

## Fe-Rh 合金薄膜の作製と磁気相転移温度におよぼす格子歪の影響

福住正文

## 1 目的

Fe-Rh 金属間化合物は室温において非常に幅広い組成範囲（20～50at.%Rh）で B2 型規則構造を安定な相として存在する。すなわち化学量論組成のずれを空孔型欠陥や反構造型欠陥といった構造欠陥を内包することによって B2 型結晶構造を保っていると考えられる。さらに化学量論組成では室温付近で反強磁性—強磁性の磁気相転移が存在し、その相転移時には結晶構造は全く変わらないが、格子定数がおよそ 0.3%膨張する特徴を持っている。また、この磁気相転移にともない、60%の電気抵抗率の変化が生じることが知られている。両相における磁気物性および伝導物性が顕著に異なる上、転移や共存状態が室温付近で生じることから、スピントロニクス分野での応用も期待できる。一方で、相図に見られない結晶相が極めて高い応力で誘起されるなど結晶学的にも磁気学的にも非常に興味深い物質である。

そこで本研究では、スパッタリング法で Fe-Rh 合金薄膜を作製し、格子歪による磁気特性の変調について、電気抵抗率の変化から観察し、組成や成膜方法の違いとの関係について調べた。

## 2 実験方法

金属 Fe(4N)ターゲットと Rh 粉末を中央にくぼみがあるステンレス皿に固めたターゲットを用いて二元同時スパッタリング法により薄膜を作製した。ターゲットのカソード出力を変化させることで薄膜中の Fe と Rh の組成を調整した。室温で成膜した膜を真空中( $5.0 \times 10^{-3}$ Pa)にて 600°Cで 30 分間の熱処理、または、還元雰囲気(Ar+10%H<sub>2</sub>)中で基板を 600°Cに加熱しながら成膜することで結晶化させた。基板には Si(100)を用いた。得られた膜の組成は波長分散型蛍光 X 線分析装置で、結晶構造は薄膜 X 線回折装置を用いて調べた。また、磁気相転移温度は電気抵抗率の温度変化から調べた。

## 3 結果と考察

Fe ターゲットと Rh ターゲットのカソード出力を調整することで、膜組成をコントロールすることができた。図 1 に Fe-50at.%Rh 合金薄膜の真空中で熱処理温度を 600°C～900°Cまで変化させた場合の X 線回折ピークの変化を示す。熱処理温度が 600°C以上で Fe-Rh 合金薄膜は十分に結晶化することがわかった。わずかに確認された Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に帰属される回折ピークは、還元雰囲気中で基板加熱（600°C）し

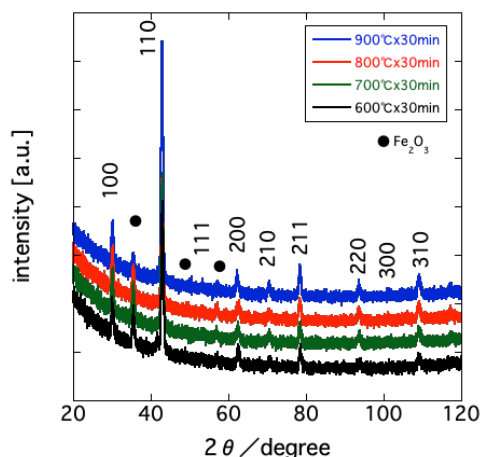


図 1 熱処理温度による X 線回折ピークの変化 (Fe-50at.%Rh)

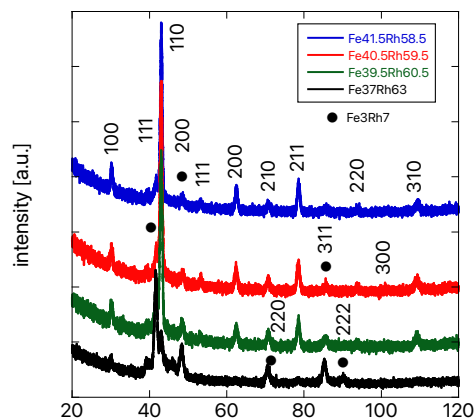


図 2 組成による X 線回折パターンの変化

ながら成膜することで改善した。図2に組成の違いによるX線回折パターンの変化を示す。Rhがリッチな組成のため、異相である $\text{Fe}_3\text{Rh}_7$ 層が少し確認されたが、Rh組成比が60at.%まではB2型規則構造であることがわかった。状態図ではRh組成比が約56at.%までがB2型規則構造をとることが知られているが、薄膜では組成比だけではなく、基板との整合性も関係してくるものと考えられる。一方、膜中のRh組成比が63at.%以上ではほとんどが $\text{Fe}_3\text{Rh}_7$ 層であった。

