

有機金属分解法で作製したイットリウム鉄ガーネット薄膜中を伝搬する静磁表面スピン波の伝搬特性

笠原 健司*・中野 貴文・眞砂 卓史

(令和4年4月24日受理)

Propagation properties of MSSWs for the YIG mediums fabricated by a MOD method

Kenji KASAHARA*, Takafumi NAKANO and Takashi MANAGO

(Received April 24th, 2022)

Abstract

We investigated the propagation properties of the magnetostatic surface spin waves (MSSWs) in the epitaxial yttrium-iron garnet (YIG) fabricated by a metal-organic decomposition (MOD) method. Obvious spin wave signals were successfully obtained by an antenna method using a vector network analyzer. The signal peaks shifted higher frequency as the applied magnetic field $\mu_0 H$ increased. The relationships between the resonant frequency and $\mu_0 H$ for the spectra are in good agreement with the dispersion relation for MSSW. From the antenna-distance dependence of the peak-intensity for ΔS_{12} spectrum, the attenuation length λ for the YIG layer was estimated to be $\lambda = 71 \pm 11 \mu\text{m}$, which is 5 times as high as that for permalloy.

Keywords: a metal-organic decomposition method, yttrium-iron garnets, spin waves, spintronics, magnonics

1. はじめに

スピン波とは、磁性体中における磁気モーメントの集成的な歳差運動の波である。スピン波は伝搬の際に荷電粒子の移動を伴わないことから、ジュール熱が発生せず、エネルギーのロスが少ないため、極めて低消費電力な次世代情報伝達および情報処理技術のキャリアとして期待されている。[1-3] 既存の Si 大規模集積回路 (Si-LSI) 技術との整合性の高さから、パーマロイ (Py) といった強磁性金属材料を伝搬媒質として用いた研究が盛んに行われているが、強磁性金属材料はダンピング定数 α が大きいものが多く、スピン波 (SW) の緩和長 λ が短いという欠点がある。[4-6] スピン波の緩和長 λ が長い材料として、磁性絶縁体のイットリウム鉄ガーネット (YIG) が有名である。YIG は、極めて低いダンピング定数 α ($< 10^{-5}$) を持ち、磁気損失が非常に小さいため、Py などと比べて非常に長い緩和長を持つことが知られている。[7] そのため、強磁性共

鳴 (FMR) や SW の実験などでよく用いられており、[1] 最近では、スピンプンピング効果 [8] やスピンゼーベック効果 [9, 10] などを利用したスピン注入源としてもよく利用されている。高品質な YIG 薄膜を成膜する手法として、液相エピタキシャル成長 (LPE) 法、[11, 12] パルスレーザー堆積 (PLD) 法、[13-15] スパッタ法、[16, 17] そして有機金属分解 (MOD) 法などがある。なかでも MOD 法は、有機金属化した材料を有機溶剤に溶かした溶液 (MOD 溶液) を基板にスピンコートし、大気中で熱処理するだけで高品質な YIG が作製できるため、非常に簡便かつ安価な成膜法として注目を集めている。この手法により、ガドリニウムガリウムガーネット (GGG) 基板上に成膜された YIG や Bi 置換 YIG は、多結晶ながらエピタキシャル成長することが知られており、大きな磁気光学特性やバルク材料に匹敵するような静的、動的磁気特性の観測が報告されている。[18-22] また我々のこれまでの研究で、YIG 用の MOD 溶液は、電子線 (EB) に対して感度

1) 福岡大学理学部物理科学科 〒814-0180 福岡県福岡市城南区七隈8-19-1

Department of Applied Physics, Faculty of Science, Fukuoka University, Nanakuma 8-19-1, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180, Japan.

