

金属微粒子含有ガリウム置換 ビスマス鉄ガーネット薄膜の磁気光学効果

安達信泰、呉題、五十嵐学、石川政彦、太田敏孝
(名古屋工業大学)

Magneto-optical effect of Ga substituted Bismuth Iron Garnet with metal nano-particles

N. Adachi, M. Igarashi, M. Ishikawa and T. Ota

(Advanced Ceramics Research Laboratory, Nagoya Institute of Technology)

はじめに

我々は有機金属分解法(MOD)を用いて磁性ガーネット $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BIG)や Ga 置換 BIG(BIGG)の結晶合成ができたことを報告してきた。その過程で、緩衝層を導入することでガラス基板上へも大きな磁気光学特性を示す BIG が作製できることがわかってきた。さらに、磁界に対するファラデー回転角の変化率を高めるため、BIG や BIGG に、Au-Ag 合金微粒子を分散させ、局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) 現象を利用したファラデー回転の増大効果を期待して、金銀ナノ粒子とガーネット薄膜の複合膜の作製を行った。

実験方法

MOD 法を用い、 $\text{Bi} : \text{Fe} : \text{Ga} = 3 : 5 - x : x$ ($x=0 \sim 1.0$) 組成の有機金属溶液を単結晶ガーネット基板および $\text{NdY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (NdYIG)緩衝層を導入したガラス基板上にスパッタリングし、 480°C の熱処理で結晶化させた。また、金属微粒子を導入する際は BIGG をコーティングする直前に Ag、Au をスパッタリし、 480°C において 15 分間熱処理することによって Ag-Au 合金粒子を作製し、その上に BIGG を結晶化させた。

結果と考察

Fig.1 にガラス基板上に析出させた Au-Ag 微粒子の表面 SEM 写真を示す。スパッタ時は、薄膜で形成された状態が、 480°C で熱処理を行うと、ナノ粒子化する。光吸収では、一つの 500nm から 600nm の間で 1 本の吸収ピークが現れることから合金化していると考えている。次にこの上に BIG や BIGG をコーティングさせたところ、Fig.2 に示すように BIGG の膜中に Ag-Au 合金粒子を分散させたガーネット膜は、 $650\text{nm} \sim 750\text{nm}$ 付近の波長領域のファラデー効果が、分散させない膜に比べて大きくなるのが観測された。置換量 $x=0, 0.05$ と 0.2 の BIGG に関して最大 1.6 倍、 $x=1.0$ では 3 倍程度増大し、いずれの試料についても金属微粒子によるファラデー回転の増大効果が観測できた。これらの増大効果は、金属微粒子による局在プラズモン効果と考えている。

参考文献

- 1) T. Ishibashi, T. Yoshida, T. Kobayashi, S. Ikehara and T. Nishi, J. Appl. Phys 113, 17A926 (2013)
- 2) H. Uchida, Y. Masuda, R. Fujikawa, A. V. Baryshev, M. Inoue: J. Mag. Mag. Mat., 321, 843-845 (2009)

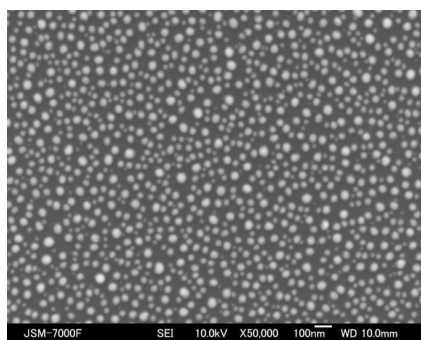


Fig.1 Ag-Au nano-particles on glass substrate

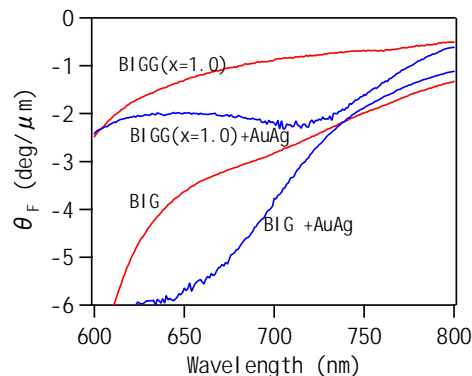


Fig.2. Faraday spectrum of the BIG and BIGG (x1.0) with and without Ag-Au particles on glass substrates.

