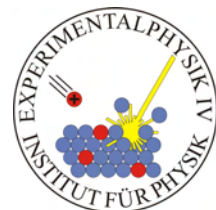


# INTEGRATION MAGNETOOPTISCH AKTIVER GRANATE AUF NICHT-GRANAT-SUBSTRATEN

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der  
Universität Augsburg

vorgelegt von  
Timo H. Körner

Augsburg, Juni 2008



Erstgutachter: Prof. Dr. Bernd Stritzker  
Zweitgutachter: Prof. Dr. Armin Reller  
Tag der Einreichung: 11.06.2008  
Tag der mündlichen Prüfung: 28.07.2008

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Überblick</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Einführung in die Magnetooptik</b>	<b>5</b>
2.1	Der Faraday-Effekt . . . . .	5
2.1.1	Anwendungsbeispiele . . . . .	7
2.2	Magnetooptisch aktive Granate . . . . .	8
2.2.1	Allgemeine Eigenschaften . . . . .	8
2.2.2	Strukturelle Eigenschaften der Granate . . . . .	9
2.3	Substitution von Yttrium in $Y_3Fe_5O_{12}$ . . . . .	10
<b>3</b>	<b>Analytische Verfahren</b>	<b>13</b>
3.1	Rutherford-Rückstreupektrometrie (RBS) . . . . .	13
3.2	Röntgendiffraktometrie (XRD) . . . . .	16
3.3	Rasterelektronenmikroskopie (REM, ESEM und TEM) . . . . .	23
3.3.1	Rasterelektronenmikroskopie . . . . .	23
3.3.2	ESEM . . . . .	26
3.3.3	Transmissionselektronenmikroskopie - TEM . . . . .	26
3.4	Rasterkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy, AFM) . . . . .	29
3.5	Profilometrie mittels DEKTAK . . . . .	29
3.6	Photolumineszenzmessungen . . . . .	30
3.7	Der Faraday-Messplatz . . . . .	31
3.8	Elektronenspektroskopie für chemische Analysen (ESCA) . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Schichtdeposition</b>	<b>37</b>
4.1	Die gepulste Laserablation (PLD) . . . . .	37
4.1.1	Wechselwirkungen zwischen Laserstrahl und Target . . . . .	38
4.1.2	Das Plasma bei der PLD . . . . .	39
4.1.3	Wachstumsmodelle dünner Schichten . . . . .	39
4.2	Reinigung der Substrate . . . . .	40
4.3	Die Ablationsanlage . . . . .	40
4.4	Syntheseverfahren zur Targetherstellung . . . . .	43
4.4.1	Konventionelle Festkörpersynthese . . . . .	43
4.4.2	Targetsynthese mittels Sol-Gel-Verfahren . . . . .	44
<b>5</b>	<b>Integration eines Puffersystems auf Nichtgranatsubstrate</b>	<b>49</b>
5.1	Stand der Forschung . . . . .	49
5.1.1	Parameter für die Deposition von $Bi_3Fe_5O_{12}$ . . . . .	50
5.1.2	Integration von $Bi_3Fe_5O_{12}$ auf $SiO_2$ . . . . .	51
5.2	Deposition und Charakterisierung von Granat-Puffersystemen . . . . .	52
5.2.1	$Gd_3Ga_5O_{12}$ - GGG . . . . .	52
5.2.2	$Y_3Al_5O_{12}$ - YAG . . . . .	54

5.2.3	$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ - YIG	57
5.2.4	Deposition von BIG auf das YIG-Puffersystem	63
<b>6</b>	<b>Seltenerd-Dotierte Eisengranate</b>	<b>71</b>
6.1	$\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	71
6.2	$\text{Nd}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	74
6.3	$\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	76
6.4	$\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	81
6.5	$\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ und $\text{Ce}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	84
6.6	Erbiumdotierte Granate	88
6.6.1	Strukturierung der Er-dotierten Granatschichten	94
6.6.2	Photolumineszenz der Er-dotierten Schichten	95
<b>7</b>	<b>Simulation der Faraday-Drehung dünner YIG-Pufferschichten</b>	<b>99</b>
7.1	Polarisiertes Licht	99
7.2	Phänomenologische Beschreibung des Faraday-Effekts	102
7.3	Transfermatrixformalismen nach Yeh	104
7.3.1	Der $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus	104
7.3.2	Anwendung der $4 \times 4$ -Matrix-Methode auf den Faraday-Effekt	105
7.3.3	Anwendung der $4 \times 4$ -Matrix-Methode auf Doppelbrechung	106
7.3.4	Der $2 \times 2$ -Matrix-Formalismus	107
7.4	Real- und Imaginärteil des Brechungsindex	108
7.5	Untersuchung und Simulation von YIG-Puffersystemen	113
7.6	Lösungsansätze zur Erklärung der oszillatorischen Effekte	115
7.7	Interferenzerscheinungen und Schichtsystem-Modell	118
7.8	Simulation der FR-Spektren der untersuchten Proben	123
<b>8</b>	<b>Kurze Zusammenfassung weiterer durchgeführter Studien</b>	<b>127</b>
8.1	Gradienten-Target	127
8.2	Alternative Kristallisierungsmethoden des YIG-Puffers	128
8.2.1	Granat-Keimkristall	129
8.2.2	Laserannealing	129
8.3	Einfluss von Oberflächenwellen auf den Faraday-Effekt	129
8.4	Sensorik	130
<b>9</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>133</b>

# 1 Einleitung und Überblick

Ähnlich wie in der Mikroelektronik wird bei integrierten Optiken versucht, unterschiedliche makroskopische optische Bauelemente in Form von Schaltkreisen auf einem einzigen Chip zu implementieren. Eine derartige Integration wurde in den letzten Jahren für viele passive Bauteile (z.B. Y-Verzweiger, Bragg-Gitter oder optische Schalter) erreicht. Dem hingegen sind nichtreziproke Komponenten wie Isolatoren oder Zirkulatoren zu diesem Zeitpunkt nur makroskopisch in Bulk-Form erhältlich. Als Materialien für diese nichtreziproken Komponenten können dabei nur magnetooptisch aktive Granate verwendet werden.

Ein breites Anwendungsgebiet dieser technisch relevanten Materialien, vor allem der *Eisengranate*, findet sich zum Beispiel in der Informationsübertragung über Wellenleiter. Hier ist die geringe Dämpfung der Granate im sichtbaren Bereich und im nahen Infrarot bei gleichzeitig starker Faraday-Drehung vorteilhaft, denn in diesem Spektralbereich findet die optische Kommunikation in Glasfaserkabeln statt. Granate sind hier die einzig diskutierten Materialien für nichtreziproke Bauteile wie z.B. optische Isolatoren, welche für optische Datenübertragungssysteme mit hoher Übertragungsrate unumgänglich sind. Solche Isolatoren sind notwendig, um reflektiertes Licht auszufiltern, das z.B. an Spleißstellen der Lichtleiterstrecke entsteht und gerade in optischen Verstärkern zu Störungen und zum Verrauschen des Nutzsignals führt. Bei der Datenübertragung kommen auch Halbleiterlaser als Lichtquellen zum Einsatz. Das rückreflektierte Licht aus der Faser kann somit nicht in den Laser gelangen, so dass dessen Stabilität gewährleistet ist und er vor unerwünschten Rückkopplungen geschützt wird.

Bei der Integration stellt die Kombination der verschiedenen optischen Komponenten (z.B. Laserdiode, Wellenleiter, optischer Isolator, Modulator, etc.) auf Grund der unterschiedlichen Materialklassen eine große Herausforderung dar. So können z.B. die für die optischen Isolatoren notwendigen Granate in Dünnschichttechnologie zunächst nur auf Granat-Substrate abgeschieden werden. Solche Substrate sind jedoch z.B. für Laserdioden ungeeignet und zudem kostenintensiv.

Neben den vielseitigen Einsatzmöglichkeiten in der Kommunikationstechnologie eignen sich die Granate hervorragend für sensorische Anwendungen. Hierbei werden die dünnen Filme als magnetooptisch aktive Indikatorschichten eingesetzt. In Abhängigkeit von der lokalen Magnetisierung einer Schicht, wird die Polarisierung von transmittiertem Licht verändert. Dadurch können zweidimensionale Magnetfeldverteilungen als Kontrastbild sichtbar gemacht werden.

Der Grundgedanke dieser Arbeit ist deshalb, durch gezielte materialwissenschaftliche Untersuchungen eine Integration nichtreziproker Bauteile in ein Subsystem z.B. bestehend aus Laser, Isolator und Modulator zu ermöglichen. Letztendlich soll auf Grundlage dieser Einzelkomponenten *ein* Chip für die optischen Schaltungen, z.B. für die optische Nachrichtentechnik, entwickelt werden.

Ein typischer Vertreter dieser Materialien ist der ferrimagnetische Yttrium-Eisengranat  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG), dessen Faraday-Effekt durch Dotierung mit Bismuth gesteigert werden kann. Der  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Granat kann allerdings nur auf Substrate, die ebenfalls eine Granatstruktur (z.B.  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ ) vorweisen, abgeschieden werden, da dieser nicht im thermodynamischen Gleichgewicht aufwächst. Um dessen Eigenschaften als eine neue Funktion für mikroelektromechanische Systeme oder für die integrierte Optik zugänglich zu machen, ist jedoch eine Integration auf z.B. Si oder  $\text{SiO}_2$  wünschenswert.

Um dieses Ziel zu erreichen, wurde in der vorliegenden Arbeit der Versuch unternommen, die magnetooptisch aktiven Granate auf technisch relevante Substrate, wie Si,  $\text{SiO}_2$  oder Quarzglas, zu integrieren.

Zur Abscheidung der Granat-Filme auf die entsprechenden Substrate kam die gepulste Laserablation (PLD) zum Einsatz. Der Vorteil dieser Methode ist, dass auch Materialien im thermodynamischen Nicht-Gleichgewicht deponiert werden können. Im Vordergrund steht hierbei die Integration dieses Materials auf Nicht-Granat-Materialien mit gleichen magnetooptischen Eigenschaften.

Die abgeschiedenen Schichten wurden ausführlich auf ihre Morphologie hin mittels Röntgendiffraktometrie, Rasterelektronen- und Rasterkraftmikroskopie und Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie untersucht. Es wurden aber auch die physikalischen Eigenschaften der dünnen Filme betrachtet. Von besonderem Interesse war hierbei die optische Absorption und die Faraday-Drehung, d.h. die Drehung der Polarisationsrichtung von linear polarisiertem Licht aufgrund eines externen Magnetfeldes. Außerdem sollte die Photolumineszenz einer Er-dotierten Granatstruktur nachgewiesen werden. Zuletzt wurden die Granatschichten geeigneten Strukturierungsverfahren unterzogen, um sie in Wellenleiterform zu bringen.

Kurz zusammengefasst lässt sich die Arbeit somit in sieben Kapitel gliedern:

In den ersten beiden Kapiteln werden der Faraday-Effekt und typische Anwendungsmöglichkeiten dieses Effekts kurz vorgestellt. Auch wird die Materialklasse der magnetooptisch aktiven Granate beschrieben.

In Kapitel 3 wird ein Überblick über die analytischen Verfahren gegeben, die für die Untersuchungen in dieser Arbeit verwendet wurden. Im Einzelnen sind dies: Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS), Röntgendiffraktometrie (XRD), Rasterelektronenmikroskopie (SEM, ESEM), Transmissionselektronenmikroskopie (TEM), Rasterkraftmikroskopie (AFM), Profilometrie (DEKTAK), Photolumineszenz (PL), Elektronenspektroskopie für chemische Analysen (ESCA/XPS) und der Aufbau zur Messung des Faraday-Effekts.

Im nächsten Kapitel wird das zur Filmsynthese verwendete Verfahren der gepulsten Laserablation vorgestellt. Dazu wird eine kurze Einführung in die Theorie und Methodik dieser Depositionsmethode gegeben. Zuletzt folgt, nach der Beschreibung des Anlagensystems, ein Einblick in die Syntheseverfahren für die zur Schichtherstellung benötigten Sintertargets in Kapitel 4.4.

Kapitel 5 beschreibt die systematischen Optimierungen der Depositionsparameter für die Abscheidung und Integration von Granat-Puffersystemen (GGG, YAG, YIG) auf Nicht-Granat-Substraten. Als Substrate wurden Si-,  $\text{SiO}_2$ -, und MgO-Substrate verwendet.

In Kapitel 6 wird zunächst ein Überblick über aktuelle Forschungsergebnisse zu dotierten Granaten gegeben. Im Anschluss folgt eine Zusammenfassung der in dieser Arbeit durchgeführten Studien zur Dotierung von Eisengranaten mit Bismuth, Neodym, Praseodym,

Lanthan, Cer und Erbium. Hierbei wird besonders auf die Auswirkungen der Substitutionen auf strukturelle und optische Änderungen eingegangen. Das Kapitel schließt mit der Untersuchung der Leuchteigenschaften von Er-dotierten Granaten.

In Kapitel 7 werden zunächst die theoretischen Grundlagen für das Verständnis des Faraday-Effekts erarbeitet. Auf Basis dieser Grundlagen werden dann zwei verschiedene Simulationen entwickelt. Mit der ersten Simulation können aus den Transmissions-Spektren sehr einfach die Brechungsindizes der untersuchten Materialien gewonnen werden. Das zweite entwickelte Programm ermöglicht die Simulation von Faraday-Spektren dünner Schichtsysteme.

Kapitel 8 gibt zuletzt eine Zusammenfassung von weiteren durchgeführten Studien. Es folgt die Beschreibung der Herstellung kombinatorischer Multilagensysteme verschiedener Granate. Auch werden alternative Möglichkeiten zur Kristallisation der Pufferschichten vorgestellt und der Einfluss von akustischen Oberflächenwellen auf den Faraday-Effekt untersucht. Der Abschnitt endet mit der Vorstellung erster erfolgreich hergestellter magnetooptischer Sensorschichten.

Am Ende der Arbeit werden die wichtigsten Ergebnisse nochmals zusammengefasst und ein Ausblick für weitere Arbeiten gegeben.





## 2 Einführung in die Magnetooptik

Die Magnetooptik beruht im Allgemeinen auf einem nichtlinearen optischen Phänomen und beschreibt den Einfluss magnetischer Felder auf die Emission, Absorption, Ausbreitung und Reflexion von Licht. Hierbei unterscheidet man eine Vielzahl an magnetooptischen Effekten, wie z.B. dem magnetooptischen *Kerr-Effekt*, *Voigt-Effekt*, *Cotton-Mouton-Effekt*, *Zeeman-Effekt*, *linearer* und *zirkularer Dichroismus*, sowie weiteren nichtlinearen optischen Effekten.

In dieser Arbeit ist allerdings ausschließlich der *Faraday-Effekt* von Bedeutung, bei dem die Drehung der Polarisationssebene bei der Transmission durch das magnetooptisch aktive (MOA) Material stattfindet.

Dieser, sowie ein Einblick in die Anwendungsmöglichkeiten, werden im folgenden Abschnitt kurz dargestellt. Das Kapitel orientiert sich vor allem, sofern nicht weiter angegeben, an [1–5].

### 2.1 Der Faraday-Effekt

Der Faraday-Effekt wurde im Jahr 1845 von M. Faraday erstmals beschrieben. Im magnetooptisch aktiven Material<sup>1</sup> kommt es zu einer Wechselwirkung zwischen der polarisierten elektromagnetischen Welle und einem Magnetfeld. Die Wechselwirkung äußert sich dabei in einer Drehung der Polarisationssebene der Welle während der Transmission durch die magnetooptisch aktive Probe. Der Drehwinkel  $\theta$ , vom einfallenden zum transmittierten Licht, ist dabei direkt proportional zum lokal vorherrschenden Magnetfeld  $B$ . Die Richtung der *Faraday-Drehung* hängt dabei nur von der Magnetisierungsrichtung und nicht von der Transmissionsrichtung der Welle ab. Es ergibt sich folgender einfacher Zusammenhang:

$$\theta(\omega) = V(\omega) \cdot B \cdot d \quad (2.1)$$

wobei  $d$  die Dicke des durchstrahlten Materials,  $B$  die magnetische Flussdichte des angelegten Feldes parallel zur Lichtausbreitungsrichtung und  $V(\omega)$  die sog. *Verdetkonstante*, eine material- und frequenzabhängige Konstante, bezeichnet.

Es werden zwei spezielle Formen des Faraday-Effektes unterschieden, da das äußere Magnetfeld nicht ausschlaggebend ist für eine Drehung der Polarisationssebene, sondern die Magnetisierung des durchstrahlten magnetooptischen Materials. Dieses Phänomen konnte 1884 von A. Kundt gefunden werden. Beim sog. *Kundt-Effekt* kommt es zu einer außerordentlichen Drehung der Polarisationssebene bei der Durchstrahlung sehr dünner Ferromagnetika. In paramagnetischen Materialien wird dieser analoge Effekt auch *Becquerel-Effekt* genannt.

Der Faraday-Effekt wird in den unterschiedlichsten Bauteilen verwendet, wie optischen Isolatoren oder Sensoren, um zweidimensionale Magnetfeldverteilungen zu beobachten.

<sup>1</sup>M. Faraday stellte diesen Effekt 1846 an Quarzglas fest, das sich in einem Magnetfeld befand.

Dazu ist eine möglichst hohe Faraday-Drehung bzw. hohe Verdetkonstante wünschenswert. Für  $\text{SiO}_2$  beträgt diese  $3,25 \cdot 10^{-7} \frac{\circ}{\mu\text{m}\cdot\text{mT}}$  bei einer eingestrahnten Wellenlänge von 546 nm. Die Verdetkonstante der hier untersuchten Granatstrukturen liegt in der Größenordnung von  $10^{-2} \frac{\circ}{\mu\text{m}\cdot\text{mT}}$ , also um ca. fünf Größenordnungen höher<sup>2</sup>. Wie es nun zu diesem Faraday-Effekt kommt, wird im folgenden Abschnitt kurz erklärt werden.

Linear polarisiertes Licht kann man sich als Überlagerung zweier gegenläufiger zirkular polarisierter Wellen vorstellen, welche gleiche Amplituden besitzen und keine Phasenverschiebung zueinander aufweisen. Die beiden, sich in z-Richtung ausbreitenden, links- und rechtszirkular polarisierten Teilwellen werden im magnetooptisch aktiven Material unterschiedlich stark gebrochen und breiten sich verschieden schnell aus. Dies kommt dadurch zustande, dass die Magnetisierung des Materials durch das äußere Magnetfeld, parallel zur Ausbreitungsrichtung des Lichts, ausgerichtet wird und dadurch die beiden Anteile des Lichtes je nach ihrem Drehsinn verschieden mit dieser Magnetisierung wechselwirken.

Nach der Transmission durch eine Probe der Dicke  $d$  resultiert eine Phasendifferenz  $\Delta\phi$  zwischen den beiden zirkular polarisierten Teilwellen, die wie folgt berechnet werden kann [7]:

$$\Delta\phi = \frac{\omega d}{c} \cdot \text{Re}(N_+ - N_-) \quad (2.2)$$

wobei  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und  $\text{Re}(N_+)$  bzw.  $\text{Re}(N_-)$  die Brechungsindizes der beiden Wellen beschreiben. Setzt man die aus der Probe austretenden Teilstrahlen wieder zusammen, erhält man wieder linear polarisiertes Licht. Die Polarisatonebene wurde dabei, auf Grund der Phasendifferenz um den Faraday-Rotationswinkel  $\theta_F$  gedreht:

$$\theta_F(\omega) = \frac{\omega}{2c} \cdot \text{Re}(N_+ - N_-) = \frac{\Delta\phi}{2} \quad (2.3)$$

Kommt es zusätzlich zu einer Dämpfung der beiden zirkular polarisierten Wellen im magnetooptisch aktiven Material, so entsteht elliptisch polarisiertes Licht. Dies kann folgendermaßen veranschaulicht werden: Die elastisch gebundenen Elektronen des Mediums werden aufgrund des rotierenden elektrischen Feldvektors auf eine Kreisbahn gezwungen. Das externe Magnetfeld, welches senkrecht zu dieser Bahn steht, bewirkt eine Radialkraft. Diese ist entweder zum Kreismittelpunkt hin oder von ihm weg gerichtet, wodurch sich der Bahnradius der Elektronen verkleinert oder vergrößert. Die beiden Komponenten bringen somit nicht nur unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten und Brechungsindizes  $n_+$  und  $n_-$  mit sich, sondern besitzen nach der Transmission durch eine Probenstrecke  $d$  auch verschiedene Amplituden. Die Zusammensetzung ist nun elliptisch polarisiert.

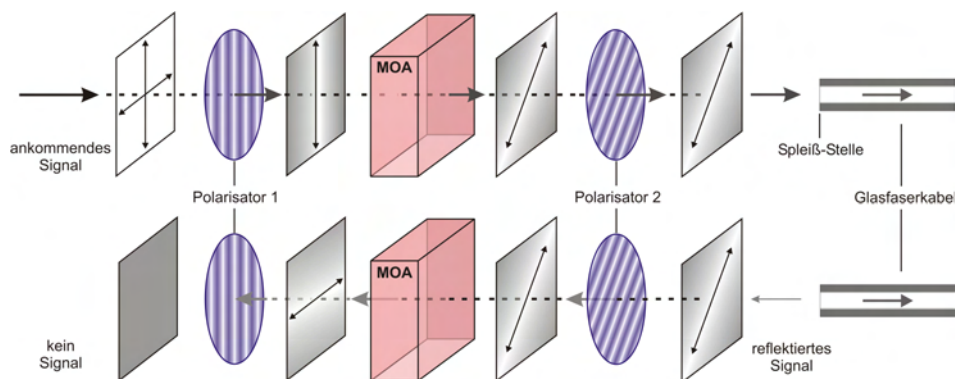
Sowohl die Faraday-Drehung, als auch die Faraday-Elliptizität können mit dem in Kap. 3.7 beschriebenen Faraday-Messplatz gemessen werden. Da die Richtung der Faraday-Drehung des magnetooptisch aktiven Materials orientierungsunabhängig bzgl. der Lichtausbreitung, also nichtreziprok, ist und nur von dessen externer Magnetisierung abhängt, ergeben sich zahlreiche technische Anwendungen des Faraday-Effekts. Deshalb soll der bereits o.g. optische Isolator im Folgenden kurz vorgestellt werden.

<sup>2</sup>Die meisten Materialien weisen eine nur sehr geringe Faraday-Rotation bzw. eine zu geringe Transmission auf, um sie für Applikationen nutzen zu können. Wasser dreht beispielsweise ca.  $2 \frac{\circ}{\text{cm}}$ , Schwefelkohlenstoff  $7 \frac{\circ}{\text{cm}}$  und Eisen ca.  $13 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$ , wobei bei Letzterem eine sehr geringe Transmission vorliegt (alle Werte bei 589 nm und einem Magnetfeld von 1 T gemessen). Man benötigt deshalb sehr hohe Schichtdicken, um beispielsweise  $45^\circ$  zu drehen (aus [6]).

### 2.1.1 Anwendungsbeispiele

#### Optischer Isolator

Aufgrund Ihrer vielseitigen Einsetzbarkeit eignen sich magnetooptisch aktive Kristalle vor allem für die optische Kommunikation in Glasfaserkabeln [8]. Dort kommt es an den Verbindungsstellen zwischen Kabel und Verstärker (Spleißstellen) zu unerwünschten Reflexionen des übertragenen Signals. Das reflektierte Licht kann mit Hilfe eines optischen Isolators, basierend auf dem Faraday-Effekt, ausgefiltert werden. Dieser besteht aus einem magnetooptisch aktiven Material, das sich zwischen zwei Polarisatoren (vgl. Abb. 2.1) befindet.



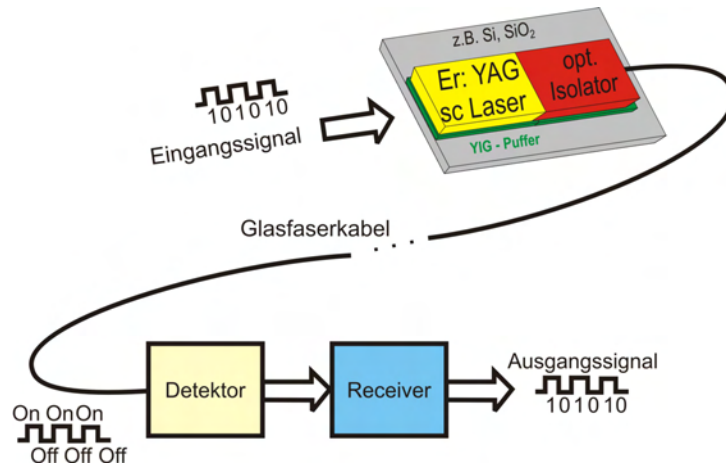
**Abbildung 2.1:** Funktionsprinzip eines, z.B. in Glasfaserkabeln eingesetzten, optischen Isolators. In Durchlassrichtung kann das Signal durch die Anordnung transmittieren. In Sperrrichtung wird das reflektierte Signal vollständig ausgelöscht.

Im ersten Polarisator 1 wird das Licht zunächst polarisiert. Der magnetooptisch aktive Kristall dreht bei der Transmission die Polarisationsrichtung des Lichtstrahls um exakt  $+45^\circ$ . Der sich im Anschluss an den Kristall befindende zweite Polarisator 2 ist gegenüber dem ersten um  $+45^\circ$  verdreht, so dass das Licht den Aufbau in Transmissionsrichtung ungehindert passieren kann. Durchquert ein reflektierter Lichtstrahl den optischen Isolator in der Gegenrichtung, so erfährt er nach Passieren des Polarisators 2 im magnetooptisch aktiven Material, trotz umgekehrter Ausbreitungsrichtung, eine Drehung um weitere  $+45^\circ$ . Somit ist die Polarisationsrichtung senkrecht zur Durchlassrichtung von Polarisator 1 und das Licht wird ausgelöscht.

#### Integrierte Optik

Ähnlich wie in der Mikroelektronik möchte man in der integrierten Optik unterschiedliche makroskopische optische Bauelemente in Form von Schaltkreisen auf einen einzigen Chip integrieren. Eine derartige Anordnung zur optischen Kommunikation ist in Abb. 2.2 skizziert.

Eine solche Integration wurde in den letzten Jahren für viele passive Bauteile (z.B. Wellenleiter, Y-Verzweiger, Bragg-Gitter oder optische Schalter) erreicht. Zur Informationsübertragung in Glasfasern (über Wellenleiter) werden oft Halbleiterlaser als Lichtquelle benutzt. Diese müssen vor reflektiertem Licht geschützt werden, da sie ansonsten destabilisieren. Optische Isolatoren werden in Form von dünnen Filmen aus magnetooptisch aktivem Material mittels Dünnschichttechnik auf *Si* oder *SiO<sub>2</sub>* aufgebracht. Bei der



**Abbildung 2.2:** Schematischer Aufbau einer integrierten Optik. Zuerst wird das elektrische Signal in ein optisches Signal umgewandelt, zum Beispiel durch Modulation eines Halbleiterlasers. Das Signal wird anschließend mittels Glasfaserkabel zum Detektor auf der Gegenseite geleitet. Das transmittierte Signal wird durch einen entsprechenden Empfänger wieder in ein elektrisches Signal umgewandelt. Dabei werden an den Spleiß-Stellen der einzelnen Kabel sowie direkt am Modulationslaser optische Isolatoren eingebaut. Rückgestreute Signale werden ausgefiltert und verhindern eine Destabilisation des Lasers.

Integration stellt jedoch die Kombination der unterschiedlichen optischen Komponenten aufgrund der verschiedenen Materialklassen eine große Herausforderung dar.

## 2.2 Magnetooptisch aktive Granate

### 2.2.1 Allgemeine Eigenschaften

In der Literatur werden magnetooptisch aktive Materialien in zwei Kategorien eingeteilt. Zur Ersten zählen Metalle und Legierungen, in denen der magnetooptische *Kerr-Effekt*, also eine Drehung der Polarisations Ebene linear polarisierten Lichts bei der Reflexion, auftritt. Materialien wie zum Beispiel Fe, Co, Ni, FePt, FePd, CoPt, MnBi oder CrTe sind allerdings nur für geringe Schichtdicken unter 100 nm transparent. Die wohl bekanntesten Vertreter dieser Gruppe sind unter anderem die Seltenerd-Übergangsmetalllegierungen, welche in magnetischen Speichermedien eingesetzt werden. Die zweite Klasse beinhaltet Dielektrika, halbmagnetische Halbleiter, Multilagensysteme sowie ferrimagnetische Granate. Gerade die Letzteren weisen bei Zimmertemperatur eine hohe Faraday-Drehung auf und wurden daher in dieser Arbeit näher untersucht.

Einer der bekanntesten Vertreter der ferrimagnetischen Granatstrukturen ist der Yttrium-Eisen-Granat ( $Y_3Fe_5O_{12}$ ), der im Folgenden, stellvertretend für diese Kristallart, beschrieben werden soll.

Als weiterführende Literatur zu den magnetooptisch aktiven Granaten wird auf [5, 9–11] verwiesen. Diese Literaturstellen wurden auch für den folgenden Abschnitt verwendet.

### 2.2.2 Strukturelle Eigenschaften der Granate

Der *Granat* bezeichnet die Kristallstruktur eines kubisch raumzentrierten Bravais-Gitters der Raumgruppe  $Ia\bar{3}(O_h^{10})$ . Die primitive Einheitszelle umfasst 160 Ionen und damit acht Formeleinheiten. Ihre allgemeine Summenformel lautet:



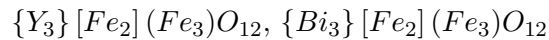
Die verschiedenen Klammern stehen für die unterschiedlichen Koordinationen des Sauerstoffs:

- $\{c\}$ : 8-fache Koordination
- $[a]$ : 6-fache Koordination
- $(d)$ : 4-fache Koordination

Die zu  $\{c\}$ ,  $[a]$  bzw.  $(d)$  gehörigen Kationen befinden sich im Zentrum des jeweiligen, durch die Sauerstoffionen aufgespannten Polyeders:

- Y: 8-fache Koordination: Dodekaeder (bzw. gestörter Kubus)
- Fe: 6-fache Koordination: Oktaeder
- Fe: 4-fache Koordination: Tetraeder

In Seltenerd-Eisengranaten besetzen Eisenionen ( $Fe^{3+}$ ) die  $a$ - und  $d$ -Positionen, die  $c$ -Position wird vom Seltenerd-Ion eingenommen. Somit kann die Schreibweise der hier betrachteten Granate abgeleitet werden. Die im Folgenden etwas näher betrachteten  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG)<sup>3</sup> und  $Bi_3Fe_5O_{12}$  (BIG) können geschrieben werden zu:



Auf weitere Eigenschaften der Kristallstruktur, wie den räumlichen Abständen und Winkelbeziehungen zwischen den Ionen der Einheitszelle, soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden.

### Magnetische und optische Eigenschaften

Eine ausführlichere Beschreibung der magnetischen Eigenschaften ist in [3, 4, 11] zu finden.

Eisengranate wie YIG oder BIG besitzen ein nicht verschwindendes magnetisches Moment. Dieses kommt von zwei unterschiedlich stark, entgegengesetzt magnetisierten Untergittern, wie es für die Klasse der ferrimagnetischen oxidischen Verbindungen üblich ist. Wie zuvor bereits erwähnt wurde, bilden die Plätze  $(d)$ ,  $[a]$  und  $\{c\}$  jeweils solche Untergitter. Die von  $Fe^{3+}$ -Ionen besetzten  $(d)$ - und  $[a]$ -Plätze sind zwar antiparallel magnetisiert, auf Grund des Unterschiedes von drei  $(d)$ - und nur zwei  $[a]$ -Plätzen kommt es zu einem magnetischen Moment. Wird das  $Y^{3+}$ -Ion auf seiner  $\{c\}$ -Position durch ein magnetisches Ion substituiert, kann ein drittes magnetisiertes Untergitter entstehen.

Für die optischen Eigenschaften gilt es zu bemerken, dass YIG zwar eine hohe Faraday-Drehung zeigt, doch aus Anwendersicht die Absorption des Lichts bei der Transmission

<sup>3</sup>Dass es sich bei ferrimagnetischen Granaten, wie beim hier betrachteten YIG, um ein Element der Raumgruppe  $Ia\bar{3}d(O_h^{10})$  handelt, ist genau genommen nur eine Näherung, da die spontane Magnetisierung in diesem Material eine exakte kubische Symmetrie unmöglich macht.

durch das Material von großer Bedeutung ist. Das Absorptionsverhalten von YIG steigt im sichtbaren Bereich stark an. YIG besitzt im infraroten Bereich einen sehr guten Qualitätsfaktor von  $Q > 1000 \frac{\circ}{dB}$ , der allerdings auf unter  $1 \frac{\circ}{dB}$  im sichtbaren Bereich abnimmt.

Wird der YIG dotiert, so kann der Absorptionskoeffizient im sichtbaren Bereich deutlich verbessert, also reduziert werden.

Im nächsten Kapitel wird deshalb ein Überblick gegeben, welchen Einfluss Dotierungen auf die physikalischen und strukturellen Eigenschaften der Granate ausüben.

## 2.3 Substitution von Yttrium in $Y_3Fe_5O_{12}$

Bisher wurde lediglich  $Y_3Fe_5O_{12}$  betrachtet, da dieses Material der bekannteste Vertreter der ferrimagnetischen Eisengranate ist. Da dieser aber nicht immer optimale Eigenschaften für z.B. integrierte optische Anwendungen besitzt, gibt es eine Vielzahl von (bzgl. YIG) substituierten Systemen. Durch gezielte Substitution können dadurch z.B. die Gitterkonstante angepasst (Substitution von Y), die Sättigungsmagnetisierung oder die Curie-Temperatur verändert (Substitution von Fe), die Faraday-Drehung bei einer bestimmten Wellenlänge erhöht oder der Absorptionskoeffizient gesenkt werden. Für jede Aufgabenstellung gilt es also den entsprechenden Substituenten auszuwählen.

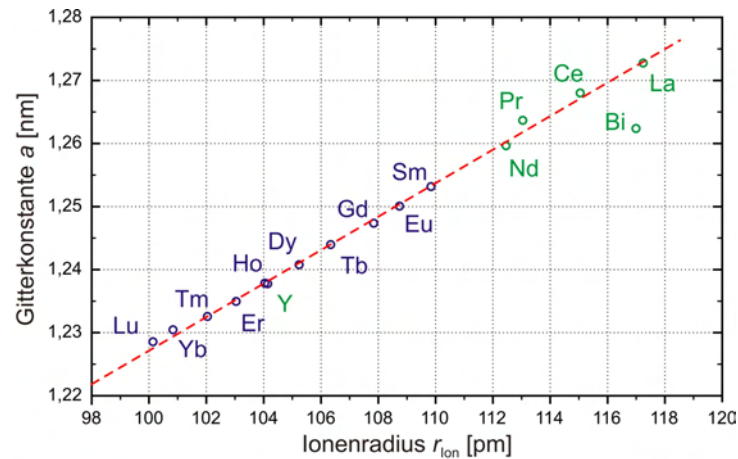
Innerhalb der Granatstruktur können sowohl die Kationen als auch die Sauerstoffionen substituiert werden. Im Folgenden wird sich die Beschreibung jedoch auf die Kationensubstitution beschränken. Wesentlich ist, dass eine Ladungskompensation erfolgt. Substituiert man z.B. das dreiwertige  $Fe^{3+}$ , so muss das ersetzende Ion ebenfalls dreiwertig sein (z.B.  $In^{3+}$ ,  $Er^{3+}$  oder  $Ga^{3+}$ ). Soll ein höherwertiges Ion eingesetzt werden (z.B.  $Sn^{4+}$  oder  $V^{5+}$ ), so ist dies nur in Kombination mit einem niederwertigen Ion (z.B.  $Ca^{2+}$ ) möglich. Wird dies nicht berücksichtigt, bilden sich im Material bei der Substitution mit höherwertigen Ionen  $Fe^{2+}$ -Ionen bzw.  $Fe^{4+}$ -Ionen, wenn mit niederwertigen Ionen substituiert wird. Es ist hierbei auch eine Verteilung der Substituenten auf die verschiedenen Kationenplätze möglich.

Wie die Kationen auf die verschiedenen Oktaeder-, Dodekaeder- oder Tetraederplätze verteilt werden, wird meist nicht durch ein thermodynamisches Gleichgewicht bestimmt. Maßgebende Einflussgrößen sind die Ionenradien [3]:

- Ionen mit Radien zwischen 0,96 Å bis 1,29 Å belegen bevorzugt Dodekaederplätze
- Ionen mit Radien zwischen 0,53 Å bis 0,83 Å belegen bevorzugt Oktaederplätze
- Ionen mit Radien zwischen 0,26 Å bis 0,47 Å belegen bevorzugt Tetraederplätze

Damit ist nur die Ionengröße für die Koordinationszahl (8, 6 oder 4) gegenüber Sauerstoff verantwortlich. Diese starke Vereinfachung eines Modells „harter Kugeln“ trifft jedoch für viele Systeme zu.

Von großer Bedeutung ist der Einfluss der unterschiedlichen Substituenten auf die Gitterkonstante der Granate. Dazu wird exemplarisch in Abbildung 2.3 die Substitution von Y durch andere Seltenerd-(Rare Earth/RE)-Ionen in  $Y_3Fe_5O_{12}$  gezeigt. Aufgetragen ist hierbei die Gitterkonstante  $a$  des (RE)- $Fe_5O_{12}$  in Abhängigkeit vom Ionenradius  $r_{ion}$  der substituierenden Ionen.



**Abbildung 2.3:** Einfluss des substituierten Seltenerd-Ions auf die Gitterkonstante eines RE-Granaten  $(RE)Fe_5O_{12}$ .

Nach der *Vegardschen Regel* zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Gitterkonstanten des Granaten  $a$  und dem Ionenradius  $r_{ion}$ .

Erwähnenswert ist hierbei, dass im thermodynamischen Gleichgewicht nur Kristalle mit einer maximalen Gitterkonstante von  $a = 12.540 \text{ \AA}$  hergestellt werden können. Um dünne Schichten mit höheren Gitterkonstanten zu erzielen, sind Nicht-Gleichgewichtsprozesse wie die Laserablation notwendig. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, das  $Fe^{3+}$ -Ion auf den oktaedrischen Plätzen durch ein Ion mit einem größeren Ionenradius zu ersetzen.

Es werden allerdings, neben der gezeigten Beeinflussung der Struktur durch die Substitution, auch die magnetooptischen Eigenschaften deutlich verändert. Ein Vergleich von Ordnungszahl, Ionenradius, gemessener Faraday-Drehung, sowie der Gitterkonstanten für verschiedene Substituenten macht deutlich, dass die Faraday-Drehung sehr stark schwankt. Dies bedeutet, dass jeder Substituent für eine Beschreibung des Effekts für sich betrachtet werden muss.<sup>4</sup>

Im Falle von YIG und BIG bezeichnet die Substitution die Ersetzung des Yttriums in YIG durch Bismut. Auch andere Substitutionen des Yttriums im YIG, wie Neodym, Praseodym, Lanthan, Cerium oder Erbium, sind möglich. Für die Substitution von Kationen in der Granatstruktur existieren zwei Grundbedingungen: Einerseits muss der Ionenradius zwischen  $0,26 \text{ \AA}$  und  $1,29 \text{ \AA}$  sein und andererseits muss eine Ladungskompensation stattfinden. Da die o.g. Substituenten in der vorliegenden Arbeit verwendet wurden, wird an dieser Stelle auf Kapitel 6 verwiesen.

### **$Bi_3Fe_5O_{12}$ - BIG**

Bereits eine geringfügige Dotierung von  $Y$  durch  $Bi$  verändert die physikalischen Eigenschaften des entstehenden Granaten. Wird in die Granatstruktur nur teilweise Bismut  $Bi^{3+}$  eingebaut ( $Y_{3-x}Bi_xFe_5O_{12}$ ,  $a_{YIG} = 12,38 \text{ \AA}$ ), so vergrößert sich die Einheitszelle ( $a_{BIG} = 12,62 \text{ \AA}$ ). Weiterhin werden die magnetischen Eigenschaften verändert. Die Vergrößerung der Einheitszelle führt zu einer Verringerung der magnetischen Momente pro

<sup>4</sup>Dies bedeutet, dass für jeden Substituenten seine Elektronenkonfiguration bzw. der Überlapp seiner Wellenfunktion mit der des  $Fe$ - bzw.  $O$ -Ions eigenständig zu betrachten ist.

Einheitsvolumen. Im Vergleich zu undotiertem YIG steigt die Sättigungsmagnetisierung an und die Curie-Temperatur nimmt zu. Diese Effekte kommen durch die strukturellen Veränderungen zustande. Die Bindungswinkel zwischen den Eisenionen verändern sich, da sie über die Sauerstoffionen miteinander wechselwirken. Diese Wechselwirkung ist am größten, falls alle Ionen in einer Linie stehen. Zum Anderen überlappen die Wellenfunktionen der *Bi*- und *O*-Ionen, was zu einer Beeinflussung der Spin-Bahn-Wechselwirkung der Eisenionen führt.

Die thermische Ausdehnung von reinem BIG nimmt im Gegensatz zu der von reinem YIG von  $\alpha_{YIG} = 10,4 \cdot 10^{-6} \frac{1}{K}$  auf  $\alpha_{BIG} = 12,9 \cdot 10^{-6} \frac{1}{K}$  zu [12, 13]. Die Faraday-Drehung steht in linearem Zusammenhang mit der Bi-Konzentration. Deshalb ist aus Anwendersicht von größtem Vorteil, wenn eine maximale Bi-Konzentration, also ein komplett substituierter YIG, erzielt wird. Der Ionenradius von Bi liegt mit  $r = 117$  pm allerdings deutlich oberhalb des thermodynamisch stabil formbaren Bereiches (bis  $r = 109,8$  pm), weshalb ein Nicht-Gleichgewichtsprozess wie die Laserablation zur Schichtherstellung verwendet wird.

Die Faraday-Drehung für BIG ist für Wellenlängen von 370 nm gegenüber reinem YIG um etwa eine Größenordnung höher und führt zu einer Vorzeichen-Umkehrung der Drehung im sichtbaren Bereich. Des Weiteren ist BIG wegen seiner deutlich niedrigeren Absorption wesentlich attraktiver für Anwendungen wie z.B. die Sensorik. Diese erfolgreiche Verbesserung der Faraday-Drehung konnte bereits experimentell gezeigt werden. Eine detaillierte Beschreibung des Depositionsprozesses ist in [14–16] zu finden.

Allerdings hat BIG den Nachteil, dass er thermodynamisch instabil ist. Dadurch lässt er sich nur auf Granat-Substraten epitaktisch aufwachsen. Zur Integration z.B. eines kombinierten Halbleiterlasers mit einer magnetooptisch aktiven Granatschicht auf ein Nicht-Granat-Substrat, wie z.B. *Si* oder *SiO<sub>2</sub>*, ist es nötig, zuerst eine Granat-Pufferschicht abzuscheiden. Hierfür eignet sich besonders der YIG, da er durch einen zusätzlichen Annealing-Schritt polykristallin aufwächst [17].

Auf diesen Annealing-Prozess und alternative Annealing-Prozesse wird später noch genauer eingegangen werden (Kap. 5). In den folgenden Abschnitten werden die zur Schichtcharakterisierung verwendeten Analysemethoden kurz vorgestellt.



## 3 Analytische Verfahren

Im folgenden Kapitel wird eine Übersicht über die verwendeten Analysemethoden gegeben. Diese sind zur Untersuchung und Charakterisierung der hergestellten Schichten notwendig.

### 3.1 Rutherford-RückstreuSpektrometrie (RBS)

Die Rutherford-RückstreuSpektrometrie (engl. **R**utherford **B**ackscattering **S**pectrometry, RBS) ist eine häufig angewandte, schnelle präparations- und zerstörungsfreie Methode zur tiefenaufgelösten Untersuchung der chemischen Zusammensetzung oberflächennaher dünner Schichten. [18]

Diese sehr empfindliche Untersuchungsmethode erlaubt unter bestimmten Bedingungen (Elemente im Spektrum getrennt) die Feststellung sehr geringer Elementkonzentrationen. RBS wird auch zur Bestimmung von Schichtdicken herangezogen, falls die Dichte des Materials bekannt ist. Die Grundlage von RBS bildet der klassische Zweiteilchenstoß. Die Probe wird in der Regel mit einem Strahl hochenergetischer Teilchen im Bereich einiger MeV, mit leichten Ionen wie  $\text{He}^{2+}$ ,  $\text{He}^+$  oder  $\text{H}^+$ , beschossen.

