




Y₃Fe₅O₁₂ İnce Filmlerin Gd₃Ga₅O₁₂ Altaş Üzerine Darbeli Lazer Biriktirme (PLD) Yöntemiyle Büyütülmesi

Mustafa Tolga YURTCAN^{1,2*} , Ümmügülsüm SOYKAN^{2**} , Selçuk ATALAY³ 

¹Atatürk Üniversitesi, Kazım Karabekir Eğitim Fakültesi, Matematik ve Fen Bilimleri Eğitimi, 25240, Erzurum, Türkiye.

²Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Nanobilim ve Nanomühendislik Bölümü, 25240, Erzurum, Türkiye.

³İnönü Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, 44069, Malatya, Türkiye.

Geliş / Received: 08/11/2019, Kabul / Accepted: 24/12/2019

Öz

Bu çalışmada, Darbeli Lazer Biriktirme (PLD) tekniği ile (111) yönelimine sahip Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG) altaş üzerine, basınç ve sıcaklık değerleri değiştirilerek (111) yönelimine sahip Y₃Fe₅O₁₂ (YIG) ince film büyütme için en uygun büyüme şartı belirlenmeye çalışılmıştır. Büyütme işlemi sırasında oluşan plazma bulutunun fiziksel yapısı göz önüne alınarak, 50 mTorr'luk adımlarla 100 mTorr'dan 250 mTorr'a kadar büyüme basıncı değiştirilmiş ve bu basınç aralığında sıcaklığın etkisini görmek amacıyla 560, 640, 720 ve 800 °C'de büyütme yapılmıştır. Büyütme sırasında basınç ve sıcaklık değişkenleri haricinde; atış sayısı, tekrarlama frekansı, ısıtma ve soğutma hızı, hedef-altaş mesafesi, lazer uyarma enerjisi ve tavlama şartları sabit tutulmuştur. Hazırlanan filmlerin incelenmesi için X-Işını Kırınımı (XRD) ve Taramalı Elektron Mikroskopu (SEM) kullanılmıştır. YIG ve GGG'nin aynı kristal yapıda olması ve aynı XRD verisine sahip olması nedeniyle, büyütmenin başarılı olup olmadığının anlaşılması için Enerji Dağılımlı X-Işını Spektrometresi (EDX) kullanılmıştır. Yapılan analizler incelendiğinde YIG/GGG filmlerin başarıyla büyütüldüğü görülmüş ve en uygun büyüme koşulunun 100 mTorr ve 800 °C'de elde edildiği görülmüştür.

Anahtar Kelimeler: Y₃Fe₅O₁₂ (YIG), Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG), darbeli lazer biriktirme (PLD), ince film.

Growth of Y₃Fe₅O₁₂ Thin Films on Gd₃Ga₅O₁₂ Substrates by Pulsed Laser Deposition (PLD)

Abstract

In this study, deposition pressure and temperature values changed in order to determine optimal growth conditions for (111) oriented Y₃Fe₅O₁₂ (YIG) thin films on (111) oriented Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG) substrate by pulsed laser deposition (PLD) technique. Deposition pressure changed from 100 mTorr to 250 mTorr with 50 mTorr steps considering physical structure of plasma plume during growths and 560, 640, 720 and 800 °C selected as deposition temperatures in order to see temperature effect in this pressure range. Except for pressure and temperature, other variables like number of pulses, repetition frequency, heating and cooling speed, target-substrate distance, laser excitation energy and annealing conditions fixed during depositions. X-Ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy (SEM) techniques were used in order to examine prepared thin films. Since YIG and GGG have the same crystal structure and have matching XRD data, Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDX) was used to determine whether growth was successful. The analysis showed that YIG/GGG thin films were successfully grown and the optimum growth conditions were obtained at 100 mTorr and 800 °C.

Keywords: Y₃Fe₅O₁₂ (YIG), Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG), pulsed laser deposition (PLD), thin film.