磁気光学イメージングプレート用 $\text{Nd}_{3-x}\text{Bi}_x\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ 薄膜の

大面積化と性能評価

劉 琦、婁 庚健、佐々木 教真、石橋 隆幸
(長岡技科大)

Characterization of large $\text{Nd}_{3-x}\text{Bi}_x\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ thin films on glass substrates for magneto-optical imaging

Q. Liu, G. Lou, M. Sasaki, and T. Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech.)

1. はじめに

Bi 置換希土類鉄ガーネットは可視光領域において透明かつ大きい磁気光学効果を示すことから、磁気光学イメージングプレート材料として用いられている。これまでに我々は、有機金属分解法(MOD法)により優れた磁気光学特性を示す $\text{Nd}_{3-x}\text{Bi}_x\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ (NBIG)薄膜をガラス基板上に作製することに成功したことを報告した¹⁾。今回は、 $\phi 3$ インチの大きさのガラス基板上に作製した NBIG 薄膜の評価を行った結果について報告する。

2. 実験方法

3 インチの大きさのガラス基板上に、MOD 法によりバッファー層として厚さ $0.12 \mu\text{m}$ の $\text{Nd}_2\text{BiFe}_4\text{GaO}_{12}$ (Bi1:NIGG) を作製し、その上に厚さ $0.4 \mu\text{m}$ $\text{NdBi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (Bi2:NIG) 薄膜を作製した。バッファー層は、MOD 溶液(高純度化学研究所製 BiFeGaNd-04(1/4/1/2)) の塗布(3000rpm, 60 秒), 乾燥 (100°C , 10 分), 仮焼成 (450°C , 10 分) を 3 回繰り返した後, 本焼成 (700°C , 3 時間) により結晶化を行った。Bi2:NIG 薄膜は MOD 溶液 (BiFeNd-04(2/4/1)) を用い、バッファー層上に塗布から仮焼成の行程を 10 回繰り返した後, 本焼成 (700°C , 3 時間) によって結晶化を行った。

3. 結果及び考察

Fig.1 に作製した Bi2:NIG ガーネット薄膜の写真を示す。試料の縁では色が濃くなったが、中心部は均一な黄色となった。Fig.2 に波長 512 nm における各々の測定点での Bi2:NIG 薄膜のファラデー回転角を示す。ファラデー回転角の値は、中心部(0,0)で $14.6 \text{ deg./}\mu\text{m}$ であった。ファラデー回転角は薄膜の中心から縁に増えていることが分かった。これらはスピコートによる膜厚の不均一性によるものであると考えられる。詳細については、当日報告する。

謝辞

本研究の一部は、(独)情報通信研究機構の委託研究「革新的な三次元映像技術による超臨場感コミュニケーション技術の開発」により行った。

参考文献

[1] G. Lou, T. Yoshida and T. Ishibashi, Journal of Applied Physics 117,17A749 (2015)

