

X線回折による L1₀ 型 FeNi 超格子の構造評価 Analysis on Crystal Structures of L1₀ Type FeNi Films by X-ray Diffraction

水口 将輝^a, 小嶋 隆幸^a, 櫻田 俊^a, 高梨 弘毅^a, 小嗣 真人^b, 大坂 恵一^b, 小金澤 智之^b
Masaki Mizuguchi^a, Takayuki Kojima^a, Takashi Sakurada^a, Koki Takanashi^a,
Masato Kotsugi^b, Keiichi Osaka^b, Tomoyuki Koganezawa^b

^a 東北大学 金属材料研究所, ^b(財)高輝度光科学研究センター
^aIMR-Tohoku Univ., ^bJASRI

放射光を用いた X 線回折により、次世代磁気記録材料の一つとして期待される L1₀ 型規則合金である FeNi 薄膜の結晶構造評価を行った。分子線エピタキシー法により作製した FeNi 薄膜の微小角入射 X 線回折スペクトルを測定したところ、磁気異方性が長距離規則度に比例して増加することが分かった。また、膜厚が薄すぎても厚すぎても規則度が小さくなり、おおむね 20~100 程度の積層回数が最適であることが分かった。今後、より規則度の高い L1₀-FeNi 薄膜を作製するための重要な知見が得られた。

キーワード： X 線回折、結晶構造、規則合金

背景と研究目的：

近年、高速インターネット通信の普及、デジタルハイビジョン放送の開始などを背景に、取り扱うデータ量は加速度的に上昇している。その大量データを保存活用するために、高速性やコストに優れた磁気記録媒体がストレージ機器の主力として研究開発されている。次世代磁気記録材料の一つとして L1₀ 型の FePt および CoPt 規則合金が盛んに研究されているが、Pt は価格が高騰しており、代替素材の登場が望まれている。我々は、そのようなレアメタルフリーの記録媒体として、材料が潤沢で安価な Fe と Ni を用いて、L1₀ 型 FeNi 規則合金の作製を推進してきた[1-5]。最近、分子線エピタキシーの技術を活用することで、L1₀ 型の人工格子を作製するに至った。これは、Fe および Ni を 1 原子層ずつ交互に積層して作製したものである。通常の FeNi は不規則相として知られており、磁気特性も L1₀-FeNi のそれとは大きく異なる。格子の規則度や格子歪みに強く依存して、磁気記録媒体の機能性である磁気異方性は急激に変化することが知られている。磁気異方性の起源は一般的にはスピン軌道相互作用に寄るものであり、格子状態と磁気特性が密接に関連して生じる。Co と Pt の場合では原子半径には大きな差があるが、Fe と Ni のそれはほぼ等しく、これが規則化を困難にしている一因と予想される。つまり、安価で環境に優しい大容量磁気記録媒体を実現させるためには、FeNi の結晶構造をこれまで以上に詳細に研究する必要がある。そこで、我々は、放射光 XRD を用いて試料の結晶構造を高い精度で評価することにより、優れた機能性を呈する人工格子の構造特性を明らかにする事を目的として、研究を進めた[4]。放射光 XRD は、その光源強度が強だけでなく、入射光のエネルギーを選択することが可能なことから、異常分散法を用いた合金の規則度の測定が可能である。特に今回は、FeNi 層の積層回数に依存して L1₀ 長距離規則度がどのように変化するかを調べたのに加え、規則度と磁気異方性の相関を明らかにすることを目指した[6]。

実験：

試料の作製は、分子線エピタキシー法により行った。MgO 基板上にシードレイヤーとして Fe を 1 nm 蒸着し、Au を 20 nm、Cu を 50 nm 蒸着した後、Au、Cu および Ni を同時に蒸着し Au-Cu-Ni 合金バッファ層を作製した。その後、Fe と Ni を単原子層毎に交互に積層させて薄膜作製を行なった。基板温度および蒸着レートを精密に制御し、単原子交互積層を行った。今回測定した試料は、基板温度を 40、67、100、127、157、187、217°C と様々に変えた試料と Fe/Ni の積層回数を 5~200 回と様々に変えた試料である。放射光を用いた X 線回折実験は、BL46XU でアンジュレータ光源からの X 線により行った。多軸 X 線回折計を用い、試料の微小角入射 X 線回折を行った。X 線の入射エネルギーは、6.90 eV~7.14 eV の範囲で行った。測定温度は室温であり、FeNi(110)

超格子ピークと FeNi(200)基本ピークの強度比から L1₀ 構造の長距離規則度を算出した。

結果および考察：

図 1 に、40°C および 187°C の基板温度で作製した L1₀-FeNi 薄膜と Fe と Ni を同時蒸着で作製した FeNi 合金薄膜の XRD スペクトルを示す。同時蒸着の試料では、FeNi(200)基本ピークは観測される一方で、FeNi(110)超格子ピークは観測されなかった。一方、40°C で蒸着した交互積層薄膜では、超格子ピークが現れ始め、187°C で作製した試料では明確な超格子ピークが観測された。