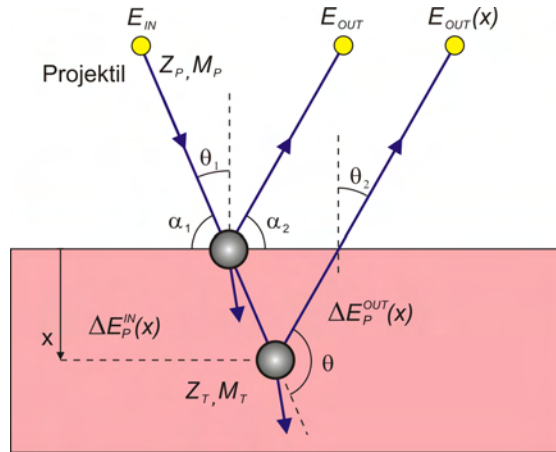
Die Rutherford-RückstreuSpektrometrie macht sich die Rutherford-Streuung zunutze, das bedeutet, dass ein Ion (Teilchenprojektil  $P$ ) am Kern eines Targetatoms  $T$  elastisch gestreut und unter einem bestimmten Winkel detektiert werden kann.

Ein monoenergetischer Strahl leichter Ionen (E. Rutherford benutzte  $\alpha$ -Teilchen 1911) wird auf die zu untersuchende Probe (Target) gerichtet, an welcher eine charakteristische Streuung der Ionen stattfindet. Es folgt die Messung der Energieverteilung der unter einem festen Ausfallswinkel  $\alpha_2$  bei konstanten Einfallswinkel  $\alpha_1$  elastisch rückgestreuten Ionen. [19] Um eine Streuung am unabgeschirmten Kern, d.h. ohne dass Kernreaktionen eine Rolle spielen, zu erreichen, werden die Energien  $E_{\text{in}}$  der eingeschossenen Ionen typischerweise in einem Energiebereich von etwa 0,5–5 MeV gewählt.

In Abbildung 3.1 ist der beschriebene Streuprozess schematisch dargestellt. Zur Veranschaulichung sind zwei Fälle angegeben: Die Streuung direkt an der Targetoberfläche sowie die Streuung innerhalb des Targets in einer Tiefe  $x$  unterhalb der Oberfläche.

#### Elementanalyse

Bei elastischer Streuung des Projektilions  $P$  an der Oberfläche zeigt sich, dass die Rückstreuenergie  $E_{\text{out}} = K_{\text{RBS}} \cdot E_{\text{in}}$  des Ions nur von der Energie  $E_{\text{in}}$  vor dem Stoß und vom sogenannten *kinematischen Faktor*  $K_{\text{RBS}}$  abhängt. Der kinematische Faktor lässt sich aus dem Energie- und Impulserhaltungssatz beim elastischen Stoß berechnen



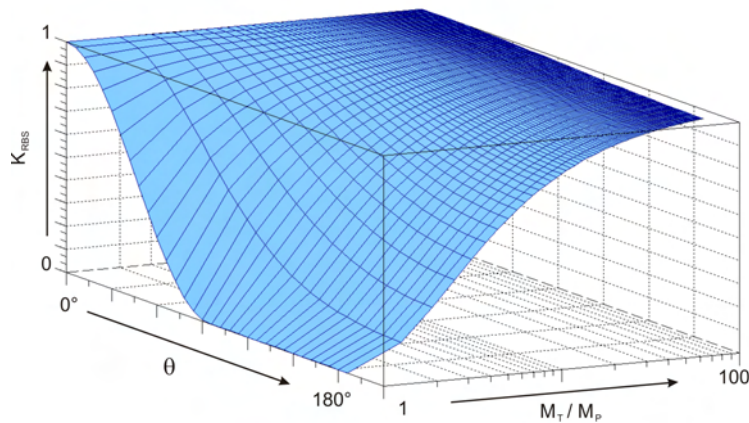
**Abbildung 3.1:** Messprinzip der Rutherford-Rückstreu-spektrometrie (RBS): Schematische Darstellung eines Streuprozesses an der Oberfläche und in einer Tiefe  $x$  einer Probe (nach [19]).

und hängt nur noch vom Streuwinkel  $\theta$  und den jeweiligen Massen von Projektil und Target ab. Für nichtrelativistische He-Projektile, d.h. ( $E_{in} < 4,5 \text{ MeV}$ ), ergibt sich schließlich für  $K_{RBS}$ :

$$K_{RBS} = \frac{E_{out}}{E_{in}} = \left[ \frac{\sqrt{M_T^2 - M_P^2 \sin^2 \theta} + M_P \cos \theta}{M_T + M_P} \right]^2 \quad (3.1)$$

wobei  $M_T$  die Masse des Targetatoms,  $M_P$  die Masse des Projektilions und  $\theta$  den Rückstreuwinkel, unter welchem detektiert wird, bezeichnet.

Die Abhängigkeit zwischen  $K_{RBS}$ ,  $\theta$  und dem Verhältnis  $\frac{M_T}{M_P}$  ist in Abbildung 3.2 graphisch dargestellt. Der kinematische Faktor sinkt je größer der Streuwinkel  $\theta$  ist.



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung der Abhängigkeiten zwischen dem kinematischen Faktor  $K_{RBS}$ ,  $\theta$  und dem Verhältnis  $\frac{M_T}{M_P}$  (Simulation in SciLab).

Dadurch kann das Massenverhältnis von Projektil- zu Targetatom selbst ermittelt werden. Um Aussagen über die Mengen der jeweiligen Atome im Target bzw. deren stöchiometrischen Verhältnis zueinander machen zu können, muss die Streuwahrscheinlichkeit betrachtet werden.

Für Experimente ist ein möglichst kleines  $K_{RBS}$  wünschenswert, da bei geringer Maximalenergie der rückgestreuten Teilchen im Vielkanalzähler eine bessere Auflösung erreicht werden kann. In Abbildung 3.2 ist der kinematische Faktor in Abhängigkeit des Massenverhältnisses ( $\frac{M_T}{M_P}$ ) aufgetragen. Deutlich zu erkennen ist seine Abnahme bei größer werdendem Streuwinkel. Die optimale Analysatorposition wäre bei  $\theta = 180^\circ$ . In dieser Richtung kann aufgrund des einfallenden Strahls nicht detektiert werden, deshalb wird der Analysator meist bei  $\theta = 170^\circ$  positioniert.

Falls ein Target aus mehreren Atomsorten besteht, die sich in ihren Atommassen  $\Delta M_T$  nur geringfügig unterscheiden, ist es wichtig, dass diese Massendifferenz eine möglichst große Energieänderung  $\Delta E_{out}$  verursacht.

### Tiefenanalyse

Nur ein geringer Anteil der eingeschossenen Ionen wird direkt an der Oberfläche des Targets gestreut. Der Großteil dringt bis zu seiner Streuung tief ins Target ein und beim Durchqueren des Targetmaterials erfahren die Ionen mehrfach inelastische elektronische Energieverluste. Dasselbe gilt auch für die rückgestreuten Ionen auf dem Weg zur Targetoberfläche und aus dem Target heraus. Dieser energieabhängige Verlust ist für einige Elemente bereits bekannt [20].

Diese Abhängigkeit des Energieverlustes  $\Delta E(x)$  lässt sich ausdrücken mit Hilfe des *Energieverlustfaktors*  $S$  und durch Abspaltung der Teilchendichte  $n$  kann noch der *Bremsquerschnitt*  $\epsilon$  definiert werden:

$$\Delta E(x) = S \cdot x = n \cdot \epsilon \cdot x \quad (3.2)$$

Der Energieverlust  $\Delta E(x)$  ist also näherungsweise proportional zur Eindringtiefe  $x$  der gestreuten Projektile am Streuzentrum. Es können nun anhand eines RBS-Spektrums auch Informationen über die Tiefenverteilung der Elemente gewonnen werden, da sich für jedes einzelne Element der Energieskala eine Tiefenskala zuordnen lässt. Der Bremsquerschnitt ist ebenfalls elementabhängig. Im Spektrum äußert sich dieser Energieverlust in einem ausgedehnten Plateau, dessen Breite, bei bekannter Dichte der zu untersuchenden Schicht, Aufschluss über die Schichtdicke gibt.

### Stöchiometrie

Die Rückstreuwahrscheinlichkeit liefert in den RBS-Spektren die Intensität des Signals. Dabei ist der differentielle Streuquerschnitt  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  die bestimmende Größe, dessen genaue Form sich aus dem wirksamen Streupotential ergibt. Bei der RBS-Methode kann meist ein unabgeschirmtes Coulombpotential angenommen werden. Diese Annahme liefert den differentiellen Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung unter dem Winkel  $\theta$  der folgende Form annimmt [18, 21]:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{RBS} = \left(\frac{Z_P Z_T e^2}{16\pi\epsilon_0 E}\right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[\sqrt{1 - \left[\frac{M_P}{M_T} \sin \theta\right]^2} + \cos \theta\right]^2}{\sqrt{1 - \left[\frac{M_P}{M_T} \sin \theta\right]^2}}. \quad (3.3)$$

$Z_T$  und  $Z_P$  bezeichnen hierbei die Kernladungszahlen der beteiligten Stoßpartner (Targetatom bzw. Projektil),  $E$  ist die Einschussenergie. Für den Fall, dass  $M_P \ll M_T$  ist

und große Rückstreuwinkel betrachtet werden, lässt sich 3.3 vereinfachen zu

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{Z_P Z_T e^2}{16\pi\epsilon_0 E} \right)^2 \frac{1}{\sin^4(\theta/2)} . \quad (3.4)$$

Da die RBS-Analyse eine  $Z_P^2$ -Abhängigkeit der Rückstreuwahrscheinlichkeit aufweist, ist sie besonders für schwere Elemente sensitiv. Aus der Rückstreuenergie lässt sich das Massenverhältnis zwischen Projektilen und Targetbestandteilen und somit der im Target vorhandenen Atomsorten qualitativ ermitteln. Durch die Kenntnis der Streuwahrscheinlichkeit der Projektilen an den Targetatomen erhält man quantitative Aussagen über das Target. So kann aus den RBS-Spektren durch die Bestimmung der Atomkonzentration auf die Targetstöchiometrie geschlossen werden.

### Simulation von RBS-Spektren mittels SIMNRA

Die Auswertung von Proben, welche aus mehreren Elementen und einem komplexen Schichtaufbau bestehen, erfolgt mit Hilfe einer geeigneten Software, da analytische Verfahren hierfür nicht mehr ausreichen.

Die Auswertung und Simulation der aufgenommenen RBS-Spektren erfolgt mit den Softwarepaketen *RUMP* [22, 23] und *SIMNRA* [24–29]. Dazu wird in der Software zunächst ein Modell des bei der Ablation verwendeten Targets bezüglich seiner Schichtzusammensetzung mit den entsprechenden Elementkonzentrationen erstellt. Das Programm berechnet numerisch das zugehörige RBS-Spektrum, welches iterativ an das tatsächlich gemessene Spektrum angepasst wird. Durch die Simulationsergebnisse erhält man schließlich quantitative Aussagen über die Tiefenverteilung der Elemente und somit den Schichtaufbau des untersuchten Materials. Zur Vertiefung der Rutherford-Rückstreuspektrometrie wird auf die Literatur [18, 21, 30, 31] verwiesen.

### Messungen in dieser Arbeit

Die zurückgestreuten Ionen werden in der verwendeten Anlage unter einem Streuwinkel von  $\theta = 170^\circ$  detektiert und mit Hilfe eines Vielkanalanalysators rechnergestützt ausgelesen. Die Energieauflösung liegt dabei in einem Bereich von etwa 12–18 keV. Zur Analyse der Schichten im Rahmen dieser Arbeit wurden zweifach positiv geladene Heliumionen  $^4\text{He}^{2+}$  mit Energien von 3,6 MeV verwendet.

Die Auswertung der Spektren erfolgte ausschließlich mittels der Software SIMNRA, nach einer Konvertierung in RUMP.

## 3.2 Röntgendiffraktometrie (XRD)

Eine Standardmessmethode zur Charakterisierung von Kristallstrukturen ist die Röntgendiffraktometrie (**X-Ray-Diffraction**). Durch diese Methode lässt sich bestimmen, in welcher kristallinen Modifikation die Schicht vorliegt, welche Ausdehnung die kristallinen Bereiche besitzen und ob die Kristallite eine Vorzugsorientierung aufweisen.

Hierbei wird ausgenutzt, dass die typischen Wellenlängen von Röntgenstrahlungen<sup>5</sup> im Bereich der Netzebenenabstände der untersuchten Kristalle liegen und charakteristische Beugungsbilder entstehen.

Im Folgenden werden nun die wesentlichen Grundlagen dieses Verfahrens und die Standardmessmodi erklärt. Die Ausführungen dieses Abschnittes orientieren sich hauptsächlich an den in [3, 19, 32–38] gegebenen Darstellungen.

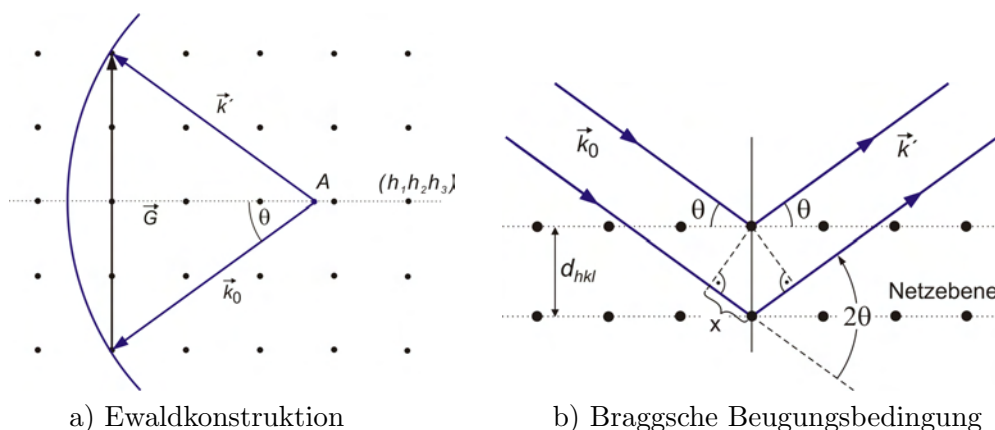
### Beugungsbedingung

Ein monochromatischer Röntgenstrahl trifft auf die Atome eines Kristallgitters. Dadurch werden die Hüllelektronen zu Schwingungen in der Frequenz der einfallenden Strahlung angeregt. Diese emittieren daraufhin Sekundärstrahlung mit der gleichen Frequenz. Aufgrund der periodischen Anordnung der Streuzentren im Gitter kommt es je nach Gangunterschied zu konstruktiver oder destruktiver Interferenz der gebeugten Strahlen. Bei konstruktiver Interferenz treten dann in bestimmten Richtungen Beugungsreflexe im Spektrum auf.

Die Bedingungen für eine konstruktive Interferenz können durch die *Laue-Gleichungen* beschrieben werden. Im reziproken Raum haben diese dann die kompakte Form:

$$\Delta\vec{k} = \vec{k}' - \vec{k}_0 = \vec{G}, \quad |\vec{k}_0| = |\vec{k}'| \quad \text{für elastische Streuung.} \quad (3.5)$$

Ein Röntgenreflex kann nur dann auftreten, wenn der Streuvektor  $\Delta\vec{k}$ , definiert als die Differenz des Wellenzahlvektors  $\vec{k}'$  der gestreuten Welle und  $\vec{k}_0$  der einfallenden Welle, gleich einem beliebigen reziproken Gittervektor  $\vec{G}$  ist.



**Abbildung 3.3:** a) Veranschaulichung der Beugungsbedingung mit Hilfe der Ewaldkonstruktion im reziproken Raum; b) Veranschaulichung der Bragg'schen Beugungsbedingung im Ortsraum.

Die Laue-Gleichungen können im reziproken Raum durch die *Ewald-Konstruktion* wie in Abbildung 3.3a) geometrisch veranschaulicht werden. Eine Form von ihnen ist [39]:

$$2\vec{k}_0 \cdot \vec{G} = G^2 \quad (3.6)$$

<sup>5</sup>( $\lambda \approx 0,1-10 \text{ \AA}$ )

Die Millerschen Indizes ( $hkl$ ) beschreiben die Netzebenen. Der Gitterabstand  $d_{hkl}$  ist somit gegeben durch die folgende Gleichung, wobei die zweite Identität nur für kubische Kristalle mit der Gitterkonstanten  $a$  gilt:

$$d_{hkl} = \frac{2\pi}{|\vec{G}(hkl)|} \stackrel{kub.}{=} \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} . \quad (3.7)$$

Unter Verwendung der Beziehung  $|\vec{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda}$  ( $\vec{k}_0$ : Wellenzahlvektor,  $\lambda$ : Wellenlänge der einfallenden Röntgenstrahlung) lässt sich aus den Lauegleichungen die *Braggsche Beugungsbedingung* [40] ableiten:

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda . \quad (3.8)$$

Dabei ist  $n$  die Beugungsordnung und  $\theta$  der Einfallswinkel der Röntgenstrahlung auf die Kristallebene (Braggwinkel). Diese Gleichung spiegelt die Verhältnisse in Abbildung 3.3b) wider.

Die einfallende Röntgenstrahlung wird teilweise an den Netzebenen des kristallinen Festkörpers reflektiert. Konstruktive Interferenz tritt genau dann auf, wenn der Gangunterschied  $2x$  zwischen den an den einzelnen Netzebenen reflektierten Teilwellen einem ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge  $\lambda$  entspricht.

Der Aufbau der gebräuchlichen Elementarzelle ist bestimmend für die Intensität eines Beugungsreflexes. Bilden Atome innerhalb einer Elementarzelle wiederum Netzebenen, so kann dies durch zusätzliche Reflexionen an diesen Ebenen zur Verstärkung, Abschwächung oder sogar Auslöschung einiger nach der Bragg-Bedingung zu erwartender Reflexe führen [39]. Ausführlichere Darstellungen der Röntgenbeugungstheorie finden sich in [41–43].

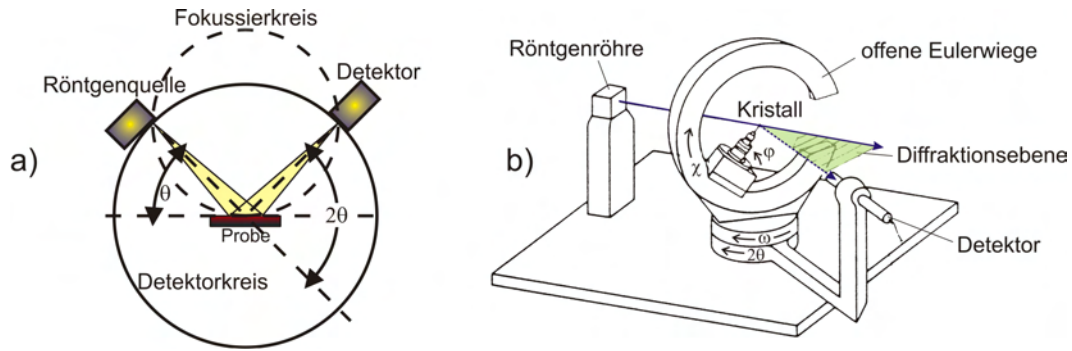
Zur röntgenographischen Charakterisierung von Proben existieren unterschiedliche Beugungsgeometrien. In dieser Arbeit wurde allerdings nur die *Bragg-Brentano-Geometrie* verwendet, deren wichtigsten Eigenschaften im nachfolgenden Abschnitt erklärt werden.

### **Bragg-Brentano-Geometrie**

In Abbildung 3.4 ist der schematische Aufbau der *Bragg-Brentano-Geometrie* aufgeführt [44,45]. Wie dort zu sehen ist, befindet sich die Probe im Mittelpunkt des Detektorkreises, auf dem auch die Röntgenquelle und der Detektor liegen. Die von der fest positionierten Röntgenquelle emittierte Röntgenstrahlung trifft divergent unter einem Winkel  $\theta$  auf die Probe, wird dort gebeugt und unter dem Winkel  $2\theta$  zur Primärstrahlrichtung detektiert.

Zur Realisierung unterschiedlicher Beugungswinkel sind Probe und Detektor beweglich angeordnet. Der Fokussierungskreis FK wird durch die Position des Detektors, der Fokallinie des Primärstrahls und der Probe festgelegt. Auf dem FK ist die Seemann-Bohlinsche Fokussierungsbedingung erfüllt, so dass alle Strahlen des divergenten Primärstrahlenbündels von der Probe auf einen Punkt des Detektorkreises gebeugt werden [47, 48].

Die Messungen in dieser Arbeit wurden an einem *Siemens D5000* Röntgendiffraktometer und einem Pulverdiffraktometer der Firma *Seifert XRD 3003TT* durchgeführt. Diese sind mit einem Vierkreisgoniometer und offener Eulerwiege ausgestattet. Abbildung 3.4 zeigt eine schematische Darstellung einer solchen Anordnung mit den Winkelbezeichnungen der vier Goniometerkreise.



**Abbildung 3.4:** a) Anordnung zur röntgenographischen Messung in Bragg-Brentano-Geometrie. Die Probe steht im Zentrum des Detektorkreises. Die Röntgenstrahlen werden vom Detektor aufgefangen [19]; b) Schematischer Aufbau eines Röntgendiffraktometers mit Vierkreisgoniometer und offener Eulerwiege unter Angabe der Winkelbezeichnungen der vier Goniometerkreise [46].

Als Röntgenquelle dient beim *D5000* eine wassergekühlte Röntgenröhre mit Kupferanode und einer Betriebsleistung von 1,6 kW. Durch eine röhrenförmige Lochblende wird die Divergenz des austretenden Röntgenstrahls auf ungefähr  $0,3^\circ$  begrenzt [46]. Die gebeugte Strahlung gelangt durch variable horizontale und vertikale Blenden in einen sekundärseitigen Graphitmonochromator, der aus dem Spektrum der Cu-Röntgenröhre das intensitätsstarke  $\text{Cu K}\alpha$ -Dublett<sup>6</sup> selektiert. Die transmittierte Strahlung wird von einem Szintillationszähler detektiert. Die Wahl der sekundärseitigen Blenden bestimmt die Auflösung und Lichtstärke des Gerätes.

Die Probe kann über den  $\omega$ -Kreis relativ zum einfallenden Strahl positioniert werden. Der  $\theta$ -Kreis positioniert den Detektor in der Diffraktionsebene.  $2\theta$  bezeichnet dabei den Winkel zwischen Detektor und Primärstrahlrichtung. Die im Mittelpunkt des Goniometers befindliche Probe kann mit Hilfe des  $\chi$ - und  $\phi$ -Kreises um zwei weitere Achsen gekippt bzw. rotiert werden, wodurch sich beliebige Netzebenenscharen in Reflexionsstellung bringen lassen. Die Drehung um den Polarwinkel  $\chi$  entspricht einer Drehung um eine Achse senkrecht zur Ebene der Eulerwiege durch ihren Mittelpunkt. Die Rotation der Probe um den Azimutwinkel  $\phi$  bewirkt eine Drehung der Probe um die durch die Mitte der Eulerwiege verlaufende Probenachsennormale.

Eine Beschreibung und detaillierte Untersuchungen zum *Siemens D5000* Röntgendiffraktometer finden sich z.B. in [46].

### Zählrohrmethode (D5000)

Bei dieser Methode (nach Bragg) wird die Probe so justiert, dass sich eine bestimmte Netzebenenschar  $hkl$  in Reflexionsstellung befindet. Die Probe wird nun um eine Achse senkrecht zur Reflexionsebene gedreht, wobei der Detektor mit der doppelten Winkelgeschwindigkeit  $2\theta$  mitgeföhren wird, so dass der reflektierte Strahl stets in den Detektor fällt. Bei monochromatischer Röntgenstrahlung der Wellenlänge  $\lambda$  findet eine Reflexion immer dann statt, wenn die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Beim Durchdrehen der Probe erscheinen also die Reflexe der Netzebenenschar  $hkl$ .

<sup>6</sup> $\lambda_{\text{K}\alpha 1} = 1,5406 \text{ \AA}$  und  $\lambda_{\text{K}\alpha 2} = 1,5447 \text{ \AA}$  mit einem Intensitätsverhältnis von  $\text{K}\alpha 1 : \text{K}\alpha 2 = 2 : 1$

Aus den auftretenden Reflexen und Winkeln lassen sich Rückschlüsse auf die Textur der Probe ziehen. Letztendlich folgt ein Spektrum von Reflexen, wobei die Intensität gegenüber  $2\theta$  aufgetragen ist.

### Pulvermethode

Bei dieser Methode wird monochromatische Röntgenstrahlung an einem pulverförmigen Präparat, das sich in der Mitte des Meßkreises befindet, gebeugt. Das Pulver besteht im Prinzip aus feinkörnigen Kriställchen, die zufällig orientiert sind, so dass sie für beliebige Netzebenenscharen die Bragg-Bedingung erfüllen. Zudem wird die Probe während des  $\theta$ - $2\theta$ -Scans gedreht. Alle für eine bestimmte Netzebenenschar  $hkl$  zufällig in Reflexionsstellung befindlichen Kristalle reflektieren unter dem Glanzwinkel  $2\theta_{hkl}$ . Die Auswertung einer Pulveraufnahme liefert zunächst die Glanzwinkel  $\theta$  der einzelnen Interferenzlinien und aus diesen können die Netzebenenabstände  $d_{hkl}$  resultieren. Ein solcher Satz an  $d$ -Werten ist für jedes Material charakteristisch. Von Vorteil ist bei der Pulvermethode, dass nur wenig polykristallines Material zur Identifizierung nötig ist. Des Weiteren muss die Probe nicht in  $\phi$  und  $\chi$  justiert werden, was die Messung deutlich vereinfacht.

### $\theta$ - $2\theta$ -Scan

Beim  $\theta$ - $2\theta$ -Scan wird zunächst der reziproke Gittervektor  $\vec{G}_{hkl}$  mittels des  $\phi$ - und  $\chi$ -Kreises in die Diffraktionsebene gedreht. Dann wird die Probe (bei fest montierter Röntgenröhre) um die  $\omega$ -Achse mit  $\omega = \theta$  gedreht, während der Detektor simultan im gleichen Drehsinn mit der doppelten Winkelgeschwindigkeit auf die neue  $2\theta$ -Position verfahren wird (Einfallswinkel=Ausfallswinkel). Wird die Braggsche Beugungsbedingung erfüllt und der ausgezeichnete Winkel durchlaufen, kommt es zur Reflektion des Röntgenstrahls an Netzebenenscharen, deren Normalenvektoren parallel zur Winkelhalbierenden von einfallendem und gebeugtem Strahl liegen.

Im Detektor wird ein Intensitätsmaximum gemessen. Aus den auftretenden Reflexen und Winkeln lassen sich Rückschlüsse auf die Kristallstrukturen und Phasen der Probe ziehen. Aus dem  $\theta$ - $2\theta$ -Wert des Intensitätsmaximums der Reflexe kann mittels der Bragg-Gleichung (3.8) der zugehörige Netzebenenabstand  $d$  berechnet werden. Ein Vergleich mit den PDF-Dateien (Powder-Diffraction-Files [49, 50]) gibt Aufschluss über die in der Probe auftretenden Phasen. In den PDF-Dateien sind eine große Anzahl verschiedenster Substanzen katalogisiert, die mit den Röntgenspektren verglichen werden können. Somit lässt sich überprüfen, ob das kristalline Produkt phasenrein ist oder ob sich noch kristalline Verunreinigungen darin befinden. Diese können im Anschluss durch Vergleich mit weiteren Datenblättern charakterisiert werden.

Das Profil des Röntgenspektrums wird von verschiedenen Faktoren beeinflusst. Zum Einen leistet die Geometrie des experimentellen Aufbaus einen Beitrag zur Verbreiterung, denn das Auflösungsvermögen wird von den verwendeten Detektorblenden begrenzt. Zum Anderen führt sowohl eine Variation der Netzebenenabstände, als auch die endliche Kristallitgröße zu einer Vergrößerung der Halbwertsbreite. Tragen lediglich  $N$  parallele Netzebenen des Abstands  $d_{hkl}$  zur Röntgenstreuung bei, kann mit Hilfe der *Scherrer-Formel* die Kristallitausdehnung  $D_{hkl} = N \cdot d_{hkl}$  senkrecht zur  $(hkl)$ -Netzebenenschar

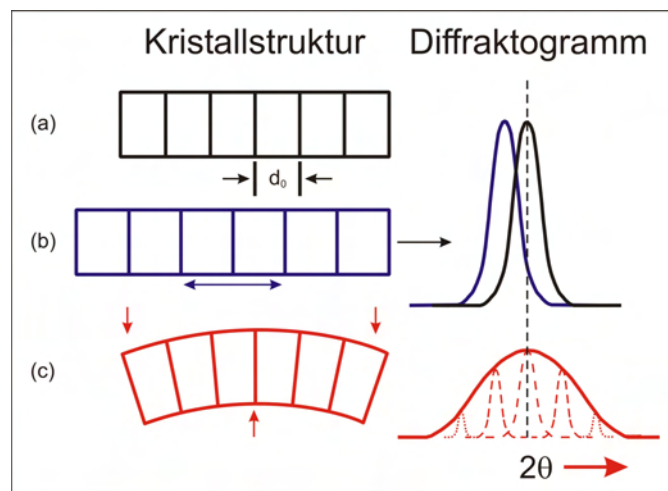


aus der vollen Halbwertsbreite  $\Delta(2\theta) = L$  des Reflexes abgeschätzt werden [34, 41]:

$$D_{hkl} = \frac{K \cdot \lambda}{L \cdot \cos \theta_{hkl}} \quad (3.9)$$

Dabei ist  $\lambda$  die Wellenlänge der Röntgenstrahlung.  $L$  bezeichnet hier die mittlere Ausdehnung der Kristallite in Richtung von  $\vec{G}_{hkl}$ .  $K$  ist eine Konstante, deren exakter Wert von der Form der Kristallite, aber auch von der Definition von  $L$  und  $D$  abhängt. Für kubische Kristallsysteme kann  $K \approx 0,9$  angenommen werden.

Ein weiterer wichtiger Faktor für die Reflexform ist die Materialverspannung. Bei heteroepitaktisch gewachsenen Schichten kommt es aufgrund der Gitterfehlانpassung und durch thermische Spannung fast immer zu einer biaxialen Verspannung der Schicht. Hierbei wird zwischen Makrodehnung (macro-strain) und Makrospannung (macro-stress) unterschieden. Diese durch Gitterfehlانpassung erzeugten Spannungen können beim Wachstum der Schicht ausgeglichen werden. So kommt es sehr oft nach nur wenigen nm zu einer Relaxation dieser Spannungen und das weitere Schichtwachstum findet ungehindert statt. Verspannungen durch einen thermischen Misfit hingegen treten erst nach dem abgeschlossenen Schichtwachstum während des Abkühlvorgangs auf. Diese makroskopischen Spannungen verschieben die Lage der Röntgenreflexe: Eine biaxiale Stauchung der Gitterkonstanten innerhalb der Substratebene bewirkt beispielsweise aufgrund elastischer Deformation des Schichtmaterials eine Dehnung der Gitterkonstanten senkrecht zur Substratoberfläche und somit eine Reflexverschiebung zu kleineren  $2\theta$ -Werten. Negative und positive Reflexverschiebungen entstehen durch lokal gedehnte und gestauchte Schichtbereiche, was in der Summe eine Verbreiterung der Reflexe zur Folge hat. Dies ist die sog. Mikrodehnung bzw. -spannung. Gitterbaufehler (Punktdefekte, Versetzungen) sind für diese lokalen Variationen der Gitterkonstanten verantwortlich. Eine Übersicht dieser Faktoren ist in Abbildung 3.2 gezeigt.



**Abbildung 3.5:** Einfluss der Kristallverspannungen auf das Diffraktogramm. Diffraktogramm einer a) unverspannten Probe mit der Gitterkonstanten  $d_0$ , b) horizontal verspannten Probe wodurch sich der Reflex verschiebt, c) vertikal verspannten Probe was zu einer Reflex-Verbreiterung führt.

### phi-Scan

In der Regel wird die Probe so im Polarwinkel  $\chi$  verkippt, dass es möglich ist, zur Probenoberfläche verkippte Kristallebenen in die Strahl-Detektor-Ebene hinein zu drehen. Die Winkel  $\theta$  und  $2\theta$  müssen dabei bereits auf den Glanzwinkel der zu messenden Netzebene fixiert sein. Die Rotationsachse senkrecht zur Probenoberfläche wird in Schritten  $\Delta\phi$  gedreht. Die Halbwertsbreite  $\Delta\Phi$  dieses Scans ist ein Maß für die Verdrehung der Kristallite in der Ebene.

### chi-Scan

Die Probe wird in Abständen  $\Delta\chi$  gekippt. Hierbei müssen  $\theta$ ,  $2\theta$  und der Azimutwinkel  $\phi$  vorher auf einen Reflex der zu messenden Netzebene eingestellt werden. Die Halbwertsbreite dieses Scans ist ein Maß für die Verkippung der Kristallite aus der Probenoberfläche heraus.

### Polfigurmessung

Zur Texturanalyse mit Hilfe einer Polfigurmessung wird der (hkl)-Reflex (Einfallswinkel  $\theta$  und Beugungswinkel  $2\theta_{hkl}$ ) auf die zu untersuchende Netzebenenchar (Pol) fest eingestellt. Im Anschluss wird der Polarwinkel  $\chi$  von  $0^\circ$ – $90^\circ$  und der Azimutwinkel  $\phi$  im Bereich  $0$ – $360^\circ$  schrittweise variiert und die Intensität der reflektierten Röntgenstrahlung für alle Positionen  $(\phi, \chi)$  gemessen. So entsteht eine Häufigkeitsverteilung der Normalen der {hkl}-Netzebenen bzw. die Poldichtevertelung auf der Polkugel. Der Volumenanteil der unter einem bestimmten  $(\phi, \chi)$ -Winkelpaar beugenden Kristallite in der untersuchten Probe ist dabei proportional zur gemessenen Intensität an diesem Rasterpunkt. Aus der aufgenommenen Poldichtevertelung können somit auf die Orientierungsverteilung der Kristallite in der Probe Rückschlüsse gezogen werden. Die Darstellung der gemessenen Polfigur erfolgt in Form einer *stereographischen Projektion*, in der die Reflexe auf die Äquatorialebene projiziert werden, wobei der Polkugel-Südpol als Projektionszentrum dient [18].

Mit Hilfe von Polfigurmessungen lässt sich auch die Orientierungs- bzw. Epitaxiebeziehung von Substrat zu einer aufgewachsenen Schicht bestimmen. Dazu werden Polfiguren an geeigneten Substrat- und Schichtreflexen aufgenommen und anschließend zueinander in Bezug gebracht.

### Omega-Scan (Rocking-Kurve)

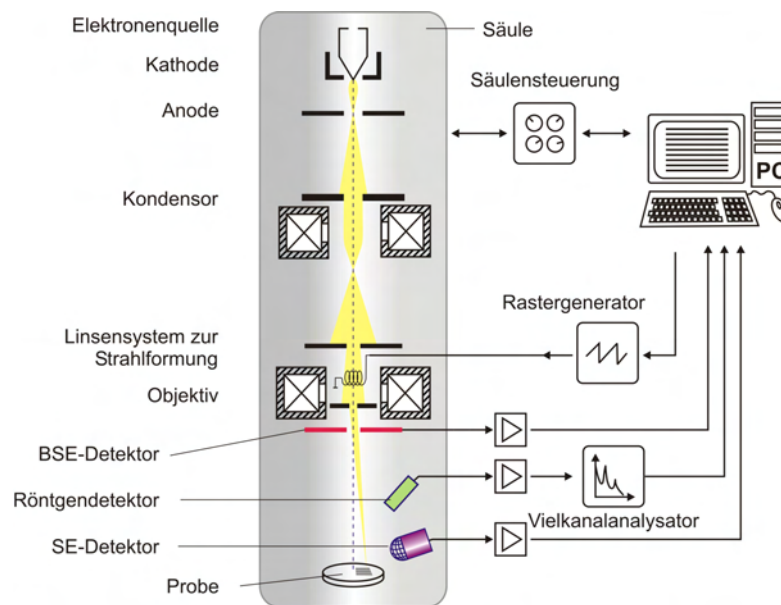
Die *Rockingkurve* ( $\omega$ -Scan) wird zur polaren Texturbestimmung verwendet. Der Detektor des Diffraktometers wird hierbei auf einen Reflex der zu messenden Netzebenenchar (hkl) eingestellt. Der Detektor bleibt nun fest bei diesem  $2\theta$ -Winkel und die Probe wird bei  $\omega = \theta$  in geringen Abständen  $\Delta\theta$  in beiden Drehrichtungen um die  $\omega$ -Achse verfahren. Die Intensitätsverteilung ist ein Maß für die Verkippung der Kristallite aus der Probenoberfläche heraus. Ergibt sich eine unterschiedliche Verkippung der Kristallite in verschiedenen Richtungen, so muss auch noch  $\phi$  entsprechend eingestellt werden.

### 3.3 Rasterelektronenmikroskopie (REM, ESEM und TEM)

In diesem Kapitel wird eine Übersicht über die in dieser Arbeit verwendeten elektronenmikroskopischen Analyseverfahren gegeben. Der Inhalt dieses Abschnitts richtet sich, sofern keine gesonderten Quellen angegeben sind, nach den Literaturquellen [51–55]. Dort können tiefgehende Darstellungen gefunden werden.

#### 3.3.1 Rasterelektronenmikroskopie

Zur topologischen Untersuchung von Schichten eignet sich die Rasterelektronenmikroskopie am besten. Diese ist ein modernes Verfahren zur Abbildung und Untersuchung von Oberflächen, wenn deutlich höhere Auflösungen als mit klassischen Lichtmikroskopen erzielt werden sollen.



**Abbildung 3.6:** Schematische Darstellung von Aufbau und Funktion eines modernen Rasterelektronenmikroskops mit Vielkanalanalysator (MCA) für EDX-Untersuchungen.

Der Aufbau und das Funktionsprinzip eines modernen Rasterelektronenmikroskops ist in Abbildung 3.6 angeführt. Ein fein gebündelter Elektronenstrahl wird in der evakuierten Mikroskopssäule im Hochvakuum (ca.  $1 \cdot 10^{-5}$  mbar) mit Hilfe magnetischer Linsen auf die Probe fokussiert und über die Oberfläche gerastert.

Die Wechselwirkung zwischen gerastertem Strahl und Probe löst an jedem Punkt auf der Oberfläche verschiedene Reaktionen aus, die mit geeigneten Detektoren empfangen und ausgewertet werden können. Die Gesamtheit der abgerasterten Punkte erzeugt aus den Detektor-Signalen ein orts aufgelöstes Bild der Probe auf dem Bildschirm des Steuerrechners.

Die Vorteile der Rasterelektronenmikroskopie liegen in der Tiefenschärfe, der Auflösung, dem Kontrast und der nicht notwendigen Probenpräparation. Nachteile entstehen durch das benötigte Hochvakuum und durch den Elektronenstrahl verursachte Aufladungseffekte, die an isolierenden Proben und Oberflächen auftreten können.

Die Probenkammer ist von der Säule getrennt und kann mit Hilfe von Ventilen separat abgepumpt werden. Dies ermöglicht einen schnellen Probenwechsel.

### Wechselwirkung zwischen Elektronenstrahl und Probe

Der fokussierte Elektronenstrahl wechselwirkt mit der zu untersuchenden Probenoberfläche. Dies führt zu elastischen und inelastischen Streuprozessen, wobei *Sekundärelektronen* (SE, Secondary Electrons), *rückgestreute Elektronen* (BSE, Back Scattered Electrons), *Auger-Elektronen* (AE) und *Röntgenstrahlung* die Probe verlassen und detektiert werden können. Die detektierten Signale stammen dabei aus verschiedenen Bereichen um den einfallenden Elektronenstrahl. Primärelektronen dringen am Auftreffpunkt des Elektronenstrahls in die Probe ein und werden durch mehrfache Streuprozesse, je nach Elektronenenergie und Dichte des Materials, bis zu einer Tiefe von 10  $\mu\text{m}$  verlangsamt. Der Bereich der aus der Probe rückgestreuten Elektronen (BSE) ist kleiner. Die charakteristische Röntgenstrahlung stammt aus einem noch kleineren, birnenförmigen Gebiet der Probe, da ausreichend Elektronenenergie vorhanden sein muss. Aus einer nur wenige Nanometer dicken Oberflächenschicht der Probe kommen Sekundärelektronen und Auger-Elektronen. Das zur Bilderzeugung gemessene Signal ist das Ergebnis von Vielfachstreuprozessen innerhalb der Probe.

### Sekundärelektronen (SE)

Die Primärelektronen regen oberflächennah die Emission von Sekundärelektronen an. Diese inelastische Anregung der Hüllenelektronen ist gerade so groß wie die Austrittsarbeit, die notwendig ist, um die Probe zu verlassen<sup>7</sup>. Die SE können anschließend sehr einfach, auf Grund ihrer Energie von nur wenigen eV, mittels eines positiv geladenen Auffanggitters zum SE-Detektor hin, der sich schräg oberhalb der Probe befindet, abgesaugt werden.

Dem Detektor zugewandte Oberflächenbereiche sowie Kanten oder kleinere Partikel führen zu einer verstärkten Emission. Dieses höhere Signal wird bei der Bilderzeugung heller dargestellt und es ergibt sich ein plastisches Bild. Zusätzlich gibt es einen sog. *Schattenkontrast*, da aus Bereichen, die dem Detektor abgewandt liegen, nicht alle emittierten SE eingefangen werden. Diese Bereiche erscheinen somit dunkler. Kanten und Spitzen auf der Probe können sich elektrisch aufladen, was lokal zu einer starken Erhöhung des elektrischen Feldes und dadurch zu einer erhöhten SE-Emission führt. Das Ergebnis im SE-Modus ist eine Abbildung der Oberflächentopographie mit Licht und Schatten. Lediglich starke Vertiefungen wie Poren oder Löcher liefern kein Signal mehr und erscheinen im Bild schwarz. Die Gesamtheit dieser Effekte führt zum plastischen Aussehen der Aufnahmen.

Die hohe Auflösung des SE-Modus rührt daher, dass die SE aus einer geringen Probtiefe von nur wenigen Nanometern und größtenteils (20–50 %) direkt aus dem Brennfleck des Primärstrahls stammen. Die restlichen SE kommen aus einem deutlich größeren Bereich, erzeugt durch rückgestreute Elektronen (BSE). Somit beinhaltet jede SE-Aufnahme auch immer einen gewissen Anteil an BSE-Kontrast.

<sup>7</sup>Tiefen aus der Sekundärelektronen noch entweichen können betragen zwischen 5 nm (Metalle) und 50 nm (Isolatoren) [54, 56].

### Rückgestreute Elektronen (BSE)

Hochenergetische Primärelektronen treffen auf die Probe und werden zum Teil elastisch zurückgestreut. Sie bewegen sich nur auf geraden Bahnen, so dass sie unter einem Winkel von etwa  $180^\circ$  detektiert werden können (**B**ack **S**cattered **E**lectron-Detektor oder auch InLens-Detektor<sup>8</sup>). Sie werden vom Primärelektronenstrahl aus größerer Probentiefe und -breite (einige Mikrometer) angeregt als die Sekundärelektronen. BSE-Detektoren müssen damit einen möglichst großen Raumwinkel abdecken, um ausreichend BSE einzufangen.

Um niederenergetische Sekundärelektronen abzuhalten, wird an den Detektor ein elektrisches Feld angelegt. Im Gegensatz zum SE-Detektor erhält man mit dem BSE-Detektor neben der Oberflächentopographie vor allem zusätzliche Informationen über:

- *Materialkontrast oder Z-Kontrast:*  
Durch Wechselwirkung mit den Hüllenelektronen der angeregten Atome ist die Energie der Rückstreuelektronen um so größer, je höher die Ordnungszahl der Atome ist. Zwar steigt auch die SE-Ausbeute mit zunehmender Kernladungszahl, jedoch bei Weitem nicht so ausgeprägt. Der Detektor erhält also mehr Signal von schweren als von leichten Atomen. Aufgrund des Materialkontrastes können auch verschiedene Phasen unterschieden werden, wenn sie sich in Z unterscheiden [57, 58].
- *Kristallorientierung:*  
Die Eindringtiefe der Primärelektronen ist größer wenn die Elektronen in den Kristallkanälen entlang der Netzebenen laufen können. Ein hoher Anteil der tief in die Schicht eingedrungenen Primärelektronen verliert auf Grund der Streuung an einem Atom seine ideale Bahn im Kanal. Anschließend werden sie durch Mehrfachstreuung in der Schicht stark abgebremst und abgelenkt, so dass sie den Detektor nicht mehr erreichen können. Dadurch wird die gemessene Intensität an solchen Kristallen niedriger, was einen von der Kristallorientierung abhängigen Kontrast zur Folge hat.

Die Emission von rückgestreuten Elektronen hängt allerdings auch vom Einfallswinkel ab. Bei starker Vergrößerung zeigt sich eine reduzierte Auflösung, da die BSE aus einem größeren Probenvolumen emittiert werden.

### Energiedispersive Röntgenanalyse (EDX)

Reichen die Elektronenenergien aus, um Elektronen aus den inneren Schalen zu ionisieren<sup>9</sup>, entsteht bei der Wechselwirkung von Elektronenstrahl mit Materie charakteristische Röntgenstrahlung.

