磁性ガーネット膜とその転写特性

Magnetic Garnet Films for Transcription

横山侑子・塚原園子・野中耕太郎*・片山利一

電子技術総合研究所, 茨城県新治郡桜村梅園 1-1-4

*日本大学理工学部, 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

Y. Yokoyama, S. Tsukahara, K. Nonaka* and T. Katayama

Electrotechnical Laboratory, Umezono, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki 305

*College of Science and Technology, Nihon University, Narashinodai, Funabashi, Chiba 274

Magnetic garnet films of $(YBi)_3(FeGa)_5O_{12}$ and $(YSm)_3(FeGa)_5O_{12}$ systems were prepared for magnetic transcription use. Films with the specific Faraday rotation up to 10^4 deg/cm, the squareness up to 1 and the saturation field down to 2 Oe can be produced by varying the thickness from 0.5 μm to 9 μm and the saturation magnetization from 6 G to 220 G. Amorphous Dy-Fe films were deposited directly on the garnet films to make composite films. Thermomagnetically induced domains in the former were examined as the transcribed domains in the latter, where the magneto-optical contrast was much improved due to the one order higher Faraday rotation of the latter than the Kerr rotation of the former. High quality of transcription without bias field can be attained only by the garnet films of large squareness. These results show that the composite films is a good candidate medium for thermomagnetic memory systems.

1. はじめに

液相 (LPE) 成長法で育成される磁性ガーネット膜は、その磁気的および光学的性質が膜の構成元素とその割合の変化により広範囲に変えられるという利点を持つ。この利点を利用して、光スイッチ、光変調などの光機能素子、表示素子などの幅広い応用が考えられている¹⁾。ガーネットを用いた磁気パブル素子はすでに応用の段階に達し、これからの発展が期待されている。磁気転写用の素子としての応用も考えられている。すなわち、磁気カード、テープなどの面内磁化記録媒体からの浮遊磁場でガーネット垂直磁化膜へパターンを転写し、デジタルのおよびアナログ的な光学的読み出しが試みられている²⁾。

転写用の素子として次のような応用も考えられる。光熱磁気記録媒体として、非晶質 Tb-Fe、Dy-Fe 垂直磁化膜は書き込み感度が高く、微小な磁区が安定に存在するなど高密度記録には適するが³⁾、磁気光学効果が比較的小さいため読み出しに難がある。この膜の記録磁区を磁気光学効果の大きいガーネット膜へ転写できれば、光読み出し機能の向上により優れた光熱磁気記録媒体が得られる。

転写用の素子としてガーネット膜をこのような目的に使用するには、対象物の磁化状態や、どのような転写を行なうかなどに合わせてガーネット膜の特性を考慮する

必要がある。しかし、転写用の素子としてガーネット膜の特性を幅広く変化させる研究は、あまりなされていない。

ここでは、磁性ガーネット膜として $(YSm)_3(FeGa)_5O_{12}$ および $(YBi)_3(FeGa)_5O_{12}$ の 2 つの系を選び、膜厚と磁化を変えたことによる磁気的および光学的特性の変化について調べる。さらに、これらの膜の転写特性として、非晶質 Dy-Fe 膜との複合膜において、Dy-Fe 膜の磁区のガーネット膜への転写特性について簡単に述べる。

2. 実験方法

ガーネット膜は LPE 法によって、非晶質 Dy-Fe 膜は高周波スパッタリング法で作製された。

膜の特性を以下の方法で測定した。ガーネット膜の膜厚を近赤外領域の反射スペクトルの干渉により、Dy-Fe 膜の膜厚を表面荒さ計で求めた。磁化履歴曲線、保磁力、磁気異方性定数などの磁性を、振動試料型磁力計、高感度回転力計などを用いて測定した。ファラデー効果の波長依存および磁場依存 (履歴曲線) には磁気旋光分散計を用いた。ガーネット膜のファラデー効果による磁区観察および Dy-Fe 膜の極カー効果による磁区観察には、最大 400 Oe までの垂直磁化を印加できる偏光顕微鏡を用いた。Dy-Fe 膜への光熱磁気記録を既に発表したように、光チョッパーでパルス化した Ar レーザ光で

行なった²⁾.

3. 実験結果

3.1 ガーネット膜の製作と特性

LPE 成長法において、育成温度を一定とし 育成時間を変化させ、組成が等しく膜厚の異なる ($0.5 \sim 9 \mu\text{m}$) $(\text{YSm})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ 膜を作製した.

