

磁気光学インディケータとしての磁性ガーネット薄膜の合成

安達信泰・植松大輔・太田敏孝・奥田高士*・町 敬人**・腰塚直己**

名古屋工業大学 セラミックス基盤工学研究センター

〒507-0071 岐阜県多治見市旭ヶ丘10-6-29

* 科学技術交流財団

〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町名古屋工業大学しくみ領域内

超電導工学研所

〒135-0062 東京都江東区東雲1-10-13

Synthesis of the Magnetic Garnet Film for MO Indicator

Ceramics Research Laboratory, Nagoya Institute of Technology

10-6-29 Asahigaoka, Tajimi, gifu 507-0071,

* Aichi Science & Technology Foundation, Nagoya Institute of Technology,

Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya 466-8555

** Superconductivity Research Laboratory 1-10-13 Shinonome, Koto-ku, Tokyo 135-0062,

In order to clearly visualize the magnetic flux, for example, the magnetic flux penetrated in high T_c superconductors, the epitaxial magnetic garnet films was synthesized as MO indicator by liquid phase epitaxi technique. For the high sensitivity and the high spatial resolution, large Faraday effect and in-plane magnetic anisotropy are key factors. The magnetic anisotropy of the film consists of (1) growth induced magnetic anisotropy, (2) magneto crystalline anisotropy, (3) stress induced magnetic anisotropy and (4) the shape magnetic anisotropy. The large Faraday effect was induced by the bismuth substitution. The magnetic anisotropies was variable with the kinds of rare earth ions, crystalline plane etc. The MO indicator with in-plane magnetic anisotropy was realized under controlling these magnetic anisotropies. [Received Feb.10, Accepted Feb.17, 2005]

1. はじめに

希土類磁性ガーネット $R_3Fe_5O_{12}$ の発見は1950年代にさかのぼる。フランスのPauthenetらが希土類(R)を含むフェライトを作る過程で見出された^[1]。一方、同時期に、独立にアメリカのGellerらによって天然宝石ガーネットに磁性イオンを置換し、フェリ磁性体を得ようとして見出された^[2]。結晶構造は立方晶に属し、酸素イオンに囲まれた正12面体位置に希土類イオン、正8面体と正4面体位置に鉄イオンがあり、お互い反平行に磁気モーメントが向きフェリ磁性を示す。フェライト研究の延長上で合成されたこの物質系は、マイクロ波デバイスの材料として注目され、その後、フェリ磁性の特性を活かして、コンピューターのハードディスク用の磁気バブルメモリーとして、膨大な研究開発が行われた^[3]。半導体メモリーが主流になった後はメモリー材料としての

研究は終わったが、この物質が持つもう一つの大きな特性である大きな磁気光学効果を利用して、1990年代は、光通信が根幹にあるインターネットの普及に伴って、戻り光をカットし、シグナルノイズを防ぐために不可欠な光アイソレータ素子としての利用が定着した。

一方で磁気光学効果を利用したもう一つの試みとして、超電導物質への侵入磁束を視覚化する磁気光学(MO)インディケータとしての媒体に利用され、臨界電流の情報を得る試みも1980年代末から行われてきた^[4]。磁界を視覚化する手法は、電子線を用いたローレンツ顕微鏡や最近では磁気力顕微鏡(MFM)があるが、前者は導入に多額の費用が必要であること、後者は走査して1枚の画像を得るのに時間を要するために、時間的に変化する磁束の動的な観察に不向きである。一方、磁気光学効果による手法は、偏光顕微鏡と光学用クライオスタットによる簡便な装置構成である。性能はMOインディケータ

ター用媒体に依存する。極低温では、磁気光学効果の大きな物質としてEuSeやEuSのカルコゲナイト磁性半導体が存在するがキュリー点は液体窒素温度以下となり極低温領域にしか有効でない。1986年の発見以来盛んに研究が続けられている高温超電導物質は臨界温度が液体窒素温度以上になるために、キュリー点が500K以上にある希土類磁性ガーネットがMOインディケータとしては現在、最も適した物質である。室温以上でも使用可能な磁性ガーネット薄膜を用いたMOインディケータの研究は、その後、EMC（電磁両立性）対策として、高周波回路の磁界センサーとして注目を集めている^[5]。