図3に組成の違いによる電気抵抗率の温度変化を示す。300Kから420Kまで往復で温度を変化させて電気抵抗率の変化を測定した。昇温していくと電気抵抗率は330K付近で大きく減少し、降温過程では320K付近で大きく増加しヒステリシスを作ることが確認された。320K付近で低温の反強磁性から強磁性へ磁気相転移したことが考えられる。相転移温度はRh組成比が減少すると低温側へシフトすることが確認され、状態図と同様の傾向であることが確認された。Rh組成比が62at.%以上では電気抵抗率の変化量が大きく減少した。これは、XRD測定結果から磁性に寄与しない異相である $\text{Fe}_3\text{Rh}_7$ 層が増えたことが要因であると考えられる。

図4に結晶化の違いによるX線回折パターンの違いを示す。室温で成膜し、真空中( $5.0 \times 10^{-3}\text{Pa}$ )で $600^\circ\text{C}$ で熱処理し結晶化させた(図中の青)場合と、基板を還元雰囲気中で $600^\circ\text{C}$ に加熱しながら成膜した場合(図中の赤)では、室温成膜し真空熱処理した試料では少し $\text{Fe}_3\text{Rh}_7$ 層の成長が確認されるが、結晶構造的には大きな違いは確認されない。一方、図5に示されるように、電気抵抗率の温度変化は大きく異なる挙動を示した。室温成膜し真空中で熱処理した場合では、電気抵抗率の変化量が大きく減少

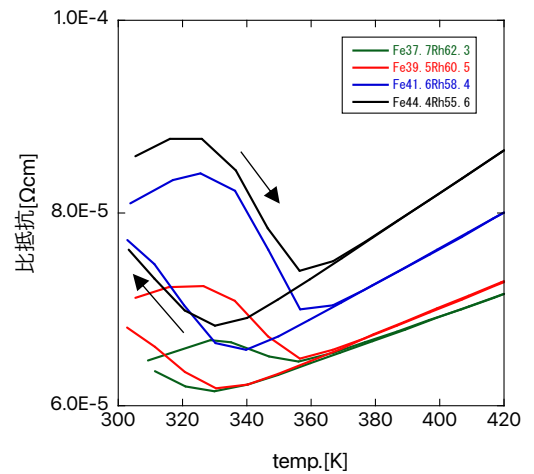


図3 組成による相転移温度の変化

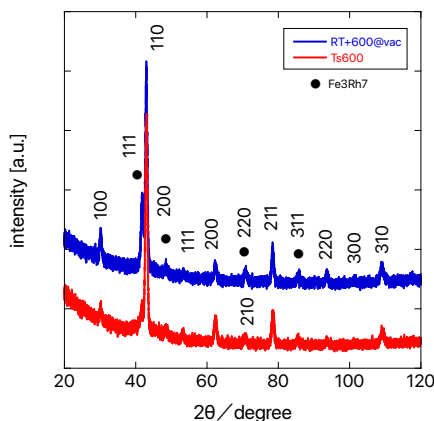


図4 結晶化の違いによるX線回折パターンの変化 (Fe-58.5at.%Rh)

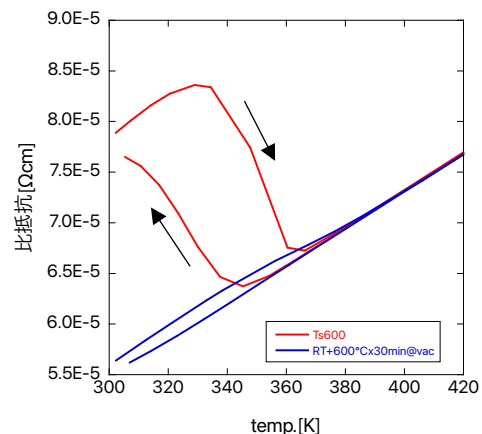


図5 結晶化の違いによる電気抵抗率の温度の変化 (Fe-58.5at.%Rh)

し、わずかな変化しか確認されなかった。これは、X線回折測定結果から確認されたマクロな構造はあまり変わらないが、ショートレンジオーダーでの構造の乱れが結晶化の違いで異なることが要因と考えられる。

(問合せ先 福住正文)