High responsive giant magnetostrictive materials thin film

高応答性を有する超磁歪薄膜の作製

Jamadil Azwad PAZAER, Koji MAKITA and Tempei TANAKAMARU

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

TEL: x81-463-58-1211 (EX.4151)

Shunichi NABEYA and Yoshihito MATSUMURA

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

TEL: x81-463-58-1211 (EX.4151) e-mail: ncc1701d@keyaki.cc.u-tokai.ac.jp

(Received 31, January 2008 Accepted 9, October 2008)

Magnetostrictive properties of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C giant magnetostrictive material (GMM) thin film have been systematically investigated in this study. Film samples were prepared by d.c. magnetron sputtering process in Ar-N₂ or Ar-CH₄ gases atmosphere. Saturated magnetostriction of formed thin films was decreased with increasing of N₂ and CH₄ partial pressure because of formation of non-magnetic SmN or SmC₂ phases. Maximum value of magnetostrictive susceptibility is 34 ppm/kAm⁻¹ was observed in Sm-Fe-C thin film sample with 1.0 vol% CH₄ gas partial pressure. Compressive stress of thin film samples was increased due to the increasing of N₂ and CH₄ gases pressure. The increasing of compressive stress with small N₂ and CH₄ addition amount into thin film samples may influence the increasing of magnetostrictive susceptibility.

Keywords: giant magnetostrictive material, samarium, ion, nitrogen gas, methane gas, thin film, reactive magnetron sputtering

I. INTRODUCTION

磁歪とは磁性体の特性の一つであり、磁場を印加することにより、外形寸法が変化する現象である。代表的な強磁性体は鉄で 10ppm 程度の変位量を示す。近年、Clark らによって室温で 1000ppm 以上の巨大な磁歪量を示す希土類 - 遷移金属系化合物が報告されている。¹⁻⁴ この希土類 - 遷移金属系化合物は超磁歪材料と呼ばれ変位量、発生応力が大きく、応答速度に優れるといった特徴を持ち、電場または磁場で駆動するため、遠隔操作を行うことも可能である。

SAS Award (Prize for an Excellent Work) was given to this paper presented as Poster Presentation at the 2007 SAS Intelligent Symposium.

これまで、マイクロマシンのアクチュエーターやセンサーへの応用を目指して超磁歪材料を薄膜化を行ってきた。超磁歪材料薄膜の研究は様々な成膜プロセスによって行われており、成膜プロセスや成膜条件によりその磁歪特性に強い影響を与えることが知られている。⁵⁻¹⁰ 加えて、スパッタリング法を用いて作製した薄膜は作製条件により、引っ張り応力や圧縮応力を示す。¹¹ また、超磁歪材料は内部応力により磁歪特性が大きく変化する事が知られている。¹²⁻¹⁴ 我々はこれまでに様々な方法で磁歪特性の向上を試み、薄膜の内部応力が磁歪特性に影響を与えることを明らかにしてきた。¹⁵ そこで、本研究では、Sm-Fe 薄膜の内部応力を制御するために常温で気体として得る事ができる窒素ガスまたはメタンガスを

スパッタリングガスに混合し、窒素または炭素原子を Sm-Fe 原子間に固溶させ超磁歪薄膜の磁歪感受率の向上を目指した。

II. EXPERIMENTAL

本研究では d.c.マグネトロンスパッタリング法を用い Sm-Fe 薄膜を作製した。d.c.マグネトロンスパッタリング装置図の模式図を Fig.1.に示す。

Fig. 1. d.c. magnetron sputtering system

装置内の到達真空度は 1.0×10^{-4} Pa 以下とし、基板に単結晶 Si(100)短冊(5×25mm)、スパッタリングターゲットに SmFe₂ 合金ターゲットを用い、基板-ターゲット間距離を 60mm にした。導入ガスにアルゴンガス(純度 99.999%)、反応性ガスとしてアルゴンと窒素の混合ガス(窒素の混合率 5%、窒素の純度 99.99%)またはメタンガス(純度 99.99%)を用い、成膜中のスパッタリングガス圧を 1.0×10^{-1} Pa で行った。また、成膜時間は 3600 s とし、スパッタ電力を 100W で行った。試料はアルゴンガスに窒素ガス(1.0vol % から 4.8 vol %)を混合した薄膜、アルゴンガスにメタンガス(0.5 vol % から 3.0 vol %)を混合したものをそれぞれ作製した。作製した試料の評価は、組成分析にエネルギー分散型 X 線分光装置(EDX)、結晶構造の解析に X 線回折装置(XRD)を用いた。膜厚測定は表面粗さ計(DECTAK3)を用い、磁歪特性は光てこ法を用いて試料の反りを測定し算出した。¹⁶ 内部応力は基板の反り測定から求めた。

