

貴金属フリーFeCo 磁性薄膜の X 線構造解析と磁気特性解析 X-ray diffraction and magnetic property analysis of rare-metal-free FeCo magnetic thin film

小嗣 真人^a、熊谷 卓也^a、宮下 拓也^a、齋藤 彪我^a、中尾 太一^a、古矢 大悟^a、小金澤 智之^b
Masato Kotsugi^a, Takuya Kumagai^a, Takuya Miyashita^a, Hyuga Saito^a, Taichi Nakao^a, Daigo Furuya^a,
Tomoyuki Koganezawa^b

^a東京理科大学, ^b(公財)高輝度光科学研究センター
^aTokyo Univ. of Science, ^bJASRI

本研究ではレアメタルフリー新規磁性材料 $L1_0$ -FeCo の実現を目標に、パルスレーザーによる単原子交互積層法で作成した FeCo 薄膜を対象に構造解析を行った。実験では放射光 XRD を用いた構造解析を行い、 $L1_0$ -FeCo の格子ひずみや規則度に着目して解析を行った。またオフライン実験として RHEED 解析および SQUID 解析を実施した。構造と磁性の実験データを多角的に比較検討し、磁気異方性の向上の指針を調査した。

キーワード： $L1_0$ -FeNi 規則合金、XRD、格子定数、規則度解析、磁気異方性との相関

背景と研究目的：

近年の情報化社会の発展や持続可能な社会への取り組みが急速に進んでおり、環境低負荷で高性能な磁性材料の開発が求められている。これまで我々のグループでは、 $L1_0$ -FeNi 規則合金磁性体材料の創製や解析を行い、レアアースフリーでありながら高性能磁性体材料の実現に向けた研究を進めてきた。 $L1_0$ 型 FeCo 規則合金($L1_0$ -FeCo)は、鉄とコバルトを原子層レベルで交互に積層した正方晶系(fct)の規則合金として特徴づけられる。 $L1_0$ -FeCo は、レアアースフリーだけでなく、遷移金属合金中最大の磁気モーメント(約 1700 emu/cc)を示し、高いキュリー点(940 K)と高い磁気異方性(1.7×10^8 erg/cc)を発現することが予測され[1]、次世代の永久磁石材料やスピントロニクス材料として期待が高まっている。しかし、FeCo 合金の最安定構造は B2 構造(bcc-based)であり、 $L1_0$ 構造(fcc-based)は非平衡構造となることから[2]、構造の維持が非常に困難であり、未だに作製プロセスの確立には至っていない。本研究では、規則構造を維持しつつ磁気モーメントの低下を避けるために Ni バッファー層を採用し[3]、バッファー層数の変化に加え、温度依存性の調査による $L1_0$ -FeCo の最適な成膜条件の調査を行ったため、結果を報告する。

実験：

試料作製は Nd: YAG レーザー(波長 266 nm)を備えた PLD 装置を用いて行った。MgO(100)単結晶基板をアニール処理後、室温で Cu(50 nm)を蒸着し、その後 300°C でポストアニールし、下地層とした。単原子交互積層により 50 ML 近傍の厚みで繰り返し単位の FeCo 層を 7 層とし、Ni バッファー層数を 1~3 層に変化させ、(7 ML-FeCo/x ML-Ni buffer)_y(x=1, 2, 3 y=4, 5)を作製した。その際の T_s を RT, 450, 600°C と変化させてプロセス条件を調査した。物性解析は、反射高速電子回折(RHEED)、原子間力顕微鏡(AFM)により表面構造の評価、X 線回折(XRD)により構造解析を行った。また、磁気特性評価は超伝導量子干渉(SQUID)磁力計を用いて行った。得られた構造及び磁気特性の結果を多角的に比較検討することで、磁気異方性向上の指針獲得を試みた。

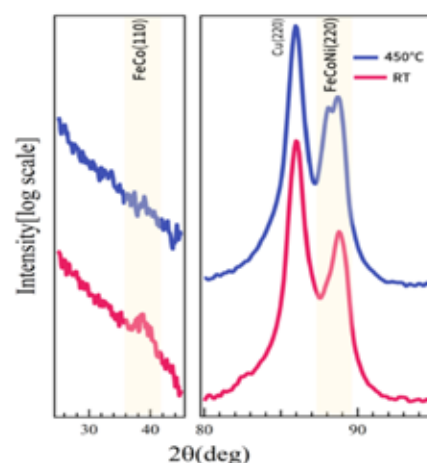


Fig.1 In-plane XRD patterns measured using synchrotron radiation with X-ray Energy of 7.11 keV for (7 ML-FeCo/3 ML-Ni)₃ films