Bei der *energiedispersiven Röntgenspektroskopie* (**E**nergy **D**ispersive **X**-ray Analysis) wird das Energiespektrum der emittierten Röntgenstrahlung mittels eines stickstoffgekühlten Si(Li)-Detektors aufgenommen [59]. Die charakteristische Röntgenstrahlung enthält eine Vielzahl von verschiedenen Linien, die den im bestrahlten Probenbereich vorkommenden Elementen zugeordnet werden können.

<sup>8</sup>Der Detektor befindet sich je nach Bauart in oder nahe der Linse. Meist werden Halbleiterdetektoren verwendet.

<sup>9</sup>Die Energie der Elektronen muss zur Anregung mindestens der Bindungsenergie einer Schale der Hüllenelektronen entsprechen. Die Fluoreszenzausbeute hat i.d.R. ein Maximum bei der doppelten Energie des für die Auswertung gewünschten Übergangs.

Des Weiteren ist die Intensität der Röntgenstrahlung proportional zur Anzahl der durch Elektronen beschossenen Atome. So kann aus den gemessenen Intensitätsverhältnissen der entsprechenden Röntgenlinien auf die relative atomare Häufigkeit geschlossen werden.

Eine quantitative Auswertung der Linienintensitäten ist durch eine Analysesoftware möglich, so dass die Elementzusammensetzung der Probe bestimmt werden kann. Die Software ist allerdings nicht auf die Analyse dünner Filme ausgelegt. Der Fehler liegt ohne aufwändige Referenzmessungen bei etwa 10–20%. Somit wurde auf eine quantitative Aussage bei den Proben verzichtet. Einzelne Messungen an gleichen oder ähnlichen Proben lassen sich jedoch sehr gut vergleichen. Ebenfalls können bei den Targetanalysen sehr genaue qualitative und quantitative Aussagen gemacht werden.

Für weiterführende Literatur wird zusätzlich auf [49, 58] verwiesen.

### 3.3.2 ESEM

Die Weiterentwicklung des SEM ist das sog. ESEM (**E**nvironmental **S**canning **E**lectron **M**icroscope).

Im Gegensatz zum klassischen Rasterelektronenmikroskop genügt dem ESEM ein Grobvakuum. Somit ist es während des Betriebs möglich, den Probenraum bis zu einem Druck von 13 mbar mit Wasserdampf zu fluten. Dadurch können Aufladungseffekte an isolierenden Proben vermieden oder vakuum-schädliche Proben untersucht werden. Diese besonderen Eigenschaften des ESEM basieren auf einem aufwendigen Vakuumsystem mit differentieller Pumpung der Objektivaufsätze und speziellen Blendeneinsätzen [60].

In dieser Arbeit stand ein *XL30 ESEM FEG* der Firma *Fei* zur Verfügung. Eine Feldemissionsquelle erlaubt dabei Strahlenergien bis 30 keV. Neben dem Hochvakuumbetrieb (HIVAC) gibt es mehrere ESEM-Betriebsmodi, bei denen unterschiedliche Detektoren zum Einsatz kommen.

Für die Untersuchungen in dieser Arbeit wurde ausschließlich der ESEM-Modus mit BSE-Detektor verwendet. Im Probenraum wurde ein Wasserdampfdruck von 0,3–0,5 mbar eingestellt.

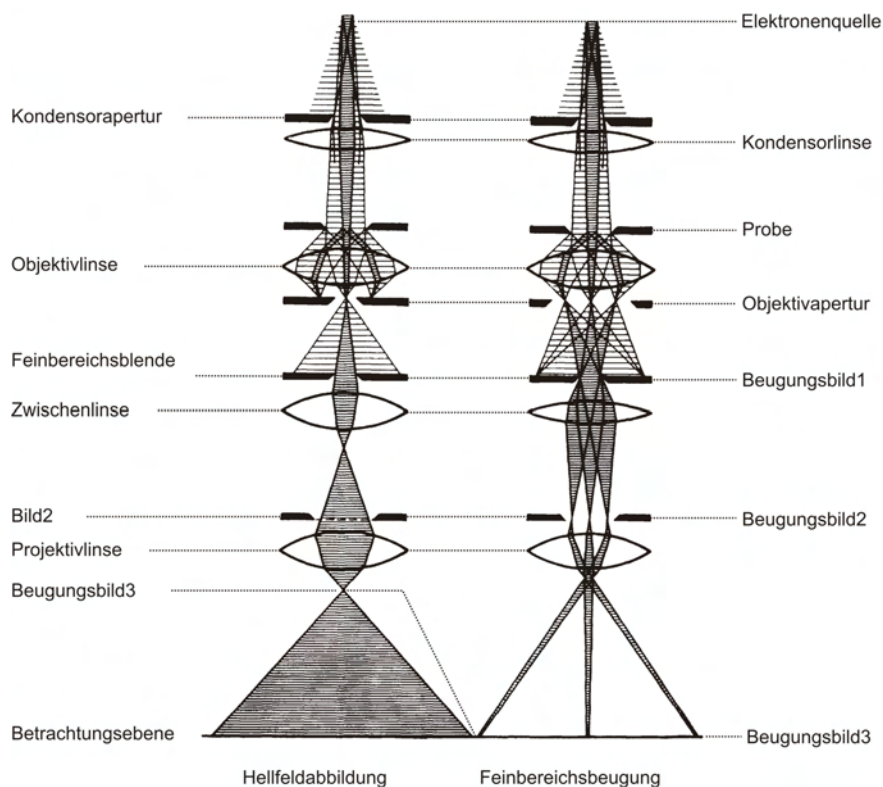
### 3.3.3 Transmissionselektronenmikroskopie - TEM

Die *Transmissionselektronenmikroskopie* (**T**ransmission **E**lectron **M**icroscopy, TEM) ist eine bildgebende Untersuchungsmethode, bei der die zu untersuchende Probe im Gegensatz zu SEM oder ESEM mit einem hochenergetischen Elektronenstrahl durchstrahlt wird. Das Verfahren ermöglicht die Untersuchung kleinster Strukturen oder Defekte mit sehr hoher Auflösung auf Grund der kleinen Wellenlänge von Elektronen.

Die Bildgebung erfolgt dabei durch magnetische Linsen. Eine elastische Streuung der Elektronen an Atomkernen bewirkt eine Phasenänderung der Elektronenwelle bei vernachlässigbarem Energieverlust. Streuen die Elektronen dagegen inelastisch an den Elektronenhüllen führt dies zu einem elementspezifischen Energieverlust. Durch eine energieaufgelöste Aufnahme dieser Elektronen ist eine Elementanalyse möglich.

Durch die starke Wechselwirkung zwischen Elektronen und Probe können allerdings nur extrem dünne (elektronentransparente) Bereiche einer Probe untersucht werden, die speziell und sehr zeitaufwändig präpariert werden müssen.

Der prinzipielle Aufbau und Strahlengang eines Transmissionselektronenmikroskops ist in Abbildung 3.7 schematisch dargestellt.



**Abbildung 3.7:** Wellenoptischer Strahlengang im Transmissionselektronenmikroskop: a) Hellfeldabbildungsmodus: Die Zwischenlinse fokussiert auf das erste Bild; b) Feinbereichsbeugung: Die Zwischenlinse fokussiert auf das erste Beugungsbild

Die aus einer Elektronenkanone emittierten Elektronen werden, je nach Gerät, auf Energien im Bereich von 100 keV bis 1 MeV beschleunigt. Ein mehrstufiges System aus Kondensorlinsen mit Blenden ermöglicht eine Regelung der Probenbeleuchtung. Der spezielle Probenhalter kann je nach Bautyp die Probe um ein oder zwei Achsen kippen und in zwei Richtungen bewegen. Unterhalb der Probe befindet sich ein Linsensystem bestehend aus einer Objektivlinse mit Objektivapertur und Feinbereichsbeugungsblende sowie einem Projektivlinsensystem. Je nach Betriebsmodus des Mikroskops bildet dieses entweder die hintere Brennebene oder die Bildebene des Objektivs auf die CCD-Kamera ab.

Zur Untersuchung kristalliner Proben stehen beim TEM unterschiedliche Betriebsmodi zur Verfügung, die im Folgenden kurz erläutert werden sollen:

- *Hellfeldabbildung:*

Für diese Abbildung wird lediglich der ungebeugte Primärstrahl genutzt; alle gebeugten Strahlen werden mit Hilfe der Objektivblende ausgeblendet. Die Zwischenlinse wird auf die erste Bildebene der Objektivlinse fokussiert, so entsteht ein optisches Abbild der Probe. Einerseits entsteht ein Bildkontrast aus der Beugung der Elektronen des Primärstrahles in kristallinen Bereichen der Probe, andererseits werden Elektronen in unterschiedlich dichten oder amorphen Bereichen verschieden stark absorbiert.

- *Dunkelfeldabbildung:*  
Im Gegensatz zur Hellfeldabbildung wird ein ausgewählter gebeugter Strahl aus der Vielzahl der auftretenden Reflexe zur Anregung mit der Objektivblende zur Abbildung verwendet. Durch Verkippen des Primärstrahls fällt lediglich der gewünschte gebeugte Strahl entlang der optischen Achse durch die Objektivapertur. In diesem Modus erscheinen im Bild der Probe nur die kristallinen Bereiche hell, die zur Erzeugung des ausgewählten Reflexes beitragen. Bei ausgeblendetem Primärstrahl erscheinen nichtkristalline Gebiete dunkel.
- *Feinbereichsbeugung (Selected Area Electron Diffraction, SAED):*  
Im Vergleich zur Dunkelfeldabbildung wird in diesem Modus die Zwischenlinse auf die hintere Brennebene der Objektivlinse fokussiert. Die Projektivlinse liefert somit das Beugungsbild eines begrenzten Probenbereichs, der mit Hilfe der Feinbereichsblende gezielt ausgewählt werden kann. Die einzelnen Reflexe werden direkt abgebildet. Die Elektronen werden analog zur Röntgenbeugung der Braggformel entsprechend in den kristallinen Bereichen der Probe gebeugt, wodurch ein Abbild des reziproken Gitters auf dem Leuchtschirm entsteht. Mit Hilfe der Feinbereichsblende lässt sich der gewünschte Bereich der Probe selektieren und analysieren.

Mit Hilfe der *hochauflösenden TEM* (**H**igh **R**esolution TEM, HRTEM) ist es möglich, bei genügend dünnen Proben das Kristallgitter der Probe abzubilden. Der Elektronenstrahl wird so einorientiert, dass er die Probe entlang einer niedrig indizierten Zonenachse durchstrahlt. Die HRTEM-Abbildung entsteht durch Interferenzen des Primärstrahls mit der Beugung erster Ordnung. Die erreichbare Auflösung liegt typischerweise bei ca. 2 Å.

Verschiedene Methoden wie *Elektronenverlustspektroskopie* (EELS, **E**lectron **E**nergy **L**oss **S**pectroscopy) und der *energiegefilterten TEM* (EFTEM, **E**nergy **F**iltered **T**EM oder ESI, **E**lectron **S**pectroscopic **I**maging) ermöglichen es, Rückschlüsse auf die Elementzusammensetzung der Probe zu ziehen und eine elementspezifische Abbildung der Probe zu erhalten. Der Energieverlust der Elektronen entsteht durch Zusammenstöße der Primärelektronen mit Hüllelektronen der Atome. Sie können durch ein magnetisches Prisma nach ihren Energien aufgespalten und so energieaufgelöst detektiert werden. Durch Interpretation der so entstehenden Kanten des Spektrums kann auf die Elemente in der Probe geschlossen werden. [61]

In der vorliegenden Arbeit wurden nur wenige ausgewählte Proben mittels TEM untersucht. Dazu stand ein *Philips CM300* TEM zur Verfügung. Dieses Mikroskop arbeitet mit einer Beschleunigungsspannung von 300 kV. Ein *Gatan Imaging Filter* (GIF) erlaubt es, energiegefilterte Abbildungen aufzunehmen. Zur Untersuchung der Proben muss eine spezielle Querschnittspräparation stattfinden, damit die Proben mit dem Elektronenstrahl durchleuchtet werden können. Dabei werden aus einer Probe zwei kleine Stücke herausgesägt, die beiden Teile an ihren Oberflächen aufeinandergeklebt, in ein Messingtöpfchen eingebettet und dann quer zum Klebespalt mechanisch bis zu einer Dicke von einigen 10 µm abgedünnt. Anschließend wird mit einem 5 keV Argonionenstrahl solange unter streifendem Einfall (3–6 %) gesputtert, bis im Bereich der Schicht ein Loch entsteht, an dessen keilförmigen Rändern eine Dicke vorliegt, die zur TEM-Untersuchung geeignet ist. Da die Proben nach der Präparation für weitere Untersuchungen unbrauchbar wurden, konnten nur ausgewählte Proben mit dieser Methode untersucht werden.



### 3.4 Rasterkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy, AFM)

Mit der Rasterkraftmikroskopie können sowohl an elektrisch leitenden als auch isolierenden Proben topographische Untersuchungen durchgeführt werden [62]. Bei dieser Technologie nutzt man die Wechselwirkung zwischen den obersten Schichtatomen der Oberfläche und den äußersten Atomen einer Spitze aus und es kann theoretisch sowohl lateral als auch senkrecht zur Oberfläche atomare Auflösung erreicht werden [63].

Die Aufnahmen in dieser Arbeit wurden an einem AFM *Autoprobe CP-Research* der Firma *Thermo Microscopes* erstellt [63, 64].

Es existieren zwei Messmodi, dies sind der Kontakt- (Contact-AFM, C-AFM) und der Nicht-Kontakt-Modus (Non-Contact-AFM, NC-AFM), wobei ausschließlich der Letztere verwendet wurde. Bei beiden rastert eine feine Spitze (Spitzenradius etwa 10 nm) über die Probenoberfläche. Im C-AFM wird direkt die Auslenkung der Spitze aufgrund der Kraftwirkung der Oberflächenatome auf die Spitze gemessen. Beim NC-Modus wird die in einem beweglichen Cantilever senkrecht zur Probenoberfläche befestigte Spitze zu einer erzwungenen Schwingung mit einer Frequenz  $f$  angeregt. Diese ist etwas größer als die Resonanzfrequenz  $f_0$  (Größenordnung 250 kHz) des ungestörten Systems [65]. Zwischen Spitze und Probe kommt es zu einer durch van-der-Waals-Kräfte hervorgerufene Wechselwirkung, da die Amplitude der Spitze nur einige Nanometer und der Abstand zwischen Spitze und Probe nur einige Å beträgt [66].

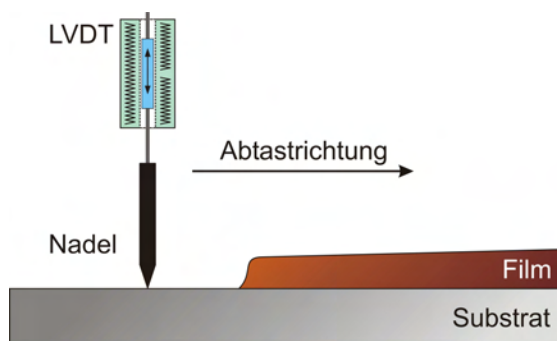
Durch die Distanz-Veränderung von Probe zu Spitze ändert sich diese Kraft und führt zu einer Verschiebung der Resonanzfrequenz auf einen niedrigeren Wert  $f'_0$ , weshalb sich auch die Schwingungsamplitude ändert. Da  $f$  und Resonanzfrequenz sehr nah beieinander liegen, ist diese Änderung groß genug um gemessen werden zu können. Hierfür detektiert eine segmentierte Photodiode die Ablenkung eines am Cantilever reflektierten Laserstrahls. Der Abstand Spitze-Probe wird durch Rückkopplung dieses Signals in die Steuerung mit Hilfe eines  $z$ -Piezos nachgeregelt, so dass die Schwingungsamplitude des Cantilevers konstant gehalten werden kann, während die Probe in  $x$ - und  $y$ -Richtung an der Spitze entlangefahren wird. Die Auslenkung  $z$  des Piezos, um welche die Spitze nachgeregelt wurde, entspricht der Höheninformation der Oberfläche.

Aus den gemessenen Aufnahmen können beispielsweise Rückschlüsse auf die Proben-Rauigkeit  $R_a$ ,  $R_q$  bzw.  $RMS$  gezogen werden. Die Rauigkeit  $R_a$  ist dabei das arithmetische Mittel der Abweichungen vom Mittelwert (Average Arithmetic Roughness),  $R_q$  beschreibt die *quadratische Rauigkeit*. RMS ist die Standardabweichung der Rauigkeit (Root Mean Square roughness).

### 3.5 Profilometrie mittels DEKTAK

Zum Vergleich der durch RBS ermittelten Schichtdicken kam unter anderem ein Profilometer vom Typ *Dektak 8 - Veeco Instruments* zum Einsatz.

Das Funktionsprinzip des Oberflächen-Profil-Messgerätes ist in Abbildung 3.8 zu sehen. Hierbei handelt es sich um ein mechanisches Messverfahren. Eine feine Nadel mit Diamantspitze (der Kopfradius beträgt ca. 10  $\mu\text{m}$ ) wird unter einer geringen Auflagekraft (0,01–0,15 mN) mit konstanter Geschwindigkeit lateral entlang einer geraden Strecke über die Probe geführt. Während der Abrasterung der zu untersuchenden Oberfläche,



**Abbildung 3.8:** Funktionsprinzip der Schichtdickenbestimmung mittels DEKTAK-Profilometer: Eine Nadel wird unter geringer Kraft über die Probe gerastert. Die Auslenkung wird durch einen LVDT-Sensor mit hoher Präzision bestimmt.

wird die Auslenkung der Nadel mit hoher Präzision vertikal in einem LVDT-Sensor registriert (**L**inear **V**ariabler **D**ifferential **T**ransformator).

Dieser LVDT-Sensor besteht aus drei Magnetspulen (einer Primär- und zwei Sekundärspulen) und einem Weicheisenkern. Die Stellung des Kerns, der mit dem Stift verbunden ist, zu der Spulenkombination, bestimmt den magnetischen Fluss der Anordnung (zwischen Primär- und Sekundärspule). An die Primärspule wird nun eine konstante Wechselspannung angelegt, wodurch in den Sekundärspulen, je nach Stellung des Kerns, eine verschieden große Wechselspannung induziert wird. Diese Größen können sehr genau gemessen werden und zur Bestimmung der Stiftauslenkung verwendet werden.

Durch mehrere Messungen in x- und y-Richtung, erhält man so auch ein zweidimensionales Bild des Höhenverlaufs der mittels PLD deponierten Schicht, das eine maximale Auflösung von 0,1 nm ermöglicht. Mit nur wenig Aufwand können hierdurch nicht nur Stufenhöhen, sondern auch, analog zur Messung mit dem Rasterkraftmikroskop, Oberflächenrauigkeiten bestimmt werden.

Für die profilometrische Schichtdickenbestimmung muss das Substrat während der Deposition an einer Stelle abgedeckt werden, so dass eine messbare Stufe entsteht. Unter Annahme einer homogenen Schicht ergibt sich im Bereich der Stufe dann die Filmstärke.

Um den Messfehler möglichst gering zu halten, werden die Schichtdicken an mehreren Stellen der Stufe bestimmt und anschließend gemittelt, da die Filme sehr oft starke Gradienten der Schichtdicken in verschiedenen Richtungen aufweisen.

### 3.6 Photolumineszenzmessungen

Mit Hilfe der Photolumineszenzspektroskopie (PL) können die Energiezustände innerhalb der Bandlücke eines Halbleiters untersucht werden. Strahlt man monochromatisches Licht mit einer Energie größer als die Bandlücke in einen Halbleiter ein, werden Elektronen vom Valenzband ins Leitungsband angeregt. Beim strahlenden Rekombinationsprozess der angeregten Zustände wird dann die Energiedifferenz des Anfangs- und Endzustandes vollständig als Photon emittiert und kann detektiert werden. Anfangs- und Endzustände können dabei neben dem Leitungs- und Valenzband auch Zustände innerhalb der Bandlücke sein. Es können Übergänge zwischen einem Donator- und Akzeptorniveau oder zwischen dem Leitungsband und einem Akzeptorniveau stattfinden.

Für die Anregung wird ein HeNe-Laser mit einer Wellenlänge von 634,8 nm verwendet mit einer Ausgangsleistung von 6 mW. Das Laserlicht wird durch eine single-mode-Faser zu einer Kollimationseinheit geleitet, in der das kohärente Licht parallel zur optischen Achse der nachfolgenden Systemkomponenten ausgerichtet werden kann. Mit Hilfe von Abschwächern und eines Filterrades kann die einzustrahlende Anregungsleistung auf der Probe eingestellt werden. Ein Teil des Laserstrahls wird durch einen Strahlteiler vorher ausgeblendet, um eine Referenzmessung machen zu können.<sup>10</sup> Der andere Teil wird durch einen Spiegel (8% Reflexion) geleitet und anschließend mittels eines Mikroskopobjektivs, das mit einem Piezo höhenverstellbar ist, auf die zu untersuchende Probe fokussiert. Der Strahl hat in etwa einen Durchmesser von 1  $\mu\text{m}$ , was einer Leistungsdichte von  $3600 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  entspricht. Zur Messung werden die Proben auf einen Spiegel gelegt, wobei die dort emittierte Strahlung und der reflektierte Anteil des Laserlichts über einen durchlässigen Spiegel in eine multi-mode-Faser eingekoppelt und an ein Spektrometer *Triax 550* der Firma *Jobin Yvon* weitergeleitet wird. Eine Linse fokussiert den Strahl auf den Eintrittsspalt des Spektrometers, wobei ein vorgeschalteter Langpassfilter das Streulicht des HeNe-Lasers ausblendet. Im Spektrometer befinden sich ein stickstoffgekühlter InGaAs-Detektor und ein Czerny-Turner-Monochromator mit drei unterschiedlichen optischen Gittern, welche auf einem Drehkreuz gelagert sind. Zur Messung im infraroten Wellenlängenbereich bei 1550 nm wurde ein Gitter mit  $150 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$  ausgewählt. Am Steuerrechner kann das jeweilige Gitter gewechselt, die Shutteröffnung verändert und der zu messende Wellenlängenbereich ausgewählt werden.<sup>11</sup> Die in dieser Arbeit durchgeführten Photolumineszenzmessungen wurden bei Prof. Finley an der TU München durchgeführt.

### 3.7 Der Faraday-Messplatz

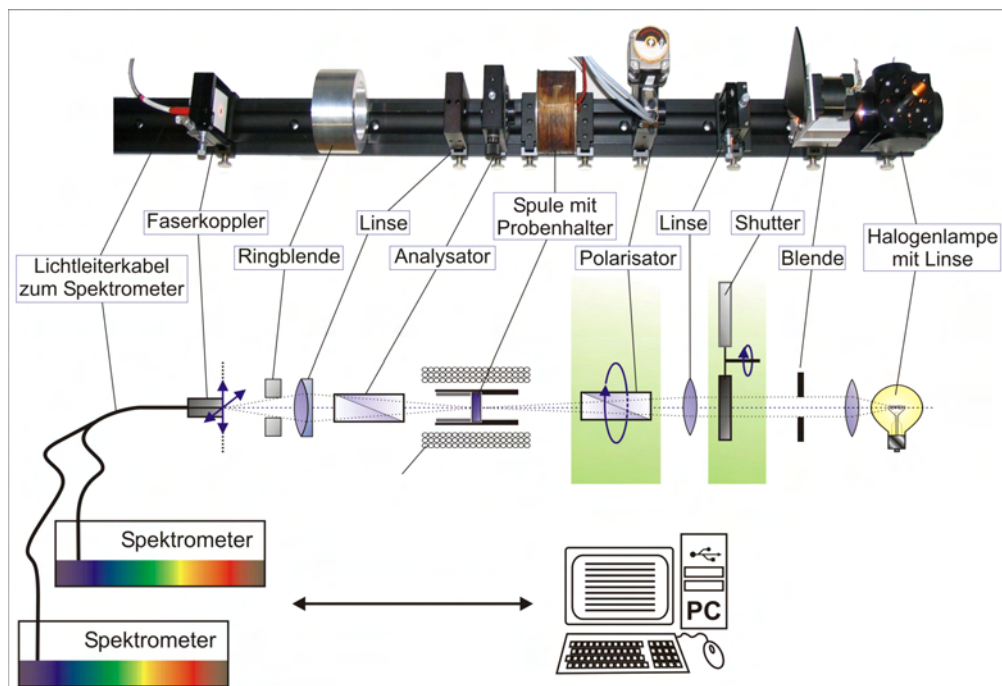
Magnetooptisch aktive Materialien zeichnen sich durch die Eigenschaft aus, dass sie die Polarisations Ebene von Licht drehen. Deshalb ist die Charakterisierung der interessanten und technisch relevanten Seltenerd-Eisengranate von großer Bedeutung. Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit war es, magnetooptisch aktive Granate auf Puffersysteme abzuscheiden. Ein guter Indikator für die Schichtqualität ist der Faraday-Effekt der hergestellten Seltenerd-Eisengranate. Des Weiteren interessiert vor allem die Auswirkung einer Substitution auf diesen.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte ein Faraday-Messplatzes konzipiert werden, mit welchem die Faraday-Elliptizität  $\psi(\lambda)$  und die Faraday-Drehung  $\theta(\lambda)$  einer Probe in Abhängigkeit vom angelegten Magnetfeld und der Wellenlänge des transmittierten Lichtes bestimmt werden kann. Da mit diesem Aufbau alle Granatschichten untersucht wurden, wird er im Folgenden kurz vorgestellt werden. Für eine detailliertere Beschreibung wird auf [3] verwiesen, da der Aufbau eine gemeinschaftliche Entwicklung war.

Der Versuchsaufbau zur Messung der Faraday-Drehung ist in Abb. 3.9 zu sehen. Das aus einer Lampe austretende weiße Licht wird linear polarisiert, durchquert zunächst die magnetisierte Probe, anschließend einen Analysator und wird in einem Spektrometer analysiert. Aus der Stellung der Polarisatoren, der Intensität des Lichts in Abhängigkeit

<sup>10</sup>Am verwendeten Aufbau wurden als Referenzleistung 900  $\mu\text{W}$  gemessen.

<sup>11</sup>Die Shutteröffnung wurde von 2–100% variiert, der Wellenlängenbereich fast ausschließlich um 1550 nm gewählt und die Integrationszeit zwischen 0,1 s und 300 s gewählt.



**Abbildung 3.9:** Versuchsaufbau zur Bestimmung der Faraday-Rotation eines magnetooptisch aktiven Materials.

von der Wellenlänge und dem Magnetfeld am Ort der Probe, können die gesuchten Messgrößen ermittelt werden.

Als Lichtquelle diente eine 50 W-Niedervolt-Halogenlampe mit 12 V Nennspannung. Das emittierte Licht wird von einer Linse zu einem parallelen Strahl geformt, durch ein Blendensystem begrenzt und durch einen Shutter ein- und ausgeschaltet ohne den Lampenstrom zu regeln. Die Kondensorlinse fokussiert den Lichtstrahl auf die in einem Magnetfeld befindliche Probe. Bevor das Licht aber auf die Probe trifft wird es durch ein um 360° drehbares Glan-Thompson-Prisma linear polarisiert. Der Probenhalter selbst wird je nach Messung in einem Permanent- oder Elektromagneten, dessen Strom frei regulierbar ist, befestigt. Um die Probe darin zu fixieren wird diese in einem speziellen Aluminiumhalter verschraubt, welcher anschließend in eine Aussparung im Zentrum des Magneten eingebracht wird. Dadurch verlaufen innerhalb der Probe die Magnetfeldlinien parallel zur Ausbreitungsrichtung des Lichts.

Hinter der Probe befindet sich als Analysator ein weiteres Glan-Thompson-Prisma, dessen Lage während der Messung fest bleibt. Die Objektivlinse erzeugt nach dem Analysator ein Bild der Probe in der Detektorebene. Ein Y-Lichtwellenleiter überträgt das auftreffende Licht an zwei Gitterspektrometer<sup>12</sup>, welche im sichtbaren und nahen infraroten Bereich detektieren.

Es sind ein UV-VIS-Spektrometer für den Wellenlängenbereich  $\lambda = 190\text{--}880\text{ nm}$  und ein VIS-IR-Spektrometer für den Wellenlängenbereich  $\lambda = 530\text{--}1170\text{ nm}$  vorhanden. Der Großteil der Messungen wurde mit dem UV-VIS-Spektrometer durchgeführt, da bei den untersuchten Proben in diesem Bereich eine höhere Faraday-Drehung vorliegt, als im infraroten Bereich.

<sup>12</sup>der Firma OCEAN OPTICS USB2000

Die Messung erfolgt nach Einbau der Probe vollautomatisch, da die einzelnen Komponenten des Aufbaus elektrisch steuerbar sind. Die Beleuchtungsstärke der Lampe wird über die Stromstärke eingestellt. Der Polarisator und der Shutter werden über Schrittmotoren gesteuert. Das automatische Auslesen der Spektrometer erfolgt über verschiedene Schnittstellen durch das mit der Software LabView entwickelte Messprogramm. Da die Faraday-Drehung im Feld des Magneten sowohl in Nord- als auch in Süd-Richtung gemessen wird, ergibt sich für die Faraday-Rotation der Probe:

$$\theta_F = \frac{1}{2} [\theta_{F,N} - \theta_{F,S}]$$

Somit wird der Einfluss einer eventuell vorhandenen Remanenzmagnetisierung in der Probe ausgeschlossen. Die magnetische Flussdichte am Ort der Probe betrug hierbei ca. 0,2 mT.

Mit dem gleichen Aufbau lässt sich auch die Transmission der Proben bestimmen. Hierzu wird zunächst eine Leermessung ohne eingebaute Probe in paralleler Polarisationsrichtung für maximale Helligkeit durchgeführt. Nach Einbau der Probe wird diese Messung wiederholt. Betrachtet man nun den Quotienten der beiden Intensitätsmessungen bei jeder Wellenlänge, so ergibt sich die Transmission zu:

$$T(\lambda) = \frac{I_{Probe}(\lambda)}{I_{Leer}(\lambda)}$$

Auf das genaue Messprinzip, die Auswertung der Messdaten sowie die Steuerung wird hier nicht eingegangen, hierzu sei nochmals auf [3] verwiesen.

### 3.8 Elektronenspektroskopie für chemische Analysen (ESCA)

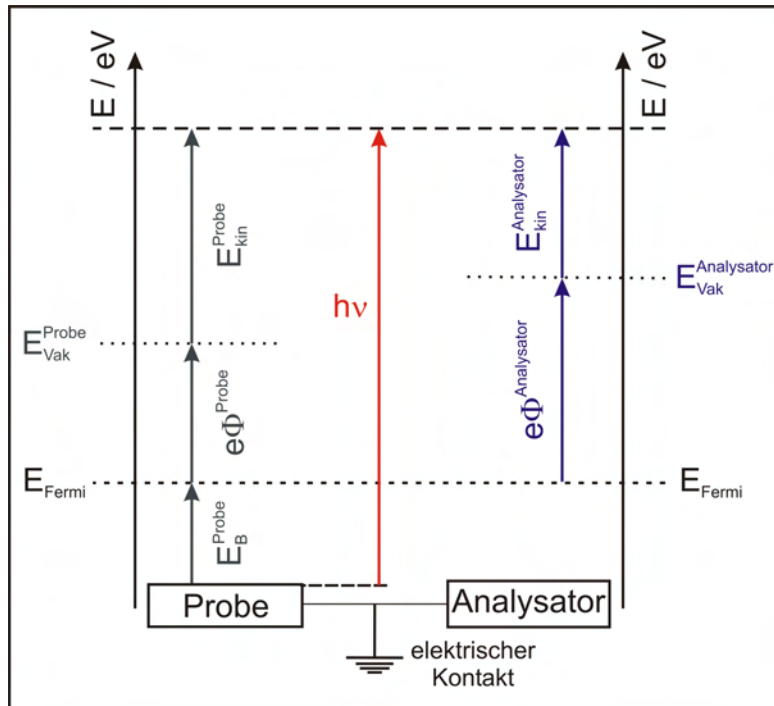
Bei der **Elektronen Spektroskopie für Chemische Analysen (ESCA/XPS)** können unter anderem Aussagen zu den Bindungsverhältnissen in Materialien getroffen werden. Diese Messmethode ist ein oberflächensensitives und vor allem zerstörungsfreies Verfahren.

Das Messprinzip der ESCA geht auf den Photoeffekt zurück. Wird die Oberfläche eines Materials mit Röntgenstrahlung einer bekannten Energie  $h\nu$  bestrahlt, so kommt es zu unterschiedlichen Wechselwirkungen. Zum Einen kann Röntgenstrahlung absorbiert werden mit einer anschließenden Emission durch Röntgenfluoreszenz. Zum Anderen kann bei genügend energiereicher Röntgenstrahlung ein kernnahes Elektron aus dem Atomverbund herausgeschlagen werden. Dadurch kommt es zum direkten Austritt eines Photoelektrons und ein Elektron aus einem energetisch höheren Niveau fällt in das entstandene Loch zurück. Durch diese Energieabgabe wird ein drittes Elektron aus dem Atomverbund emittiert, das sogenannte *Auger-Elektron*.

Die emittierten Elektronen werden bezüglich ihrer charakteristischen kinetischen Energien analysiert und mit elementspezifischen Tabellen-Daten verglichen. Es entstehen somit Informationen zu den Elementen, die durch Röntgenstrahlung tiefenionisiert wurden. In Abbildung 3.10 ist der Ablauf zur Veranschaulichung schematisch dargestellt.

Die Grundgleichung der Photoelektronenspektroskopie<sup>13</sup> lautet  $h\nu = E_{kin} + E_b + \Phi$ . Somit

<sup>13</sup>Bei bekannter Photonen- und gemessener Elektronenenergie können Aussagen über die Bindungsverhältnisse der Elektronen im untersuchten Material getroffen werden. Die Bindungsenergie  $E_b$  bezieht sich dabei auf das chemische Potenzial des Festkörpers. Die Austrittsarbeit  $\Phi$  ist eine charakteristische, material- bzw. oberflächenspezifische Größe, die sich mittels des Photoeffekts bestimmen lässt [67].



**Abbildung 3.10:** Schematische Darstellung des Energiediagramms beim XPS-Prozess. Durch einen elektrischen Kontakt können die Fermi-Niveaus von Probe und Analysator angeglichen werden. Die Bindungsenergien können unter Berücksichtigung der detektierten kinetischen Energie und der Austrittsarbeit bestimmt werden.

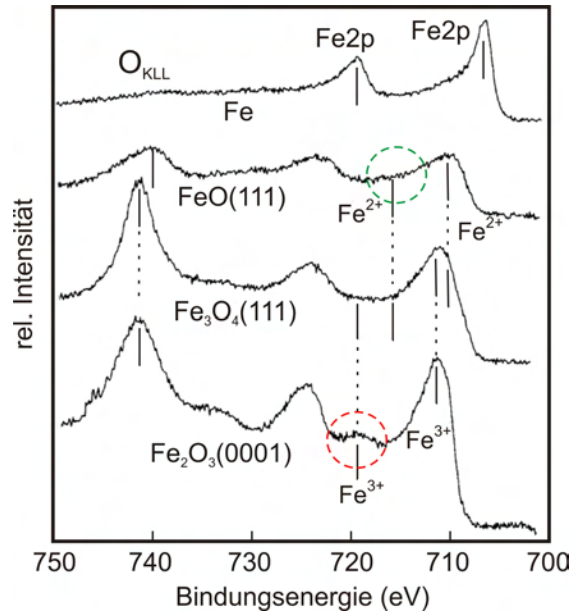
besitzt das Photoelektron, nachdem es die Bindungsenergie der Probe ( $E_B^P$ ) bis zum Fermi-Niveau und die Austrittsarbeit  $\Phi^A$  ins Vakuum überwunden hat, eine kinetische Energie gegenüber der Probe von

$$E_{kin}^A = h\nu - \Phi^A - E_B^P \quad (3.10)$$

Diese kinetische Energie  $E_{kin}^A$  der Elektronen wird energiedispersiv detektiert. Durch eine elektrische Kontaktierung von Probe und Analysator können deren Fermi-Niveaus angeglichen werden. Somit genügt es die Austrittsarbeit des Analysators zu bestimmen. Die Kalibrierung des Spektrometers und Bestimmung dieser Austrittsarbeit  $\Phi^A$  erfolgt durch Vermessung einer leitenden Probe mit bekannter Bindungsenergie. Die hierbei auftretenden Abweichungen der Bindungsenergie zwischen Experiment und Referenz sind elektronisch korrigierbar.

### Bindungsverhältnisse des Eisens

In der vorliegenden Arbeit interessieren vor allem Eisengranatfilme. Um Rückschlüsse auf die Bindungsverhältnisse des Eisens machen zu können, muss das gemessene XPS-Spektrum der Proben im Bereich der intensitätsstarken Fe 2p-Linien näher betrachtet werden. Abbildung 3.11 zeigt die XPS-Messungen von verschiedenen Eisen-Oxiden und elementarem Eisen.



**Abbildung 3.11:** XPS-Messungen an verschiedenen Eisenoxiden sowie an elementarem Eisen (aus [68]). Die für diese Arbeit wichtigen Bereiche der Satellitenlinien zu  $\text{Fe}^{2+}$  (grün) und  $\text{Fe}^{3+}$  (rot) sind jeweils markiert.

Diese Fe 2p-Spektren der Eisenoxide zeigen neben dem Spin-Bahn-Duplett eine sogenannte Satellitenstruktur.<sup>14</sup> Die *bauchförmige* Erhöhung nahe dem lokalen Maximum der  $\text{Fe } 2p_{1/2}$ -Linie deutet auf das Vorhandensein von  $\text{Fe(III)}$  (rot) und die *schulterförmige* Erhöhung nahe der  $\text{Fe } 2p_{3/2}$ -Linie auf das Vorhandensein von  $\text{Fe(II)}$  (grün) hin [68].

Die zwei- und dreiwertigen Bindungszustände des Eisens unterscheiden sich gerade in der Struktur dieser Satellitenlinien.

Sollten diese klassischen Satellitenlinien nicht eindeutig als Erhöhung erkennbar sein, so ist davon auszugehen, dass hier das Eisen in einer Mischung aus beiden Bindungszuständen vorliegt. Die beschriebenen Strukturen können wegen dem Überlagerungseffekt nicht eindeutig differenziert werden.

### Verhältnis $\text{Fe}^{2+}$ zu $\text{Fe}^{3+}$

Um das Verhältnis von  $\text{Fe}^{2+}$  zu  $\text{Fe}^{3+}$  zu bestimmen, kann man folgendermaßen vorgehen. Mit dem Spektrometer werden unter den exakt gleichen Parametern ein reines  $\text{FeO}$ -Spektrum  $j_1(E)$ , sowie ein reines  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Spektrum  $j_2(E)$  aufgenommen. Im Anschluss daran kann die Messung der eigentlichen Probe als Funktion  $j(E) = a \cdot j_1(E) + b \cdot j_2(E)$  angefitet werden. Das Verhältnis von  $\text{Fe}^{2+}$  zu  $\text{Fe}^{3+}$  ergibt sich aus a:b.

<sup>14</sup>Diese beruht darauf, dass der quantenmechanische Ansatz zwei mögliche Lösungen liefert. Wird ein Elektron des Eisens durch die einfallende Strahlung aus dem Orbital geschlagen, so hinterlässt dieses ausgelöste Elektron eine positiv geladene Lücke. Nun bestehen zwei Möglichkeiten. Das Valenzband bleibt hiervon unberührt und das austretende Elektron besitzt die kinetische Energie  $E_{kin}$ . Die andere Möglichkeit ist, dass die zurückbleibende positive Ladung der Lücke durch eine Überlagerung mit den Elektronen des Liganden abgeschirmt wird. Bei Fe 2p-Spektren überwiegt der zuletzt genannte Effekt. Dadurch ist sein Beitrag zur Intensität höher als der erste, weswegen dieser als *Satellit* bezeichnet wird.

Im nächsten Kapitel wird auf die Schichtdepositionsmethode der gepulsten Laserablation (PLD) und die Herstellungsmethoden der dafür notwendigen keramischen Sintertargets eingegangen.



## 4 Schichtdeposition

Zur Deposition magnetooptisch aktiver Granatfilme existieren zwei gängige Verfahren; dies sind die *Flüssigphasenepitaxie* (LPE, **L**iquid **P**hase **E**pitaxy) und die *Laserablation* (PLD, **P**ulsed **L**aser **D**eposition). Dabei muss beachtet werden, welche Art von Film hergestellt werden soll, da jedes der beiden Verfahren gewisse Vor- und Nachteile mit sich bringt. Man unterscheidet Material, das mittels LPE im thermodynamischen Gleichgewicht aufgewachsen werden kann und solches für das Nichtgleichgewichtsprozesse wie die Laserablation notwendig sind. Bei der Abscheidung mittels LPE wird das Substrat zur Beschichtung in eine Lösung oder Schmelze des zu deponierenden Materials getaucht, wobei es unter geeigneten Bedingungen zum Schichtwachstum kommt. Hierbei sind sowohl sehr hohe Wachstumsraten möglich als auch homogene Beschichtungen großflächiger Substrate erzielbar. In dieser Arbeit kam allerdings ausschließlich die Laserablation zur Schichtdeposition zum Einsatz. Damit ist es vor allem möglich, Filme in Nichtgleichgewichtsphasen (wie z.B.  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , BIG) herzustellen. Im Folgenden wird zunächst das Verfahren und die genauen Prozesse während des Ablationsvorgangs beschrieben werden.

### 4.1 Die gepulste Laserablation (PLD)

Bei der gepulsten *Laserablation* (engl.: pulsed laser deposition) wird zur Schichtdeposition ein hochenergetischer gepulster Laserstrahl auf die Oberfläche eines stöchiometrischen *Targets* fokussiert. Meist werden sogenannte *Excimer-Laser* verwendet, da ihre kurzen Wellenlängen im UV-Bereich, auf Grund der stärkeren Absorption des Laserlichts bei der Ablation von Vorteil sind [69]. Während des 25 ns dauernden Laserpulses entstehen dabei Energiedichten von mehreren  $\frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ . Bei genügender Leistungsdichte der einzelnen Pulse werden die obersten Targetschichten<sup>15</sup> innerhalb weniger Nanosekunden vollständig verdampft und bereits nach 1,6 ns beginnt die Emission von Targetatomen [70]. Das Ablationstarget besteht aus einer stöchiometrischen Mischung der Elemente, die während der Ablation auf das Substrat deponiert werden sollen. Auf Grund der kurzen Laserpulsdauer, der hohen Laserenergie und der geringen Eindringtiefe des Laserlichts wird nur eine dünne Oberflächenschicht auf mehrere Tausend Grad erhitzt. Die deponierte Energie kann nicht durch Wärmeleitung abtransportiert werden, so dass das restliche Target nur geringfügig erwärmt und fast die gesamte Energie auf die herausgerissenen Teilchen übertragen wird. Dieses schockartige Erhitzen der Targetoberfläche, das außerhalb eines thermodynamischen Gleichgewichts stattfindet, führt zu einem blitzartigen Auswurf von Targetmaterial. Diese Plasmawolke, auch als *Plume* bekannt, breitet sich in einer Keulenform senkrecht zur Targetoberfläche aus. Das zu beschichtende Substrat wird in Ausbreitungsrichtung der Plume positioniert und das ankommende Material schlägt sich

<sup>15</sup>Das UV-Licht des Lasers wird bei den meisten Targetmaterialien innerhalb der ersten  $0,1\mu\text{m}$  absorbiert.

als dünner Film nieder, wobei dessen Zusammensetzung der Stöchiometrie des Targets entspricht. [71–73]

Der große Vorteil der Laserablation liegt hauptsächlich darin, dass der Materialübertrag vom Target auf das Substrat unabhängig von thermodynamischen Größen, wie z.B. dem Dampfdruck ist. In diesem Nichtgleichgewichtsprozess können selbst hochschmelzende Targets mit komplexen Zusammensetzungen und Elementen mit stark unterschiedlichen Dampfdrücken in einem großen Druckbereich<sup>16</sup> stöchiometrisch abgetragen werden. Des Weiteren ist es möglich, thermodynamisch instabile Phasen abzuscheiden. Durch Variation der Prozessgas-Partialdrücke können die optimalen Wachstumsbedingungen eingestellt werden, ohne den Depositionsmechanismus ändern zu müssen [71, 72].

Ein großer Nachteil der PLD ist, dass die Deposition auf großflächigere Substrate ohne höheren technischen Aufwand nicht möglich ist [74]. Auch treten unerwünschte Effekte bei der Plasmabildung auf, da sich die Oberfläche zu stark erhitzt, teilweise aufschmilzt und ganze Materialcluster aus dem Target gerissen werden. Diese sog. *Droplets* können Durchmesser bis zu einigen Mikrometern haben. Bei einer zu hohen Eindringtiefe des Laserlichtes unter die Targetoberfläche kann dort Material verdampfen und von der Oberfläche ungeschmolzene Partikel abreißen [71, 72].

