レーザアニール処理された磁性ガーネット薄膜の 走査型プローブ顕微鏡による評価

Characterization of Laser-Annealed Magnetic Garnet Films by Scanning Probe Microscopy

千葉淳弘*・河島 整・横山侑子・大成誠之助*・安藤功兒

電子技術総合研究所, つくば市梅園 1-1-4 (〒305)

*筑波大学物理工学系, つくば市天王台 1-1-1 (〒305)

A. Chiba,* H. Kawashima, Y. Yokoyama, S. Onari,* and K. Ando

Electrotechnical Lab., 1-1-4 Umezono, Tsukuba 305

*Inst. of Applied Physics, Univ. of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba 305

Surface damage and magnetic structures in laser-annealed magnetic garnet films were investigated by the use of scanning probe microscopes, *i.e.*, Atomic Force Microscope (AFM), Magnetic Force Microscope (MFM), and Near-field Scanning Optical Microscope (NSOM). AFM images showed the atomically flat surface of the laser-annealed region in which the growth-induced magnetic anisotropy was strongly reduced. MFM and NSOM images showed sharp changes in the direction of magnetization at the boundary between the laser-annealed region and non-laser-annealed region. These results show that the laser-annealing technique is very useful for fabricating waveguide optical isolators.

Key words: magnetic garnet film, waveguide isolator, laser annealing, growth-induced magnetic anisotropy, magnetic domain pattern, in-plane magnetization, AFM, MFM, NSOM

1. はじめに

磁性ガーネット薄膜を用いた光集積回路用の導波路型光アイソレータの構成法がいくつか提案されている^{1)~6)}。そのうち最も実用化に適したものはカスケード型と呼ばれる構造で、導波光の進行方向に沿ってファラデー効果を利用する非相反領域と何らかの相反領域を隣接して設置するものである^{5), 6)}。特に磁性ガーネットの大きなコットン・ムートン効果を相反効果として用いる Fig. 1 の構造のものは、導波路全体に同一の磁性ガーネットを用いることができるという大きな利点を持っている。ただしこの構造では、導波光の進行方向に対する磁気モーメントの方向が、コットン・ムートン効果領域では垂直方向であるのに対し、ファラデー効果領域では平行方向でなければならない。したがって、単一の磁性ガーネット薄膜中に異なる磁気モーメントの向きを持つ二つの領域を作製する技術の開発が必要である。

液相エピタキシー法 (LPE 法) により成長させた磁性ガーネット薄膜の磁気モーメントの方向は、成長誘導磁気異方性により決まる⁷⁾。これはガーネットを構成する各種イオンが溶液から薄膜結晶中にある秩序を持って非等方的に取り込まれることによる磁気異方性である。このイオン分布の非等方性は熱的に準安定であり、約 1100℃ 以上の高温における熱処理によりイオンが移動してより安定で等方的なイオン分布に近づき、成

Fig. 1 Structure of a waveguide optical isolator.

長誘導磁気異方性は消滅する。すなわち、熱処理により磁気モーメントの方向は薄膜面内方向に変化する。

我々はこの現象を利用して、レーザ光による局所的加熱により磁性ガーネット薄膜の磁気モーメントの向きを局所的に制御する技術 (レーザアニール) を開発してきた^{8), 9)}。そしてこれにより実際にカスケード型の導波路型光アイソレータの作製を実現できることを示してきた^{1), 10)}。

レーザ光照射による熱処理を行う上で、薄膜の破壊や光学特性の劣化を伴わないことが要求される。しかし、磁性ガーネット薄膜のレーザアニール部の欠陥の有無およびその発生機構の詳細は明らかではない。また、高い性能を持つ導波路型光アイソレータの実現には、非相反領域と相反領域の明確な分離、つまり磁気モーメントの向きの急峻な変化が要求されるため、本レーザアニール技術で処理された磁性ガーネット薄膜のレーザ光照射部と非照射部の境界での磁区の変化を評価する必要がある。そこで今回、偏光顕微鏡による観測と合わせて、種々の走査型プローブ顕微鏡による評価を行った。具体的にはレーザアニール部の表面形状を AFM (Atomic Force Microscope; 原子間力顕微鏡) で評価し、レーザアニール部と非レーザアニール部の境界付近の磁区構造を MFM (Magnetic Force Microscope; 磁気力顕微鏡) および NSOM (Near-field Scanning Optical Microscope; 近接場走査光学顕微鏡) で評価した。