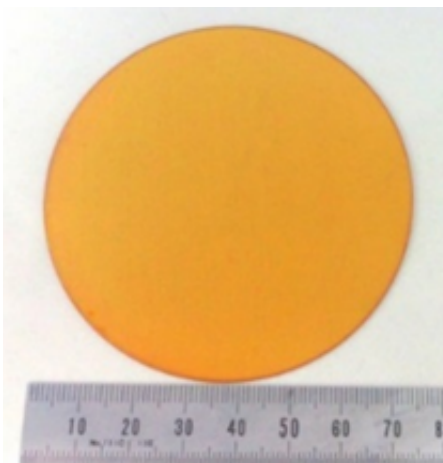


Fig.1 Picture of 3 inch Bi2:NIG films

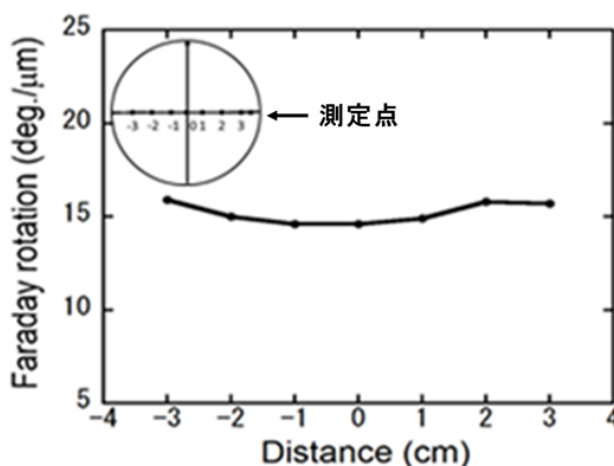


Fig.2 Faraday rotation of Bi2:NIG films on different position

Au/Bi:YIG 周期構造体の光学および磁気光学応答

内田裕久¹, 大木敬介¹, 佐藤春彦², 磯谷亮介³, 斉藤伸², 井上光輝³

(¹東北工業大学, ²東北大学, ³豊橋技術科学大学)

Optical and magneto-optical responses of Au/Bi:YIG periodic structures

H. Uchida¹, K. Ooki¹, H. Sato², R. Isogai³, S. Saito², M. Inoue³

(¹Tohoku Institute of Technology, ²Tohoku University, ³Toyohashi University of Technology)

はじめに

Au ナノ粒子と磁性ガーネット(Bi:YIG)との複合構造体では, プラズモン共鳴波長でファラデー回転角が増大する[1]. 周期的な配列をもつ構造体[2]では, 複数の光吸収バンドが透過率スペクトルに現れ, ファラデー回転角が変化するが, Au ナノ粒子の直径, 周期, 構造によって光学応答が変化する. 本研究では, このような周期的構造体の光学応答を明らかにするため, FDTD 法を用い, 透過率および電界分布を求め, 周期性と光学特性の関係を議論する.

実験およびシミュレーション結果

電子線描画装置によって, 図 1 に示すような石英基板上に周期的に配列した Au ナノ粒子を作製し, その上に磁性ガーネット Bi:YIG を成膜した複合構造体を作製した. 図 2 に正方配列した Au/Bi:YIG 複合構造体の透過率およびファラデー回転スペクトルを示す[2]. これらは直径が比較的大きな Au ナノ粒子によるものであり, プラズモン共鳴によって複数の光吸収バンドが現れ, 周期が大きくなるとプラズモン共鳴波長は長波長側に移動し, さらにそれらの共鳴波長でファラデー回転角が増大する. しかし Au ナノ粒子の粒径が小さい場合はプラズモン共鳴波長が 1 つになる.

図 3(a)は, Au ナノ粒子の周期 250nm, 直径が小さな 47nm のときの複合構造体の透過率スペクトルの実験結果と FDTD 計算の結果であり, 実験と計算どちらも 670nm 付近で光吸収バンドが現れていることが分かる.(b)は周期 250nm, 粒径が大きな 121nm のときの透過率スペクトルである. 吸収スペクトルが 730nm と 650nm 付近に複数あるのが確認できる.

周期を 250nm とし, 粒径を 30nm から 140nm まで徐々に変えたときの透過率スペクトルを FDTD 法によって求めたところ, 粒径が 120nm のとき, 2つの吸収バンドが最も離れ, かつ長波長側にあり, 粒径が小さくなるとともに, どちらの吸収バンドも短波長側に移動し, 粒径 50nm ではより短波長側にある吸収バンドがなくなるという結果が得られた.

参考文献

- 1) H. Uchida, Y. Mizutani, Y. Nakai, A. A. Fedyanin and M. Inoue: J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 064014 (2011).
- 2) 水谷祐介, 内田裕久, Baryshev Alexander, 井上光輝: 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-09-187, 93 (2009).

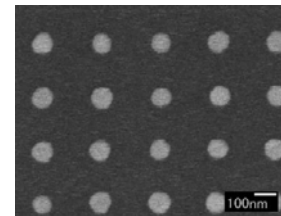


図 1 正方構造に配列した Au 粒子. 周期 300nm, 粒径 103nm

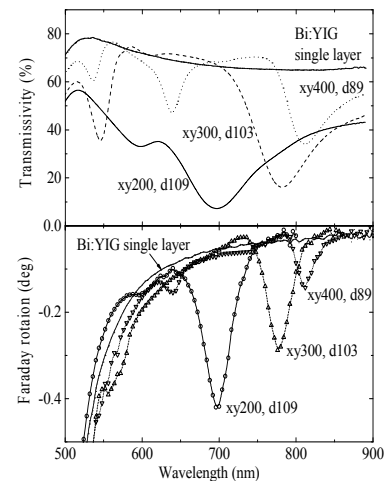


図 2 正方配列 Au/Bi:YIG 構造体の透過率とファラデー回転スペクトル. xy200 は周期, d109 は粒径を示す (単位 nm).

