

Tb-Fe系薄膜における結晶構造及び磁気特性

日大生産工(院) ○山本 浩司
日大生産工 新妻 清純・移川 欣男

1 はじめに

磁歪とは外部磁界により磁性体の寸法あるいは体積が変化する現象である。この現象を利用し、電磁石などにより磁界を印加させることで外部から非接触制御することも可能であり、ロボットの駆動部などのアクチュエータにも応用がなされている。特に、RE(希土類元素)-Fe系の材料は巨大な磁歪を発生することが報告されている⁽¹⁾。また、RE-Fe系のアモルファス材料では高い磁歪ならびに電気機械結合係数が期待されている⁽²⁾。一般に磁性材料においては、熱処理を施すことにより磁気特性の向上が期待される。そこで、本研究ではTb-Feの合金比率を変化させ薄膜を作製し得られた薄膜試料に熱処理を施し、試料の磁気特性ならびに結晶構造について検討した。

2 実験方法および測定方法

試料の作製方法として純度99.999%のFeならびに純度99.9%のTbを母材として用い、真空蒸着法により試料を作製した。装置図の概略をFig.1に示す。成膜条件としてはチャンバー内を 4.0×10^{-4} Pa以下まで高真空排気した後、投入電圧4kVとし、ソーダライムガラス基板及び磁歪測定用として厚さ0.0125mmのポリイミドフィルム、熱処理用としてテンパックス基板上に成膜を行った。なお、膜厚は200nm一定とした。また、熱処理は卓上型管状

炉を用い真空度を 8.0×10^{-4} Pa以下とし、熱処理温度を723K一定とし1h熱処理を行った。試料の評価方法として、磁気特性には振動試料型磁力計(VSM)、磁気異方性の測定にはバランスコイル型トルク計、結晶解析にはCu-K α を線源とするX線回折装置(XRD)、組成分析には電子線マイクロアナライザ(EPMA)、磁歪特性の評価にはストレインゲージ法をそれぞれ用いた。

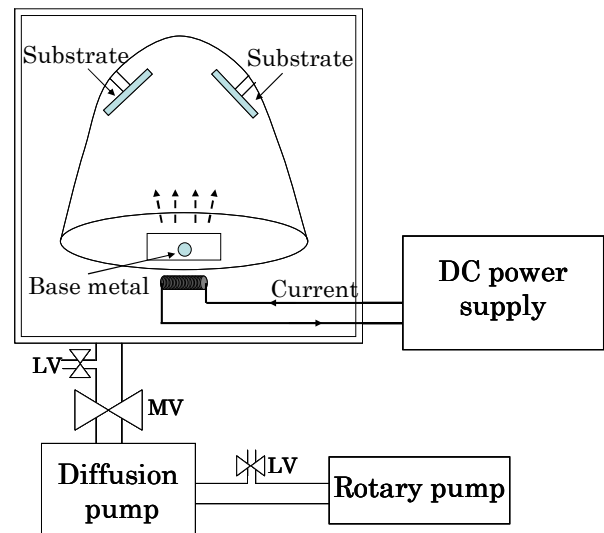


Fig.1 Schematic diagram of EB Method.

3 実験結果

3.1 各種薄膜の結晶構造解析

Fe母材及び真空蒸着法により得られたFe薄膜試料のX線回折図形をFig.2に示す。図より、いずれの試料においても $2\theta = 44.67^\circ$ の α -Fe(110)及び、 $2\theta = 82.33^\circ$ の α -Fe(211)から