*Corresponding author: K. Kasahara (e-mail: kasaharakenji@fukuoka-u.ac.jp)

を持つことが分かっており、MOD 溶液を EB で露光・現像したのち、大気中で熱処理することで、ドライエッチングを用いずにサブ μm スケールの YIG パターンを形成することに成功している [19, 23] この手法は、煩雑なドライエッチング工程を省くことができるだけでなく、パターニング後に YIG の結晶化を行うことができるため、エッチングにおけるパターンへのダメージを回避できるという利点もある。このように MOD 法は、他の成膜方法と比べて、さまざまな有利な点を有しており、従来の真空蒸着法に代わる新たな YIG の成膜法として期待されている。本研究では、この MOD 法を用いて作製した YIG 薄膜を微細加工し、平面導波路 (CPW) を用いた電気的な手法で、YIG 中を伝搬する SW の特性を調査した。

2. 実験方法

化学洗浄した GGG (111) 基板に、高純度化学研究所製の MOD 溶液 [Y:Fe = 3:5 (mol 比)] を、4000 rpm で 30 秒間スピコートしたのち、ホットプレートで 100°C 、10 分間、大気中でベークし、膜中に含まれる有機溶剤を蒸発させた。有機金属材料の有機基を分解するために、マッフル炉で、 450°C 、30 分間、大気中でベークし、その後、結晶化のために管状炉で、 980°C 、3 時間、大気中でアニールした。MOD 法で作製された YIG 薄膜は多結晶であるもののエピタキシャル成長しており、その膜厚 t_{YIG} は、 $t_{\text{YIG}} \approx 50 \text{ nm}$ となること、これまでの研究でわかっている [22] 成膜した YIG 薄膜をフォトリソグラフィと熱リン酸 ($\sim 180^\circ\text{C}$) を用いたウェットエッチングにより、縦 \times 横が $600 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ の長方形に微細加工したのち、保護層として、厚さが $\sim 80 \text{ nm}$ の SiO_2 層をスパッタ法で成膜した。最後に、スピン波の励起・検出アンテナとして、フォトリソグラフィと抵抗加熱蒸着法を用いて、Cr (5 nm) 層と Au (200 nm) 層からなる一対の CPW を形成した。Figure 1 は、作製した YIG 素子の光学顕微鏡写真の代表例である。白の点線で囲った部分が YIG 導波路である。挿入図の模式図に示すように、本研究ではシグナル (S) - グラウンド (G) 型の CPW を用いた。S と G の幅はそれぞれ、4 と $12 \mu\text{m}$ であり、S-G 間のギャップは $4 \mu\text{m}$ とした。励起および検出アンテナ間の距離 W_a は、お互いの S の中心間距離で $W_a = 14 \sim 104 \mu\text{m}$ とした。この素子を用いて、ベクトルネットワークアナライザ (VNA) と磁場可変高周波プローバーにより、YIG 導波路を伝搬するスピン波の測定を行った。Figure 1 中の下側および上側の CPW を VNA の port 1 および 2 にそれぞれ接続し、右方向 (+y 方向) に静磁場 $\mu_0 H = 100 \sim 300 \text{ mT}$

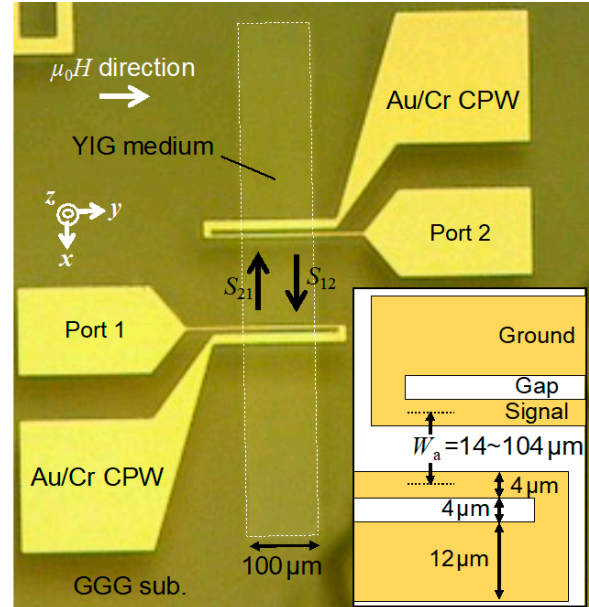


Fig. 1 Microscopic image of a typical sample fabricated from the YIG film. The inset shows a schematic illustration of a pair of coplanar waveguides.

