

酸化物固溶体の H₂ 還元による fcc 型 Ni_{1-x}Fe_x エピタキシャル薄膜の作製

Fabrication of fcc-type Ni_{1-x}Fe_x epitaxial thin films by H₂ reduction of solid solution oxides

東京科学大学 物質理工¹, KISTEC² ○(M1)山中 悠生¹, 河村 和哉¹, 金子 智^{2,1}, 松田 晃史¹

Science Tokyo¹, KISTEC² ○ Yusei Yamanaka, K. Kawamura¹, S. Kaneko^{2,1}, A. Matsuda¹

E-mail: yamanaka.y.ah@m.titech.ac.jp

【緒言】Ni_{1-x}Fe_x系は高い透磁率をもつ軟磁性材料であり、Fe 比率 x による構造と磁気特性の変化が知られている^[1,2]。そのエピタキシャル薄膜を用いた積層構造は、磁気トンネル接合を利用した TMR 素子や MRAM などへの応用も期待される^[3]。Ni_{1-x}Fe_x系では、およそ $x < 0.55$ において面心立方(fcc)構造が安定であり、より高い x 範囲では体心立方(bcc)構造と共存することが報告されている^[1]。ここで、fcc および bcc 構造では結晶磁気異方性が異なることから、エピタキシャル積層素子において Ni_{1-x}Fe_x 結晶の構造も特性制御の重要な因子となる。一方、高 x 領域の Ni_{1-x}Fe_x では fcc 構造は高温で安定であるため、ここでは fcc 型のカチオン配置をとる岩塩型構造の酸化物薄膜を前駆体とする薄膜作製に着目した。我々はこれまでに、岩塩型 NiO (111)エピタキシャル薄膜を H₂ 熱処理することで、fcc 構造の金属 Ni (111)エピタキシャル薄膜に還元されることを報告した^[4]。同様に、室温 PLD による岩塩型 Ni_{1-x}Fe_xO エピタキシャル薄膜の成長も報告した^[5]。本研究では、Ni_{1-x}Fe_x エピタキシャル薄膜における組成範囲によらない fcc 型・bcc 型構造と磁化特性の制御を目的とし、Ni_{1-x}Fe_xO エピタキシャル薄膜を前駆体とした fcc 型 Ni_{1-x}Fe_x 薄膜の作製と、Fe 含有量が結晶構造と物性に与える影響を検討した。

【実験・結果】Ni_{1-x}Fe_xO 薄膜は KrF エキシマレーザー($\lambda = 248$ nm, $d \sim 20$ ns)、および(1-x)NiO-xFe₂O₃ 組成の焼結体ターゲットを用いた PLD により室温(基板非加熱、 $\sim 20^\circ\text{C}$)、高真空中(背圧 $\sim 1 \times 10^{-5}$ Pa)において $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001)基板上に堆積した。得られた Ni_{1-x}Fe_xO 薄膜は、H₂ ガス中(1 atm)において保持温度 300–500°C、保持時間 120 min の熱処理を行った。Fig.1 は PLD により作製した Ni_{1-x}Fe_xO 薄膜($0 \leq x \leq 0.8$)の XRD ($2\theta/\omega$)結果である。いずれの組成においてもスピネル型 NiFe₂O₄ など異相の明瞭な析出はみられず、岩塩型 Ni_{1-x}Fe_xO (111)エピタキシャル薄膜が得られた。Fig.2 は 500°C における H₂ 熱処理後の XRD ($2\theta/\omega$)結果である。Fe 比率 x によらず、fcc 構造 Ni_{1-x}Fe_x (111)結晶への還元が得られた一方、前駆体である酸化物結晶および金属 Fe の低温安定相に起因する bcc 構造の結晶に帰属される回折は検出されなかった。前駆体の岩塩型結晶を構成するカチオン、fcc 結晶の原子がいずれも 6 配位構造をとる点が大きく寄与していると示唆された。講演では、還元温度や保持時間による結晶構造や表面形状の変化についても発表する。

● NiO {111}, ▼ FeO {111}, ◆ NiFe₂O₄ {111}, ○ Ni {111}, ▽ fcc-Fe {111}, ◇ bcc-Fe {110}, ★ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001) substrate

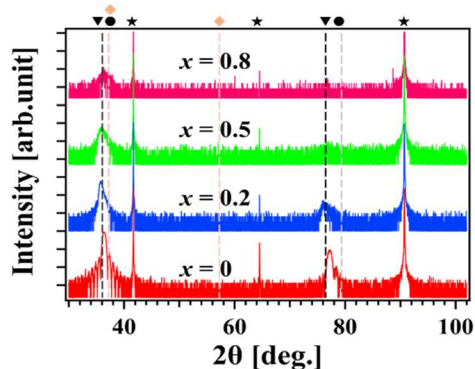


Fig.1 XRD $2\theta/\omega$ profiles of Ni_{1-x}Fe_xO thin films grown on $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001) substrates by PLD at room temperature.

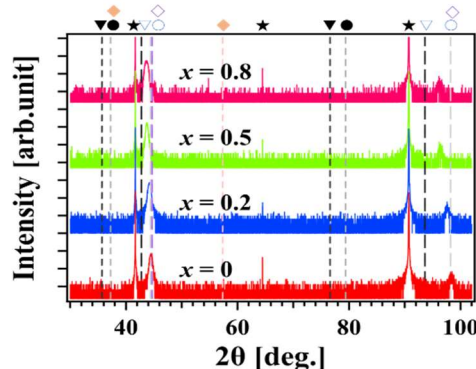


Fig.2 XRD $2\theta/\omega$ profiles of Ni_{1-x}Fe_xO thin films after heat treatment in pure H₂ gas at 500°C.

[1] G. Cacciamani, et al., *Intermetallics*, 18, 1148–1162 (2010).

[2] C. Gritsenko, et al., *J. Mag. Mag. Mater.*, 482, 370–375 (2019).

[3] R. W. Dave et al. *IEEE Trans. Magn.* 42 1935–1939 (2006).

[4] A. Matsuda, et al., *Thin Solid Films*, 516, 3873–3876 (2008).

[5] O. Seo et al., *Sci. Rep.*, 9, 4304 (2019).