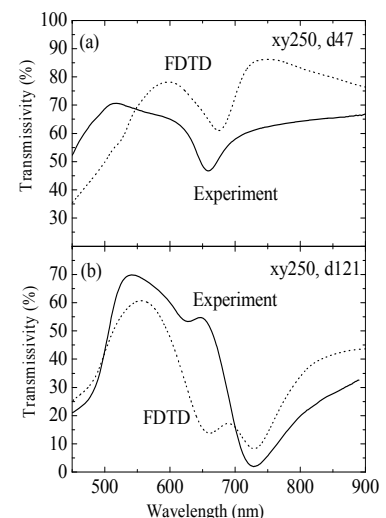


図 3 実験と FDTD 計算によって得られた正方配列 Au/Bi:YIG 構造体の透過率スペクトル. (a) 周期 250nm, 粒径 47nm, (b) 周期 250nm, 粒径 121nm.

分子磁気光学効果を利用した光磁気記録の提案

唐澤正信、石井和之
(東大生研)

Proposal for a magneto-optical memory based on molecular magneto-optical effects

M. Karasawa, K. Ishii
(IIS, Univ. of Tokyo)

緒言 芳香族化合物の場合、無機磁性材料とは異なり、金属イオン由来の d, f 軌道だけでなく、 π 電子軌道も軌道角運動量を有する(図1)。そのため、大きな π 電子系を有するフタロシアニン(Pc, 図2)は、強い磁気光学効果を示す。分子の磁気光学効果は、分子構造の精密制御による波長可変が容易、スペクトルがシャープ等の特長を有する。一方、無機磁性体とは異なり、分子磁気光学効果に室温で磁気ヒステリシスを付加することは困難である。近年我々の研究グループは、強磁性基板上に Pc 薄膜を作製することで、Pc 分子の強い磁気光学効果に、室温で磁気ヒステリシスを付加することに成功した。¹ Pc の照射による昇温で消磁することができれば、①外部磁場による磁気光学効果発現と②Pc の光吸収波長で照射することによる消磁・信号消失という ON/OFF 機能を付加することができる。

そこで本研究では、キュリー温度の低い(Bi, Dy)₃(Fe, Al)₅O₁₂ 薄膜基板を用いて、基板上 Pc の磁気光学効果に ON/OFF 機能を付加することを検討した。

実験結果 (Bi, Dy)₃(Fe, Al)₅O₁₂ 薄膜基板を熱分解法で作製した後、² 基板上に Pc 薄膜を作製した。この基板上 Pc 薄膜において、Pc 由来の磁気円偏光二色性(MCD)信号の磁気ヒステリシスを観測することに成功した。これは、Pc 薄膜の磁気光学効果が基板の表面磁場に応答していることを示している。

次に、640 nm のナノ秒パルスレーザーを用いて、Pc 由来の吸収帯を選択的に照射したところ、基板由来の MCD 信号強度が減少することを見出した。照射後、再度磁場を印加すると、MCD スペクトルは回復する。Pc 薄膜を除いた基板に照射しても MCD 信号強度に変化はなかったことから、照射による基板の消磁は、Pc の光励起による基板の昇温・消磁で説明できる。このように、外部磁場印加と照射により MCD 信号の ON/OFF に成功した。

以上の結果より我々は、分子磁気光学効果の特長を利用した新規磁気光学メモリを考案した(図3)。①吸収波長の異なる3種の分子(テトラアザポルフィリン 600 nm、Pc 700 nm、ナフトロシアニン 800 nm)を磁性基板上へ塗布し磁化(111 信号)→②700 nm で Pc の選択的光吸収・昇温により Pc 磁区の磁化消失→③700 nm での Pc 由来の磁気光学効果が消失→④3 波長で磁気光学効果を測定し 101 信号を認識。この方法を用いれば、分子の種類 N に対して 2^N 個の情報記憶が期待出来る。

参考文献

1. K. Ishii, K. Ozawa, *J. Phys. Chem. C*, 113, 18897 (2009).
2. J. Cho et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, 28, 1593 (1989).

