

近赤外域での磁性多層膜への表面プラズモン励起条件

○斉藤 伸, 大木 敬介, 赤羽 浩一, 内田 裕久* (東北大学, *豊橋技術科学大学)

Condition of surface plasmon resonance in near-infrared region for magnetic multilayer film

S. Saito, K. Ooki, K. Akahane and H. Uchida* (Tohoku Univ. *Toyohashi Univ. Tech.)

1. はじめに

磁気センサは空間の磁界の大きさや方向を検出するデバイスである。所望の周波数帯において高い検出感度や必要なダイナミックレンジを達成するために、様々な磁界効果を測定原理とするデバイスが提案され、実用化されている。中でも光をプローブとしたセンサは検出部を小型にでき、真空中、液中、あるいは光ファイバを用いて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。簡素な光学系によりセンサを構成するためには、偏光変化ではなく光の強度変化を用いることが有効であり、我々は強磁性/非磁性多層膜 (GMR 多層膜) やグラニューラ膜等に現れるマグネトリフラクティブ効果 (MRE) に注目している。MRE の先行研究は、理論報告は 1995 年以降¹⁾、実験報告は 2002 年以降²⁾ から散見される。しかしながら、実験者の主な興味が磁気抵抗素子の MR 曲線の非接触計測にあったため、MRE 増強についての材料・層構成についての検討は十分になされていない。著者らは、零磁場での反平行配列を確実に実現できる Co/Ru 磁性多層膜の MRE を検討し^{3,4)}、反射型で 0.3% 程度の MRE が得られることを報告した⁵⁾。今回は表面プラズモン共鳴 (SPR) を励起することで MRE 増強を試みた。本講演ではまず近赤外域での SPR 条件について説明する。

2. 実験結果

まず Au 薄膜の近赤外域での SPR 条件を計算した。Fig. 1 には膜厚 20 nm の Au 薄膜について、クレッチマン配置の際の P 偏光反射率の入射角依存性を、波長 250 nm から 1750 nm まで計算してマップ状に示した。挿入図は波長 1550 nm における反射率の入射角依存性であり、マップ内の破線に対応する。入射角依存性によると赤外域での SPR 吸収にともなう反射率の極小 (ディップ) は可視光域よりも鋭く観察されることがわかる。Au の膜厚についても検討したところ、波長 1550 nm では膜厚 20 nm 程度でディップが最も深くなり、波長が長くなるほどディップが深くなる膜厚が薄くなることが確認された。これは試料内での伝導電子の散乱損失が増大し SPR が弱められる結果である。

続いて SPR 強励起のための Au 層と磁性層との積層構造を検討した。Fig. 2 (右) には、Fig. 2 (左) の層構成の試料・セッティングにおける、波長 1550 nm の P 偏光を入射した場合の SPR 共鳴角でのディップの深さ $100-R_{\min}$ を種々の Au 層膜厚 x , z に対して計算した結果を示した。磁性層部分の層構成を Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/ Co(4 nm) とした場合 ($N=1$)、 $x < 10$, $z = 0$ で深いディップが現れることがわかる。このディップの深さは、多層膜の N 数を大きくするほど浅くなり低膜厚側へとシフトした。以上の計算の結果から、1550 nm で SPR を強励起するためには、磁性層を可能な限り薄くし、空気側に 10 nm 以下の薄い Au 層を設ける層構成が有効であると見積もられた。

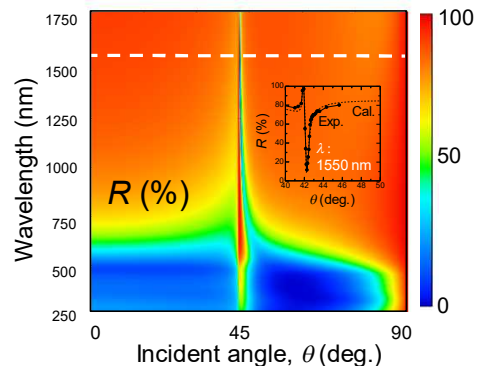
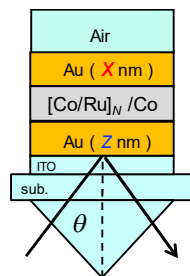


Fig. 1 P-pol. reflectivity map of a Au(20 nm) film with the Kretschmann configuration plotted against wavelength and incident angle.