を印加した。このアンテナ配置において、スピン波の伝搬方向は $\pm x$ 方向であり、静磁場の印加方向 (+y 方向) と垂直であるため、スピン波のモードは静磁表面スピン波 (MSSW) モードとなる。本実験では、透過信号である S_{12} および S_{21} パラメータの周波数スペクトルを周波数 $f = 3.0 \sim 12 \text{ GHz}$ の範囲で測定し、バックグラウンド信号としてあらかじめ測定していた $\mu_0 H = 10 \text{ mT}$ のスペクトルを差し引いて得られる ΔS_{12} および ΔS_{21} スペクトルを MSSW の信号とした。ここで、 ΔS_{12} および ΔS_{21} スペクトルはそれぞれ、+x 方向 (port 2 \rightarrow port 1) および -x 方向 (port 1 \rightarrow port 2) に伝搬するスピン波のスペクトルを表している。

3. 結果と考察

Figure 2 (a) は、 $W_a = 14 \mu\text{m}$ の試料における ΔS_{12} スペクトルの印加磁場依存性である。どの $\mu_0 H$ においても明瞭なピークが観測されており、 $\mu_0 H$ の増大とともにピークが高周波側にシフトしていることがわかる。MSSW の共鳴周波数は、印加磁場の増大とともに単調に増加することが知られており [5] この結果はその特徴と一致している。次に ΔS_{21} スペクトルは、Fig. 2 (b) に示すように、ピークが観測できるものの、そのピーク強度は ΔS_{12} スペクトルに比べて明らかに小さくなっていることがわかる。アンテナ法により励起された MSSW は、磁化の向き (磁化が飽和していれば印加磁場の方向と同じ) と MSSW 伝搬方向の関係に対して、ピーク強度について非相反性を持つこ

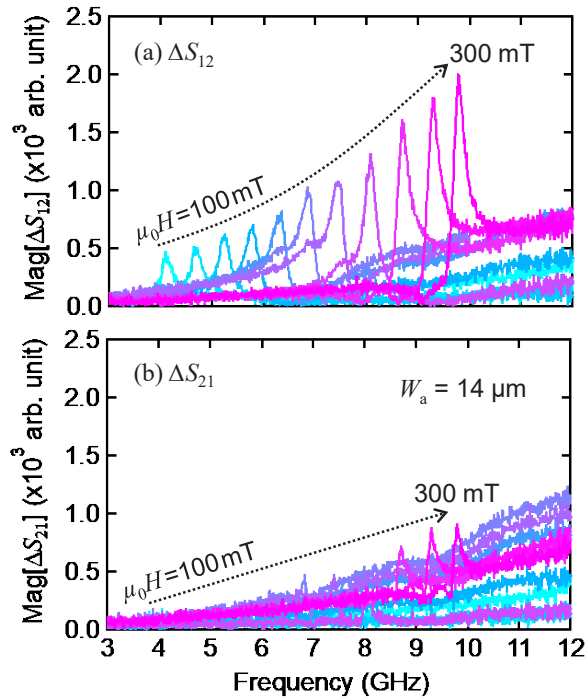


Fig. 2 (a) ΔS_{12} and (b) ΔS_{21} spectra for the sample with $W_a = 14 \mu\text{m}$. The $\mu_0 H$ was applied from 100 to 300 mT.

