

X線回折による FeNiN および L1₀ 型 FeNi 薄膜の構造評価 Structural Characterization of FeNiN and L1₀-type FeNi Films by X-ray Diffraction

伊藤 啓太^a, 林田 誠弘^a, 小金澤 智之^b, 水口 将輝^a, 高梨 弘毅^a
Keita Ito^a, Masahiro Hayashida^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少元素が含まれているものが多く、持続可能な社会の実現のためにはそれらを含まない新材料の開発が必要とされている。我々は L1₀ 型 FeNi 規則合金に着目して、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 L1₀ 型 FeNi 薄膜を作製し、異常散乱 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、Fe/Ni 組成比が 1:1 に近いほど大きな S が得られることが明らかとなった。

キーワード: 永久磁石材料、L1₀ 型 FeNi、異常散乱 X 線回折、脱窒素法

背景と研究目的:

高一軸磁気異方性強磁性体材料は、電気自動車のモーターやハードディスク等の磁気記録媒体に代表される様々な製品に使用され、現代社会において欠かすことのできない機能材料である。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だが、主な高 K_u 材料には希土類や貴金属等の希少元素が含まれており、持続可能な社会の実現のためには、資源が豊富な元素での代替が必要とされている。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 L1₀ 型 FeNi に着目している[1]。これまでに、FeNiN 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 L1₀ 型 FeNi の合成に成功しているが[2,3]、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。本実験課題においては、Fe/Ni 組成比が異なる FeNiN 薄膜およびそれらを脱窒素することで作製した L1₀ 型 FeNi 薄膜に対して、異常散乱 X 線回折 (XRD) 測定を行い Fe/Ni 組成比と S の関係を調べることで、 S の更なる向上を目指した。

実験:

Fe, Ni および高周波プラズマ N₂ の同時供給による分子線エピタキシー (MBE) 法により[4]、SrTiO₃ (STO) (001) 基板上に膜面垂直方向に a 軸配向した FeNiN 薄膜 (20 nm) を 350 °C でエピタキシャル成長した。Fe/Ni 組成比は Fe₄₅Ni₅₅、Fe₅₀Ni₅₀、Fe₅₅Ni₄₅ と変えた。続けて、成膜後に MBE 装置内で 350 °C で高周波 H₂ プラズマを照射しながら 2 ~ 16 h の脱窒素処理を行い、 a 軸配向した L1₀ 型 FeNi 薄膜を作製した。作製した試料に対し、室温において SPring-8 BL46XU におけるアンジュレーター光源からの X 線を用いた面内 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。入射 X 線のエネルギーは、FeNiN 薄膜については Cu K 吸収端の 8.04 keV、L1₀ 型 FeNi 薄膜については Fe K 吸収端の 7.11 keV に合わせた。同じセットアップで、試料の 001 超格子反射および 002 基本反射を測定し、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:

脱窒素前の FeNiN 薄膜に対する異常散乱 XRD 測定の結果、実験室系の Cu $K\alpha$ 線源を用いた XRD 測定では明瞭に観測できなかった、FeNiN 001 超格子反射の観測に成功した。図 1(a)-(c)に脱窒素後の Fe₄₅Ni₅₅、Fe₅₀Ni₅₀、Fe₅₅Ni₄₅ の異常散乱 XRD パターンをそれぞれ示す。脱窒素時間が長めで脱窒素が充分に進んだと考えられる試料では、L1₀ 型 FeNi 001 の超格子反射が観測された。表 1 に各試料の組

成比、脱窒素熱処理時間、 S をまとめた。Fe/Ni 組成比が 1:1 の試料において、0.7 を超える比較的大きな S が得られた。今回の実験結果から、Fe/Ni 組成比のストイキオメトリからのずれが、N 原子の脱窒素経路等に影響を与えて S の低下を引き起こしていることが示唆されたが、より詳細な今後の考察が必要である。