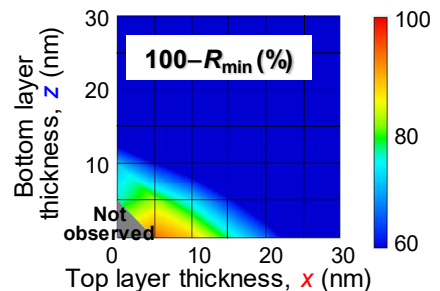


Fig. 2 (Left) Kretschmann configuration and stacking structure for reflectivity calculation. (Right) dip depth plotted against Au thicknesses, x and z for Au(x nm)/ Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/ Co(4 nm)/ Au(z nm)/ ITO(2 nm)/ glass sub.

- 参考文献 1) J. C. Jacquet et al., *MRS*, **384**, 477 (1995).
 2) V. G. Kravets et al., *PRB*, **65**, 054415 (2002). 3) H. Sato et al., *IEEJ Trans. on Fund. and Mater.*, **136**, 174 (2016).
 4) K. Ooki et al., *41th Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn.*, 19Pa-02.
 5) S. Saito et al., *41th Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn.*, 19Pa-01.

表面プラズモン励起による Co/Ru 多層膜の 近赤外マグネトリフレクティブ効果の増強

○齊藤 伸, 大木 敬介, 赤羽 浩一, 内田 裕久* (東北大学、*豊橋技術科学大学)

Enhancement of NIR magneto-refractive effect for Co/Ru multilayer film by surface plasmon resonance

S. Saito, K. Ooki, K. Akahane and H. Uchida* (Tohoku Univ. *Toyohashi Univ. Tech.)

1. はじめに 強磁性/非磁性多層膜 (GMR 多層膜) で観測される反射型配置におけるマグネトリフレクティブ効果 (MRE) は、強磁性層の磁化配列に対応して反射光に強度変化が現れるため注目されている。しかしながら報告されている光量変化は 1550 nm で 0.3 % 程度と小さく、実際にアプリケーションに展開するためには MRE の材料および層構成の検討をさらに深める必要がある。一般に磁性多層膜における MRE は伝導電子のスピンの依存散乱によりもたらされる効果であると理解されている。そこで著者は MRE を増強する方策として伝導電子の集団運動の共鳴現象である、表面プラズモン共鳴 (SPR) を磁性多層膜に励起することを考えた。本講演では、近赤外域での MRE について SPR での増強現象を実測するとともに、スピン依存散乱を現象論的に扱った拡張ドローデモデルに基づく誘電率解析により本現象を評価した結果を報告する。

2. 実験結果 Fig. 1 に Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/Co(4 nm) 磁性多層膜にプラズモン励起層として Au(10 nm) のキャップ層を設けた試料をクレッチマン配置した際の、波長 1550 nm の P 偏光反射率の入射角依存性を示す。グラフの周囲には典型的な入射角における反射率磁気履歴曲線を示した。磁界は試料面内で光の進行方向と垂直方向に印加した。全反射臨界角 A では磁気光学効果は認められないが、B および D では横カー効果、C では MRE が支配的に観測されている。このことは磁性多層膜の磁化状態 (右向き/左向き、平行/反平行) を入射角の選定により判定できることを示している。横カー効果が発現しない SPR 共鳴角 C に注目し、MRE の SPR による増強効果について解析した。Fig. 2 上段に Au キャップ層膜厚を変化させた試料の MRE ($\Delta R/R$) をプラズモン励起強度 (ディップの深さ) に対してプロットした結果を示す。Au キャップ層膜厚を 30 nm から 4 nm まで薄くして SPR を強く励起すると、MRE は 1.8 % まで増大した。これは R の低下 (副軸参照) だけでなく ΔR の増加との相乗効果でもたらされたものである。磁性多層膜の部分を一層膜近似し、この層での伝導電子の平均散乱時間 τ_{SAL} 、平均スピン依存散乱係数 β_{SAL} を誘電率解析により求めた結果が Fig. 2 下図である。磁性多層膜の部分は Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/Co(4 nm) で一定であるにもかかわらず、Au キャップ層の膜厚を 10 nm 以下にしていくと β_{SAL} が著しく増強していく様子がわかる。SPR 条件では伝導電子が膜厚方向の反電界を感じて集団運動をおこすことを考慮すると、 β_{SAL} の増大は個々の伝導電子の積層方向の運動成分が増加し多層膜中でのスピン依存散乱の頻度が高くなる結果もたらされたものと推察している。

