Bi 置換磁性ガーネット膜の $0.8\mu\text{m}$ 帯 光アイソレータへの応用

Application of Bi-Substituted Iron Garnet Films to $0.8\mu\text{m}$ Range Optical Isolator

腰塚直己・横山侑子・村田 淳*・安藤功児・奥田高士

電子技術総合研究所，茨城県新治郡桜村梅園 1-1-4 (〒305)

*日本大学理工学部，船橋市習志野台 7-24-1 (〒274)

N. Koshizuka, Y. Yokoyama, A. Murata*, K. Ando, and T. Okuda

Electrotechnical Laboratory, 1-4, Umezono 1-chome, Sakura-mura,
Niihari-gun, Ibaraki 305

*College of Sci., and Tech., Nihon Univ., 24-1, Narashinodai
7-chome, Funabashi 274

High-quality films of $(\text{BiNdLu})_3(\text{FeAlLu})_2\text{O}_{12}$ and $(\text{BiGd})_3(\text{FeAl})_2\text{O}_{12}$ have been grown by means of LPE. We found that Bi garnet films with the absorption loss of $300\sim 400\text{ dB/cm}$ at wavelength $0.8\mu\text{m}$ can be prepared by this technique with use of $\text{PbO-B}_2\text{O}_3\text{-Bi}_2\text{O}_3$ fluxed melts. The magneto-optical figure of merit of $(\text{BiNdLu})(\text{FeAlLu})_2\text{O}_{12}$ films reached about 10 deg/dB at $0.8\mu\text{m}$ for as-grown films and 14 deg/dB for chemically reduced films in aqueous FeCl_2 solution. Films of $(\text{BiGd})_3(\text{FeAl})_2\text{O}_{12}$ of thickness greater than $100\mu\text{m}$ and a figure of merit of 9 deg/dB are successfully grown onto NdGG and Ca, Mg and Zr substituted GGG substrates. From the temperature dependence of Faraday rotation angle of the film, it is found that the Curie temperature is 300°C and the compensation temperature, -98°C . An optical isolator for a wavelength region of $0.8\mu\text{m}$ is constructed by using the thick film which have the perpendicular and low saturation magnetization ($4\pi M_s=603\text{ G}$). The forward loss of the isolator is found to be 6.3 dB and the backward loss, 24 dB .

1. はじめに

半導体レーザを利用するさまざまな光デバイスやシステムが進歩している中で，戻り光を阻止する光アイソレータや入出力光を分離する光サーキュレータの実現が期待されている．これらの媒体に要求される特性としては，磁気光学性能指数（ファラデー回転角 / 吸収損失）が高いこと，磁化を光の進行方向にそろえるのに要する磁界（飽和磁界）が低いことなどがあるが，磁性ガーネット，中でも希土類サイトをビスマスで置換した Bi 置換鉄ガーネット結晶は最も有望な媒体と考えられている¹⁾．実際，高い性能指数を有するバルク結晶が改良された融剤法により育成されて， $1.3\sim 1.5\mu\text{m}$ 帯だけでなく $0.8\mu\text{m}$ 帯用の光アイソレータが実現されている²⁾．今後の課題は，生産性やコストの面で優れた膜を用いた光アイソレータ，すなわち厚膜型アイソレータの開発が一つの方向であると考えられる．筆者らは，厚膜媒体と

して，液相エピタキシャル（LPE）法により $(\text{BiNdLu})(\text{FeAlLu})_2\text{O}_{12}$ 及び $(\text{BiGd})_3(\text{FeAl})_2\text{O}_{12}$ （以後， BiNdLu-AlIG 及び BiGdAlIG と略記する）膜を育成し，これらを用いた $0.8\mu\text{m}$ 帯用の光アイソレータを試作したので報告する．

2. 実験方法

2.1. 膜作成

ガーネット膜の作成は $\text{PbO-B}_2\text{O}_3\text{-Bi}_2\text{O}_3$ 融剤を使用した等温水平ディッピング方式 LPE 法により行った．使用した基板，作成条件，原料パラメータなどを Table 1 に示す． BiNdLuAlIG については，基板に $\{111\}$ 面をもつ GGG を使用し， $790\sim 820^\circ\text{C}$ の範囲の種々の成長温度 T_g において膜の育成を行った．また，吸収低減の試みとして， 100°C の FeCl_2 溶液中に膜を 30 時間浸すことにより，吸収特性に及ぼす化学的な還元効果を調べた．この系では，表面にクラックの少ない良質の膜が得

Table 1 Preparation conditions in LPE growth of Bi-substituted iron garnet films.

