

磁性ガーネット薄膜の新規磁化反転方式の開発と空間光変調器への応用

Research on Novel Magnetization Reversal Method of Magnetic Garnet Thin Film and Application to Spatial Light Modulators



清水 大雅 (Hiromasa SHIMIZU, Dr. Eng.)
 東京農工大学 大学院工学研究院 准教授
 (Associate Professor, Institute of Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology)

応用物理学会 IEEE Photonics Society 電子情報通信学会 日本磁気学会 電気学会

受賞：平成 13 年度日本応用磁気学会学術奨励賞 (武井賞) (2001/09) 第 9 回 (2000 年秋季) 応用物理学会講演奨励賞 (2000/11) Best Paper Nominations (Ribbon Awards), 2004 Fall meeting of Material Research Society (2005/01) 応用物理学会論文賞 (2005 年度) JJAP 論文奨励賞 (2005/09)

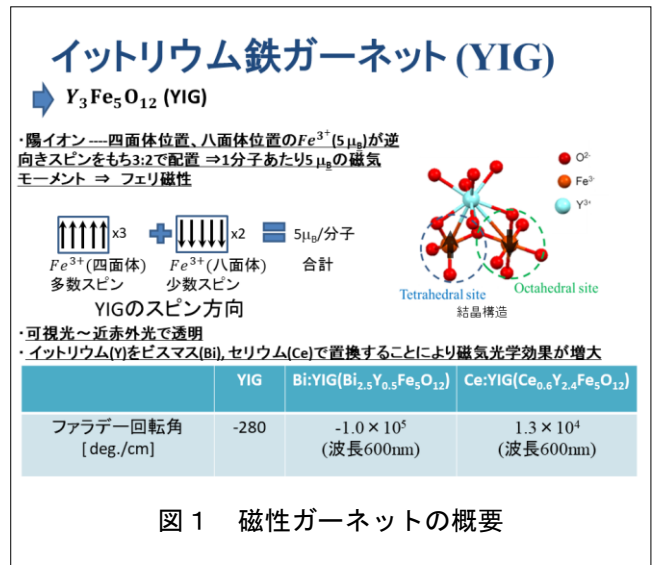
著書：スピントロニクス基礎と材料・応用技術の最前線 第 33 章 光スピントロニクスデバイス ～集積光非相反デバイス～ 高梨弘毅監修、共著、シーエムシー出版 (2009 年) Advances in Optical and Photonic Devices, Hiromasa SHIMIZU, INTECH, (2010 年) ISBN 978-953-7619-76-3

研究専門分野：光エレクトロニクス スピントロニクス

あらまし 空間光変調器は、画像表示用デバイス、近年では、立体像表示用デバイスとして注目されている。立体像表示用デバイスへ応用するには、画素の小型化、高速応答性、低消費電力が求められる。磁性体は、これらの特性に応えることができる材料の一つである。そこで、本研究では、赤色～近赤外光にかけて透明で大きな磁気光学効果をもつ磁性ガーネットに着目した。磁性ガーネットを光が透過するときの偏光面の回転方向が、磁化の向きによって異なるファラデー効果の画像表示用デバイスへの応用を念頭に、コイルなどの外部磁界によらない新規磁化反転方式の開発を目指した。磁性ガーネット試料が磁化しやすい方向を示す磁気異方性に着目し、製膜時の酸素添加の有無によって、磁気異方性を変化させることを目標とした。酸素を添加して製膜した試料には見られない磁気異方性と導電性が、酸素を導入せずに製膜した試料では顕著に表れることが明らかになった。これらの素子は、磁性ガーネット結晶中の酸素欠損の電気的制御を通じた磁気異方性の制御と、画像表示用デバイスへの応用につながると考えている。