膜厚 $1 \mu\text{m}$ 以上の膜の飽和磁化 $4\pi M_s$, 垂直磁気異方性定数 K_1 , 保磁力 H_c , 格子定数の不整合 $\Delta a(a_s - a_t)$, 波長 525nm におけるファラデー回転係数はそれぞれ 100 G , $8 \times 10^3 \text{ erg/cm}^3$, $0.015 \text{ \AA}$, $1.1 \times 10^3 \text{ deg/cm}$ とほぼ等しかった. これらの膜の飽和磁場 (膜の磁化を飽和するのに必要な磁場) H_s , 消磁磁区幅 W , 角型比 $\theta_{tr}/\theta_{fs} (\theta_{tr}, \theta_{fs}$ はそれぞれ残留および飽和磁化状態におけるファラデー回転角) の膜厚依存性を **Fig. 1** に示す. ファラデー回転角も併せて示す. 膜厚の減少につれて, 飽和磁場とファラデー回転角は減少し, 角型比はほぼ一定に保たれるが, 膜厚

Fig. 1 Thickness dependence of the magnetic properties and Faraday rotation at $\lambda = 525 \text{ nm}$ in $(\text{YSm})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ films.

H_s : saturation field,
 W : demagnetization domain width,
 θ_{fs} : Faraday rotation, θ_{tr}/θ_{fs} : squareness.

Fig. 2 Typical domain patterns and hysteresis loops of $(\text{YSm})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ films.

が約 $3 \mu\text{m}$ から角型比は急激に増す. 磁区幅は膜厚の減少につれて最小値までゆっくり減少するが, 最小値を過ぎてからは急激に増す. 保磁力の値は示していないが, 膜厚の減少につれて増加した. 飽和磁場および磁区幅の振舞いは C. Kooy⁴⁾ らによる垂直磁化膜の理論的考察とほぼ一致している.

膜厚の小さい時に角型の履歴曲線を示す原因として, LPE 法で作製した膜の特徴である遷移層の存在が考えられる. R. D. Henry ら⁵⁾ によれば, ガーネット膜の成長初期 ($\sim 0.1 \mu\text{m}$) では, 基板が LPE 溶液によりエッチングされ再び成長することにより, 以後の膜と組成などの異なる層が形成される. ここで示した系では, 成長初期において Ga, Gd を多く含んだ層となるため磁化が小さくなり, 保磁力の増加および角型性を生ずると考えられる. 両極端の特性を示す膜として角型性を示す膜 ($h = 0.9 \mu\text{m}$) と線型履歴曲線を示す膜 ($h = 5.6 \mu\text{m}$) の磁区と履歴曲線を **Fig. 2** に示す. 膜厚 $0.9 \mu\text{m}$ の膜では磁区幅が大きく不揃いでそのコントラストは低く, 膜厚 $5.6 \mu\text{m}$ の膜では磁区は幅が小さく揃っておりコントラストは高い.

このような膜厚依存の傾向は, ファラデー回転角の大きい Bi 入りの膜 $\text{Y}_{2.5}\text{Bi}_{0.5}\text{Fe}_{3.5}\text{Ga}_{1.5}\text{O}_{12}$ でも同じであった.

磁化の異なる ガーネット膜 ($4\pi M_s = 6 \sim 220 \text{ G}$) を $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ の系で作製した. 格子定数の不整合が $0.015 \text{ \AA}$ となるように溶液の組成および育成温度を, 膜厚が $2.5 \mu\text{m}$ となるように育成時間を調整した.

膜の諸特性は **Fig. 3** に示すような磁化依存性を示す. 磁化の減少につれて飽和磁場は減少し, ファラデー回転角と角型比はほぼ一定に保たれるが, 磁化が小さい所で角型比の急激な増加が起こる. 消磁磁区幅は磁化の減少に

Fig. 3 Saturation magnetization dependence of magnetic properties and Faraday rotation at $\lambda = 500 \text{ nm}$ in $(\text{YBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ films of $h = 2.5 \mu\text{m}$.

Table 1 Magnetic properties of Dy-Fe films.