Sample	BiNdLuAlIG 2211	BiGdAlIG 711	BiGdAlIG 8091
Substrate	GGG	NdGG	CaMgZrGGG
Saturation temp. T_s (°C)	845	883	933
Growth temp. T_g (°C)	804	840	845
Rotation rate of substrate ω_s (rpm)	25	50	50
Growth time t (min)	10	60	90
Film thickness d (μm)	6.1	105	140
$R_1 = \frac{\text{Fe}_2\text{O}_3}{2\text{R}_2\text{O}_3}$	11	12	10
$R_2 = \frac{\text{Al}_2\text{O}_3}{\text{Fe}_2\text{O}_3}$	0.011	0.011	0.022
$R_3 = \frac{\text{PbO}}{\text{Fe}_2\text{O}_3}$	7.25	7.25	7.25
$R_4 = \frac{2\text{R}_2\text{O}_3 + 2\text{O}_2}{\text{total components}}$	0.135	0.12	0.12
$R_5 = \frac{\text{Nd}_2\text{O}_3}{\text{Lu}_2\text{O}_3}$	0.206	—	—
$R_6 = \frac{\text{PbO}}{\text{Bi}_2\text{O}_3}$	1.8	1.8	1.8

* $\text{Bi}_{0.84}\text{Nd}_{0.36}\text{Lu}_{1.05}\text{Pb}_{0.02}\text{Fe}_{4.80}\text{Al}_{0.11}\text{O}_{12}$

** $\text{Bi}_{0.77}\text{Gd}_{2.20}\text{Pb}_{0.03}\text{Fe}_{4.80}\text{Al}_{0.04}\text{O}_{12}$

られるのは、約 $20\mu\text{m}$ の厚みまでであった。一方、BiGdAlIG 系では、 $140\mu\text{m}$ 以上の厚みまで表面が平滑な良質の膜を得た。膜と基板の格子整合を図るために、格子定数の大きい NdGG 及び Ca, Mg, Zr で置換した GGG を基板として使用した。膜の組成は X 線マイクロアナライザ (EPMA) により求めた。不純物として混入する Pt の量は 0.01 (atoms/f.u.) 以下であった。

2.2 磁気光学特性の測定

波長 λ が $0.8\mu\text{m}$ 近傍の吸収損失 α 及び膜厚 d は、近赤外領域の吸収スペクトル及びその干渉構造より求めた。 $\lambda=1.15\mu\text{m}$ における α は、He-Ne レーザを光源に、プリズムを入出力器、CCD イメージセンサを光検出器に用いた光導波法により測定した³⁾。ファラデー回転係数 θ_F の測定には Jasco-MOE7 型自記旋光分散計を使用した。BiGdAlIG 膜については θ_F の温度依存性の測定も行い、キュリー温度 T_C 及び磁気補償温度 T_{comp} を求めた。一軸磁気異方性定数 K_u は、振動試料型磁化測定器により定まる飽和磁化 $4\pi M_s$ の値を用い、強磁性共鳴法により求めた。

3. 結果と考察

3.1 BiNdLuAlIG 膜

Fig. 1 は、 $T_g=804^\circ\text{C}$ で育成した膜の波長 $0.6\sim 1.2\mu\text{m}$ におけるファラデー回転係数、吸収損失及び性能指数 $|\theta_F|/\alpha$ の波長依存性を示す。実線は as-grown の膜、点線は FeCl_2 溶液を用いて還元処理を行った膜のデータである。ここで、 $\lambda\sim 0.92\mu\text{m}$ の吸収ピークは 6 配位の酸素で囲まれた Fe^{3+} の 6A_1 から 4T_1 への結晶場電子遷移に、また、 $\lambda\sim 0.8\mu\text{m}$ の小さなピークは Nd^{3+} の多重項間の電子遷移に起因するものである。破

線で示すように、 θ_F は単調なスペクトルであるので、性能指数は $0.8\mu\text{m}$ 帯にピークをもつ上図のようなスペクトルとなる。還元処理により θ_F はほとんど変化を示さないのに対して、 α が減少したため、 $|\theta_F|/\alpha$ は $\lambda=0.8\mu\text{m}$ で 9.8 deg/dB から 14 deg/dB に増大した。

Fig. 1 Wavelength dependences of Faraday rotation coefficient, absorption loss and figure of merit of $(\text{BiNdLu})_3(\text{FeAlLu})_5\text{O}_{12}$ film (No. 2211) in as-grown state and after reducing treatment in FeCl_2 solution.

Fig. 2 Growth temperature dependences of Faraday rotation coefficient and figure of merit of $(\text{BiNdLu})_3(\text{FeAlLu})_5\text{O}_{12}$ films at $\lambda=0.80\mu\text{m}$ and $1.15\mu\text{m}$.