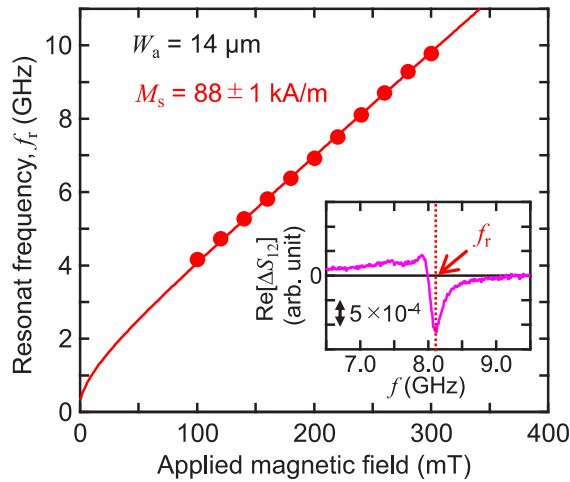


Fig. 3 Magnetic field dependence of resonant frequency. The inset is representative $\text{Re}[\Delta S_{12}]$ spectrum for $W_a = 14 \mu\text{m}$ under $\mu_0 H = 240 \text{ mT}$.

とが知られている.[24, 25] この ΔS_{12} と ΔS_{21} スペクトルにおける強度差は、MSSW の特徴のひとつである非相反性が観測されているものと考えられる。次に、Fig. 3 の挿入図に示すように、 $W_a = 14 \mu\text{m}$ の試料における ΔS_{21} の実数成分 $\text{Re}[\Delta S_{21}]$ のピーク位置から共鳴周波数 f_r を見積もり、その値を $\mu_0 H$ でまとめた (Fig. 3)。共鳴周波数 f_r は、 $\mu_0 H$ の増大とともに単調に増加していることがわかる。MSSW モードにおける f_r と $\mu_0 H$ の関係は、以下の式 (1) で表される.[5]

$$f_r = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{\mu_0 H (\mu_0 H + \mu_0 M_s) + \left(\frac{\mu_0 M_s}{2}\right)^2 (1 - e^{-2kt_{\text{YIG}}})} \quad (1)$$

ここで、 γ は磁気回転比で、YIG では $\gamma/2\pi = 28 \text{ GHz/T}$ である。 M_s は YIG の飽和磁化、 k は MSSW の波数である。 k の値は、 $k = n\pi/W_a$ ($n = 1, 2, 3, \dots$) で決まるため、本実験では、 $n = 1$ のときの $k \approx 0.223 \text{ (rad}/\mu\text{m)}$ を用いて、 f_r の $\mu_0 H$ 依存性を式 (1) でフィッティングした。(Fig. 3 中の赤実線) フィッティング結果は、実験結果とよく一致しており、この結果は本実験により得られた信号が MSSW 由来の信号であることを強く示唆する結果である。フィッティングにより見積もられた飽和磁化 M_s の値は、 $M_s = 88 \pm 1 \text{ kA/m}$ であり、バルク YIG の M_s より低いもの ($\sim 140 \text{ kA/m}$)、MOD 法で作製された YIG 薄膜の M_s とは同程度の値が得られた.[19] M_s がバルク YIG よりも低い理由として、現在、YIG の酸化不足が原因であると考えており、今後は結晶化アニールの際に酸素を導入することを検討している.[13, 14]

最後に、 $\mu_0 H = 300 \text{ mT}$ における ΔS_{12} スペクトルのアンテナ間距離 W_a 依存性を示す。(Fig. 4) ΔS_{12} スペクトルのピーク強度 I は、 W_a の増加とともに単調に減少していることがわかる。MSSW の強度は、距離に対して指数関数的に減少することが知られており、ピーク強度 I とアンテナ間距離 W_a の関係は次式で与えられる.[6, 26]

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{W_a}{\lambda}\right) \quad (2)$$