*Corresponding Author: yurtcan@atauni.edu.tr

**Yüksek lisans tez çalışmasından üretilmiştir.

1. Giriř

Malzemeler manyetik özelliklerine göre diyamanyetik, paramanyetik ve ferromanyetik olarak 3 ana kategoriye ayrılmaktadır. Ferromanyetik malzemeler paramanyetik ve diyamanyetik malzemelerden farklı olarak, manyetik alanın kaldırılması sonucu mıknatıslanma özelliğini korumaktadır. Ferromanyetik özelliğe sahip tek cins atom içeren iyonik baęlı malzemeler, elektronların manyetik momentlerinin birbirine eşit ve zıt olması nedeniyle toplam mıknatıslanmaya sahip olmadıklarından, antiferromanyetik malzeme olarak adlandırılmaktadırlar. Birbirinden farklı değerliklere sahip ferromanyetik atomlar içeren bileşiklerde ise elektronların birbirine zıt, fakat eşit olmayan manyetik momentleri bulunur ve durum sonucu bir mıknatıslanma oluşur. Bu tür mıknatıslanmanın olduęu malzemeler ferrimanyetik malzeme olarak adlandırılmaktadır.

Ferritler, ferrimanyetik özellik gösteren ve genellikle demir oksit içeren seramiklerdir. En yaygın bilinen ferritlerin başında YIG gelmektedir (Andlauer et al., 1976). YIG manyetik ve manyeto-optik uygulama potansiyeline sahip olduğundan çok ilgi çeken bir malzemedir (İbrahim et al., 2000; Higuchi et al., 2001). Spin dalgalarının ilerlemesi için üretilmiş ve manyetik özellięi periyodik olarak deęişen malzemelere magnonik kristal adı verilmektedir (Chumak et al., 2008).

Spin dalgalarının dalga boyları, mikrodalgaların dalga boylarından daha küçük olduğundan, magnonik kristaller ile mikrodalga cihaz yapımı mümkündür (Kruglyak et al., 2010). YIG birçok malzeme ile kıyaslandığında çok düşük spin dalgası sönümlenmesine sahip olması nedeniyle mikrodalga sinyal işlemede kullanılmaya çok

uygundur (Atalay et al., 2015). YIG 1970'lerde bilgisayarlar hafızasında kullanılmış olup, daha sonra Faraday etkisi nedeniyle optik iletişim sistemlerinde optik yalıtım malzemesi olarak kullanılmıştır (Fujii and Sakabe, 2001). Akustik verici ve dönüřtürücü olarak kullanılabilen YIG (Hosseini Vajargah et al., 2007), ayrıca çok etkili bir mikrodalga filtresi olup, Faraday rotatörü olarak telekomünikasyonda yaygın olarak kullanılmaktadır. YIG'in spintronik, magnonik veya manyeto-optik cihazlarda kullanımı için yüksek manyetik ve yapısal kaliteye sahip ince filmlerine ihtiyaç duyulmaktadır (Onbasli et al., 2014).

YIG örgü sabiti 12,376 Å olan kübik yapıda karmaşık bir kristal yapıya sahiptir. Birim hücrelerinde 80 atom bulunur ve bunların 20'si manyetik Fe³⁺ iyonudur (Serga et al., 2010). GGG kristali YIG ile aynı yapıda ve 12,383 Å örgü sabitine sahip olmasının yanında, yalıtkan olması ve manyetik özellik göstermemesi nedeniyle YIG ince filmler büyötmek için ideal bir alttařtır (Huang and Xu, 2005; Razeghi et al., 1986).

Hazırlanan YIG ince filmler magnonik kristal yapımında kullanılacak olup, bu magnonik kristaller ile manyetik alan sensörü geliştirilmesi amaçlanmıştır. Bu çalışma TÜBİTAK MFAG 112T820 "Magnonik Kristaller" projesinin ilk aşaması olan PLD teknięiyle GGG altlık üzerine YIG ince filmlerin büyütülmesini kapsamaktadır.

2. Materyal ve Metot

PLD yöntemi temel olarak bir fiziksel buhar biriktirme yöntemidir. Yönlendirilen bir lazer demetinin hedef malzeme üzerine odaklanması sonucu, malzemenin plazmasının oluşması ve alttař üzerine malzemenin ince film şeklinde büyütülmesi prensibine dayanmaktadır (Yurtcan vd.,

2011). Diğer büyütme yöntemlerinden farklı olarak tek seferde kompleks kristal yapılar veya sandviç yapılar büyütme mümkündür (Lee et al., 1991). Alttaşın belirli bir yönelimdeyken doğrudan veya çapraz olarak sahip olduğu örgü sabitleri kullanılarak, tek kristal ince filmler büyütülebilmektedir. Büyütmenin kontrolü için sıcaklık, gaz çeşidi, basınç, hedef-alttaş mesafesi, lazer enerjisi, atış miktarı ve frekans gibi farklı parametreler değiştirilebilmektedir.

