

金属多層膜構造の透過型電子顕微鏡による観察

北海道大学工学研究科 ○吉田 将行 (院), 池田 俊 (院)

有田 正志, 浜田 弘一, 石田 巖, 岡田 亜紀良

要旨

Mn と Fe からなる多層膜を透過型電子顕微鏡で観察した. 多層膜試料の平面・断面観察により, 結晶粒サイズや配向といった微細構造について調べた. その結果, 結晶粒の大きさは約 10~20nm であり, 層の積層と同じ方向に特定の方位関係を持って柱状成長しているのがわかった.

1 背景

異種金属を交互に積層させた人工格子を作成し, もとの金属にはない特異な性質をひき出そうという研究が数多くなされてきた. 特に強磁性及び反強磁性の 3d 遷移金属からなる多層膜は, 巨大磁気抵抗効果や巨大磁気モーメント等の興味深い結果が報告¹⁾²⁾されている. Mn 系多層膜もその一例であり, Mn\Fe, Mn\Co において巨大磁気モーメントの存在を示唆する結果も得られている.

一般に金属多層膜の電気・磁気特性は層界面のラフネス等微細構造の影響を強くうけるといわれており, 電子顕微鏡による実験もなされているが, 多くはエピタキシャル成長膜に対しての研究であり, また特に多層膜多結晶においてその構造の詳細な解析例はあまりない. よって本研究では 3d 遷移金属多層膜のうち Mn\Fe 多結晶多層膜に着目し, その微細構造についての知見を得るために透過型電子顕微鏡 (TEM) 実験をおこなった.

2 実験方法

2-1 多層膜作成

超高真空蒸着装置 (10^{-10} Torr) を用い, 1nm/min. の蒸着速度で Mn\Fe 多層膜をガラス基板上 (室温) に作成した. 多層膜の設計は glass\Mn(8nm)\[Fe(2nm)\Mn(t nm)]₁₀ (t=2,3,4) である. X線回折の結果によると, 作成した多層膜は α -Mn, α -Fe から構成されており, また層構造は設計通りのものとなっている.

2-2 電子顕微鏡観察

膜面垂直方向からの観察 (平面観察) 及び断面観察を JEM200CS, JEM2000ES により行った. 後者は北大共同利用施設超高压電子顕微鏡研究室のものを使用した. 作成した多層膜を Ar^+ (5kv) によるイオ

ンミリングにより薄片化し, また試料の帯電を防ぐためにカーボン蒸着を施して TEM 試料とした. 以下に手順を簡単に示す.

平面観察試料は直径 3mm に打ち抜き, ディンプラーによって機械研磨でくぼみをつけ, それを外径 3mm のモリブデンのリングで補強した後イオンミリングで薄片化して仕上げた.

断面観察試料は蒸着面を向き合わせて貼り付けた試料を円柱状に打ち抜き, 銅パイプに埋め込む. ダイヤモンドカッターによって 0.2~0.3mm の厚さに低速切断後, ディンプラーによる機械研磨による仕上げ, イオンミリングによる仕上げを行った.

3 結果と考察

電子顕微鏡観察

3-1 平面観察

Mn 膜厚が 4nm の試料についての一例を Fig.1 に示す. 試料は多結晶であり, 結晶粒の多くは 10~20nm の大きさであった. Fig.2 に粒度分布をまとめた. 縦軸は観察総粒子数で規格化した各サイズの粒子数の割合である. 回折パターン (Fig.3) はきれいなデバ伊利ングとなっており, 面内での優先方位関係はない. このパターンは α -Mn, α -Fe でほぼ説明でき, X線回折の結果と一致する. また Mn 層が 2nm, 3nm