Die Problematik der Dropletbildung könnte durch technische Maßnahmen, wie z.B. Geschwindigkeitsfilter, Zweistrahl-PLD [72] oder Deposition in off-axis-Geometrie [32] stark verbessert werden, wobei dann die Depositionsraten sehr gering sind. Durch Verbesserung der Targeteigenschaften (vor allem durch die Dichte) kann die Bildung von Droplets ebenfalls verbessert werden (vgl. Kapitel 4.4.2).

Die Laserablation hat sich vor allem bei den Herstellungsverfahren für dünne Schichtsysteme mit komplexen Stöchiometrien im Vergleich zu anderen, wie z.B. dem thermischen Verdampfen oder dem Sputtern, durchgesetzt. Die Einzelkomponenten des Targets können unabhängig vom Dampfdruck der Komponenten fast unverändert auf das Substrat deponiert werden. Aufgrund der zahlreichen Möglichkeiten, kommerzielle Sintertargets zu beziehen, können fast alle komplexen Schichtzusammensetzungen erzielt werden.

Die bei der Laserablation auftretenden Vorgänge, vor allem die Wechselwirkung zwischen Laserpuls und Target, sind bis heute noch nicht vollständig geklärt [72]. Eine ausführliche Beschreibung der Wechselwirkung von Laserstrahl und Target, der Beschreibung des Plasmas sowie Modelle zum Schichtwachstum werden in den folgenden Abschnitten erklärt.

#### 4.1.1 Wechselwirkungen zwischen Laserstrahl und Target

Beim PLD-Verfahren wird ein Laserlichtpuls auf die Targetoberfläche fokussiert, wobei typischerweise Energiedichten von einigen  $\frac{J}{cm^2}$  auftreten. Die Laserenergie wird im oberflächennahen Volumenbereich deponiert. Die nachfolgenden Prozesse, die letztendlich zur Emission von Teilchen aus dem Target führen, sind äußerst komplex. Eine vollständige Beschreibung des gesamten PLD-Prozesses muss darüber hinaus auch die Wechselwirkung der emittierten Teilchen mit dem Laserlicht berücksichtigen. Es überrascht angesichts dieser Komplexität daher nicht, dass bis heute zahlreiche Modelle zur Beschreibung der Laserablation existieren, auf die hier nicht im einzelnen eingegangen werden kann.

<sup>16</sup>von Ultrahochvakuum bis zu einigen Millibar

Bei den gängigen Modellen zur Beschreibung der Wechselwirkungseffekte zwischen Laser und Target hat es sich bewährt, zwischen *primären Effekten* und *sekundären Effekten* zu unterscheiden. Die primären Effekte beschreiben die Absorption der Laserenergie im Target, was zur Emission von Teilchen aus dem Festkörper führt. Sekundäre Effekte wirken hingegen erst nach dem Austritt aus dem Target. Sie betreffen die Wechselwirkungen der Teilchen untereinander und mit dem Hintergrundgas sowie die Wechselwirkung der Laserstrahlung mit dem Plasma. Als vertiefende Literatur kann [72, 75, 76] empfohlen werden.

#### 4.1.2 Das Plasma bei der PLD

Wie im vorangehenden Abschnitt erwähnt wurde, setzt die Teilchenemission bereits nach wenigen Nanosekunden während des Laserpulses ein. Wird die sog. *Ablationsschwelle* erreicht, ist die Energiedichte des Laserpulses groß genug und es kommt zur Emission von Targetmaterial in Form eines Plasmas. Dieses besteht aus einer Mischung unterschiedlichster Teilchen. Es beinhaltet Atome, Moleküle, Ionen und Cluster, deren Anzahl stark nichtlinear mit der Anregungsenergie zusammenhängt. Die typischen Teilchenenergien im Plasma bzw. Plasmatemperaturen liegen abhängig von der Laserenergiedichte im Bereich von 1–100 eV ( $\approx 10000 \text{ K} \gg T_{\text{Schmelz}}$ ) [77]. Das Plasma wird durch das Laserlicht weiter aufgeheizt und es entsteht eine leuchtende Plasmawolke.

In zahlreichen Untersuchungen der letzten Jahre wurden die Dynamik des Laserplasmas, die Zusammensetzung sowie Geschwindigkeitsverteilung näher untersucht [78, 79]. Die Winkelverteilung des Laserplasmas und der Einfluss eines Hintergrundgases auf seine Ausbreitung sind zur Deposition homogener Filme von besonderer Bedeutung [72].

Die Plasmawolke, die senkrecht von der Targetoberfläche weg gerichtet ist, besteht aus zwei Komponenten. Zum Einen gibt es eine langsame, nichtstöchiometrische Komponente, die bei sehr geringen Energie- und Plasmadichten, wenn kaum eine Wechselwirkung der Plasmateilchen untereinander stattfindet, auftritt ( $\cos \theta$ -Winkelabhängigkeit der Plasmawolke). Zum Anderen existiert bei höheren Energiedichten eine schnelle, stöchiometrische, stark vorwärts gerichtete Ausbreitung des Plasmas ( $\cos^n \theta$ -Verteilung, je nach Target ist  $n \approx 10 - 20$ ). Der Winkel  $\theta$  bezeichnet hierbei den Winkel zwischen der Emissionsrichtung und der Targetnormalen. Ein weiteres Merkmal ist die Leuchterscheinung des Plasmas, deren Intensität vom Hintergrundgas und dem Kammerdruck abhängt [72, 80, 81].

Darüber hinaus hat ein vorhandener Hintergrundgasdruck weitere Einflüsse auf das sich ausbreitende Plasma, falls die mittlere freie Weglänge kleiner als der Abstand zwischen Target und Substrat wird. Die sich ausbreitenden Plasmateilchen kollidieren mit dem Hintergrundgas, werden im Plasma verlangsamt und aus ihrer Bahn geworfen. Dadurch wird die Winkelverteilung breiter [72, 82, 83].

#### 4.1.3 Wachstumsmodelle dünner Schichten

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die Wechselwirkung zwischen Laserstrahl und Target sowie die Entstehung, Zusammensetzung und Dynamik des Laserplasmas näher beschrieben. In diesem Kapitel wird nun die Wechselwirkung des Plasmas mit dem Substrat kurz beschrieben werden.

Im Wesentlichen können drei Arten des Wachstums dünner Schichten unterschieden werden [72, 84]:

**Vollmer-Weber-Wachstum** (3d-Inselwachstum):

Bei dieser Wachstumsart werden dreidimensionale Wachstumsinseln an der Substratoberfläche ausgebildet. Aus der Dampfphase ankommende Teilchen lagern sich bevorzugt an diesen Clustern an. Die Substratoberfläche wird erst dann vollständig bedeckt, wenn die entstandenen Inseln groß genug werden um zusammenzuwachsen.

**Frank-van-der-Merwe-Wachstum** (2d-Lagenwachstum):

Mit diesem Wachstumsmodell wird die vollständige Bedeckung des Substrates energetisch begünstigt. Die Schicht wird Lage für Lage aufgebaut und es entstehen sehr glatte Filme. Es existiert eine stark bindende Wechselwirkung zwischen den Atomen aus der Dampfphase und dem Substrat, so dass das ankommende Material auf der Oberfläche diffundiert und sich vorzugsweise an Stufenkanten anlagert.

**Stranski-Krastanov-Wachstum** (2d-Lagenwachstum gefolgt von 3d-Inselwachstum):

In diesem dritten Modell wird das Substrat mit einer ersten Monolage vollständig bedeckt. Nach ein oder mehreren Monolagen aufgewachsenen Materials findet ein dreidimensionales Inselwachstum statt. Dies ist auf Verspannungen in der Schicht zurückzuführen, aufgrund der Gitterfehlpassung zwischen Schicht und Substrat.

Welches Modell jeweils bei der Keimbildung bzw. beim Filmwachstum zu Grunde liegt, hängt von der Thermodynamik bezüglich der Oberflächenenergien ab, d.h. sowohl vom ablatiertem Material als auch vom Substrat [85].

## 4.2 Reinigung der Substrate

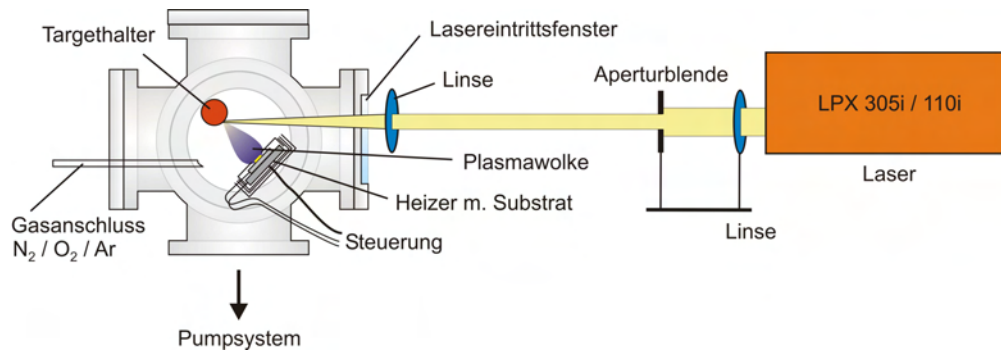
Vor jeder Deposition im Rahmen dieser Arbeit wurden die Substrate in einem Ultraschallbad in einer Aceton-Isopropanol-Mischung gereinigt. Danach spült man das Substrat mit destilliertem Wasser ab. Da die Substratoberfläche hydrophob ist, perlt das Wasser ohne Rückstände ab. Resttropfen können mit Stickstoff abgeblasen oder mit einem Feinwischtuch abgetupft werden. Der Reinigungsprozess war eine Standardprozedur vor jeder Deposition und wird in der Arbeit nicht mehr explizit erwähnt.

## 4.3 Die Ablationsanlage

In der vorliegenden Arbeit kamen mehrere Laser- und Kammersysteme zum Einsatz. In Abbildung 4.2 ist die Schemazeichnung einer solchen Laserablationsanlage angeführt, wie sie für die Deposition von Granatschichten verwendet wurde.

Die eingesetzten Anlagen bestehen im Wesentlichen aus einem KrF-Excimerlaser, zahlreichen optischen Komponenten, diversen Steuer- und Regeleinrichtungen sowie einer Vakuumkammer in der die eigentliche Schichtdeposition stattfindet.

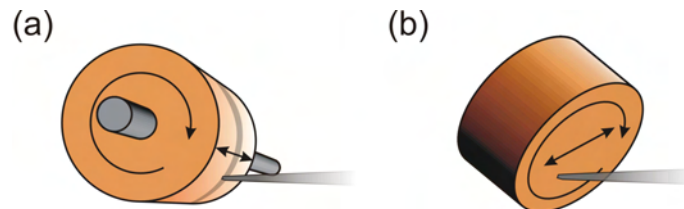
Die größte Komponente in jedem Aufbau ist ein KrF-Excimer-Laser vom Typ *LPX 305i* bzw. *LPX110i* der Firma *Lambda Physik*. Die Laser liefern Pulse von 25 ns Dauer mit Energien  $E_{Puls}$  zwischen  $0,5 \frac{J}{Puls}$  und 1,2 J bzw. 0,05 J und 0,5 J pro Puls. Es können Pulsfrequenzen im Bereich von  $f = 1$  Hz bis  $f = 100$  Hz eingestellt werden. Die Wellenlänge



**Abbildung 4.1:** Schematischer Aufbau eines PLD-Systems mit seinen einzelnen Komponenten.

der emittierten Laserstrahlung beträgt  $\lambda = 248 \text{ nm}$ . Der Laserstrahl wird durch mehrere außerhalb der Kammer angebrachte optische Komponenten fokussiert, tritt durch ein antireflexbeschichtetes und UV-durchlässiges Lasereintrittsfenster in die Kammer ein und trifft letztlich auf das Target, das sich im Inneren der Depositionskammer befindet. Der nur wenige Quadratmillimeter große Brennfleck des Laserstrahls erreicht dabei Energiedichten von  $2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  bis  $10 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ . Durch eine Turbomolekularpumpe mit vorgeschalteter Kolbenvorpumpe wird die Kammer auf Drücke unterhalb  $5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$  evakuiert. Über verschiedene Mischventile und einen Massendurchflussregler wird der gewünschte Hintergrundpartialdruck solange einjustiert, bis sich ein dynamisches Druckgleichgewicht einstellt. Dabei stehen Prozessgase wie Argonwasserstoff, Stickstoff und Sauerstoff zur Verfügung.

In den Ablationskammern befindet sich jeweils ein Targethalter, an dem Zylindertargets befestigt werden können. In dieser Arbeit standen zwei verschiedene Targethalter zur Verfügung, deren Funktionsweisen in Abbildung 4.2 skizziert sind.



**Abbildung 4.2:** Schematische Darstellungen der beiden verwendeten Targethalter: (a) zeigt Version 1. Der Zylinder rotiert gleichmäßig während vom Mantel ablatiert wird. Durch seitliches Verschieben kann die komplette Mantelfläche abgerastert werden. Bei Version 2 in Teilbild (b) erfolgt die Ablation von der Stirnfläche. Durch Rotation und seitliche Verschiebung wird die gesamte Stirnfläche vom Laserstrahl erreicht [3].

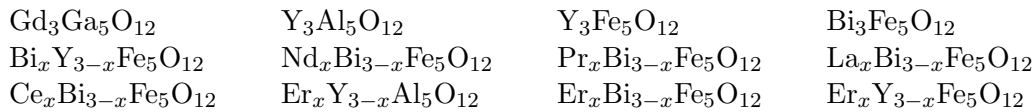
Sie unterscheiden sich lediglich dadurch, dass bei einem die Mantelfläche und beim anderen von der Stirnfläche des zylinderförmigen Targets ablatiert wird. Unterhalb des Targethalters befindet sich in der Kammer ein Heizer mit aufgesetztem Substrathalter. Der Abstand zwischen Heizer und Substrat beträgt ca. 5 cm [86]. Während der Ablation können bis zu vier Substrate gleichzeitig beschichtet werden.

Zum besseren thermischen Kontakt klebt man die Proben mit Leitsilber auf, wodurch eine bessere Wärmeanpassung der Substrate an den Substrathalter gewährleistet wird. Mehrere Hitzeschilder um den Heizerblock verteilt verringern ungewollte Erwärmung an-

derer Kammerkomponenten sowie Strahlungsverluste und ermöglichen höhere Substrattemperaturen. Eine Vergleichsmessung der Temperatur zeigte jedoch, dass zwischen Substrat und Heizer ein Temperaturunterschied von bis zu 40 °C möglich ist. Dieses Problem könnte durch den Einsatz eines Hohlraumheizers umgangen werden (vgl. [32]). Besondere Abläufe der verschiedenen Depositionsschritte werden an den entsprechenden Stellen dieser Arbeit gesondert angegeben. Für eine detailliertere Beschreibung der einzelnen Komponenten und Prozessschritte sei hier auf [3] verwiesen.

## 4.4 Syntheseverfahren zur Targetherstellung

In dieser Arbeit wurden folgende Materialien verwendet.



Zur Herstellung geeigneter Sintertargets existieren dazu zwei Syntheseverfahren, die kurz vorgestellt werden.

### 4.4.1 Konventionelle Festkörpersynthese

Typischerweise werden Targets durch Calcination von Gemengen aus Oxiden, Carbonaten, gelegentlich auch Hydroxiden und Nitraten hergestellt. Obwohl seit Jahrzehnten angewandt, befindet sich diese Synthesemethode bis heute auf einem rein empirischen Niveau, d.h. Reaktionstemperatur und -dauer werden noch immer nach dem Prinzip von Versuch und Irrtum ermittelt. Dass diese Parameter für jedes System aufs Neue bestimmt werden müssen, macht die keramischen Synthesen sehr zeit- und arbeitsaufwendig. Ein weiteres Problem der klassischen Calcination besteht in einem ungenügenden Gasaustausch zwischen Probe und Reaktorraum [87].

#### Herstellung eines Granat-Targets

Die Herstellung der pulverförmigen  $Gd_3Fe_5O_{12}$ - (GGG-)-Proben erfolgte durch die klassische Festkörpersynthese. Hierzu wurde stöchiometrisch eingewogenes  $Gd_2O_3$  (99,9%) und  $Ga_2O_3$  (99,9%) in einem Mörser innig vermischt. Durch die Zugabe von Aceton erreichte man eine bessere Durchmischung der binären Oxide. Die entstehende Suspension wurde mit dem Pistill gemörsert, bis das gesamte Aceton verdampft und ein feinkörniges Pulver mit guter Durchmischung entstanden war. Dieses Gemenge wurde anschließend bei  $1000^\circ C$  calciniert. Nach einer erneuten Mörserung wurde das Pulver mit 3,5 t (für 10 Min.) in eine zylindrische Form gepresst und in einem Muffelofen bei  $1500^\circ C$  für 10 h gesintert [88]. Die Proben wurden im Ofen belassen, bis dieser von selbst abgekühlt war. Mittels Pulverröntgendiffraktometrie konnte für alle Proben eine homogene polykristalline Struktur mit keinerlei Fremdphasen nachgewiesen werden.

Problematischer erwies sich die Herstellung eines  $Y_3Al_5O_{12}$  - YAG-Targets mit diesem Verfahren, da trotz stöchiometrischem Einwiegen der Oxide, keine phasenreinen Proben synthetisiert werden konnten. Erst durch Zugabe von 10% Al-Überschuss konnte röntgenographisch kein verbleibendes  $Y_xO_y$  nachgewiesen werden.

Da in weiteren Arbeiten [3] oxidische Sintertargets verwendet wurden, die ebenfalls sehr inhomogen und porös waren, wurde versucht, nach Anlehnung an Nassar et. al [88], das Sol-Gel-Verfahren als Standardprozess für die weiteren Targetsynthesen zu etablieren. Bei diesem Prozess können die Stöchiometrien exakt eingestellt werden, was im weiteren Verlauf der Arbeit, für das sog. *Materials screening*, der genauen Substitution einzelner Komponenten, von größter Bedeutung sein wird.

Das hier eingesetzte Verfahren wird im nächsten Kapitel kurz beschrieben.

#### 4.4.2 Targetsynthese mittels Sol-Gel-Verfahren

Das Sol-Gel-Verfahren beginnt mit der Herstellung eines Sols aus den gelösten Salzen der herzustellenden Schicht, das weiter vergelt wird [89]. Das Gel wird anschließend je nach Bedarf in sein gewünschtes Endprodukt weiter verarbeitet. Es existieren für die Weiterverarbeitung der Sole und Gele eine Vielzahl von Möglichkeiten wie sie in Abb. 4.3 zu sehen sind. Bevor auf die Reaktionsprinzipien des Sol-Gel-Verfahrens und die Targetherstellung näher eingegangen wird, werden die Begriffe *Sol* und *Gel* definiert.

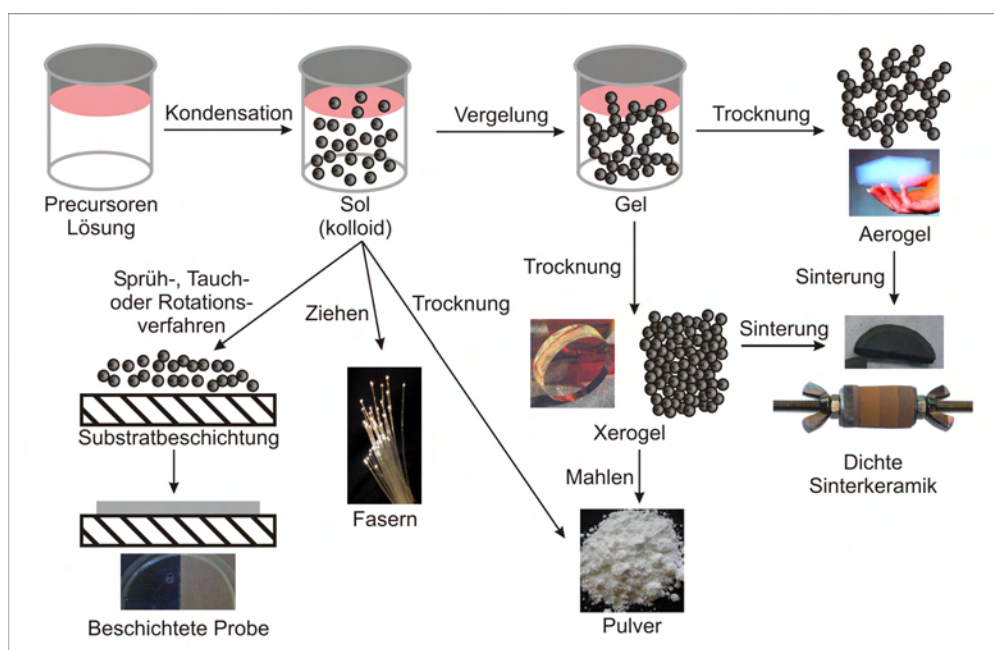
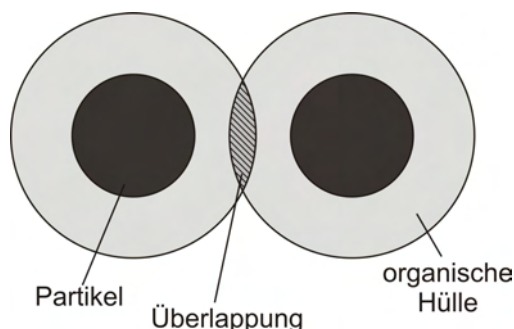


Abbildung 4.3: Möglichkeiten der Sol-/Gel-Weiterverarbeitung.

Kolloidale Suspensionen, in welchen feste Partikel (amorph, kristallin) in einer Flüssigkeit dispergiert sind, nennt man *Sole*. Dabei sind die Stoffe bzw. Teilchen mit Abmessungen zwischen einem und wenigen hundert Nanometern so gelöst, dass ihre Wechselwirkung untereinander möglichst klein ist (sog. Stabilisierung).

Dabei werden die Sole im Wesentlichen durch die elektrische Wechselwirkung zwischen den Teilchen und ihren Raumbedarf stabilisiert. Die Agglomeration wird hauptsächlich durch attraktive Kräfte verursacht, welche versuchen, die Oberflächenenergie bzw. die Grenzflächenenergie zu minimieren. Des Weiteren existiert eine durch Dipol-Dipol-Wechselwirkung erzeugte, vergleichsweise schwache van-der-Waals-Kraft. Die Agglomeration kann somit nur durch das Erzeugen einer elektrostatischen Abstoßung, indem die Solpartikel Ladungsträger aufnehmen, oder durch Absorption von dicken organischen Schichten durch die Partikel verhindert werden. Diese *Schutzschichten* um die Teilchen wechselwirken dann in den überlappenden Regionen untereinander. Dadurch wird die freie Energie des Systems abgesenkt und es kommt zur Entstehung einer Energiebarriere, welche das Aneinanderrücken der Teilchen verhindert (Abbildung 4.4). Zur Stabilisierung des homogenen Sols erfolgt aus diesem Grund die Zugabe von Glucose und im nächsten Schritt kann die Vergelung stattfinden.





**Abbildung 4.4:** Schematische Darstellung der organischen Schutzschicht um die einzelnen gelösten Partikel im Sol [11]. Diese kann durch Zugabe von Glucose erreicht werden.

Die *Vergelung* des Sols kann auf viele verschiedene Arten bzw. in vielen Stufen geschehen. Die Partikel des Sols können zunächst je nach Bedingung durch chemische Prozesse weiter anwachsen. Durch die äußeren Bedingungen wird bestimmt, wann die evtl. gewachsenen Partikel beginnen sich zusammenzulagern, um die gelotypischen dreidimensionalen Netzwerke zu bilden. Dies kann hauptsächlich durch die Basizität bzw. Acidität der Lösung des Sols, also durch Zugabe von Säuren und Basen, eingestellt werden.

Die Partikel agglomerieren sich und bilden das *Gel-Netzwerk* aus. Dies geschieht durch ständige Änderung der Viskosität, bis der *Gel-Punkt* erreicht ist. Das Gel kann im Anschluss daran weiter verarbeitet werden.

Im Folgenden wird dieser Standardprozess des Sol-Gel-Verfahrens anhand eines Beispiels erklärt. Als Orientierung dient die in Abbildung 4.5 gezeigte Prozessskizze. Der Prozess beginnt mit der Herstellung des Sols in einer Flüssigkeit. Hierzu werden die Precursoren, in dieser Arbeit die Metallsalze  $MS(NO_3)_3 \times H_2O$  ( $MS = Bi, Y, Fe, Ce, Nd, Pr, La$ ) in eine wässrige Lösung eingemischt, die mit einer Säure, in diesem Fall 55%ige Salpetersäure ( $HNO_3$ ) sowie mit Glucose als Komplexbildner, versetzt ist.

Unter ständigem Rühren mittels eines Magnetfisches wird das Gemisch auf eine Temperatur von etwa  $100^\circ C$  erhitzt. In der Lösung bilden sich aus den Precursoren durch Hydrolyse- und Kondensationsreaktionen kleine Partikel oder größere Moleküle.

Bevor das Sol zum Gel eingedickt werden kann, müssen die Nitrate vollständig verdampft sein. Hierzu wird die Flüssigkeit so lange erhitzt bis keine bräunlichen Stickoxide mehr entweichen. Ein Trockenschrank wurde dafür so modifiziert, dass ein Aktivkohlefilter die Stickoxide aus der Abluft herausfiltert.

Der Übergang vom Sol zum Gel ergibt ein meist elastisches Zwei-Phasen-Material, dessen mechanische Festigkeit auf einem mit Restflüssigkeit gefüllten Feststoffgerüst beruht. Das Gelieren erfolgt entweder durch Eindicken der Lösung (kann z.B. durch Verwendung eines Rotationsverdampfers erreicht werden), so dass sich die einander annähernden Partikel zusammenlagern oder durch weitere Hydrolyse- und Kondensationsreaktionen. Wird nachfolgend die Restflüssigkeit entfernt (wie hier in einem Trockenschrank), so entsteht ein so genanntes *Xerogel*. Trocknet man konventionell über Wärmezufuhr, so schrumpft der Gelkörper unter erheblicher Verringerung der Porosität. Die Schrumpfung ermöglicht die Ausbildung weiterer chemischer Bindungen zwischen zuvor zu weit auseinander liegenden Reaktionspartnern. So können bereits bei niedrigen Temperaturen

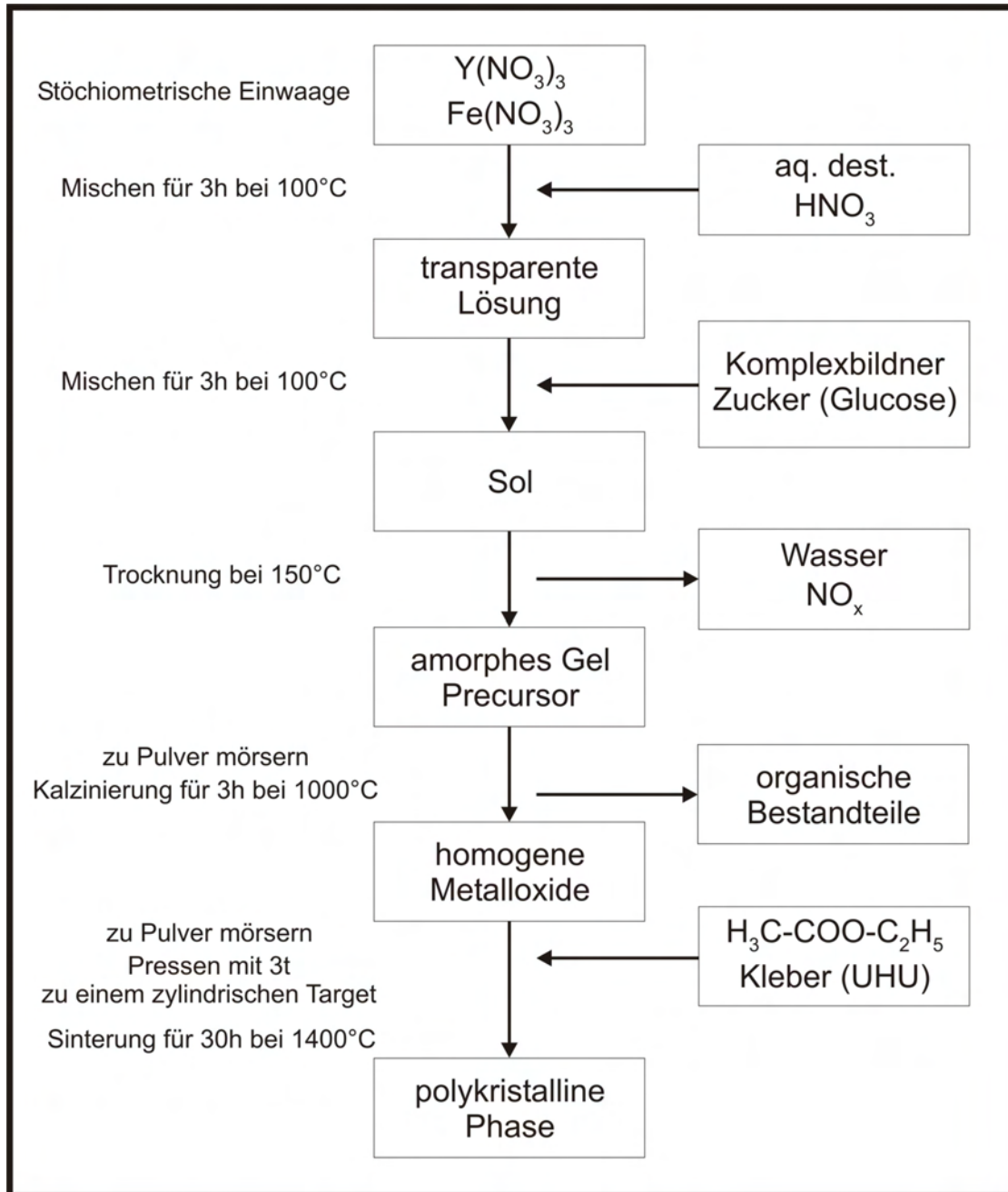
Pulver, funktionelle Oberflächenbeschichtungen, dichte und poröse Volumenkörper sowie Fasern mit einstellbarer Restporosität und bereits guter thermomechanischer Stabilität hergestellt werden.

Das eingetrocknete Pulver wird, nachdem es feingemörsert wurde, in einem Hochtemperaturofen für ca. drei Stunden calciniert, wobei die organischen Restbestandteile vollständig ausgebrannt werden. Hierzu wurde der Ofen um  $3 \frac{^{\circ}\text{C}}{\text{min}}$  auf die erforderliche Temperatur aufgeheizt. Die zurückbleibenden homogenen Metalloxide wurden in einem letzten Schritt erneut gemörsert, mit einem Kleber (in Essigsäureethylester gelöster Haushaltskleber UHU) versetzt und in einem zylindrischen Presswerkzeug bei einem Pressdruck, der einer Kraft von 35 kN entspricht, in die für die Laserablation notwendige Form gebracht. Die Beimischung von gelöstem Kleber ist deshalb hilfreich, da die porösen Targets andernfalls sehr häufig beim Pressen zerbrechen.

Im letzten Schritt werden die Targets, je nachdem um welche Art von Granat es sich handelt, bei den dafür entsprechend notwendigen Temperaturen (BIG 800 °C, andere 1400 °C) für 30 Stunden gesintert [17]. Die Temperatur des BIG muss vergleichsweise deshalb so niedrig gewählt werden, da Bismut bereits bei 820 °C schmilzt und somit entweicht, was einen Stöchiometrieverlust zur Folge hat. Für die Heizrampe des Ofens werden  $2 \frac{^{\circ}\text{C}}{\text{min}}$  gewählt, wobei bei 400 °C eine Pause für eine Stunde eingelegt wird, um den zugesetzten Kleber vollständig zu Verdampfen.

Eine Analyse mittels Pulverröntgendiffraktometrie bestätigt die Reinheit der Phasen. Sollten restliche Ausgangsoxide vorhanden sein, werden weitere Temperschritte bzw. höhere Temperaturen gewählt.

Zusammengefasst ist das Sol-Gel-Verfahren ein Syntheseverfahren, das durch spezifische Syntheseabläufe beschrieben werden kann und sich zur stöchiometrischen Targetherstellung von Granatstrukturen bestens eignet. Es können reproduzierbar Targets hergestellt werden sowie präzise Variationen in den Substituenten durchgeführt werden.



**Abbildung 4.5:** Prozessablauf bei der Targetherstellung mittels des Sol-Gel-Verfahrens am Beispiel von Yttriumeisengranat [17].



## 5 Integration eines Puffersystems auf Nichtgranatsubstrate

Der mit Bismuth substituierte Eisengranat ( $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{BIG}$ ,  $a_{\text{BIG}} = 12,62\text{\AA}$ ) weist die größte bekannte Faraday-Drehung auf und kann ausschließlich auf Granatsubstraten wie z.B.  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG,  $a_{\text{GGG}} = 12,38\text{\AA}$ ) deponiert werden. Zu GGG alternative Substratmaterialien wurden bis dato nur wenige untersucht [90, 91]. Dies liegt an den für Granatstrukturen notwendigen Wachstums Voraussetzungen. BIG ist unter den Depositionsbedingungen thermodynamisch instabil und benötigt deshalb eine Granatgrundlage zum Wachstum [92]. Die Verwendung von Pufferschichten bzw. von  $\text{SiO}_2$  als Substrat ist nicht bekannt.

### 5.1 Stand der Forschung

Bevor die Ergebnisse vorgestellt werden, wird zunächst ein kurzer Überblick über einen Teil der verwendeten Materialien gegeben sowie bereits bekannte Forschungsergebnisse und Publikationen anderer Gruppen vorgestellt.

**$\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG)** Diese Granatstruktur ist wohl der bekannteste Vertreter seiner Materialklasse. Da die meisten Granate nur auf Granatsubstraten aufwachsen, wurden zahlreiche Untersuchungen in diesem Bereich durchgeführt, wobei GGG als Substrat zum Einsatz kam. Des Weiteren eignet sich GGG als laseraktives Material und wird als Wellenleiter verwendet. Dabei werden Dotierungen wie z.B. Nd [93, 94], Pr [95], (Nd, Cr) [96], Er [97] etc. untersucht. Eine Deposition von GGG auf Nichtgranatsubstrate wie Si oder  $\text{SiO}_2$  ist bis heute jedoch nicht bekannt.

**$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG)** Aus dem Bereich der PLD von undotiertem YAG sind kaum Aktivitäten bekannt, da sich diese hauptsächlich mit kostengünstigen Herstellungsverfahren wie Sol-Gel [98] oder der Synthese von YAG Nanopartikeln [99] beschäftigen. Mehr wird aus dem Bereich des dotierten YAG berichtet. Hier geht es vor allem um die Einstellung der Lumineszenz bzw. Fluoreszenz durch die Dotierung, wie sie auch in dieser Arbeit durchgeführt wurden. Typische Dotierstoffe sind hierbei Tb [100], Cr [101, 102], Eu [103], Er [104], Ce [105] etc.

**$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG)** Dieses Material wird ebenfalls durch unterschiedlichste Depositionsmethoden hergestellt. Eine Anwendung liegt im Bereich der Elektrooptik [106, 107]. Mit der PLD wurden YIG-Filme auf (100)-Si und (111)-GGG deponiert. Es zeigte sich ein Wachstum von YIG auf GGG, auf Si hingegen konnten im Wesentlichen nur  $\text{YFeO}_3$ -Phasen festgestellt werden. Ein Faraday-Effekt letztgenannter ist nicht bekannt [90]. Auch wurden Versuche unternommen, YIG auf  $\text{SiO}_2$  zu deponieren (PLD [108], RF-Sputtern [109]). Magnetron-gesputterte YIG-Filme auf Quarzglas und (111)-GGG waren zunächst amorph und konnten ebenfalls erst durch ein zusätzliches Annealing ( $740^\circ\text{C}/840^\circ\text{C}$ ) in polykristallinen YIG umgewandelt

werden. Auf Quarz zeigten die Schichten eine FR von etwa  $3800 \frac{\circ}{T \cdot \text{cm}}$  [91]. Vorwiegend konzentrieren sich die meisten Arbeiten auf die Dotierung des YIG (z.B. mit Ce, Gd, Dy, Bi, Lu,...), um die strukturellen, magnetischen und magnetooptischen Eigenschaften gezielt manipulieren zu können [110–114].

**$\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (Bi:YIG)** Bei diesem Material können deutlich höhere Drehwinkel als bei reinem YIG auftreten. Allerdings kann Bi:YIG nicht thermisch nachbehandelt werden, da es bei Temperaturen über  $750^\circ\text{C}$  zu einer Zersetzung der Bi:YIG-Phase und zur Bildung von Bi-Oxid kommt. Daher existieren nur wenige Arbeiten, die sich mit der Deposition von  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  auf Si oder  $\text{SiO}_2$  beschäftigt [115–119]. In der Regel bildet sich nach einem zusätzlichen Annealing eine polykristalline Struktur aus. Als Standardsubstrat wird daher auch in diesem Fall GGG verwendet. Zum Teil werden mittels Flüssigphasenepitaxie (LPE) auch Filme auf Ca-, Mg-, und Zr-substituierten GGG-Substraten (um Gitterfehlpassung zwischen Film und Substrat auszugleichen) [120] oder YIG-bulk Kristallen (für optische Isolatoren [121]) abgeschieden. Die Faraday-Drehung liegt hier bei bis zu  $8,5 \cdot 10^4 \frac{\circ}{T \cdot \text{cm}}$  [120]. Außerdem werden erste Anwendungen im Bereich der Detektion magnetischer Strukturen realisiert, so z.B. bei Scheckkarten, Tonbändern, Geldscheinen, Supraleitern, etc. [122]. Dazu wird der magnetooptisch aktive (MOA) Film als Indikatorschicht auf die zu untersuchende Probe gelegt.

**$\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (BIG)** Durch eine komplette Substitution von Y durch Bi können die bei Bi:YIG erzielten Faraday-Drehungen noch deutlich überschritten werden [123]. Dabei stellt die Laserablation die maßgebende Depositionstechnik dar. Typischerweise wurde die Faraday-Drehung bzw. Realstruktur der Schichten in Abhängigkeit von alternativen Dotierungen des GGG Substrates, von Filmdicke und Ablationsfrequenz etc. untersucht [123–125]. Eine Integration von BIG auf Nicht-Granat-Substrate hat noch nicht stattgefunden. Eine Anwendungsmöglichkeit für dieses Material ist z.B. der magnetophotonische Kristall [126, 127], wobei die Deposition des BIG auf GGG erfolgt. Auch wird der Einfluss des Substratschnitts [128] auf die magnetischen Eigenschaften von BIG diskutiert.

Das Ziel der Arbeit ist es, Granatstrukturen auf Silizium oder Quarzglas zu integrieren und das Wachstum dieser magnetooptisch aktiven Materialien zu studieren. Neben den Wachstumsuntersuchungen wird auch ein mikroskopisches Verständnis für den Integrationsprozess angestrebt.

Diese Problematik der Entwicklung eines Puffersystems mit einer anschließenden Integration von BIG wird nun im folgenden Abschnitt mit neuen Ansätzen betrachtet.

### 5.1.1 Parameter für die Deposition von $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

Das Wachstum von BIG wurde in der Arbeitsgruppe ausführlich studiert. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in [3, 15, 16, 129, 130]. Die Ergebnisse bzw. Parameter lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die Herstellung der BIG-Schichten wurde systematisch mittels Druck-, Temperatur-, Laserfrequenz- und Laserenergie-Reihen optimiert. Demnach liegt der optimale Sauerstoffdruck während der Ablation bei ca.  $1\text{--}3 \cdot 10^{-2}$  mbar, die optimale Substrattemperatur bei  $550^\circ\text{C} \pm 25^\circ\text{C}$  und die Pulsfrequenz bei max. 40 Hz, wogegen die Laserenergie eine unerhebliche Rolle spielt.

- Als Substrate wurden (100)-GGG, (111)-GGG und dotiertes (110)-GGG verwendet, auf welchen allesamt epitaktisches Wachstum stattfindet.
- Oberhalb von ca. 1  $\mu\text{m}$  Schichtdicke kommt es zu einer Rissbildung, die auf die unterschiedlichen thermischen Eigenschaften von Film und Substrat zurückgeführt wird. Interessant ist auch, dass zwar die absolute Faraday-Drehung zunimmt, jedoch die Faraday-Drehung pro  $\mu\text{m}$  mit zunehmender Schichtdicke sich reduziert. Auch findet eine Rotverschiebung des Maximums der Faraday-Drehung mit zunehmender Schichtdicke statt.
- Eine Deposition von BIG-/Lu:BIG-Doppellagen verstärkt die Faraday-Drehung überproportional.
- Es kommt auf allen Substratschnitten zu einem BIG-Inselwachstum, das in Form von vierseitigen bei (100)-GGG bzw. dreiseitigen Pyramiden auf (111)-GGG stattfindet. Auf (110)-Substraten entstehen flache Plättchen. Die Formen der Inseln sind Folge einer bevorzugten (110)-Wachstumsrichtung von BIG.

### 5.1.2 Integration von $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ auf $\text{SiO}_2$

Die Deposition von  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  auf Si bzw.  $\text{SiO}_2$  ist direkt nicht durchführbar [131]. Es zeigt sich, dass lediglich diverse  $\text{Bi}_x\text{O}_y$ - und  $\text{Fe}_x\text{O}_y$ -Phasen entstehen. Die Ursache scheint darin begründet zu sein, dass (im Gegensatz zu YIG) BIG wegen seiner größeren Gitterkonstanten während der Herstellung keine thermodynamisch stabile Phase bildet. Die entscheidende Rolle für die Ausbildung der BIG-Phase spielt die Freie Energie zwischen der Grenzfläche von Substrat und Film. Eine ausreichende Gitteranpassung ist dabei alleine nicht ausreichend, denn in ersten Testbeschichtungen konnte BIG ( $a = 12,62 \text{ \AA}$ ) z.B. nicht auf (111)-MgO, (100)-MgO oder (100)-Si ( $a_{\text{MgO}} = 4,21 \text{ \AA} = \frac{1}{3}a_{\text{GGG}}$ ) abgeschieden werden. Wie in der Literatur für Si beschrieben, zeigten sich verschiedene Eisen- und Bismuthoxide oder eine  $\text{BiFeO}_3$ -Phase. Auch wurden unterschiedliche Puffersysteme, die zum Teil aus vier Multilagten bestanden (z.B. Si/YSZ/CeO<sub>2</sub>/STO), entwickelt. Dies führte allerdings zum gleichen negativen Ergebnis.

Für das Wachstum von BIG ist es daher unbedingt notwendig, als Wachstumsgrundlage eine Granatstruktur zur Verfügung zu stellen.

Eine erfolgreiche Deposition von BIG ( $a_{\text{BIG}} = 12,62 \text{ \AA}$ ) auf Nicht-Granat-Substrate kann also nur mit Hilfe eines geeigneten angepassten stabilen Puffers aus Granatmaterial, z.B. GGG ( $a_{\text{GGG}} = 12,38 \text{ \AA}$ ), YAG ( $a_{\text{YAG}} = 12,01 \text{ \AA}$ ), YIG ( $a_{\text{YIG}} = 12,38 \text{ \AA}$ ), ermöglicht werden.

Das Hauptziel der Arbeit besteht darin, diese relativ hohen Gitterfehlanspassungen so gering wie möglich zu halten, sprich ein geeignetes Puffersystem zu entwickeln, so dass eine magnetooptisch aktive Schicht darauf deponiert werden kann. In erster Linie wurde der Versuch unternommen, eine polykristalline GGG-, YAG- und YIG-Schicht auf Si, MgO und  $\text{SiO}_2$  abzuscheiden.

Im Nachfolgenden werden die erfolgreich erzielten Ergebnisse dieser Puffersysteme im einzelnen vorgestellt, wobei das Hauptaugenmerk auf YIG liegt. Zuletzt findet die Abscheidung von BIG auf diesen Puffern statt. Diese werden mit epitaktischen BIG/GGG-Schichten aus [3] verglichen.

## 5.2 Deposition und Charakterisierung von Granat-Puffersystemen

Wie im letzten Abschnitt beschrieben wurde, ist es für eine erfolgreiche Deposition von BIG notwendig, eine möglichst gute Gitteranpassung an das Puffersystem zu gewährleisten. Im folgenden Abschnitt werden drei mögliche verschiedene Granat-Puffersysteme *GGG*, *YAG* und *YIG* einzeln vorgestellt und diskutiert. Die ausführlichsten Untersuchungen fanden am *YIG*-Puffersystem statt, da dieser aufgrund seinem Fe-Anteil und der großen Gitterkonstanten als am geeignetsten betrachtet wurde. Die Deposition aller Schichten wurde mit der in Kapitel 4.3 beschriebenen Anlage durchgeführt. Daher werden nur die einzelnen Parameter während der Deposition angegeben.

