

テラヘルツ波分光計測による傾斜格子歪み希土類鉄ガーネット薄膜の誘電分極評価

山原 弘靖¹, 桑野 資基², 川山 巖²

東京大学工学系研究科¹, 大阪大学レーザー科学研究所²

はじめに

希土類鉄ガーネット ($R_3Fe_5O_{12}$; RIG) はフェリ磁性常誘電体であり、ダンピング定数が非常に小さい ($\alpha \sim 10^{-5}$) ため、スピン波 (マグノン) 伝搬材料として注目されている。バルクの結晶構造は立方晶に属するが、SmIG 薄膜 (基板との格子不整合 1.2%、臨界膜厚 60 nm) においては、エピタキシャル歪みと緩和によって、コヒーレントな正方晶、傾斜歪構造 (20 nm 厚)、格子緩和した立方晶の三層が形成されることが原子分解能電子顕微鏡 (STEM) や X 線結晶構造解析 (逆格子マッピング; RSM) により明らかになっている (図 1)。これまでに格子歪みに伴う磁性変化 (磁気異方性制御) は報告されているが [1]、誘電分極についてはガーネット構造の電極材料が存在しない制約により明らかにされていない。空間対称性が破れた傾斜歪構造においては、誘電分極と磁化が共存し、ジャロシンスキー・守谷相互作用による電気磁気相関によってエレクトロマグノンの励起が期待される。本研究では、傾斜歪構造における誘電物性をテラヘルツ波分光計測により明らかにすることを目的とする。

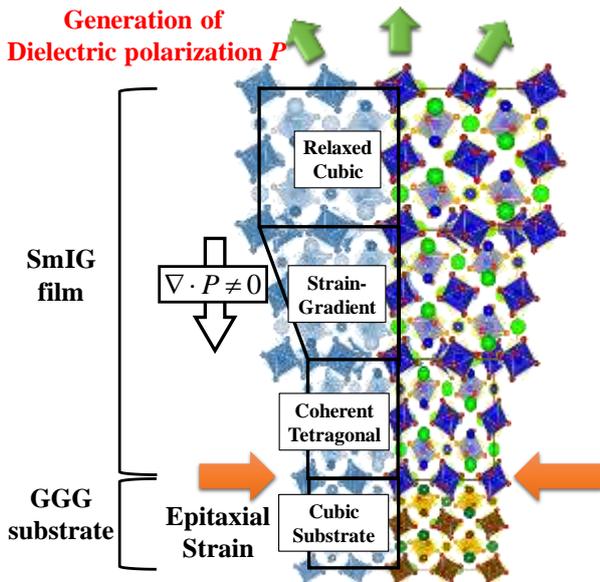


図 1. 傾斜歪み構造の概図

実験

SmIG 薄膜はパルスレーザー堆積法 (PLD 法) により作製した。SmIG は $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG) 基板との格

子ミスマッチが 1.2% あり、転位が発生する臨界膜厚 $t_c = 60$ nm が算出される。本研究では 20 nm ~ 150 nm の厚みの異なる SmIG 薄膜を作製した。SmIG 薄膜の結晶構造は X 線構造解析 (XRD) の逆格子マッピング (RSM) により評価した。その結果、 t_c 以下の膜厚では面内の格子定数が基板と一致し、軸比 $c/a = 1.03$ の正方晶に歪んでおり、一方、膜厚の増加に従い、面内の格子定数が基板と一致せず格子緩和した立方晶 SmIG 薄膜 ($c/a = 1.00$) の回折がみられた。膜厚が 80 nm の試料においては、正方晶と立方晶の SmIG 薄膜が共存し、連続的に格子緩和していることから傾斜歪み構造が存在することを示している。

試料の誘電物性計測にはテラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) と楕型電極によるインピーダンス分光法を用いた。なお、RIG はテラヘルツ帯での吸収が非常に小さく、薄膜の分光測定は高い精度を要する。本研究において薄膜と基板は不可分であり、薄膜の誘電物性を知るためには GGG 単結晶基板のテラヘルツ帯の誘電物性を明らかにする必要がある。そこで、GGG 基板の誘電物性を詳細に調べた結果について報告する。

結果と考察

図 2 に THz-TDS で計測した厚さ 0.5 mm の GGG(001) 単結晶基板の透過率を示す。約 2.5 THz 付近に大きな透過率の減少が見られ、これはフォノンポラリトン分散曲線のギャップに対応するレストストラーレン反射によるものであることが知られている [2]。

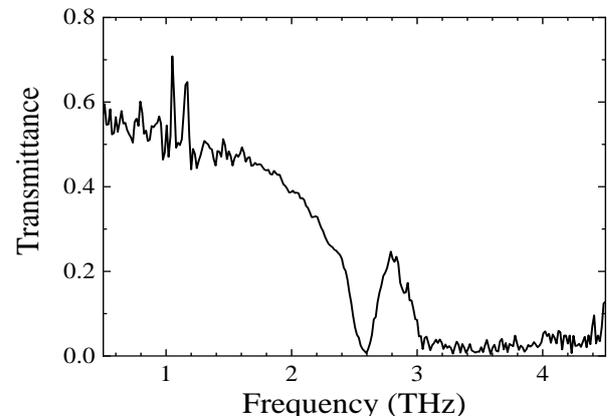


図 2. GGG(001) のテラヘルツ帯の透過率

さらに PLD 法で RIG 薄膜を作製する際には約 800°C に基板を加熱するため、加熱が GGG の誘電物

性に与える影響を検証した。図3に THz-TDS により計測した、加熱なし及び、大気中で 300°Cまたは 800°Cでアニールした GGG(001)の誘電率 ϵ を示す。加熱なしと 300°Cの加熱試料の誘電率はほぼ一致しているが、800°Cの加熱試料では 0.3 ~ 2.5 THz の周波数域で誘電率が 2~4%減少した。従って、テラヘルツ波が GGG 基板を透過する時間が 0.1ps 程度変化するため、GGG 基板上の RIG 薄膜評価の際には GGG 基板の特性変化を考慮しなければならないことが明らかとなっている。