Büyütmenin yapılacağı GGG kristali (111) yönelimine sahip olarak 3 inç çaplı wafer olarak temin edilmiş ve 15 x 5 mm olarak dilimlenerek alttaş haline getirilmiştir. Alttaşların kirlerden arındırılması amacıyla ultrasonik banyoda sırasıyla aseton ve 2-propanol ile temizlenmiştir. Alttaşın numune tutucuya yapıştırılması için TED Pella 200 Silver Paint kullanılmış ve kuruma sonrası vakum odası içerisine yerleştirilmiştir.

Hedef malzeme olarak kullanılacak tabletin hazırlanması için %99,9 saflıkta ve parçacık boyutu 100 nm altında olan 5,5 g YIG toz (Sigma-Aldrich CAS: 634417) bir inç çaplı kalıp takımı kullanılarak sıkıştırılmış ve ardından ProTherm PTF-16-38-250 tüp fırında 8 saat süre ile 1400 °C'de sinterlenmiştir. Elde edilen tablet vakum odasına yerleştirilerek hedef-alttaş mesafesi 4,3 cm olarak sabitlenmiş ve vakum odası kapatılmıştır.

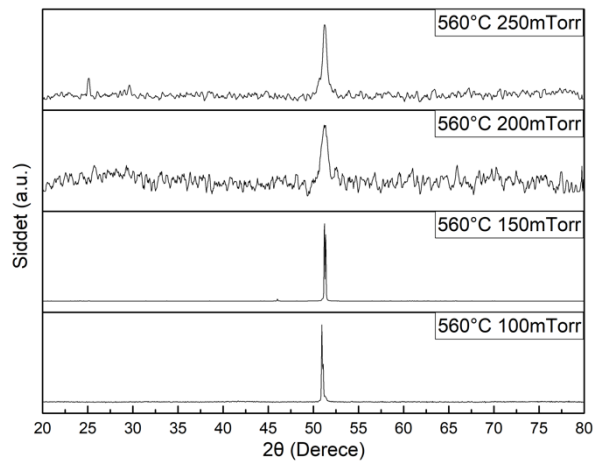
Kristal büyütme amacıyla, farklı basınçlarda oluşan plazmanın fiziksel yapısı göz önüne alınmış ve büyütme basıncı için 100-250 mTorr aralığı seçilmiştir. Bu aralıkta basınç 50 mTorr'luk adımlarla arttırılmış ve büyütme sıcaklığı olarak 560, 640, 720 ve 800 °C değerleri kullanılmıştır.

Büyütme işlemi öncesi vakum odasının basıncı 9×10^{-6} Torr'a düşürülerek ortam

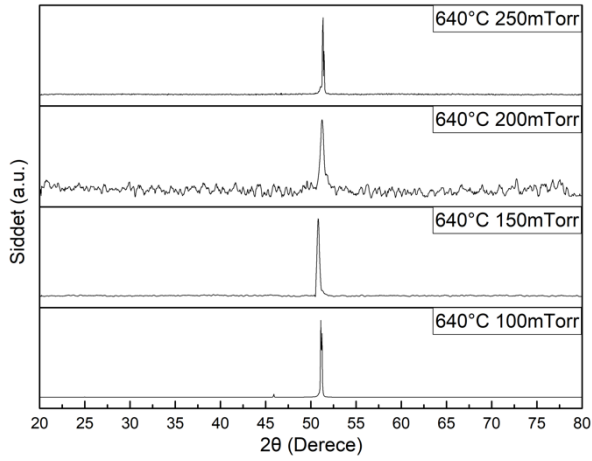
yabancı atomlardan temizlenmiştir. Büyütmenin yapılacağı sıcaklıklara kontrollü bir şekilde çıkıldıktan sonra ortama oksijen gazı (Linde %99,999) verilerek akış kontrolcüsü yardımıyla büyütme basıncı sabitlenmiştir. Hedef üzerine gelecek lazer enerjisi 1,6 J/cm² olacak şekilde sabitlendikten sonra alttaş yüzeyi kapatılarak hedef yüzeyine 500 atış yapılmış ve yüzey temizlenmiştir. Temizlik sonrası 10000 atış ile ince film büyütme gerçekleştirilmiştir. Numuneler vakum odasından çıkartılmadan oksijen basıncı 400 Torr olacak şekilde sıcaklık 800 °C'ye çıkılmış ve 10 dakika süreyle tavlama işlemi gerçekleştirilmiştir. Tavlama işlemi sonrası kontrollü soğutma yapılarak oda sıcaklığında numuneler çıkartılarak desikatöre konulmuştur.