当初、MOインディケータとしては、ビスマス置換YIG ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 薄膜が用いられていたが^[4,6]、面直方向に磁気異方性が強いためにストライプあるいはラメラ状の垂直磁区が現われ、磁束の定量には、極性の反対な磁区の面積比の変化を解析していた。しかし、二次元的に磁束分布をマッピングするには空間分解能が10ミクロン以上ある磁区幅に制限されていた。面内方向に磁化容易方向がある膜を用いれば垂直磁区は現われず、面直方向を貫く磁束によって起こるファラデー回転は鉄スピンの個々の磁気モーメントの面直成分に比例する。その結果、分解能は観察に用いる光の波長領域まで下げることが可能となる。また、磁界の変化に対して、磁壁移動の影響を受けず、単一スピンの応答に匹敵する高速応答性が期待できる。

そこで我々は超電導工学研究所との共同研究において、優れたMOインディケータ合成研究を1990年代なかばからスタートさせた。本レポートではそれらの結果を総括し、成膜の設計指針を提示した。

2. 実験

光学的に優れ、均質な膜を得るのに有利な成膜方法は液相エピタキシー法である。磁気バブルメモリーや光アイソレーターの製造にも利用され、膨大な実験データが存在する。磁性ガーネット薄膜は、ガーネット組成の酸化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、高温メルト中に単結晶基板を浸して基板上に成膜する。基板には一般にGGGと呼ばれる $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ の(111)面が汎用で用いられる。液相エピタキシャル成長では、基板と膜との格子マッチングが膜質に大きく影響する。希土類の組成、ならびに置換量により格子定数が変わるため、基板もそれに合わせた選択が必要だが、基板の研究も同様に行われており、GGGにSc、Ca、Zrなどの元素を置換することで12.37Åから12.70Å付近まで連続的に格子定数を変化させることができることもわかっている。

我々は、母体に $\text{Lu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ を選択し、GGG基板を用いた。ビスマスが大きいイオン半径を持つために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、同

じ基板を用いる場合、ビスマス置換量を多くしながら、基板との格子マッチングが取れると考えたからである。

面内に磁気異方性を向かせるための成膜には以下の点に注意した。膜が持つ磁気異方性には、

(1) 成長誘導磁気異方性 (2) 結晶磁気異方性 (3) 応力磁気異方性 (4) 形状磁気異方性があり、これらの和が膜の磁気異方性エネルギーを決める。

(1) に関してガーネットの成長誘導磁気異方性は磁気バブルの研究で発見された現象で12面体位置に2種以上の元素が規則的に配列したときに生じるが詳細なメカニズムの解明には至っていない。希土類元素の中では、NdとPrイオンの置換効果が面内方向に磁気異方性を生じる^[7,8]。我々は両方の置換効果について検討した。

(2) に関して、ガーネットの結晶磁気異方性は<111>方向にある^[9]。そのために、磁気バブルの生成には垂直磁区の制御が必要な理由もあり、(111)基板が適しているが面内磁気異方性を制御するには不向きである。我々は(100)基板上に成膜することにより、結晶の磁化容易軸を面直から斜めにすることで垂直方向の磁気異方性を緩和できると考えた。

(3) はエピタキシャル膜特有で基板と膜との歪による磁歪効果によって生じる。 $\text{Lu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 母体の磁歪係数の符号が負であるために^[10]、膜の格子定数が大きいと面内方向に磁気異方性が生じる効果が生まれる。

(4) の形状効果は、磁化された際に生じる試料の磁極により反磁界が外部磁界と逆向きに生まれることが原因で、薄膜では、面直方向にもっとも反磁界が生じやすい。すなわち、一般に薄膜形態では、磁化容易方向は面内にむく。

実験では、基板と膜とのミスマッチをゼロかわずかに大きくなるように設計し、Pr、Nd置換効果を調べた。また、(111)基板上への成膜と(100)基板上への成膜を同一メルト、同一成長温度の条件下で行い比較を行った。

メルトの調合には、以下に示すRパラメータ^[11]をもとに容量が50cc~70ccになるように計算した。R₁はcサイトに入る希土類イオンとa、dサイトに入る Fe^{3+} イオンとの比であり、ガーネット相の初晶域やメルトの液相温度に関係する。R₂はガーネット中のa、dサイトの Fe^{3+} を置換する Ga^{3+} の量に関係する。R₃はフラックス中の B_2O_3 の量を決める。R₄はメルト中のガーネット成分の割合を表し、R₅はcサイトの希土類イオンを他のイオンで置換するときの置換量を決める。R₆はフラックス中の Bi_2O_3 の量を決める。図1に示すように、基板固定用の白金ホルダーをアルミナ棒の先端に取り付けて、溶融メルトの液面から5mm下の位置で基板をディップさせ、かつ水平回転モードで基板両面に均一に成膜した。成膜温度は予備実験の段階で垂直ディップ式で成膜した試料の膜厚と成長温度の関係からメルトの飽和温度を計算し、その温度からの過冷却温度を見積もって成長温度を決定した。

$$R_1 \equiv \frac{Fe_2O_3}{\sum R_2O_3} \quad R_2 \equiv \frac{Fe_2O_3}{M_2O_3} \quad R_3 \equiv \frac{PbO}{B_2O_3}$$

$$R_4 \equiv \frac{Fe_2O_3 + M_2O_3 + \sum R_2O_3}{Fe_2O_3 + M_2O_3 + \sum R_2O_3 + PbO + B_2O_3 + Bi_2O_3}$$

$$R_5 \equiv \frac{R_2O_3}{\sum R_2O_3} \quad R_6 \equiv \frac{PbO}{Bi_2O_3} \quad (1)$$

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.)