の回折線が確認された。なお、一般では α -Feの第一ピークである $2\theta = 44.67^\circ$ の α -Fe(110)からの回折線の強度が強いはずであるが、母材での $2\theta = 65.18^\circ$ における α -Fe(200)からの回折線の強度が強いのは、母材が圧延による影響と考えられる。次に、Tb母材及びTb薄膜での回折X線図形をFig.3に示す。母材においてはTb及びTbOからの回折線が確認されたことからTbの酸化物が形成されていることが分かる。薄膜試料では $2\theta = 31.78^\circ$ のTb(00·2)からの回折線が確認された。次に、Tb-Fe薄膜におけるTbの組成比を変化させた薄膜のX線回折図形をFig.4に示す。図より5%~15%Tbの組成を有する薄膜試料では $2\theta = 44.78^\circ$ の α -Fe(110)からの回折線が確認されるが25%以上のTbの組成では α -Feからの回折線が消失し完全にアモルファス化したことが確認できた。次に、完全にアモルファス化した39%Tb-61%Feの薄膜試料に熱処理を施したX線回折図形をFig.5に示す。

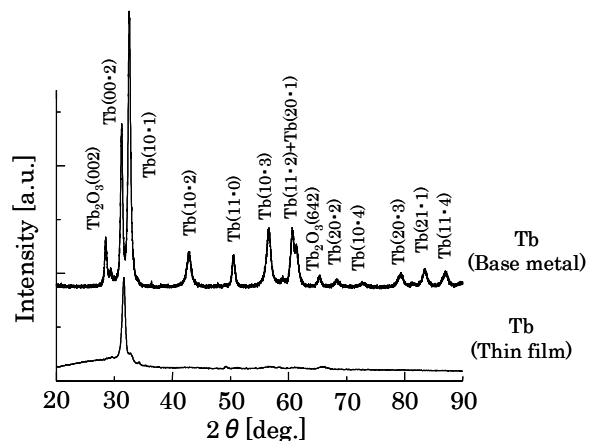


Fig.3 X-ray diffraction patterns of Tb base metal and Tb thin film.

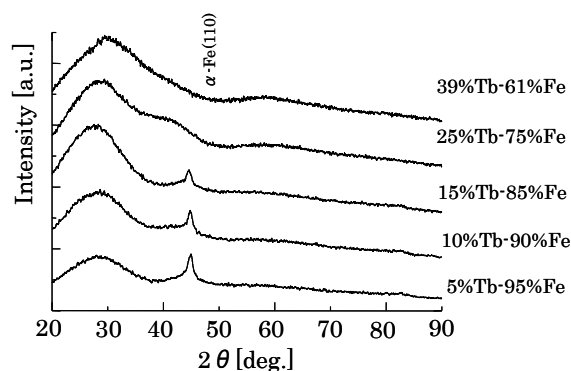


Fig.4 X-ray diffraction patterns of Tb-Fe thin films.

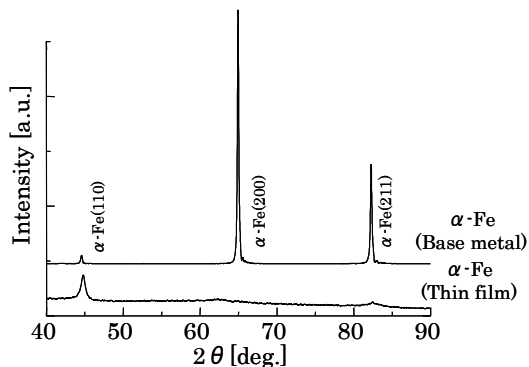


Fig.2 X-ray diffraction patterns of Fe base metal and Fe thin film.

図より熱処理を施すことにより $2\theta = 44.78^\circ$ の α -Fe(110)及び $2\theta = 31.78^\circ$ のTb(00·2)からの回折線が確認されたことからそれぞれ単体で再結晶化されていることが分かる。

3.2 Tb-Fe 薄膜における磁気特性

真空蒸着法により作製したTb-Fe薄膜試料においてTbの組成を変化させたTb-Fe薄

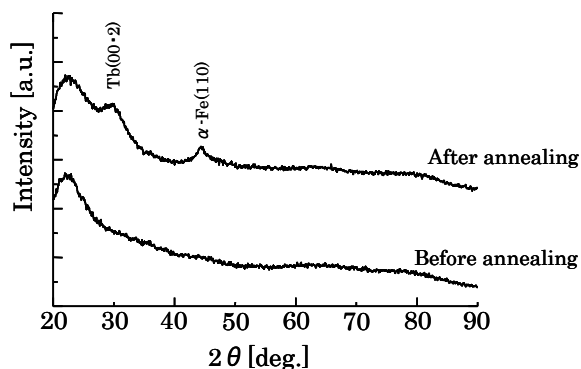


Fig.5 X-ray diffraction patterns of Tb-Fe thin film.