3. Bulgular

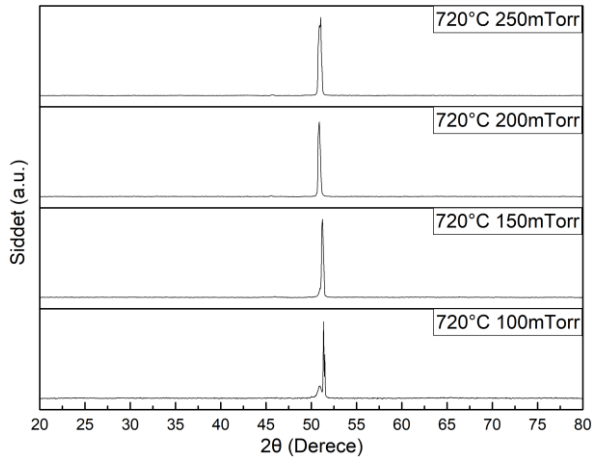
Farklı koşullarda büyütülen ince filmlerin kristal yapısının tayini için X-Işını Kırınımı (XRD) kullanılmıştır. Aynı sıcaklıkta farklı büyütme basınçlarında büyütülen ince filmlerin XRD desenleri gruplanarak, 560 °C için Şekil 1.'de; 640 °C için Şekil 2.'de; 720 °C için Şekil 3.'de ve 800 °C için Şekil 4.'de verilmiştir.



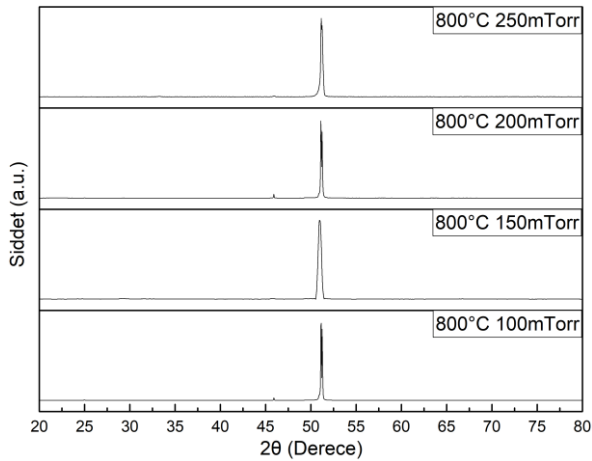
Şekil 1. 560 °C'de büyütülen ince filmler