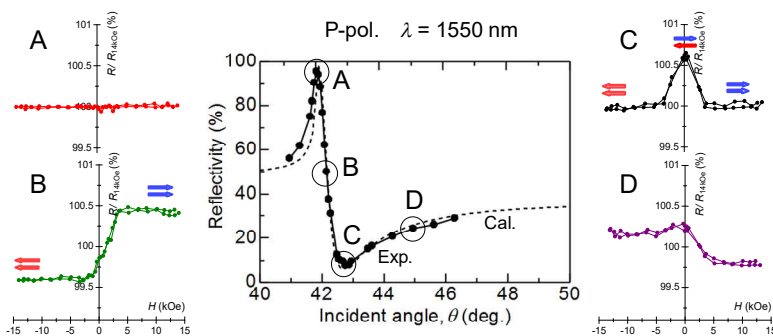


Fig. 1 Incident angle dependence of P-pol. reflectivity at 1550 nm for a Au(10 nm)/ Co(4)/ Ru(0.7)/ Co(4)/ ITO(2)/ sub. film with the Kretschmann configuration. Surrounding graphs are reflectivity hysteresis loops at (A) critical angle of total reflection, (B) intermediate angle between A and C, (C) SPR angle and (D) larger angle than C, respectively.

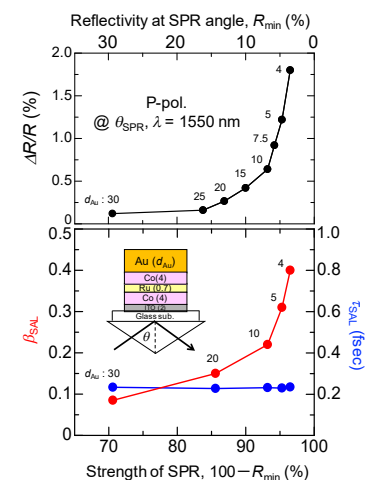


Fig. 2 (Upper) MRE and (lower) β_{SAL} and τ_{SAL} as a function of strength of SPR, $100-R_{\text{min}}$ for Au(d_{Au} nm)/ Co(4)/ Ru(0.7)/ Co(4)/ ITO(2)/ sub. film with the Kretschmann configuration at the θ_{SPR} with $\lambda=1550$ nm.

CeF₃ 単結晶の光軸に垂直な方向の Faraday 効果の正確な測定

朝日透、中川鉄馬*、チョウコン
(早稲田大学、*神奈川産技総研、**物材機構)

Accurate measurement of Faraday effect of CeF₃ single crystal in the direction perpendicular to its optic axis
Toru Asahi, *Kenta Nakagawa, Kun Zhang
(Waseda Univ., *KISTEC)

はじめに

近年、光通信や材料加工の分野において、レーザー光の発振強度の不安定の原因となる戻り光を遮断するため、磁場印加により発現する偏光面の回転 (Faraday 回転, FR) を利用した光アイソレータ材料の研究が盛んである。一方、既存の旋光計や円二色性分散計といった光学測定装置では、直線複屈折 (LB) や直線二色性 (LD) といった光学的異方性が発現する方向の FR の測定は不可能であったため、これまで、FR の研究が立方晶系結晶、異方性結晶の光軸方向、及びアモルファス材料に限定されていた。したがって、FR を利用した光学素子である光アイソレータの開発は、等方性材料以外はほとんど無視されてきた。

一方、我々が独自に開発してきた一般型高精度万能旋光計 (Generalized-High Accuracy Universal Polarimeter, G-HAUP) は、異方性媒質における光学活性、自然円二色性, LB, 及び LD の同時スペクトル測定が可能な光学測定装置である [1-3]。本装置の試料室に、光の伝搬方向に平行ないし反平行な外部磁場を印加出来る磁石を導入すれば、異方性材料の FR, 磁気円二色性 (MCD), LB, 及び LD の同時スペクトル測定が可能になると考えられる。

そこで、本研究では、*P-3c1* に属する一軸結晶である CeF₃ 単結晶の光軸 (*c* 軸) 方向及び光軸に垂直な (*a* 軸) 方向の FR, MCD, LB, 及び LD スペクトルを G-HAUP により測定することとした。

