

高周波磁界観察用磁性ガーネット薄膜の強磁性共鳴半値幅の制御

安達信泰・大下瞭雄

名古屋工業大学先進セラミックス研究センター
〒507-0071 岐阜県多治見市旭ヶ丘10-6-29

Control of Half Width of Ferromagnetic Resonance of Magnetic Garnet Film for High Frequency Electromagnetic Field Sensor

Nobuyasu Adachi, Akio Oshita

Advanced Ceramics Research Center, Nagoya Institute of Technology
10-6-29 Asahigaoka, Tajimi, Gifu 507-0071, JAPAN

Ferromagnetic resonances of $\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ garnet films on Gadolinium Gallium garnet substrates have been investigated from the point of view of controlling the resonance width for the sensor of high frequency electromagnetic fields. The ferromagnetic resonance enhances the magneto-optical effect in the high frequency electromagnetic field. The films were grown by liquid phase epitaxy technique. With increasing Pr substitutions ($x=0\sim 0.3$), the ferromagnetic resonance half width was almost linearly changed up to several hundred Oersted. The extreme sharp resonance width can easily be affected by the resonance conditions such as environmental temperatures and the controlling the resonance width is useful for the stability of the electromagnetic field sensor.

Keywords: Magneto-optics, Ferromagnetic resonance, magnetic garnet, liquid phase epitaxy

1. はじめに

我々は、長年、直流磁界、交流磁界観察用のイメージングセンサー開発に従事している [1-3]。磁気光学効果（ファラデー効果）を用いることで、磁界情報を光学情報に変換することをセンサーの原理としており、その磁界情報は、電子スピンの持つ磁気モーメントの振る舞いが起源となっている。磁界分布は磁界によって磁化された磁性薄膜の光学的性質の変化を局所的に観察しイメージ化している。社会のIT化がますます重要視されるなか、情報伝達に欠かせない無線通信では、使用される周波数帯がすでに MHz 帯から GHz 帯に移行しており、電子機器の発振周波数も高周波化が余儀なくされている。近い将来に、GHz から THz への移行も視野に、現在、研究がすすめられているのが現状である。一方で、電子機器の高周波化は、その回路設計や部品開発がそれほど単純ではなく、また、漏洩電磁界対策やエネルギーの効率化等まだまだ不十分な開発要素が多い。

磁気光学効果を用いた高周波電磁界センサーは、微弱な信号をより高感度に検出することが現時点での課題であるが、測定系の信号増幅部分は、電子回路技術が担っており、センサー素子の開発を目指す我々の研究グループとしては、いかに大きな磁気光学効果を示す物質を開発するか、ということが焦点となる。現時点で、我々は、

磁性ガーネットを用いたセンサー素子開発を行っているが、素子の性能を高周波帯で増幅させる一つの方法として、磁気共鳴を利用した方法が挙げられる。また、ソフト磁性体は、MHz 帯での透磁率は高く、磁界に対する線形応答性は優れているがスヌーク則 [4] により、GHz 帯での透磁率が減少することで、高周波領域で磁化を誘起させることが困難になる欠点がある。しかし、磁気共鳴を利用すると実験的に数十 GHz 帯での共鳴が可能となる。磁気共鳴により磁気モーメントが誘起されるため、磁気光学効果も増大する。

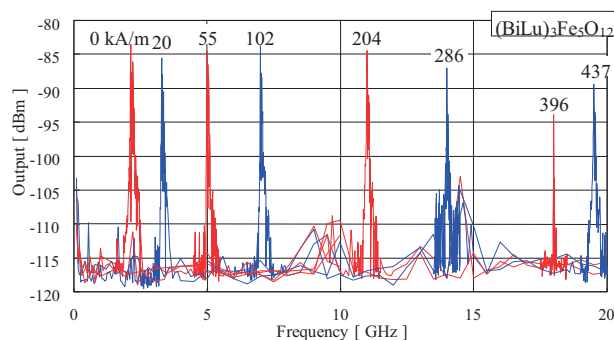


Fig.1. Frequency dependence of Magneto-optical signal around micro-stripe line in the magnetic field.