Film Number	1	2	3
$4\pi M$ (16 kOe) (G)	420	550	850
K_1 (10^4 erg/cm ³)	9.0	4.4	5.5
H_c (Oe)	250	1300	360
h (μ m)	3.2	1.3	1.2

つれてゆっくり増加するが、角型比が増大する磁化値から増加の割合が増す。Fe の減少によるファラデー回転角の減少と、Bi 増加によるファラデー回転角の増加分が相殺したため、ファラデー回転角は磁化に依存しない。

膜厚の小さいガーネット膜は飽和磁場が小さく、角型性が高い。これは小さい浮遊磁場を持つパターンの転写に適するが、ファラデー回転角が膜厚に比例して減少するため、転写はできても読み出しには有効ではない。さらに、特性制御できない遷移層の占める割合が多いことも好ましくない。しかし、Bi 入りガーネット膜で磁化を減少することにより、ファラデー回転を大きく、遷移層の影響を無視できる膜厚 (2.5 μ m) で飽和磁場の小さい角型性のものが得られた。

3.2 非晶質 Dy-Fe 膜の作成と特性

ガーネット表面の Pb を多く含んだガーネット層⁹⁾ (~200 Å) 除去のため、Dy-Fe のスパッタリングによる堆積に先だち逆スパッタリングを行なった。ガラス上に作製した異なる Dy-Fe 膜の膜定数を **Table 1** に示す。試料 1 の磁化の履歴曲線と製作したままおよび残留磁化状態の磁区を **Fig. 4** に示す。履歴曲線の形、角型比が低い点などの傾向は、磁化、保磁力、垂直磁気異方性定数などの異なる試料 2, 3 においても同じであった。

履歴曲線と磁区模様から Dy-Fe 膜の磁化状態は次のように考えられる。Dy-Fe の磁化モーメントの配列はフェリ磁性的であり、Dy と Fe はそれぞれ円錐状に分布している⁹⁾。高磁場から磁場を減少した時、円錐の角度の変化により磁化は磁場に比例して減少する。低磁場ではさらに、反磁場により磁区が形成されるため残留磁化は小さい値となる。小さい残留磁化にもかかわらず、また **Table 1** に示した大幅な磁性の変化にもかかわらず、すべての膜においてミクロン程度の熱磁気書き込みが可能であった。

4. 磁区転写

膜厚および磁化の異なるガーネット膜と Dy-Fe 膜と

Fig. 4 Hysteresis loop and domain patterns of the amorphous Dy-Fe film 1.

の複合膜において、ガーネット膜に見られる磁区の変化を調べた。特徴的な例として **Fig. 3** における $4\pi M_s = 40$ G (A 膜), 220 G (B 膜) のガーネット膜と試料 2 の Dy-Fe 膜の結果を **Fig. 5** に示す。(1)はガーネット膜のみ、(2)~(4)はそれぞれ Dy-Fe 膜が残留磁化状態にある場合、Dy-Fe 膜に記録磁区がある状態におけるガーネット膜に見られる磁区と履歴曲線である。複合状態での履歴曲線は磁区観察により求めたものである。

(2)に見られるガーネット膜上の磁区は Dy-Fe 膜に見られるものと同一であった。ガーネット膜からの浮遊磁場のもとで Dy-Fe 膜が堆積されたため、異なるガーネット膜上に同時に作製した Dy-Fe 膜の磁区は異なる大きさを示す。複合化によりガーネット膜の履歴曲線は、飽和磁場の増加、逆磁区発生磁場の減少、角型比の増大を示すが、これらは磁化の小さい A 膜において顕著である。レーザ光による熱磁気記録に先だち 16 kOe の磁場を印加して残留磁化状態にしたとき、A 膜では角型性履歴曲線を持つため一方に磁化されているが、逆方向に数 Oe の磁場を印加すると(3)に見られるように一方にほぼ揃った磁区になり、これは磁場を零に戻しても保たれる。B 膜では残留磁化状態において一方にかなり揃った磁区になる。**Fig. 4** で示したような Dy-Fe 膜の磁区は転写されないで、その方向性が移っていると考えられる。履歴曲線から判断すると、Dy-Fe 膜からの影響は(2)の場合より小さい。Dy-Fe 膜に記録磁区があるとき、A 膜ではガーネット膜が残留磁化状態で単磁区となるため、(4)に示すようにいったん背景を消去すれば、磁場を零で円形状の記録磁区の転写磁区は孤立した状態で観察される。しかし、この場合、孤立するのは 7 μ m 以上の転写磁区で 4 μ m 以下のものは背景と共に消えた。B 膜では記録転写部分の背景として迷路状磁区があるため、残留磁化状態での磁区幅より小さい磁区は識別し難く、磁場の印加により転写磁区は背景と共に消えた。

- (1) without Dy-Fe film.
- (2) with as-sputtered Dy-Fe film.
- (3) with Dy-Fe film at remanence.
- (4) with Dy-Fe film after thermomagnetic recording. The hysteresis loop were measured at only area on the recorded bits.