Şekil 2. 640 °C’de büyütülen ince filmler



Şekil 3. 720 °C’de büyütülen ince filmler

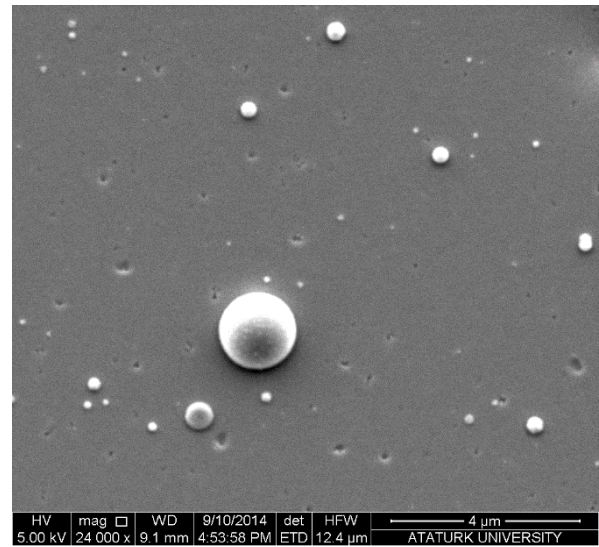


Şekil 4. 800 °C’de büyütülen ince filmler

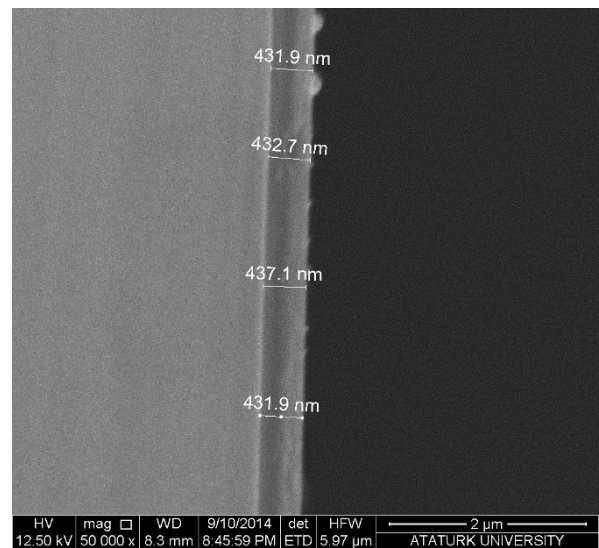
XRD desenleri incelendiğinde 51° (2θ)’de (444) yönelimine sahip tek bir pik baskın olarak görülmekte olup, yüksek sıcaklık ve

düşük basınç değerlerinde polikristalden tek kristale geçiş eğilimi görülmektedir. GGG ve YIG tamamen aynı kristal yapıya ve XRD verisine sahip olduğundan, XRD sonucu ile YIG ince film ve GGG altaşı ayırt etmek mümkün değildir.

Yüzey morfolojisinin (Şekil 5) ve film kalınlığının (Şekil 6) görüntülenebilmesi için 800 °C’de 100 mTorr basınçta büyütülen ince film, atış sayısı 50000 olacak şekilde tekrar büyütülmüştür.



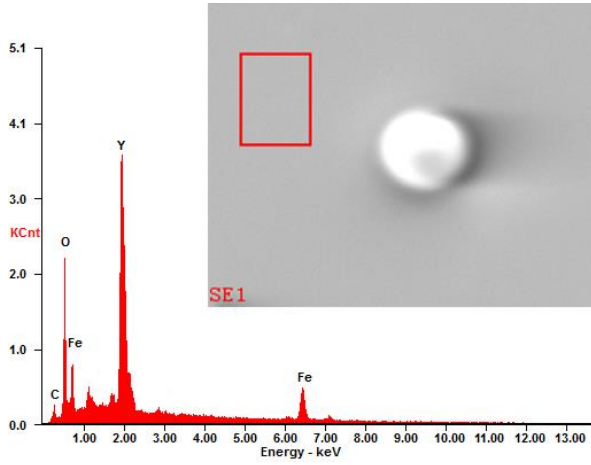
Şekil 5. İnce filmin yüzey morfolojisi



Şekil 6. İnce filmin kalınlığı

Şekil 5 incelendiğinde, çok pürüzsüz bir yüzey üzerinde en büyüğü 1µm çapında olan globüller görülmektedir. Bu globüller PLD tekniğinin doğası nedeniyle yüzeyde görülebilmektedir. Film yüzeyinde soğutma hızı kaynaklı herhangi bir çatlak bulunmamaktadır. Şekil 6’da alttaşı ve büyütülen YIG kolayca seçilebilmekte olup, film kalınlığı 50000 atış için 435 nm olarak tespit edilmiştir.

YIG/GGG ince filmler için XRD sonucu ile büyütmenin başarıyla gerçekleştirildiği tespit edilemeyeceğinden, film yüzeyinde EDX analizi yapılmıştır (Şekil 7.).



Şekil 7. Film yüzeyin EDX analizi

EDX analizi sonucu yüzeyde tespit edilen itriyum, demir ve oksijen elementleri ile birlikte XRD verisi göz önüne alındığında, YIG ince filmlerin başarıyla büyütüldüğü tespit edilmiştir.

4. Sonuç

PLD yüksek vakuma çıkabildiği için büyütme yapılacak ortamı yabancı atomlardan büyük ölçüde arındırmaktadır. Enerji kaynağının dışarıdan vakum odasını etkilemeden yönlendirilmesi ve büyütme gazı dışında vakum odasına giriş olmaması nedeniyle

yüksek kalitede ince filmler ve tek kristal elde etmek için tercih edilen bir yöntemdir.

Spin dalgaları ve magnonik kristaller üzerinde çalışma yapılabilmesi için yüksek kaliteli YIG gibi ferrit ince filmlere ihtiyaç duyulması nedeniyle, PLD yöntemi ile YIG büyütülmesi önem arz etmektedir.

