Fe-Al 合金薄膜を作製し、その結晶構造及び磁歪特性を

評価した。また基板温度変化による特性変化を比較することを目的とし研究を行った。

II. EXPERIMENTAL

II-A. Preparation of Fe-Al films

薄膜の作製には3電極配置のイオンプレーティング (IP) 装置を用いた。(Fig.1) 各種組成のFe (純度 99.9 %) と Al (99.5 %) をアーク溶解法により Fe-Al 合金を作製した。

Fig. 1. Schematic diagram of ion plating (IP) system.

これを蒸発物として電子ビーム加熱により融解・蒸発させた。その際に蒸発源－基板間に設置したプローブ電極に正電位を印加し、放電を生じさせた。これにより蒸発した金属蒸気はプラズマ化し基板上に堆積する。蒸発物組成を変化させることにより Fe-Al 合金薄膜の組成を変化させた。また、基板温度は基板ホルダ背面のヒーターにより制御し、333 K・523 K で成膜を行った。Fe-Al 合金は α -Fe 相では強磁性体だが、 Fe_3Al や FeAl 相では常磁性体の金属間化合物となる。よって組成比は平衡状態図に示される固溶限の約 Fe-17at%Al を目標として薄膜を作製した。成膜条件を Table.1 に示す。

Table 1. Condition of the film formation by IP process.

Base pressure	$\leq 5.0 \times 10^{-4}$ Pa
Leak rate	$\leq 1.0 \times 10^{-7}$ Pa $\cdot$ m ³ /sec
Substrate temperature	333K, 523 K
Electron beam power	110~120 m A $\times$ 10kV
Anode potential	50 V
Substrate	Si (100)
Source~substrate distance	20 cm
Deposition time	300 sec

II-B. Sample analysis

組成分析にはエネルギー分散 X 線分光法 (EDX) を用いて測定をおこなった。膜厚測定は触針法を用いた。構造解析は X 線回折装置 (XRD)、表面観察には走査型電子顕微鏡 (SEM)、磁歪量の測定は片持ち梁形の試料の変形を He-Ne レーザを利用した光てこ法を用いて測定し、薄膜の反りから次式によって求めた。¹²

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

ここで、 d は磁歪によって生じた薄膜の反り、添え字の s, f はそれぞれ基板と薄膜を表し、 t は厚み、 E はヤング率、 ν はポアソン比、 l は片持ち梁の固定端からレーザスポットまでの距離である。Fe-Al 合金薄膜は Al が固溶した α -Fe としてヤング率・ポアソン比は $E_f = 2.11$ GPa, $\nu_f = 0.29$ とし、Si(100)基板のヤング率・ポアソン比を $E_s = 130$ GPa, $\nu_s = 0.28$ とした。¹³ 磁化特性には試料振動型磁力計 (VSM) を用いた。

III. RESULTS AND DISCUSSION

III-A. Result of EDX, XRD and SEM

IP 装置を用いて作製した薄膜試料の組成比を EDX を用いて分析したところ、基板温度 333 K、523 K 共に

Fe-17 at%Al であった。Fig.2 に基板温度 333 K で作製した Fe-Al 合金薄膜の X 線回折像を示す。作製した試料はすべて α -Fe(bcc)構造をしていた。Al 組成の増加に伴いピーク位置の低角度側へのシフトが観察された。Fig.3 に基板温度 523 K で作製した Fe-Al 合金薄膜の X 線回折像を示す。作製した試料は基板温度 333 K で作製したものと同様に全て α -Fe(bcc)構造をしていた。また、Al 組成の増加に伴いピーク位置の低角度側へのシフトが観察された。Fig.4 に格子定数－組成比依存性を示す。Al 組成の増加と共に格子定数も増加したことがわかった。純 Fe の格子定数が 2.86 Å であったのに対し、Fe-17 at%Al における格子定数は基板温度 333 K では 2.87 Å、基板温度 523 K では 2.88 Å であった。これは Fe の格子中に原子半径の大きい Al が置換されたため格子定数が増加したと推測される。また、Vegard の法則から算出した傾きと重なることより Al がランダムに置換されていると思われる。

Fig.5 に本研究で作製された Fe-Al 合金薄膜の半値幅を示す。半値幅の値は純 Fe において基板温度 333 K では 1.27°、基板温度 523 K では 0.62° であった。また、Fe-17 at%Al における半値幅は基板温度 333 K では 1.02°、基板温度 523 K では 0.79° であった。半値幅の値を基板温度ごとに比較すると、基板温度が高いほうが小さくなる傾向にあった。これは基板温度が高いことにより欠陥や転位、格子の並進性の減少に繋がり、これらも磁気特性や磁歪特性に影響を与えていると考えられる。

Fig.6、Fig.7 に各基板温度ごとの Fe-17 at%Al の SEM による表面観察像を示す。基板温度 333 K で作成した薄膜では空隙等の欠陥が確認された。しかし基板温度 523 K で作製した薄膜では空隙のような欠陥は確認されなかった。このように SEM での表面観察からも基板温度 523 K で作製した薄膜は基板温度 333 K の薄膜と比べ、空隙等の欠陥が少ない薄膜であることが確認された。

Fig 2. X-ray diffraction patterns of film samples prepared by IP process at 333 K.

Fig.3. X-ray diffraction patterns of film samples prepared by IP process at 523 K.

Fig.4. Lattice parameter of Fe-Al films as a function of aluminum content.

Fig.5. Full width at half maximum (FWHM) of the Fe-Al film samples prepared by IP process at 333 K and 523 K.

Fig.6. SEM image of the film sample prepared at 333 K.