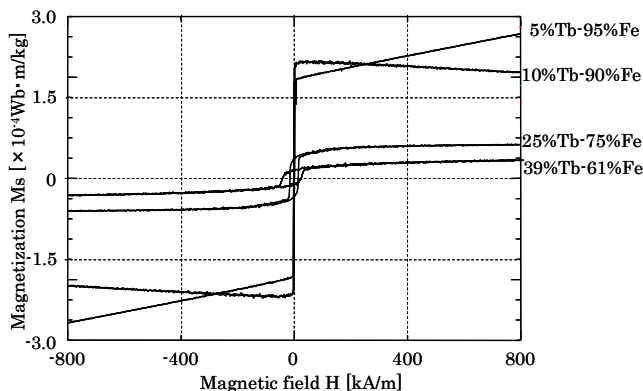


Fig.6 M-H loops of Tb-Fe thin films. ($H_m = 800 \text{ kA/m}$)

膜のVSMによるM-HループをFig.6に示す。図よりTbの組成の増加に伴い保磁力が増加し、異方性が増大していることが分かる。5%Tb-95%Feでは純Feの標準飽和磁化値である $2.74 \times 10^{-4} [\text{Wb} \cdot \text{m}/\text{kg}]$ と同程度であった。次にTb-Fe薄膜におけるTb組成比依存性の磁気特性をFig.7に示す。

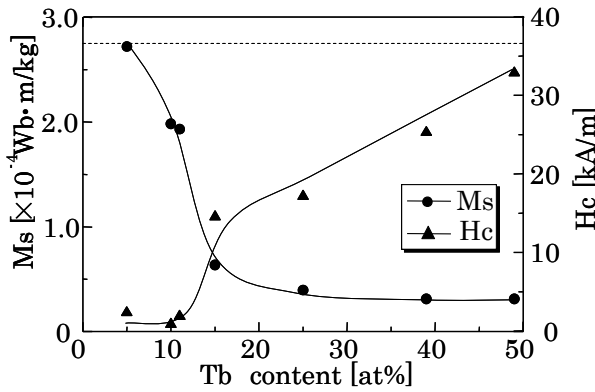


Fig.7 Dependence of Ms and Hc of Tb-Fe thin films on Tb content.

図より、飽和磁化 Ms は Tb の組成が増加するに伴い 15%Tb 付近で急激に減少し、その後緩やかに減少する傾向を示した。しかし、保磁力 Hc においては 15%付近で急激に増加しその後緩やかに増加する傾向を示した。次に、バランシングコイル型トルク計により測定した各試料での磁気異方性の Tb 組成比依存性を Fig.8 に示す。図より、Tb の組成比が増加するに連れ磁気異方性値 K が増大していることが分かる。さらに、39%Tb-61%Fe の組成を有する Tb-Fe 薄膜を熱処理に施した試料と熱処理前の試料の M-H ループを Fig.9 に示す。図より熱処理前では飽和磁化 Ms は $3.64 \times 10^{-5} [\text{Wb} \cdot \text{m}/\text{kg}]$ であるのに対し熱処理後は $\text{Ms}=8.62 \times 10^{-5} [\text{Wb} \cdot \text{m}/\text{kg}]$ と増加し、保磁力 Hc においては熱処理前では $\text{Hc}=18.55 [\text{kA}/\text{m}]$ であるのに対し熱処理後では $\text{Hc}=4.90 [\text{kA}/\text{m}]$ と減少する傾向を示し、磁気特性が向上することが確認できる。