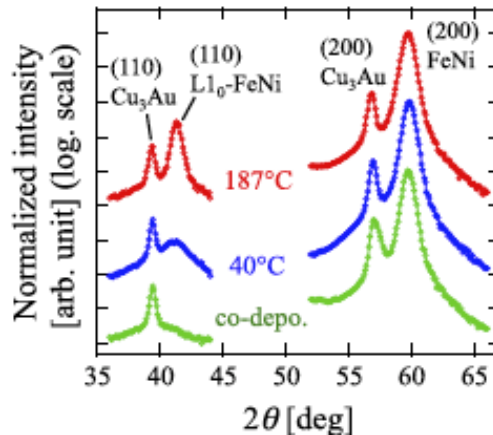


図 1. 40°C および 187°C の基板温度で作製した L1₀-FeNi 薄膜と Fe と Ni を同時蒸着で作製した FeNi 合金薄膜の XRD スペクトル。

図 2 に、異なる基板温度で成膜し、規則度を変調した L1₀-FeNi 薄膜の磁気異方性と規則度の関係を示す。磁気異方性が規則度に比例して増加することが明らかとなった。現在は結晶磁気異方性が形状磁気異方性よりも小さいため、その容易化軸は膜面内方向であるが、今後、規則度が 0.7 程度を上回る試料を作製することができれば、垂直磁化膜が得られることが期待される。

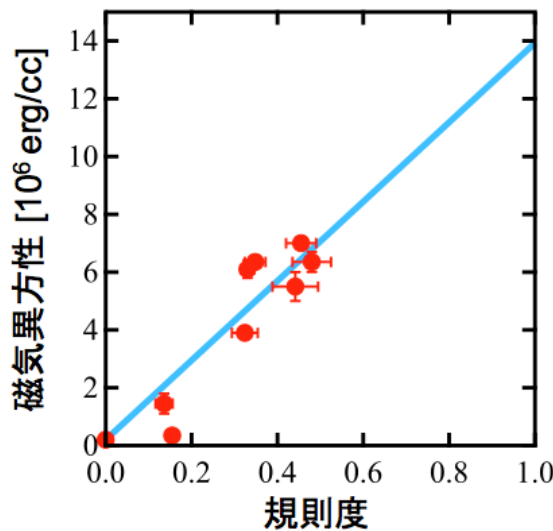


図 2. 様々な基板温度で作製した L1₀-FeNi 薄膜の磁気異方性と規則度の関係。

図 3 に膜厚を変えて作製した L1₀-FeNi 薄膜の規則度の交互積層回数(膜厚)依存性を示す。膜厚が薄すぎても厚すぎても規則度が小さくなり、おおむね 20~100 回程度の積層回数が最適であることがわかった。これは、膜厚が薄い時には歪みの緩和が十分でないため規則度が小さい一方、膜厚が厚すぎると蒸着レートのおおむね積算し、規則度を低下させる原因になっているためと考えられる。これらの結果により、最適な成膜温度および膜厚が明らかとなり、今後、より規則度の高い L1₀-FeNi 薄膜を作製するための重要な知見が得られた。

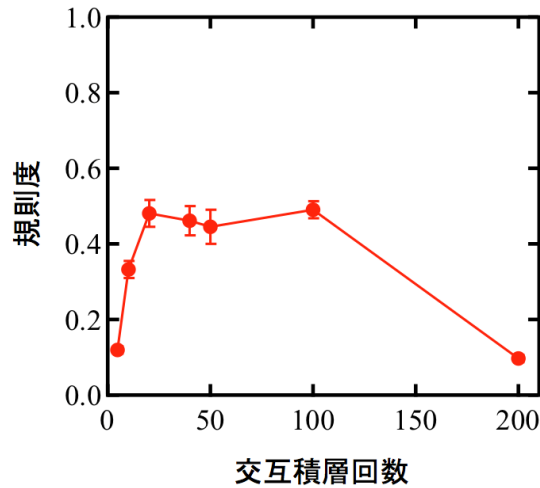


図 3. L1₀-FeNi 薄膜の規則度の交互積層回数(膜厚)依存性。

今後の課題：

今後は、バッファ層の最適化と L1₀-FeNi 層の結晶構造の相関を探っていく必要がある。また、より簡便なスパッタリング法などにより作製した FeNi 薄膜の X 線回折も進めていく予定である。

参考文献：

- [1] T. Shima *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **310**, 2213 (2007).
- [2] M. Mizuguchi *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A716 (2010).
- [3] T. Kojima *et al.*, *J. Phys. Conf. Ser.*, **266**, 012119 (2011).
- [4] M. Mizuguchi *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **35**, 370 (2011).
- [5] M. Kotsugi *et al.*, *J. Phys. Conf. Ser.*, **266**, 012095 (2011).
- [6] T. Kojima *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **51**, 010204 (2012).