1. はじめに

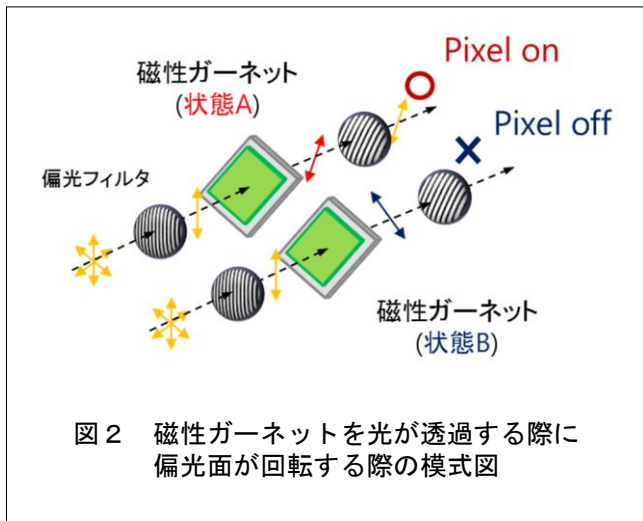
イットリウム鉄ガーネット $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG) *1 に代表される磁性ガーネットは、電気抵抗が高い絶縁性磁性体であり、可視光から近赤外光にかけて透明で大きな磁気光学効果を示す。特に、磁性ガーネット試料に光を透過させ、透過方向と平行に磁化させたときに光の偏光面が回転するファラデー効果は、光を一方向にのみ通す光アイソレータや画像表示素子用の空間光変調器 *2 の偏光回転素子として用いられている。磁性ガーネットは、現在の光通信技術、ディスプレイ技術等の光エレクトロニクス分野の根幹となる材料の一つである。光の透過方向や磁化の方向によって偏光面の回転方向が逆転する現象は、磁化の不揮発性 (N 極と S 極の向きが保たれる性質) とともに磁性体特有の現象である。図 1 に磁性ガーネットの概要を、図 2 に磁性ガーネットを光が透過する際に偏光面が回転する際の概要を示す。



YIG 中のイットリウム (Y) の一部を Bi や Ce で置換した Bi:YIG や Ce:YIG において、磁気光学効果が増大することは広く知られている [1]。磁性ガーネット結晶が磁化しやすい方向と磁化しにくい方向を決める性質 (磁気異方性 *3) は、組成や製膜方法によって変わる。磁性ガーネット中の鉄 (Fe) イオンは 3 価であり、異方性の強い d 軌道を占めるものの、5 個の d 軌道のすべてを埋めるため、結晶磁気異方性を示さない。

磁性ガーネット薄膜の新規磁化反転方式の開発と空間光変調器への応用

Research on Novel Magnetization Reversal Method of Magnetic Garnet Thin Film and Application to Spatial Light Modulators



しかし、例えば、磁性ガーネット結晶中の酸素が欠損すると、磁化を反転するのに必要な磁界が増減する等、磁気異方性が変化することが知られている[2]。磁性体の磁化状態の反転・変調や磁気異方性の制御により、透過光強度を変調することができれば、光制御素子や空間光変調器への応用が考えられる。磁性体の不揮発性を活かせば、スイッチング時以外には電力消費を抑えた表示デバイスへの応用が期待される。

2. 研究の目的

本研究では、Ce:YIG および YIG 中の酸素欠損濃度を増減させることで、磁気異方性の制御を行うことを目的とする。マグネトロンスパッタ法により Ce:YIG, YIG 薄膜を製膜する際の酸素流量を変化させて作製した複数の Ce:YIG 試料を用い、X線回折測定を評価し、磁気異方性の変化をファラデー回転角の磁場依存性の測定により評価した[3]。また、製膜した各試料に電子線描画により微小電極を作製し、電気伝導特性を測定し、製膜時の酸素流量の違いによる抵抗値の変化を評価した。

3. 研究の背景、同じ分野の研究に関する国内外の研究動向

磁気光学効果を用いた空間光変調器として、金属磁性体 GdFe を用いた空間光変調器が報告されている[3]。反射光の磁気光学効果である磁気カー効果を用いて、反射光の偏光面の回転方向が磁化方向によって反転す

ることが応用されている。磁化を反転するために、電流を流したコイルが発生する外部磁界を使うのではなく、「スピン注入磁化反転」と呼ばれる手法が用いられている。「スピン注入磁化反転」では、巨大磁気抵抗効果を起こす金属多層構造 (GdFe/Ag/CoFe/TbFeCo) において、磁化反転しにくい強磁性金属 (CoFe/TbFeCo) から表面側の強磁性金属 (GdFe) にスピン偏極した電流を流すことで、コイルを用いずに磁化反転する手法である。コイルを用いないことで、磁化反転するのに必要な電力消費を抑え、立体像を再生するための空間光変調器の実証実験が行われている。