Ca^{2+} をドーブした YIG¹⁾ や Bi 置換磁性ガーネット膜²⁾ の光吸収に及ぼす酸化還元処理効果が調べられ、還元処理による吸収の減少が報告されている。これは、 Ca^{2+} ドープにより生じた Fe^{3+} や Pb^{4+} がそれぞれ Fe^{3+} 、 Pb^{2+} に還元されて吸収が減少するものと考えられている。 Ca^{2+} ドープをしていない系において、酸化還元処理が、吸収低減に有効か否かは一概にはいえないが、Fig. 1 の結果は、このような系でも還元処理が有効であることを示す一例であろう。なお、還元剤としてここでは $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{O}$ FeCl_2 が適当であることが分かった³⁾。

Fig. 2 は種々の成長温度で育成した膜のファラデー回転係数及び性能指数を示す。 θ_F は T_g の低下とともに増大しているが、これは、過冷却度 $\Delta T (=T_g - T_g, T_g$ は飽和温度) の増大に伴い Bi 置換量が増えたことによる。一般に、 ΔT の増大によりイオン半径の大きい Bi や Pb の置換量が増すことが知られている。この系においても、分析の結果 T_g が 814°C から 792°C へ変化するに伴い、Bi 量がモル分率で 0.58 から 0.70 へと増すことが分かった。このような ΔT の増加にもかかわらず、この系には吸収の増大は見いだされなかった。このため性能指数は、 ΔT が最も大きい $T_g = 792^\circ\text{C}$ において最大となり、 $\lambda = 1.15 \mu\text{m}$ において約 170 deg/dB、 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ で 10 deg/dB に達した。従来、Bi 置換鉄ガーネットの吸収係数を決める最も重要な因子として Pb の混入量が考えられてきたが、Pb 系融剤を使用した LPE 法によっても性能指数の高い膜が得られることが分かったことは、Pb 量の低減が必須の条件ではないことを意味する⁶⁾。吸収増大は、 Pb^{2+} や Pb^{4+} の電荷を補償するように Fe^{3+} の価数が変化して Fe^{4+} や Fe^{2+} となるために生ずると考えられているが、 Pb^{2+} と Pb^{4+} の多くを自己補償 ($\text{Pb}^{2+}/\text{Pb}^{4+}$) させた状態に保持しながら膜を育成することができるならば、吸収増大を低く抑えることが可能であろう。

この系は、Nd に起因する負の成長誘導磁気異方性の寄与が大きいために面内磁化膜であり、また $4\pi\text{Ms}$ も大きく、飽和磁界 H_s が約 2 kOe と大きい。したがって、この系は導波路型アイソレータの媒体としては優れているが、光が面に垂直入射する厚膜型アイソレータとしては問題があり、垂直磁化膜である BiGdAlIG 厚膜の作成を試みた。

3.2 BiGdAlIG 膜

波長 $0.8 \mu\text{m}$ 帯用のアイソレータの媒体に必要な 45° のファラデー回転角を有し、飽和磁界の小さい BiGdAlIG 厚膜を作成した。膜の育成は $d = 140 \mu\text{m}$ まで試みたが、

膜の表面には厚膜化によるクラックの発生などの損傷は見られず鏡面光沢状態が保持された。また、膜厚方向の断面を EPMA により組成分析した結果、実験誤差内で組成の変動は見いだされなかった。

ファラデー回転や吸収スペクトルの形は、 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ 近傍の Nd^{3+} による小さな吸収ピークがない点を除いて、Fig. 1 と同様であった。

試料 No. 711 の膜は、光アイソレータ用媒体として用いるために $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ におけるファラデー回転角が 45° になるように $90 \mu\text{m}$ の厚みまで研磨した。この膜の磁氣的及び磁気光学的特性を Table 2 に示す。Fig. 3 は $\lambda = 1.8 \mu\text{m}$ における θ_F の磁場依存性を示しており、これより H_s が求まる。磁場による θ_F の見掛けのヒステリシスは印加磁界の残留磁界によるものである。試料 No. 8091 の膜の $4\pi\text{Ms}$ は、No. 711 と比較して Al 量が多く、その飽和磁界の大きさは 285 Oe であった。

Fig. 4 は $\lambda = 1.8 \mu\text{m}$ における θ_F の温度依存性を示

Table 2 Magnetic and magneto-optical properties of BiGdAlIG polished film (No. 711) at $\lambda = 0.78 \mu\text{m}$.