Fig.1 に、導線周りに高周波信号を流したときに発生する高周波磁界を磁気光学素子で検知したときに、外部磁界のもと、特定周波数でファラデー効果の増大が起こるスペクトルを示す。

磁界をかけるとともに、特定周波数での信号増幅が認められ、その周波数は印加磁界の増大に比例して、高周波側に増加する。このことは、印加磁界により特定周波数のファラデー回転が増大したことを示している。

Fig.2 には、この磁界中での高周波磁界の磁気光学測定の結果とマイクロ波共振器による強磁性共鳴 (FMR) 実験での印加磁界と共鳴周波数との比較を示す。一般に FMR のマイクロ波周波数と共鳴磁界との関係は eq. (1) のように表される。

$$f_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H_r + H_A) \left(H_r + H_A + \frac{I_s}{\mu_0} \right)}, \quad (1)$$

(f_0 : microwave frequency, H_r : resonance magnetic field, H_A : anisotropy field, I_s : saturation magnetization, g : gyromagnetic ratio ($2\pi g\mu_B/h$) μ_0 : vacuum permeability)

ここで内部磁界 (異方性磁界 H_A) の影響で、磁化容易軸方向に外部磁界をかける時に、低磁界で共鳴が起きやすくなることが特徴である。ファラデー回転の測定は膜に垂直方向に磁界をかけるので、面直方向に磁界をかけた場合の強磁性共鳴スペクトルから得られた周波数-共鳴磁界の関係と特定周波数 (共鳴周波数) でファラデー効果の増大が起こる磁界との関係が一致する。数十 GHz 帯から数百 GHz 帯まで鋭い磁気共鳴スペクトルを観測できており、磁気共鳴を組み合わせた磁気光学効果による高周波磁界観察は、金属ループコイルが困難な GHz 帯でのセンサーとして利点がある。磁気光学素子としての磁性ガーネットとしては、当初、設計指針として $(\text{BiLu})_3(\text{Fe})_5\text{O}_{12}$ を候補とした [5]。Bi の置換量を増やすとファラデー回転は顕著に増大し、また、Lu は

希土類元素の中でも、磁気モーメントを持たないことから Fe との相互作用もなく、共鳴スペクトルは、 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) と類似して、急峻なスペクトルを示し、特定周波数に対して感度の優れた磁気光学特性が得られた。しかしながら、スペクトル半値幅が極めて小さいことは、温度変化等に敏感で、わずかな環境の変化で共鳴条件が変化するため、測定環境の温度管理を適切に考慮する必要がある。例えば、Fig.3 に示す導線周りの磁界分布の観測では、レーザーを走査しながら照射し、10 分以上の時間をかけて測定した。磁界成分の強い部分が導線まわりに不均一に見える。

元来は、導線上にそっては均一な磁界分布であるはずで、上記の共鳴条件が時間とともに変動することが一つの要因と考えられ、温度等の環境に影響しない工夫が必要と考えられた。

温度を一定に保つ恒温器の中で測定を行うことは、設備がより大掛かりになるとともに、将来的にコンパクトで携帯可能な評価装置にすることを考えていることから、好ましいことではない。そこで、温度変化が起きても安定に共鳴が起きるようにするために、強磁性共鳴スペクトルの半値幅を広くすることで共鳴条件を緩くすることを考えた。以前に、液相エピタキシー法による磁性ガーネット薄膜の合成において、成長誘導磁気異方性を利用し、希土類元素の Pr を二十面サイトにある Lu と置換することで磁気異方性を面内方向に向かせることを試みた。その際に、面内方向に磁界をかけた場合、Fig.4 に示すように強磁性共鳴の共鳴磁界が異方性磁界の影響で低磁界側に現れるとともに、共鳴半値幅が大きくなったが、共鳴ピークは著しく小さくなった。半値幅とピーク強度は一般にトレードオフの関係があるので、広すぎる半値幅は、逆にセンサーとしての感度が低下する。そこで、共鳴ピークの大きさを適度に保ち、任意の半値幅に制御できるかを調べることにした。

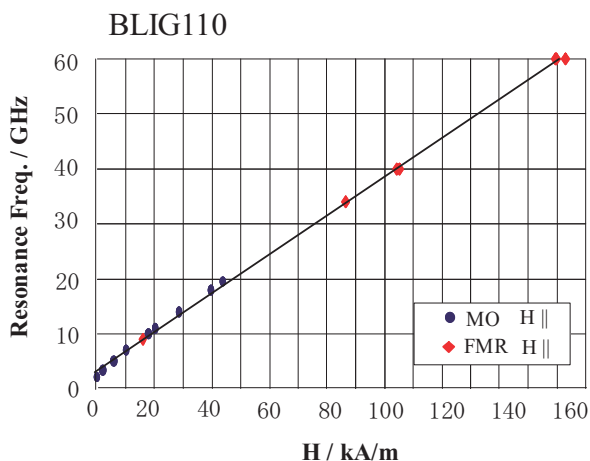


Fig.2. Relation between resonance frequencies and applied magnetic fields by MO and FMR measurements