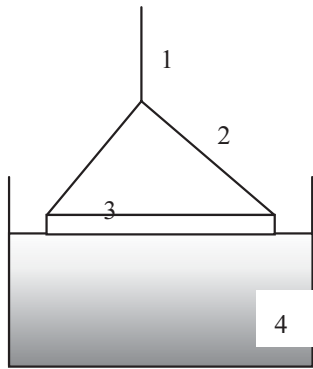


図1. LPE法による成膜実験の模式図. 1. アルミナ棒にとりつけた 2. 白金ホルダーに 3. 基板を固定し, 4. 白金つばに入れたメルト中に浸して成膜を行う。

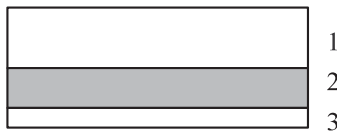


図2. 磁界インディケータの構造. 1. ガーネット基板 2. 磁性ガーネット薄膜 3. 金反射膜

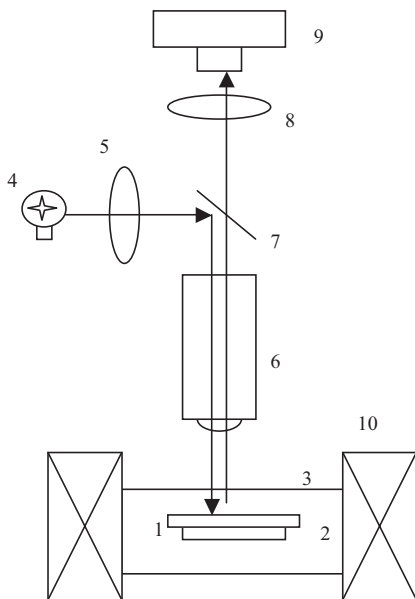


図3. 磁束観察装置の構成. 1. 磁気光学媒体 2. 測定試料 3. 測定試料ホルダー 4. 光源 5. 直線偏光板 6. 対物レンズ 7. ハーフミラー 8. 直線偏光板 9. CCDカメラ 10. 電磁石

図2にMOインディケータの構造を示す。基板の両面に成膜した場合は、片面の膜を光学研磨して、取り除き、膜側には反射膜である金薄膜をコートティングした。(図2参照)

磁束の観察は、図3に示すように観測したい試料を光学用クライオスタット中に置き、試料直上に磁気光学インディケータを置いて固定し、偏光顕微鏡でインディケータを観察する。画像はCCDカメラで取り込むようにした。試料直上の磁束が存在する場所で磁界インディケータは部分的に磁化され、ファラデー効果により、直線偏光は入射から反射膜により反射する過程で偏光面が膜厚の倍の光路分だけ回転する。その結果生じる光の明暗のコントラストが磁束の大きさに対応する。

3. 結果と考察

I. Pr_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂, Nd_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂ の合成^[12]

置換成長誘導磁気異方性を利用して面内方向に磁気異方性を向いた膜(面内磁化膜)の例を次に示す。置換したは負の成長誘導磁気異方性(成長方向と垂直方向に磁気異方性を生じる)を示すPrとNdを用いた。これらの元素はファラデー効果を増大する効果もある。

組成はPr_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂, Nd_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂として希土類元素の置換量を調整した。単結晶基板は(GdCa)₃(GaMgZr)₅O₁₂(GCGMZG; a₀ = 12.499 Å)とNd₃Ga₅O₁₂(NGG; a₀ = 12.509 Å)を選択した。表Iに成長条件の一例を示す。合成した膜の磁気特性は大きな面内磁気異方性を示したが、図4に示すようにNd置換物質では、液体窒素温度に冷却すると面直方向に磁界をかけた場合の磁化曲線が階段状になり、磁界に対して線形応答しなかった。それに対して、Pr置換物質の磁化曲線は77Kの低温においても面直方向の磁化に対する直線応答性はよい結果となった。

