N 添加した Fe, Co 及びその合金薄膜の結晶構造と磁気特性の相図

白井千尋(院生)、 長谷川崇(秋田大理工)

Phase diagram of crystal structure and magnetic properties of N added Fe, Co and their alloy films Chihiro Shirai, Takashi Hasegawa (Akita University)

はじめに

永久磁石や磁気記録媒体の機能向上のためには、高い結晶磁気異方性定数(K_u)と高い飽和磁化(M_s)を兼 ね備えた材料の開発が必須である。筆者らの研究室では、VNを添加した厚さ 20 nm 以上の FeCo 薄膜におい て、FeCo 格子に対し軸比 $c/a \approx 1.2$ の正方晶歪みが導入され、 $10^7 J/m^3 オーダーの高 K_u$ が得られることを報告 した^[1]。しかし現時点では、第三元素添加が FeCo の結晶構造を正方晶に変化させる詳しいメカニズムは不明 である。そこで本研究では、Fe, Co 及びその合金薄膜に対して N のみを添加し、FeCo の結晶構造に対して N 添加が与える影響について調査した。

実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング 装置(到達真空度~10-7 Pa)を用いた。 膜構成は次の通り である: MgO (100) sub./ Rh (t = 20 nm)/ (Fe_{1-y}Co_y)_{100-x}N_x (0 $\leq x \leq 8.8$ at.%, $0 \leq y \leq 1.0$, t = 20 nm)/SiO₂ (t = 5 nm)_o Rh \geq (Fe_{1-v}Co_v)_{100-x}N_xは基板加熱温度が各々300°C、200°Cで成 膜した。N 添加量は、スパッタガスである Ar と N2の混 合比で制御した。Ar と N2の合計圧力は 0.3 Pa であり、 本実験での N₂の分圧 (N₂/(Ar + N₂)) は 0~18% (0~0.054 Pa) で変化させた。FeCoの組成分析には電子線プローブ マイクロアナライザ (EPMA)、N 組成の分析には X 線 光電子分光(XPS)を用いた。なお、N組成の XPS 分析 は(Fe0.5Co0.5)100-xNx でのみ行っており、Co 組成を変化さ せた試料については、同様の N2 分圧で作製した場合に は(Fe0.5Co0.5)100-xNxと同様のN組成になると仮定した。格 子定数 *a* 及び *c* の算出には各々 In-plane XRD、Out-of-plane XRD(CuKα)を用いた。磁化曲線の測定には振動試料 型試料計(VSM)を用いた。

実験結果

Figure 1(a)は、Co 組成(y) とN 添加量(x) で整理した (Fe_{1-y}Co_y)_{100-x}N_xの相図である。bcc 単相が得られる赤の領 域は y = 0.40-0.50 の FeCo 近辺で極大を示している。す なわち純 Fe よりも FeCo の方が bcc 構造は安定であるこ とが示唆される。これは言い換えると、N 添加された純 Fe の fcc 構造は、Co を添加すると不安定化して bcc 構造 に戻る傾向があるとも言える。また純 Fe に注目すると、 N 添加量の増大に伴って(すなわち縦軸方向に見ると)、



Fig. 1. Phase diagrams of
$$(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x}N_x$$
 with
(a) crystal structure, (b) *M* -value, and (c) *K* -value

bcc 単相から bcc+fcc の2相を経て fcc 単相となり、その後再び bcc+fcc の2相が得られている。それ以降の データはまだ無いが、N 添加量をさらに増大すれば bcc 単相が再び形成される可能性も考えられ、これは純 Fe の一般的な温度-組成の平衡状態図と似ているように思われる。次に、Figure 1(a)の相図上に、 M_s と K_u の 値を重ねてプロットしたものを各々Figure 1(b)、(c)に示す。Figure 1(b)より、 M_s は bcc 相の領域で高い値が得 られる傾向が見てとれる。一方で、Figure 1(c)より、 K_u は bcc 相と fcc 相が 2 相分離する境界付近で高い値を 示す傾向が見てとれる。以上より、 M_s と K_u はその発現メカニズムが異なっており、 M_s は bcc 相の割合と相 関があり、 K_u は bcc 相と fcc 相の相境界で導入される正方晶歪み(bct 相)の割合と相関があると考えられる。 [1] T. Hasegawa et al. Scientific Reports, 9, 5248 (2019). 謝辞:本研究は NEDOの支援を受けた。