

## 島状 FeNi 超格子合金配向薄膜の構造評価 Characterization of L1<sub>0</sub>-ordered FeNi Alloy Epitaxial Films with Island Structures by Anomalous Scattering X-ray Diffraction

西尾 隆宏<sup>a</sup>, 伊藤 啓太<sup>b</sup>, 市村 匠<sup>b</sup>, 高梨 弘毅<sup>b</sup>, 小金澤 智之<sup>c</sup>  
Takahiro Nishio<sup>a</sup>, Keita Ito<sup>b</sup>, Takumi Ichimura<sup>b</sup>, Koki Takanashi<sup>b</sup>, Tomoyuki Koganezawa<sup>c</sup>

<sup>a</sup> 株式会社デンソー,<sup>b</sup> 東北大学金属材料研究所,<sup>c</sup> (公財)高輝度光科学研究センター  
<sup>a</sup>DENSO CORPORATION,<sup>b</sup>IMR, Tohoku University,<sup>c</sup>JASRI

持続可能な地球環境構築に向けて、希少元素を含まない永久磁石材料が求められている。我々は L1<sub>0</sub>-FeNi 規則合金材料に注目し、FeNi 薄膜に窒化脱窒素法を適用することで、高規則度化と磁気特性向上の可能性を調べている。今回、スパッタリング法で成膜した島状 FeNi 薄膜に窒化脱窒素法を適用した薄膜試料について、X 線異常散乱回折実験を実施した。その結果、L1<sub>0</sub>型超格子構造に由来する回折ピークを確認し、L1<sub>0</sub>超格子構造及びその結晶配向が磁気性能に影響していることを支持する結果を得た。

**キーワード：** 永久磁石材料、L1<sub>0</sub>型、FeNi、薄膜、X 線異常散乱、窒化脱窒素法

### 背景と研究目的：

持続可能な地球環境構築に向けて、電気自動車や家電製品に搭載されるモーターの高効率化が求められており、永久磁石材料の需要拡大が見込まれる。しかしながら、これまでに開発されている実用的なレベルでの高い飽和磁化と保磁力をもつ磁石材料は、希少元素(希土類、貴金属)を含んでおり、安価で資源リスクのない元素での代替が必要になる。このような中で、我々は希少元素を含まず、高い耐熱性と磁気性能が期待される L1<sub>0</sub>-FeNi 規則合金に注目し、開発を進めている。

これまでに窒化脱窒素(NITE)法により Fe-Ni 長距離規則度(S)が 0.71 と比較的大きな強磁性 L1<sub>0</sub>-FeNi 粉末の合成に成功しているが [1]、産業応用のためには S 及び保磁力の更なる向上が必要である。この磁気粉末の開発と並行して、形態や微細組織が系統的に制御しやすい薄膜での基礎研究も進めている。分子線エピタキシー法により FeNiN 連続膜を製膜したのちに脱窒素することで作製した L1<sub>0</sub>-FeNi 薄膜では、基板に対して c 軸が面内配向しており、S が粉末と比較して高い 0.87[2]が得られていることを確認している。さらに最近、図 1 の模式図に示すようにスパッタリング法により自己組織化的に成長した島状 A1-FeNi 薄膜について NITE 処理 (図 2) をすることで、処理前と比較して高い磁気性能を実現できた[3]。そこで、異常散乱 X 線を用いた X 線回折(XRD)測定により、この島状 FeNi 薄膜の磁気性能の向上が L1<sub>0</sub>型構造や結晶配向に由来するものか X 線入射エネルギーを変えながら調査した。

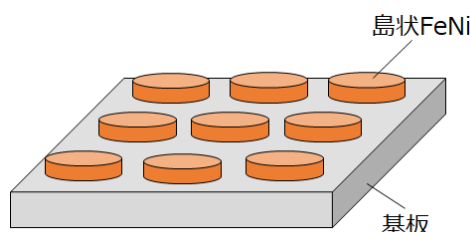


図 1 評価試料の概要

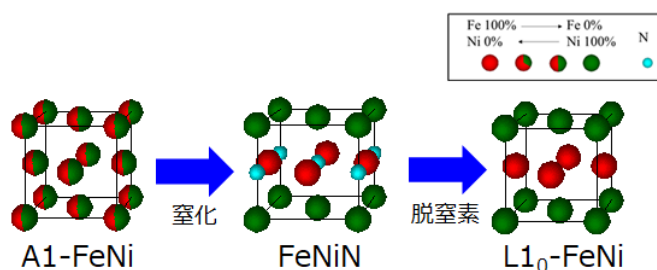


図 2 NITE 処理による結晶構造変化

### 実験：

(評価試料)

10 mm x 10 mm 角の基板に対し FeNi をスパッタ成膜した後、アンモニアガスによる窒化、および水素ガスによる脱窒素処理を実施し、NITE 処理した島状 FeNi 薄膜を得た。

