

垂直磁化 CoNi 人工規則合金薄膜における精密構造評価 Accurate Structure Characterization for CoNi Artificial Ordered Alloy Films with Perpendicular Magnetization

関 剛斎^a, 島田 淳平^a, 周 偉男^a, 小金澤 智之^b, 高梨 弘毅^a
Takeshi Seki^a, Junpei Shimada^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

垂直磁化を有する CoNi 人工格子において、規則構造の形成と磁気異方性の増大の間に相関があるかを明らかにすることは、スピントロニクスデバイスへの応用に際し重要な知見となる。本研究では、人工的な規則構造の形成とその積層構造の同定を目指し、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、規則構造の形成を示唆する回折ピークの観察および詳細な積層構造について情報を得ることに成功した。

キーワード： CoNi 垂直磁化膜、X 線回折、異常分散効果、構造の同定

背景と研究目的：

安定供給が可能な元素をベースとしたエレクトロニクス機器の高性能化は、生活の利便性を追求しつつエコで豊かな持続性社会を実現するための最重要課題の一つである。特に、ビッグデータやクラウドコンピューティングという用語が一般的になった今日において、膨大な情報を取り扱い低消費電力動作が可能な磁気ストレージに対する期待は大きい。磁性体を用いて超高記録密度を実現するためには、磁化の熱安定性を担保する観点から、磁気異方性の高い材料が必須となる。しかしながら、従来の高磁気異方性材料は Pt や Pd 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。我々はこれまでに、Co/Ni 多層膜をエピタキシャル成長させることにより、磁気異方性を増大できることを報告している[1]。

Co/Ni 多層膜では、薄膜が (111) 配向した際の一軸磁気異方性が発現する。そのため、一原子層積層という極限は fcc 積層の $L1_1$ 型や hcp 積層の B_1 型の規則構造に対応する。 $L1_1$ 型規則相が熱力学的に安定な CoPt 合金では、 $L1_1$ 型への規則化により大きな磁気異方性が発現することが知られているが、CoNi 合金の平衡状態図には $L1_1$ 型等の規則相が存在せず、CoNi 規則合金を作製したという報告は無い。

そこで本研究では、CoNi 規則合金を人工的に合成することを目指し、規則構造の形成と磁気異方性の増大の間に相関があるかを明らかにすることで、磁気異方性の向上を目的とする。規則構造の有無の評価には、X 線回折パターンにおいて超格子反射線を観測し、その回折強度を評価することが有効である。しかしながら、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することで、CoNi 人工格子薄膜における規則構造の形成の有無および詳細な積層構造の評価をこころみた。

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。サファイア a 面単結晶基板および熱酸化シリコン基板上において、10 nm 厚の V および 10 nm 厚の Au 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。本研究では、Co 層厚を 1 原子層に固定し、Ni 層の原子層数 (x) を変化させ、Ni 層厚に依存した構造の変化を調べた。ここで 0.20 nm

が1原子層に相当する。また、Co/Ni人工格子の成長時の基板温度を室温、100°C、200°Cおよび300°Cと変化させ、成長温度が規則構造の形成に与える影響についても検討した。

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の吸収端となる7.71 keV、およびCo吸収端からずらした7.6 keV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、多軸X線回折計（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：

図1に、(a) $x=4$ および (b) $x=2$ とした Co/Ni 人工格子の反射率測定結果を示す。成長温度を室温とした試料の結果である。下地層厚に起因した短周期の振動に加え、人工格子の周期構造に由来すると考えられるピークが観測された。この結果から、設計した層厚に近い人工格子が作製できていることが明らかとなった。また、2次元検出器による回折強度マッピングを行った結果、サファイア a 面単結晶基板上では、Au 層と Co/Ni 層がエピタキシャルに成長していること、および Co/Ni の積層構造が fcc 積層であることがわかった。

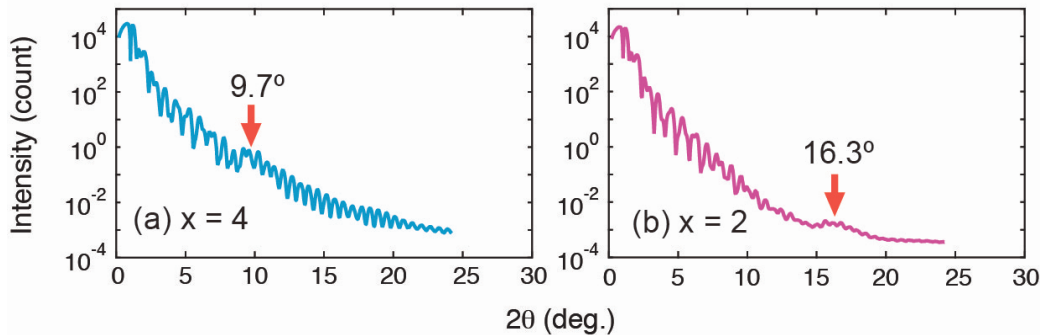


図1 Ni層厚を(a) $x=4$ および (b) $x=2$ とした Co/Ni 人工格子における反射率測定のプロファイル。

図2に、200°Cで成長した $x=1$ の Co/Ni 人工格子における X 線回折パターンを示す。X 線エネルギーを Co 吸収端の 7.71 keV とした場合、 2θ が 23° 付近にピークが観測されており、また X 線エネルギーを 7.6 keV に変化させることでピーク強度の減少が見られた。この結果から、観測されたピークは、CoNi が規則構造を形成していることに起因する超格子反射である可能性が示唆される。以上の構造解析より、200°C で成長した $x=1$ の Co/Ni 人工格子では、fcc 積層を有する規則構造が形成されているものと推察される。

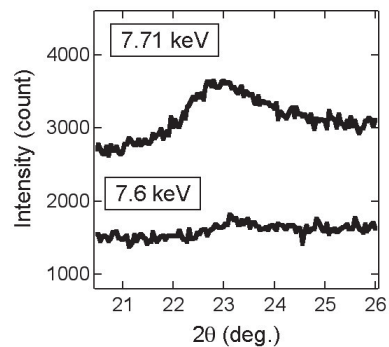


図2 200°Cで成長した $x=1$ の Co/Ni 人工格子における X 線回折プロファイル。

今後の課題：

今回の測定では、CoNi人工格子薄膜において超格子反射線の観測に成功したと考えられるが、その回折強度は極めて弱く、定量的評価には十分な回折強度ではない。今後は、CoNi人工格子薄膜の成長条件を最適化することで規則構造の形成を促進させ、そのような高品位な薄膜試料を用いて規則度の定量評価へと解析を進める必要がある。

参考文献：

[1] A. Shioda, T. Seki, J. Shimada, and K. Takanashi, *J. Appl. Phys.* **117**, 17C726-1-4 (2015).