2. 実験方法

本実験に用いた磁性ガーネット薄膜は、[111] 方位を持つ GGG($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$) 基板上の $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜、および [111] 方位から $[\bar{1}\bar{1}2]$ 方向へ $(1\bar{1}0)$ 面内で 8° 傾斜した面方位を持つ GGG 基板上の $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜である。それぞ

れ成長温度 780~840℃ で LPE 法により成長させた。

磁性ガーネット薄膜を赤外線イメージ炉中にセットして試料全体を約 1000℃ に保ち、波長 515 nm の Ar^+ レーザ光を約 200 μm の直径を持つ円形に集光し、2~3 分間試料に照射した。広い面積にわたってレーザアニールを行うときには、試料をレーザ光に垂直な面内で 1 $\mu\text{m}/\text{s}$ の速度で移動させた。磁気モーメントが薄膜面内を向いた状態を得るのに必要なレーザのパワーを赤外線イメージ炉の温度の関数としてプロットしたマージン特性から、レーザ光照射部では薄膜の温度が約 1200℃ に上昇していることがわかっている⁹⁾。レーザアニール処理後、偏光顕微鏡を用いて磁気ドメインパターンの変化の様子を観測した。

表面形状の評価にはタッピングモードの AFM を用いた。先端に探針 (Si 単結晶製プローブ) をつけたカンチレバーをその共振周波数近傍で加振させ、試料表面上を断続的に軽く触れながら走査し、短針と試料間に働く力を検出することにより凹凸像 (AFM 像) を得る。

磁区構造を評価する MFM のプローブには磁性膜 (Co-Cr) をコートした Si 探針を用いた。タッピングモードで表面形状を測定した後、探針を一定量リフトして走査し、磁界により変化するカンチレバーの共振特性 (位相) を検出する。磁性針の磁化方向を垂直方向に揃えることにより、試料の垂直方向の磁場成分の大きさを可視化した像 (MFM 像) を得た。

NSOM は磁気光学効果を利用した磁気ドメインの観察法として期待されている新しい技術である。Al でコートされた光ファイバプローブの先端には 50 nm 程度の開口が作られており、レーザ光を入射させるとその近傍には近接場光 (Near Field Light) が生じる。ノンコンタクトモード AFM と同様の原理で試料表面と 10 nm 程度の一定の距離を保って走査し、透過光を対物レンズにより集光し、偏光子を通して光電子増倍管で検出し NSOM 像を得る。光源には波長 488 nm の Ar^+ レーザ光を用いた。磁気ドメインパターンは各磁気ドメインのファラデー効果による偏光面の回転を利用して観測される。

3. 実験結果および考察

3.1 偏光顕微鏡による評価

Fig. 2 はレーザアニール処理された $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜の偏光顕微鏡写真である。8° 傾いた基板上の薄膜は膜面の法線方向から 27° 傾いた磁化方向を持つ¹⁰⁾ため、周囲には縞状の磁気ドメインパターンが見られる。250 mW のレーザ光を 2 分間照射した左側のスポットでは、この磁気ドメインパターンのコントラストが大幅に低下している。すなわち、この領域では光の進行方向に対する偏光面の回転がほとんどない。これは、本来薄膜全体にわたって垂直成分を持つ磁化であったのが、レーザ光照射により成長誘導磁気異方性が消失し、局所的に面内磁化に変化したことを示している。偏光を用いない光学顕微鏡による観察ではこの領域を識別することはできず、膜の損傷も認められない。一方、400 mW のレーザ光を 2 分間照射した右側のスポットでは、レーザのパワーが強すぎて、亀裂や色の黒化などの損傷が発生している。中央部が黒く見えるのは損傷によって透過光強度が著しく低下しているためである。ま

Fig. 2 Polarization microscope photograph of a laser-annealed $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ film.

たその周囲の磁気ドメインも大幅に乱れている。そこで、損傷が発生した領域 (磁気ドメインが乱れている領域) および面内磁化に変化した領域 (損傷が発生していない領域) の表面状態を AFM を用いて観察し、レーザ光照射が磁性ガーネット薄膜に及ぼす影響を評価した。

