

令和元年6月17日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04329

研究課題名(和文) 相分離型マルチフェロイック薄膜の開発と電圧駆動超高速低消費電力光制御デバイス応用

研究課題名(英文) Development of phase separated multiferroic composite film for the voltage driven ultrafast low power consumption light control device

研究代表者

中村 雄一 (Yuichi, Nakamura)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：20345953

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：電圧により超高速・低消費電力で光を制御するデバイスに応用するため、透光性のある磁性ガーネットを磁性相とする相分離型マルチフェロイック薄膜材料の開発を目的として研究を行った。その結果、適切なバッファ層を用いることで、従来は困難であった磁性ガーネットと圧電材料を同一単結晶基板上にエピタキシャル成長できる可能性を見いだした。また要素技術として、このマルチフェロイック複合膜をキャビティとして用いるための全ガーネット単結晶誘電体ミラーの形成にも成功した。これらを組み合わせることで、目的とする光制御デバイスの実現が可能となる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超高速・低消費電力で、液晶ディスプレイのような光を制御するデバイスに応用するため、透光性のある磁性相を圧電対に埋め込んだマルチフェロイック薄膜材料の開発を目的として研究を行った。従来、結晶構造の異なるそれらの材料を同時に形成するのは困難であったが、適切な材料を基板との間に入れることにより、そうした複合材料を形成できる可能性を見いだした。またその複合膜の特性を向上させることのできる、単結晶誘電体ミラーの形成にも成功した。これらを組み合わせることで、目的とする光制御デバイスの実現が可能となる。

研究成果の概要(英文)：In order to realize voltage driven light control devices with ultra-high speed and low power consumption, the development of phase separated multiferroic composite thin film using transparent magnetic garnet as the magnetic phase was carried out. As a result, we found that it is possible to grow epitaxially the magnetic garnet and the piezoelectric material on the same single crystal non-magnetic garnet substrate by using an appropriate buffer layer although it is difficult in usual. We also succeeded in forming an all garnet single crystal dielectric mirror to use this multiferroic composite film as a cavity. By combining these, it is possible to realize the light control device which is a target of the research.

研究分野：電気・電子材料工学、結晶成長

キーワード：マルチフェロイック複合膜

1. 研究開始当初の背景

数 nm から数 100nm のスケールで人為的構造を導入した磁性体(人工磁気格子)は、構造に起因する新規の磁性と機能とを示すことから、これを工学的に利用する研究が重要な技術分野を形成しつつある。我々のグループでは、透明強磁性体にナノスケール構造を導入した磁性フォトニック結晶(MPC)で、巨大な磁気光学 (MO)効果が発現することを見出し、磁性体のスピンの制御可能な新しい光学媒体の実現可能性を示してきた。その応用の 1 つである磁気光学空間光変調器 (MOSLM) は、磁気と光の相互作用である MO 効果を利用したデバイスで機械的な駆動部分が無く、液晶やマイクロミラーデバイスなど他の空間光変調器と比べて、スイッチング速度が 10 ns オーダーと圧倒的に速い動作速度を有し、非常に安定した性能を有することを示した。しかしながら磁化の向きの変調に電流による磁場を用いた場合、1 ピクセル駆動するのに 20mA 程度のパルス電流が必要であり、発熱の問題から 128×128 サイズの素子にとどまった。一方、圧電体と磁性体を積層し、圧電効果を利用し、逆磁歪効果を用いて Bi 置換イットリウム鉄ガーネット (Bi: YIG) 強磁性層の磁化を制御し、低消費電力で SLM を駆動することにも成功したが、本層状構造では PZT の圧電効果で誘起する磁歪効果による制御できる強磁性層の厚さに限界があるため、得られる MO 効果の大きさに限界があった。近年、MIT の Ross らのグループは強誘電体母相中に強磁性体を柱状に埋め込んだマルチフェロイック複合膜において、大きなマルチフェロイック効果が得られ、電圧により強磁性体の磁化が反転できることを示した。そこでこのマルチフェロイック複合膜を MPC と組み合わせることで、超低消費電力で高速駆動できる磁気光学光制御デバイスが実現できると着想した。これを利用するには高い MO 特性を有する磁性体を組み合わせ、新しい光制御用相分離型マルチフェロイック複合膜の開発が必要であった。

2. 研究の目的

1.の背景のもと、本研究においては、低電圧で駆動できる高 MO 特性の相分離型マルチフェロイック複合膜の材料の組み合わせと構造、および MPC + マルチフェロイック複合膜の形成方法を明らかにすることを目的として研究を行った。

3. 研究の方法

まず数値シミュレーションにより、良好なマルチフェロイック特性が期待できる複合膜構造について検討を行った。その結果を踏まえ、フォトリソグラフとエッチングのような従来の半導体プロセスを用いて、強磁性体と強誘電体の複合膜構造を形成し、その特性の評価を試みた。それと並行して、パルスレーザー堆積法(PLD 法)を用いて、透光性强磁性体として Bi 置換希土類鉄ガーネット(Bi:RIG)および強誘電体としてチタン酸バリウム (BaTiO₃ (BTO)) などの複合膜形成方法について検討した。