### 5.2.1 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ - GGG

Zunächst sollte der Idee nachgegangen werden, das GGG-Substrat durch eine GGG-Pufferstruktur auf Si, MgO und  $\text{SiO}_2$  zu ersetzen. Die dabei erzielten Ergebnisse werden kurz vorgestellt.

#### Targetpräparation GGG

Für die Präparation von GGG-Targets stellte sich heraus, dass durch eine klassische Festkörpersynthese sehr gute phasenreine Ergebnisse erzielt werden können<sup>17</sup>. Dabei wurden die Ausgangsmaterialien<sup>18</sup>  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  und  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  miteinander vermischt und zu einem feinen Pulver gemahlen. Durch Zugabe von Aceton kann eine bessere Durchmischung der binären Oxide erreicht werden. Im Anschluss daran erfolgte eine Calcination bei  $1000^\circ\text{C}$  für 8 h. Aus dem erneut gemahlenen Pulver wurde ein zylindrisches Target gepresst (bei 3,5 t) und für 12 h bei  $1400^\circ\text{C}$  in einem Muffelofen gesintert [132]. Die so erzielten Targets zeigten nach der Sinterung eine ausreichende Stabilität und eine hohe Dichte. Untersuchungen mit dem Pulver-Röntgendiffraktometer ergaben eine reine  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ -Phase des Targets ohne weitere Fremdphasen (Abb. 5.1). Da bei ersten Versuchen Reste an  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  vorhanden waren, wurde die Temperatur auf  $1500^\circ\text{C}$  erhöht. In der Literatur sind sogar Werte bis 12 h bei  $1650^\circ\text{C}$  zu finden [133].

#### Laserablation von GGG auf Si und $\text{SiO}_2$

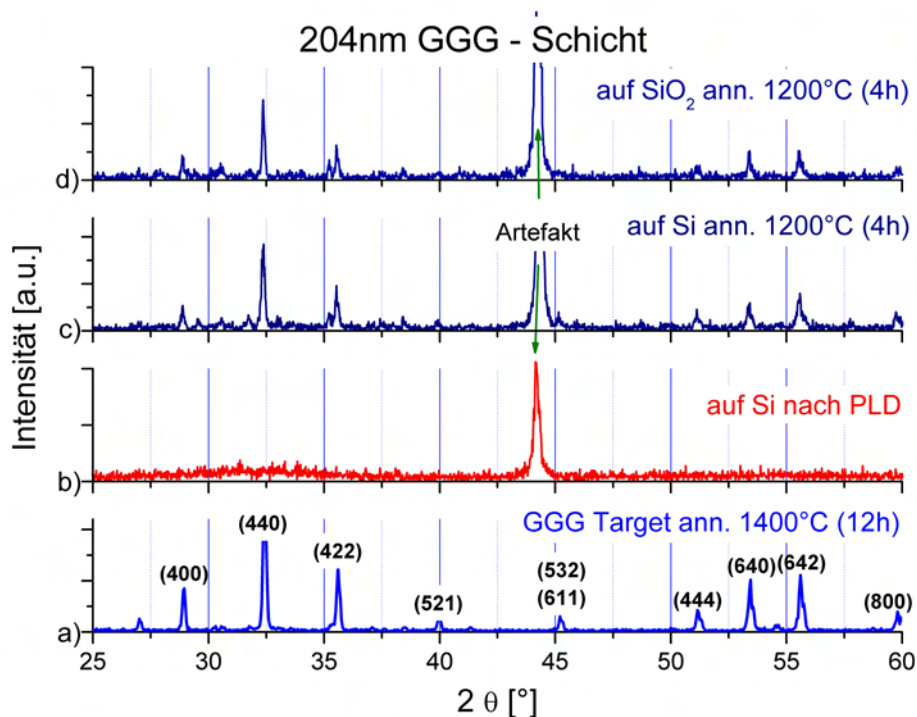
Mit dem synthetisierten GGG-Target wurden (100)-Si- und amorphe  $\text{SiO}_2$ -Substrate beschichtet. Die optimierten Parameter sind: Laserenergiedichte:  $2,5 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ , Laserfrequenz: 10 Hz, Substrat-Temperatur:  $600^\circ\text{C}$ , Hintergrundgasdruck:  $p_{\text{O}_2} = 1-3 \cdot 10^{-2}$  mbar. In beiden Fällen waren die beschichteten Substrate röntgenamorph (Abb. 5.1b) und zeigten keine GGG-Phase. Als Messartefakt zeigte sich nur ein Reflex des Probenhalters bei etwa  $44^\circ$ .

Durch einen anschließenden Annealing-Schritt in 90%Ar/10% $\text{O}_2$ - oder reiner  $\text{O}_2$ -Atmosphäre bei  $1200^\circ\text{C}$  für 4 h ergab sich eine phasenreine polykristalline GGG-Struktur auf

<sup>17</sup>Es wurde auch versucht, ein Target mittels Sol-Gel-Verfahren herzustellen, allerdings ließen sich die Oxide nicht vollständig auflösen. Auf weitere Tests wurde daher verzichtet.

<sup>18</sup> $\text{Gd}_2\text{O}_3$  (99,9%) und  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  (99,9%) von der Firma Chempur





**Abbildung 5.1:** Pulver-Röntgen-Diffraktogramme für a) GGG-Target nach der Herstellung; b) GGG auf Si nach der Ablation; c) GGG/Si und d) GGG auf SiO<sub>2</sub> nach einem Annealing von 4 h bei 1200 °C.

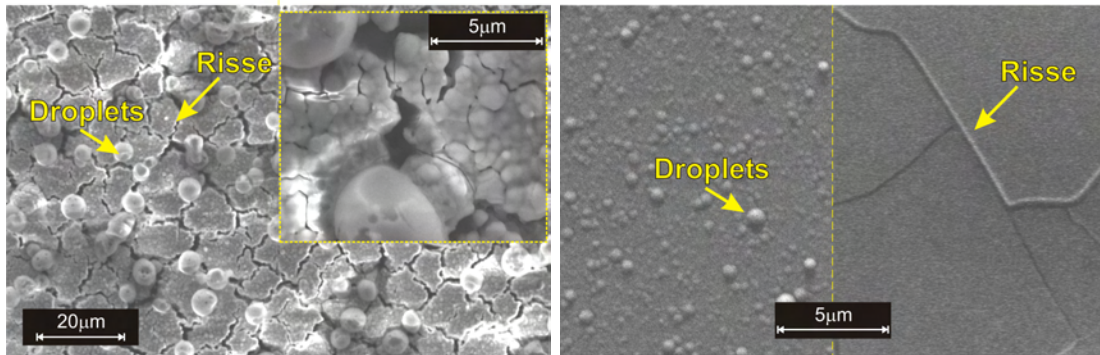
beiden Substraten (Abb. 5.1c für Si, d) für SiO<sub>2</sub>). Wie in den Pulver-Diffraktogrammen der Proben zu sehen ist, treten keine Fremdphasen auf.

Mittels EDX konnte bestätigt werden, dass keine Verunreinigungen in der Schicht vorhanden sind.

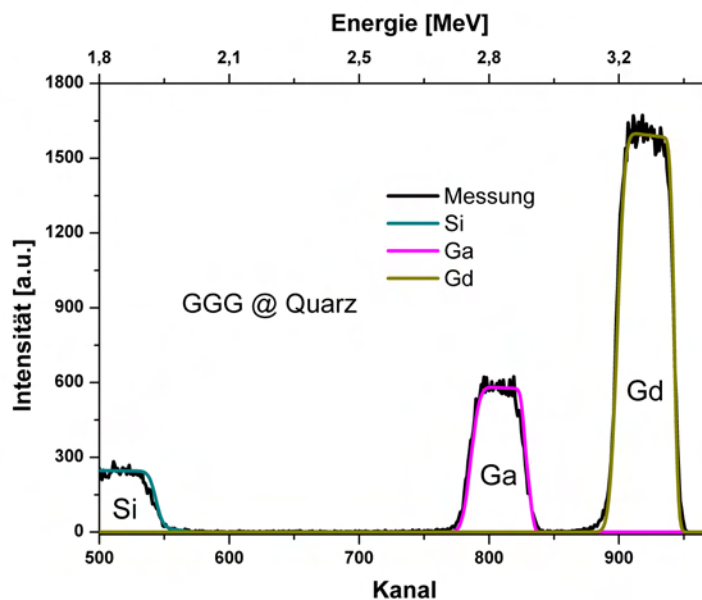
In Abb. 5.2 ist exemplarisch die ESEM-Aufnahme einer auf Si deponierten GGG-Schicht gezeigt. Deutlich erkennbar sind Riss-Strukturen, die auf den großen Gittermisfit von 43,8% in Bezug auf die Schicht ( $a_{Si} = 5,43\text{Å}$ ,  $a_{GGG} = 12,38\text{Å}$ ) zurückzuführen sind. Außerdem besitzen beide Materialien einen sehr unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha_{Si} = 2,6 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{°K}}$  [134] verglichen mit  $\alpha_{GGG} = 9,2 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{°K}}$  [91], der eine Rissbildung unterstützt. Weiterhin sind Droplets auf der Schicht zu sehen, die ein typisches Merkmal für Targets sind, die eine gewisse Porosität aufweisen. Die Korngröße der polykristallinen Schicht kann mit etwa 600 nm abgeschätzt werden, wobei die Körner eine Art Säulen-Struktur aufweisen. Bei der Untersuchung einer auf SiO<sub>2</sub> abgeschiedenen Schicht entsteht dagegen eine Art Plattenstruktur, die nicht ganz so zerklüftet zu sein scheint wie bei Silizium.

Um die Zusammensetzung der Proben genauer als mit EDX zu bestimmen, wurden RBS-Messungen durchgeführt. Ein gemessenes RBS-Spektrum einer SiO<sub>2</sub>-Probe nach der GGG-Beschichtung ist zusammen mit der Simulation in Abbildung 5.3 dargestellt. Für die Schicht ergibt sich an der Oberfläche eine Zusammensetzung von Gd<sub>3,0</sub>Ga<sub>4,5</sub>O<sub>12,5</sub>. Die Simulation lässt auf eine 204 nm dünne Schicht schließen. Es zeigt sich, dass eine fast stöchiometrische Schicht übertragen wurde.

Auf diesen Puffer wurde im nächsten Schritt eine, wie in Kap. 5.1.1 beschriebene, BIG-



**Abbildung 5.2:** ESEM-Aufnahmen von GGG-Schichten. Links: Abgeschieden auf einem Si-Substrat, deutlich zu erkennen sind Riss-Strukturen, die aus den unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten und Gitterkonstanten von Schicht und Substrat herrühren. Rechts: Auf SiO<sub>2</sub> deponierte Schicht, jeweils vor und nach dem Annealing. Die zunächst glatte Oberfläche bekommt ebenfalls Risse, es entsteht allerdings eine Art Plattenstruktur und die zuvor vorhandenen Droplet verschmelzen mit der Oberfläche.



**Abbildung 5.3:** RBS-Spektrum einer bei 1200 °C getemperten Probe.

Schicht aufgebracht. Die Ergebnisse dazu werden in Abschnitt 5.2.4 vorgestellt.

Als nächstes folgt nun die Beschreibung der Integration eines YAG-Puffers.

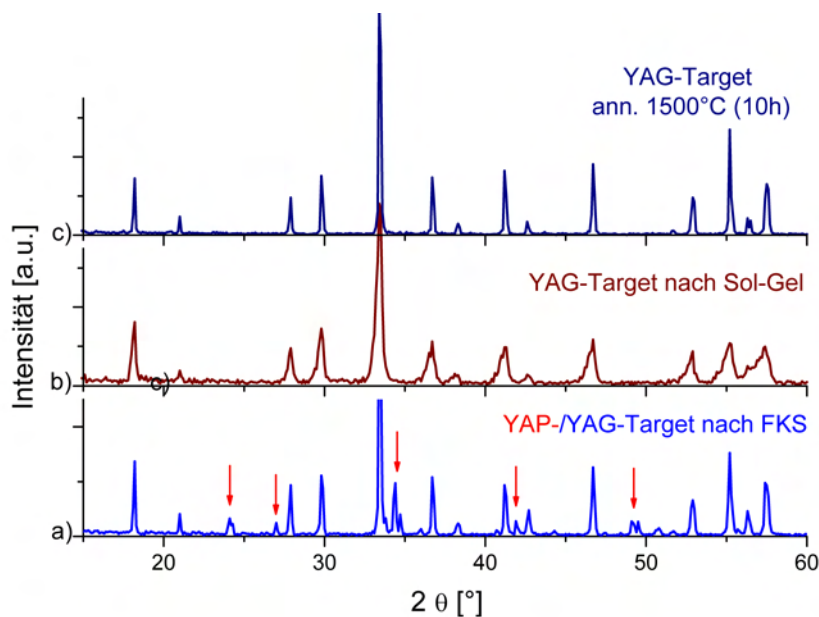
### 5.2.2 Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> - YAG

Der Ablauf der Target- und Schichtherstellung ist dem des GGG sehr ähnlich, nur dass hierfür eine andere Targetsynthese durchgeführt werden musste.

### Targetpräparation YAG

Die Präparation der YAG-Targets stellte sich zunächst als etwas schwieriger heraus, als bei den GGG-Targets. Die klassische Festkörpersynthese aus  $Y_2O_3$  und  $Al_2O_3$  erwies sich als ungeeignetes Verfahren, da nur ein 10%iger Al-Überschuss bei der Einwaage zu phasenreinen Ergebnissen führte. Ansonsten kommt es neben der gewünschten YAG-Phase zur Ausbildung einer YAP-Perowskit-Phase ( $YAlO_3$ ) und einem Rest an  $Y_2O_3$ . Durch diese Überstöchiometrie, längere Sinterdauer und höhere Temperatur konnte ein röntgenographisch phasenreines Target realisiert werden. Die Ablation hiervon zeigte allerdings eine starke Dropletbildung, was auf eine geringe Dichte des Targetmaterials zurückzuführen ist. Deshalb wurde für weitere Untersuchungen das Sol-Gel-Verfahren zur Targetsynthese eingesetzt.

Dazu wurden die Ausgangsmaterialien<sup>19</sup>  $Al_2(NO_3)_3 \cdot 8H_2O$  und  $Y_2O_3$  jeweils in 55%iger  $HNO_3$  gelöst und anschließend miteinander vermengt. Der Mischung wurde im Trockenschrank bei  $150^\circ C$  das Wasser entzogen. Das zurückbleibende Material wurde zu einem feinen Pulver gemahlen und für 8 h bei  $1000^\circ C$  calciniert. Im Anschluss daran erneut gemahlen, zu einem Zylindertarget gepresst (bei 3,5 t) und bei  $1500^\circ C$  für 8 h gesintert (nach [88]). Es entstanden, wie sich anschließend bei der Laserablation herausstellte, sehr stabile und dichte Targets.



**Abbildung 5.4:** Röntgendiffraktogramme für a) Festkörpersynthese YAP-/YAG-Target; b) Sol-Gel-YAG-Target vor Sinterung, c) YAG-Target nach Sinterung.

In Abb. 5.4 sind die Röntgendiffraktogramme der beschriebenen YAG-Targets zu sehen. Deutlich zu erkennen ist die Sensitivität bezüglich der Al-Konzentration während der Herstellung, denn ist diese geringfügig zu niedrig, kommt es zur Bildung einer Perowskit-Phase  $YAlO_3$  (YAP) mit den entsprechenden zusätzlichen Röntgenreflexen

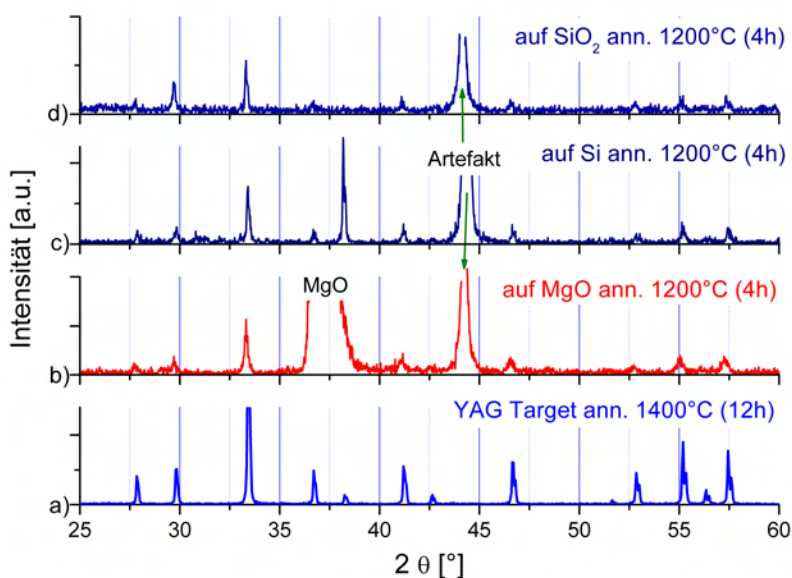
<sup>19</sup>Die Chemikalien wurden von der Firma Alfa Aesar ( $Al_2(NO_3)_3$ , 99,9%) und von der Firma Chempur ( $Y_2O_3$ , 99,9%) geliefert.

(vgl. Abb. 5.4a)).

Beim Sol-Gel-Verfahren hingegen zeigt sich bereits vor dem Sintern eine reine YAG-Phase (Abb. 5.4 b)). Der zweite Tempersschritt führt zu einer Verdichtung des Materials, wodurch sich die Orientierung der einzelnen Körner verbessert, was durch schmalere Röntgenreflexe zu erkennen ist (Abb. 5.4 c)).

### Laserablation von YAG auf Si, MgO und SiO<sub>2</sub>

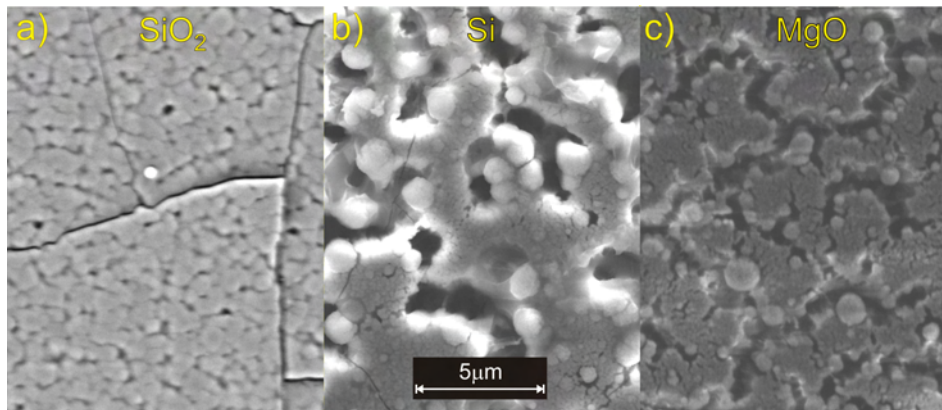
Die Depositionen von den synthetisierten YAG-Targets auf Si, MgO und SiO<sub>2</sub> wurden unter ähnlichen Parametern wie bei GGG durchgeführt (optimierte Parameter: Laserenergiedichte:  $2,5 \frac{J}{cm^2}$ ,  $f=10$  Hz,  $p_{O_2} = 1 \cdot 10^{-2}$  mbar,  $T_{Heizer} = 650$  °C). Auch für das YAG-System war ein anschließendes Annealing bei 1200 °C in Ar/10%O<sub>2</sub> oder O<sub>2</sub> für 4 h erforderlich, da sich die YAG-Phase erst bei über 1000 °C einstellen kann.



**Abbildung 5.5:** Röntgendiffraktogramme der deponierten YAG-Schichten auf Si, MgO und SiO<sub>2</sub> nach dem Annealing.

Die Messung mit dem Pulver-Röntgendiffraktometer (Abb. 5.5) zeigt eindeutig eine polykristalline YAG-Phase auf den Si- und SiO<sub>2</sub>-Substraten (Abb. 5.5c und d) ohne zusätzliche Fremdphasen. Das einzige Artefakt bei 44° ist wieder auf den Probenhalter zurückzuführen. Bei einer Deposition von YAG auf (111)-MgO (Abb. 5.5a) konnten ähnliche Ergebnisse erzielt werden, wohingegen eine Abscheidung von YAG auf (100)-MgO bei diesen Parametern nicht möglich war. Diesem Problem wurde allerdings nicht weiter nachgegangen.

In Abb. 5.6 sind ESEM-Aufnahmen der YAG-Schichten auf den verschiedenen Substraten gezeigt. Im Falle von SiO<sub>2</sub> und Si (Abb. a und b) entstehen, wie bei den GGG-Schichten zuvor auch, Riss-Strukturen. Der Gittermisfit liegt etwas niedriger verglichen mit GGG, ist mit 45,2% bezüglich des Substrates ( $a_{Si} = 5,43\text{\AA}$ ,  $a_{YAG} = 12,01\text{\AA}$ ) jedoch viel zu groß. Auch unterscheiden sich die thermischen Ausdehnungskoeffizienten



**Abbildung 5.6:** ESEM-Aufnahmen der deponierten YAG-Schichten auf a)  $\text{SiO}_2$ , b) Si und c) MgO jeweils nach dem Tempern. Auf Quarz verschmelzen die Droplets zu einer Art Plattenstruktur. Die beiden anderen Substrate unterscheiden sich in ihrer Morphologie kaum. Im Falle des MgO sind keine Risse zu sehen, dafür scheinen die Schichten keine geschlossene Flächenbedeckung aufzuweisen.

um fast eine Größenordnung<sup>20</sup>. Besser scheint es im Fall des MgO (Abb. c) zu sein, da nach dem Tempern keine Risse auftreten ( $\alpha_{\text{MgO}} = 13,8 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{°K}}$ ) [135]. Weiterhin sind Droplets auf der Schicht zu sehen, die auf  $\text{SiO}_2$  mit der Schicht verschmelzen und eine Art Plattenstruktur ausbilden. Die Größe der polykristallinen Körner liegt in der Größenordnung von ca. 200 nm. Die entstehenden Mulden sind eine Folge der abnehmenden Oberflächenenergie beim Temperprozess. Im Falle des MgO bilden sich weiterhin Gräben, die auf eine nicht geschlossene Flächenbedeckung hinweisen.

Die Proben-Zusammensetzung wurde mittels RBS bestimmt. In Abbildung 5.7 ist das Spektrum einer YAG-Schicht auf einem  $\text{SiO}_2$ -Substrat nach der Beschichtung gezeigt. Es ergibt sich an der Proben-Oberfläche eine Zusammensetzung von  $\text{Y}_{3,1}\text{Al}_{4,6}\text{O}_{12,3}$ . Diese stimmt gut mit der Stöchiometrie des Targets überein, denn es konnte mittels RBS ein Verhältnis von Y:Al = 3,2:4,8 bestimmt werden. Durch Anfitzen der Messkurve ergab die Simulation eine Schichtdicke von 270 nm.

Als letztes folgt nun die Beschreibung der Integration des YIG-Puffers, wobei das Hauptaugenmerk auf die Beschichtung von  $\text{SiO}_2$ -Substraten gelegt wurde.

### 5.2.3 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ - YIG

Da die Untersuchungen der beiden anderen Puffersysteme auf  $\text{SiO}_2$  die besten Ergebnisse lieferten, wurde auf eine Deposition auf MgO verzichtet. Dafür kamen unterschiedliche Orientierungen der  $\text{SiO}_2$ -Substrate zum Einsatz, worauf nun im Einzelnen eingegangen wird.

#### Präparation des YIG-Targets

Die Herstellung der YIG-Targets erfolgte mit Hilfe der Sol-Gel-Methode. Eine detaillierte Beschreibung ist in Kapitel 4.4.2 gegeben, deshalb wird an dieser Stelle nur kurz der Ablauf skizziert.

<sup>20</sup>  $\alpha_{\text{SiO}_2} = 0,5 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{°K}}$  [134] bzw.  $\alpha_{\text{YAG}} = 7,8 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{°K}}$  [91]

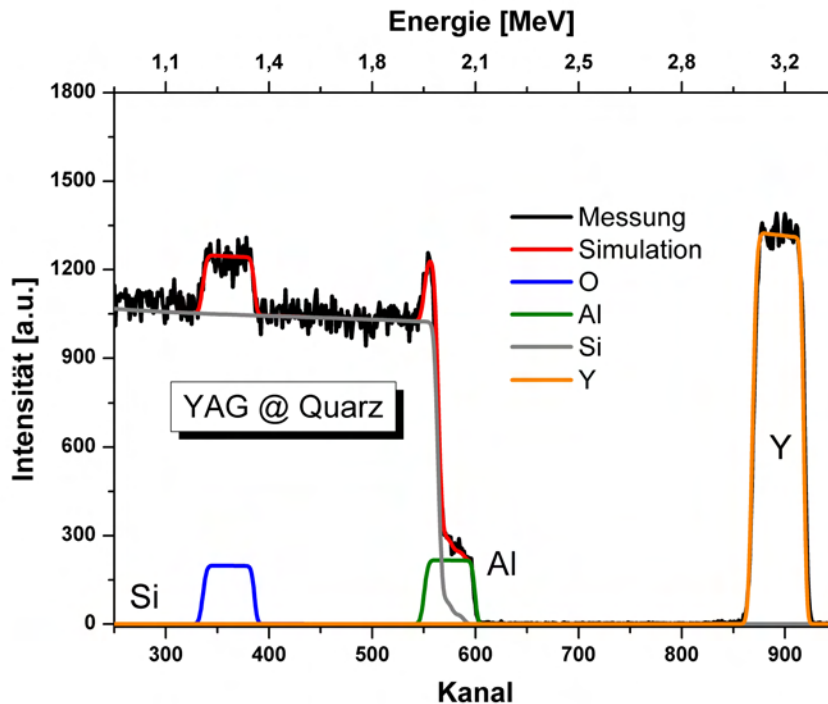


Abbildung 5.7: RBS-Spektrum einer YAG-Schicht auf  $\text{SiO}_2$ .

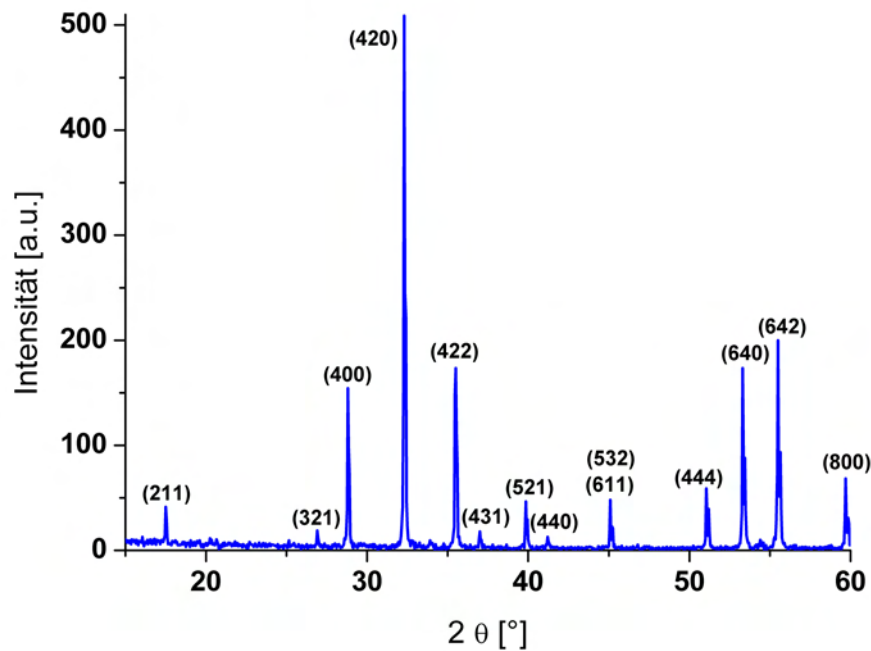
Die stöchiometrisch eingewogenen Ausgangsmaterialien  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \times 9\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  wurden in  $\text{HNO}_3$  gelöst. Nach dem Abrotieren des Wassers, folgte die Trocknung des entstandenen Gels bei  $150^\circ\text{C}$ . Im Anschluss daran wurde das Pulver bei  $1000^\circ\text{C}$  für 3 h calciniert. Der letzte Schritt war das Pressen des gemörserten Pulvers (bei 3–4 t) zu einem zylindrischen Target, das für 30 h bei  $1400^\circ\text{C}$  gesintert wurde. Die so hergestellten Targets zeichnen sich durch eine homogene Zusammensetzung mit hoher Dichte aus phasenreinem YIG aus, was durch eine Analyse mittels Pulverröntgendiffraktometrie bestätigt werden konnte (vgl. Abb. 5.8, indizierte Linien entsprechen den Reflexen des YIG).

### Laserablation von YIG

Als Substrate wurden  $(001)\text{-SiO}_2$ ,  $(11\bar{2}0)\text{-SiO}_2$  und  $(10\bar{1}0)\text{-SiO}_2$  sowie amorphes Quarzglas verwendet. Die Deposition der YIG-Filme fand dabei typischerweise in zwei Schritten statt.

In ersten Versuchsreihen fand eine Optimierung der Ablationsparameter statt. Dazu wurden die Einflüsse von Laserfrequenz, Laserenergie und Hintergrundgasdruck in ausführlichen Studien mittels XRD- und RBS-Analysen untersucht. Auf diese wird daher an dieser Stelle nicht näher eingegangen.

Eine Variation der Ablationsparameter zeigte keinen nennenswerten Einfluss auf die gewonnenen XRD-Spektren. Diese sind also im Wesentlichen durch den Annealingschritt bestimmt.



**Abbildung 5.8:** Pulverdiffraktogramm eines mittels Sol-Gel-Verfahren hergestellten YIG-Targets. Deutlich erkennbar sind die Reflexe der phasenreinen YIG-Struktur (mit Indizierung der Einzelreflexe).

Alle in dieser Arbeit hergestellten Proben wurden nach den Optimierungen bei 700 °C vom Target ablatiert (Laserenergiedichte:  $2 \frac{J}{cm^2}$ ,  $f = 10 \text{ Hz}$ ,  $p_{O_2} = 3,0 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$ ). Durch PXRD-Analysen konnten in den abgeschiedenen Filmen die Entstehung verschiedener Einzelphasen, wie z.B.  $YFeO_3$ ,  $Y_2Fe_4O_9$ ,  $Y_2O_3$  oder  $Fe_2O_3$ , nachgewiesen werden. In einem weiteren Schritt ist dieser Film unter leichtem Sauerstofffluss und Temperaturen von über 1000 °C getempert worden, wodurch sich die YIG-Phase einstellte.

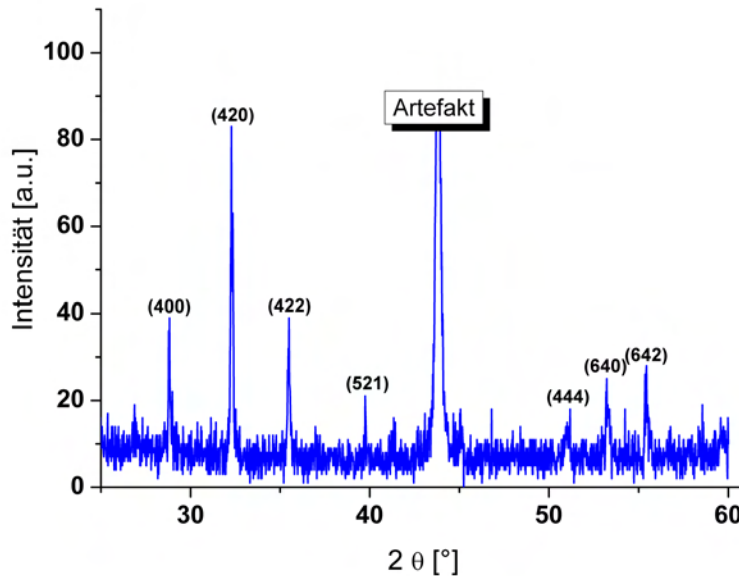
Die Optimierung der Parameter für diesen Temperprozess und welche Einflüsse diese auf die Schicht nehmen, wird im folgenden Abschnitt detailliert beschrieben.

### Annealing der Proben

Nach der Ablation sind für die deponierten Proben röntgenographisch keinerlei Reflexe zu verzeichnen. Da eine YIG-Granatphase auf  $SiO_2$  nicht direkt im Ablationsprozess erzeugt werden kann, spielt der anschließende Annealing-Schritt eine entscheidende Rolle. Hier können Parameter, wie z.B. Temperatur, Dauer und Abkühl-/Aufheizzeit, variiert werden.

In der Literatur existieren zum Thema der geeigneten Annealing-Temperatur sehr unterschiedliche Werte zwischen 700 °C [136] und 1300 °C [137] für Silizium. Aufgrund dieses großen Temperaturbereichs, wurde das Augenmerk zuerst auf die Annealing-Temperatur gerichtet. Um deren Einfluss zu studieren, wurden mit Hilfe der Laserablation mehrere Proben mit gleichen Parametern abgeschieden und anschließend in einem Temperaturbereich von 900 °C–1250 °C in 50 °C-Schritten für jeweils 1 h in Sauerstoffatmosphäre getempert (Aufheizrate:  $5 \frac{°C}{min}$ ).

Das typische Ergebnis einer XRD-Analyse ist in Abbildung 5.9 aufgetragen. Es zeigt sich nach dem Annealen unabhängig vom  $\text{SiO}_2$ -Substrat eine polykristalline YIG-Phase der Proben, wobei die drei intensivitätsstärksten Reflexe des YIG (400), (420), (422) am deutlichsten zu erkennen sind. Des Weiteren sind keine anderen oxidischen Fremdphasen zu sehen.

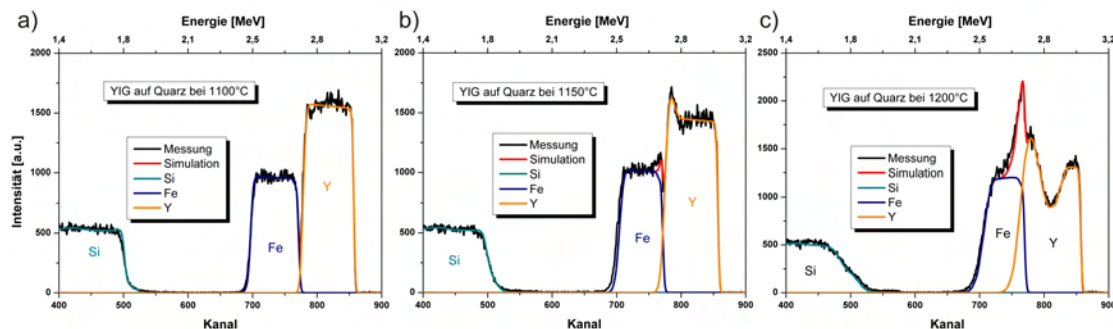


**Abbildung 5.9:** Pulverröntgendiffraktogramm einer YIG-Probe nach einem Temperschritt von  $1050^\circ\text{C}$ . Die intensivitätsstärksten Reflexe sind indiziert.

Die XRD-Analyse der Proben ergab weiter, dass sich die YIG-Phase bei  $900^\circ\text{C}$  nur schwach, und im Bereich von  $950^\circ\text{C}$ – $1150^\circ\text{C}$  mit steigender Temperatur stärker ausprägt. Auch verschieben sich deren Positionen mit steigender Temperatur zu höheren Winkeln hin, was auf eine Verringerung des Gitterkonstanten zurückzuführen ist. Ab  $1200^\circ\text{C}$  kommt es zu einer Zersetzung der YIG-Phase, was sich durch das Fehlen der Reflexe (400) bzw. (422) und dem Auftreten einer  $\text{YFe}_2\text{O}_4$ - bzw.  $\text{YFeO}_3$ -Phase äußert (vgl. [4]). Die RBS-Analyse der Proben zeigte, dass es zu einer Diffusion von Yttrium-Atomen in das  $\text{SiO}_2$ -Substrat kommt. Eine Veranschaulichung soll anhand von Abbildung 5.10 gegeben werden.

Im Temperaturbereich von  $900^\circ\text{C}$ – $1200^\circ\text{C}$  ergeben sich RBS-Spektren wie sie Abbildung 5.10 zeigt. Die Messung kann in der Simulation mit einer einzigen reinen YIG-Schicht auf dem  $\text{SiO}_2$ -Substrat angenähert werden. Ab einer Temperatur von  $1150^\circ\text{C}$  (Abb. 5.10b) setzt die Diffusion von Y-Atomen in das Substrat ein, was man an dem erhöhten Y-Signal bei niedrigen Energien erkennt. Bei höheren Energien kommt es auch für Eisen zu einer Signalerhöhung, da sich an dieser Stelle das Y- und das Fe-Signal überlagern. Um die Simulation exakt an die Messung anpassen zu können, muss eine zusätzliche  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Schicht zwischen YIG und  $\text{SiO}_2$ -Substrat eingefügt werden. Im hier angeführten Beispiel ergibt sich eine Schichtfolge von  $\text{Y}_{3,3}\text{Fe}_{5,2}\text{O}_{11,5}$  (346 nm) -  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (80 nm) -  $\text{SiO}_2$ . Bei Temperaturen ab  $1200^\circ\text{C}$  (Abb. 5.10c) nimmt die Schichtdicke der  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ -Phase mit steigender Annealing-Temperatur zu Lasten der YIG-Schichtdicke weiter zu.





**Abbildung 5.10:** RBS-Spektren der bei a) 1100 °C, b) 1150 °C und c) 1200 °C getemperten SiO<sub>2</sub>-Proben. Es kommt zur einer Art Aufweichung des Profils auf Grund einer vermehrten Diffusion mit steigender Temperatur.

Ein Großteil der Y-Atome diffundiert aus der YIG-Schicht in das Substrat, wodurch die Grenzen zwischen den Schichten zerfließen.

Dass sich eine Yttrium-Silicat-Phase ausbildet, kann durch Betrachtung des Y/Fe-Verhältnisses der YIG-Phase bestätigt werden. In Abbildung 5.11 ist das Y/Fe-Verhältnis der hergestellten Schichten in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Dabei zeigt sich im Temperaturbereich bis 1100 °C ein nahezu konstantes Y/Fe-Verhältnis von 0,75, das mit einer weiter zunehmenden Annealing-Temperatur abfällt. Das durch die Diffusion bedingte Abwandern des Yttriums in tiefere Schichten bzw. das Substrat, lässt sich durch die Bildung von Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> beschreiben, was sich im sinkenden Y-Anteil in YIG an der Oberfläche widerspiegelt [138].

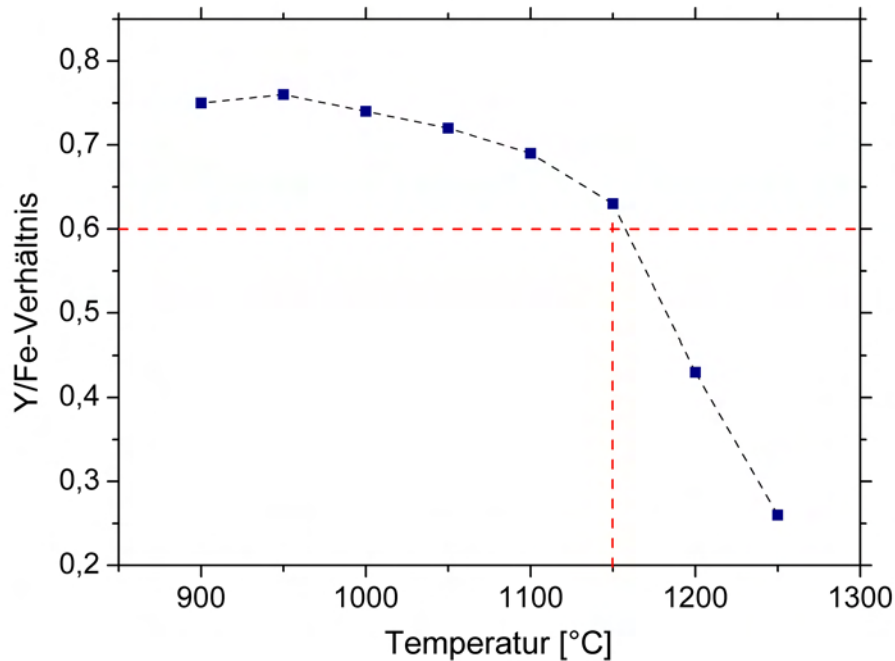
Eine Variation der Temperdauer zwischen 1 min und 4 h zeigte keinen wesentlichen Einfluss auf die kristallinen Eigenschaften der YIG-Phase.

In einer weiteren Studie zeigte sich, dass es ausschließlich unter Verwendung einer O<sub>2</sub>-Atmosphäre, sowohl während der Ablation als auch dem Tempervorgang, zur Bildung einer Granat-Struktur kommt. Die Verwendung von 90%Ar/10%O<sub>2</sub>-Gas führt zu einer Mischung aus den bereits bekannten Y<sub>x</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>z</sub>-Phasen.

Für die nachfolgenden Versuche wurde aus diesen Gründen eine Annealing-Temperatur von 1050 °C mit einer Annealing-Zeit von 30 Minuten unter reinem Sauerstoff-Fluss ausgewählt.

Um festzustellen, ob bei dieser Temperatur eine Diffusion von Si an die Oberfläche stattfindet, wurde die Oberflächenzusammensetzung einer YIG-Probe mit Hilfe von XPS untersucht (s. Abb. 5.12). Die detektierten Signale können hierbei – neben den messbedingten Artefakten, wie Gold – im Wesentlichen Y, Fe und O zugeschrieben werden. Es sind nur geringe Si-Verunreinigungen (s. Inset) an der Oberfläche messbar. Diese werden für die nachfolgende BIG-Deposition als nicht störend erachtet.

ESEM-Aufnahmen von deponierten und getemperten Proben (vgl. Abb. 5.13) zeigen, dass es auf allen Substraten zur Bildung einer Mikrostruktur kommt. Diese einzelnen Platten besitzen eine unterschiedliche Größe, die nur schlecht abgeschätzt werden kann. Da diese einen unterschiedlichen Kontrast aufweisen und bei den Aufnahmen der BSE-Detektor verwendet wurde, wird dies auf verschiedene Orientierungen der Körner zurückgeführt.



**Abbildung 5.11:** Y/Fe-Verhältnis in Abhängigkeit von der Annealing-Temperatur. Ab einer Temperatur von 1150 °C fällt das Y/Fe-Verhältnis ab, da eine stark zunehmende Diffusion des Yttriums in das Substrat einsetzt und eine  $Y_2SiO_5$ -Phase ausbildet.

Filme auf Quarzglas zeigen eine starke Tendenz zur Rissbildung. Verantwortlich hierfür sind die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten, wie sie bereits bei der Untersuchung der anderen Puffersysteme auftraten ( $\alpha_{YIG} = 10 \cdot 10^{-6} \frac{1}{^\circ K}$ ) [91]. Ob es zwischen den einzelnen polykristallinen Platten zu einer Mikrorissbildung kommt, konnte mit dieser Analyseverfahren nicht genau festgestellt werden.

Um die mikroskopische Morphologie der Proben näher zu untersuchen, wurde ein Teil der Proben mittels TEM untersucht. In Abbildung 5.14 ist das Ergebnis einer TEM-Untersuchung zum Substrat-/Film-Interface für zwei verschiedene Vergrößerungen gezeigt.

Deutlich zu erkennen ist eine Vermischung der einzelnen Schichten ineinander. Wie zuvor mittels RBS festgestellt wurde, entstehen in diesen Übergangsbereichen  $Y_2SiO_5$ -Phasen. Neben der amorphen Struktur des  $SiO_2$  sieht man nach der Diffusionszone auch die kristalline Ausbildung des polykristallinen YIG. Ein weiteres wichtiges Merkmal ist, dass zwischen den polykristallinen Bereichen keine Risse entstanden sind, wie es zuvor bei den ESEM-Untersuchungen vermutet wurde.

Im nächsten Schritt wurde auf die verschiedenen, hier vorgestellten, Puffer-Systeme  $Bi_3Fe_5O_{12}$  abgeschieden. Der standardisierte Depositionsprozess wurde bereits in Kapitel 5.1.1 vorgestellt und wird im Folgenden nicht näher beschrieben.

