

بیست و یکمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران و هفتمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران ۲۳ تا ۲۵ دی ماه ۱۳۹۳، دانشگاه شهید بهشتی



# ساخت و مشخصهیابی لایههای نازک گارنت مغناطیسی Bi,Al:YIG آماده شده با روش سل-ژل

زهرا حدادنژاد، مجيد قناعتشعار

آزمایشگاه نانومغناطیس و نیمرساناهای مغناطیسی، پژوهشکده لیزر و پلاسما، دانشگاه شهید بهشتی، اوین، تهران

چکیده – لایههای نازک (Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5-y</sub>Al<sub>y</sub>O<sub>12</sub>) Bi,Al:YIG (Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5-y</sub>Al<sub>y</sub>O<sub>12</sub>) چکیده – لایههای نازک (Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5-y</sub>Al<sub>y</sub>O<sub>12</sub>) با روش سل-ژل ساخته شده و با روش چرخشی لایهنشانی می شوند. سپس با عملیات حرارتی، فاز گارنت مغناطیسی در دمای <sup>2</sup> ۷۰۰ بدست می آید. چرخش فاراده و مغناطش اشباع نمونهها به میزان آلاییدگی Bi Al وابسته است. به گونهای که با افزایش Bi و کاهش Al، مغناطش اشباع نمونهها افزایش می یابد. همچنین آلاییدگی Al در ساختار سبب تغییر جهت ممانهای مغناطیسی بسوی عمود بر صفحه می شود، در حالی که در گارنت مغناطیسی بدون حضور Al مغناطش اشباع در جهت موازی با صفحه است. بهترین پاسخ نوری و مغناطیسی برای x = ۲ و ۲/۴ و بدست می آید.

كليد واژه- چرخش فاراده، سل-ژل، گارنت مغناطيسي، لايه نازك، لايهنشاني چرخشي.

## Production and characterization of Bi,Al:YIG magnetic garnet thin films prepared by sol-gel method

Zahra Haddadnezhad, Majid Ghanaatshoar

Laser and plasma research institute, Shahid Beheshtin University, G.C., Evin, 1983969411, Tehran, Iran

Abstract- Substituted yttrium iron garnet (Bi,Al:YIG,  $Bi_xY_{3-x}Fe_{5-y}Al_yO_{12}$ ) thin films were prepared by sol-gel method and deposited by spin coating technique. Then, magnetic garnet phase was achieved by thermal annealing at temperature 700°C. The Faraday rotation and the saturation magnetization depend on the doping level of Bi and Al. It is shown that by increasing Bi and decreasing Al, the saturation magnetization of the samples increases. On the other hand, with increasing Al content in the structure, magnetic moments preferentially oriented in the perpendicular to the film plane, while in the absence of Al, saturation magnetization of the magnetic garnet is directed parallel to the plane. The best optical and magnetic responses have been achieved for x=2 and y=0.4.

Keywords: faraday rotation, magnetic garnet, sol-gel, spin coating deposition, thin films.

#### ۱– مقدمه

گارنت مغناطیسی YIG به عنوان ماده فریت نرم، کاربردهای گستردهای در وسایل میکروموجی همانند یکسوسازها، چرخانندههای فاراده و گردانندهها دارد [۱].  $\{R_3\}$ [Fe<sub>2</sub>](Fe<sub>3</sub>)O<sub>12</sub> یه شکل Fe<sub>2</sub>](Fe<sub>3</sub>)O<sub>12</sub>] اینتها با فرمول شیمیایی به شکل Fe<sub>2</sub>)(Fe<sub>3</sub>)[9] [7]. نمایش داده میشوند که  $\{\}$ ، [] و () به ترتیب بیانگر مکانهای دودکاهدرال (24c)، اوکتاهدرال (161) و مغناطیسی، ناشی از یونهای آهن در مکان تتراهدرال مغناطیسی، ناشی از یونهای آهن در مکان تراهدرال غیرهم جهت با سه یون <sup>E+</sup>Fe در مکان b هستند. بنابراین مغناطش اشباع خالص YIG توسط یون مغناطیسی در <sup>A</sup>ا به مغناطش اشباع خالص YIG توسط یون مغناطیسی در AI به معناطش اشباع خالص YIG توسط یون مغناطیسی در AI به مینوان یون غیرمغناطیسی در مکان b تتراهدرال آهن در مکان b بدست میآید [۲]. جانشینی یون <sup>E+</sup>A به