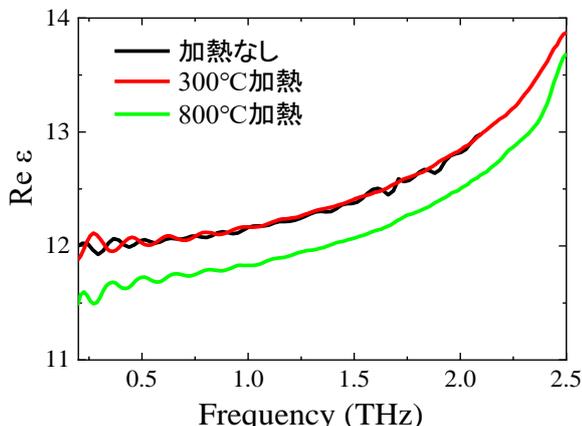


図3. GGG(001)の誘電率 (実部)

次に誘電率の計測は電極幅/間隔が 10 μm /10 μm の Pt 楕形電極をフォトリソグラフィにより SmIG 薄膜上に作製し、[110]方向の静電容量を計測した。図4に誘電率の膜厚依存性を示す。誘電率の計算には Farnell らの方法を用いた[3]。GGG 基板 ($t=0$ nm) において $\epsilon_s = 11.9$ が得られ、先行報告とほぼ一致している[4]。誘電率は t_c 付近で最大値を示しており、転位の存在や格子歪みが誘電率に寄与することを示唆している。

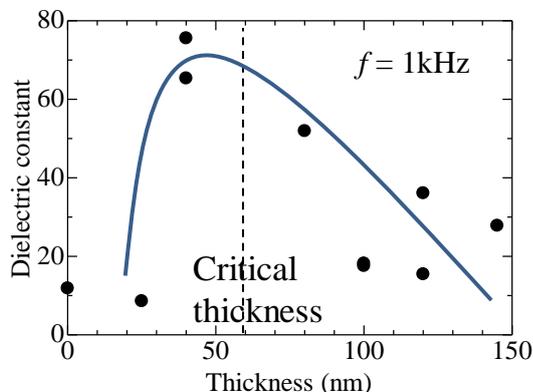
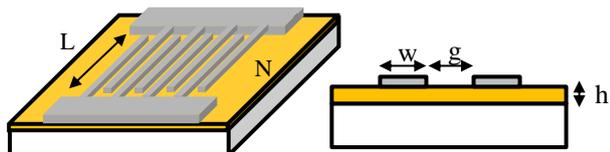


図4. 楕形電極による誘電率測定の概図(上)と SmIG 薄膜の誘電率膜厚依存性 (下)

まとめと今後の展望

フェリ磁性常誘電体 SmIG 薄膜と GGG 基板には 1.2%の格子ミスマッチが存在し、薄膜に圧縮歪みが導入される。格子歪みと緩和が共存する膜厚では、空間対称性が破れた傾斜歪み構造が形成され、Flexoelectricity による誘電分極が存在することが示唆される。今後は THz-TDS を用いた誘電物性評価により、誘電分極と磁化が共存し、ジャロシンスキー・守谷相互作用による電気磁気相関によってエレクトロマグノンの励起が期待される。一方、テラヘルツ帯での吸収が非常に小さい RIG 薄膜の分光測定を実施するにあたっては GGG 基板の誘電物性を把握する必要がある。GGG(001)単結晶基板のテラヘルツ帯の透過スペクトルを詳細に調べた結果、成膜時の基板加熱によって 0.3 ~ 2.5 THz の誘電率が 2~4%減少することが明らかとなっている。従って、SmIG 薄膜の誘電物性を評価する際は GGG 基板の特性変化を考慮する必要があり、測定には課題が残っている。一方、楕形電極によるインピーダンス測定の結果、臨界膜厚付近において誘電率が異常な増加を示しており、転位の存在や格子歪みの結晶学的因子と誘電率の相関が示された。

謝辞

本課題の一部は大阪大学レーザー科学研究所の共同利用実験のもとで実施されました。ここに深く感謝いたします。

REFERENCE(S)

- [1] H. Yamahara et al. J. Magn. Mag. Mat. 323, 3143 (2011).
- [2] M. Adachi et al., Phys. Rev. B, 89, 205124 (2014).
- [3] G. W. Farnell et al. IEEE Trans. Sonics Ultrason., 17 (1970) 188.
- [4] K. Krishna et al. Int. J. Chem Sci. 9 (2011) 239, R. D. Shannon et al. J. Appl. Phys. 67 (1990) 3798.