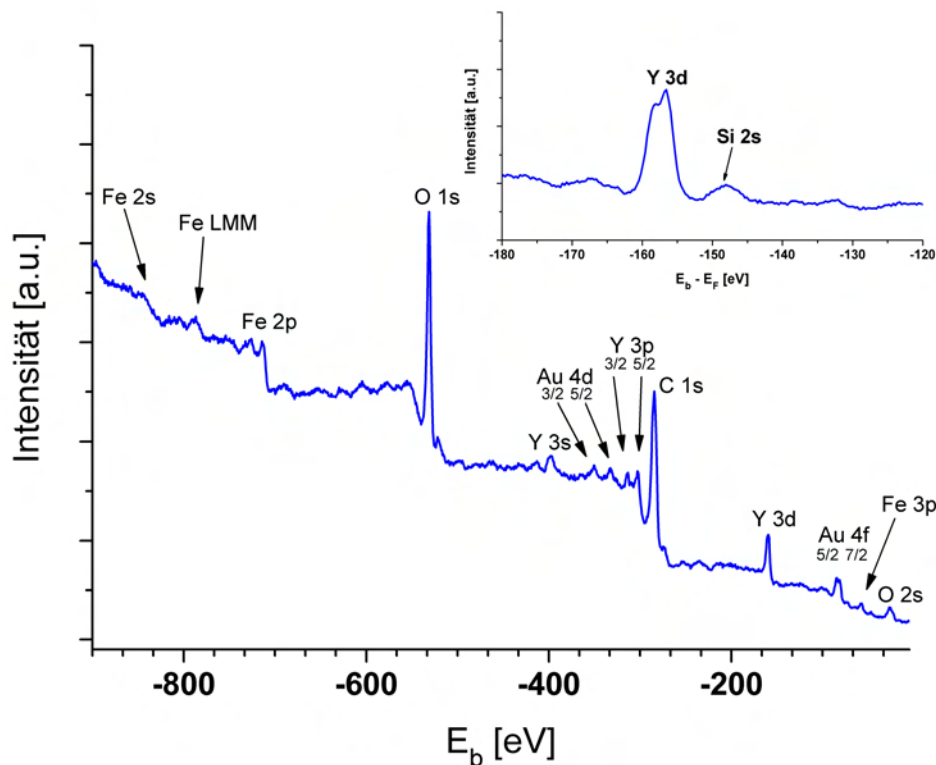


Abbildung 5.12: XPS-Analyse einer annealten YIG-Probe auf  $\text{SiO}_2$ .

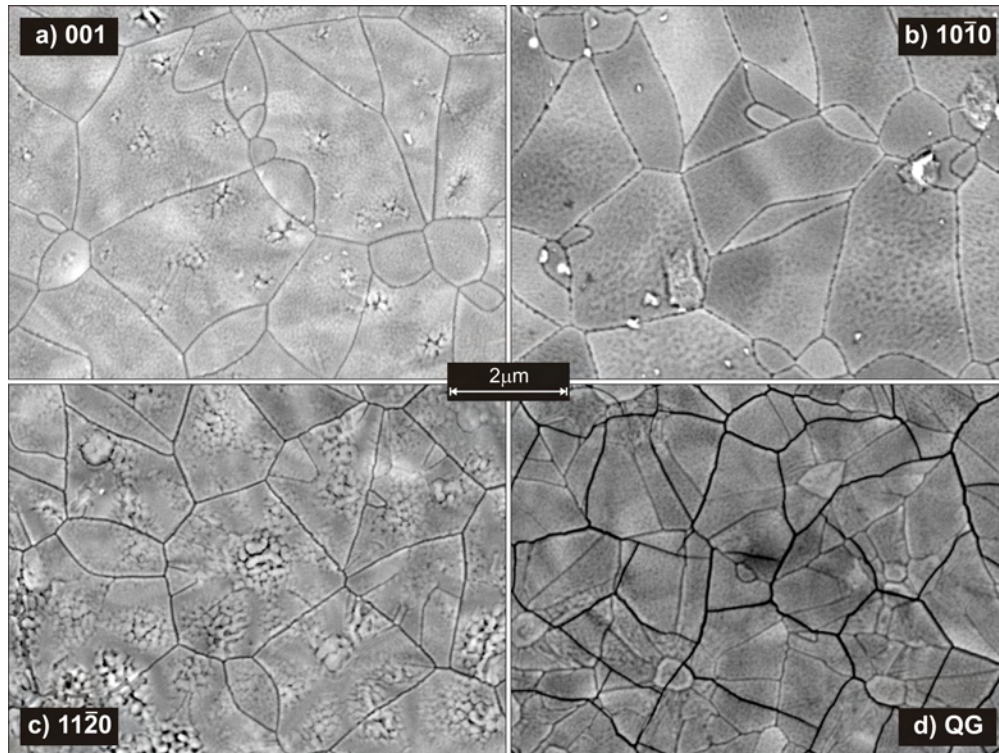
#### 5.2.4 Deposition von BIG auf das YIG-Puffersystem

Auf alle zuvor beschriebenen Puffersysteme wurden  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Filme abgeschieden. Allerdings konzentrierten sich die Studien hauptsächlich auf den YIG-Puffer, da mit diesem auf  $\text{SiO}_2$  die besten Ergebnisse erzielt werden konnten. Nur wenige GGG- und YAG-Puffer wurden für eine weitere Beschichtung mit BIG ausgewählt. Die Ergebnisse hierzu folgen am Ende dieses Abschnitts.

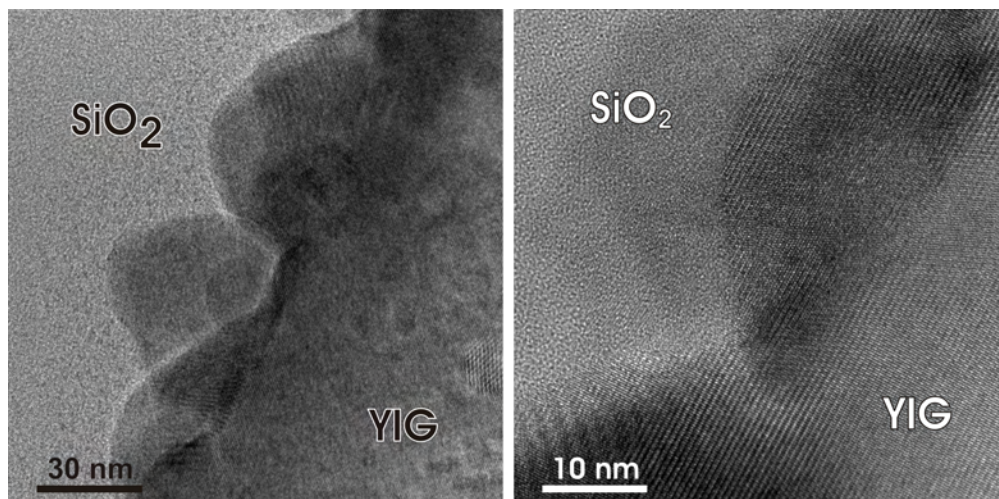
Zunächst wurde eine Studie zur Schichtdicke durchgeführt, um festzustellen, welche minimale YIG-Schichtdicke ausreicht um eine BIG-Deposition darauf zu ermöglichen. Als Indiz diente hierfür die Messung des Faraday-Spektrums. Es zeigte sich, dass eine ca. 10 nm dicke Pufferschicht genügt, um eine anschließende BIG-Beschichtung mit ausreichender Qualität zu ermöglichen. Wie es sich bei ESEM-Untersuchungen herausstellte, kann dies auf die dann gewährleistete komplette Flächenbedeckung des Substrates mit YIG zurückgeführt werden. Die Orientierung der  $\text{SiO}_2$ -Proben spielte für die Eigenschaft als Puffer eine unwesentliche Rolle.

Die RBS-Analysen der Multilagenergaben eine stöchiometrische Schicht BIG auf dem YIG-Puffer. In Abb. 5.15 ist das RBS-Spektrum einer Probe gezeigt, das zuvor mit 95 nm YIG beschichtet wurde. Für die Schicht ergab sich nach Herstellung des YIG-Puffers zunächst eine Zusammensetzung von  $\text{Y}_{3,0}\text{Fe}_{4,5}\text{O}_{12,5}$ .

Nach der Beschichtung mit BIG lässt sich mit Hilfe der Simulation für den zweiten Film eine Schichtdicke von 353 nm BIG mit einer Stöchiometrie von  $\text{Bi}_{3,1}\text{Fe}_{4,8}\text{O}_{12,1}$  ermitteln.

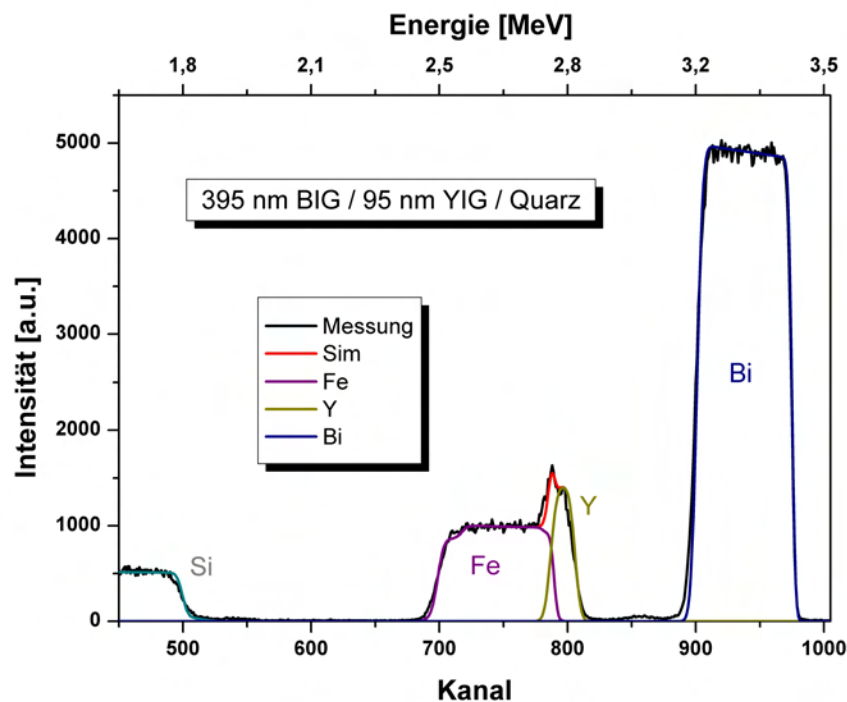


**Abbildung 5.13:** ESEM-Aufnahmen der YIG-Proben auf: a) (001)-SiO<sub>2</sub>; b) (10 $\bar{1}$ 0)-SiO<sub>2</sub>; c) (11 $\bar{2}$ 0)-SiO<sub>2</sub>; d) Quarzglas. Es ist eine deutliche Plattenstruktur zu erkennen, die auf den polykristallinen YIG zurückzuführen ist.



**Abbildung 5.14:** TEM-Aufnahme eines getemperten YIG-Films auf Quarzglas bei zwei unterschiedlichen Vergrößerungen. Deutlich erkennbar der Diffusionsbereich in welchem eine Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>-Phase entsteht. Im Anschluss an das amorphe Substrat und dem Schmelzbereich folgt die kristalline YIG-Schicht.

Es kommt dabei zwischen den beiden aufgebrachtten Filmen zu keiner erkennbaren Diffusion, wie anhand des Spektrums verdeutlicht wird. Im hier gezeigten Beispiel überlappt das Fe-Signal mit dem Y-Signal auf Grund der Schichtdicke.



**Abbildung 5.15:** RBS-Analyse einer Multilage aus 353 nm BIG-Schicht und 95 nm YIG-Puffer auf einem amorphen Quarzglas-Substrat.

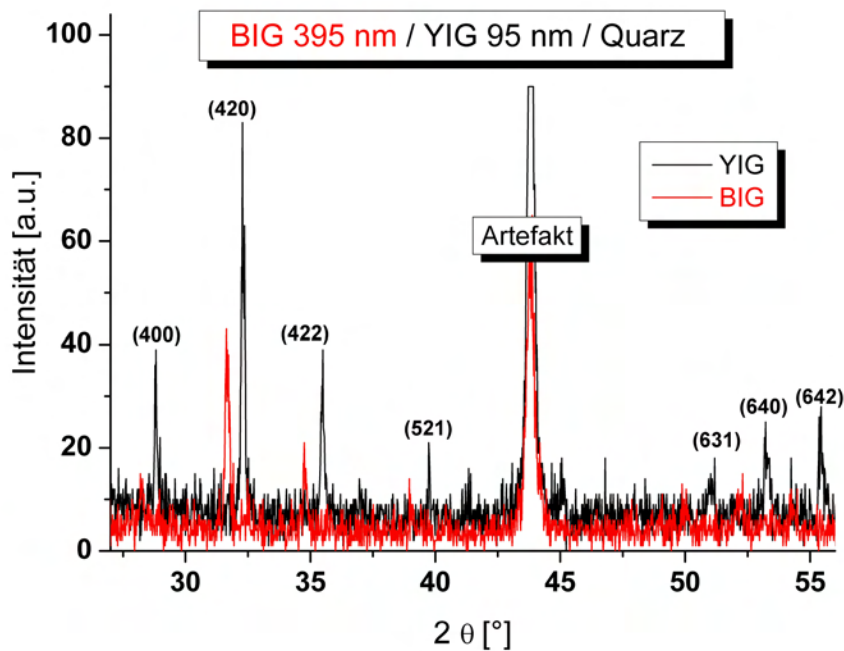
Da die Zusammensetzung des Films nahezu der Stöchiometrie der Granatstruktur entspricht, wurden die Proben auf ihre Kristallstruktur hin untersucht. Eine röntgenographische Analyse mittels PXRD ist in Abb. 5.16 zu sehen.

Dazu werden die Röntgenspektren einer Probe vor (YIG/SiO<sub>2</sub>) und nach der BIG-Beschichtung (BIG/YIG/SiO<sub>2</sub>) miteinander verglichen. Mit Hilfe der PDF-Referenzdateien [50] können die Röntgendaten den polykristallinen YIG- bzw. BIG-Phasen der Granatstruktur zugeordnet werden. Die intensitätsstärksten Reflexe sind jeweils gekennzeichnet. Anhand der Messungen ist deutlich zu erkennen, dass die Reflexe für BIG, aufgrund des größeren Gitterabstandes verglichen mit YIG, zu kleineren Winkeln hin verschoben sind ( $a_{BIG} = 12,62\text{\AA}$ ,  $a_{YIG} = 12,38\text{\AA}$ ).

In Abb. 5.17 werden ESEM-Aufnahmen der Proben vor und nach der zweiten Beschichtung gegenübergestellt. Es zeigen sich Bereiche mit unterschiedlichen Oberflächenstrukturen des BIG. Um diese Bereiche zu verdeutlichen wurden schematisch Linien eingetragen. Die Größe dieser Bereiche entspricht dabei der Größe der beobachteten Körner des reinen YIG. Somit kann davon ausgegangen werden, dass der BIG die polykristallinen Orientierungen des YIG adaptiert und sich die einzelnen YIG-Körner in der BIG-Schicht widerspiegeln<sup>21</sup>. Die ungleiche Oberflächenstruktur des BIG wird dabei auf die unterschiedliche Orientierung der YIG-Körner zurückgeführt.

Um die getroffenen Annahmen zu bestätigen, wurde an diesen Proben TEM-Untersuchungen durchgeführt. Abbildung 5.18a zeigt das Übersichtsbild einer Multilage aus

<sup>21</sup> BIG benötigt die Granatstruktur zum Aufwachsen



**Abbildung 5.16:** Vergleich des Pulverdiffraktogrammes eines YIG-Puffers auf Quarzglas mit einer Multilage aus BIG-Film deponiert auf YIG/Quarzglas.

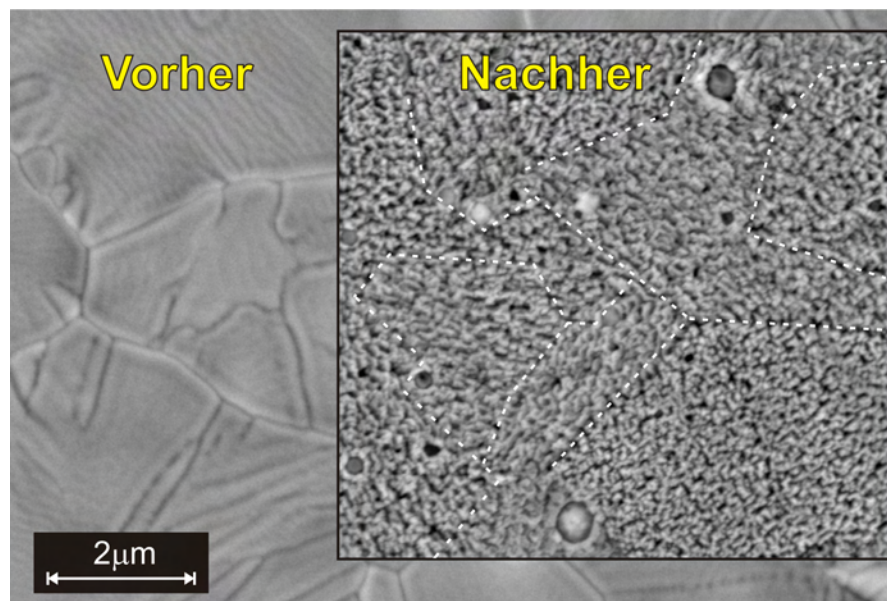
BIG/YIG/Quarzglas. Deutlich zu sehen ist die auf dem Quarzglas beobachtete Rissstruktur (mittleres Bild). Des Weiteren können auch die in das Substrat verlaufenden Spannungen erkannt werden (Pfeile in Abb. 5.18c). Dass der BIG epitaktisch auf den polykristallinen YIG aufwächst und die Orientierungen der einzelnen Körner übernimmt, ist in Abb. 5.18b an den sich fortsetzenden periodischen Strukturen ersichtlich.

Als Letztes wurden noch die Faraday-Drehungen und die Transmissionen der polykristallinen Schichten bestimmt. In Abb. 5.19 sind diese jeweils einzeln dargestellt. Für die reine YIG-Pufferschicht zeigt sich vor der BIG-Beschichtung (grüne Kurve; 75 nm YIG) erwartungsgemäß eine nur sehr geringe Faraday-Drehung in positiver Richtung. Die Transmission dieser Schicht (rote Linie) liegt im Bereich von 70-90%.

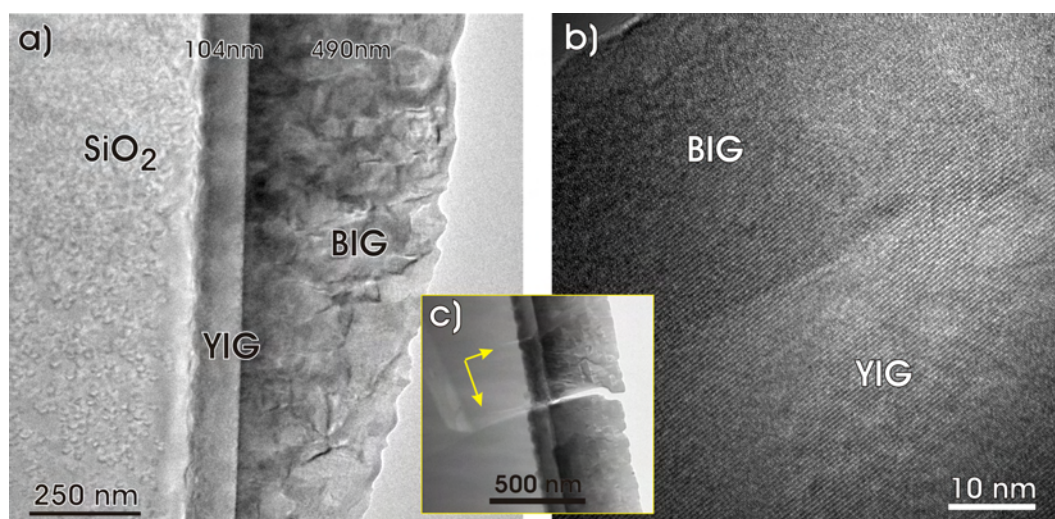
Nach der Abscheidung von 490 nm BIG zeigt sich jedoch eine sehr starke Faraday-Drehung<sup>22</sup>. Diese steigt, wie für BIG typisch, im Wellenlängenbereich um die 530 nm (im Grünen) auf ca.  $22 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$  (bei 150 mT) an. Durch die Deposition der zweiten Schicht reduziert sich allerdings die Transmission im Bereich von 530 nm sehr deutlich. Dieser Rückgang ist auf eine Absorptionskante im BIG zurückzuführen. Deutlich zu erkennen auch das oszillatorische Verhalten der Transmission. Dieses ist auf eine Vielfachreflexion zwischen in den Multilagen zurückzuführen.

Die Integration der magnetooptisch aktiven BIG-Schicht auf den YIG-Puffer ist vom Substratschnitt des  $\text{SiO}_2$  unabhängig. In Tabelle 5.1 sind exemplarisch die gemessenen Drehungen bei einem Magnetfeld von 150 mT für die jeweiligen Substrate angegeben.

<sup>22</sup> Auch polykristalline Filme weisen eine Faraday-Drehung auf, da für diese lediglich eine Magnetisierung in Ausbreitungsrichtung des Lichts vorhanden sein muss. Auf Grund der kubischen Struktur von YIG gibt es auch im polykristallinen Fall der Probe immer eine parallel zur Lichtausbreitung liegende Komponente der Magnetisierung [4].



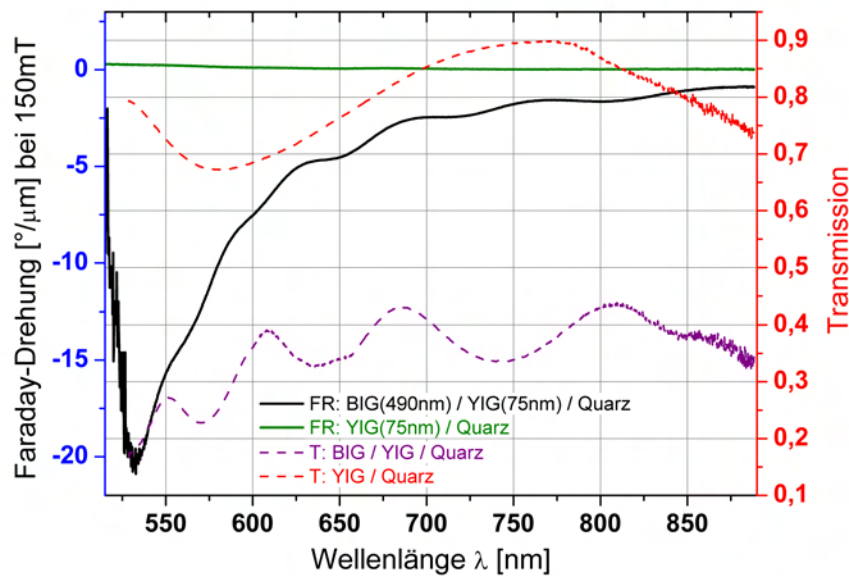
**Abbildung 5.17:** ESEM-Aufnahme einer BIG-Schicht (rechter Bildteil), deponiert auf YIG/SiO<sub>2</sub>.



**Abbildung 5.18:** Hochauflösungs-TEM-Aufnahmen einer BIG-YIG-Quarzglas-Probe. a) Übersicht über die deponierten Schichten mit den jeweiligen Schichtdicken. b) Interface zwischen einer YIG- und BIG-Schicht. Die periodische Struktur des YIG-Puffers wird auf den BIG-Film übertragen.

Dabei wurden die mittels RBS bestimmten Schichtdicken verwendet und die Faraday-Drehung pro  $\mu\text{m}$  Schichtdicke umgerechnet. Die erzielten Ergebnisse sind durchaus mit Messungen von epitaktischem BIG auf GGG-Substraten vergleichbar [3]. Dort konnten Faraday-Drehungen über  $30 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$  erzielt werden.

Zuletzt wurde der Versuch unternommen, BIG auf die anderen GGG- und YAG-Granatpuffer abzuschneiden. Dabei stellte sich heraus, dass im Falle eines GGG-Puffers ähnlich gute Ergebnisse erzielt werden können. Die gemessenen FR-Spektren sind dabei mit



**Abbildung 5.19:** Vergleich der Faraday-Drehungen (FR) und Transmissionen (T) für eine YIG/Quarzglas-Probe (FR: grüne, T: rote Linie), sowie nach Deposition von 490 nm BIG auf dieses Puffersystem (FR: schwarz bzw. T: lila Linie) bei einem Magnetfeld von 150 mT. Die Maximum der FR liegt bei einer Wellenlänge von 530 nm, wie es für BIG üblich ist. Die Transmission ist auf Grund der zweiten Schicht stark zurückgegangen. zu erkennen sind auch Oszillationen in der Transmissionskurve. Diese können auf Vielfachreflexionen in der Multilage zurückgeführt werden.

dem in Abb. 5.19 angeführten Spektrum vergleichbar. Es ergaben sich ebenfalls Faraday-Drehungen von über  $30 \frac{\circ}{\mu m}$ .

Als nächstes wurde der YAG-Puffer mit 300 nm BIG beschichtet. Die röntgenographischen Untersuchungen hierzu zeigten die Bildung einer Bi-defizitären  $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ - und einer  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Phase. Es konnte, zumindest mit Hilfe der standardisierten Depositionsparameter für BIG, keine Granatstruktur auf diesem Puffer realisiert werden, was sicher durch den Gittermisfit von 5% begründbar ist. Da YAG von den drei untersuchten Puffersystemen die kleinste Gitterkonstante besitzt, wurden keine weiteren Studien zur Deposition von YAG als Pufferstruktur durchgeführt.

Allerdings weckt die polykristalline YAG-Phase in anderen Bereichen, wie z.B. den Leuchtmaterialien, großes Interesse. So wurde eine ausführliche Studie durchgeführt, eine dotierte Er:YAG-Schicht als Lichtquelle herzustellen. Die Ergebnisse hierzu sind in Kapitel 6.6 kurz zusammengefasst.

In den durchgeführten Untersuchungen konnte demonstriert werden, dass magnetooptisch aktive Materialien mit einer hohen Faraday-Drehung auf technisch relevante Substrate integrierbar sind.



SiO <sub>2</sub>	d <sub>YIG</sub> [nm]	d <sub>BIG</sub> [nm]	FR [°/μm]
(001)	188	401	19,95
	45	566	21,2
(10 $\bar{1}$ 0)	50	430	37,21
	204	224	39,73
(11 $\bar{2}$ 0)	92	309	32,36
	104	415	26,75
Quarz	225	280	38,57
	98	227	30,69

**Tabelle 5.1:** Übersicht über die gemessenen Faraday-Drehungen einiger Proben für unterschiedliche SiO<sub>2</sub>-Substrate. Die einzelnen Schichtdicken wurden mittels RBS bestimmt und die FR auf Drehung pro μm Schichtdicke normiert.

Die folgende Tabelle 5.2 gibt eine Zusammenfassung der in Kapitel 5 erzielten Ergebnisse.

Granat	Substrat	Puffer	BIG	$ \theta_F  \frac{^\circ}{\mu m}$	Tempern	Oberfläche
GGG	Si	✓	✓	??	1200 °C	Risse
	SiO <sub>2</sub>	✓	✓	33		Risse, Platten
YAG	Si	✓	–	–	1200 °C	Gräben
	MgO	✓	–	–		Gräben
	SiO <sub>2</sub>	✓	–	–		Risse, Platten
YIG	Si	✓	✓	??	1050 °C	Platten
	SiO <sub>2</sub>	✓	✓	39		Platten

**Tabelle 5.2:** Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse bei der Integration eines Puffers auf Nicht-Granat-Substrate und Übersicht.

Tabelle 5.3 gibt noch einmal einen Überblick über die thermischen Ausdehnungskoeffizienten und Gitterkonstanten der in diesem Teil der Arbeit verwendeten Materialien.

Material	$\alpha_{therm} \frac{1}{^\circ K}$	Gitterkonst.
Silizium	$2,6 \cdot 10^{-6}$	5,43Å
MgO	$13,8 \cdot 10^{-6}$	4,21Å
SiO <sub>2</sub>	$0,5 \cdot 10^{-6}$	amorph
Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	$7,8 \cdot 10^{-6}$	12,01Å
Gd <sub>3</sub> Ga <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	$9,2 \cdot 10^{-6}$ [12]	12,38Å
Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	$10,4 \cdot 10^{-6}$ [12]	12,37Å

**Tabelle 5.3:** Zusammenstellung der thermischen Ausdehnungskoeffizienten und Gitterkonstanten der verwendeten Materialien.

Um die Faraday-Drehung  $\theta_F$  gezielt manipulieren zu können, war ein weiterer Bestandteil dieser Arbeit, die systematische Dotierung dieses Schichtsystems zu untersuchen und äquivalente Elemente bzw. alternative Dotierungen ausfindig zu machen. Durch eine gezielte Manipulation der Konzentrationen sollte versucht werden, die Gitterkonstanten der einzelnen Substituenten so einzustellen, damit sie als geeignete Zwischenschichten verwendet werden können.

Dazu wurden Dotierungen wie RE<sub>x</sub>Bi<sub>3-x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (RE = Y, Ce, Nd, Pr, La, Er) unter-

sucht und jeweils ein *Material-Screening* durchgeführt. Diese Materialien konnten alle epitaktisch auf GGG gewachsen werden.

Die einzelnen Ergebnisse werden im Folgenden jeweils kurz zusammengefasst.

## 6 Seltenerd-Dotierte Eisengranate

Gegenstand dieser Arbeit ist die Integration einer Bismuth-Eisen-Granat-Schicht auf ein Nicht-Granat-Substrat. Die Synthese und Charakterisierung der Granat-Pufferschichten wurde im ersten Teil bereits ausführlich vorgestellt. Um der Frage nachzugehen, warum gerade eine Bi-Dotierung zu einer erhöhten Faraday-Drehung führt, wurden unterschiedliche Seltenerd-Dotierungen (rare earth, RE) mit verschiedenen Konzentrationen (RE-BIG) untersucht. Es wurden hauptsächlich alternative Dotierungen wie Y, Ce, Nd, Pr, La und Er verwendet, da in der Literatur nur sehr wenig Informationen darüber zu finden sind. Die Schichtsysteme wurden zum größten Teil auf GGG-Substraten aufgewachsen und die Parameter für ein epitaktisches Wachstum systematisch optimiert.

Das Kapitel beschreibt die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen, wobei die strukturellen Eigenschaften und der Einfluss der unterschiedlichen Konzentrationen auf die Filme im Vordergrund stehen werden. Diese Materialien sollen zukünftig gezielt zur Verwendung als Zwischenschicht(en) in Multilagen eingesetzt werden können. Dabei ist nicht nur die erhöhte Faraday-Drehung von Interesse, sondern auch beispielsweise die Transmission durch die Multilage, die Reflektivität eines jeden Interfaces, Diffusionen zwischen den einzelnen Lagen, usw. Die für die Laserablation notwendigen Targets wurden alle mittels dem in Kapitel 4.4.2 beschriebenen Sol-Gel-Verfahren hergestellt.

Sofern nicht explizit erwähnt wird, fand die Deposition aller Filme unter einem reinen  $O_2$ -Hintergrundgasdruck statt.

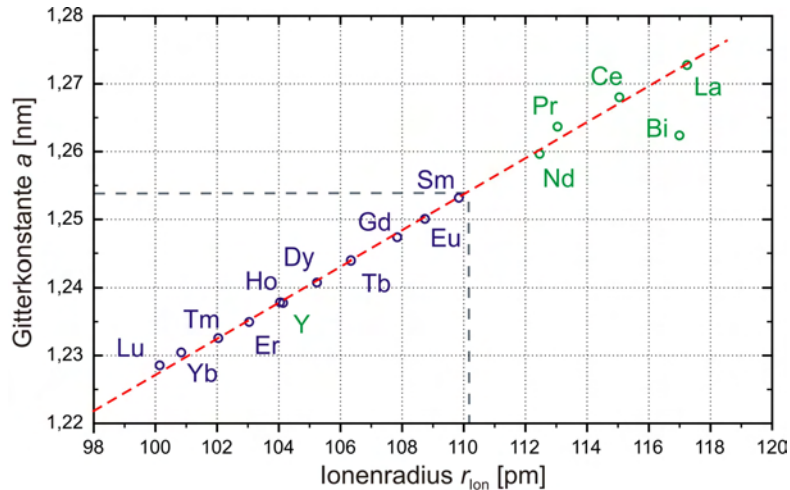
Es folgt jeweils eine kurze Zusammenfassung der optimierten Wachstumsbedingungen und deren Eigenschaften. Ausführlichere Beschreibungen der Messergebnisse sind den einzelnen Literaturstellen für die jeweiligen Substituenten zu entnehmen (Y und Nd [139, 140] – Pr und La [141] – Er [142]).

### 6.1 $Bi_x Y_{3-x} Fe_5 O_{12}$

In der Vergangenheit wurden bereits zahlreiche Untersuchungen zum Wachstum von YIG und BIG durchgeführt, wobei vor allem die magnetooptischen Eigenschaften ausführlich diskutiert wurden [3, 14, 143]. Hier sollen Konzentrationsgradienten in  $Bi_x Y_{3-x} Fe_5 O_{12}$  bezüglich ihrer Faraday-Drehung (FR) bei abnehmender Bi-Konzentration untersucht werden.

Dazu wurden, von BIG ausgehend, vier verschiedene Targets mit unterschiedlichen Y-Konzentrationen hergestellt ( $Bi_3$ ,  $Bi_{2,2}Y_{0,8}$ ,  $Bi_{1,4}Y_{1,6}$  und  $Bi_{0,6}Y_{2,4}$ ). Bei einer Substrattemperatur von  $550^\circ C$  konnte durch eine Druckreihe für jede Konzentration der Hintergrundgasdruck während der Ablation optimiert werden. Mit Hilfe von RBS konnten die Stöchiometrien der Granatschichten jeweils ermittelt werden.

Die Untersuchung zur Druckabhängigkeit der Schicht-Zusammensetzungen zeigte für einen Sauerstoffgasdruck von  $2-4 \cdot 10^{-2}$  mbar während der PLD die besten Ergebnisse.



**Abbildung 6.1:** Auswirkung der unterschiedlichen RE-Ionenradien auf die Gitterkonstante des Granaten. Eingetragen ist die thermodynamisch stabile Grenze.

Dabei konnte ein nahezu stöchiometrischer Übertrag vom Target auf das Substrat erzielt werden.

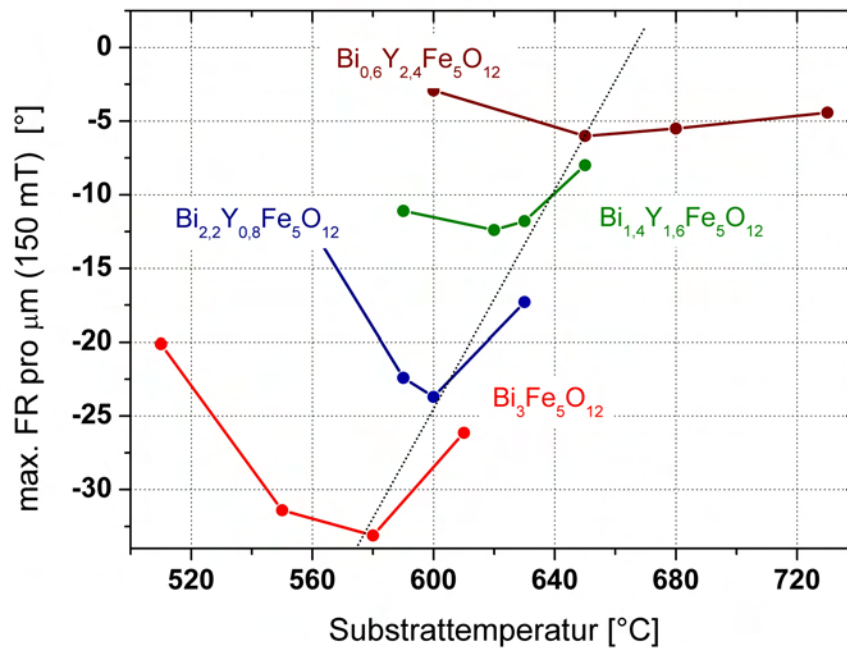
Da die Stöchiometrie ebenfalls stark von der Depositionstemperatur abhängt, wurde beim idealen Ablationsdruck von  $3 \cdot 10^{-2}$  mbar für jede Konzentration eine Temperaturreihe zwischen  $500^\circ\text{C}$ – $700^\circ\text{C}$  auf GGG-Substraten durchgeführt. Diese Proben sind bezüglich ihrer Strukturen, Texturen und Faraday-Drehungen näher untersucht worden. Es stellte sich heraus, dass die FR sehr stark von der Substrattemperatur während des Ablationsvorgangs abhängt, wohingegen die Stöchiometrien in diesem Temperaturbereich keine großen Unterschiede aufweisen.

Da die FR den wichtigsten Parameter der Studie darstellt, wurde jeweils die Depositionstemperatur für eine maximale Drehung ermittelt. In Abbildung 6.2 ist das Ergebnis dazu gezeigt. Es wurden die jeweils gemessenen Maximaldrehungen der FR gegenüber der Substrattemperatur während der Ablation aufgetragen.

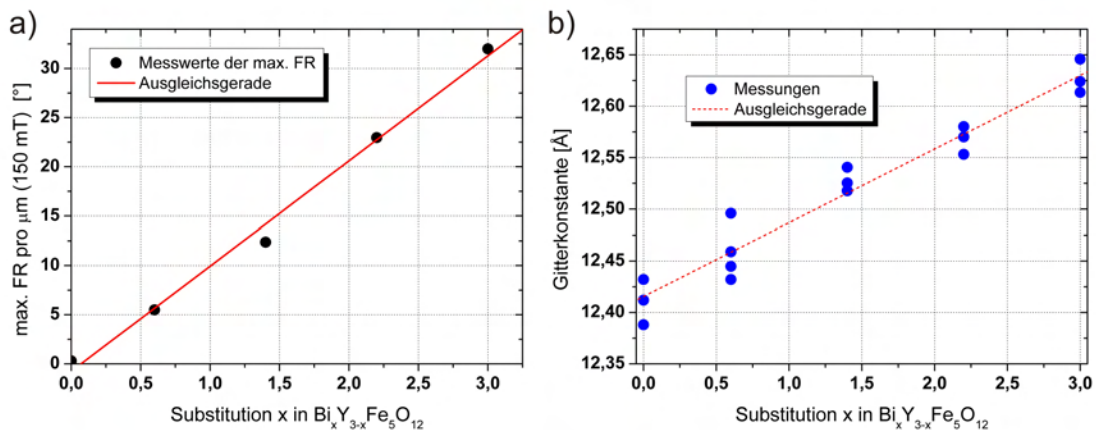
Deutlich zu erkennen ist die Verschiebung des Maximums der FR mit zunehmendem Substitutionsgrad. Für  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  liegt diese bei etwa  $580^\circ\text{C}$  und verschiebt sich mit abnehmender Konzentration für  $\text{Bi}_{0,6}\text{Y}_{2,4}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  zu einer Depositionstemperatur von  $650^\circ\text{C}$ . Die maximale Drehung nimmt auf Grund der deutlich geringeren Bi-Konzentration ab. Durch Extrapolation der Ausgleichsgeraden in Abb. 6.2 lässt sich in etwa die Depositionstemperatur für reinen YIG ableiten. Dieses Ergebnis stimmt gut mit den Parametern der Pufferherstellung überein. Dort wurde eine ideale Ablationstemperatur von  $700^\circ\text{C}$  ermittelt (vgl. Kap. 5.2.3).

Da die Temperaturen jeweils im Heizer gemessen wurden, liegen diese deutlich über der tatsächlichen Temperatur an der Probe während der Filmabscheidung. Die ermittelte ideale Ablationstemperatur von  $580^\circ\text{C}$  für  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  entspricht also in grober Näherung etwa der aus anderen Arbeiten bekannten idealen Substrattemperatur von  $550^\circ\text{C}$  [3, 14].

Abbildung 6.3a) zeigt die Abhängigkeit der maximalen FR von den Bi-Konzentrationen der bei optimalen Parametern deponierten Proben. Es zeigt sich eine linearer Anstieg der maximalen FR bei steigender Konzentration  $x$  in  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  [12]. Diese Abhängigkeit konnte für ähnliche Materialien ( $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Al}_{1,2}\text{Fe}_{3,8}\text{O}_{12}$ ) ebenfalls entdeckt werden [144].



**Abbildung 6.2:** Abhängigkeit der maximalen Faraday-Drehung von der Substrattemperatur während der Ablation für unterschiedliche Bi-Konzentrationen in Bi:YIG.



**Abbildung 6.3:** Lineare Zusammenhänge zwischen der Y-Konzentration  $x$  und der a) maximalen Faraday-Drehung, b) Gitterkonstanten von  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .

Die Textur der Proben wurde mittels Röntgendiffraktometrie untersucht. Dabei sollten durch  $\theta$ - $2\theta$ -Beugungsmessungen die Änderung der Epitaxiebeziehungen ermittelt werden. Um den Einfluss der Konzentration auf die Verschiebung der Beugungsreflexe zu bestimmen, wurden alle Spektren in Bezug auf die Substrat-Reflexe ausgewertet. Es können allerdings keine quantitativen Aussagen getroffen werden, da die Geometrie der Reflexe von zahlreichen Parametern, wie z.B. der Schichtdicke oder der Probenverkipfung, abhängen (vgl. Abb. 3.2). In Abbildung 6.3b) ist das Ergebnis der Texturanalyse zu sehen. Eine Auftragung der Gitterkonstanten gegen die Konzentration zeigt einen linearen Zusammenhang und bestätigt damit die Vegard'sche Regel (vgl. Abb. 6.1). Die eingetra-

gene Ausgleichsgerade zeigt eine lineare Zunahme der Gitterkonstanten mit steigender Bi-Konzentration. Die Streuungen der einzelnen Messpunkte sind auf Verschiebungen der reinen Granatreflexe durch Fremdphasen in der Schicht zu erklären.

Bei den Untersuchungen zur Temperaturabhängigkeit stellte sich weiter heraus, dass es bei zu hohen Heizertemperaturen zu einer Zersetzung der BIG-Phase kommt und die Proben röntgenamorph werden. Liegen die Depositionstemperaturen nicht im Bereich der idealen 630 °C entstehen eine BFO- ( $\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$ ) oder eine Perowskit-Phase ( $\text{BiFeO}_3$ ). Die Entstehung dieser Phasen überlagern die BIG-Beugungsreflexe, da sie ähnliche Beugungsbedingungen erfüllen [3]. Röntgenamorphe Proben zeigen weiterhin keine Faraday-Drehung.

ESEM-Untersuchungen zur Morphologie der Probenoberflächen zeigten ähnliche Ergebnisse wie bei BIG-YIG-SiO<sub>2</sub>-Multilagen (vgl. Abb. 5.17). Der Einfluss der Bi-Konzentration auf die Oberflächenstruktur äußert sich in einer Abnahme der Korngröße. Aus einer anfangs eng zusammengewachsenen Körnerstruktur entsteht mit abnehmender Konzentration eine immer glatter werdende Oberfläche [139].

In dieser Studie konnte gezeigt werden, dass die Bi-Konzentration Einfluss auf Struktur, Textur und Faraday-Drehung nimmt. Die optimalen Depositionsparameter sind dabei temperaturabhängig.

## 6.2 $\text{Nd}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

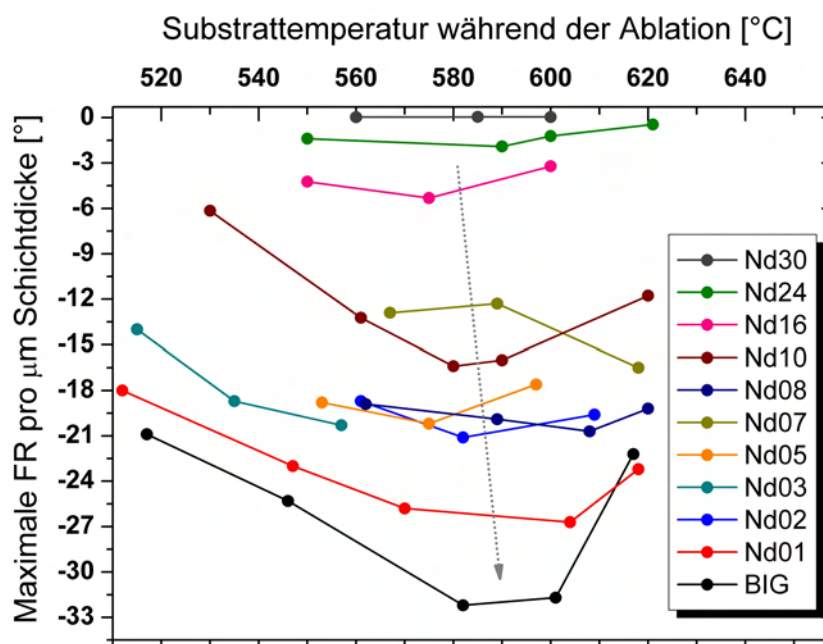
Im folgenden Abschnitt werden die Untersuchungen zu Nd-substituierten Bismutheisengranaten  $\text{Nd}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  kurz vorgestellt. Die Untersuchung des NIG/BIG-Gradienten erfolgte auf ähnliche Art und Weise wie die Studien zu den anderen Substituenten. Dazu wurden, von BIG ausgehend, Targets mit Nd-Konzentrationen von  $\text{Nd}_{0,1}$ ,  $\text{Nd}_{0,2}$ ,  $\text{Nd}_{0,3}$ ,  $\text{Nd}_{0,5}$ ,  $\text{Nd}_{0,7}$ ,  $\text{Nd}_{0,8}$ ,  $\text{Nd}_{1,0}$ ,  $\text{Nd}_{1,6}$ ,  $\text{Nd}_{2,0}$ ,  $\text{Nd}_{2,4}$  und  $\text{Nd}_{3,0}$  hergestellt.