3.2 AFM による表面形状の評価

Fig. 3(a) はレーザアニールにより損傷が発生した部分の AFM 像 ($(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜) である。三角形の深さ 20 nm 程度の穴および高さ 12 nm 程度の突起がそれぞれ同一の方向に揃って見られる。図の左上部から中央下部にわたって格子定数程度の段差のステップがある。また不規則な方向を向いた長方形の突起も見られる。三角形の突起は [111] 方位のガーネットの再成長、長方形の突起はオソフェライトや Fe_2O_3 などの析出物と思われる。したがって、損傷が発生している部分ではレーザ光照射による溶融と再成長が起きており、これらが磁気ドメインを乱す原因となっていると考えられる。

本実験でレーザアニールに用いた Ar^+ レーザ光はガウス型の強度分布を持っているため、レーザ光の照射を受けた部分の温度分布はその中央において最も高く、その周囲になだらかに変化しているはずである。よって、レーザ光のパワーが強くて損傷が発生しても、その周辺には環状の面内磁化領域の存在が予想される。しかしながら実際には、Fig. 2 でもわかるように、損傷部の周辺にそのような領域が見られることはない。また、レーザ光を照射しながら走査する際、いったん薄膜に損傷が発生するとそれ以降の領域全体に損傷が広がってしまう現象が起こる。AFM の観察結果から、このような損傷の拡大機構として、損傷部に発生した析出物が磁性ガーネットよりも強く光を吸収し、試料表面の温度を不均一に上昇させ、膜の欠陥を次々と引き起こすことが考えられる。

一方、Fig. 3(b) は、レーザアニールにより面内磁化に変化した領域の AFM 像 ($(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜) である。表面に突起物などはなく、原子スケールにおいても薄膜の劣化が全くないことがわかる。以上のことから、適正なレーザアニール条件の選択により、薄膜の損傷を伴わずに磁気モーメントの方向のみを変化させることが可能であることが確認された。

3.3 MFM による磁区構造の評価

AFM による評価から面内磁化に変化した領域でも薄膜の劣化が全くないことが明らかになったので、適正な条件でレーザアニール処理された磁性ガーネット薄膜の磁区構造の観察を行

Fig. 3 AFM images of (a) a damaged part and (b) a non-damaged part of a laser-annealed $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ film.

い、レーザアニールによる磁気モーメントの方向の変化の様子を評価した。Fig. 4 は $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜の偏光顕微鏡写真であり、中央部がレーザ光の照射を受けた領域である。レーザ光の照射を受けなかった周りの領域では、明暗のはっきりしたコントラストを持つ磁気ドメインパターンが見られるが、これは明らかに、薄膜面に垂直で上または下を向いている磁気モーメントに対応したものである。一方、レーザアニールされた領域では、磁気ドメインのコントラストが極めて低く、磁気モーメントがほとんど薄膜面内を向いていることを示している。また、境界での磁気ドメインのコントラストの変化は非常に急峻である。境界付近でのこのような磁区構造の変化を MFM により評価した。

Fig. 5 は、Fig. 4 と同一の $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜のレーザアニール部と非レーザアニール部の境界付近の MFM 像であり、右側がレーザ光を照射された領域である。非レーザアニール部に見られる磁気ドメインのコントラストが図の中央付近から約 $10\mu\text{m}$ 程度で急激に低下し、レーザアニール部では消失している。これは垂直磁化領域と面内磁化領域の境界では、約 $10\mu\text{m}$ の範囲で連続的に磁気モーメントの方向が変化していることを示している。Fig. 4 のレーザアニール部に見られる弱いコントラストの磁気ドメインパターンが MFM 像では確認できないのは、この領域では磁気モーメントの薄膜面に垂直な成分が非常に小さく、垂直方向に磁化された MFM の探針では検出できないためか、あるいは、今回の MFM 装置では試料台の固定に磁石を用いており、この磁場（50 Gauss 程度）の影響で磁気

Fig. 4 Polarization microscope photograph of the laser-annealed $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ film.

Fig. 5 MFM image of the boundary between the laser-annealed region and non-laser-annealed region of the $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ film.

モーメントの向きが面内方向に揃えられたためと考えられる。非レーザアニール部のドメインの明暗の幅が非対称なのは、この磁場の影響である。境界部分のドメインのコストラストの変化が偏光顕微鏡写真の場合と比較して緩やかなのも、この磁場の及ぼす影響による可能性が高い。

MFM では、磁化された探針による走査の際に磁性ガーネット薄膜の磁気ドメインが動いてしまう可能性もある。正確な磁区構造の評価のためには、探針の磁気モーメントの大きさと試料表面からのリフト量の最適化が今後の課題である。

