

X線回折による超格子薄膜磁石材料の構造評価解析 Structural Characterization of Superlattice Magnetic Films by X-ray Diffraction

伊藤 啓太^a, 林田 誠弘^a, 増田 啓人^a, 小金澤 智之^b, 水口 将輝^a, 高梨 弘毅^a
Keita Ito^a, Masahiro Hayashida^a, Hiroto Masuda^a, Tomoyuki Koganezawa^b, Masaki Mizuguchi^a,
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

一軸磁気異方性エネルギー(K_u)が大きな強磁性体材料には希土類または貴金属元素が含まれているものが多く、元素戦略上これらの元素を含まない新しい材料が必要とされている。我々は $L1_0$ -FeNi 規則合金に注目して、単結晶薄膜の作製と Fe-Ni 長距離規則度(S)および K_u の向上に取り組んできた。本実験課題では、分子線エピタキシー法により作製した FeNiN 薄膜に対する脱窒素熱処理により $L1_0$ -FeNi 薄膜を作製し、異常分散 X 線回折測定により超格子反射の観測と S の評価を行った。結果、 S と K_u の正の相関が明らかとなり、最大で $S=0.87$ が得られた。

キーワード： 永久磁石材料、 $L1_0$ -FeNi、異常分散 X 線回折、脱窒素法

背景と研究目的：

現代社会において、強磁性体材料はモーターやコンピュータの記録媒体などの身の回りの様々な製品に使用され、欠かすことのできないものとなっている。これらの製品の高性能化には、高い一軸磁気異方性エネルギー(K_u)を有する強磁性体材料が必要であるが、主な高 K_u 材料は希少元素(希土類、貴金属)を含んでおり、安価な元素での代替が重要とされている。そこで、本研究グループでは希少元素を含まない高 K_u 材料として $L1_0$ -FeNi に着目した[1]。これまでに、FeNiN 粉末に対する脱窒素法により Fe-Ni 長距離規則度(S)が比較的大きな($S=0.71$)多結晶 $L1_0$ -FeNi 粉末の合成に成功しているが[2]、産業応用のためには S および K_u の更なる向上が必要である。しかし、脱窒素法により作製された $L1_0$ -FeNi の K_u の評価と S との相関の解明は、多結晶状試料のために実現できていない。そこで、単結晶状の FeNiN 薄膜に対する脱窒素法により単結晶状の $L1_0$ -FeNi 薄膜を作製し、本実験課題において異常分散 X 線回折(XRD)測定を用いて S を評価し、 K_u との相関を明らかにした。

実験：

Fe, Ni および高周波プラズマ N_2 の同時供給による分子線エピタキシー(MBE)法により、SrTiO₃(STO)(001)基板上に成膜温度(T_S)を変えて a 軸配向成長した FeNiN 薄膜(20 nm)をエピタキシャル成長した[3]。成膜後に試料を MBE 装置から取り出し、 H_2 雰囲気中、300°Cにおける脱窒素処理を行うことで $L1_0$ -FeNi 薄膜を作製した。作製した試料に対し、SPring-8 BL46XUにおけるアンジュレーター光源からの X 線を用いて、面内 XRD 測定を行うことで S を評価した。測定には HUBER 社製多軸回折計を用い、検出器には NaI シンチレーションカウンターを、受光側はダブルスリット光学系を用いた。測定温度は室温で、入射 X 線のエネルギーは Fe の吸収端である 7.11 keV を用い、異常分散効果を用いて $L1_0$ -FeNi 001 超格子反射を測定した。また、同じセットアップで $L1_0$ -FeNi 002 基本反射も測定し、回折ピークの積分強度比から S を算出した。

結果および考察：

Cu $K\alpha$ 線源を用いた XRD 測定から、作製した $L1_0$ -FeNi 薄膜は a 軸配向しており、膜面内の STO[100]および[010]に沿って c 軸が倒れたバリエーションを有することを確認した。また、磁化測定と磁気トルク測定から膜面内の c 軸に沿って一軸磁気異方性が付与されていることを確認し、 K_u を算出した。

Fig. 1 に FeNiN 薄膜の T_s を変えて作製した、脱窒素後の L1₀-FeNi 薄膜の異常分散 XRD パターンを示す。L1₀-FeNi 001 の超格子反射が観測され、 T_s の上昇に伴う強度の上昇が確認された。

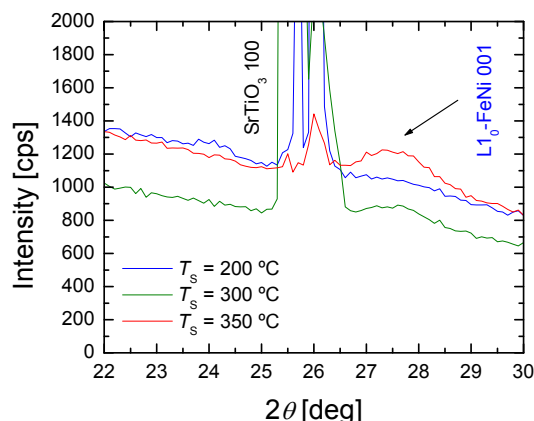


Fig. 1 各試料の L1₀-FeNi 001 超格子反射ピーク付近 XRD パターン

測定により L1₀-FeNi 001 および 002 回折ピークを得ることができたため、それらの回折ピークの積分強度比と理論強度比を用いて S を算出した。Fig. 2 に K_u および S の FeNiN 薄膜の T_s 依存性を示す。 T_s が上がるほど K_u および S が増大する結果が得られ、正の相関関係が明らかとなった。 T_s が高いほど FeNiN 薄膜の S が大きいため、脱窒素後の L1₀-FeNi 薄膜の S も大きいと考えられる。最大で $K_u = 5.9 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ および $S = 0.87$ が得られ、 S に関してはこれまでに報告されている L1₀-FeNi 薄膜の値 ($S \sim 0.5$) [4] を大きく上回った。FeNiN に対する脱窒素法による L1₀-FeNi の作製が、粉末のみならず薄膜にも有効な手法であることが明らかとなったことから、今後はより高品質な FeNiN 薄膜を作製して脱窒素処理を行うことで、より高い K_u と S の実現を目指す。

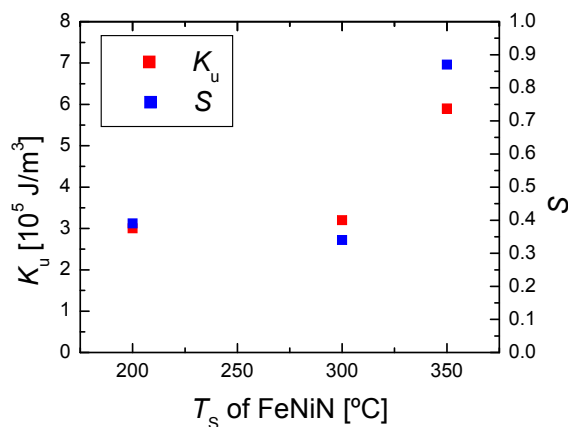


Fig. 2 K_u および S の FeNiN 薄膜の T_s 依存性

今後の課題：

より高い K_u を実現するためには、バリエントが存在しない c 軸配向した L1₀-FeNi 薄膜の作製が必要であり、将来的にはそれらの試料の S の評価も必要と考える。

参考文献：

- [1] T. Takanashi *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 483002 (2017).
- [2] S. Goto *et al.*, *Sci. Rep.* **7**, 13216 (2017).
- [3] K. Ito *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **43**, 79 (2019).
- [4] T. Kojima *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 010204 (2012).