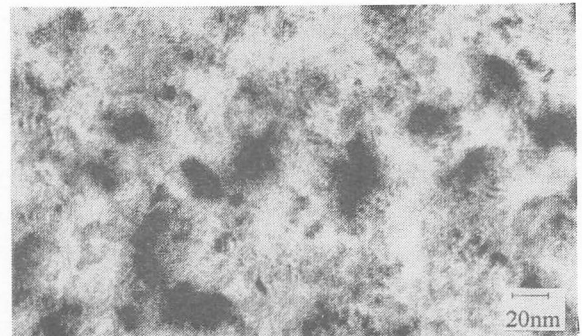


Fig.1 平面像

の試料についてもほぼ同様の結果が得られている。

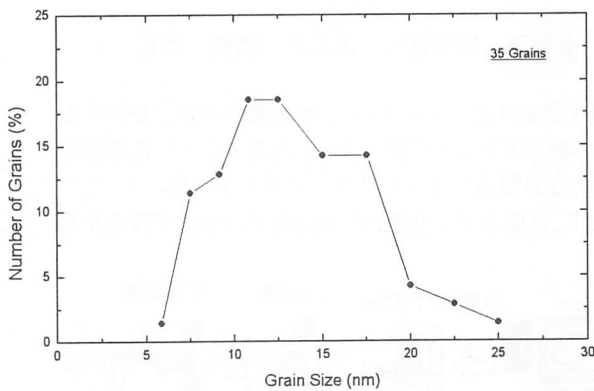


Fig.2 粒度分布

3-2 断面観察

Mn 膜厚が 4nm の一例が Fig.4 の TEM 像である。きれいな層状膜であることが分かる。像において白い縞と黒い縞の幅は約 4nm および 2nm であり、それぞれ Mn 層、Fe 層に対応している。また層コントラストのはっきりした領域（一例を矢印で示す）とそうでない領域の混在が確認される。これは前者は回折条件を満たしているが、後者は方位がずれているからである。これは試料傾斜によるコントラストの変化から確認できる。はっきりしたコントラストを示す領域からの回折像を Fig.5 に示す。 $\langle 330 \rangle_{\text{Mn}}$ 、 $\langle 110 \rangle_{\text{Fe}}$ が膜面垂直方向に強いスポットとなっており、配向成長を示している。つまりこの領域において $(330)_{\alpha\text{-Mn}} // \text{Substrate}$ 及び $(110)_{\alpha\text{-Fe}} // \text{Substrate}$ となっている。この領域の大きさは膜面平行方向に約 14nm であり、平面観察における結晶粒径と対応する大きさであった。

以上の結果から Mn\Fe 多層膜は膜面内に 10~20nm のサイズをもった結晶粒からなる柱状成長をしていることがわかる。それぞれの柱状結晶粒は、互いに別々な結晶方位を向いているが、一つの結晶粒

内において、Mn と Fe は $(330)_{\text{Mn}} // (110)_{\text{Fe}}$ の局所的なエピタキシャル成長をしているものと考えられる。

多層膜の磁性研究において様々な膜厚の層が用いられてきている。物性と微細構造の関連性についての研究を展開していくうえでも、層厚変化が微細構造に及ぼす影響や、層界面での原子配列等を今後詳細に調べていく必要があるだろう。

参考文献

- 1) H.Sakakima, M.Tessier, R.Krishnan and E.Hirota, Jpn.J.Appl.Phys., **26**, 1930(1987).
- 2) I.Ishida, S.Yoshikawa, K.Hamada, A.Okada and E.Hirota, Digest of INTER.MAG.Conf., Stockholm, HE-05, (1993).

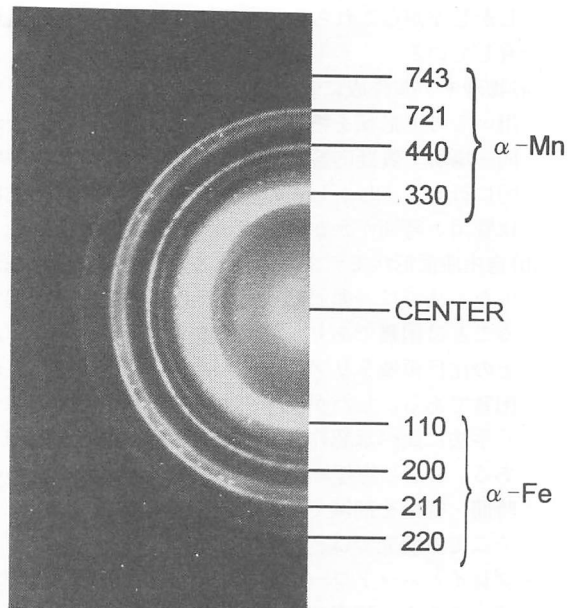


Fig. 3 平面試料の回折パターン

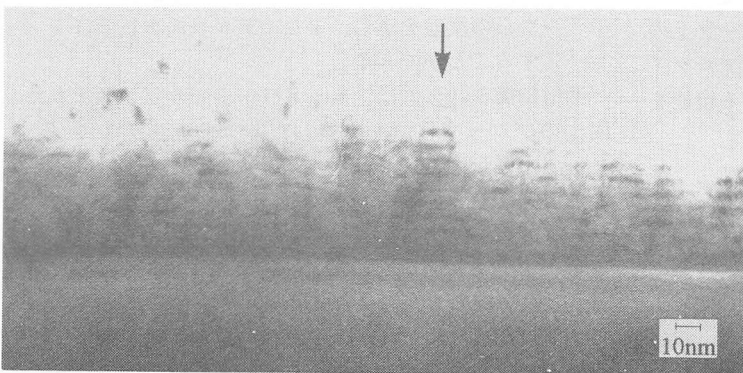


Fig.4 Mn 膜厚 4nm の断面像

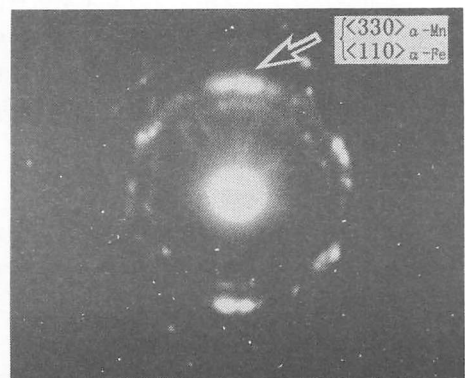


Fig.5 Mn 膜厚 4nm の断面の回折像