ここで、 I_0 は $y = 0$ のときの MSSW の強度である。 λ は MSSW の緩和長である。各 W_a においてピーク強度 I を見積もり、 I の常用対数 $\text{Log } I$ を W_a でまとめたグラフを Fig. 4 の挿入図に示す。式 (2) を用いてフィッティングを行なった結果が赤実線である。フィッティング結果は、実験結果とおおむね一致しており、得られた緩和長 λ の値は $\lambda = 71 \pm 11 \mu\text{m}$ と、強磁性金属材料として有名なパーマロイの緩和長より約 5 倍も大きいことが確認された。この YIG 薄膜を用いることで、アンテナ間距離を大きく取ることができ、デバイス構造の自由度が大幅に増すため、マグノニック結晶や SW ロジックデバイスといった非常に複雑な構造を持つ SW デバイスの形成が容易になる。今後は、MOD 法における YIG の成膜条件や微細加工の条件を最適化させることで、YIG 微細パターンの特性を向上させるとともに、マグノニック結晶や SW ロジック回路の試作・動作実証を試みる予定である。

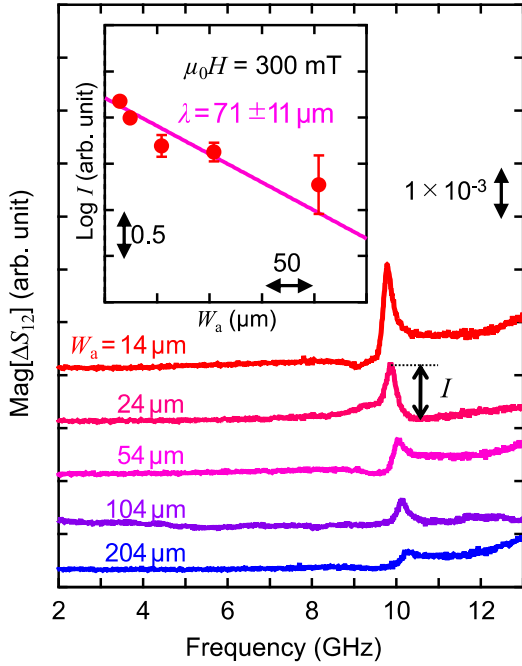


Fig. 4 ΔS_{12} spectra for various W_a under $\mu_0 H = 300$ mT. The inset shows the W_a dependence of the peak intensity of the $\text{Mag}[\Delta S_{21}]$. The solid line in the inset is the fitted line.

4. まとめ

本研究では、MOD法で作製したエピタキシャルYIG薄膜をフォトリソグラフィとウエットエッチングにより微細加工し、平面導波路(CPW)を用いた電気的手法によりYIGパターン中を伝搬する静磁表面スピン波(MSSW)の観測を試みた。磁場可変高周波プローブとベクトルネットワークアナライザを用いて、 S_{12} と S_{21} スペクトルの印加磁場 $\mu_0 H$ 依存性を測定し、 $\mu_0 H$ の増大に伴う ΔS_{12} および ΔS_{21} ピークの高周波シフトや強度の非相反性を観測した。さらに ΔS_{12} スペクトルの $\mu_0 H$ 依存性から得られた共鳴周波数 f_r と $\mu_0 H$ の関係が、MSSWの分散関係の式を用いたフィッティング結果と良い一致を示したことから、本実験で得られた ΔS_{12} 信号はMSSWの信号であると結論づけた。 ΔS_{12} のピーク強度のアンテナ間距離 W_a 依存性から緩和長 λ を見積もったところ、 $\lambda = 71 \pm 11 \mu\text{m}$ という値が得られた。これは、強磁性金属材料として有名なパーマロイの緩和長よりも約5倍大きく、このYIG薄膜を用いることでデバイス設計の自由度が大幅に増すため、より高性能なスピン波デバイスの創成が期待できる。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 22K04208 および 22K04191 の助成を受けたものである。本研究の一部は、福岡大学研究推進部の研究経費によるものである。(課題番号: GW2201, 207102, および 205003)