4. 研究成果

相分離型マルチフェロイック材料の構造設計と作製方法の検討

まず相分離型マルチフェロイック材料の構造と特性の関係を評価するため、強磁性体と強誘電体の形状・大きさ・寸法をパラメータとして有限要素法による電圧印加時の応力解析を行った。その結果、強誘電体マトリクスの内部に埋め込む強磁性体の幅を w 、高さを h としたとき、 $w/h < 1$ のときは、強磁性体/誘電体界面には大きな歪が印加できるものの、界面から離れた中心付近にはほとんど歪がかからないのに対し、 $h/w > 3$ と細長い磁性体形状とすることで、強磁性体内に一樣な応力・歪みが印加できることがわかった。

シミュレーションの結果を踏まえ、フォトリソグラフとエッチングを用いたパターンニングにより作製が比較的容易な w/h が小さな複合膜試料の作製を試み、電圧印加による界面付近の磁化変調が見られないか検討した。この検討では強磁性体として Bi:RIG、強誘電体としてチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)膜の多結晶体を用いた。下部電極として Ti/Pt を形成したチタン酸ストロンチウム(STO)基板上に RF スパッタ法により形成した Bi:RIG 膜を、エッチング法により数ミクロン角のピクセル状に加工し、スパッタ法あるいは MOD 法により PZT 膜を形成した。この複合膜に上部透明電極を成膜した後、電圧を印加し、MO 効果による偏光面の評価を試みた。この MOD 法で PZT を形成した複合膜においても、PZT 単相膜と同様の誘電分極特性が得られることは確認できたが、電圧印加によっても明確な MO 変調は観察できなかった。その原因として、エッチングにより Bi:RIG の側面がシミュレーションのように垂直にできず、傾斜してしまうため、有効に PZT からの歪が印加できなかったものと考えられる。そこでこのような半導体プロセスによる構造では、十分な MO 変調の検証は難しいと判断した。

上記検討と並行して、シミュレーションで有効性が示されたアスペクト比が大きな複合膜を同時成長させるための基礎検討として、PLD 法により、Bi:RIG、BTO、PZT などの成膜条件について検討し、Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG(111)) あるいは SrTiO₃ (STO(100)) 単結晶基板上に配向した膜が得られる条件を検討した。その結果、GGG(111)基板上への BTO、あるいは STO(100)基板

上への Bi:RIG の配向成長は困難であるが、 CoFe_2O_4 (CFO)が GGG(111)および STO(100)のどちらの基板上へも配向して成長することを見いだした。この知見を踏まえ、GGG(111)基板上に CFO をバッファ層として入れることで、ペロブスカイト構造を有する BTO が(111)配向して成長できることを見いだした。更に で検討する酸化物電極 SrRuO_3 (SRO)を導入しても、BTO を二軸配向した配向成長できる技術を確認した。それを踏まえ、複合膜の形成技術を検討した結果、ガーネット柱のサイズ、間隔が数 $10\mu\text{m}$ 以上と広い場合には同時成長は難しいが、そのサイズ・間隔を数 μm オーダー以下に適切に制御し、電子線リソグラフィ技術によりパターン化した CFO/BTO 層を形成することで、Bi:RIG を強磁性相として、BTO などの強誘電体材料と同時に GGG(111)基板上に成長させることで、相分離型マルチフェロイック薄膜材料を形成できる可能性を見いだした。

一方、これらの研究と並行して、より大きな磁気光学効果を示す磁性ガーネット材料についても検討した。従来使用してきた Bi:RIG では MO 効果による偏光面回転角は波長 532nm において $1\mu\text{m}$ あたり約 2deg 程度であったが、Bi の置換量を大きくした Bi, Ga 置換ネオジウム鉄ガーネットで、同じ波長において約 $11\text{deg}/\mu\text{m}$ の回転角を有する角形性が良い膜が得られることがわかった。

磁性フォトリソニック結晶(MPC)構造の形成方法の検討

従来、我々が用いていた MPC では SiO_2 と Ta_2O_5 を誘電体ミラーとして用いていたが、磁性ガーネットの結晶化に必要な温度域で Ta_2O_5 が結晶化して特性が低下する課題があった。その結晶化を抑制するため、 Y_2O_3 を添加した Ta_2O_5 を用いることで、磁性ガーネットの結晶が温度を経験しても良好な特性を有する MPC が得られることがわかった。ただしこの誘電体ミラーはアモルファス膜であり、で見いだした単結晶基板上への配向成長には適用できず、最初に検討した多結晶膜では所望の MO 特性を得るのも困難であることが分かったため、続いてガーネット単結晶誘電体ミラーについて検討した。