Büyütülen YIG’in, alttaşı olan GGG ile aynı kristal özelliklerde olması örgü uyumu nedeniyle büyütme işlemini kolaylaştırmakla birlikte, büyütmenin XRD kullanarak kontrol edilmesini imkânsız kılmaktadır.

Deney sonuçlarına göre YIG geniş bir sıcaklık ve basınç aralığında büyütülebilmektedir. Büyütme sıcaklığının artırılması ve basıncın azaltılması sonucu ince filmlerin polikristalden tek kristale yöneldiği görülmektedir. Yüksek sıcaklık YIG’in GGG yüzeyine tutunmasını ve homojen dağılımını kolaylaştırmakta, nispeten düşük basınç ise ihtiyaç duyulan ortalama serbest yolu arttırarak atomların gerekli enerji ile alttaşa ulaşmasını sağlamaktadır. Bu nedenle YIG ince film büyütme için yüksek sıcaklık ve düşük basınç tercih edilmelidir.

Teşekkür:

Bu çalışma; Türkiye Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Kurumu (TÜBİTAK) tarafından 112T820 MFAG proje numarası ile desteklenerek gerçekleştirilmiştir. Sağladığı destek nedeniyle TÜBİTAK’a teşekkür ederiz.

5. Kaynaklar

Andlauer, B., Schneider, J., & Wetling, W. 1976. “Optical and magneto-optical properties of YIG and FeBO₃”, Applied physics, 10(3), 189-201.

Atalay, S., Kolat, V. S., Bakır, H. G., Izgi, T., Kaya, A. O., Kaya, O. A., & Gencer, H. 2015.

- “Surface modification of YIG by magnet array”, *Applied surface science*, 354, 337-341.
- Chumak, A., Serga, A., Hillebrands, B., & Kostylev, M. 2008. “Scattering of backward spin waves in a one-dimensional magnonic crystal”, *Applied Physics Letters*, 93(2), 022508.
- Fujii, T., & Sakabe, Y. (2001). *Growth and Magnetic Properties of YIG Films*. *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*, Oxford, 3666-3670.
- Higuchi, S., Ueda, K., Yahiro, F., Nakata, Y., Uetsuhara, H., Okada, T., & Maeda, M. 2001. “Fabrications of cerium-substituted YIG thin films for magnetic field sensor by pulsed-laser deposition”, *Ieee Transactions on Magnetics*, 37(4), 2451-2453.
- Huang, M., & Xu, Z. C. 2005. “Wavelength and temperature characteristics of BiYbIG film/YIG crystal composite structure for magneto-optical applications”, *Applied Physics A*, 81(1), 193-196.
- Hosseini Vajargah, S., Madaah Hosseini, H. R., & Nemati, Z. A. (2007). Preparation and characterization of yttrium iron garnet (YIG) nanocrystalline powders by auto-combustion of nitrate-citrate gel. *Journal of Alloys and Compounds*, 430(1), 339-343.
- Ibrahim, N. B., Edwards, C., & Palmer, S. B. 2000. “Pulsed laser ablation deposition of yttrium iron garnet and cerium-substituted YIG films”, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 220(2-3), 183-194.
- Kruglyak, V., Demokritov, S., & Grundler, D. 2010. “Magnonics”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43(26), 264001.
- Lee, S. Y., Jia, Q. X., Anderson, W. A., & Shaw, D. T. 1991. “In situ laser deposition of superconducting YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films on GaAs substrates”, *Journal of Applied Physics*, 70(11), 7170-7170.
- Onbasli, M., Kehlberger, A., Kim, D., Jakob, G., Kläui, M., Chumak, A., Ross, C. 2014. “Pulsed laser deposition of epitaxial yttrium iron garnet films with low Gilbert damping and bulk-like magnetization”, *APL Materials*, 2(10), 106102.
- Razeghi, M., Meunier, P. L., & Maurel, P. 1986. “Growth of GaInAs-InP multiquantum wells on garnet (GGG=Gd₃Ga₅O₁₂) substrate by metalorganic chemical vapor deposition”, *Journal of Applied Physics*, 59(6), 2261-2263.
- Serga, A. A., Chumak, A. V., & Hillebrands, B. 2010. “YIG magnonics”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43(26), 264002.
- Yurtcan, M. T., Simsek, O., & Ertugrul, M. 2011. “Darbeli Lazer Yığıma Sistemi ile YBCO İnce Filmlerin Büyütülmesi”, *Erzincan Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 4(2), 157-167.