III. Results and Discussion

III-A. Magnetostrictive Characteristics of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

スパッタリングガスに窒素ガスまたはメタンガスの混合により作製した各 Sm-Fe 薄膜の飽和磁歪量を Fig.2.に、Fig.3.に同様に作製した各 Sm-Fe 薄膜の磁歪感受率を示す。

Fig. 2. Saturated magnetostriction of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

Fig. 3. Magnetostrictive susceptibility of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

飽和磁歪量の結果から Sm-Fe 薄膜に対する窒素ガス混合量が増加するのに伴い Sm-Fe-N 薄膜の飽和磁歪量が低下した。同様に Sm-Fe 薄膜にメタンガスを混合した場合も同様の結果が得られた。

Sm-Fe 薄膜製膜時のアルゴンガスに対する窒素ガス混合量が 1.0 vol % において最も高い磁歪感受率を示したが、1.0 vol % 以上の混合量では、窒素ガス混合量の増加に伴い磁歪感受率が低下した。また、メタンガスをを用いた場合では、メタンガス混合量が 0.5 vol % において最も高い磁歪感受率を示したが、0.5 vol % 以上の混合量では、メ

タンガス混合量の増加に従って磁歪感受率が低下し窒素ガスと同様な傾向が見られた。この元素の微量混合によって得られた最高磁歪感受率、最大飽和磁歪量の結果をまとめたものを Table.1.に示す。

Table 1. Magnetostrictive Characteristics of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

	Sm-Fe	Sm-Fe-N	Sm-Fe-C
magnetostrictive susceptibility (ppm/Am ⁻¹)	8	34	26
saturated magnetostriction (ppm)	1250	900	1060

III-B. Internal Stress of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

スパッタリングガスに窒素またはメタンガスの混合により作製した各 Sm-Fe 薄膜の内部応力を Fig.4.に示す。

Fig. 4. Compressive stress of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

本研究で作製した Sm-Fe 薄膜の内部応力はいずれも圧縮方向の応力を示した。窒素ガスを混合した Sm-Fe 薄膜の内部応力は窒素ガス混合量に関わらず、混合していない Sm-Fe 薄膜より 0.3GPa 程度圧縮応力が増加した。また、メタンガスを混合した Sm-Fe 薄膜も窒素ガスを混合した Sm-Fe 薄膜と同様な傾向を示し、圧縮応力は 0.15GPa 程度増加した。これは、窒素及び炭素原子が Sm-Fe 原子間に固溶した事により Sm-Fe 原子間距離が拡張したためだと考えられる。しかし、圧縮応力の増加量が微量で飽和していることから、圧縮応力の増加に寄与

する原子は微量であると考えられる。また、窒素ガスに比べメタンガスを混合した薄膜の方が圧縮応力の増加率が低かった。これは窒素原子に比べ炭素原子の共有結合半径が大きいことから、Sm-Fe 原子間に固溶できる原子の数が少ないためであると考えられる。また、炭素原子は窒素原子と異なり固体として薄膜上に存在できるため、Sm-Fe 原子間に固溶しなくても安定化することができる。このため、固溶量が少なく共有結合半径は窒素ガスに比べ大きい内部応力は大きくなかったものと考えられる。