GGG 単結晶基板上にエピタキシャル成長させた相分離型マルチフェロイック複合膜を得るため、ガーネット材料を用いた MPC の設計・形成を試みた。今回は MOD 法を用いて、屈折率の異なる 2 種類のガーネット材料を用い、GGG(111)基板上にエピタキシャル成長したガーネット誘電体ミラーが形成できる条件を見いだした。そこで、この全ガーネットの誘電体を用いて磁性フォトリソニック結晶(MPC)の作製と評価を試みた。上下の誘電体ミラーを 3 ペアとして MPC を作製・評価した結果、膜厚ズレなどにより設計値の約 70% 程度の回転角となったものの MPC としての特性は得られた。これより更に材料成膜プロセスを適切に調整した上で、キャビティに の成果を踏まえた複合膜を入れることで、目標とする MPC-マルチフェロイック複合膜が得られると期待できる。

マルチフェロイック複合膜への電極形成技術の検討

マルチフェロイック薄膜複合材料への電極形成技術の検討を進めた結果、ペロブスカイト構造をもつ導電性酸化物である SRO を下部電極として用いることで、GGG 単結晶基板/CFO バッファ層上に下部電極付きの配向した BTO 層を形成する技術を確認した。これを用いて GGG 基板上の(111)配向した BTO の誘電特性を評価した結果、SRO が下部電極として有効であることは確認できたが、得られた分極値は STO 単結晶基板上に成膜した場合に比べて一桁近く小さく、リーク電流も大きかったことから、バッファ層上の BTO の結晶性を改善する必要があることが分かった。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

1. T. Yoshimoto, T. Goto, K. Shimada, B. Iwamoto, Y. Nakamura, H. Uchida, C. A. Ross, M. Inoue, “Static and Dynamic Magnetic Properties of Single-Crystalline Yttrium Iron Garnet Films Epitaxially Grown on Three Garnet Substrates” Adv. Electron. Mater., 4 (2018) 1800106(1-8). 査読あり.
2. T. Yoshimoto, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, H. Uchida, C. A. Ross and M. Inoue, “Thermally stable amorphous tantalum yttrium oxide with low IR absorption for magnetophotonic Devices” Scientific Reports, 7 (2017) 13805(1-9). 査読あり.

[学会発表] (計 8 件)

1. Yuichi Nakamura, Naohide Kamada, Taichi Goto, Hironaga Uchida, Mitsuteru Inoue, “Fabrication and properties of multiferroic composites by PLD for voltage-driven magneto-optic spatial light modulator” Materials Research Society Fall meeting & Exhibition, 2018 年 11 月, Boston (USA).
2. 中村雄一, 鎌田直秀, 後藤太一, 内田裕久, 井上光輝, “光変調を目指したマルチフェロイック複合膜の作製と評価” 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会, 2018 年 7 月, 弘前.
3. 鎌田直秀, 秋山直紀, 中村雄一, 後藤太一, 内田裕久, 井上光輝, “非磁性ガーネット基板上への $\text{BaTiO}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 配向膜の作製と評価” 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会, 2018 年 2 月, 東京.

4. N. Akiyama, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, P. B. Lim, H. Uchida, and M. Inoue, "Fabrication and properties of multiferroic PZT-Bi:RIG composite for voltage-driven magneto-optic spatial light modulator" Materials Research Society Fall meeting & Exhibition, 2017年11月, Boston (USA).
5. 倉橋秀之, 佐々木孝介, 後藤太一, 高木宏幸, 中村雄一, 林 攀梅, 内田裕久, 井上光輝, "有機金属分解法を用いたビスマス高置換ネオジム鉄ガリウムガーネットの形成" 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会, 2017年10月, 長野.
6. 秋山直紀, 後藤太一, 高木宏幸, 中村雄一, 林 攀梅, 内田裕久, 井上光輝, "光変調を目指した PZT-Bi:RIG マルチフェロイック複合膜の作製と評価" 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会, 2017年7月, 北見.
7. A. Elsukova, N. Akiyama, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, H. Uchida, M. Inoue, "Towards fabrication of multiferroic magneto-optic spatial light modulator with magnetostrictive nano-pillars embedded in piezoelectric matrix" 電気学会 マグネティックス研究会, 2016年08月, 豊橋.
8. 吉本拓矢, 後藤太一, 高木宏幸, 中村雄一, 内田裕久, 井上光輝, "セリウム置換イットリウム鉄ガーネットを用いた近赤外波長域用 磁性フォトニック結晶の形成に関する研究" 電子情報通信学会 CPM 研究会, 2016年05月, 浜松.

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称：
 発明者：
 権利者：
 種類：
 番号：
 出願年：
 国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
 発明者：
 権利者：
 種類：
 番号：
 取得年：
 国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.spin.ee.tut.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：後藤 太一
 ローマ字氏名：Taichi Goto
 所属研究機関名：豊橋技術科学大学
 部局名：大学院工学研究科
 職名：助教
 研究者番号(8桁)：00721507

研究分担者氏名：内田 裕久
 ローマ字氏名：Hironaga Uchida
 所属研究機関名：豊橋技術科学大学
 部局名：大学院工学研究科
 職名：教授
 研究者番号(8桁)：30271000

研究分担者氏名：井上 光輝
ローマ字氏名：Mitsuteru Inoue
所属研究機関名：豊橋技術科学大学
部局名：大学院工学研究科
職名：教授
研究者番号(8桁)：90159997

(2)研究協力者

研究協力者氏名：
ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。