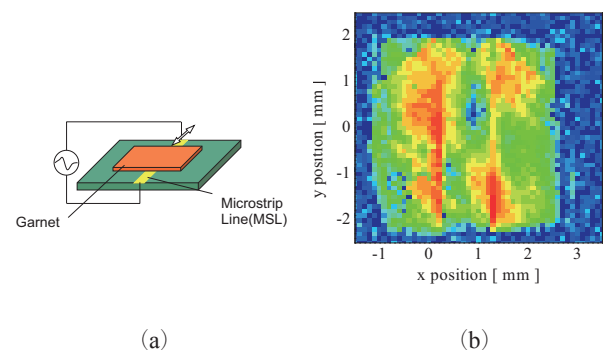


Fig.3. (a) Schematic arrangement of the MO measurement using magnetic garnet film around micro-strip line and (b) 14 GHz high field magnetic field distribution image around the micro-strip line in the magnetic field of 3.5 kOe.

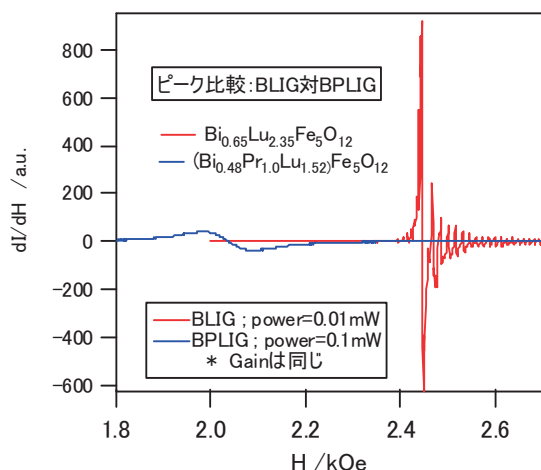


Fig.4. FMR spectra of $(\text{BiLu})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ and $(\text{BiPrLu})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$.

2. 実験

成膜方法は、光学的に優れ、均質な膜を得るのに有利な液相エピタキシー (LPE) 法を用いた [6]。ガーネット組成の酸化物原料のほかにフラックスとして PbO , B_2O_3 , Bi_2O_3 を原料として調合し、高温メルトの液面に単結晶基板を接触させ片面基板上に成膜した。基板には $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG: 格子定数 $a=12.37\text{\AA}$) を使い、(111) 面上に成膜した。磁性ガーネットの組成は、磁気光学イメージングとして設計指針としてきた $(\text{BiPrLu})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BPLIG) とした。ビスマスが大きなイオン半径を持つために光アイソレータに用いられている汎用の YIG にビスマスを置換するよりも、Y よりイオン半径が小さく非磁性イオンである Lu ベースの母体を用いるほうが、決まった格子定数を持つ単結晶基板に対して、ビスマス置換量を多くしてマッチングが取れると考えたことによる。Pr を置換するのは、成長方向と垂直方向に成長誘導磁気異方性が生じることによる [7-9]。

$\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 用の原料の調合は、LPE 法による作製でガーネット結晶が成長するために確立されている組成パラメーター (Table I) を参考に $R_1=20$, $R_3=10$, $R_4=0.13$, $R_6=2.5$ として、 R_5 を 0 から 0.2 まで変えて、 $x=0\sim 0.3$ まで作製した。

作製した膜の厚さと組成比は、電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM: JSM-7000F) と付属のエネルギー分散型 X 線分析 (EDX) 装置を用いて、それぞれ決定した。強磁性共鳴の実験は、室温で電子スピン共鳴装置 (Bruker E500) を用いて X バンドの周波数帯で行った。

3. 結果と考察

LPE 法による $\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の成膜温度は、 740°C 前後とし、成長速度は $0.45\ \mu\text{m}/\text{min}$ 、膜厚約 $4.5\ \mu\text{m}$ の膜を作製した。これまで作製してきた磁気光学イメージング素子としては、標準的な膜厚である。SEM の断面観察では緻密で平坦な膜が確認された。Cu をターゲット

Table I. Composition ratio parameters

$R_1 \equiv \frac{\text{Fe}_2\text{O}_3}{\sum \text{R}_2\text{O}_3}$	$R_2 \equiv \frac{\text{Fe}_2\text{O}_3}{\text{M}_2\text{O}_3}$	$R_3 \equiv \frac{\text{PbO}}{\text{B}_2\text{O}_3}$
$R_4 \equiv \frac{\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{M}_2\text{O}_3 + \sum \text{R}_2\text{O}_3}{\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{M}_2\text{O}_3 + \sum \text{R}_2\text{O}_3 + \text{PbO} + \text{B}_2\text{O}_3 + \text{Bi}_2\text{O}_3}$		
$R_5 \equiv \frac{\text{R}_2\text{O}_3}{\sum \text{R}_2\text{O}_3}$	$R_6 \equiv \frac{\text{PbO}}{\text{Bi}_2\text{O}_3}$	
R : Ion of the c cite (Y, Lu, Bi, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, etc.)		
M : Ion of the a, d cite (Ga, Al, Ge, etc.)		