実験結果

磁場は測定試料を一組 (2 個) の Nd-Fe-B (NIB) 磁石で挟むことにより印加し、その大きさは 0.5 T であった。CeF₃ 単結晶の *c* 軸及び *a* 軸方向の LB, LD, FR, 及び MCD スペクトルを Fig. 1 に示す。*c* 軸及び *a* 軸方向の FR (Verdet constant: *V*) は、観測された波長領域で正であり、その大きさはほぼ等しかった。この結果は、*c* 軸及び *a* 軸方向の磁気感受率の大きさがほぼ等しいという SQUID による測定結果と一致する。

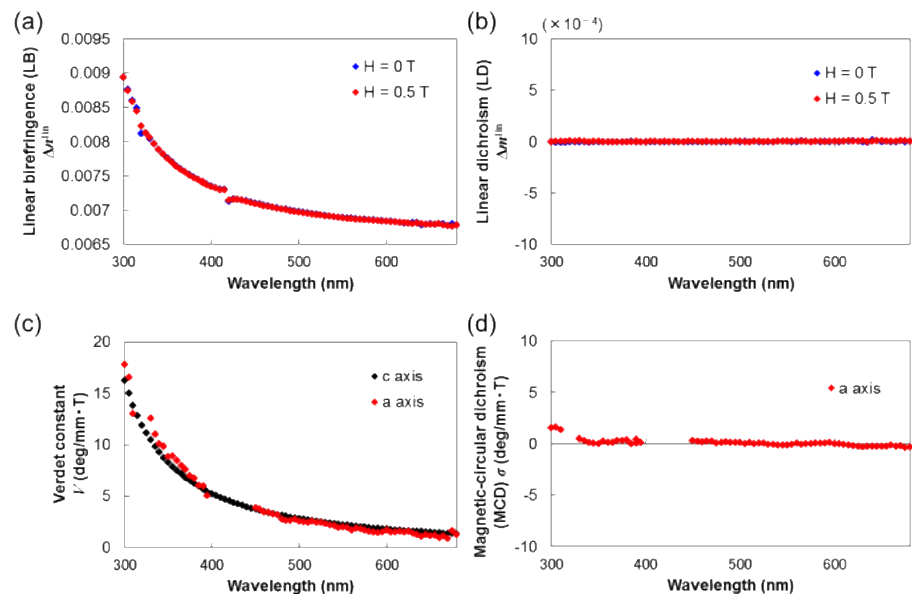


Fig.1 Wavelength dependences of LB (a), LD (b), *V* (c), and MCD (d) of CeF₃ single crystal along the *c* and *a* axes

参考文献

- (1) J. Kobayashi, T. Asahi, M. Sakurai, M. Takahashi, K. Okubo, Y. Enomoto, *Phys. Rev. B*, **53**, 11784 (1996).
- (2) M. Tanaka, N. Nakamura, H. Koshima, T. Asahi, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **45**, 175303 (2012).
- (3) A. Takanabe, M. Tanaka, K. Johmoto, H. Uekusa, T. Mori, H. Koshima, T. Asahi, *J. Am. Chem. Soc.*, **138**, 15066 (2016).

$R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$ (R = Eu, Sm, Pr) 薄膜の作製と評価

西川雅美¹、相場遥佳¹、浦川諒大¹、木村優太¹、藤枝崇周¹、山本匠¹、婁庚健¹
河原正美²、石橋隆幸¹

(¹長岡技術科学大学、²(株)高純度化学研究所)

Preparation and characterization of $R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$ (R=Eu, Sm, Pr) thin films.

M. Nishikawa¹, H. Aiba¹, R. Urakawa¹, Y. Kimura¹, T. Fujieda¹, T. Yamamoto¹, G. Lou¹,
M. Kawahara², T. Ishibashi¹

(¹Nagaoka Univ. of Tech., ²Kojundo Chem. Lab.)

はじめに

Biを置換した希土類鉄ガーネットは、磁場分布を可視化する磁気光学イメージングに利用されている。これまでに、我々は、MOD法により、希土類元素がY、Ndである高濃度Bi置換鉄ガーネット膜の作製に成功し、それらは優れた磁気光学効果を示すことを明らかにしてきた^{1,2)}。今後、更なる高感度化や高周波特性に優れた磁気光学素子の実現には、Bi置換希土類鉄ガーネットの磁気異方性を制御することで、ファラデー回転角の外部磁場依存特性の緻密に調整することが求められる。本研究では、誘導磁気異方性に関する逆磁歪効果に着目して、Y、Ndと磁歪定数の異なる希土類元素として、Eu、Sm、Prを選出し、これらの元素置換が、磁気光学特性に及ぼす影響について調査した。