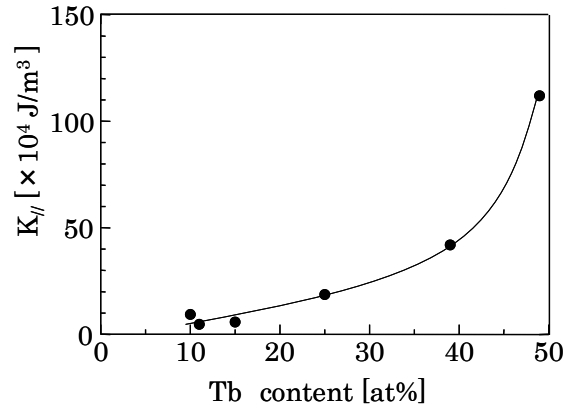


Fig.8 Dependence of magnetic anisotropy value of Tb-Fe thin films on Tb content.

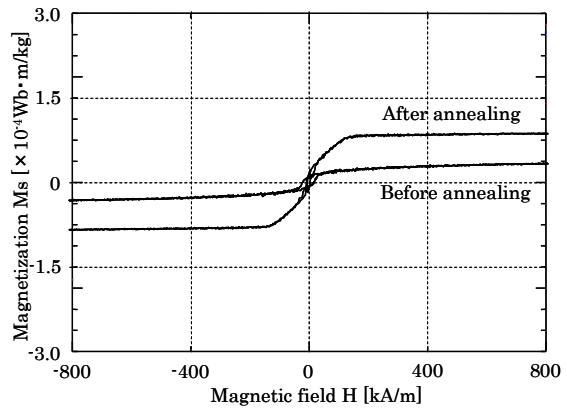


Fig.9 M-H loops of Tb-Fe thin films. ($H_m=800 \text{kA}/\text{m}$)

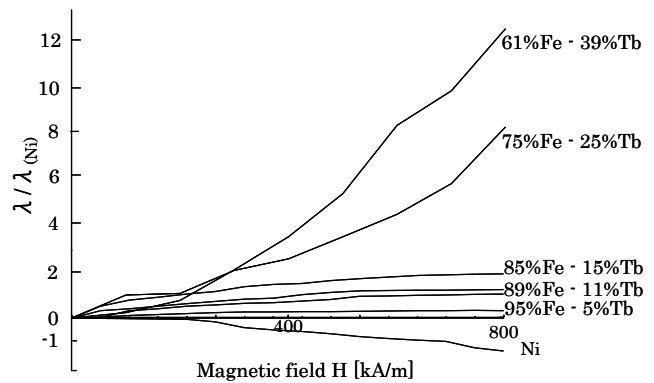


Fig.10 Dependence of Magnetostriction (ratio of Ni value) of Tb-Fe thin films on magnetic field.

3.3 ストレインゲージ法による磁歪特性

真空蒸着法によりポリイミドフィルムに成膜を行った Tb-Fe 薄膜における Tb 組成比を変化させ最大印加磁界 $800 [\text{kA}/\text{m}]$ における磁歪特性を Fig.10 に示す。なお、薄膜試料でのストレインゲージ法による磁歪測定は各試

料ともポリイミドフィルム上に成膜を行っているが内部応力や拘束力が発生しているため測定が困難であるため、Ni 薄膜との比較を行うものとする。Fig.10 より、印加磁界の増加に伴いストレインゲージ法で得られた磁歪量は、増加する傾向を示し、25%Tb 以上の組成で急激に増加した。次に、印加磁界 $H_m=800[\text{kA/m}]$ の時の Tb-Fe 薄膜の磁歪特性の Tb 組成比依存性を Fig.11 に示す。