4. 試料の作製及び評価

以下に本研究で着目した Ce:YIG 薄膜の製膜について紹介する。非磁性の単結晶ガーネット基板である (1 1 1) SGGG 基板上に、マグネトロンスパッタにより Ce:YIG 薄膜を製膜した。ターゲットには $Ce_{0.6}Y_{2.4}Fe_5O_x$ セラミックターゲットを用い、入射電力 50 W、スパッタ時圧力 8 Pa とした。① 純 Ar ガス 10 sccm、② Ar ガスに O_2 が 1% 含有されたガス 10 sccm の 2 つのガス流量条件のもと作製した。製膜時の基板温度は 600 °C とした。製膜条件、および、試料の外見を表 1 に示す。図 3 に X 線回折測定結果を示す。試料は黄緑～茶色に着色しており、図 3 の X 線回折測定結果より単結晶であることがわかる。

表 1 Ce:YIG 試料の製膜条件、および試料の外見

マグネトロンスパッタによるCe置換YIGの製膜		
製膜条件		
スパッタターゲット	Ce _{0.6} Y _{2.4} Fe ₅ O _x	
入射電力	50W	
スパッタ時圧力	8Pa	
基板	(1 1 1)SGGG基板 (格子定数:12.497 Å)	
基板加熱温度	600°C	
Arガス流量	10sccm	
O ₂ 流量比	0%	1%
スパッタ時間	6時間15分	7時間
膜厚	877nm	871nm
	試料①	試料②

試料の写真
(左:O₂0%,右:O₂1%)

磁性ガーネット薄膜の新規磁化反転方式の開発と空間光変調器への応用

Research on Novel Magnetization Reversal Method of Magnetic Garnet Thin Film and Application to Spatial Light Modulators

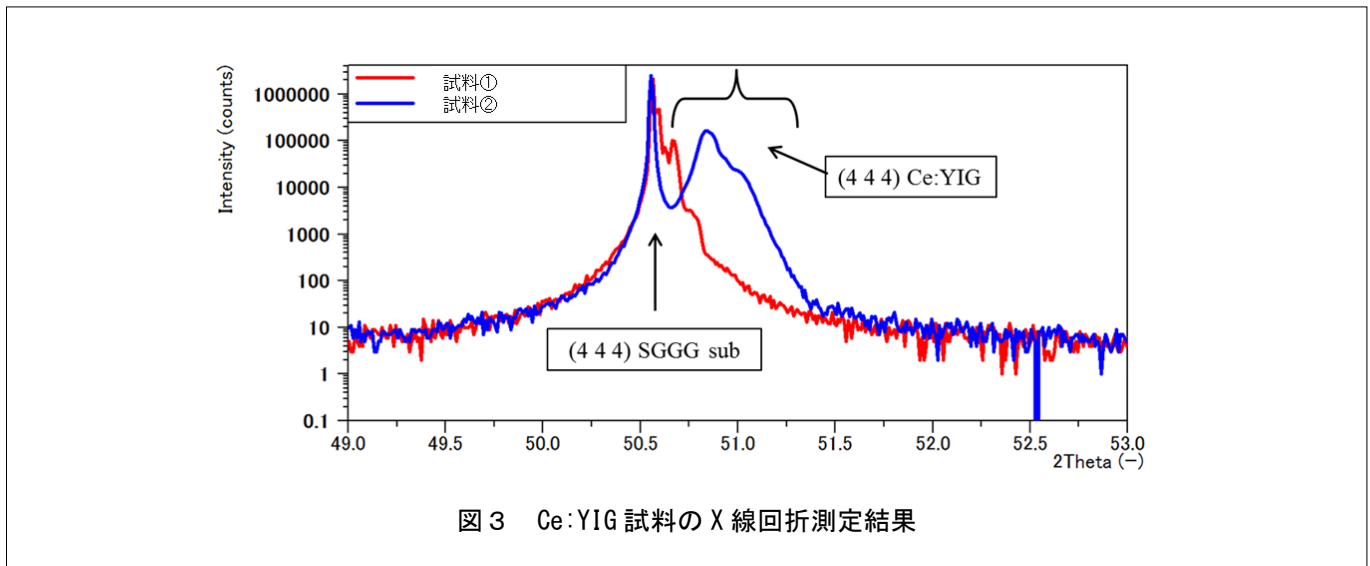
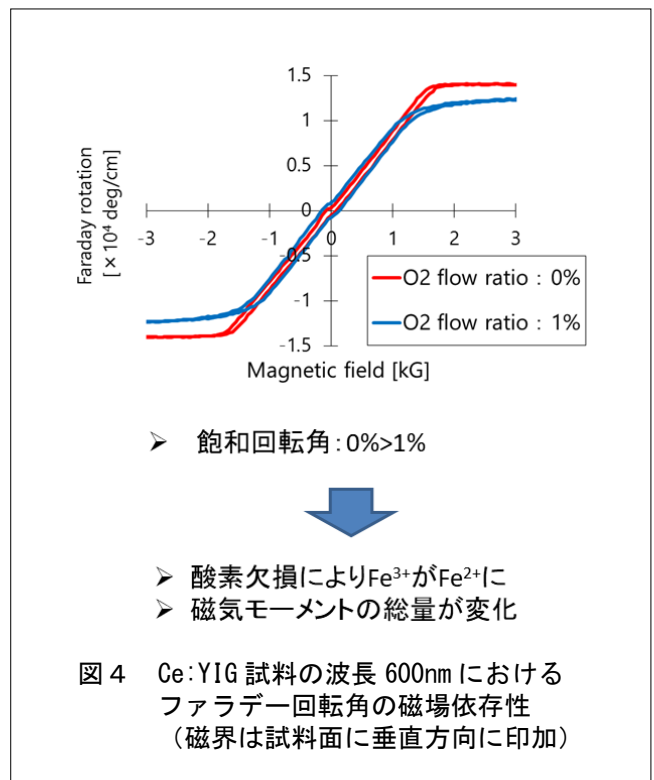