実験

GGG (111)基板に、各組成のMOD溶液((株)高純度化学製)をスピコートし、100°Cで10分間乾燥した後、450°Cで10分間仮焼成を行った。この工程を5回繰り返した後、各温度(650~710°C)で本焼成を行い、Bi希土類鉄ガーネット薄膜($R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$: R=Eu, Sm, Pr)を得た。得られた薄膜は、波長520~530 nmにおけるファラデー回転角の磁場依存性を測定した。

結果と考察

Fig. 1に、希土類にEu、Sm、Prを用いたBi置換磁性ガーネット薄膜のファラデー回転角の磁場依存性を示す。比較のため、GGG (111)基板上に成膜したNdガーネット薄膜の結果も示す。いずれの希土類を用いた場合でも、Ndの場合に匹敵する大きなファラデー回転角が得られることと、ヒステリシスの形状から111方向が磁化容易軸であることがわかった。また、Ndガーネットと比べて、Eu、Sm、Prガーネットのヒステリシスループの傾きは緩やかになり、保磁力は大きくなる傾向が見られた。ヒステリシスの形状の違いは、磁歪定数の違いによる影響が考えられる。磁歪定数の λ_{111} 符号は、Prは不明であるが、NdとSmは負、Euは正である。そのため、GGG (111)とガーネット膜の間の格子不整合や熱膨張係数の違いによる歪みについても今後調べる必要がある。一方、保磁力が大きくなったことについては、結晶性の違いが影響している可能性もあるため、今後、薄膜作製条件の最適化が必要である。

以上から、これまで報告のない希土類(Eu、Sm、Pr)を用いたBi置換磁性ガーネットに関して作製に初めて成功し、Ndと同程度のファラデー効果が得られること、磁気異方性を制御できる可能性が示された。

謝辞 本研究の一部は、科研費基盤研究(A)(18H03776)の助成により行った。

参考文献

- 1) M. Sasaki et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 055501.
- 2) G. Lou et al., Optical Mat. Exp., 7 (2017) pp.2248-2259.

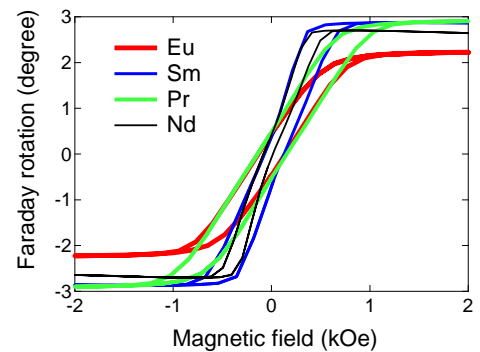


Fig. 1 Faraday hysteresis loops of the garnet films.

強磁性・強誘電薄膜の電気磁気効果測定に向けた (Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ 薄膜の磁気光学特性の評価

吉村 哲^{1,2}

(¹秋田大, ²JST さきがけ)

Evaluation of magneto-optical properties of (Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ thin films
for the measurement of electromagnetic effect of multiferroic thin films

S. Yoshimura^{1,2}

(¹Akita Univ., ²JST PRESTO)

はじめに 近年、磁気モーメントの電圧駆動に関する研究が盛んになってきており、新しい低消費電力磁気デバイスの実現が期待されている。報告例が多い代表的な研究に、1. 圧電材料と磁歪材料との積層体を用いる、2. トンネル磁気抵抗積層膜を用いる、3. 反強磁性・強誘電(BiFeO₃)薄膜と磁性薄膜との積層膜を用いる、4. 反強磁性・常誘電(α -Cr₂O₃)薄膜と磁性薄膜との積層膜を用いる、などが挙げられる。著者も、単相で強磁性・強誘電特性を有する薄膜を用いた、電界印加のみによる磁化反転の検討を行っている¹⁾。以上のような現状から、磁気モーメントの電圧駆動方式は、将来性のある新規かつ有効なものとして位置付けられていることが明白である。しかしながら、作製した薄膜試料の特性評価では、振動試料型磁束計(VSM)や給電プローバ付きの強誘電テスターを使用し、磁気特性 (M (磁化)- H (磁界)曲線)と強誘電特性 (P (電気分極)- E (電界)曲線)が別々に評価されているに過ぎず、電圧駆動型の磁気デバイスの実用可能性を正しく検証するためには、その特徴ある現象: 電気磁気効果特性 (M - E 曲線: 磁化の電界応答) の評価を行うことが必要不可欠であるが、それを直接評価した報告はほとんど無い。本研究では、磁気 Kerr 効果測定機構と強誘電テスターとを組み合わせることで新規に構築を試みている、これまでに無かった、磁化の電界応答を測定する『電気磁気効果特性評価装置』を完成させることを最終目的とし、強磁性・強誘電薄膜の磁気光学特性の評価を行った。