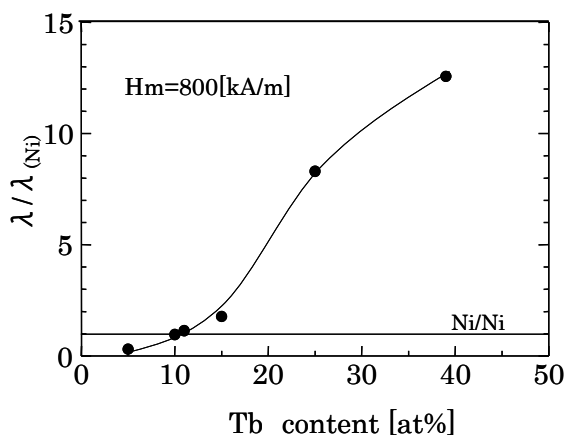


Fig.11 Dependence of ratio of Ni value) of Tb-Fe thin films on Tb content.

Ni 薄膜での磁歪定数を 1 とし Tb-Fe 薄膜の磁歪量を比較すると 15%Tb ではほぼ同程度であるが、Tb の組成比を増加させるに連れ変化量は増加する傾向を示し、40%Tb では Ni 薄膜に対し約 12.5 倍と大きな値を示した。以上の磁歪特性を数値化すると Table1 になる。

Table1 Magnetostriction value (ratio of Ni value) in magnetic field 800[KA/m] of Tb-Fe thin films.

	λ_s	$\lambda / \lambda_{(Ni)}$
Ni Thin films	-6.0×10^{-6}	1
Ni Balk	-33.0×10^{-6}	5.5
5%Tb - 95%Fe	1.82×10^{-6}	0.30
10%Tb - 90%Fe	5.80×10^{-6}	0.96
11%Tb - 89%Fe	6.82×10^{-6}	1.13
15%Tb - 85%Fe	10.6×10^{-6}	1.77
25%Tb - 75%Fe	49.8×10^{-6}	8.30
39%Tb - 61%Fe	75.4×10^{-6}	12.5

表より Ni 薄膜と Ni バルクを比較しても約 5.5 倍であることが分かる。

4 まとめ

真空蒸着法を用いて Tb の組成比を変化させ Tb-Fe 系薄膜を作製し熱処理を施した試料の、結晶構造及び磁気特性を検討した結果をまとめると次の通りである。

(1) 作製した Fe 及び Tb 薄膜での X 線回折において母材と作製した薄膜とでは配向性が変化していた。また、Tb-Fe 薄膜においては Tb からの回折線は確認されなかったが Tb の組成が増加するに連れ α -Fe(110)からの回折線が減少し、25%Tb-75%Fe の時に α -Fe(110)からの回折線が消失した。このことから Tb と Fe は混相で Tb ならびに Fe がアモルファス化したと考えられる。

(2) VSM 及びバランシングコイル型トルク計による磁気特性において、飽和磁化 M_s は Tb の減少に伴い純 Fe の標準飽和磁化値である $2.74 \times 10^{-4}[\text{Wb} \cdot \text{m/kg}]$ に近づく傾向を示し、15%Tb 付近において急激に減少した。また、保磁力 H_c は Tb の増加に伴い増加する傾向を示した。磁気異方性では保磁力と同様に、Tb の増加に伴い増加する傾向を示した。

(3) 印加磁界 800[kA/m] で最大を示した 39%Tb-61%Fe において、Ni 薄膜の 12.5 倍であった。報告されている Ni の磁歪定数が $\lambda_s = -33 \times 10^{-6}$ であり 60%Fe-40%Tb が $\lambda_s = 350 \times 10^{-6}$ であることから約 10.6 倍であり、それにほぼ近い値となった。Tb-Fe の組成比を変化させることにより、磁歪量が変化することが明らかになった。

参 考 文 献

- (1) A.E.クラーク 江田 弘:「超磁歪材料」日刊工業
- (2) 脇若弘之, 渡辺利彦, 梅本美之, 清宮照夫, 牧村美加:「超磁歪薄膜の力センサーへの応用」日本応用磁気学会誌 26,543-546(2002)