Table I. 膜の成長条件

	substrate	T _g (°C)*1	ΔT(°C)*2	Δa(Å)	x*3
Nd-LIG1	NGG	906	28	0.016	2.2
Nd-LIG2	GCGMZG	917	17	0	—
Nd-LIG3	GCGMZG	871	49	-0.027	2.44
Pr-LIG1	NGG	793	150	-0.004	1.77
Pr-LIG5	NGG	837	108	-0.013	1.86

1 Ts: 成長温度, *2 ΔT = Ts - T_g, Ts飽和温度, Δa = a_s - a₀, *3 x: EDAX解析値

一般にR₃Fe₅O₁₂の1次の結晶磁気異方性定数K₁は負の値を示す^[9]。その場合には、磁気異方性エネルギーは<111>方向が低くなり、その結果、磁化容易軸は<111>方向が低くなる。R=Prの場合は例外で、K₁は正の符号を示す^[13]。そのために、磁化異方性エネルギーは<100>方向が低くなり、磁化容易軸も<100>方向になる。また、K₁は温度依存性を示し、低温になるにつ

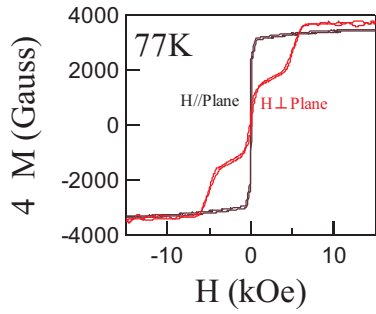


図4. Nd-LIG3の77Kにおける面直および面内方向の磁化曲線。

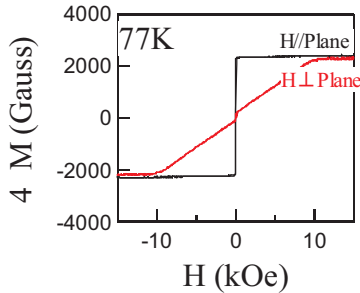


図5. Pr-LIG5の77Kにおける面直および面内方向の磁化曲線。

れて絶対値が大きくなる傾向がある。すなわち、 $\text{Nd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 、 $\text{Pr}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ は、それぞれ、低温になると結晶磁気異方性が低温になるにつれ強くなり $\langle 111 \rangle$ 、 $\langle 100 \rangle$ 方向に磁気モーメントが向きやすくなる。いまの場合、Nd置換物質は低温で面直方向に磁気モーメントが向きやすくなり、成長誘導磁気異方性との競合で、面直方向が特異な磁化曲線になったことが予想できる。実際に膜表面の偏光顕微鏡観察を行うと $\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ は垂直磁区が見えないのに対して $\text{Nd}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ は現われる。そこで $\text{Pr}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ を用いた超電導体への侵入磁界の観測例を図6に示す。 J_c が90K付近にある $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8-\delta}$ の磁界中への侵入磁束の様子が観察できた。2kOe程度では磁束が完全に排除されるが6kOeでは磁束が侵入していることが見ることが出来る。

II. $\text{Bi}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ^[14]

Pr置換磁性ガーネットは成長は成長誘導磁気異方性を利用した系として有効であることが明らかとなったが、磁界が侵入し始める初期過程を感度よく観察するには、面内方向の磁気異方性が大きいと面直方向に磁化しにくくなり、ファラデー回転におけるVerdet定数も小さくなる。そこで以下に掲げる設計指針により、磁界に対する感度を優先した組成設計を考えた。

- 1) Bi置換によるファラデー回転角の増大
- 2) Ga置換による鉄の磁気異方性の減少

ビスマス置換は可視光のファラデー効果を増大させる効果があることはよく知られており、図7の縦軸で示されるファラデー回転係数が大きいほど磁界に対する光の

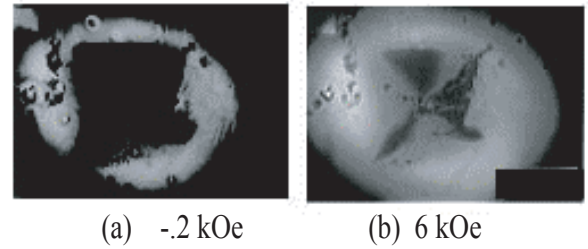


図6. Pr-LIG3を用いて $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8-\delta}$ 単結晶表面の磁束観察例。温度5K、磁界2kOeでは磁束が超電導体内部に侵入せず、6kOeでは明るくなった部分に磁束が侵入したことを示す。