Zunächst wurde der stöchiometrische Übertrag bei einer Substrattemperatur von 550 °C für verschiedene Sauerstoffgasdrücke optimiert. Wie sich durch RBS-Analysen herausstellte, unterscheiden sich die Proben in einem Druckbereich von  $1-9 \cdot 10^{-2}$  mbar nur sehr geringfügig. Deshalb fanden alle Depositionen der Proben bei einem idealen Sauerstoffgasdruck von  $3 \cdot 10^{-2}$  mbar statt.

Im Anschluss daran erfolgten ausführliche Struktur- und Texturanalysen für die entsprechenden Nd-Konzentrationen bei unterschiedlichen Temperaturen. Dabei sollte auch die maximale FR für die jeweilige Konzentration ermittelt werden. Das Ergebnis ist in Abb. 6.4 zu sehen, wobei die Stöchiometrien der Zusammensetzung der einzelnen Targets entsprechen. Die jeweilige Nd-Konzentration steht in den Abkürzungen der jeweiligen Messpunkte in der Form  $\text{Nd}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .

Es ist deutlich zu erkennen, dass die FR der Proben vor allem für hohe Bi-Konzentrationen stark von der Substrattemperatur abhängen, wobei über 630 °C an der Probe, auf Grund des Heizers, nicht erzielt werden können.

Die maximalen FR nehmen mit steigender Nd-Konzentration von BIG nach NdIG langsam ab. Vollsubstituierter  $\text{Nd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Granat weist keinerlei FR auf. Für höhere Substitutionen kann eine optimale Depositionstemperatur nicht bzw. nur sehr schlecht bestimmt werden. Dazu müssten noch ausführlichere Untersuchungen durchgeführt werden. Da aber eine möglichst hohe FR im Vordergrund stand, wurde darauf verzichtet.



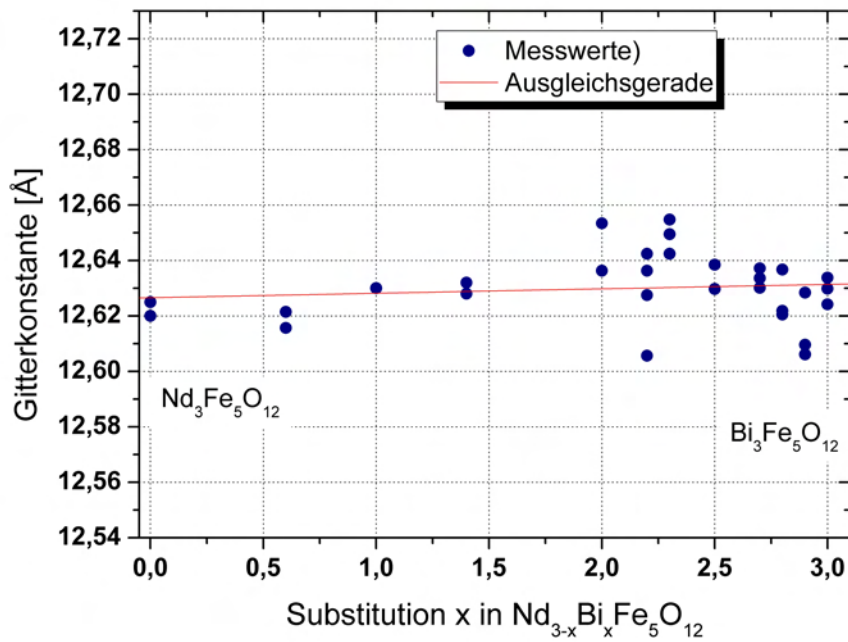
**Abbildung 6.4:** Maximale Faraday-Drehung pro  $\mu\text{m}$  Schichtdicke in Abhängigkeit von der Substrattemperatur während der Ablation für die einzelnen Nd-Konzentrationen. Die FR nimmt mit zunehmendem Anteil  $x$  langsam ab.

In weiteren Studien sind mittels Röntgendiffraktometrie die einzelnen Texturen der Proben analysiert worden. Dazu sollte der Einfluss der Nd-Konzentration  $x$  auf die Gitterkonstanten ermittelt werden. Deshalb wurden die Netzebenenabstände der (400)- und (800)-Reflexe der Schichten unter Berücksichtigung der Substrat-Reflexe bestimmt. Weiterhin konnte festgestellt werden, dass alle Proben epitaktisch auf das GGG-Substrat aufwachsen. Bei zu niedrigen Ablationstemperaturen werden die NdIG-Proben röntgenamorph und bilden keine Granatphase mehr aus (vgl. [145]).

Abbildung 6.5 zeigt keine tendenzielle Veränderung der Gitterkonstanten bei zunehmender Nd-Konzentration. Dies steht in gutem Einklang mit den zu erwartenden Ergebnissen, da sich die Gitterkonstanten von BIG ( $12,62\text{\AA}$  [143]) und NdIG ( $12,60\text{\AA}$  [13]) kaum unterscheiden. Der Verlauf der Kurve sollte auch, in Anbetracht der Ionenradien von Bismuth ( $r_{ion}=117\text{ pm}$ ) und Neodym ( $r_{ion}=112,3\text{ pm}$ ), von BIG zu NdIG hin leicht abnehmen, was anhand der ausführlichen Messungen und durch Anlegen einer Ausgleichsgeraden gut ersichtlich ist.

Die einzelnen Analysen der Schichtzusammensetzungen (RBS und EDX), sowie die morphologischen Untersuchungen die durch Rasterelektronenmikroskopie durchgeführt wurden, werden ausführlich in den Zusammenfassungen [139, 140] diskutiert.

Bleibt zu erwähnen, dass bei den Nd-substituierten Proben ein 3d-Insel-Wachstum stattfindet. Aufgrund der (100)-Orientierung des Substrates reihen sich vierseitige Pyramiden aneinander, bis das Substrat vollständig bedeckt ist. Dieselbe Tatsache konnte bereits für reine BIG-Schichten in [3] festgestellt werden.



**Abbildung 6.5:** Aus XRD-Texturmessungen ermittelte Gitterkonstante der hergestellten  $\text{Nd}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Schichten aufgetragen gegen den Neodymanteil  $x$ , wobei die Messwerte auf den Substratreflex angepasst wurden. Es zeigt sich auf Grund der nahezu gleichen Ionenradien von Bismuth und Neodym, dass die Gitterkonstante von BIG zu NdIG hin nur leicht abnimmt. Dies stimmt mit der Theorie gut überein.

### 6.3 $\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

Für die Schichtherstellung wurden dieselben Pulsenergien, wie bei der Deposition von BIG, gewählt<sup>23</sup>. In einer Studie erwies sich diese Energie, bei einer Laserfrequenz von  $f = 20 \text{ Hz}$  und Sauerstoff als Hintergrundgas, als optimal, um eine möglichst dicke Schicht mit größtmöglicher FR zu erreichen. So konnte ein ausreichender Bismuthtransfer vom Target auf das Substrat gewährleistet werden. Der Einfluss von Sauerstoffgasdruck  $p_{\text{O}_2}$  und Substrattemperatur  $T$  während der Ablation wurden für die jeweiligen Targetkonzentrationen optimiert. Dabei wurden folgende Substitutionen untersucht: ( $\text{Pr}_{0,25}\text{Bi}_{2,75}/\text{Pr}_{0,5}\text{Bi}_{2,5}/\text{Pr}_1\text{Bi}_2/\text{Pr}_{1,5}\text{Bi}_{1,5}/\text{Pr}_2\text{Bi}_1/\text{Pr}_3$ )  $p_{\text{O}_2}$  Für jedes Target wurde, im Hinblick auf einen passenden Stöchiometrieübertrag von  $\frac{c_{\text{Pr}}+c_{\text{Bi}}}{c_{\text{Fe}}} = 0,6$ , der optimale Sauerstoffgasdruck  $p_{\text{O}_2}$  im Bereich von  $0,5\text{--}9,0 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$  bei einer konstanten Temperatur von  $550 \text{ °C}$  ermittelt.

In Tabelle 6.1 sind die optimierten Sauerstoffdrücke während der Ablation für die einzelnen Pr-Konzentrationen  $x$  in  $\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  angegeben. Diese liegen, verglichen mit den Pufferschichten, in etwa bei der gleichen Größenordnung von  $p_{\text{O}_2} = 3,0 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$ . Die Schichtzusammensetzung wurde jeweils mittels RBS bestimmt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass das Verhältnis der Konzentrationen von Praseodym und Bismuth zusammen zu Eisen bei allen Targets sich etwas unter dem idealen Wert von 0,6

<sup>23</sup>Energiedichte von etwa  $8 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  bei  $E_{\text{Puls}} = 600 \text{ mJ}$ .



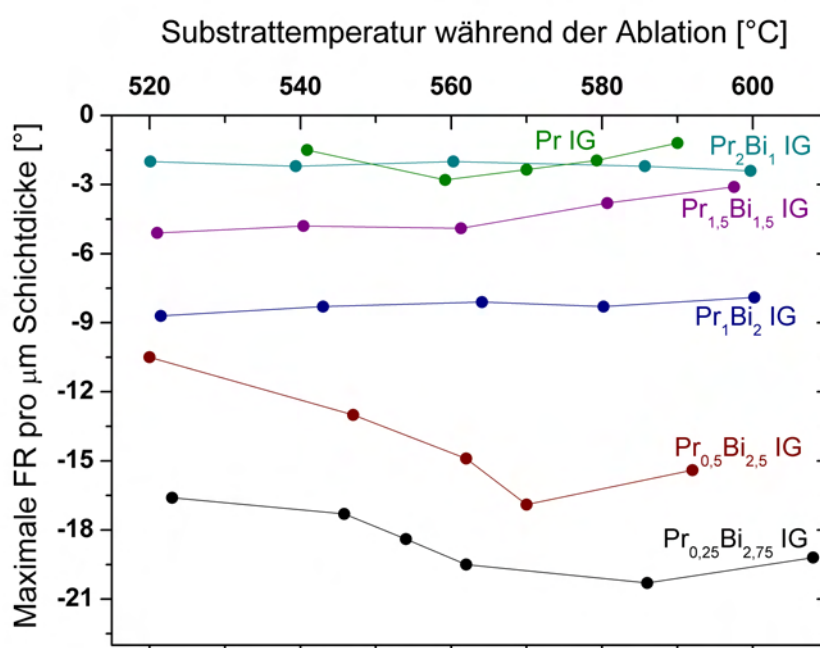
Target	opt. Druck	Schicht $\frac{c_{Pr}+c_{Bi}}{c_{Fe}}$
$\text{Pr}_{0,25}\text{Bi}_{2,75}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,58
$\text{Pr}_{0,5}\text{Bi}_{2,5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3,1 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,55
$\text{Pr}_1\text{Bi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,59
$\text{Pr}_{1,5}\text{Bi}_{1,5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,58
$\text{Pr}_2\text{Bi}_1\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,60
$\text{Pr}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,63

**Tabelle 6.1:** Optimierung des Sauerstoffdrucks  $p_{\text{O}}$  für die Deposition von  $\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  in Abhängigkeit von der Konzentration  $x$ .

befindet. Wie bereits in anderen Arbeiten herausgefunden werden konnte, kann dies auf einen Fe-Überschuss in den Targets nach dem Sinterprozess zurückgeführt werden [129].

Um den Einfluss der Substrattemperatur auf die Faraday-Drehung zu ermitteln, wurde bei fest ausgewähltem Druck jeweils eine Temperaturreihe auf (100)-GGG-Substraten erstellt. Temperaturen unterhalb von  $500\text{ }^\circ\text{C}$  erwiesen sich als nicht geeignet um epitaktisch aufgewachsene Schichten herzustellen.

Die gemessenen Maximaldrehungen der einzelnen Proben sind für die unterschiedlichen Temperaturen in Abb. 6.6 aufgetragen.



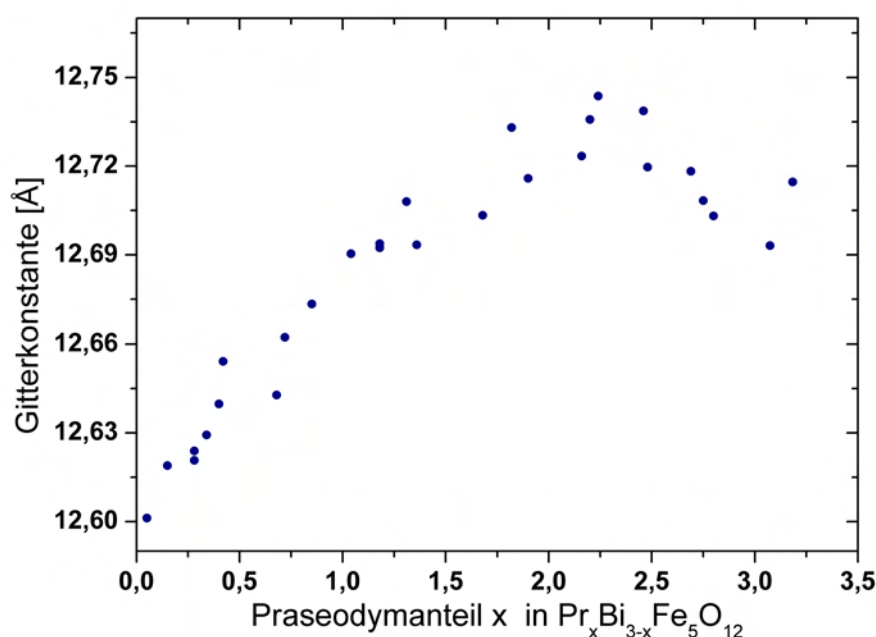
**Abbildung 6.6:** Maximale Faraday-Drehung pro  $\mu\text{m}$  Schichtdicke in Abhängigkeit von der Substrattemperatur während der Ablation für die einzelnen Pr-Konzentrationen.

Dabei nimmt die maximale FR mit zunehmender Pr-Konzentration ab. Innerhalb der Temperaturreihen sind lediglich bei den geringeren Substitutionen Schwankungen der FR-Maxima zu erkennen. Bei  $\text{Pr}_{0,25}\text{Bi}_{2,75}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  zeigt sich die höchste FR von ca.  $20 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$  für eine optimale Substrattemperatur von ca.  $635\text{ }^\circ\text{C}$ .



ist auf die Absorptionskante des Bismutheisengranaten im sichtbaren Spektrum zurückzuführen, welche auch für die hohe FR verantwortlich ist [3]. Von einer derartigen Rotverschiebung des Spektrums wurde bereits in [146] berichtet. Diese wurde darauf zurückgeführt, dass es durch die Substitution innerhalb des oktaedrischen Fe-O-Gefüges im Kristall zu einer Störung der elektronischen Übergänge kommt. Diese Änderung der Mikrostruktur könnte für die Verschiebung verantwortlich sein und konnte, wenn auch nur theoretisch, nachgewiesen werden.

In einer weiteren Studie sollte der Einfluss der Konzentration  $x$  in  $\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  auf die Textur der Proben untersucht werden. Dazu wurden mittels Röntgendiffraktometrie für alle Proben die Netzebenenabstände der (400)- und (800)-Reflexe der Schichten bestimmt und die Spektren in Bezug auf die Substrat-Reflexe ausgewertet. Abbildung 6.8 zeigt, dass die Gitterkonstante mit zunehmender Konzentration  $x$  zunimmt. Eine zunächst ungeklärte Ausnahme wiesen dabei die vollsubstituierten Praseodymeisengranatproben auf, da die Gitterkonstante ab einer Konzentration von etwa  $x = 2,3$  wieder anzusteigen scheint. Wie es sich jedoch nach XPS-Untersuchungen (vgl. Abb. 6.9) herausstellte, könnte dies auf eine Änderung der Eisenbindungszustände zurückgeführt werden, welche die Kristallstruktur verändern.

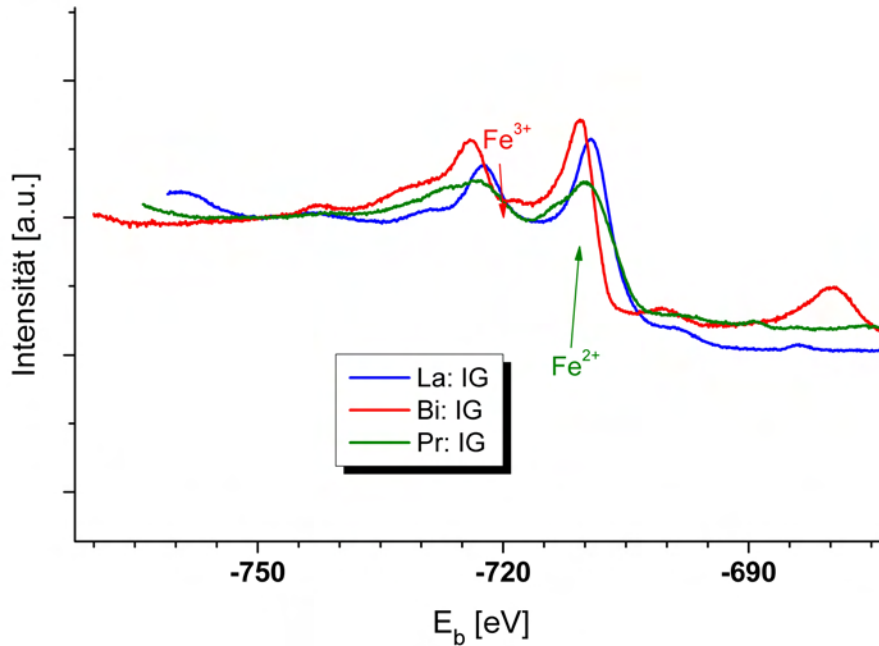


**Abbildung 6.8:** Aus XRD-Texturmessungen ermittelte Gitterkonstante der hergestellten  $\text{Pr}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Schichten aufgetragen gegen den Praseodymanteil  $x$ . Die Werte wurden jeweils unter Berücksichtigung des Substratreflexes ausgemessen.

Übernimmt man die von der Koordinationszahl abhängigen Ionenradien aus [147], so beträgt der Ionenradius von Praseodym 114 pm und ist somit größer als der Ionenradius von Bismuth mit 112 pm. Deshalb wäre zu erwarten, dass die Gitterkonstante größer wird, wenn Pr-Atome auf den Plätzen der Bi-Atome sitzen. Die Messwerte bestätigen dieses Verhalten. Bei Betrachtung der neueren revidierten Literaturwerte [148], ergeben sich andere Ionenradien für Bismuth und Praseodym:  $r_{\text{Bi}} = 117$  pm und  $r_{\text{Pr}} = 113$  pm, so

dass die Messwerte nicht mehr mit der Theorie übereinstimmen<sup>24</sup>. In anderen Arbeiten konnte PrIG mit einer Gitterkonstanten von  $12,65\text{\AA}$  [13] ermittelt werden, was für die wieder abfallende Tendenz sprechen würde.

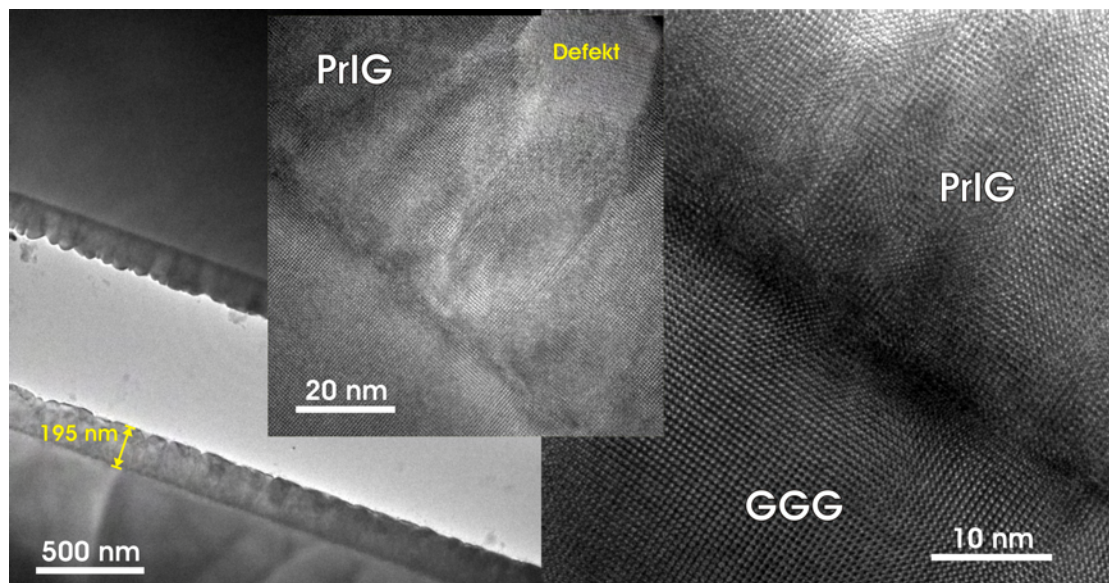
Um dieser Problematik auf den Grund zu gehen, wurden an einer PrIG- ( $\text{Pr}_{3,2}\text{Fe}_{4,4}\text{O}_{12,5}$ ), LaIG- ( $\text{La}_{3,2}\text{Fe}_{4,2}\text{O}_{12,6}$ ) und stöchiometrischen BIG-Probe XPS-Messungen vorgenommen, um die Bindungsverhältnisse zu überprüfen. Die Lanthansubstituierte Probe wird in diesem Zusammenhang zur besseren Veranschaulichung verwendet. Das Ergebnis hierzu ist in Abb. 6.9 gezeigt.



**Abbildung 6.9:** ESCA-Spektren verschiedener Granat-Proben zur Veranschaulichung der Fe-Bindungsverhältnisse (Rot: BIG, grün: PrIG, blau: LaIG). Deutlich erkennbar sind die strukturellen Unterschiede der Proben. Der reine BIG zeigt dreiwertige Fe-Bindungen auf Grund des Satelliten zwischen den Hauptlinien der Fe 2p-Linien. Der vollsubstituierte PrIG besitzt eine Schulter nahe der  $2p_{3/2}$ -Linie die auf zweiwertiges Fe schließen lässt. Das Spektrum der LaIG-Probe entspricht dagegen einer Fe-Mischphase [68].

Um die Bindungsverhältnisse zu überprüfen, bietet es sich an, das Spektrum der intensitätsstarken Fe 2p-Linien zu betrachten. Wie in Abb. 6.9 zu erkennen ist, unterscheiden sich die Spektren der Proben sehr deutlich. Das Spektrum des reinen Bismutheisengranaten bildet einen *Satelliten* nahe der  $2p_{1/2}$ -Linie, welcher auf Fe(III) zurückzuführen ist [68]. Die PrIG-Probe zeigt eine *Schulter*, die neben der  $2p_{3/2}$ -Linie liegt und auf das Vorhandensein von Fe(II) Schließen lässt. Das Spektrum der LaIG-Probe (siehe Kap. 6.4) dagegen stimmt mit Referenzmessungen an Eisenoxiden für eine Fe-Mischphase aus sowohl Fe(III) als auch Fe(II) überein (vgl. Abb. 3.11). Aufgrund den unterschiedlichen Bindungsverhältnissen des Eisens bei den verschiedenen Substitutionen ist davon auszugehen, dass Pr-Atome nicht einfach auf den Bi-Atom-Plätzen sitzen, sondern dass komplexere Verhältnisse vorliegen. Dadurch könnte das anormale Verhalten erklärt werden.

<sup>24</sup>Für jede Substitution wurden auch Polfiguren aufgenommen, die allerdings keine Auffälligkeiten zeig-



**Abbildung 6.10:** Hochaufgelöste Querschnitts-TEM-Aufnahme einer epitaktischen PrIG-Probe mit zunehmender Vergrößerung. Deutlich zu sehen sind einzelne Korngrenzen, die sich bis zur Oberfläche durchziehen. Auch sind einzelne Defekte in der Schicht erkennbar, die vom epitaktischen Material umwachsen werden. An der Probenoberfläche zeigt sich eine pyramidenförmige Kornstruktur, die auf die Substratorientierung zurückzuführen ist (vgl. [3]).

Zuletzt werden in Abbildung 6.10 noch einige Hochauflösungs-TEM-Aufnahmen einer  $\text{Pr}_{0,26}\text{Bi}_{2,32}\text{Fe}_{4,78}\text{O}_{12,72}$ -Probe im Querschnitt gezeigt. Die Schicht scheint epitaktisch auf das GGG-Substrat aufgewachsen zu sein, was die periodische Fortsetzung der Substratstruktur zeigt. Auf dem Substrat bildet sich eine Kornstruktur aus, die sich bis zur Oberfläche durchzieht. Mit zunehmender Schichtdicke kommt es auch zu Einschlüssen bzw. Defekten in der Schicht, die vom epitaktischen Material umwachsen werden. Die Oberflächen weisen die Form von Pyramidenstümpfen auf, wie es auch für reine BIG-Schichten gefunden werden konnte [3].

## 6.4 $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

Die Herstellung der  $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -Schichten folgte einem ähnlichen Schema wie bei der Pr-Substitution. In einer ersten Versuchsreihe wurden für verschiedene Konzentrationen bei 550 °C Substrattemperatur Druckreihen im Bereich von 0,006 bis 0,09 mbar von jedem Target durchgeführt und mittels RBS auf ihre Stöchiometrie untersucht. Es wurden folgende Substitutionen untersucht:  $\text{La}_{0,5}\text{Bi}_{2,5}/\text{La}_1\text{Bi}_2/\text{La}_{1,5}\text{Bi}_{1,5}/\text{La}_2\text{Bi}_1/\text{La}_3$ .

In Tabelle 6.2 werden die ermittelten Konzentrationsverhältnisse dargestellt, wobei die Stöchiometrien auf den Idealwert von  $\frac{c_{\text{La}} + c_{\text{Bi}}}{c_{\text{Fe}}} = 0,6$  optimiert wurden.

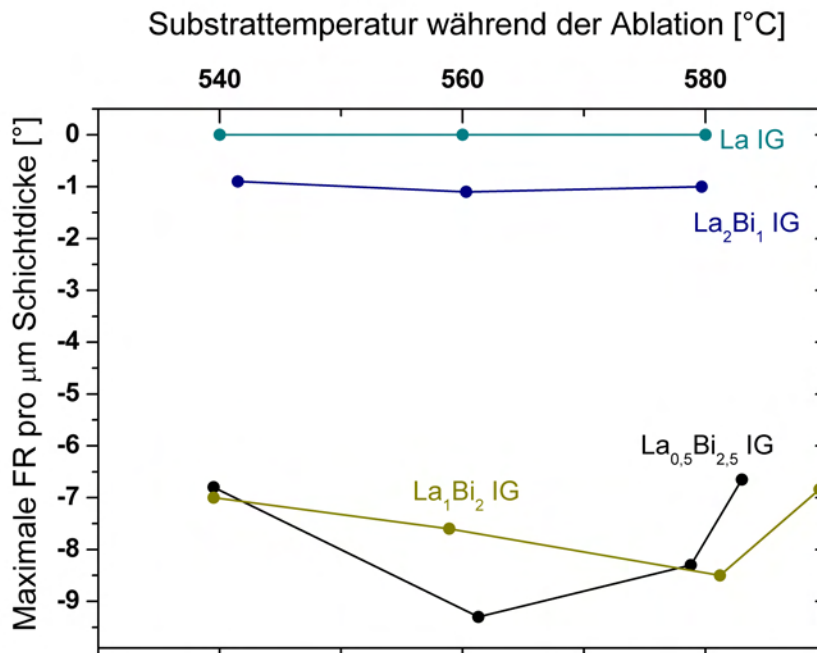
Es zeigt sich, dass der stöchiometrische Übertrag vom Target zum Substrat sehr gut kontrolliert werden kann. Im nächsten Schritt erfolgte die Optimierung der Substrattemperatur für jede Konzentration im Hinblick auf eine möglichst hohe Faraday-Drehung.

ten. Analog zu BIG-Untersuchungen waren bei allen Proben acht scharfe Peaks zu sehen. [141]

Zusammensetzung	opt. Druck	$\frac{c_{Pr}+c_{Bi}}{c_{Fe}}$
$\text{La}_{0,5}\text{Bi}_{2,5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,62
$\text{La}_1\text{Bi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,60
$\text{La}_2\text{Bi}_1\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,62
$\text{La}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$3 \cdot 10^{-2}$ mbar	0,61

**Tabelle 6.2:** Optimierung des Sauerstoffdrucks  $p_{\text{O}_2}$  für die Deposition von  $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  in Abhängigkeit von der Konzentration  $x$ .

Die Messergebnisse für die maximale FR sind in Abbildung 6.11 schematisch für jede Konzentration mit dazugehörigem Sauerstoff-Gasdruck dargestellt.

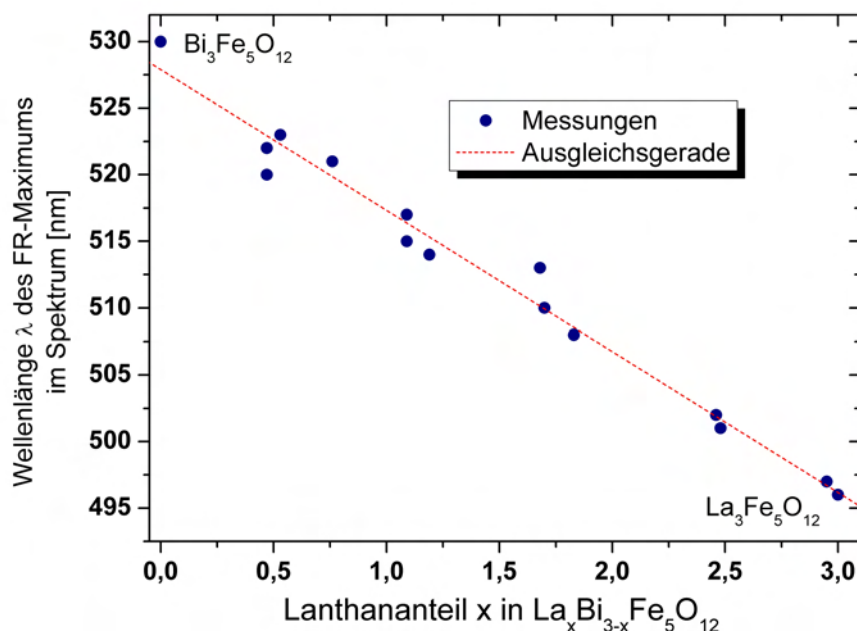


**Abbildung 6.11:** Maximale Faraday-Drehung pro  $\mu\text{m}$  Schichtdicke in Abhängigkeit von der Substrattemperatur während der Ablation für die einzelnen La-Konzentrationen.

Wie zu erkennen ist, besitzt die Schicht mit der geringsten Konzentration,  $\text{La}_{0,5}\text{Bi}_{2,5}$ , die höchste FR pro  $\mu\text{m}$  Schichtdicke mit einem maximalen Wert von  $9,3 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$ . Die Substrattemperatur lag im Bereich von  $560\text{ }^\circ\text{C}$ – $580\text{ }^\circ\text{C}$ . Die RBS-Auswertung dieser Schichten ergab einen nahezu stöchiometrischen Materialübertrag, wobei alle Proben etwas Fe-defizitär waren (mit etwa  $\text{Fe}_{4,1}$ ). Bei weiterer Betrachtung fällt auf, dass eine etwas höhere La-Konzentration von  $\text{La}_1\text{Bi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  die FR kaum beeinflusst und in der selben Größenordnung wie zuvor liegt. RBS-Analysen zeigten jedoch eine deutliche Zunahme des Eisengehaltes der Schichten (auf  $\text{Fe}_{4,8}$ ). Wird die La-Konzentration weiter erhöht, so hat dies zur Folge, dass die FR auf etwa  $1 \frac{\circ}{\mu\text{m}}$  einbricht. Eine Vollsubstitution zu LaIG zeigt keine FR mehr, obwohl mittels Röntgendiffraktometrie eine epitaktische Schicht nachgewiesen werden konnte.

Im Folgenden wurde, wie bei der Pr-Substitution, die Auswirkung der Konzentration

$x$  in  $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  auf die Wellenlänge der maximalen FR im Spektrum untersucht. In Abbildung 6.12 ist dazu für jede Schicht die Wellenlänge, bei der das jeweilige FR-Maximum im Spektrum auftritt, gegen den Lanthananteil  $x$  aufgetragen.



**Abbildung 6.12:** Wellenlängenabhängige Verschiebung der FR-Maxima in Abhängigkeit vom Lanthananteil  $x$  in  $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .

Es zeigt sich bei steigender Konzentration  $x$  des La-Gehalts eine tendenziell lineare Verschiebung des Maximums zu niedrigeren Wellenlängen hin. Unter der Annahme eines linearen Verlaufes ergibt sich, durch Anlegen einer Ausgleichsgeraden, für reinen BIG das FR-Maximum bei einer Wellenlänge von 529 nm, was gut mit zuvor durchgeführten Messungen übereinstimmt. Die Vollsubstitution zu reinem  $\text{La}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  verschiebt das Maximum sogar in einen Bereich unter 500 nm. Im Rahmen der Messgenauigkeit ist dieses Ergebnis nahezu identisch mit den Untersuchungen an Pr-dotierten Bismutheisengranatschichten.

Studien zum Transmissionsvermögen der Schichten, in Abhängigkeit von der La-Konzentration, sind in [141] zusammengefasst.

In einer letzten Untersuchung sollte der Einfluss der Konzentration auf die Textur der Proben untersucht werden. Mittels Röntgendiffraktometrie wurden zunächst die Netzebenenabstände der (400)- und (800)-Reflexe der Schichten ausgemessen und anschließend unter Berücksichtigung der Substrat-Reflexe die Gitterabstände ermittelt. Erwartungsgemäß stellte sich heraus, dass sich mit steigender Lanthankonzentration die Gitterkonstante von  $12,67\text{\AA}$  auf bis zu  $12,86\text{\AA}$  vergrößert (Eine Simulation ergab für  $a_{\text{LaIG}} = 12,73\text{\AA}$ ). Eine Erklärung für die großen Abweichungen konnte durch die in Abb. 6.9 gezeigte ESCA-Messung gefunden werden. Das Spektrum der LaIG-Probe zeigt eine Eisenoxid-Mischphase aus Fe(III) und Fe(II). Es kommt also zu einer Veränderung der Bindungsverhältnisse des Eisens in der Granatstruktur, wodurch die beobachteten Veränderungen der Gitterkonstante entstehen.

Weitere Details zur La-Substitution  $x$  in  $\text{La}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  und deren röntgenographischen Eigenschaften sind ausführlich in [141] diskutiert.

## 6.5 $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ und $\text{Ce}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse zu dünnen Ce-dotierten Granatfilmen vorgestellt. Zu diesen Materialien ist bislang nur wenig bekannt, meistens wird von Ce:YIG berichtet. Deshalb wurde dieser Substituent etwas genauer untersucht, wobei die physikalischen Eigenschaften von CeIG und die Ce-Substitution von BIG ( $\text{Ce}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ,  $\text{Ce}_x\text{BIG}$ ) im Vordergrund standen.

Zunächst wurden die zur PLD notwendigen CeIG- und  $\text{Ce}_x\text{BIG}$ -Targets mittels Sol-Gel-Verfahren hergestellt. Das CeIG-Target wurde mit einem Stöchiometrieverhältnis von  $\text{Ce}/\text{Fe} = 0.6$  bei  $1300^\circ\text{C}$  für 30h gesintert. Da sich die Struktur des CeIG nicht einfach stabilisieren lässt, ergab sich ein mehrphasiges Ablationstarget (PXR-D-Messungen ergaben hauptsächlich  $\text{CeO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ). Für die Untersuchung von  $\text{Ce}_x\text{BIG}$  wurden Targets mit unterschiedlichen Konzentrationen (bei  $800^\circ\text{C}$  mit  $x = \text{Ce}_0, \text{Ce}_{0,1}, \text{Ce}_{0,3}, \text{Ce}_{0,5}, \text{Ce}_1, \text{Ce}_{1,5}, \text{Ce}_2, \text{Ce}_{2,5}$ ) hergestellt<sup>25</sup>.

### CeIG

Die CeIG-Filme wurden auf (100)-GGG bei verschiedenen Substrattemperaturen im Bereich von  $500^\circ\text{C}$ – $620^\circ\text{C}$  mit einer Frequenz von 5 Hz abgeschieden. Dabei kam, im Vergleich zu den bislang beschriebenen Dotierungen, ein Stickstoff-Hintergrundgasdruck von 0,14 mbar während der Filmdeposition zum Einsatz. Nach der Deposition wurde der Stickstoff- durch einen Sauerstoff-Gasfluss ersetzt. Der Druck blieb dabei konstant und die Proben wurden innerhalb von zwei Stunden auf Raumtemperatur abgekühlt.

Die unter  $\text{O}_2$ -Atmosphäre abgeschiedenen CeIG-Filme hatten zwar die richtige Stöchiometrie, waren aber röntgenamorph.

Dieses Problem zeigte sich bereits für Ce-YIG Filme, die ohne  $\text{O}_2$ -Gas durch Sputtern oder PLD hergestellt wurden. Es ergab sich nicht nur ein geringer Materialübertrag, sondern es zeigte sich auch, dass die  $\text{Ce}^{3+}$ -Ionen als  $\text{Ce}^{4+}$ -Ionen vorlagen. Die Verwendung von Sauerstoff während der Herstellung unterstützt die Bildung von  $\text{Ce}^{4+}$ -Ionen und reduziert den  $\text{Ce}^{3+}$ -Anteil. Dieser ist für die Ausbildung einer Granatphase von essentieller Bedeutung. Der Literatur nach werden beim Sputtern Ar, Ar/ $\text{O}_2$  oder Ar/ $\text{H}_2$  [149–152] verwendet bzw. nur Ar bei der PLD [153–155].

Eine weitere Möglichkeit, eine Veränderung der Oxidationsstufe zu verhindern, ist die Verwendung einer Stickstoff-Atmosphäre [156]. Die CeIG-Filme wurden ohne zusätzliches Tempern bei verschiedenen Ablationstemperaturen aufgewachsen. Ihre Zusammensetzung und Schichtdicke wurde mit RBS bestimmt. Die Ergebnisse der RBS-Analysen ist in Tab. 6.3 zusammengefasst. Die Stöchiometrie der Filme zeigt einen Ce-Überschuss verglichen mit dem Fe-Anteil. Das Verhältnis von  $\text{Ce}/\text{Fe}$  ist ungefähr 0,69; anstatt dem theoretischen Idealwert von 0,6 für die Zusammensetzung einer Granatstruktur. Die Schichtdicke kann über den gesamten Temperaturbereich mit durchschnittlich  $310\text{ nm} \pm 20\text{ nm}$  abgeschätzt werden.

<sup>25</sup>Die Temperatur muss so niedrig gewählt werden, da sich Bismuth leicht verflüchtigt.



Zusammensetzung	Dicke [nm]	Temp. [°C]	Temperaturzeit [min]	$\frac{c_{Ce}}{c_{Fe}}$
Ce <sub>3,4</sub> Fe <sub>4,6</sub> O <sub>12,0</sub>	107	600	10	0,74
Ce <sub>3,14</sub> Fe <sub>4,34</sub> O <sub>12,52</sub>	171	600	20	0,72
Ce <sub>3,3</sub> Fe <sub>4,6</sub> O <sub>12,1</sub>	145	600	40	0,72
Ce <sub>2,8</sub> Fe <sub>3,94</sub> O <sub>13,26</sub>	328	500	0	0,71
Ce <sub>2,92</sub> Fe <sub>4,4</sub> O <sub>12,68</sub>	313	530	0	0,66
Ce <sub>2,7</sub> Fe <sub>3,94</sub> O <sub>13,26</sub>	359	555	0	0,69
Ce <sub>2,8</sub> Fe <sub>4,32</sub> O <sub>12,96</sub>	288	580	0	0,65
Ce <sub>2,9</sub> Fe <sub>4,0</sub> O <sub>13,1</sub>	296	600	0	0,73
Ce <sub>2,9</sub> Fe <sub>4,4</sub> O <sub>12,7</sub>	328	620	0	0,66

**Tabelle 6.3:** Stöchiometrie, Schichtdicke und Wachstumsbedingungen für CeIG-Filme.

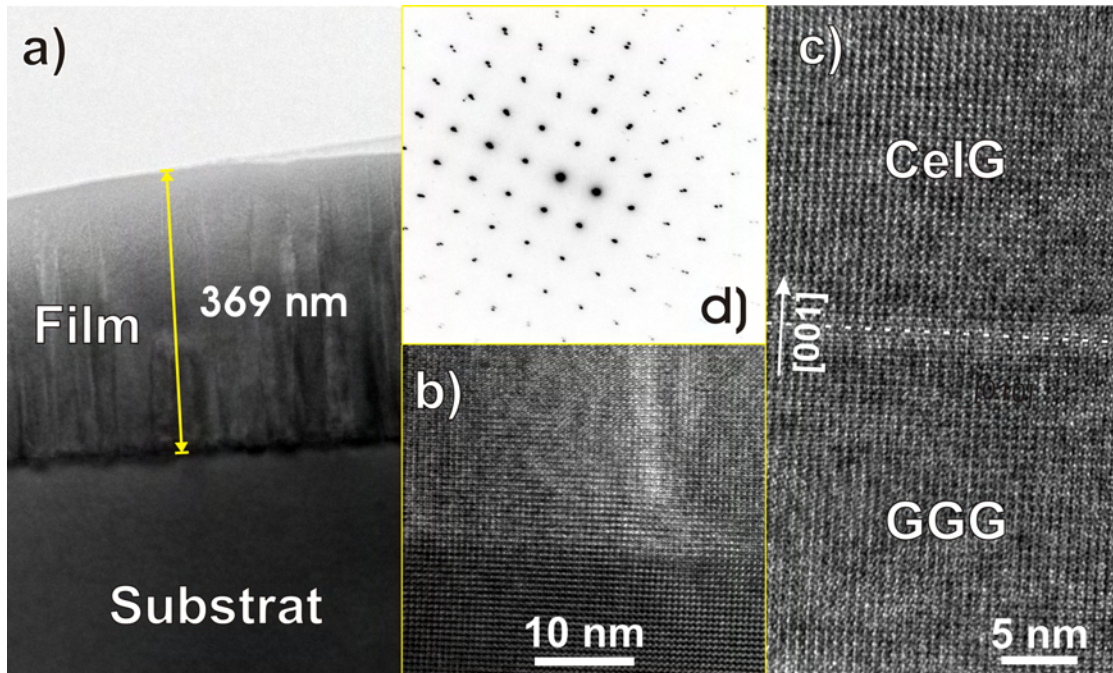
Die in dieser Studie abgeschiedenen und in N<sub>2</sub> abgekühlten CeIG-Filme waren alle schwarz und nur schlecht kristallin. Durch Verwendung von O<sub>2</sub> während dem Abkühlvorgang, konnten stabile CeIG-Strukturen realisiert werden. Die Filme waren in diesem Fall transparent und leicht grün-gelblich schimmernd.

Aufgrund der Notwendigkeit Sauerstoff-Gas nach dem Beschichtungsprozess zu verwenden, wurden verschiedene Temperzeiten in der Ablationskammer ausprobiert (0, 10, 20 und 40 Minuten). Die Filme wurden bei 600 °C in N<sub>2</sub>-Atmosphäre bei einem Hintergrundgasdruck von 0,14 mbar abgeschieden. Im Anschluss daran wurde bei Depositionstemperatur Sauerstoff-Gas zum Nachtempern eingesetzt und die Probe bei 0,14 mbar auf Raumtemperatur abgekühlt. Obwohl alle Stöchiometrien der Proben (Tab. 6.3) nahe am Wert des Targets liegen, zeigt nur eine Probe, die direkt im Anschluss an die Deposition abgekühlt wurde (Annealing = 0 min), bei der Röntgenanalyse starke Reflexe. Der Film der 10 Minuten getempert wurde, weist eine schlechte Kristallinität auf. Für 20 Minuten und 40 Minuten werden die Proben röntgenamorph. Deshalb wurden alle Proben der Temperaturreihe direkt nach der Deposition ohne Temperung unter O<sub>2</sub>-Fluss abgekühlt.

Röntgenographische Untersuchungen, der im Bereich von 500 °C–620 °C abgeschiedenen CeIG-Filme, führten zum Ergebnis, dass bei der niedrigsten Substrattemperatur von 500 °C kein (400)-Reflex vorhanden ist. Zwischen 530 °C und 600 °C zeigen alle Proben intensitätsstarke (400)- und (800)-Reflexe. Die Auswertung der (400)-Rocking-Kurven der Filme lag bei 0,11°. Dadurch konnte ein mittlerer Gitterparameter von 12,67 Å für eine 310 nm dicke Proben berechnet werden. Im Falle einer Substrattemperatur von 620 °C nehmen die Intensitäten der (400)- und (800)-Reflexe ab. Die Rocking-Kurven der CeIG-Filme ergaben eine Breite von 3° für den (400)-Reflex.