ト電極とした管球を用いた Bragg-Brentano 型粉末 X 回折計による XRD スペクトルでは、ガーネット構造の 111 反射に由来する回折ピークは現れなかったことから、111 単結晶基板上にエピタキシャル成長し、2 次相は無いと思われる。888 反射の回折ピークに関して Fig.5 に示すように、Cu の Ka_1 線と Ka_2 線による基板と膜の回折ピークが 2 本ずつ現れ、高角側の基板からの回折ピークに対して膜の回折ピークは、Pr の置換量の増加に伴い、低角側へシフトしていく傾向がみられた。これは、イオン半径の大きい Pr^{3+} イオンが置換されていることを示している。一方、基板との格子ミスマッチングは Pr 置換量とともに大きくなり、LPE 法によるエピタキシャル成長にとっては好ましくない。888 反射のロックンカーブスペクトル (Fig.6) にみられるように、半値幅は、 $x=0.08\sim 0.32$ では $0.12\sim 0.22$ と増大し、単結晶性は悪くなる。格子マッチングが良くなる格子定数を持つ組成となる基板は、一般に市販されているガーネット基板にはないので、イメージング素子としての磁性ガーネット組成設計指針が確定されたら、将来、それに適した基板も作製する必要がある。Bi の置換量に関しては、組成分析結果では、いずれの膜も約 $y=0.9$ となり、ファラデー回転スペクトルにおいても同じ Bi 置換量を反映した回転角を示した。磁気共鳴による膜の面内方向に磁界を印加したときの強磁性共鳴スペクトルと、

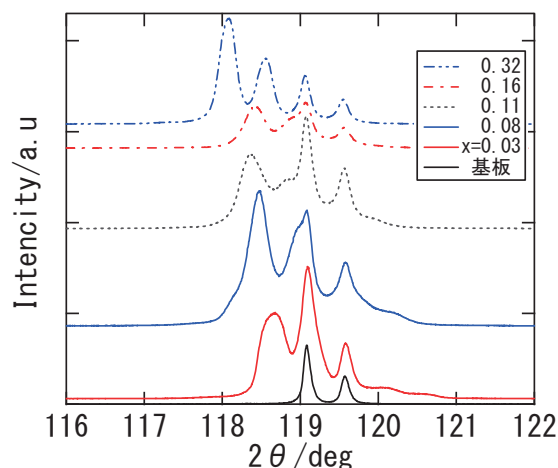


Fig.5. XRD pattern of $\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ films

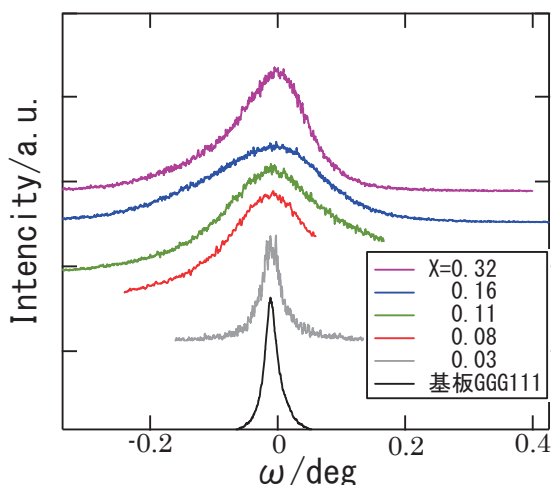
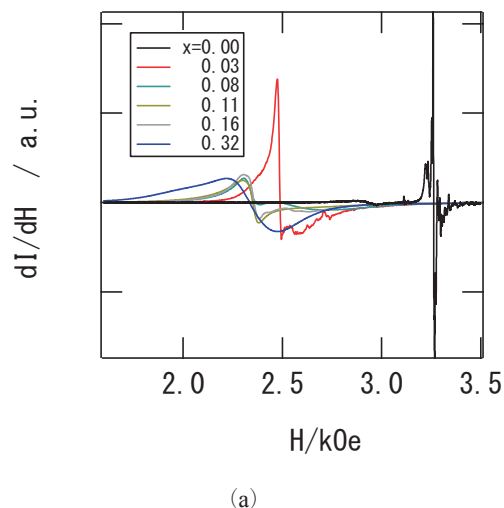