図3 Ce:YIG 試料の X 線回折測定結果

Ce:YIG には Ce_2O_3 , Y_2O_3 , Fe_2O_3 の 3 種類の酸化物が含まれ、酸素欠損の影響が Ce, Y, Fe の酸化過程に及ぼす影響は明らかではない。そこで、別途、Ce を含まない YIG をマグネトロンスパッタにより製膜した。Ce:YIG の製膜と同様に、①'純 Ar ガス 10 sccm、②'Ar ガスに O_2 が 1%含有されたガス 10 sccm の 2 つのガス流量条件のもと作製した。

作製した試料について、光学遅延変調法を用いて磁気光学効果を測定した。図 4 に波長 600 nm におけるファラデー回転角の磁場依存性の測定結果を示す。図 4 から、Ce:YIG, YIG とともに試料面に垂直方向に磁化するのに必要な磁界が酸素流量比の低い試料①、①'で大きいことがわかった。試料①、②、①'、②'に対して基板面内に磁界を印加したときの磁化特性の測定結果を図 5 に示す。磁性ガーネット中の Fe^{3+} は、5 つの d 軌道を電子が占有するため、特定の方向に磁化しやすい磁気異方性は示さない。しかしながら、酸素を加えずに製膜した試料①、①'では、②、②'に比べて磁化が面内に向きやすい性質を示した。同じ傾向は Ce:YIG, YIG とともに見られる。製膜時に酸素を導入しなかった試料①、①'では、結晶中に酸素欠損が生じて結晶格子が歪み、あるいは、キャリアが余分に発生し、Fe イオンの $3+$ の一部の価数が $2+$ に変わり、面内磁気異方性が現れたと考えられる。また、ファラデー回転角は、製膜時の酸素流量比が小さい試料①、①'が大きくなった。これは、Fe イオンの磁気モーメントの総和が酸素欠損に



➤ 飽和回転角: 0% > 1%



➤ 酸素欠損により Fe^{3+} が Fe^{2+} に
➤ 磁気モーメントの総量が変化

図4 Ce:YIG 試料の波長 600nm におけるファラデー回転角の磁場依存性 (磁界は試料面に垂直方向に印加)

より大きくなったことが一因と考えられる。

酸素欠損が生じたのであれば、試料の電気抵抗が増減するとの予測のもと、作製した試料の電気抵抗を測定した。試料上に電子線描画と電極金属の蒸着・リフトオフにより、電極 (Ti 10 nm / Au 50 nm) を作製した。描電極の形状は $300 \times 300 \mu\text{m}^2$ の正方形とし、電極間距離を 1, 5, 10, 15 μm の 4 種類とした。

磁性ガーネット薄膜の新規磁化反転方式の開発と空間光変調器への応用

Research on Novel Magnetization Reversal Method of Magnetic Garnet Thin Film and Application to Spatial Light Modulators

