

平成 23 年 4 月 1 日現在

機関番号：14401
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2009～2010
 課題番号：21760076
 研究課題名（和文） 機能性超格子薄膜の界面弾性レーザー計測と機能と弾性の相関に関する研究
 研究課題名（英文） Study on interfacial elasticity and function in superlattice
 研究代表者
 中村 暢伴（NAKAMURA NOBUTOMO）
 大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教
 研究者番号：50452404

研究成果の概要（和文）：機能性超格子薄膜の弾性率計測と構造解析、機能の評価を行い、界面構造が弾性と機能に及ぼす影響を評価した。Fe/Pt 超格子と Co/Cu 超格子について実験を行ったところ、Fe/Pt 超格子においては Fe と Pt の界面に形成される合金層が超格子の巨視的な弾性・磁気特性に強く影響していることが分った。一方、Co/Cu 超格子においては、既存の理論では説明することが困難な特異な弾性特性が発見された。

研究成果の概要（英文）：In this study, elastic stiffness of functional superlattice was measured, and relationship among elastic property, function, and interfacial structure was investigated. In Fe/Pt superlattice, it was found that alloy phase existing at the interfaces affects the macroscopic elastic and magnetic properties. On the other hand, in Co/Cu superlattice, elastic property showed unusual behavior that cannot be explained by existing theory.

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学 機械材料・材料力学

キーワード：弾性定数、FePt 合金、磁性、超音波計測

1. 研究開始当初の背景

超格子薄膜とは異種金属を数原子ずつ交互に積層した多層膜のことであり、バルク材や単層膜では見られない特異な機能を発現することが知られており、すでにハードディスクなどに実装されているものもある。超格子を構成する材料の組み合わせは金属やセ

ラミックス、有機化合物を含めるとほぼ無限に存在する。このような状況のもと、新たな機能性超格子を創り出すためには闇雲に組み合わせを決めるのではなく、明確な設計指針にしたがって組み合わせを決定することが高効率化（時間とコストの削減）につながる。そのためには超格子の機能の起源を正確

に理解しなければならない。

超格子のユニークな機能の発現には界面付近で結晶の対称性が低くなる、あるいは数%におよぶ巨大な弾性ひずみが発生していることなど、「界面構造の変化」が重要な役割を果たしていると言われている。バルク材や単層膜においては、X線回折や電子顕微鏡、原子間力顕微鏡などを用いて「構造と機能の関係」に関する研究が積極的に行われてきた。しかしながら、超格子では必ずしもこういった従来法が有効であるとはいえない。理由は超格子の界面構造の観察の困難さにある。電子顕微鏡や原子間力顕微鏡は表面の結晶構造を正確に把握できる点で優れているが、内部構造は観察できない。X線回折は内部構造を評価することができるが、得られる情報に含まれる界面の情報は小さく、わずかな界面構造の変化を必ずしも見出すことができるとは限らない。このような理由から、超格子の機能の起源に関しては未だに完全には解明されていない。

2. 研究の目的

本研究の目的は、超格子の物性を理解するために弾性特性と内部組織の関係、弾性と機能の関係を解明することである。申請者は弾性定数計測が超格子の界面構造の解析に有効であり、ひいては機能の発生メカニズムの解明に繋がると考え、本研究を立案した。

薄膜の弾性定数は界面構造に敏感であるという特徴がある。申請者の研究グループではこれまでに薄膜の弾性と構造に関する研究でX線回折では検出することのできない構造変化であっても、弾性定数は敏感に変化することを発見した。一例として多結晶Cu薄膜（膜厚 30nm、60nm）では、熱処理により弾性定数が20%以上も増加するが、X線回折スペクトルには顕著な変化が見られなかった。これは多結晶薄膜では結晶粒界に不完全結合部が多く存在しており、熱処理によって結晶粒界での結合力が向上したが、X線回折回折ではこのような微小な構造変化を捉えられなかったことを示している

(Nakamura et al., Appl. Phys. Lett., 92 (2008) 141901)。また、多結晶ダイヤモンド薄膜では、体積分率にして0.1%にも満たない粒界不純物が、弾性定数を30%近く変化させることも知られている(Tanei, Nakamura, et al., Phys. Rev. Lett., 100 (2008) 016804)。このように、弾性定数は従来の手法では検出することが困難な微小な構造変化や欠陥の有無に対して敏感であり、超格子界面のような局所領域のわずかな構造の変化を観察するのに適していると考えている。