参考文献

- [1] A. A. Serga, A. V. Chumak, B. Hillebrands, *J. Phys. D* **43**, 264002 (2010).
- [2] A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, B. Hillebrands, *Nat. Phys.* **11**, 454 (2015).
- [3] A. Mohmoud, F. Ciubotaru, F. Vanderveken, A. V. Chumak, S. Hamdioui, C. Adelmann, S. Cotofana, *J. Appl. Phys.* **128**, 161101 (2020).
- [4] K. Sekiguchi, K. Yamada, S. M. Seo, K. J. Lee, D. Chiba, K. Kobayashi, T. Ono, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 022508 (2010).
- [5] K. Yamanoi, S. Yakata, T. Kimura, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 083001 (2013).
- [6] M. Ota, K. Yamanoi, S. Kasai, S. Mitani, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 113001 (2015).
- [7] M. Sparks, *Ferromagnetic-Relaxation Theory* (McGraw Hill, New York, 1964).
- [8] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, E. Saitoh, *Nature* **464**, 262 (2010).
- [9] K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 172505 (2010).
- [10] A. Kiriwara, K. Uchida, Y. Kajiwara, M. Ishida, Y. Nakamura, T. Manako, E. Saitoh, S. Yorozu, *Nature Mater.* **11**, 868 (2012).
- [11] P. Pirro, T. Brächer, A. V. Chumak, B. Lägél, C. Dubs, O. Surzhenko, P. Görnert, B. Leven, B. Hillebrands, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 012402 (2014).
- [12] C. Dubs, O. Surzhenko, R. Linke, A. Danilewsky, U. Brückner, J. Dellith, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 204005 (2017).
- [13] Y. Krockenberger, H. Matsui, T. Hasegawa, M. Kawasaki, Y. Tokura, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 092505 (2008).
- [14] B. M. Howe, S. Emori, H.-M. Jeon, T. M. Oxholm, J. G. Jones, K. Mahalingam, Y. Zhuang, N. X. Sun, G. J. Brown, *IEEE Magn. Lett.* **6**, 3500504 (2015).
- [15] T. Goto, T. Yoshimoto, B. Iwamoto, K. Shimada, C. A.

- Ross, K. Sekiguchi, A. B. Granovsky, Y. Nakamura, H. Uchida, M. Inoue, *Sic. Rep.* **9**, 16472 (2019).
- [16] J. Lustikova, Y. Shiomi, Z. Qiu, T. Kikkawa, R. Iguchi, K. Uchida, E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 153902 (2014).
- [17] J. Ding, T. Liu, H. Chang, M. Wu, *IEEE Magn. Lett.* **11**, 5502305 (2020).
- [18] T. Ishibashi, T. Yoshida, T. Kobayashi, S. Ikehara, T. Nishi, *J. Appl. Phys.* **113**, 17A926 (2013).
- [19] K. Kasahara, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 110303 (2017).
- [20] V. Dongquoc, R. Kuchi, P. C. Van, S.-G. Yoon, J.-R. Jeong, *Curr. Appl. Phys.* **18**, 241 (2018).
- [21] S.-F. Wang, K. Chorazewicz, S. Lamichhane, R. A. Parrott, S. Cabrini, P. Fischer, N. Kent, J. H. Turner, T. Ishibashi, Z. P. Frohock, J. J. Wisser, P. Li, R. Zielinski, B. Herrington, Y. Suzuki, M. Wu, K. Munechika, C. Pina-Hernandez, R. Streubel, A. A. Sweet, *Appl. Phys. Lett.* **119**, 172405 (2021).
- [22] K. Kasahara, S. Sueda, T. Manago, *AIP Advances* **12**, 015204 (2022).
- [23] K. Kasahara, S. Wang, T. Ishibashi, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, 060906 (2019).
- [24] M. Nakayama, K. Yamanoi, S. Kasai, S. Mitani, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 083002 (2015).
- [25] K. Kasahara, M. Nakayama, X. Ya, K. Matsuyama, T. Manago, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 010309 (2017).
- [26] T. Manago, M. M. Aziz, F. Ogrin, K. Kasahara, *J. Appl. Phys.* **126**, 043904 (2019).