磁化特性(試料面内に磁化を印加, 室温)

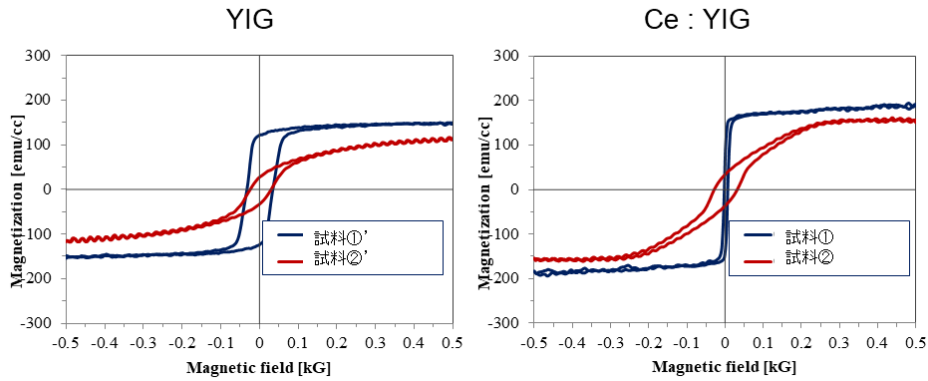


図5 YIG Ce:YIG 試料の磁化特性の測定結果

電極間距離: 5 μm , 測定温度: 室温

O₂ 流量比: 0%

O₂ 流量比: 1%

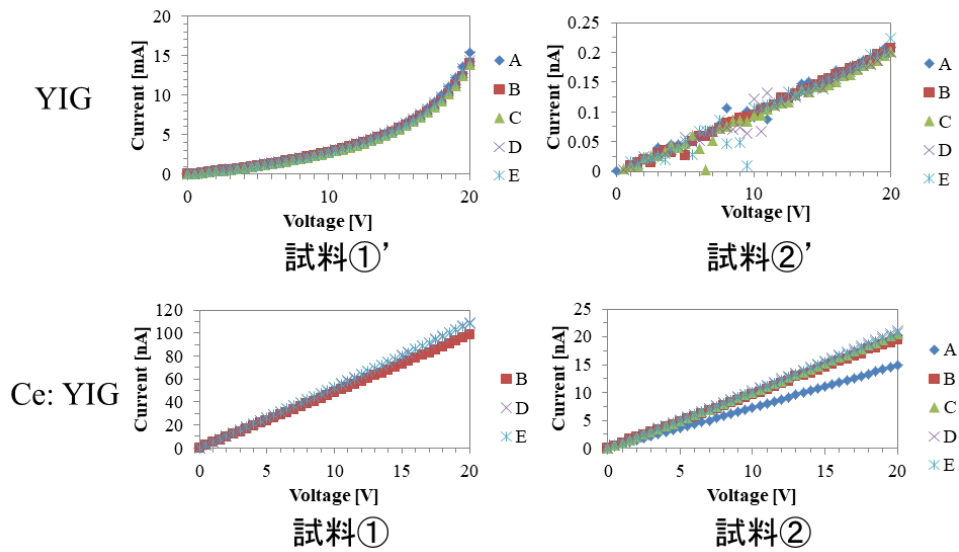


図6 YIG, Ce:YIG 試料の電気伝導特性の測定結果

図6に各試料のI-V特性の測定結果を示す。図6より、Ce:YIG 試料①は試料②と比較すると、約25倍大きな電流が流れることが分かる。これは、Ce:YIG 試料①中に酸素欠損が生じてFe, Ceイオンの価数が変わり、不純物準位が形成され、ホッピング伝導により電流が流れやすくなったためであると考えられる。

YIG 試料では、電気抵抗の変化はより顕著であり、酸素を添加せずに製膜した試料①'では、mA オーダーの電流が流れて導電性が現れ、②'と比較して抵抗率が7桁違う結果となった。製膜時の酸素添加の影響は、Ceを含まないYIG 試料の方がより顕著である。

以上の実験結果より、磁性ガーネットの磁気異方性

磁性ガーネット薄膜の新規磁化反転方式の開発と空間光変調器への応用

Research on Novel Magnetization Reversal Method of Magnetic Garnet Thin Film and Application to Spatial Light Modulators