Fig. 5

Domain patterns and hysteresis loops of $(YBi)_3(FeGa)_5O_{12}$ films with $4\pi M_s = 40$ G (A) and 220 G (B).

$Y_{2.5}Sm_{0.5}Fe_{3.5}Ga_{1.5}O_{12}$ 膜 ($4\pi M_s \sim 120$ G) と試料 1 との複合膜の場合、 $h=0.7 \mu m$ ($H_s=5$ Oe, $\theta_{tr}/\theta_{fs}=0.9$, $W=50 \mu m$) と $h=5.6 \mu m$ ($H_s=55$ Oe, $\theta_{tr}/\theta_{fs}=0.02$, $W=8 \mu m$) のガーネット膜への転写では、前者は A 膜に、後者は B 膜にその転写特性が似ていた¹⁰⁾。 $h=0.7 \mu m$ では $2 \mu m$ の記録磁区の孤立転写が磁場零で観察された。Bi 系よりも小さい磁区を孤立転写できたのは、ガーネット膜の磁壁の保磁力と飽和磁化の違い、Dy-Fe 膜の Fig. 4 に示すような磁化の垂直成分の違いによると考えられる。

このように複合膜においては、ある大きさ以上の Dy-Fe 膜の記録磁区をガーネット膜へコントラスト良く転写できる。 $\lambda=500nm$ における Dy-Fe 膜のカー回転角は高々 0.2 度であるのに対し、Bi 入りのガーネット膜のファラー回転角は膜厚 $2.5 \mu m$ で往復 4 度であるから、回転角は 20 倍向上したことになる。しかし、コントラストでみれば、ガーネット膜の光吸収や Dy-Fe 膜の反射率などにより多少減少する。

ガーネット膜と Dy-Fe 膜の結合は基本的に、交換結合と静磁結合に分けて考えなければならない。ここでは前者を考えて複合膜の作製を行なっている。しかし転写特性からみると、角型性の膜は交換結合的であり、線型履歴曲線の膜は静磁結合的である。結合の機構および転写特性の詳細の検討は今後の課題である。

3. む す び

磁性ガーネット膜 $(YSm)_3(FeGa)_5O_{12}$, $(YBi)_3(FeGa)_5O_{12}$ の 2 つの系において、膜厚と磁化を変化することにより、飽和磁場、角型性など幅広い特性の変化が可能である。特に Bi 入りのガーネット膜では大きいファ

ラー回転を保ったまま特性制御が可能である。

ガーネット膜上へ Dy-Fe 膜を堆積し複合膜とすることによって、Dy-Fe 膜の磁区をコントラスト良く転写できる。特に、飽和磁場の小さい角型性の強いガーネット膜は、消磁磁区幅が $\sim 50 \mu m$ と大きいにもかかわらず、Sm 系では $2 \mu m$ 、Bi 系では $7 \mu m$ の記録磁区を磁場零で孤立転写できた。サブミクロンの磁区をガーネット膜へ転写するには、さらに Dy-Fe、ガーネット両膜の磁気異方性、磁壁の保磁力、などを考慮した特性改善が必要であろう。

LPE 成長に関してご教示いただいた中山靖彦、渡辺由雄両氏（松下技研）、光熱磁気書き込みをお願いした田中敏雄氏（電総研）に厚く感謝します。

【参考文献】

- 1) たとえば、G. B. Scott and Lacklison: IEEE Trans. Magn. **MAG-12**, 292 (1976).
- 2) 横田、大淵、桜井：第 3 回日本応用磁気学会学術講演概要集、25pB-5, 104 (1977).
- 3) 塚原、片山、田中、国分、対馬：日本応用磁気学会第 1 回研究会資料、11-2, 9 (1979).
- 4) C. Kooy and U. Enz: Philips, Res. Repts. **15**, 7 (1960).
- 5) R. D. Henry and E. C. Whitcomb: Mat. Res. Bull. **10**, 681 (1975).
- 6) J. M. Coey: J. Appl. Phys. **49**, 1646 (1978).
- 7) 塚原、野中、横山、片山、国分、田中：電気学会マグネティックス研究会資料、MAG-81-14 (1981).

1981年12月16日受理、1982年2月9日採録