در سال ۱۹۷۵ ویته کوک و همکارانش [۴] گزارش دادند که جانشینی یونهای <sup>4:4</sup> با یون <sup>۲+</sup>۲ در مکان دودکاهدرال ساختار گارنت، سبب افزایش قابل توجهی در چرخش فاراده میشود. مکانیزم افزایش چرخش فاراده با افزایش یون بیسموت بدین صورت است که اوربیتال 6P افزایش یون بیسموت با اوربیتال 2P یون اکسیژن، تشکیل اوربیتال مولکولی داده که سبب شکل گرفتن برهم کنش اسپین-مدار بزرگ و در نتیجه بهبود چرخش فاراده می-شود [۵].

از میان روشهای گوناگون در ساخت لایه نازک گارنت، میتوان به روش لایهنشانی پالس لیزری (PLD)، کندوپاش رادیویی، کندوپاش باریکه یونی، روشهای همبافته<sup>۲</sup> و روش شیمیایی سل-ژل اشاره کرد. روش شیمیایی سل-ژل، مزایای قابل توجهی همانند ترکیب بهتر مواد شیمیایی اولیه، ایجاد همگنی شیمیایی خوب در انتهای کار و همچنین دمای تبلور پایینتر نسبت به روشهای دیگر (C<sup>o</sup>۰۰۰۲-۰۰۰) را به همراه دارد [۶]. با اینکه افزایش یون بیسموت در گارنت مغناطیسی آهن سبب بهبود خاصیت مگنتواپتیکی در نمونههای لایه نازک میشود، اما مقدار بیش از حد آلاییدگی بیسموت در

کارنت مغناطیسی آهن به روش سل-ژل، به علت بزرگ

بودن شعاع یونی آن نسبت به یتریوم سبب تغییر در ساختار و از بین رفتن فاز اصلی نمونه خواهد شد. به گونهای که بیشترین میزان آلاییدگی بیسموت در نمونه لايه نازک گارنت مغناطيسي Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> به روش سل-ژل، تا x=۲ است. البته با آلاییدگی یونهایی با شعاع یونی کوچکتر، میتوان آلاییدگی یون بیسموت را بیش از پیش افزایش داد. بنابراین در این مقاله در ابتدا لایههای نازک Bi<sub>1.5</sub>Y<sub>1.5</sub>Fe<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub>O<sub>12</sub> و Bi<sub>1.5</sub>Y<sub>1.5</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> با روش سل-ژل ساخته میشوند و اثرات مگنتواپتیکی آنها مورد مطالعه قرار می گیرند. در ادامه لایه نازک Bi<sub>2</sub>Y<sub>1</sub>Fe<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub>O<sub>12</sub> با افزایش میزان بیسموت برای افزایش اثرات مغناطیسی، مورد مطالعه و مقایسه با دو لایه نازک قبلی قرار می گیرد. با توجه به توضیحات ارائه شده، انتخاب چنین درصد آلاییدگی گارنت مغناطیسی آهن، با توجه به کوچک بودن شعاع يوني آلومينيوم نسبت به آهن، سبب سهولت بیشتری در شکلگیری ساختار گارنت تک فاز میشود.

#### ۲- بخش تجربی

پیشمادههای مورد استفاده شامل نمکهای نیترات يتريوم ۶-آبه، آهن ۹-آبه، بيسموت ۵-آبه و آلومينيوم ۹-آبه هستند که با نسبت استوکیومتری مناسب برای تهیه  $y=\bullet/\%$  ,  $x=1/\Delta$  -y=•,  $x=1/\Delta$ )  $Bi_xY_{3-x}Fe_{5-y}Al_yO_{12}$  محلول -y=۰/۴ ،x=۲) در حلال اتیلن گلیکول حل می شوند. پس از حل شدن مواد اولیه در حلال، محلول بدست آمده به مدت ۴۵ دقیقه در دمای C°۷۰ همزده می شود. محلول شفاف و همگن بدست آمده پس از پایدار شدن، با روش لایهنشانی چرخشی با ۳۵۰۰ دور بر دقیقه و زمان ۲ دقیقه روی زیرلایه کوارتز لایهنشانی میشود. خشکسازی نمونهها با توجه به نتایج آنالیز TGA-DTA [۷]، در دمای ۴۰۰°C به مدت ۱۰ دقیقه انجام می شود. برای افزایش ضخامت لايههاي نازك ميتوان عمليات لايهنشاني و خشکسازی را چندین بار انجام داد. در انتها برای ایجاد فاز بلوری گارنت، هر سه نمونه در کوره هوا تحت دمای ۷۰۰°C به مدت ۱ ساعت قرار می گیرند.