Fig.6. Rocking curve of 888 diffraction peaks of $\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ films

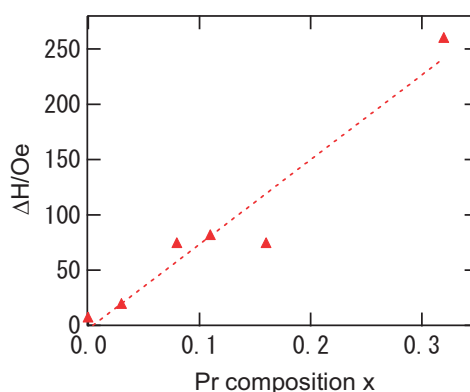
その半値幅を Fig.7 (a), (b) にそれぞれ示す。Pr の置換量の増加に従って、強磁性共鳴のピークが低磁界側にシフトしている。これは、成長誘導磁気異方性の影響で Pr 置換量が増えるとともに面内方向への磁気異方性が大きくなり、より低い印加磁界で強磁性共鳴が起こるようになっているためである。また、強磁性共鳴の半値幅は $x=0, 0.03, 0.08, 0.11, 0.16, 0.32$ において、それぞれ、約 7,20,74,82,74,260 Oe であり、Pr の置換量と磁気共鳴の半値幅がおおよそ直線関係で示せることが分かった。ピーク高さに関して、 $x=0.32$ の場合は、 $x=0$ の場合より、半分近く小さくなったが、Fig.3 に示したような極めて小さくなる程度ではなく、膜厚の調整で回転角を増やすことで感度が維持できる範囲内と考えられる。以上の結果より、Pr の置換量に基づいた強磁性共鳴の任意の半値幅を得ることができ、測定環境に応じた設計が可能であることが示唆された。

まとめ

高周波磁界観察をイメージングする手法として、磁性ガーネット薄膜による磁気光学素子を利用する方法があるが、GHz 帯では、磁気共鳴と組み合わせることで、特定周波数帯の磁界に対して大きなファラデー回転を誘起することにより、高感度に磁界イメージングを行うことができる。しかしながら、組成によっては磁気共鳴条件が温度等の環境に左右されやすくなるため、本研究では、磁性ガーネット ($\text{BiPrLu})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ において希土類元素である Pr の置換量を制御することで、大きな磁気共鳴ピーク高さを保ちながら、共鳴半値幅を変化させることを試みたところ、数 Oe から数百 Oe の範囲で Pr 置換量に比例して連続的に磁気共鳴の半値幅を制御できることが明らかになった。



(a)



(b)

Fig.7. (a) FMR spectra of $\text{Bi}_y\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x-y}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ films and (b) half width of the resonance peak ΔH depending on Pr concentration x .

謝辞

磁気特性評価の一部は、自然科学研究機構分子科学研究所ナノスケールセンターの藤原基靖氏、伊木志成子氏の協力をいただきました。ここに感謝いたします。

References

- [1] M. Takahashi, K. Kawasaki, H. Ohba, T. Ikenaga, H. Ota, T. Orikasa, N. Adachi, K. Ishiyama, K. I. Arai, *Journal of Applied Physics*, 107 (9, Pt. 2), 09E711/1-09E711/3 (2010)
- [2] N. Adachi, K. Yogo, T. Ota, M. Takahashi, K. Ishiyama, *Journal of Applied Physics*, 109 (7), 07A506/1-07A506/3 (2011)
- [3] H. Nasuno, S. Hashi, K. Ishiyama, N. Adachi *Journal of the Magnetics Society of Japan*, 35 (3), pp.273-275 (2011)
- [4] J. L. Snoek *Physica* Vol.14, pp.207-217 (1948), Pp.207-217
- [5] S. Iida, *J. Phys. Soc. Japan* 22, 1201 (1967)
- [6] 日比谷孟俊, 日本結晶成長学会誌 22, 14-31 (1995)

- [7] P. Hansen, C. P. Klages, and K. Witter, *J. Appl. Phys.* **60**, 721 (1986)
- [8] E. M. Gyorgy, et. al., *J. Appl. Phys.* **44** (1973) 438
- [9] P. Hansen, C. P. Klages, and K. Witter, *J. Appl. Phys.* **60**, 721 (1986)