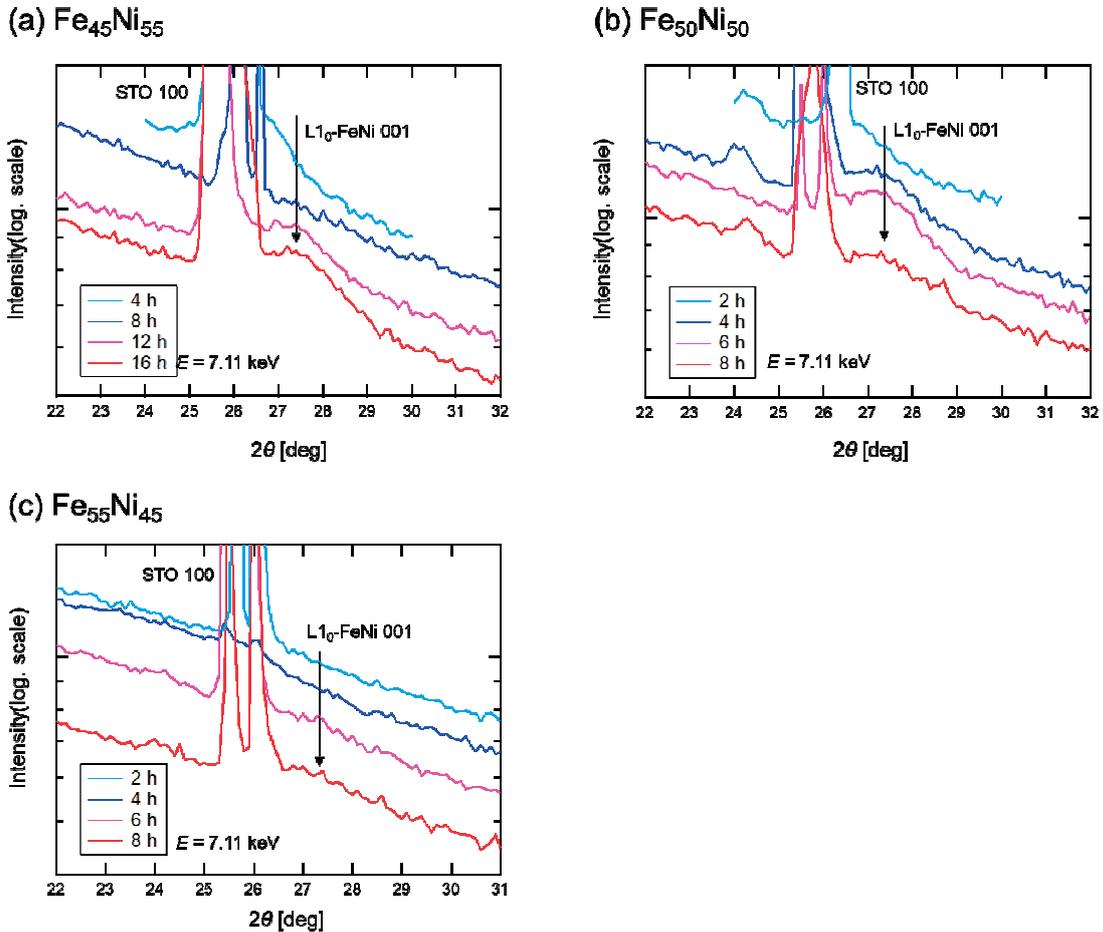


図 1 (a) $\text{Fe}_{45}\text{Ni}_{55}$ 、(b) $\text{Fe}_{50}\text{Ni}_{50}$ 、(c) $\text{Fe}_{55}\text{Ni}_{45}$ の各試料の面内異常散乱 XRD パターン

表 1 各試料の組成比、脱窒素熱処理時間、 S

組成比	脱窒素熱処理時間 [h]	S
$\text{Fe}_{45}\text{Ni}_{55}$	4	-
	8	-
	12	0.33
	16	0.36
$\text{Fe}_{50}\text{Ni}_{50}$	2	-
	4	0.76
	6	0.71
	8	0.75
$\text{Fe}_{55}\text{Ni}_{45}$	2	-
	4	-
	6	0.41
	8	0.34

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] T. Kojima *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 010204 (2012).
- [4] K. Ito *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **43**, 79 (2019).