3.4 NSOM による磁区構造の評価

MFM では磁性のプロブを用いて表面に生じている磁界を測定したのに対し、NSOM では非磁性のプロブを用いて磁区観測を行う。したがって、全く原理の異なる手法での同様の磁性ガーネット薄膜の磁区構造の評価を行うことは、非常に有用である。Fig. 6(a) は NSOM により得られた $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜の磁気ドメインパターンである。この像がファラデー効果で観測されていることは、偏光子の角度を変えることで磁気ドメインのコントラストが逆転することにより確認した。つまり、磁気モーメントの方向が薄膜面に対して垂直成分を持っていることも確認できた。磁気ドメインの幅が非対称であるのは、光ファイバーの固定に用いた磁石の磁場による影響である。NSOM を用いて磁性ガーネット薄膜の磁気ドメインを確認することができたので、MFM の場合と同様にレーザアニール部と非レーザアニール部の境界付近の観察を行った。

Fig. 6(b) は、Fig. 6(a) と同一の $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 薄膜の

Fig. 6 NSOM images of the magnetic domain structure of the $(\text{BiGdLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ film: (a) non-laser-annealed region and (b) boundary of the laser-annealed region.

境界付近の NSOM 像であり、図の上部がレーザアニールされた領域である。非レーザアニール部での磁気ドメインのコントラストが境界部分でやはり急激に低下しており、レーザアニール部で磁気モーメントの方向が面内に変化しているのが確認できた。MFM により観察された像 (Fig. 5) よりも境界付近での磁気ドメインの輪郭がはっきりしており、磁気モーメントの方向が鋭く変化していることを示している。

NSOM による評価では、プローブ光源に用いるレーザ光の波長と、試料の透過光強度およびファラデー回転角との最適化を図ることにより、さらに鮮明な磁気ドメイン像を得ることが今後の課題である。

4. ま と め

磁性ガーネット薄膜のレーザアニール部の表面形状を AFM

(原子間力顕微鏡)を用いて評価した。磁気モーメントが薄膜面内方向に変化した領域では、原子スケールにおいても薄膜の劣化が全くなく、導波路型光アイソレータへの応用上、問題はないことがわかった。一方、損傷が発生した領域では、三角形の穴や突起とともに、格子定数程度の段差のステップ、また長方形の析出物が観測された。これらはレーザ光照射による溶解や再成長が起きていることを示しており、磁気ドメインを乱す原因と考えられる。

また、磁性ガーネット薄膜のレーザアニール部と非レーザアニール部の境界付近の磁区構造を MFM (磁気力顕微鏡)、NSOM (近接場走査光学顕微鏡)を用いて評価した。特に NSOM による評価からは、境界での磁気ドメインの末端、すなわち磁気モーメントの方向の非常に急峻な変化が観測され、非相反領域と相反領域の明確な分離が可能であることが実証された。そして NSOM という新しい手法が磁区構造の評価法として非常に有用であることがわかった。

以上の種々の走査型プローブ顕微鏡による評価の結果は、レーザアニール技術が高性能の光アイソレータの実現のための優れた技術であることを示している。

文 献

- 1) K. Ando: Proc. SPIE 1126, Electro-Optic and Magneto-Optic Materials and Applications, ed. by J. P. Castera, 1989, p. 58 (The Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers, Paris, 1989).
- 2) S. Yamamoto, Y. Okamura, and T. Makimoto: *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-12**, 764 (1976).
- 3) S. T. Kirsch, W. A. Biolsi, S. L. Blank, P. K. Tien, R. J. Martin, R. M. Bridenbaugh, and P. Grabbe: *J. Appl. Phys.*, **52**, 3190 (1981).
- 4) S. Yamamoto and T. Makimoto: *J. Appl. Phys.*, **45**, 882 (1974).
- 5) J. P. Castera and G. Hepner: *Appl. Opt.*, **16**, 2031 (1977).
- 6) J. P. Castera and G. Hepner: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-13**, 1583 (1977).
- 7) 電気学会: バブル技術ハンドブック, p. 36 (オーム社書店, 東京, 1976).
- 8) K. Ando, Y. Yokoyama, T. Okuda, and N. Koshizuka: *J. Magn. Magn. Mat.*, **35**, 350 (1983).
- 9) K. Ando, T. Okoshi, and N. Koshizuka: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 3485 (1987).
- 10) K. Ando, T. Okoshi, and N. Koshizuka: *Appl. Phys. Lett.*, **53**(1), 4 (1988).

1996 年 10 月 15 日受理, 1996 年 12 月 3 日採録