برای بررسی خواص نوری و تعیین پارامترهای نوری نمونهها از طیفسنجی ماوراءبنفش-مرئی-مادون قرمز نزدیک (۱۱۰۰m-۱۶۷) استفاده شده و جهت بررسی خواص مگنتو-اپتیکی نمونهها از چیدمان فاراده نوری بهره

Circulator '

Epitaxy <sup>r</sup>

گرفته شده است.

۳- نتايج

آنالیز XRD گرفته شده از نمونه  $Bi_{1.5}Y_{1.5}Fe_5O_{12}$  در کارهای صورت گرفته در گذشته نشان می دهد که در دمای  $^\circ$  ۲۰۰ فاز خالص گارنت مغناطیسی آهن شکل می گیرد [۸]. از طرفی اضافه شدن Al در ساختار گارنت مغناطیسی سبب کاهش دمای باز پخت می شود، به طوری که فاز YAG در دمای  $^\circ$  ۴۵۰ شکل می گیرد [۹]. این در که فاز AG در دمای  $^\circ$  ۴۵۰ شکل می گیرد [۹]. این در حالی است که نمونه لایه ناز ک YIG بدون آلاییدگی Bi و Al با روش سل-ژل برای بلوری شدن، نیاز به دمای C  $^\circ$  ۲۰۰۰ - ۱۰۰۰ دارد [۱۰]. بنابراین به علت آلاییدگی کم یون  $^{+1}$ A در ساختار گارنت، می توان تشکیل فاز یون  $^{+1}$ A در ساختار گارنت، می توان تشکیل فاز همچنین چون با افزایش میزان بیسموت در مکان

همچنین چون با افزایش میزان بیسموت در مکان دودکاهدرال دمای بازپخت نمونه کاهش مییابد، بنابراین انتظار میرود که دمای بازپخت C°۷۰۰ برای شکل گیری فاز نمونه Bi<sub>2</sub>Y<sub>1</sub>Fe<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub>O<sub>12</sub> مناسب باشد.

### ۳-۱- ویژگیهای نوری

به کمک طیفسنجی مادون قرمز نزدیک-مرئی-ماوراء بنفش در بازه طول موجی ۱۹۰۰۱–۱۶۷ منحنی عبور سه نمونه لایهنازک بر حسب طول موج رسم میشود. بر اساس طیف عبوری نمونه و با بکارگیری روابط مقدماتی نورشناخت حاکم بر مواد شفاف و لایههای نازک [۱۱]، ثابت نوری ضریبشکست و ضخامت از رابطه زیر بدست میآید:

$$n = [N + (N^2 - n_s^2)^{\frac{1}{2}}]^{\frac{1}{2}} , \qquad (1)$$

که در آن n<sub>s</sub> ضریب شکست زیرلایه (۱/۵۴) است و N از رابطه زیر بدست میآید:

$$N = 2n_s \frac{T_M - T_m}{T_M T_m} + \frac{n_s^2 + 1}{2} \,. \tag{(Y)}$$

T<sub>M</sub> و T<sub>m</sub> به ترتیب پوش بیشینه و کمینه طیف عبوری در طول موج مشخص است. ضخامت و ضریب جذب از روابط زیر بدست میآیند:

$$d = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{2(\lambda_1 n_2 - \lambda_2 n_1)} \,. \tag{(7)}$$

λ<sub>i</sub> طول موج مربوط به نقطه پوش بیشینه یا کمینه است. برای تعیین ضریب جذب از قانون بیر لامبرت مطابق



شکل ۱: طیف عبوری بدست آمده از نمونههای لایه نازک.