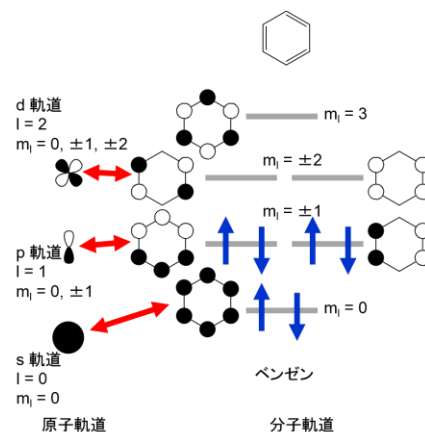
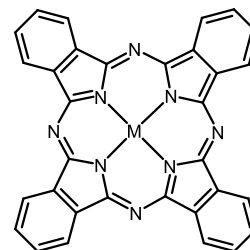
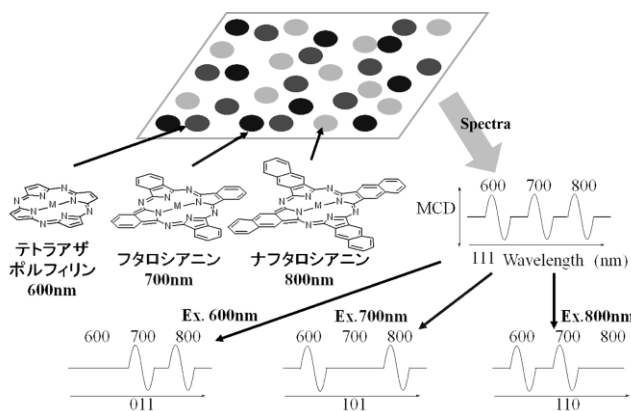
図1、ベンゼンにおける π 電子軌道の角運動量

図2、Pc の分子構造

図3、提案する分子光磁気メモリの模式図¹

熱吸収層を導入した磁性フォトニック結晶への体積熱磁気記録

磯谷 亮介, 鈴木 章太, 河津航大, 後藤 太一, 高木 宏幸, 中村 雄一, Pang Boey Lim, 井上 光輝
(豊橋技術科学大学)

Volumetric Thermomagnetic Recording into Magnetophotonic Crystals with Heat-absorbing Layers

R. Isogai, S. Suzuki, K. Kawazu, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, P. B. Lim, M. Inoue

(Toyohashi University of Technology)

はじめに

熱磁気記録は、光を用いて磁性体の磁化を制御できる手法の一つで、磁気光学ディスク、全光スイッチ等に应用されている。我々は、透明な磁性材料である置換型イットリウム鉄ガーネット (BiDyAl:YIG) 膜を用いて、ホログラムを磁化状態の体積分布として記録することに成功している¹⁾。このとき、光は表面から裏面にかけて減衰しながら伝搬するため、表面温度が高く内部に行くにつれ低下する。その結果、表面近傍の過剰な熱が拡散し、本来磁化反転しない領域でも磁化反転が生じるため、最終的に形成される磁気干渉縞がつぶれてしまう。この現象は、体積的な熱磁気記録を行う際に表面付近で顕著に現れ、深さ方向に十分な記録を行う障害となっていた。本発表では、体積熱磁気記録した磁気干渉縞のつぶれを抑制し、明瞭な干渉縞を体積的に形成することを目的に、熱吸収層を導入した多層膜 (ガーネット/熱吸収層: GAM) の磁気干渉縞の評価、及び本手法を磁性フォトニック結晶に適用した結果について報告する。

計算方法

磁気干渉縞を明瞭に記録するためには、GAM の基本要素 BiDyAl:YIG / 熱吸収層の各膜厚を適切に設計する必要がある。今回熱吸収層として Al_2O_3 を使用し、熱磁気記録時の温度上昇と基本要素の膜厚の対応を、有限要素法 (COMSOL Multiphysics) による熱計算で明らかにした。その結果を踏まえ、2 ペアの誘電体多層膜を持つ磁性フォトニック結晶 (MPC) 媒体に GAM 構造を導入した構造 (MPC+GAM 構造) SGGG 基板 / $(\text{Ta}_2\text{O}_5 / \text{SiO}_2)^2 / \text{GAM} / (\text{SiO}_2 / \text{Ta}_2\text{O}_5)^2$ を設計し、磁気干渉縞の形状及び回折効率を評価した。

