

磁性ナノ構造の創製とスピントロニクスデバイスへの応用展開

東北大学 金属材料研究所 先端エネルギー材料理工共創研究センター
准教授 水口 将輝

電子におけるスピンと電荷の二つの機能の融合を目的とする「スピントロニクス」と呼ばれる研究分野が盛んに研究されている。この分野の応用技術の一つである磁気記録においては、記録密度の著しい上昇にともない、大きな磁気異方性（強磁性体中の磁気モーメントの方向に依存した内部エネルギーの異方性）を有する磁石材料の開発が必要とされている。一般に、そのような磁石材料の有力な候補の一つとして、 $L1_0$ 型（AuCu 型）規則合金が長らく研究されてきた。この規則合金は、二種類の原子層が交互に積層した結晶構造をとり、結晶の一軸性に起因した強い磁気異方性を有する材料が数多く存在する。中でも遷移金属と貴金属との組み合わせからなる FePt、CoPt あるいは FePd、CoPd などは、大きな一軸結晶磁気異方性（一軸磁気異方性エネルギー: K_u にして 10^7 erg/cm³ 以上）を示し、次世代の磁石材料として期待されている。しかしながら、これらの既存の $L1_0$ 型規則合金は、Pt や Pd のような希少元素である貴金属を多く含有しており、元素戦略的見地からは好ましくない。そのため、 $L1_0$ 型規則合金磁石材料において、これらの貴金属元素を他のユビキタス元素で代替できれば、その経済的効果が絶大であることは想像に難くない。

そこで、本研究では、希少貴金属を含まない新しいスピントロニクス磁性材料として、材料が潤沢でかつ安価な Fe と Ni を用いた「単結晶 $L1_0$ 型 FeNi 規則合金」の開発を進めた。Fe と Ni の合金は、Fe₅₀Ni₅₀ の等比組成付近・低温領域において $L1_0$ 型規則合金の存在が指摘されている（図 1）。しかしながら、 $L1_0$ 型 FeNi 規則合金は超徐冷環境でのみ形成される合金であり、自然界では宇宙空間で徐冷された石質鉄隕石中にものみ含まれる。本研究では「単原子交互積層法」と呼ばれる手法により $L1_0$ 型 FeNi 規則合金薄膜を人工的に作製することを試みた。この手法は、異なる元素の単原子層を交互に蒸着することにより、 c 軸方向に磁気異方性を有する規則合金を人工的に作製する技術であり、高い化学的規則度（Fe 原子及び Ni 原子がどの程度、規則的に交互積層されているかを示すパラメータ）を有する $L1_0$ 型 FeNi 規則合金磁石の創製を目指した。

単原子積層法を駆使することにより、Fe と Ni を高い精度で交互積層する技術を生み出すことに成功した。人工創成した $L1_0$ 型 FeNi の結晶構造特性や磁気特性について、様々な分析手法を用いて精緻な解析を行った。その結果、 $L1_0$ 型 FeNi の薄膜は、最大で 60% 程度の規則度を有しており、この比較的高い規則度により目標としていた垂直磁気異方性が発現していることが分かった。通常、Fe および Ni の合金はパーマロイに代表されるように極めて磁気異方性が低い軟磁性材料になることが知られており、Pt や Pd のような貴金属を含まずに高い磁気異方性を持つ磁性材料が開発できたことを意味する。

続いて、さらに工業化に適した成膜手法であるスパッタリング法で L_{10} 型 FeNi を作製することを目指した。交互積層法のような複雑な手法でなく、Fe および Ni を同時にスパッタし、その後急速加熱を加えることで L_{10} 型 FeNi を作製することに成功した。薄膜全体での規則度は 60%を超えることはできなかったが、部分的には高い規則度を有する薄膜が作製され、より簡便な手法による本材料の創製が達成された。さらに、化学的手法により、より高い規則度を有するバルク体の L_{10} 型 FeNi を創製することに挑んだ。Fe と Ni の相互拡散に頼らない規則化手法の開発がカギであると考え、(株)デンソーとの共同研究により、規則化した安定中間物を經由した規則合金形成プロセスである NITE 法を考案した。これは、FeNiN の金属原子配置が L_{10} 型 FeNi と全く同じである点に着目し、FeNiN から規則構造を壊すことなく窒素原子を引き抜くトポタクティック脱窒素反応により高規則度の FeNi 超格子構造を得る手法である。その結果、規則度が 70%を超え、保磁力も大幅に増加した L_{10} 型 FeNi バルク磁石の創製を実現することに成功した (図 2)。これは、本材料の工業化と実用化に大きくつながる成果である。

【実用化が期待される分野】

NITE 法により作製した FeNi の磁力は規則化していない FeNi よりも格段に大きく、図 2 の挿入図に示すように、クリップが吸着する程度の大きさである。そのため、この L_{10} 型 FeNi が本研究で目指すような特性を発揮すれば、市場の磁気記録媒体が全てこの材料を利用した垂直磁気記録方式の媒体に置き換わることも想定され、環境面のみならず、巨大なマーケットを開拓する可能性も秘めた、波及効果の大きい研究であると考えている。

【参考文献】

1. T. Kojima, M. Ogiwara, **M. Mizuguchi**, M. Kotsugi, T. Koganezawa, T. Ohtsuki, T. Y. Tashiro, and K. Takanashi, "Fe-Ni composition dependence of magnetic anisotropy in artificially fabricated L_{10} -ordered FeNi films" *Journal of Physics: Condensed Matter*, **26**, 064207 (2014).
2. S. Goto, H. Kura, E. Watanabe, Y. Hayashi, H. Yanagihara, Y. Shimada, **M. Mizuguchi**, K. Takanashi, and E. Kita, "Synthesis of single-phase L_{10} -FeNi magnet powder by nitrogen insertion and topotactic extraction", *Scientific Reports*, **7**, 13216 (2017).
3. T. Tashiro, **M. Mizuguchi**, T. Kojima, T. Koganezawa, M. Kotsugi, T. Ohtsuki, K. Sato, T. J. Konno, and K. Takanashi, "Fabrication of L_{10} -FeNi phase by sputtering with rapid thermal annealing", *Journal of Alloys and Compounds*, **750**, 164 (2018).

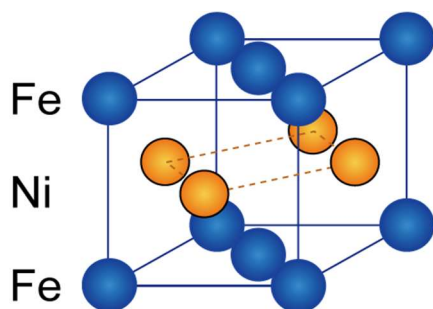


図 1: L_{10} 型 FeNi 規則合金の結晶構造。

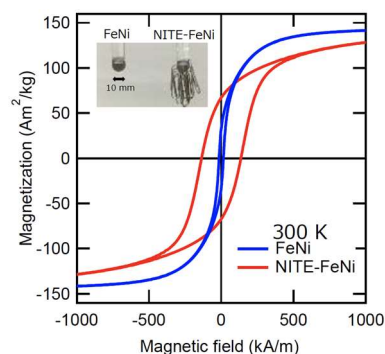


図 2: NITE 法で作製した L_{10} 型 FeNi 規則合金磁石の磁気特性と磁石性能。