結果および考察：

RHEED の結果からは、全ての温度域で B2 構造への転移は抑制され、fcc-like な構造の維持を確認した。Fig. 1 に各成長温度で作製した(7 ML-FeCo/3 ML-Ni)₅ 膜の面内 XRD パターンを示す。その結果、FeCo(110)でのピークを室内蒸着にて確認した。その後、X 線異常散乱(AXS)による回折強度変化が見られたことから L1₀-FeCo 相の形成を確認した。また T_s=450°Cにおいて、FeCo と Ni に由来する(220)ピークが分離しており、加熱によってひずみが導入されたことが示唆された。Fig. 2 に (7 ML-FeCo/3 ML-Ni)₅ の磁気特性のバッファ層数依存性および成膜温度依存性を示す。飽和磁化(M_s)は単位体積あたりの FeCo 比率が高くなったことでバッファ層数の減少とともに増加した。これはスレーターポリング曲線の結果と一致する。その一方で、結晶磁気異方性エネルギー(K_u)は、バッファ層数を 3 層において最大値をとり、T_s = 450°Cの試料において最大値 K_u = 2.2 × 10⁶ erg/cc を示した。本試料は FeCoNi の合金化に伴う規則度の低下が認められる一方で、c 軸歪みが確認されることから、格子ひずみが磁気異方性の向上に寄与していることが示唆された。

本研究では、高磁気異方性材料 L1₀-FeCo の作製プロセス・条件の検討を目的に、成長温度やバッファ層数を変化させて(7 ML-FeCo/3 ML-Ni)₃ 多層膜の作製及び機能解析を行った。その結果、構造及び磁気特性の観点から、今回作製した範囲における(7 ML-FeCo/x ML-Ni)_y 多層膜の作製においては加熱による合金形成が適していることが示唆された。今後は、膜質の改善により L1₀ 規則化を促すことで高い磁気異方性を設計するとともに、作製プロセスの違いによる合金構造の調査が必要である。

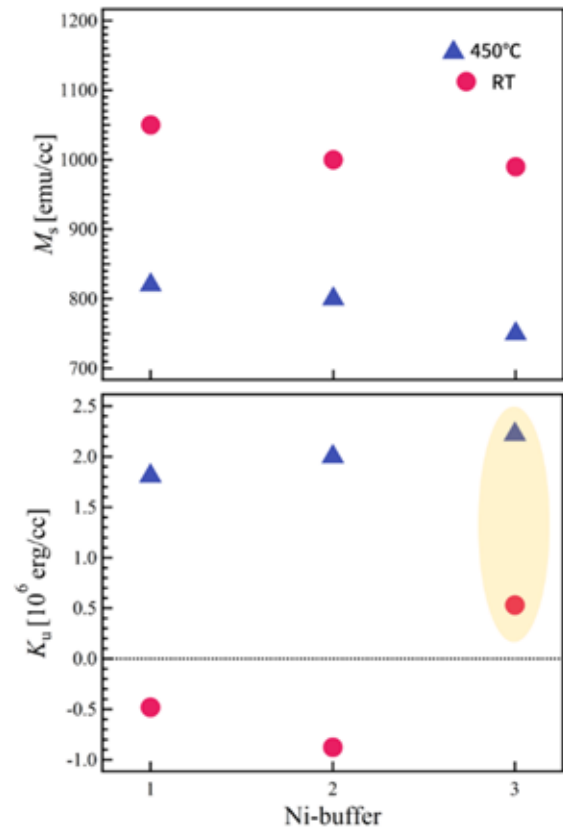


Fig.2 Magnetic properties on the number of buffer layers and growth temperature dependence for (7 ML-FeCo/3 ML-Ni)₃ films

試料：FeCo 薄膜 10 mm×10 mm 角、PLD による単原子交互積層により作製

実験条件：BL46XU

・回折・散乱の場合

X 線エネルギー (7.10 keV)、入射 X 線形状 (IS: 0.5 mm, RS: 2 mm)

多軸回折装置

入射角:0.28°、面内測定、検出器 (NaI シンチレーションカウンタ)

・その他測定環境条件

室温、He 置換

参考文献：

- [1] M. Kotsugi *et al.*, *J. Magn., Magn. Matt.* **326**, 235, (2013).
- [2] T. Kojima *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 010204, (2012).
- [3] M. Saito and M. Kotsugi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 072404 (2019).
- [4] H. Ito and M. Kotsugi *et al.*, *AIP Adv.*, **9**, 045307 (2019).