Composition	Bi _{0.77} Gd _{2.20} Pb _{0.03} Fe _{4.96} Al _{0.04} O ₁₂
Film thickness	d 90 μm
Curie temp.	T_C 300 $^\circ\text{C}$
Compensation temp.	T_{comp} -98 $^\circ\text{C}$
Saturation magnetization	$4\pi M_s$ 603 G
Uniaxial magnetic anisotropy const.	K_u 6.3×10^4 erg/cm ³
Saturation field	H_s 480 Oe
Faraday rotation coeff.	θ_F -5020 deg/cm
Absorption loss	α 580 dB/cm
Figure of merit	$ \theta_F /\alpha$ 8.7 deg/dB

Fig. 3 Magnetic field dependence of Faraday rotation angle of $(\text{BiGd})(\text{FeAl})_5\text{O}_{12}$ thick film (No. 711).

Fig. 4 Temperature dependence of Faraday rotation angle of $(\text{BiGd})_3(\text{FeAl})_5\text{O}_{12}$ thick film (No. 711).

Fig. 5 Schematic view of an optical isolator for a wavelength region of $0.8 \mu\text{m}$.

す。希土類サイトを Bi で置換しているために磁気補償温度は GdIG の値より低下し、 $T_{\text{comp}} = -98^\circ\text{C}$ であった。これより室温付近における θ_F の温度係数は、 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ における値に換算して $-0.06 \text{ deg}/^\circ\text{C}$ となることが分かった。この係数は、光アイソレータの用途によっては問題となる大きさであろう。

4. 光アイソレータへの応用

Bi 置換磁性ガーネット厚膜を $0.8 \mu\text{m}$ 帯用光アイソレータの媒体として評価するために素子を試作した。Fig. 5 は光アイソレータの構造を模式的に示す。印加磁界用には $H = 1.6 \text{ kOe}$ の中心磁界をもつ SmCo 永久磁石を利用した。ファラデー素子である厚膜媒体を、偏光方向が互いに 45° の角をなすように配置した二つの偏光ビームスプリッターの間に挿入し密着させ、直線偏光を入射することにより順方向及び逆方向の損失をダブルビーム近赤外分光計により測定した。この結果、BiGdAlIG 膜 (No. 711) の光アイソレーション特性として、 $\lambda = 0.78 \mu\text{m}$ において 6.3 dB の順方向損失 (挿入損失)、24 dB の逆方向損失を得た。順方向損失への寄与は、媒体による吸収損失が 5.2 dB であり、残りは

偏光ビームスプリッターの表面や媒体との界面による反射や散乱による効果と考えられる。逆方向損失については、実験に用いた光源がレーザーではなく分光計の光源のため波長の単色性や偏光特性に問題があり、高い値が得られなかったものと考えられる。

他の媒体の例としては、裏表を合せて約 $40 \mu\text{m}$ の厚みをもつ BiNdLuAlIG 膜を 45° のファラデー回転をもつように 4 枚光学接着し、アイソレーション特性の評価を行ったが、良い結果は得られなかった。これは、界面における反射や散乱による損失が特性に重要な役割を果たすことを意味する。

5. むすび

磁性ガーネット膜を用いた光アイソレータを実現する目的で、高い磁気光学性能指数をもつ Bi 置換鉄ガーネット厚膜の LPE 法による育成法を検討した。性能指数については、吸収損失が必ずしも不純物 Pb の量に依存するのではなく、 Pb^{2+} 及び Pb^{4+} の電荷を自己補償させた状態で成膜できれば、吸収増大を抑制することができること、また、化学的な還元処理が吸収低減に有効であることが分かった。光アイソレータ用媒体としては、この他、垂直磁化を有し飽和磁化が小さいこと、 45° のファラデー回転に必要な厚みをもつことなどが要求されるが、このような媒体として厚膜の育成に成功した。これを用いて $0.8 \mu\text{m}$ 帯用光アイソレータを試作した。実用素子とするには媒体の性能指数の改善により挿入損失を下げる必要があるが、最近、 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ の性能指数が 20 deg/dB を越える LPE 厚膜の作成も報告されているので⁶⁾、挿入損失が 3 dB 程度のアイソレータの実現も間近であろう。

おわりに、有益な議論と協力をいただいた三菱瓦斯化学、武田憲夫氏に感謝する。

文 献

- 1) G. B. Scott and D. F. Lacklison: *IEEE Trans. Mag.* **MAG-12**, 292 (1976).
- 2) 玉城, 対馬: 第 8 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 37 (1984).
- 3) 腰塚, 横山, 安藤, 奥田: 日本応用磁気学会誌 **6**, 139 (1982).
- 4) W. H. de Roode and C. A. P. W. van de Pavert: *J. Appl. Phys.*, **55** (8), 3115 (1984).
- 5) 横山, 村田, 安藤, 奥田, 腰塚: 第 8 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 46 (1984).
- 6) 日比谷, 石川, 太田: 第 8 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 31 (1984).

1984 年 12 月 19 日受理, 1985 年 1 月 16 日採録