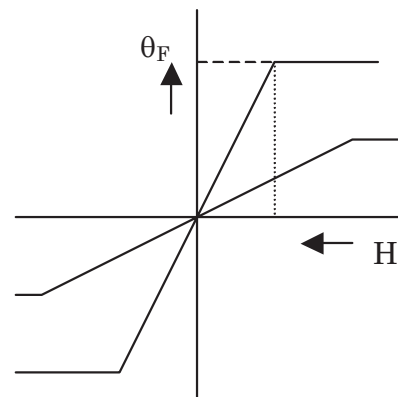


図7. 磁界感度を上げるためのMOインディケータの磁気光学特性のモデル。ファラデー回転係数を増加させ、飽和磁界を現象することで傾き（Verdet定数）が増加して、感度が上がる。

コントラストが大きくなる。またGaは鉄サイトに置換されるために鉄イオンが希釈される。磁界感度がよいMOインディケータは、弱い磁界に対しても光のコントラストが明瞭なるために、磁化されやすいことが必要となるが、その際に垂直磁区が形成されると空間分解能が悪くなる。そこで、面内磁気異方性を維持しながら、その大きさを鉄イオンの希釈で小さくすることを試みた。磁気異方性を弱くすることで、磁化が飽和するために必要な飽和磁界が小さくなり、Verdet定数が大きくなることが期待できる。

そこで、 $\text{Bi}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ の組成にてGaの置換量を調整し、面内磁気異方性が維持できる置換量まで置換し、飽和磁界の小さなMOインディケータの合成を行った。Ga置換量はR2パラメータの調整で組成設計が可能である。Bi置換量は過冷却度に依存するためにメルトの飽和温度と残留フラックスによる表面モルフォロジーの悪影響を考慮しながら $x=1$ 程度を目指して行った。表IIにはそのときのメルトの組成設計に用いた値を示す。R2が小さくなることで鉄イオンのGaイオンに対する組成量が小さくなるので置換量が増す。結果的には6.5より小さくすると成膜後のGa置換量が $y=1.2$ を超えて面内磁化膜が維持できなくなった。

また、成長誘導磁気異方性の大きさは、正20面体サイトに非磁性イオンが入るために小さいと考えられる。面

Table II. 使用メルトのRパラメーター

Melt No.	R1	R2	R3	R4	R5	R6
I	20	—	10	0.1	—	2.5
II	20	16	10	0.1	—	2.5
III	20	10	10	0.1	—	2.5
IV	20	7.5	10	0.1	—	2.5
V	20	6.5	10	0.1	—	2.5

内磁気方性には、結晶磁気異方性や応力磁気異方性の影響が現われると予想した。そこで、汎用の(111)基板以外に、磁化容易軸である<111>方向が面直方向から傾いている(100)基板を用いて、同一メルトからの成膜を行い、結晶面の違いによる磁気異方性の比較を行った。各メルトでの成膜条件を表IIIに示す。

Table III. Bi_xLu_{3-x}Fe_{5-y}GayO₁₂の成長条件

melt No.	sub.	T _s /°C	T _g /°C	ΔT/°C
Bi:LuIG1	(111)GGG	815	752	63
Bi:LuIG2	(100)GGG			
Bi:LuIG3	(111)GGG	831	752	79
Bi:LuIG4	(100)GGG			
Bi:LuIG5	(111)GGG	849	753	96
Bi:LuIG6	(100)GGG			
Bi:LuIG7	(100)GGG	872	752	120
Bi:LuIG8	(111)GGG			
Bi:LuIG9	(111)GGG	885	749	136
Bi:LuIG10	(100)GGG			

(100)膜、(111)膜について磁気特性の違いを以下に示す。図8に示す磁気ヒステレシス曲線は、Ga置換をしないBi_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂膜の結果である。どちらも面内方向に磁化が飽和しやすい面内磁化膜であることがわかる。これらの膜の垂直方向へ磁界をかけたときの飽和磁界は2 kOe程度である。メルトのGaとFeのモル比を変化させて、Ga置換量を増やすにつれて磁気異方性が小さくなり、飽和磁界が減少する。Gaが1.0/f.u.程度置換されたときの(100)膜、(111)膜について図9に室温での磁気ヒステレシス曲線を示す。(100)膜に関しては面内方向に磁化しやすいのに対して、(111)膜は垂直方向に磁化容易方向が変わっていることがわかる。面直方向の飽和磁界は、(100)膜では1kOe程度、(111)膜では300Oe程度でVerdet定数から見ると(111)膜が大きな値を示すが垂直磁化膜隣空間分解能が低くなる。

両者の膜の表面の偏光顕微鏡写真では、図10に示すように(100)膜では、磁区構造を示さないのに対して、(111)膜はストライプ状の垂直磁区が現われた。

このことから基板方位以外に同一条件で成膜を行った場合、鉄イオンをGaイオンで希釈して磁気異方性を小さくする場合に、(111)膜が垂直磁化膜になりやすいことが明らかとなった。これは、<111>方向ある結晶磁気異方性の影響が現われたためと考えることができる。

