

高磁気異方性を有する CoNi 人工規則合金薄膜における積層構造の決定 Determination of Layer Stacking of CoNi Artificial Ordered Alloy Films with High Magnetic Anisotropy

関 剛斎^a, 菊池 直登^a, 周 偉男^a, 小金澤 智之^b, 高梨 弘毅^a
Takeshi Seki^a, Naoto Kikuchi^a, Weinan Zhou^a, Tomoyuki Koganezawa^b, Koki Takanashi^a

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

原子層単位で積層制御した垂直磁化 CoNi 人工格子において、積層構造の種類と磁気異方性の相関を理解し、Co 層と Ni 層の積層構造を制御することで磁気特性を向上させることは、スピントロニクスデバイスの機能拡張のために不可欠である。本研究では、CoNi 人工格子の成長に用いる下地層材料を変化させることで、hcp 型あるいは fcc 型の積層構造を作り分けることを目的とした。具体的には、hcp 構造を有する Ru 下地層上に成長した CoNi 人工格子の積層構造や規則構造を同定するため、二次元検出器および異常分散効果を活用した X 線回折による精密構造解析を行った。その結果、Ru 下地層上に作製した CoNi 人工格子が fcc の積層構造を有して成長していることが明らかとなった。

キーワード： CoNi 垂直磁化膜、X 線回折、異常分散効果、積層構造の同定

背景と研究目的：

電源を切っても記録情報が消失しない磁気記憶デバイスは、低消費電力動作が可能な超高密度ストレージの一つとして高度情報化社会の発展の一端を担っている。磁気記憶デバイスの更なる超高記録密度を実現するためには、記録ビットとして使用する磁化の熱安定性を担保する観点から、高磁気異方性材料が不可欠である。しかしながら、代表的な高磁気異方性材料は Pt や Pd などの貴金属元素あるいは希土類元素など資源枯渇が危惧される元素を多く含んでおり、代替材料の開発が急務となっている。我々は、Co 層と Ni 層からなる金属人工格子が膜面垂直に一軸磁気異方性を有することに着目し、この Co 層と Ni 層を一原子層ずつ積層制御できれば、磁気異方性が増強された新しい人工規則合金が得られる可能性があると考えた。これまでの研究において、Co/Ni 多層膜をエピタキシャル成長させることにより、多結晶の Co/Ni 多層膜と比較して磁気異方性を増大できることを報告してきた[1]。さらに、2016A 第 2 期のビームタイムに行った実験から、V/Au 下地層上に単原子層で交互積層した CoNi 人工格子において、fcc 積層の $L1_1$ 型規則構造が形成されている可能性が示唆され[2]、加えて規則構造の形成に起因する磁気異方性エネルギーの増大も観測された。

CoNi 人工格子では、Co 層と Ni 層が(111)配向した際に垂直磁気異方性が発現するため、一原子層の交互積層という極限では fcc 積層の $L1_1$ 型の他にも hcp 積層の B_h 型規則構造が考えられる。理論計算によると、hcp 積層した B_h 型規則構造が実現できれば、 $L1_1$ 型 CoNi 規則合金よりも高い磁気異方性エネルギーが得られると予測されている。

そこで本研究では、hcp 積層した CoNi 人工格子の実現を目指し、CoNi 人工格子を成長させるための下地層材料を変化させることで、hcp 型あるいは fcc 型の積層構造を作り分けることを検討した。積層構造は、多軸 X 線回折計と二次元検出器を用いて評価した。規則構造が形成されているか否かの評価には、X 線回折パターンにおける超格子反射線の回折強度を用いた。超格子反射線の強度は異種元素の原子散乱因子の差分の 2 乗に比例するため、原子番号が隣り合った Co と Ni によって構成される規則構造の超格子反射線を観測するのは容易ではない。そこで、高輝度放射光施設において X 線の異常分散効果を活用した。

実験：

分子線エピタキシー法を用いて薄膜試料を作製した。本研究では、hcp の結晶構造を有する Ru を下地層として用いた。サファイア(11-20)面単結晶基板上において、20 nm 厚の Ru 下地層を成長

させた後に、Ni 層および Co 層を交互に積層させ、最後に Au の保護層を成膜した。今回の試料では、Co 層厚を 1 原子層に固定し、Ni 層の原子層数を変化させた。ここで 0.20 nm が 1 原子層に相当する。平坦かつエピタキシャル成長した Ru 下地層を得るため、Ru 下地層の成長温度およびアニール温度を様々に変化させた。一方、CoNi 人工格子の成長温度は室温とした。