رابطه زیر استفاده می شود:  
$$\alpha = \frac{1}{d} Ln(\frac{100}{T})$$
 (۴)

همچنین، با توجه به شکل ۱، سه نمونه عبور بالای ۶۰٪ در ناحیه مرئی و مادون قرمز دارند. با استفاده از روابط ۱– ۴ ضخامت میانگین لایههای نازک برای ۴ بار لایهنشانی، ۳ متا ۴۷۲ مست میآید. ضریب شکست لایههای نازک ۱۳ می اید ۱/۵ بدست میآید. ضریب شکست لایههای نازک ۹ مقدار ۲/۲۸۳ برای ۱/۵ برای ۹/۰= و ۴/۰۶ بدست مقدار ۲/۲۸۳ و برای ۲ = x و ۴/۰۹ برای ۱/۵ بدست میآید. کمترین ضریب جذب در طول موج ۳۳ ۳۳ می ۱۹ برای لایه نازک ۱/۴۹ ماره با ۱/۶۹ برابر با ۱/۶۹ م

۲-۳- ویژگیهای مغناطیسی

برای اندازه گیری چرخش فاراده مگنتواپتیکی از روش مناطیس سنجی نوری استفاده شده است. این روش برای لایه های نازک و شفاف که عبور مناسبی را از خود نشان می دهند، مناسب است. در این پیکربندی، نور همدوس لیزر عمود بر سطح نمونه و موازی با جهت میدان مغناطیسی اعمالی، تابانیده می شود. به کمک منحنی پسماند بدست آمده از نمونه های لایه نازک می توان میزان سیگنال فاراده، نیروی وادارندگی (H<sub>s</sub>) و میدان اشباع (H<sub>s</sub>) را محاسبه کرد.

شکل ۲ پسماندهای مغناطیسی گرفته شده از نمونههای Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5-y</sub>Al<sub>y</sub>O<sub>12</sub> با ناخالصیهای مختلف که در دمای ۷۰۰°C پخت شدهاند را نشان میدهد. پسماندهای مغناطیسی بدست آمده، نشان میدهند که افزایش آلاییدگی <sup>1+1</sup> در مکان تتراهدرال آهن، سبب تغییر جهت ترجیحی ممانهای مغناطیسی به سوی عمود بر

صفحه می شود. این در حالی است که در گارنت مغناطیسی بدون آلاییدگی Al بردار میانگین مغناطش تمایل بیشتری در جهت گیری بسوی صفحه ی لایه نازک دارد.

علت تغییر جهت مغناطش در جهت عمود بر صفحه با افزایش AI، افزایش انرژی مگنتوالاستیک است [۹]. بدین صورت که با ورود یون  $^{A1+A}$  در مکان تتراهدرال یون Fe<sup>+3</sup>، به علت اختلاف در شعاع یونی  $^{A1+A}$  ( $^{A1A^{+3}}$ ) در شبکه گارنت مدر مقایسه با یون  $^{Fe^{+3}}$  ( $^{A-2}/9$ ) در شبکه گارنت مغناطیسی، اعوجاجی در شبکه ایجاد میشود. این اعوجاج در شبکه سبب بروز تمایل مغناطش به قرارگیری در جهت عمود بر صفحه بلور میشود. بنابراین افزایش AI در مکان تتراهدرال آهن سبب کاهش یافتن ثابت شبکه گارنت و در نتیجه رشد ناهمسانگردی در جهت عمود بر صفحه میشود.

همچنین افزایش <sup>Hi+3</sup>، علاوه بر افزایش مغناطش اشباع، سبب انحراف جهتگیری مغناطش از جهت عمود بر صفحه میشود. علتی که میتوان برای این مورد بیان کرد بدین صورت است که با افزایش ناخالصی Hi<sup>+3</sup> در مکان دودکاهدرال +Y<sup>+3</sup>، به علت بیشتر بودن شعاع یونی Bi<sup>+3</sup> (a=1/۰۳A<sup>9</sup>) در مقایسه با Y<sup>+3</sup> (a=1/۰۳A<sup>9</sup>)، اعوجاج شبکه در جهت عکس در مقایسه با گارنت مغناطیسی با حضور آلومینیوم اتفاق میافتد. بنابراین افزایش یون بیسموت سبب تغییر جهت ممانهای مغناطیسی به سوی موازی با صفحه می شود.