構想 Fig.1 に、『電気磁気効果特性評価装置』の模式図を示す。強磁性・強誘電薄膜の下地層を兼ねる下部電極と強磁性・強誘電薄膜上に成膜した 100 μm 径の ITO (導電・透明) 上部電極に給電プローバを当てて強磁性・強誘電薄膜に電界を印加しながら、磁気 Kerr 効果測定のための偏光レーザーを上部電極部分に当ててその下部に位置する強磁性・強誘電薄膜の磁化を測定するものである。

検討事項 BiFeO₃ 系の強磁性・強誘電薄膜において、その光磁気特性の詳細はほとんど調べられていない。光磁気特性が不明である限り、『電気磁気効果特性評価装置』における磁気 Kerr 効果測定機構の仕様を確定させることができない。よって、本研究では、電圧駆動型の磁気デバイスに適用できる可能性のある、大きな磁化および垂直磁気異方性が得られた (Bi_{0.41}La_{0.59})(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃ (BLFCO) 強磁性・強誘電薄膜²⁾ において、その光磁気特性を調べた。

結果 Fig.2 に、BLFCO 強磁性・強誘電薄膜における、磁気 Kerr 回転角および楕円率のレーザー波長依存性を示す。あわせて、本薄膜における、VSM を用いて測定した磁化曲線 (薄膜面内および垂直) と極 Kerr 効果測定装置 (レーザー波長: 658 nm) を用いて測定した磁化曲線も示す。いずれの光磁気特性検出方法においても、650 から 700 nm までの波長領域において、非常に大きな値が得られたが、磁気 Kerr 回転角においては極性が変化する様子も見られた。これらの変化は干渉によるものと考えられる。以上より、BLFCO 強磁性・強誘電薄膜は、優れた光磁気特性を有する可能性があるものの、その電気磁気効果を正しく測定するためには、磁気 Kerr 効果測定機構において、適切なレーザー波長および検出方法を選択する必要があることが判った。

参考文献 1) S. Yoshimura et al., Magn. Soc. Jpn., 42, 11-14 (2018). 2) 吉村, 他 第 42 回日本磁気学会学術講演概要集, 発表予定。

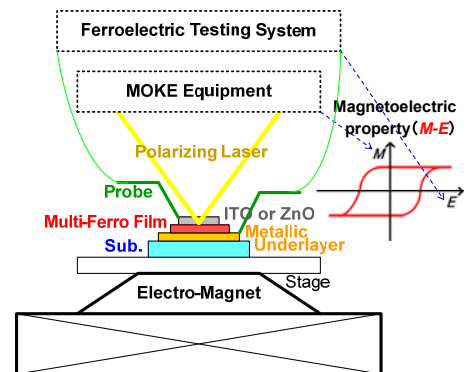


Fig.1 Schematic diagram of a new system for measurement of electromagnetic effect.

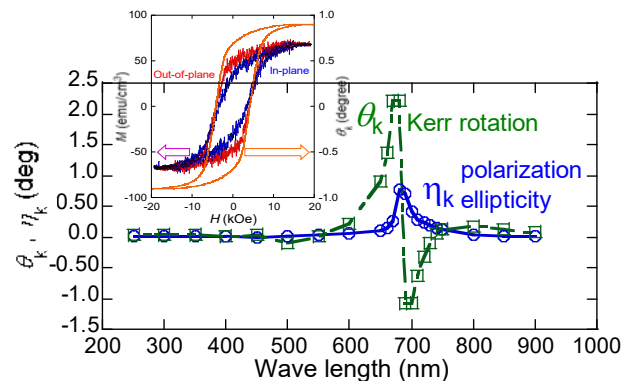


Fig.2 Dependence of θ_k and η_k on wavelength of polarized laser for BLFCO film. M - H curves (out-of-plane and in-plane) and θ_k - H curve are also shown.