3. 研究の方法

(1) スパッタリング法による成膜と熱処理

本研究ではFeとPtを交互にガラス基板上に成膜することによってFe/Pt超格子を作成した。成膜中の基板温度は室温で、成膜後に1時間の熱処理を施した。FeとPtの層厚はいずれも2nmで、それぞれ15層ずつ成膜した([Pt(2nm)/Fe(2nm)]₁₅/glass)。

(2) X線回折による構造解析

超格子の構造解析にはX線回折を用いた。超格子では多層膜構造に起因する回折ピークが現れるが、熱処理によって界面構造が変化するとピーク強度・形状に変化が現れた。また、界面での合金層の有無についても評価を行った。

(3) ピコ秒超音波とX線反射率法による弾性定数計測

薄膜の弾性定数測定は形状の制約のために極めて困難であるが、申請者らのグループが提案する手法では膜厚が5nm~100nm程度の薄膜に対しても弾性定数を決定することができる。本手法ではフェムト秒パルスレーザー（パルス幅が100 fs）を用いて薄膜内にGHz帯の超音波を励起し、その伝ば速度から弾性率を決定する。具体的には基板上に成膜された薄膜表面に極短時間だけレーザー光（励起光）を照射すると、局所的な温度上昇を生じ、これが音源となって薄膜表面でパルス波が励起される。このパルス波は膜厚方向に伝ばし、基板との界面で反射して薄膜表面に再び到達する。この一往復に要する時間は薄膜の密度と膜厚および膜厚方向の変形に寄与の大きい弾性定数(C_{11})の関数として表すことができる。従って、伝ば時間を測定することによって弾性定数を決定することができる。

パルス波の検出には、励起光とは異なるレーザー光（検出光）を用いる。検出光を試料表面に照射し、試料表面で反射した検出光の振幅を測定すると、試料表面のひずみによって反射率（振幅）が変化する。従って励起光に対する遅延時間を変えながら反射光の振幅を測定することで薄膜表面に到達したパルス波を検出することができる。薄膜の弾性定数測定では、膜厚を正確に把握する必要があり、本研究ではX線反射率法を用いて膜厚を決定した。

4. 研究成果

(1) Fe/Pt超格子の界面構造と熱処理の関係

X線回折測定の結果から、成膜後にFe/Pt超格子に熱処理を施すと界面の一部がFePt合金となり、熱処理温度が500度になると超格子全体がFePt合金になることが明らかと

なった。これは、Fe/Pt 超格子は界面で合金を形成しやすいことを示しており、熱処理によって界面構造を変化させることができた。

(2) ピコ秒超音波による弾性定数計測

ピコ秒超音波で測定されたパルス波の伝ばの様子を Fig.1 に示す。Fig.1 の横軸は時間、縦軸は検出用レーザー光の反射強度の変化の様子である。10ps で急激な反射強度の変化が観測されたが、これは薄膜表面でパルス波が励起されたことを示している。その後、等時間間隔で複数のピークが見られるが、これはパルス波が膜厚方向に伝ばして基板との界面で反射し、薄膜内で多重反射していることを表わしている。従って、ピークの間隔からパルス波が薄膜内を一往復するのに要する時間を決定することができる。

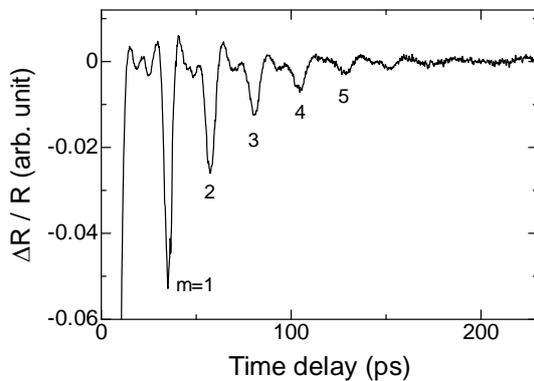


Fig. 1 ピコ秒超音波法で検出されたレーザー光の反射率強度の変化

X 線反射率法で計測した膜厚と、ピコ秒超音波で計測した伝ば時間から決定した弾性率を Fig. 2 に示す。この結果より、熱処理温度が上昇するにつれて弾性率が上昇し、500 度で低下した。X 線回折測定の結果と照らし合わせて考えると、熱処理によって FePt 界面での欠陥の減少と合金化が起こり弾性率が上昇するが、500 度では結晶方位が変化したことで弾性率が低下したと考えられる。この結果より、Fe/Pt 超格子では Fe-Pt 界面の構造が巨視的な弾性率に強く影響を及ぼすことが分かる。