実験結果及び考察

MPC のような共振器中に GAM 構造を入れる際には、その総膜厚を共振膜厚にする必要がある。それを踏まえ、熱計算により明らかにした GAM 構造の設計方法に従い、MPC+GAM 媒体の構造を決定し、この媒体に形成される磁気干渉縞を評価した。しかし、まだ磁気干渉縞のつぶれが生じることがあることが分かった。電界分布を調べると、ガーネット/アルミナの界面における光の反射により界面間で光が共鳴しており、結果として、その部分の温度が高くなり、磁気干渉縞がつぶれてしまうことが分かった。

そこで、挿入するアルミナ層の各膜厚をその光学波長の 1/2 の倍数とすることとした。この条件を課すことで、予期しない多重反射が抑制でき、光共振器中の本来の電界分布を維持することができる。230 mJ/cm² の記録エネルギー密度で MPC+GAM 媒体に二光束の干渉縞を形成した際の磁化反転分布を Fig. 1 に示す。MPC 媒体では、表面付近で干渉縞同士が繋がることで実効的な書き込み深さが減少している。一方、MPC+GAM 構造は表面から裏面にかけて明瞭な磁気干渉縞を形成できており、体積的な熱磁気記録に有用であり、MPC の 2.5 倍の回折効率を得られることが分かった。

参考文献

- 1) Y. Nakamura, H. Takagi, P. B. Lim, and M. Inoue, *Opt. Exp.* **22**, pp. 16439–16444 (2014).

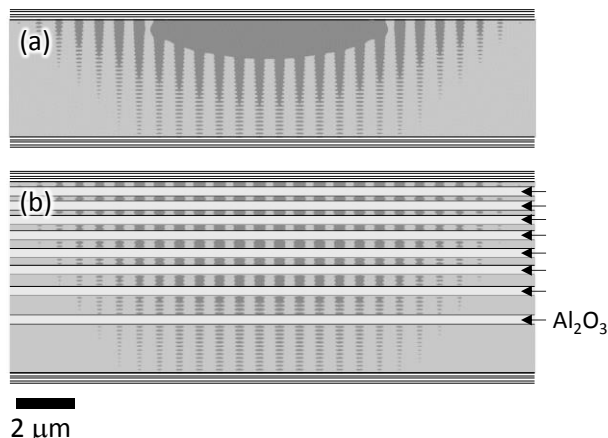


Fig. 1. Magnetic fringes in (a) a two-pair MPC and (b) a two-pair MPC with alumina layers.

Co/Ru 多層膜におけるマグネトリアクティブ効果の 近赤外域での波長依存性

○佐藤 春彦¹, 水野 翔太², 赤羽 浩一¹, 内田 裕久², 斉藤 伸¹ (¹東北大学, ²東北工業大学)

Wavelength dependence of near infrared on magnetorefractive effect for Co/Ru multilayer films

H. Sato¹, S. Mizuno², K. Akahane¹, H. Uchida² and S. Saito¹ (¹Tohoku Univ., ²Tohoku Inst. Tech.)

はじめに 光をプローブとした磁気センサは検出部を小型にでき、真空中、液中、あるいは狭空間中での磁界のセンシングが可能となるため注目されている。偏光子や検光子を用いない簡素な光学系で磁気センサを実現するためには、材料の反射率や透過率が磁界によって変化する現象の活用が有効であり、材料開発が待望されている。著者らは強磁性材料では磁化状態を印加磁界に対応させて変化させられることを鑑み、伝導電子のスピンの依存散乱現象の光学特性に表れる効果に注目した。このような観点での先行研究 (マグネトリアクティブ効果 (MRE) : Magnetorefractive Effect) は、理論報告は 1995 年以降²⁾, 実験報告は 2002 年以降³⁾ にみられ始めている。しかしながら、研究者の主たる目的が磁気抵抗素子における MR 曲線の非接触計測⁴⁾にあるため、センサ応用を念頭においた MRE の材料研究は十分とはいえない。著者らは昨年、磁化の平行/反平行配列を電磁石磁界で確実に実現できる層構成を採用するために、強磁性層に Co, 非磁性層に Ru を選択した RKKY 的層間結合を有する Co/Ru 多層膜を作製し、透過系における MRE (T-MRE) を測定した。本報では、上記 Co/Ru 多層膜の近赤外域における T-MRE の増強現象に注目し、T-MRE の波長依存性について解析したので報告する。