(評価方法)

BL46XU でアンジュレータ光源からの X 線を用いて室温で面内 XRD 測定を実施した。HUBER 社製多軸回折計を使用し、評価する薄膜試料は、X 線空気散乱の低減および試料酸化防止を目的として、カプトドーム内に設置してヘリウム雰囲気中で測定した。入射ビーム径は 0.1 mm x 0.5 mm、入射 X 線エネルギーは Fe K 吸収端に合わせた 7.11 keV 及び、Fe K 吸収端近傍の低エネルギー側の 6.90 keV の二点の入射エネルギーで測定した。検出器には LaBr<sub>3</sub> シンチレーションカウンタを、受光側はダブルスリット光学系を用いた。測定入射角は 0.4°、試料のアライメントは、薄膜 FeNi 002 のピーク強度が最大となるように測定軸を調整した。

### 結果および考察：

図 3(a)に NITE 処理後の島状 FeNi スパッタ膜で得られた面内 XRD パターンの典型的な結果例を示す。低角側にシフトが見られるものの、L1<sub>0</sub>-FeNi001 超格子ピークが観察された。ここで、L1<sub>0</sub>-FeNi 110 に対応する  $2\theta = 40.27^\circ$  付近の超格子回折ピークが検出されていないことから、結晶配向している様子も確認できる。

また、図 3(b)には同じ試料について入射 X 線エネルギー 6.90 keV で得られた XRD パターンである。L1<sub>0</sub>-FeNi001 の 6.90 keV で現れる  $2\theta$  位置に、やはり低角シフトしているものの回折ピークが確認されている。この回折ピークは 7.11 keV と比較して強度が 20%程度に減少しており、これは、6.90 keV で Fe と Ni の散乱因子差の低下を考慮した強度シミュレーション値 22%と同程度であり、回折ピークは確かに Fe と Ni の超格子構造由来であることを示している。このようにスパッタ膜に NITE 法を適用した試料について、L1<sub>0</sub>超格子構造が形成され、結晶配向していることを確認した。本結果は、NITE 処理で L1<sub>0</sub>超格子構造が確かに形成されること、さらに L1<sub>0</sub>超格子構造やその結晶配向が磁気性能に影響を与えていることを支持する重要な結果であり、今回の一連の実験を通して、より高い磁気性能を有する L1<sub>0</sub>-FeNi 薄膜を得るための重要な知見が得られた。

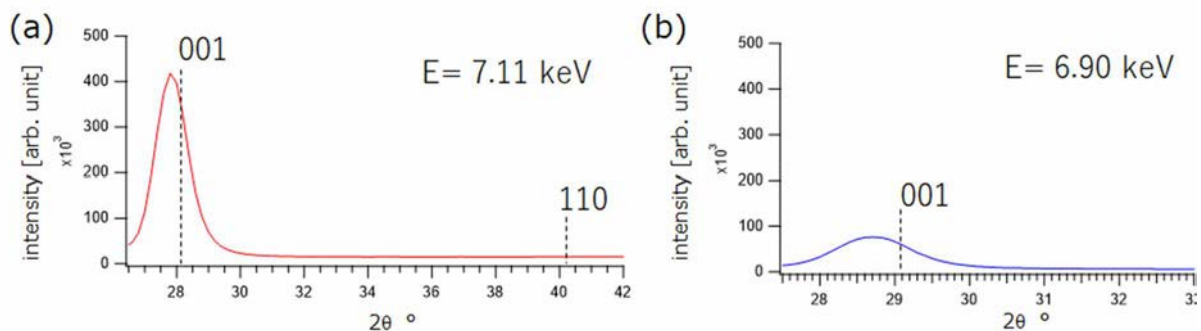


図 3 NITE 処理後の島状 FeNi 薄膜で得られた X 線異常散乱を用いた XRD のパターンの例。

X 線の入射エネルギーを変えて測定しており、(a) 7.11 keV (b) 6.90 keV で得られた結果である。図中の点線は L1<sub>0</sub>-FeNi の結晶構造[4]から計算される回折線の位置を示す。

### 今後の課題：

高い磁気性能が期待される蒸着条件、窒化脱窒素プロセス条件の最適化に、本課題で得られた知見を活用していく。

### 謝辞：

本研究は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託事業未来開拓研究プログラム「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」(JPNP14015)の成果である。

### 参考文献：

- [1] S. Goto et al., *Sci. Rep.* **7** 13216 (2017).
- [2] K. Ito et al., *Appl. Phys. Lett.* **116**, 242404 (2020).
- [3] T. Nishio et al., *Appl. Phys. Mater.* **9**, 091108 (2021).
- [4] R.S.jr. Clarke, and E.R.D Scott, *Amer. Mineral.* **65**, 624-630 (1980).