や電気抵抗を製膜時の酸素添加の有無によって制御することに成功した。

5. 将来展望、将来における応用分野

磁性ガーネットの磁気異方性や電気抵抗を製膜時の酸素添加の有無により、複数試料間で差異を作り出すことに成功した。今後、ホール効果の測定により各試料中のキャリア濃度を評価し、磁性ガーネット試料の磁気異方性とキャリア濃度との関係性を明らかにする予定である。また、金属酸化物の一部に見られる抵抗変化現象[4]と、抵抗変化時の金属イオンの価数の変化を、磁性ガーネットへ応用することで、1 磁性ガーネット試料において抵抗変化現象と磁化反転を組み合わせた磁気異方性の制御を通じた光変調素子や空間光変調器への応用を目指す。磁性ガーネット試料の磁気異方性を利用する本研究の手法は、画素の小型化、アレイ化に適しており、立体像再生のための空間光変調器実現のための基盤となり得る。

また、磁性ガーネット試料の製膜方法として、単結晶基板上へのマグネトロンスパッタを取り上げてきた。非晶質で安価のガラス基板を含む多種多様な基板上に、磁性ガーネット試料を製膜することができれば、製造コストの点で有利である。筆者らは、有機金属堆積法 (Metal Organic Decomposition Method) を用いて、ビスマス置換ガドリニウム鉄ガーネット薄膜やビスマス置換イットリウム鉄ガーネット薄膜を単結晶基板やガラス基板上に製膜してきた。磁性ガーネットがガラス基板上で結晶化するための温度の最適化や Bi 置換量を制御し、単結晶基板上に製膜した単結晶磁性ガーネット試料と比較して、70~80%のファラデー回転角を示す多結晶磁性ガーネット試料の製膜に成功している[5]-[7]。本製膜手法は、電子・光デバイスの基板である Si 基板上にも適用可能であり、画像表示デバイスのみならず、光通信デバイス用途にも応用可能である。

用語解説：

*1 イットリウム鉄ガーネット

イットリウム(Y)と鉄(Fe)の酸化物 Y_2O_3 , Fe_2O_3 が 3:5 で化合物を形成し、図 1 に示すように、 $Y_3Fe_5O_{12}$ を 1 単位とする絶縁性磁性体の総称。光アイソレ

ータや高周波回路用材料として広く用いられている。Y の代わりにガドリニウム(Gd)を用いた希土類鉄ガーネットや、Y や希土類の一部を Bi や Ce で置換した多種多様な磁性ガーネットが報告されている。

*2 空間光変調器

液晶ディスプレイの画素を表示するためのデバイスのように、光の強度・位相・偏光を空間的・時間的に変調するための光デバイス。液晶や MEMS (微小電気機械デバイス) を用いて製品化されている。

*3 磁気異方性

磁性体、特に、薄膜上の磁性体が磁化 (磁気分極の集合体、N 極と S 極の向き) しやすい方向を表す総称。形状磁気異方性、結晶磁気異方性、製膜時誘導磁気異方性等に分類される。一般に、薄膜磁性体では、印加した磁界を打ち消す反磁界の大きさが小さくなる向きが磁化しやすいため、面内方向に磁化 (磁気分極) する。結晶磁気異方性は、結晶構造、Fe イオンの価数等によって、特定の方向に磁化しやすい異方的な性質を表す。

参考文献

- [1] M. Gomi et al, Jpn. J. Appl. Phys. **27**, 1536-1538 (1988).
- [2] T. Shintaku and T. Uno, Jpn. J. Appl. Phys. **35** 4689-4691 (1996).
- [3] K. Aoshima et al : J. Disp. Tech., **11** 129-134 (2015).
- [4] N. Takamori et al : Jpn. J. Appl. Phys., Vol.46, No.5A, pp.2944-2946 (2007)
- [5] D. A. Wahid, T. Hattori, J. Sato, and H. Shimizu, J. Magn. Soc. Jpn. **39** 100-106 (2015).
- [6] D. A. Wahid, J. Sato, M. Hosoda, and H. Shimizu, J. Magn. Soc. Jpn. **40** 107-114 (2016).
- [7] D. A. Wahid, T. Morioka, H. Shimizu, IEICE Electronics Express **13** 20161011 - 1~12 (2016).

この研究は、平成 25 年度 S C A T 研究助成の対象として採用され、平成 26~28 年度に実施されたものです。