(3) 弾性と磁性の関係

Fe/Pt 超格子に対して SQUID を用いて面内・面外磁化測定を行い、磁気異方性エネルギーを計測した。その結果、熱処理温度の変化によって磁気異方性エネルギーはわずかに上昇することが確認された。Fe/Pt 超格子内では L10-FePt 合金が形成されていると考えられるが、FePt 合金の磁気異方性エネルギー

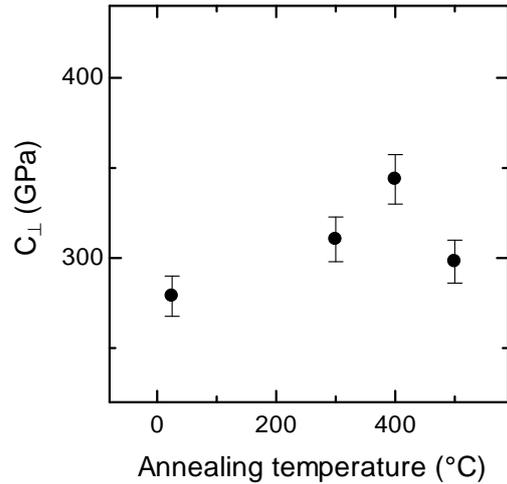


Fig. 2 Fe/Pt 超格子の弾性率の熱処理温度依存性

の大きさに比べると、超格子内での磁気異方性エネルギーの変化は小さかった。これは、形成される合金の配向がランダムであることが原因であると考えられる。界面での構造変化の影響をより詳細に調べるため、成膜条件を変えながら複数の L10-FePt 合金を作成し、弾性と磁性の関係を調べたところ、弾性率の大きいものほど磁気異方性エネルギーが大きくなることが示された。

以上の結果から、Fe/Pt 超格子では、界面での合金相の形成が全体の特性に影響すると考えられる。

(4) Co/Cu 超格子の弾性率

Fe/Pt 超格子においては界面での合金層の形成が全体の性質に寄与していることが示されたが、他の超格子においても界面構造の寄与が支配的であるかどうかを確認するため、Co/Cu 超格子の弾性率計測も行った。Co/Cu 超格子は巨大磁気抵抗を示す材料であり、多層膜構造であることが機能の発現に寄与している。Co/Cu 超格子においては Cu 層厚の変化によって周期的に弾性率が変化する結果が得られたが、この結果は界面構造の変化では説明することができなかった。しかしながら、巨大磁気抵抗効果については Cu 層厚によって周期的に変化することが知られており、弾性と巨大磁気抵抗を結び付ける要因が存在するものと考えられる。今後、この点を解明したいと考えている。

(5) まとめ

本研究では超格子の弾性と磁性の関係を系統的に調べたが、Fe/Pt 超格子で界面構造の変化に対して弾性率が敏感に変化した。これは、弾性率計測が構造解析手法として適用できることを示唆している。さらに、Co/Cu

超格子では一般的な薄膜の力学モデルでは説明することのできない相間が弾性と巨大磁気抵抗の間に発見され、今後あらたな研究分野の開拓に繋がると期待される。

(3) 連携研究者

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① N. Nakamura, A. Uranishi, M. Wakita, H. Ogi, M. Hirao, and M. Nishiyama, "Elastic stiffness of L10 FePt thin film studied by picosecond ultrasonics", *Applied Physics Letters*, 98, 101911 (2011). (査読有り)
- ② N. Nakamura, A. Uranishi, M. Wakita, H. Ogi, and M. Hirao, "Annealing effect on acoustic property of Fe/Pt superlattice studied by picosecond ultrasound", *Japanese Journal of Applied Physics*, 49, 07HB01 (2009). (査読有り)

[学会発表] (計 5 件)

- ① 脇田 衛, "Elastic constant of Co/Cu superlattice measured by picosecond ultrasound", 第 31 回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム、2010 年 12 月 6 日、明治大学。
- ② N. Nakamura, "Elastic property of epitaxial thin films studied by picosecond ultrasound", *Materials Research Society Fall Meeting 2010*, December 3, 2010, Boston, USA.
- ③ 脇田 衛, "Co/Cu 超格子の特異な弾性特性", 2010 年日本機械学会年次大会、2010 年 9 月 6 日、名古屋工業大学。
- ④ 浦西 敦義, "Elastic property of Fe/Pt superlattice studied by picosecond ultrasounds", 第 30 回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム、2009 年 11 月 19 日、同志社大学。
- ⑤ M. Wakita, "Elastic constant of FePt thin films studied by picosecond ultrasound", *The 13th Asia-Pacific Conference on Non-Destructive Testing*, November 12, 2009, Yokohama.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 暢伴 (NAKAMURA NOBUTOMO)
大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教
研究者番号：50452404

(2) 研究分担者