III-C. Crystal structure of Sm-Fe-N and Sm-Fe-C Thin Film

スパッタリングガスに窒素ガスを混合し作製した各 Sm-Fe 薄膜の X 線回折の結果を Fig.5.に示す。

Fig. 5. X-ray Diffraction Pattern of Sm-Fe-N Thin Film

いずれの窒素ガス混合量においても窒化物と思われるピークを除き明瞭なピークを示さなかった。このことから、本研究で作製した薄膜はアモルファス構造であると考えられる。また、窒素ガス混合量が増加するに従い、非磁性の SmN をはじめとする窒化物や Sm のピークが大きくなる傾向が見られた。このことから SmFe₂ が窒化物の生成により不均質化していると考えられる。次に、Fig.6.にメタンガスを混合し作製した各 Sm-Fe 薄膜の X 線回折の結果を示す。窒素ガスを混合した場合と同様な傾向が見られ、炭化物を除くと明瞭な結晶ピークは示さず、メタンガス混合量が増加するの従い非磁性 SmC₂ や SmFe₅ 等のピークが大きくなった。このことから SmFe₂ が炭化物の生成により窒素ガスを混合した場合と同様に SmFe₂ が不均質化していると考えられる。これらは、圧縮応力の向上に寄与しなかった窒素及び炭素原子が非磁性である窒化物及び炭化物を生成し、その影響によって

Sm-Fe 薄膜の飽和磁歪量及び、最大磁歪感受率を低下したと考えられる。

Fig. 6. X-ray Diffraction Pattern of Sm-Fe-C Thin Film

V. CONCLUSION

本研究では反応性 d.c. マグネトロンスパッタリング法を用いて Sm-Fe-N 及び Sm-Fe-C 薄膜を作製した。窒素ガスやメタンガスの混合量が増加するに従って、飽和磁歪量は減少した。今回作製した薄膜は窒素ガス混合の場合 0.30GPa 程度、またメタンガス混合の場合 0.15GPa の圧縮応力の増加を示した。また、炭素ガスの混合に対し、窒素ガスを混合した薄膜のほうが大きな圧縮応力を示した。この圧縮応力の影響により元素を微量固溶した場合、磁歪感受率は向上するが固溶量の増加に伴い磁歪感受率は低下した。

これより、Sm-Fe 薄膜に対する微量の異種元素の固溶は、Sm-Fe 薄膜の磁歪特性を向上させるが、過剰に固溶させることで磁歪特性が低下することが明らかになった。

REFERENCES

- ¹J.J.Rhyne and S. Legvold, Phys. Rev. A507,138 (1965)
- ²A.E.Clark, in E.P.Wohlfarth(ed.), "Ferromagnetic Materials", Vol.1, North Holland, Amsterdam, 1980, Chap. 7.

- ³A.E.Clark and H.S.Belson, Phys. Rev. B5, 3642 (1972)
- ⁴A.E.Clark and H.S.Belson, IEEE Trans. Mag. MAG-8, 477(1972)
- ⁵M. Morimoto, T. Inagaki, T. Kobayashi, Y. Fujiwara, M. Masuda, S. Shiomi and T. Shiratori, Nippon Oyo Jiki Gakkaishi (in Japanese). 27, 269 (2003).
- ⁶S.M. Na, S.J. Suh and S.H. Lim: J. Appl. Phys.. 93 8507 (2003).
- ⁷T.M. Danh, N.H. Duc, H.N. Thanh and J. Teillet, J. Appl. Phys.. 87, 7208
- ⁸S. Esho and S. Fujiwara, AIP Conf. Proc., 34, 331 (1976).
- ⁹N. Heiman, A. Onton, D.F. Kyser, K. Lee and C.R. Guarniere, AIP Conf. Proc. 24, 573 (1975).
- ¹⁰R. Zwingman, W.L. Wilson, Jr. and H.C. Bournon, AIP Conf. Proc. 34, 334 (1976).
- ¹¹J.A. Thornton and D.W. Hoffman, Thin Solid Films 171, 5(1989)
- ¹²H. Hauser, J. Appl. Phys. 75, 2584(1994)
- ¹³F. Schatz, M. Hirscher and M. Schnell, J. Appl. Phys. 76, 5380(1994)
- ¹⁴S. Tsunashima, H. Takagi, K. Kamegaki, T. Fujii and S. Uchiyama, IEEE Trans. Magn. MAG-14, 844(1978)
- ¹⁵M. Takeuchi, Y. Matsumura and H. Uchida, J. Japan Inst. Metal 69, 8667 (2005)
- ¹⁶A.C. Tam and H. Schroeder, J. Appl. Phys. 64 (1988) 5422-5424