実験結果 Fig. 1 に作製した [Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)]₁₀ 多層膜の波長 900 から 1700 nm までの T-MRE の測定結果をカラーマップで示す。図中の白線は波長 1550 nm を示しており、印加磁界に対する透過率ヒステリシス曲線 (右下挿入図) と対応する。T-MRE は長波長ほど増強されていることが見てとれる。この増強現象についてスピン依存散乱項を考慮して拡張したドルーデ項に基づく誘電率

$$\epsilon_{\text{SAL}} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1 - i\omega\tau_{\text{SAL}}}{1 - i\omega\tau_{\text{SAL}}} \left(1 + \frac{\beta_{\text{SAL}}^2 (M/M_S)^2}{(1 - i\omega\tau_{\text{SAL}})^2 - \beta_{\text{SAL}}^2 (M/M_S)^2} \right) \quad \dots (1)$$

を用いて解析を行った。(1)式における τ_{SAL} と β_{SAL} はそれぞれ多層膜全体での平均散乱時間、平均スピン依存散乱係数である。 M/M_S は強磁性層の磁化の方向が平行の場合 1, 反平行の場合 0 で与えられる。(1)式を用いて多層膜の磁化の方向が平行あるいは反平行の場合について、多重反射を考慮した透過率スペクトル (T_P , T_{AP}) を計算した結果を Fig. 2 (a) に示す。Fig. 2 (b) には、 $(T_{AP} - T_P)/T_P$ で定義される T-MRE を示した。 τ_{SAL} , β_{SAL} , ω_p は Co/Cu 多層膜で報告されている値や、Co, Ru の物性値を参考にグラフ中に記載した。これらの計算結果によると、多層膜における T-MRE の波長依存性は長波長化にともない一旦増強されるが、ある波長で極小を迎えることがわかった。このことを考慮すると、Fig. 1 に示した実験結果は Fig. 2 (b) の強調色領域を観測していたことが推察される。当日は近赤外域における T-MRE の増強要因について多重反射に関わる各項に分解して解析した結果を併せて報告する。

参考文献 1) M. N. Baibich et al., *PRL*, **61**, 2472 (1988). 2) J. C. Jacquet et al., *MRS*, **384**, 477 (1995). 3) V. G. Kravets et al., *PRB*, **65**, 054415 (2002). 4) M. Vopsaroiu et al., *Rev. Sci. Instrum.*, **75**, 3127 (2004).

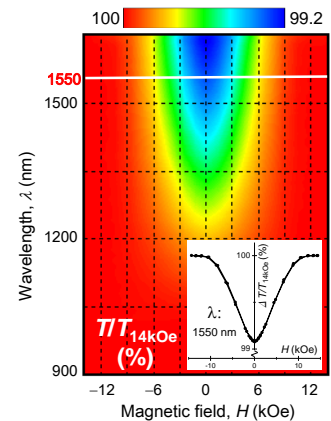


Fig. 1 Experimental MRE plotted against wavelength and magnetic field for a [Co(4)/ Ru(0.7)]₁₀ film. The cross section in the white line corresponds to the normalized transmittance in the inset figure

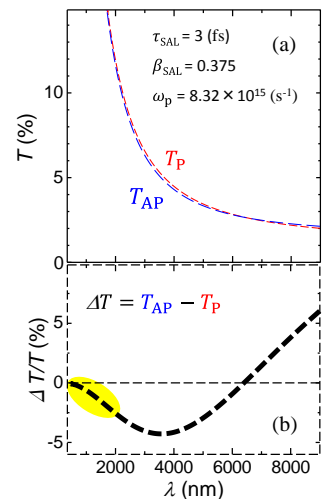


Fig. 2 Simulation of (a) transmittance for parallel and anti-parallel magnetization state and (b) normalized MRE against wavelength