بیشینه چرخش فاراده (θ<sub>f</sub>) برای لایه نازک Bi<sub>2</sub>Y<sub>1</sub>Fe<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub>O<sub>12</sub> و در طول موج ۶۳۳nm، برابر ۳ درجه به ازای ضخامت یک میکرومتر است. بنابراین رقم شایستگی که نسبت چرخش فاراده به ازای ضخامت یک



میکرومتر تقسیم بر ضریب جذب نمونه در طول موج ۶۳۳

نانومتر است (
$$rac{ heta_f}{lpha}$$
)، مقدار ۶/۵ درجه بدست میآید.

۴- نتیجهگیری

در این مقاله ساخت لایه نازک گارنت مغناطیسی با آلاییدگی مختلف Bi و AI (Bi<sub>x</sub>Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5-y</sub>Al<sub>y</sub>O<sub>12</sub>) با روش سل-ژل مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که همه نمونهها تراگسیل بالا در ناحیه مرئی و مادون قرمز دارند. ورود AI در ساختار گارنت سبب جهتگیری ممانهای مغناطیسی در جهت عمود بر صفحه میشود. بهترین پاسخ نوری و مغناطیسی در طول موج ۶۳۳ نانومتر برای لایه نازک Bi<sub>2</sub>Y<sub>1</sub>Fe<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub>O<sub>12</sub> بدست آمد. بهبود اثر مگنتواپتیکی حاصل شده سبب میشود این ماده برای

مراجع

- Kum J.S., Kim S.J., Magnetic properties of Ce-substituted yttrium iron garnet ferrite powders fabricated using a solgel method, J. Magn. Magn. Mater. 272–276 (2004) 2227–2229.
- [2] Xu H., Yang H., Effect of Chromium on Magnetic Properties of Y<sub>2.9</sub>Ce<sub>0.1</sub>Fe<sub>5-x</sub>Cr<sub>x</sub>O<sub>12</sub> Nanoparticles, Materials and Manufacturing Processes. 23 (2008) 10-13
- [3] Tsuchiya T., Sei T., Kanda H., Preparation of bismuthsubstituted yttrium iron garnet thin films showing optomagnetic effect from sol-gel process, Sol-Gel Optics II. 1758 (1992) 304-309.
- [4] Wittekoek S., Popma T.J.A., Robertson J.M., Bongers P.F., Magneto-optic spectra and the dielectric tensor elements of bismuth-substituted iron garnets at photon energies between 2.2-5.2 eV, Phys. Rev. B. 12 (1975) 2777-2788.
- [5] Dong B., Yang H., Cui Y., Yu L., Feng S., The magnetic properties of BiY2Fe5O12 nanoparticles doped with Cr ions, J Mater Sci. 42 (2007) 3167–3171.
- [6] Kuroda C. S., Taniyama T., Kitamoto Y., Yamazaki Y., Magneto-optical properties and morphology of particulate film consisting of Bi-YIG coprecipitated particles, J. Magn. Magn. Mater. 241 (2002) 201-206.
- [7] Xu H., Yang H., Xu W., Yu L., Magnetic properties of Bidoped Y3Fe5O12 nanoparticles, Current Applied Physics. 8 (2008) 1–5.

[۸] طاهونی، فرناز، قناعتشعار، مجید، مشخصهیابی فیلمهای نازک

کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران، ۱۳۹۲.

- [9] Kato E., Sei T., Tsuchiya T., Preparation of Highly Oriented Thin Film Exhibiting a Magneto-Optical Effect in Bi, Al Doped YIG, Journal of the Ceramic Society of Japan. 102 (1994) 818-821.
- [10] Gatelyte A., Jasaitis D., Beganskiene A., Kareiva A., Sol-Gel Synthesis and Characterization of Selected Transition Metal Nano-Ferrites, MATERIALS SCIENCE. 17 (2011) 302-307.
- [11] Manifacier J. C., J Gasiot J., Fillard J. P., A simple method for the determination of the optical constants n, k and the thickness of a weakly absorbing thin film, Journal of Physics E. 9 (1976) 1002-1004.