Fig.7. SEM image of the film sample prepared at 523 K.

III-B. Magnetostrictive properties

Fig.8 に基板温度 333 K で作製した Fe-Al 合金薄膜の磁歪特性を示す。Fe-Al 合金薄膜の磁歪特性は、Al 組成の増加と共に磁歪量が増加した。基板温度 333 K で作製した Fe-17 at%Al 合金薄膜の磁歪特性は印加磁場 15 kOe において約 90 ppm であった。また、この薄膜の薄膜の磁歪量は 15 kOe においても飽和しなかった。Fig.9 に基板温度 523 K で IP 装置を用いて作製した Fe-Al 合金薄膜の磁歪特性を示す。Fe-Al 合金薄膜の磁歪特性は、基板温度 523 K と同様に Al 組成の増加と共に磁歪量が増加した。基板温度 523 K で作成した Fe-17 at%Al 合金薄膜の磁歪特性は、印加磁場 15 kOe において約 90 ppm であった。基板温度 523 K においては磁歪特性は飽和傾向にあった。

本研究では、基板温度 523 K において作製された Fe-17 at%Al 合金薄膜が、最も大きな磁歪量・磁歪感受率を示した。どちらの基板温度においても純 Fe と比較して Fe-Al 合金が高い磁歪量を示したのは、Al が Fe の格子に置換されたことによる格子定数の増加に起因するものと推測される。^{5,6,14} なお、基板温度 333 K で成膜を行ったところ、剥離する傾向にあった。これはプラズマプロセスを用いたため、薄膜に強い圧縮の応力が生じたため剥

離が発生したと思われる。¹⁵ また、磁歪量が飽和していない事からも基板温度 333 K で作製した薄膜には圧縮の残留応力がかかっていると思われる。⁵ これに対し、基板温度 523 K で作製した Fe-Al 合金薄膜は剥離は生じなかった。これは成膜時の基板温度が高かったため、薄膜と基板材料の熱膨張係数の違い(Fe:12.1 ppm/K, Al:23.5 ppm/K, Si:4.1 ppm/K)¹⁶ に起因する熱収縮が生じた結果、薄膜に生じていた圧縮の残留応力が緩和されたか、もしくは引張りの残留応力に変化したためと推測される。この熱収縮に起因する残留応力変化、及び基板温度変化に起因する格子歪の減少が磁歪特性に大きな影響を与えたため、基板温度 523 K では磁歪特性が向上したと考察した。

Fig. 8. Magnetostriction of film samples prepared by IP process at 333 K.

Fig. 9. Magnetostriction of film samples prepared by IP process at 523 K.

IV. CONCLUSION

本研究では、Fe-Al 合金を IP 装置を用いて薄膜化し、次に、その結晶構造と磁気特性に関して検討した。磁歪特性に関しては Al 組成の増加に伴う格子定数の増加、基板温度変化による格子歪の減少、熱収縮による残留応力の変化が大きな影響を与えていると考えられる。

ACKNOWLEDGEMENTS

本研究は東海大学未来科学技術共同研究センターのエコテクノロジープロジェクトとして遂行された。東海大学宮元泰男氏、小泉義晴教授に測定及び分析の便宜をお図り頂いた。また東海大学矢部洋正博士より多大なご示唆を頂いた。ここに感謝の意を表す。本研究は平成 16 年度科学研究費補助金 16560616 により行われた。

REFERENCES

- ¹ A. Kadowaki, M. Takeuchi, Y. Matsumura, Y. Nisi, *Journal of the Japan Institute of Metals*. 68, 126(2004)
- ² V. Koeninger, Y. Matsumura, H. Uchida, H. H. Uchida, H. Funakura, H. Kaneko, T. Kurino, *J Adv Sci*. 5, C-11(1993)
- ³ M. Wada, H. Uchida, Y. Matsumura, H. Kaneko, H. H. Uchida. *Symposium on Electromagnetic and Dynamics*. 8, 25(1996)
- ⁴ T. Honda, K. Arai, *Journal of Magnetics Society of Japan*. 20, 537(1996)
- ⁵ A. E. Clark, *IEEE Trans Magn*. 36, 3238(2000)
- ⁶ A. E. Clark, *J Alloy Comp*. 350, 95(2003)
- ⁷ M. Takeuchi, N. Matsuoka, Y. Matsumura, H. Uchida, T. Kuji, *Symposium on Electromagnetic and Dynamics*. 15, 701(2003)
- ⁸ M. Takeuchi, Y. Matsumura, H. Uchida, *Journal of the Japan Institute of Metals*. 133, 353(2003)
- ⁹ G. S. Grest, *Phys Rev B*. 21, 165(1980)
- ¹⁰ P. Zou, W. Yu, J. A. Bain, *IEEE Trans Magn*. 38, 3501(2002)
- ¹¹ W. Maass, H. Rohrmann, *IEEE Trans Magn*. 34, 1435(1998)
- ¹² A. C. Tam and H. Schroeder. *IEEE Trans Magn*. 25, 2629(1989)
- ¹³ J. J. Wortman and R. A. Evans, *J Appl Phys*. 36, 153(1965)
- ¹⁴ D. A. Eelman, J. R. Dahn, G. R. Mackay, R. A. Dunlap, *J Alloy Compd*. 266, 234(1998)
- ¹⁵ B. Schultrich, *Metalloberflaeche*. 48, 502(1994)
- ¹⁶ Eric. A. Brandes, *Smithells metals reference book*, (Butterworths, 1983) 14-1

SAS Award (Prize of Innovation) was given to this paper presented as Poster Presentation at the 2004 SAS Intelligent Symposium.