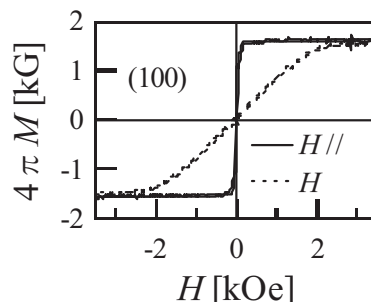
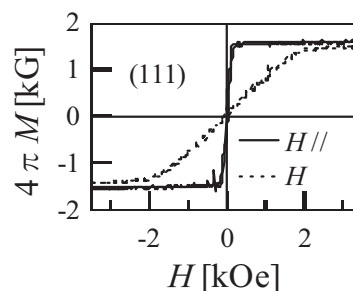


図8. Bi_xLu_{3-x}Fe₅O₁₂ (100)膜と(111)の室温における磁気ヒステレシス曲線。両者とも面内方向に磁化容易方向があることがわかる。

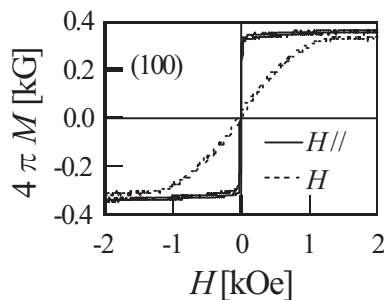
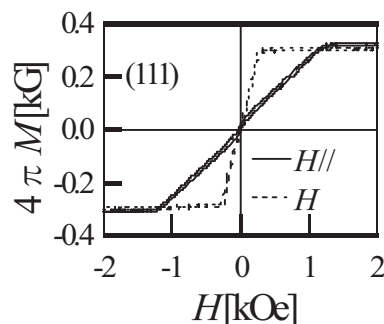


図9. Bi_xLu_{3-x}Fe_{5-y}Ga_yO₁₂ (y=1.0) (100)膜と(111)の磁気ヒステレシス曲線。(111)膜は垂直磁気異方性を示すのに対して(100)膜は面内磁気方性を維持している。

結晶磁気異方性エネルギーE_aは次式で表される^[14]。

$$E_a = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \dots \quad (2)$$

ここでα (i=1, 2, 3) は方向余弦、K₁、K₂はI次、II次の結晶磁気異方性定数である。K₁が正で二次以降の定数が無視しうるほど小さい場合、[111]方向では

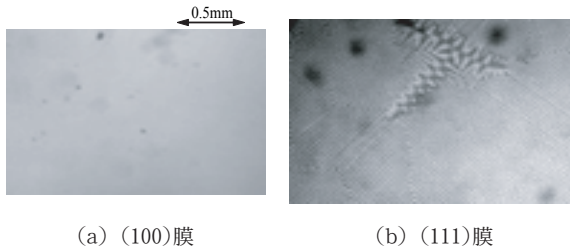


図10. (100)膜と(111)膜表面の偏光顕微鏡写真。(111)膜にストライプ状の垂直磁区が現われている。

$\alpha(i = 1, 2, 3) = 1/\sqrt{3}$ となりEaは[100]の場合よりもエネルギー的に高くなる。そのために、 $\langle 100 \rangle$ 方向に磁化容易方向が向く。逆に、 K_1 が負である場合はEaは[100]の場合よりもエネルギー的に低くなるために $\langle 111 \rangle$ 方向が磁化容易軸となる。磁性ガーネットの場合、 K_1 が負であるために^[9]、結晶磁気異方性は $\langle 111 \rangle$ 方向にある。(111)基板を用いることは、結晶磁気異方性の効果が垂直磁気異方性に寄与する。一方、Ga置換量を増加し、鉄イオンを希釈すると磁化が減少し、反磁界の効果が弱まる。膜の磁気異方性は2節の膜の設計指針で述べたように種々の磁気異方性の和であるので、Gaを置換しない系は形状磁気異方性の効果で(100)膜、(111)膜ともに面内磁気異方性を示したのに対して、Gaを1.0/f.u.ほど置換した膜では(111)膜が先に結晶磁気異方性の影響で垂直磁化膜になったと考えられる。以上により、飽和磁界を小さくするために鉄イオンを希釈することで磁界に対する感度を上げる組成設計では、成膜を(111)方向よりも(100)方向に制御することが望ましいと結論できる。