本研究では、BL46XU のビームラインにて、異常分散効果を利用した X 線回折測定を行った。X 線エネルギーを Co のエネルギー吸収端となる 7.71 keV、および Co のエネルギー吸収端からずらした 7.6keV とし、超格子反射線の有無について評価した。また、反射率測定を行うことにより人工格子の周期構造を調べた。さらに、12.4 keV の X 線エネルギーにおいて、HUBER 製 8 軸回折計と 2 次元検出器 Pilatus を用いることで、結晶の配向、エピタキシャル関係、および積層構造の同定を行った。測定は全て室温で行い、He を充満させたカプトンドーム内に測定試料をセットした。典型的な試料サイズは、10 mm 角である。

結果および考察：

Ru 下地層の成長温度を 300°C から 600°C まで変化させた試料について、それらの結晶配向を多軸 X 線回折計と 2 次元検出器で評価した。図 1 に、400°C で成長した Ru 下地層の 2 次元 X 線回折パターンを示す。パターンには複数のスポットが観測され、回折を同定した結果、hcp 型の Ru 層が(0001)配向していることが確認された。この構造解析の結果、Ru 層をサファイア(11-20)単結晶基板上にエピタキシャル成長させ、(0001)配向の Ru 下地層を実現するには 400°C 以上の成長温度が必要となることが明らかとなった。一方で、表面形態の観点では、低い成長温度が平坦な表面を実現するために好ましいことがわかった。

そこで、400°C で成長した Ru 下地層上に Ni 単原子層および Co 単原子層を交互積層させ、CoNi 人工格子を作製した。同様に 2 次元の X 線回折パターンを測定したところ、CoNi 人工格子は fcc 型の積層で成長していることが確認された。このことから、今回用いた下地層および CoNi 人工格子の成長条件では、fcc 型の積層構造が優勢であり、hcp 構造は得られないことがわかった。

また、上記の薄膜試料について Co のエネルギー吸収端となる 7.71 keV を用いた一次元の X 線回折パターンを測定したが、V/Au 下地層上の CoNi では観測された超格子反射が Ru 層上の試料では観測されなかった。このことは、規則構造を形成させるという観点においても、Ru 下地層の成長条件の最適化が十分ではないことを示唆している。

今後の課題：

上記のように、hcp 積層や規則構造を得るという観点で、今回用いた Ru 下地層は十分な結晶配向性および表面平坦性を有していないものと推察される。今後は、基板の前処理方法などを再検討することで、Ru 下地層の成長条件の最適化を行う必要がある。

参考文献：

- [1] A. Shioda, T. Seki, J. Shimada, and K. Takanashi, *J. Appl. Phys.* **117**, 17C726-1-4 (2015).
- [2] 関剛斎 他、平成 28 年度 産業利用課題実施報告書(2016A), 2016A1751.

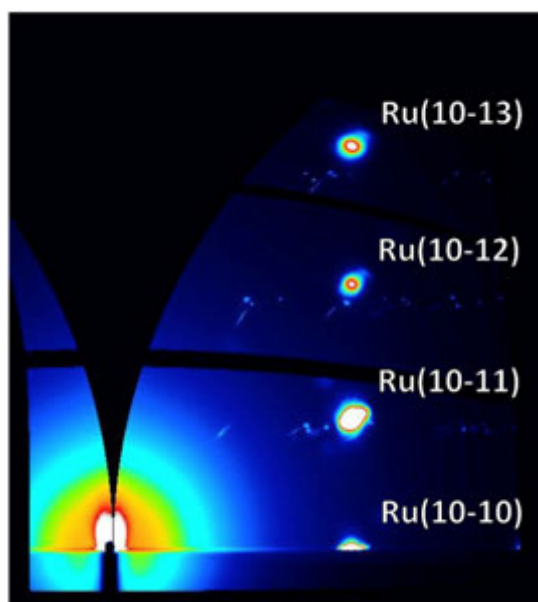


図 1. サファイア(11-20)単結晶基板上に基板温度を 400°C で成長した Ru 下地層の 2 次元 X 線回折パターン。HUBER 製 8 軸回折計と 2 次元検出器 Pilatus を用いて測定した。ダイレクトビームを中心に、動径方向が 2θ 角、方位角方向が χ 角に対応している。