(100)基板上に成長させた $\text{Bi}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ 膜のファラデーヒステレシス曲線を図11に示す。ファラデー回転係数はBiの置換量 $x=0.8$ に依存し、 1×10^4 deg/cm程度を示した。Gaゼロ置換の膜では飽和磁界が2 kOeとなるが、Ga置換量 $y=1.0$ 程度になると飽和磁界が半分程度になり、Verdet定数は、23 deg/(cm · Oe)となった。これはこれまでに我々が作製した面内磁化膜のMOインディケータのなかで最大値となった。

この膜をMOインディケータとして用いて、種々の磁束観察をした例を次に示す。図12にはマグネットプランバイト型フェライト磁石 $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$ 結晶表面の光学顕微鏡写真とMOインディケータを置いた偏光顕微鏡写真を示す。表面に現われた迷図パターン磁区構造がわかる。また、図13には、クレジットカードの磁気バーコードをMOインディケータを用いて画像化した例を示す。このように磁気情報の読み取りにも応用でき、磁気ヘッドへの応用の試みもなされている。

この膜を用いて、超電導薄膜の材料評価を行った例を図14に示す。用いた試料はLPE法によって作製した高温超電導体YBCOの薄膜である。LPE法により作製した薄膜は酸素欠陥があるために酸素中でのアニール処理が

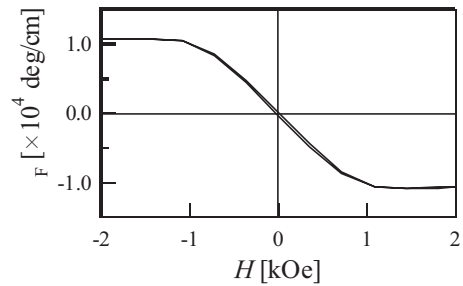
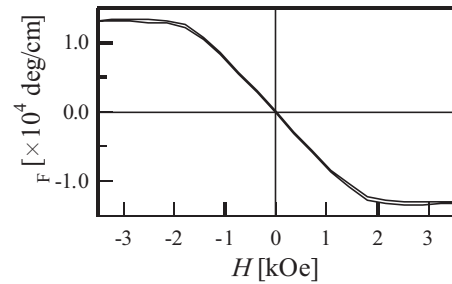


図11. $\text{Bi}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ (100)膜におけるGa置換しない膜(a)と $x=1.0$ 置換した膜(b)のファラデーヒステレシス曲線

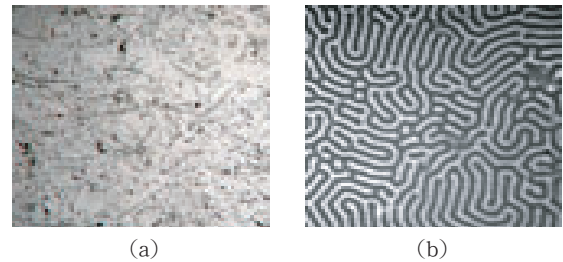


図12. 永久磁石材料 $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$ の表面写真(a)とその磁区模様(b)の観察

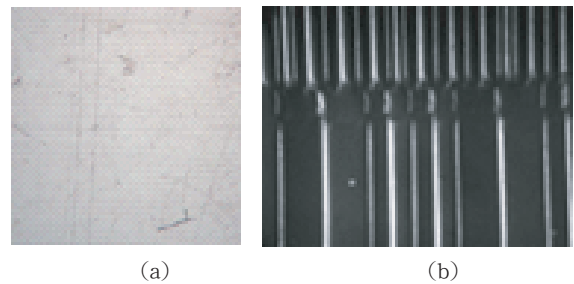


図13. クレジットカードの表面写真(a)の磁気バーコード模様(b)の観察

超電導性には必要である。5Kの極低温で磁界をかけると3 mm角程度の試料の輪郭が現われる。マイスナー効果で磁束を排除するために試料直上のMOインディケータの部分はファラデー回転を起こさないため暗くなるが磁界を印加するにしたがい、画面右側からデンドライト状に明るくなる。これは超電導薄膜試料に磁束が侵入し始めている様子を表している。1750 Oeまでかけると片側半分にはほぼ磁束が侵入している様子がわかる。こののちに5000 Oeの磁界を印加したあとにゼロ磁界に戻す

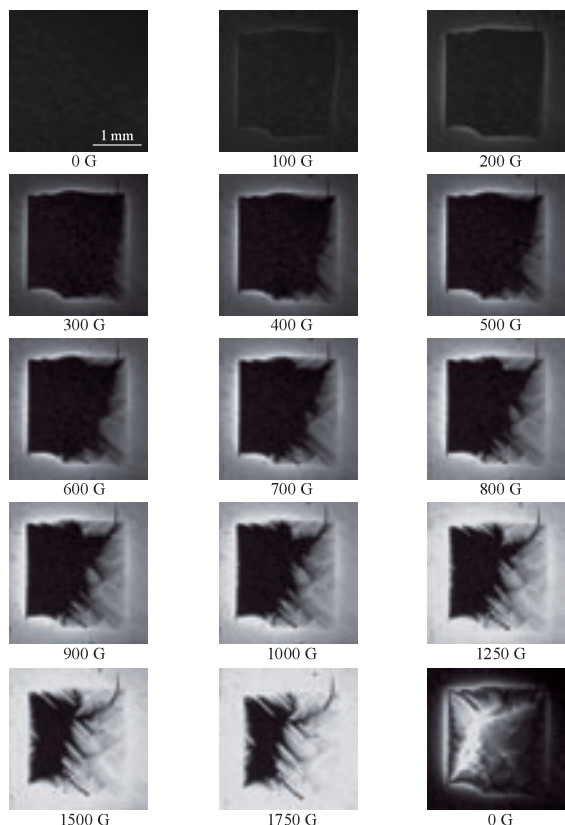


図14. LPE法で作製したYBCO薄膜の温度5Kでの侵入磁束の観測例。磁界を印加するにつれて磁束が右側から侵入し、5kOe印加後にゼロ磁界に戻すと左側部分に磁束がとらップされていることがわかる。

と、左側が明るくなった。これは、高磁界のもとで侵入した磁束がトラップされたことを示している。この磁束侵入の振る舞いから、作製された超電導薄膜の片側が十分に酸素アニールされず、超電導特性が悪いことが判断できる。すなわち、印加磁界増加とともに先に磁束が侵入し、また高磁界印加後に、磁束がトラップされていない片側の部分が超電導特性が悪いことがわかる。以上のように作製したMOインディケータを用いて、デンドライト状の細部まで明瞭に磁束侵入を観察でき、超電導材料評価に有効な評価法であることが示された。

最後に応力磁気異方性について、母体である $\text{Lu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の磁歪定数が $\lambda_{111} = -2.4 \times 10^{-6}$ と負の値を示すことから^[10]、薄膜の格子定数が基板よりも大きいときは1軸磁気異方性定数 K_{11} は負となり逆に基板の格子定数が膜よりも大きいとき K_{11} は正となる。すなわち、膜の格子定数が大きいときが面内方向に磁気異方性を向かせるために有効であるが、格子ミスマッチが小さいほう

が膜の結晶性はよいことから、ミスマッチをゼロにして磁歪の影響をなくすか、わずかに膜の格子定数が大きくなるように設計することが望ましい。

4. まとめ

LPE法によりMOインディケータとしての磁性ガーネット薄膜を作製し、成長誘導磁気異方性、結晶磁気異方性、応力磁気異方性、形状磁気異方性の効果を総合的に制御して、高ファラデー回転を示し、かつ面内に磁気異方性を示す成膜条件を明らかにした。作製した膜を用いた磁束観察において、磁気情報の視覚化や超電導材料などの材料評価に有効であることを示した。

謝辞 本研究をすすめるにあたって磁化測定の一部を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酒井雅弘様他の協力を得て行いました。ここに感謝いたします。

参考文献

- [1] R. Pauthenet et P. Blum: *Compt. Rend.* **239** (1954) 33, F. Bertaut et F. Forrat: *C. R. Acad. Sci.* **242** (1956) 382
- [2] M. A. Geler and S. Gilleo: *Acta Cryst.* **10** (1957) 239
- [3] 泡磁区材料調査専門委員会編, 「バブル技術ハンドブック」電気学会
- [4] A.A. Polyanskii et.al., *Sov. Tech. Phys. Lett.* **15** (1989) 872-873
- [5] E. Yamazaki, et.al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) 6637
- [6] Y. Yokoyama et.al. *Jpn. J. Appl. Phys. Pt2* **30** (1991) L714-L717
- [7] E. M. Gyorgy, et. al., *J. Appl. Phys.* **44** (1973) 438
- [8] P. Hansen, et. al., *J. Appl. Phys.* **60** (1986) 721
- [9] R. F. Pearson, *J. Appl. Phys.*, **33** (1962) 1236S
- [10] S. Iida, *J. Phys. Soc. Japan* **22**, 1201 (1967)
- [11] S. L. Blank, et. al. *J. Cryst. Growth* **17** (1972) 302
- [12] N. Adachi, et. al. *Advances in Superconductivity XI, Proc. of ISS98* (1999) 275
- [13] S. E. G. Slusky, et. al., *Phys. Rev. B* **34** (1986) 7918
- [14] N. Adachi, et. al. *J. Magn. Magn. Mat.* **272-276** (2004) 2255