Eine bei 600 °C abgeschiedene Probe wurde für TEM-Analysen präpariert. In Abb. 6.13 sind HRTEM-Bilder vom Übergangsbereich zwischen Film und Substrat bei verschiedenen Vergrößerungen gezeigt. In Abb. 6.13a ist deutlich die deponierte Schicht auf dem Substrat zu erkennen. Das Film-Substrat-Interface (Abb. 6.13b und c) deutet auf einen unverspannten Übergang hin, welcher sich anhand der periodischen Fortsetzung der Substratstruktur auf den Film erkennen lässt. Trotz der relativ großen Gitterfehlanspassung des CeIG-Films besitzt die Schicht nach ein paar Atomlagen ihre eigenen Zellparameter.

Die Beugungsaufnahmen in Abb. 6.13d deuten auf eine perfekte Übereinstimmung zwischen der Substratorientierung und der des Films hin. Diese kann bis zu höheren Ord-

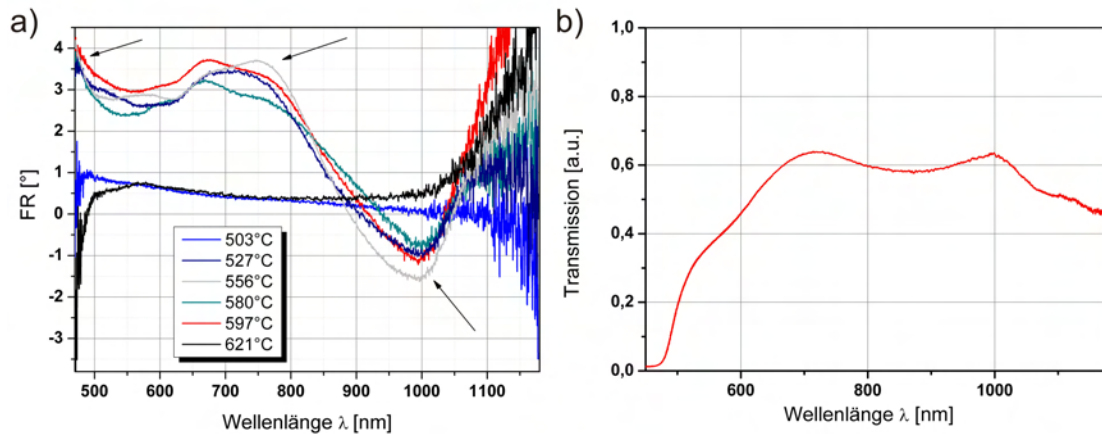


**Abbildung 6.13:** TEM-Aufnahme und Beugungsbild einer CeIG-Schicht. a) Übersichtsaufnahme der Schicht; b) und c) Film-Substrat-Interface bei verschiedenen Vergrößerungen, die die Schicht ist epitaktisch auf das Substrat angewachsen, wie an Hand des Beugungsbildes in d) bestätigt wird.

nungen der  $hkl$ -Indizes beobachtet werden. Die auftretenden Reflexe können sowohl dem Substrat als auch der Schicht zugeordnet werden. Eine Bestimmung der Gitterkonstanten daraus ergibt für die Einheitszelle des CeIG  $a_{CeIG} = 12,68\text{\AA}$  und  $a_{GGG} = 12,39\text{\AA}$  für das GGG-Substrat. Diese Werte stimmen gut mit den bei der XRD ermittelten Ergebnissen überein.

In Abbildung 6.14a werden die FR-Messungen der bei verschiedenen Temperaturen hergestellten Proben bei einem Feld von 150 mT angeführt. Dabei ist die FR gegen die Wellenlänge zwischen 450 nm und 1200 nm aufgetragen. Das Bild ist um die Transmission für eine 600 °C-Probe ergänzt (Abb. 6.15b). Die bei 500 °C und 620 °C abgeschiedenen Proben zeigen fast keinen Faraday-Effekt. Mit röntgenographischen Analysen konnte dies sehr gut in Einklang gebracht werden, da sie röntgenamorph waren.

Proben die zwischen 530 °C und 600 °C hergestellt wurden, wiesen etwa gleiche Tendenzen auf. CeIG-Proben zeichnen sich durch ihre charakteristischen Maxima aus (s. Pfeile). Diese liegen im infraroten Bereich, bei ca. 700 nm und bei niedrigeren Wellenlängen um die 400 nm. Auffallend ist hierbei die wechselnde Dreh-Richtung der FR-Maxima. Das Auflösungsvermögen des Detektors verhindert eine Messung unterhalb von 450 nm, aber der Ansatz eines dritten Maximalwertes, mit einer deutlich höheren FR, ist in den Spektren erkennbar. Die Ergebnisse können mit Messungen für Ce-substituierten YIG verglichen werden. Eine Ce-Substitution von YIG resultiert in einer verbesserten Faraday-Drehung im IR- und im UV-Bereich ([149] Maxima bei 700 nm und 430 nm, [157] Maxima bei 690 nm und 430 nm).



**Abbildung 6.14:** a) FR-Spektren der bei verschiedenen Substrattemperaturen deponierten CeIG-Schichten. b) Transmissionsmessung einer bei 597 °C deponierten CeIG-Schicht.

## CeBIG

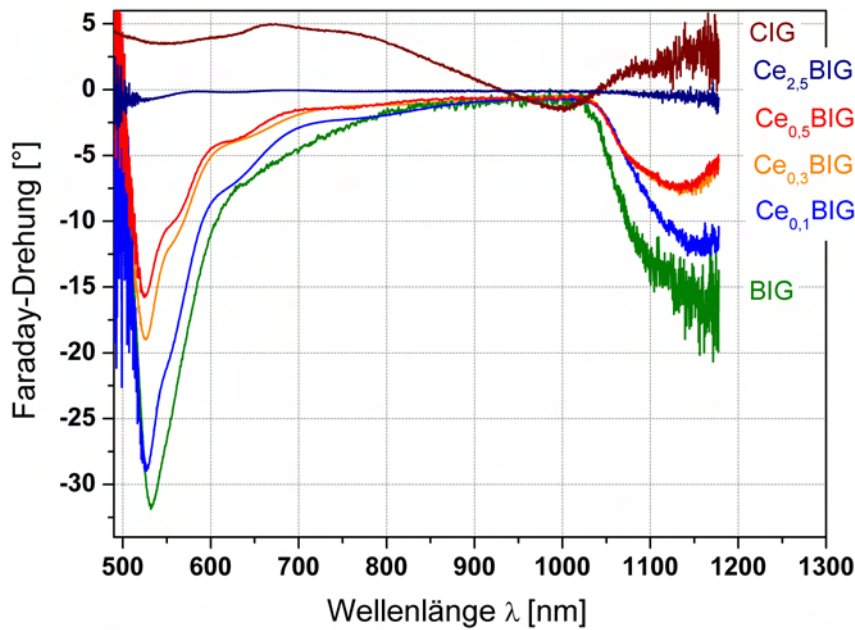
Die Wachstumsbedingungen für  $\text{Ce}_x\text{BIG}$ -Filme auf (100)-GGG-Substraten wurden von den optimierten BIG-Parametern abgeleitet. Die Zusammensetzungen und Schichtdicken der Proben wurden wiederum mittels RBS untersucht. Während der Ablation von  $\text{Ce}_x\text{Bi}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  kam bis zu einer Konzentration von  $x = 0.5$  Sauerstoff-Atmosphäre zum Einsatz (wie bei BIG). Der Abkühlvorgang bzw. alle anderen Parameter wurden aus den CeIG-Untersuchungen auf dieses Material-System übertragen.

Die Textur-Untersuchungen der  $\text{Ce}_x$ -BIG-Filme wurde mittels XRD vorgenommen. Diese sind bis zu einer Konzentration von etwa  $x = 0.5$  kristallin. Um die Röntgen-Spektren zu kalibrieren, wurden die Substratreflexe verwendet. Die gemessenen XRD-Spektren können auf Grund ihrer Ähnlichkeit mit den bereits bekannten Daten des BIG verglichen werden. Deshalb wird auf eine weitere Darstellung verzichtet. Die ermittelte Gitterkonstante aus den Röntgenreflexen ergibt ca.  $12,62\text{\AA}$ .

Die Zusammensetzung der Proben wurde mittels RBS-Analysen bestimmt und in allen Fällen stimmen die Anteile von Ce und Bi mit den Ausgangskonzentrationen der Targets überein.

Die FR-Messungen der Proben sind in Abb. 6.15 zusammengefasst. Alle Proben zeichnen sich durch ein mit BIG vergleichbarem Verhalten aus. Dies äußert sich in einem charakteristischen negativen Maximum bei einer Wellenlänge von 530 nm. Die FR nimmt mit zunehmender Konzentration  $x$  ab. Für Werte  $x \geq 0.5$  konnten keine kristallinen Schichten unter  $\text{O}_2$ -Atmosphäre hergestellt werden. Das lässt sich gut mit den Ergebnissen der CeIG-Wachstumsstudien begründen, da Sauerstoff kein Wachstum begünstigt. Manche Filme wurden unter  $\text{N}_2$ -Gasfluss deponiert, aber auch diese waren röntgenamorph (bis  $x = 2,5$ ).

Weitere RBS-Analysen (auch für Proben mit höherer  $x$ -Konzentrationen) brachten letztendlich eine Begründung für die o.g. Problematik. Unter  $\text{O}_2$ -Atmosphäre kann ein stöchiometrischer Übertrag vom Target auf das Substrat erzielt werden. Dies führt allerdings zur Ausbildung von  $\text{Ce}^{4+}$ -Ionen und verhindert die Bildung einer Granatphase, da hierfür die andere Oxidationsstufe von Nöten ist. Verwendet man dagegen eine  $\text{N}_2$ -Atmosphäre,



**Abbildung 6.15:** FR-Spektren der bei verschiedenen Substrattemperaturen deponierten CeIG-Schichten.

reduziert sich der Bi-Anteil drastisch. Einerseits müsste auf Grund des vorhandenen Cериums Stickstoff während der Ablation verwendet werden, um  $\text{Ce}^{3+}$ -Ionen zu erhalten. Andererseits ist Sauerstoff notwendig, da ansonsten kaum ein Übertrag von Bismuth gewährleistet werden kann.

## 6.6 Erbiumdotierte Granate

Im letzten Abschnitt der Substituenten werden die Ergebnisse zu erbiumdotierten Granatschichten kurz vorgestellt. Eine ausführliche Darstellung wird in [142] gegeben.

Die Abscheidung dieser Materialien ist so interessant, weil nahezu alle Halbleitertechnologien auf Si-Materialien basieren. Deshalb sollte der Versuch unternommen werden, das Material mit der größten Faraday-Drehung und eine Licht emittierende Granatstruktur zu vereinen.

Die Abscheidung der Er:YAG-, Er:BIG- und Er:YIG-Schichten erfolgte in erster Linie auf GGG(100)- und  $\text{SiO}_2$ -Substraten. Die abgeschiedenen Filme wurden auf ihre Kristallinität, Stöchiometrie sowie Oberflächenbeschaffenheit hin untersucht. Des Weiteren wurden an den Filmen Strukturierungen und Photolumineszenzmessungen, im Hinblick auf die Verwendung in der integrierten Optik, durchgeführt.

### $\text{Er}_x\text{Y}_{3-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}$

Für Er-dotierte YAG-Filme sollte das Ergebnis einer anderen Gruppe [158] reproduziert werden, um diese anschließend auf YIG und BIG zu übertragen. Dazu wurden zwei relativ

geringe Dotierungen von 1 % und 6 % gewählt und deren Eigenschaften intensiv studiert. Des Weiteren wurden die Oberflächenmorphologien der hergestellten Filme untersucht.

Für die Laserablation notwendige Targets wurden mit Stöchiometrien von  $\text{Er}_{0,03}\text{Y}_{2,97}$  und  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}$  hergestellt. In den Sintertargets liegt bereits die fertige Granatphase ohne jegliche Fremdphasen vor. Das Erbium konnte erfolgreich in die Granatstruktur eingebaut werden. Bei der PXRD-Analyse des Targets zeigt sich jeweils die richtige Mischphase [50].

Die Er:YAG-Schichten wurden ähnlich wie die Pufferschichten hergestellt. Die Deposition fand bei ca.  $620^\circ\text{C}$  bei einem  $\text{O}_2$ -Gasdruck von  $3,0 \cdot 10^{-2}$  mbar statt. Die hergestellten Er:YAG-Filme auf (100)-GGG- und  $\text{SiO}_2$ -Substraten waren röntgenamorph. Deshalb wurden sie bei  $1050^\circ\text{C}$  für 3 h unter Sauerstoffatmosphäre getempert. Dabei bildeten sich auf (100)-GGG epitaktisch aufgewachsene Er:YAG-Filme aus, die im Röntgenspektrum keine Fremdphasen zeigen.

Die Zusammensetzung der ablatierten Schichten wurde durch RBS-Messungen bestimmt. Es kommt zu einem optimalen Stöchiometrie-Übertrag vom Target auf das Substrat ( $\text{Er}_{0,03}\text{Y}_{2,97}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  bzw.  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ). Das ideale Verhältnis von  $\frac{c_{\text{Er+Y}}}{c_{\text{Al}}} = 0,60$  konnte für die o.g. Parameter bestätigt werden. Dies liegt an den doch sehr ähnlichen Gitterkonstanten für Schicht und Substrat. Die relativ geringe Erhöhung des Er-Gehalts von 1 % auf 6 % ist ohne Änderung der Systemparameter problemlos möglich.

Für die Verwendung von Er-dotierten Granatschichten in der integrierten Optik<sup>26</sup> ist es wichtig, die Kosten für die Herstellung von PLD-Schichten zu reduzieren. Daher wurde versucht, Er:YAG-Schichten anstelle auf GGG(100)-Substraten auf  $\text{SiO}_2$ -Substraten zu ablatieren. Dazu wurde eine  $4\ \mu\text{m}$  dicke  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,97}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ -Probe bei einer Substrattemperatur von  $625^\circ\text{C}$  deponiert, die anschließend getempert worden ist. Daraus resultierte eine weiße, leicht durchsichtige Schicht, welche die gleichen Röntgenreflexe wie das Target zeigte. Die PXRD-Analyse ergab eine polykristalline, phasenreine Er:YAG-Schicht. Aus den Positionen der Röntgenreflexe konnte eine gemittelte Gitterkonstante der einzelnen Schichten von  $a = 12,00\text{\AA} \pm 0,02\text{\AA}$  berechnet werden. Dieser Wert stimmt mit der Gitterkonstanten von reinem YAG ( $a = 12,01\text{\AA}$ ) gut überein. Dennoch sollte die Dotierung mit Erbium die Gitterkonstante verringern, da Erbium einen kleineren Ionenradius als das Yttrium besitzt. Bei Erhöhung der Er-Dotierung sollte die Gitterkonstante also weiter abnehmen. Für  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  ergab die Auswertung der Röntgenspektren einen Wert von  $a = 11,99\text{\AA} \pm 0,03\text{\AA}$ . Die Einheitszellen der beiden Schichtsysteme unterscheiden sich, auf Grund der geringen Konzentrationserhöhung und der Messgenauigkeit bei XRD kaum.

Die Epitaxie der Schichten wurde auch mit TEM untersucht (vgl. Abb. 6.16a). Dabei zeigte sich ein epitaktisches Wachstum der Schicht auf der Substratstruktur. Die Filme wiesen keinerlei Defekte oder Verunreinigungen innerhalb der Schicht auf.

Die Oberflächenmorphologie der Er:YAG-Schichten wurde durch ESEM- und AFM-Aufnahmen untersucht.

ESEM-Untersuchungen sollten dazu dienen, Aufschlüsse über die Oberflächenbeschaffenheit der deponierten Schichten zu erhalten. Die Aufnahmen kristalliner Er:YAG-Schichten zeigen meist glatte Oberflächenstrukturen. Vereinzelt kommt es zur Ausbildung einer Riss-Struktur. Dies ist darauf zurückzuführen, dass Film und Substrat einen Gittermismatch von 3% aufweisen und sich für beide Materialien die Wärmeausdehnungskoeffizienten

<sup>26</sup>da die gesamten Halbleitertechnologien auf Silizium basieren

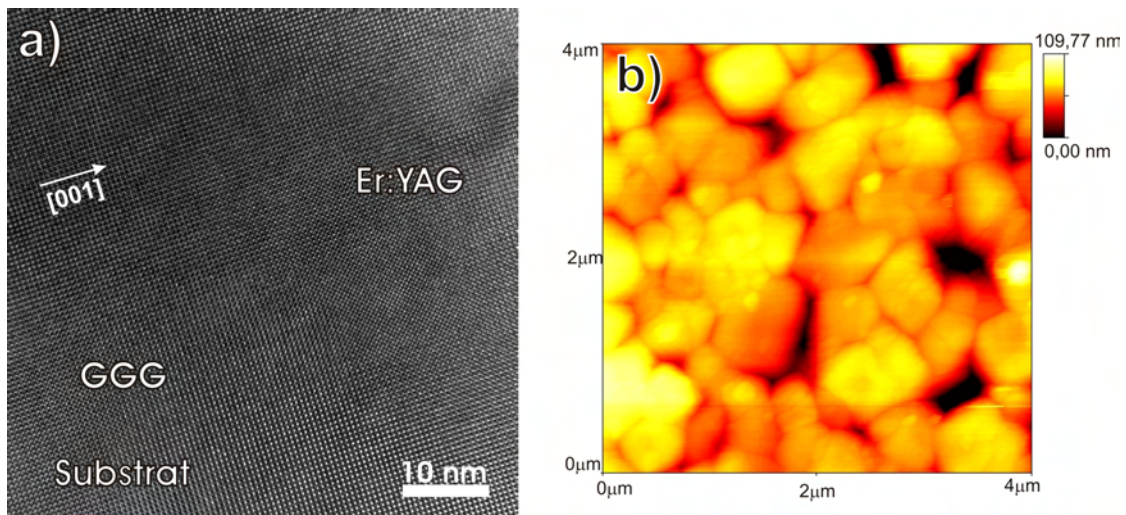
um 15% unterscheiden (jeweils in Bezug auf GGG). Bei manchen Schichten kommt es zu einer Art Inselwachstum. Auch sind körnige Strukturen erkennbar, die sich durch einzelne Kristallite, in Form von vierseitigen Pyramiden mit einem Durchmesser von etwa  $1\ \mu\text{m}$ , auszeichnen. Die Oberflächen der polykristallinen Schichten auf  $\text{SiO}_2$ -Substraten zeigen eine eher verschmolzene, kluftige Struktur.

Eine genauere Analyse der Oberflächen erfolgte mit dem AFM (Abb. 6.16b). Hierzu wurde die Rauigkeit von Er:YAG-Schichten auf (100)-GGG und (100)-YAG untersucht. Diese wurden anschließend mit den Bildern einer polykristallinen Er:YAG-Schicht auf  $\text{SiO}_2$  verglichen. Die Messung der linearen und der mittleren quadratischen Rauigkeit (RMS) ergab dabei die in Tab. 6.4 ermittelten Werte für  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ .

Substrat	$R_a$ [nm]	RMS [nm]
GGG	2,95	3,41
YAG	0,29	0,46
$\text{SiO}_2$	10,91	15,98

**Tabelle 6.4:** Vergleich der mittels AFM bestimmten Oberflächenrauigkeiten einer  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ -Schicht.

Auf GGG-Substraten zeigte sich eine relativ glatte Oberfläche mit einer leicht körnigen Struktur. Auf YAG-Substraten nahmen die Rauigkeiten noch weiter ab. Es ergaben sich glatte Schichten ohne Droplets oder Verunreinigungen, was mit einem Monolagenwachstum vergleichbar ist. Bei der polykristallinen Schicht ergaben sich relativ hohe Rauigkeiten. Für diese Probe ist in Abbildung 6.16b exemplarisch ein  $4\ \mu\text{m} \cdot 4\ \mu\text{m}$  großer Bereich gezeigt.



**Abbildung 6.16:** a) TEM-Aufnahme einer epitaktisch aufgewachsenen Er:YAG-Probe. b) AFM-Messung einer Er:YAG-Schicht auf  $\text{SiO}_2$ .

Diese Ergebnisse stimmen mit den zu erwartenden Werten überein. Das Aufwachsen der Schichten auf einer Granatstruktur führt wegen der nahezu gleichen Gitterkonstanten zu geringen Rauigkeiten.

**Er<sub>x</sub>Bi<sub>3-x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>**

Für Er:BIG-Filme ergaben sich die besten Aufwuchsbedingungen für eine Heizertemperatur von 590 °C und einem Hintergrundgasdruck von  $3 \cdot 10^{-2}$  mbar. Hierbei bilden sich epitaktische Filme auf (100)-GGG-Substraten aus, die im ESEM eine körnige Oberflächenstruktur aufweisen. Außerdem ist eine Abnahme der FR mit steigender Erbiumdotierung zu beobachten.

Die Er-Dotierung der BIG-Filme Er<sub>x</sub>Bi<sub>3-x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> wurde für x=6% (0,18), x=10% (0,3) und x=20% (0,6) variiert und deren Einflüsse auf die FR, Kristallqualität und Photolumineszenzeigenschaften untersucht.

Die Stöchiometrien und Er-Konzentrationen stimmen nach der Targetsynthese sehr gut mit dem theoretischen Verhältnis von  $\frac{c_{Er}+c_{Bi}}{c_{Fe}}=0,6$  überein.

Bei einem O<sub>2</sub>-Gasdruck von  $3,0 \cdot 10^{-2}$  mbar konnte ein stöchiometrischer Übertrag vom Target auf das Substrat gewährleistet werden. Die Deposition der Er:BIG-Filme fand in einem Temperaturbereich von 500 °C–620 °C statt. Die Proben wurden auf ihre Textur (XRD), Oberflächenbeschaffenheit (ESEM und AFM), Schichtzusammensetzung (RBS) und Faraday-Drehung hin analysiert.

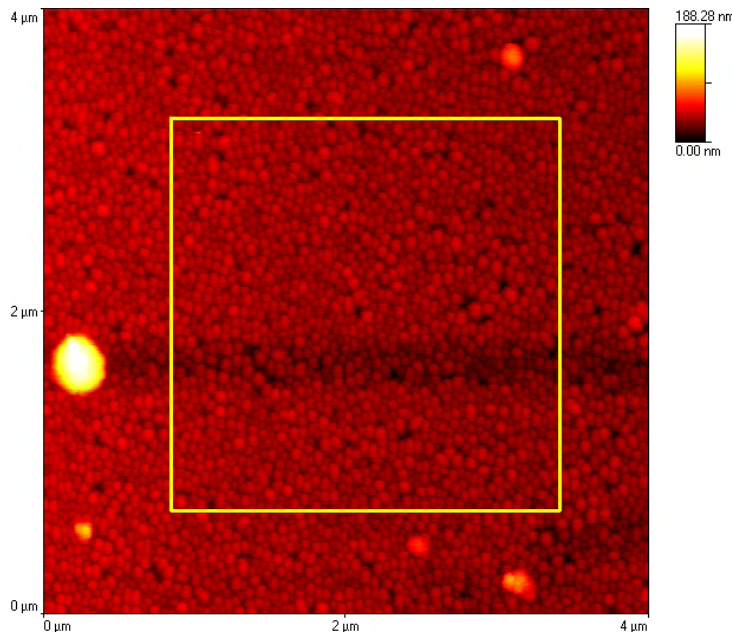
Es stellte sich bei allen drei Dotierungen heraus, dass ab einer Substrattemperatur von 530 °C ein kristalliner Granatfilm aufgewachsen werden kann. Ab ca. 560 °C entstehen bei den röntgenographischen Analysen scharfe Beugungsreflexe. Als Maß für die Kristallinität werden die entsprechenden Rocking-Kurven der Proben betrachtet, da bei einer besseren Kristallstruktur die erfahrungsgemäß FR zunimmt.

Der Einfluss der Erbiumdotierung führt zu einer Zunahme der Gitterkonstanten bei abnehmendem Er-Gehalt, da der Ionenradius des Erbiums ( $r_{ion}=103$  pm) kleiner ist als der des Bismuths. Es zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Gitterkonstante und Dotierung (für die einzelnen Er-Dotierungen sind dies,  $a_{0,18} = 12,61$  Å;  $a_{0,3} = 12,60$  Å;  $a_{0,6} = 12,58$  Å). Mit noch höheren Er-Dotierungen sollte das Schichtwachstum auf (100)-GGG begünstigt sein, da sich die Gitterkonstanten von Film und Substrat immer mehr angleichen.

Das epitaktische Film-Wachstum konnte durch die Aufnahme von Polfiguren von Film und Substrat am (420)-Reflex beobachtet werden. Dieser ist bei Granatstrukturen der intensivitätsstärkste Reflex. Die Breite der Orientierungsverteilung der Kristallite um die Hauptorientierung herum wurde durch Rocking-Kurven bestimmt. Eine Substrattemperatur von 620 °C liefert die am besten orientierten Kristallite. Es ergibt sich eine mittlere Halbwertsbreite von ca. 0,4° für Er<sub>0,3</sub>, die für niedrigere und höhere Temperaturen zunimmt.

Die Oberflächenbeschaffenheit der hergestellten Er:BIG-Schichten wurde durch ESEM- und AFM-Untersuchungen bestimmt. Ab 590 °C kann eine körnige, fein strukturierte Oberfläche mit wenigen Defekten beobachtet werden. Diese Struktur bleibt auch bei höheren Temperaturen erhalten, wobei die Größe der Körner mit steigender Heizertemperatur leicht zunimmt. Aus den AFM-Messungen sollten die lineare bzw. die mittlere quadratische Rauigkeit der Proben festgestellt werden. Rauigkeitsmessungen sind insbesondere deshalb so interessant, da die hergestellten Schichten in der integrierten Optik Einsatz finden sollen. Abbildung 6.17 zeigt einen 4 µm · 4 µm großen Bereich einer im AFM aufgenommenen Probe. Die körnige, regelmäßige Struktur ist mit ESEM-Aufnahmen vergleichbar. Die hellen weißen Punkte stellen hierbei Verunreinigungen, wie

z.B. Droplets auf der Probenoberfläche, dar. Es ergibt sich ein  $R_a$ -Wert von 6,21 nm und eine RMS von 6,68 nm im markierten Bereich. Die RMS von 11,2 nm auf der gesamten Fläche erhöht sich wegen den Droplets. Die Körnigkeit und damit die Rauigkeit der aufgewachsenen Filme nimmt mit steigender Heizertemperatur zu. Für die Verwendung der Schichten in einer integrierte Optik müssen optimierte Aufwachstemperaturen gefunden werden, um die Rauigkeit so gering wie möglich zu halten.

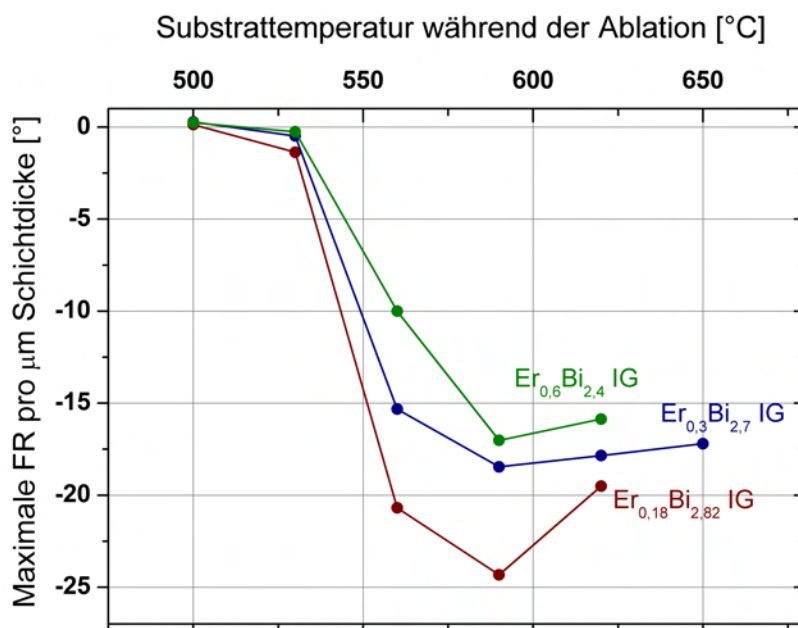


**Abbildung 6.17:** AFM-Aufnahme einer Er:BIG-Probe in einen 4 µm-4 µm großen Bereich. Der markierte Bereich wurde gewählt, um die Rauigkeit ohne Droplets zu bestimmen.

Da die untersuchten Er:BIG-Filme relativ schwach dotiert sind, verhalten sich ihre FR ähnlich wie bei BIG-Filmen. Abbildung 6.18 gibt einen Überblick über die maximale FR in Abhängigkeit von der Er-Dotierung und der Substrattemperatur  $T$ .

Die maximale FR der Filme nimmt stetig mit steigender Er-Dotierung ab und ist von der Depositionstemperatur abhängig. Bei allen drei Dotierungen ergibt sich ein Maximum in der FR bei 590 °C Substrattemperatur. Die Abnahme der maximalen Drehung mit steigendem Er-Gehalt bestätigt, dass das Bismuth maßgeblich zur FR beiträgt. RBS-Messungen ergaben, dass der Bi-Gehalt auf Grund von Diffusionsprozessen bei steigender Heizertemperatur abnimmt und somit auch die Faraday-Drehung.





**Abbildung 6.18:** Faraday-Drehung Er-dotierter BIG-Filme in Abhängigkeit von Ablationstemperatur und Dotierung.

### $\text{Er}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

Zuletzt erfolgte eine Er-Dotierung von Yttrium-Eisengranatfilmen ( $\text{Er}_x\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ). Es wurde nur ein 6% Er-dotiertes Target mit einer Stöchiometrie von  $\text{Er}_{0,2}\text{Y}_{2,80}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  hergestellt. Davon wurden, unter den selben Parametern wie bei den anderen Er-Dotierungen, Filme auf (100)GGG-, (100)YAG- und  $\text{SiO}_2$ -Substraten abgeschieden.

Die Textur-Untersuchung der Er:YIG-Schichten auf GGG erwies sich dabei als problematisch, da beide Materialien eine fast gleiche Gitterkonstante besitzen. Selbst mit Hochauflösungs-XRD-Messungen konnte der Schicht- vom Substratreflex nicht unterschieden werden. Dazu wurde zur Optimierung der Wachstumsbedingungen eine Temperaturreihe auf (100)-YAG- und  $\text{SiO}_2$ -Substraten hergestellt. Die auf  $\text{SiO}_2$  abgeschiedenen Filme mussten wieder getempert werden.

Die auf YAG abgeschiedenen Filme waren bis zu einer Substrattemperatur von  $750\text{ }^\circ\text{C}$  röntgenamorph. Erst bei höheren Temperaturen ab  $800\text{ }^\circ\text{C}$  beginnt ein kristallines Wachstum. Aus Untersuchungen zu YIG auf GGG ist bekannt, dass erst ab dieser Temperatur YIG auf einer Granatstruktur aufgewachsen werden kann. Dies gilt damit auch für Er:YIG. Auf  $\text{SiO}_2$  abgeschiedene Er:YIG-Schichten zeigten ab einer Annealingtemperatur von  $900\text{ }^\circ\text{C}$  eine polykristalline Phase im Pulverdiffraktogramm.

Nach RBS-Analysen stimmen die Stöchiometrien auf den verschiedenen Substraten für alle Temperaturen mit dem idealen Wert von  $\text{Er}_{0,18}\text{Y}_{2,82}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  überein.

Die Oberflächenbeschaffenheit der deponierten Schichten wurde mittels ESEM näher betrachtet. BSE-Aufnahmen kristalliner Er:YIG-Schichten auf YAG zeigten eine mit Droplets verschmutzte Oberfläche. Diese Droplets haben eine Größe von mehreren hundert Nanometern, wobei es zu keiner Rissbildung kommt. Die polykristallinen Schichten

auf  $\text{SiO}_2$ -Substraten hingegen zeigen viele unregelmäßige Risse. Einzelne Kristallplatten haben eine Größe bis zu  $100 \mu\text{m}^2$ , wobei diese Platten selbst eine Mikrostruktur aufweisen.

Dieses Ergebnis konnte bereits bei der Untersuchung der Puffersysteme in Kapitel 5 gefunden werden. Deshalb wird an dieser Stelle nicht näher darauf eingegangen.

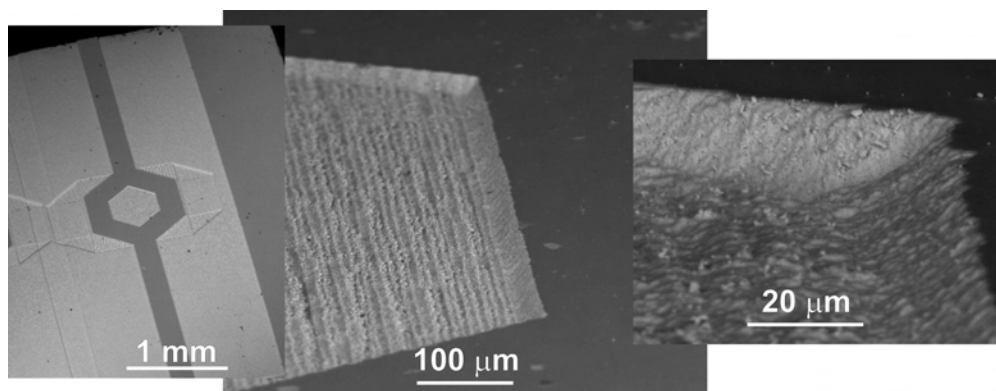
### 6.6.1 Strukturierung der Er-dotierten Granatschichten

Um aus den abgeschiedenen Granatschichten einmal Wellenleiter entwickeln zu können, müssen diese strukturiert werden. Dies kann auf unterschiedliche Weisen geschehen.

Es besteht die Möglichkeit die Granatschichten chemisch zu ätzen. Bei oxidischen Schichten funktioniert das jedoch weder mit sauren noch mit alkalischen Lösungen. Granatstrukturen können lediglich unter Verwendung von Phosphorsäure [159] bei  $400^\circ\text{C}$  geätzt werden. Eine weitere Möglichkeit ist das Ätzen in einer alkalischen Schmelze. Beide Methoden sind nicht ganz ungefährlich und sehr aufwendig.

Um den Einsatz erbiumdotierter Granatschichten für integrierte Optiken zu ermöglichen, wurde in dieser Arbeit der Versuch unternommen, die Strukturierung der Proben mit Hilfe eines Femtosekundenlasers durchzuführen. Im Vordergrund stand eine Machbarkeitsstudie, ob Granatschichten überhaupt in Form eines Wellenleiters strukturiert werden können.

Dabei sollten unterschiedliche Wellenleiterformen, wie z.B. ein Mach-Zehnder-Interferometer, hergestellt werden. Ein einfallender Lichtstrahl wird in zwei Arme aufgeteilt und nach einer bestimmten durchlaufenen Strecke wieder überlagert. Die Modulation des Lichtes kann hierbei durch gezielte Phasenmodulation in einem Arm des Interferometers erreicht werden. Die Phasenmodulation könnte bei magnetooptisch aktiven Granaten durch das Anlegen eines Magnetfeldes verwirklicht werden. Eine andere Anwendung könnte ein Y-Y-Koppler sein, der als Polarisations-Strahlteiler dient. Das eingestrahelte Licht wird in zwei orthogonale Polarisationen (TE und TM) auf zwei getrennte Wellenleiterausgänge aufgeteilt. Die dritte Möglichkeit ist ein Resonator, der als Wellenlängenfilter für Laser und Spektralanalysatoren sowie als optischer Sensor Einsatz findet [160].



**Abbildung 6.19:** Laserstrukturierung einer Er:YAG-Probe bei unterschiedlichen Vergrößerungen.

Abbildung 6.19 zeigt ESEM-Aufnahmen einer zu einem Mach-Zehnder-Interferometer laserstrukturierten Er:YAG-Probe. Das Interferometer hat in etwa eine Ausdehnung von

1 mm. Deutlich erkennbar sind die abgescannten Fahrtrichtungen des Femtosekundenlaserstrahls anhand der Linienstruktur auf der Probe. Die Rundungen an den Kanten entstehen durch den Austritt des kreisförmigen Laserstrahls. Die in Fahrtrichtung des Lasers abgetragenen Bahnen sind gerade und zeigen keinerlei Zerfaserungen. Der Linienabstand zwischen den einzelnen Laserscans beträgt 10  $\mu\text{m}$ .

Die ablatierte Breite eines Scans ist nur halb so groß wie der eigentliche Strahldurchmesser des Lasers von etwa 33  $\mu\text{m}$ . Dies kommt durch ein Gaußsches Strahlprofil des Femtosekundenlasers zustande. Die thermische Diffusion in das umliegende Material kann vernachlässigt werden. Somit liegen aufgrund des fast nichtthermischen Ablationsverhaltens des Femtosekundenlasers scharf abgegrenzte Ablationsschwellen vor. Sind die Laserfluenzen während des Abtrags in der Größenordnung der Ablationsschwelle, so kann die Linie des abgetragenen Materials schmaler sein als der  $1/e^2$ -Durchmesser des Strahls<sup>27</sup>. Substratmaterial, das an den Kanten auf die Schicht geworfen wird, kann im Ultraschallbad mit Aceton entfernt werden. Die Ablationstiefe des Lasers betrug ca. 11  $\mu\text{m}$ . Dadurch wird nicht nur die eigentliche Schicht strukturiert, sondern auch das darunter liegende Substrat. Da die Schicht eine höhere Ablationsschwelle als das Substrat besitzt, wird somit ein Teil des Substrates ebenfalls abgetragen.

Die Laserstrukturierung mittels Femtosekundenlaser ist ein einfaches, schnelles und sauberes Verfahren zur Strukturierung von dünnen Schichten. Die strukturierten Proben zeigen alle relativ gerade Kanten und es lagert sich nur wenig ablatiertes Material auf den Schichten ab, wobei die Parameter für diese Strukturierungen nicht optimiert wurden. Die Qualität der Kanten könnte z.B. durch eine parallel verlaufende Strahlführung während der Strukturierung verbessert werden.

### 6.6.2 Photolumineszenz der Er-dotierten Schichten

In einer abschließenden Untersuchung wurde die Photolumineszenz (PL) der hergestellten erbiumdotierten Proben bei einer Wellenlänge von 1550 nm bestimmt. Dazu wurde sowohl die Photolumineszenz der Targets, als auch die der Schichten vermessen und miteinander verglichen.

Bei allen drei Schichtsystemen konnte PL bei ca. 1530 nm nachgewiesen werden. Deshalb sind diese Schichtsysteme prädestiniert für Anwendungen in diesem Wellenlängenbereich. Die in der integrierten Optik verwendeten Glasfaserleitungen besitzen in diesem Bereich beispielsweise ein Absorptionsminimum.

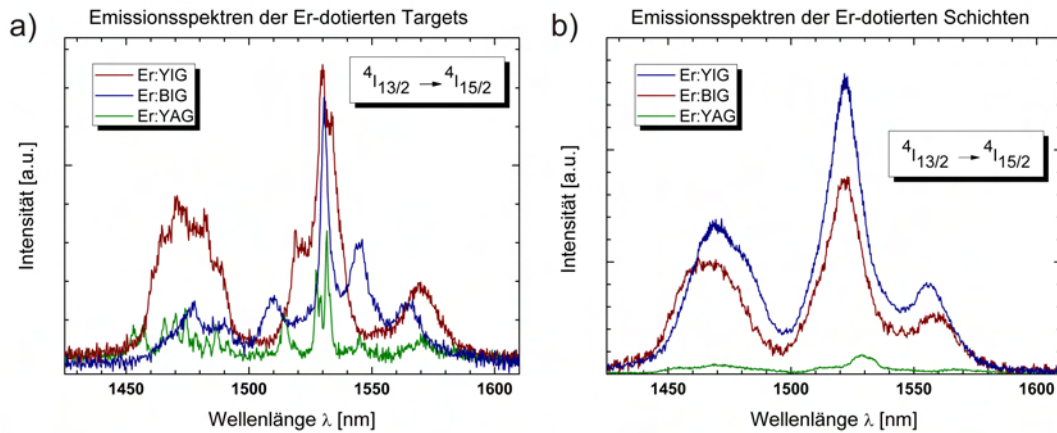
Die auf  $\text{SiO}_2$ -Substraten abgeschiedenen Schichten zeigten das gleiche Lumineszenzverhalten wie auf GGG gewachsene Proben. Auch auf Silizium abgeschiedene polykristalline Schichten zeigten eine PL bei 1530 nm.

In Abbildung 6.20 werden alle drei Granatsysteme (Dotierung 6 %) bei einer Integrationszeit von 10 s und einer Shutteröffnung von 100 % miteinander verglichen. Bei den Emissionsspektren handelt es sich um den Übergang  ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$  (vgl. hierzu auch [161]).

Die gemessenen Spektren sind sich doch sehr ähnlich. Die Er:YAG-Probe weist relativ zu den anderen die geringste Intensität auf. Diese beträgt gerade mal etwa 5 % der Intensität von Er:YIG-System. Dieser deutliche Unterschied könnte auf die Transparenz von Er:YAG im sichtbaren Bereich zurückzuführen sein. Dadurch findet nur eine sehr

<sup>27</sup>Gaußscher Strahlradius: Es handelt sich um den Radius, bei dem die Intensität auf  $\frac{1}{e^2}$  oder 0,135 vom Maximalwert abgenommen hat.

geringe Absorption des Lichtes statt. Bei Er:BIG und Er:YIG ergibt sich eine höhere PL aufgrund eines höheren Absorptionsgrades für das zur Anregung verwendete He-Ne-Laserlicht. Beide unterschieden sich nur sehr wenig.



**Abbildung 6.20:** Vergleich der Emissionsspektren der hergestellten Er:YAG-, Er:BIG- und Er:YIG-Targets a) und -Schichten b).

*Er:YAG-Filme* sind leicht herzustellen und weisen die beste Kristallinität auf. Dafür besitzen sie die intensitätsschwächste PL. Bei diesem Material ist es möglich, die Starkaufspaltungen des Erbiumions in einer Granatmatrix zu beobachten.<sup>28</sup> Diese können bei den Eisengranaten nicht beobachtet werden. Des Weiteren ist YAG ein sehr hartes Material und im sichtbaren Bereich transparent.

*Er:BIG-Filme* besitzen eine hohe Faraday-Drehung und zeigen die höchste Photolumineszenzintensität bei 1530 nm und einer Erbiumdotierung von 10 %. Höhere Dotierungen schwächen die relative Intensität ab, was auf unterschiedliche Verlusteffekte, wie z.B. Up-conversion<sup>29</sup> zurückzuführen ist. Das Material verbindet Faraday-Effekt und Photolumineszenz. Daher eignet es sich hervorragend für die integrierte Optik, da der vorhandene Faraday-Effekt eine Modulation des durchstrahlten Lichtes zulässt. Ein Nachteil ist, dass dieses Material nur auf GGG bzw. Granatsubstraten aufgewachsen werden kann. Eine direkte kostengünstige Deposition auf  $\text{SiO}_2$  ist nicht möglich.

*Er:YIG-Filme* besitzen gegenüber Er:BIG und Er:YAG ein erhöhtes Absorptionsvermögen des eingestrahlt Lichtes. Dadurch zeigen sie die besten Ergebnisse bei den Photolumineszenzspektren mit der relativ höchsten Intensität. Insbesondere polykristalline Schichten weisen gute Emissionsspektren auf. Daher ist gerade der Er:YIG eine kostengünstige Lösung für den Bau integrierter Optiken. Dieses Material besitzt dafür, verglichen mit Er:BIG, nur eine geringe Faraday-Drehung. Dadurch wird eine Modulation von Licht in einem Wellenleiter nur elektrooptisch nicht aber magnetooptisch möglich.

In Tabelle 6.5 sind die Ergebnisse der durchgeführten Substitutionen zusammengefasst.

<sup>28</sup>Die Starkaufspaltungen der einzelnen Niveaus ergeben sich aus dem elektrischen Feld, welches das Erbiumion umgibt und somit aus der Struktur und Zusammensetzung des Wirtskristalls. Der Wirtskristall ist hier der YAG. Ein eindeutiges Intensitätsmaximum im Spektrum ergibt sich für alle Integrationszeiten bei 1531 nm [142].

<sup>29</sup>Zweistufenanregung der Ionen im Festkörper

$\text{RE}_x\text{Bi}_{3-x}\text{IG}$ [x]	$ \theta_F  \frac{\circ}{\mu\text{m}}$	$\lambda(\theta_F)$ [nm]	$a_{\text{Gitter}}$ [Å]	$r_{\text{ion}}$ [pm]
Bi	33	530	12,62 (BIG)	117
Y [0,8 ... 2,4]	24 ... 6	–	12,38 (YIG)	104
Nd [0,1 ... 3]	27 ... 0	–	12,63 ... 12,62	112,3
Pr [0,25 ... 3]	20 ... 3	530 ... 500	12,60 ... 12,71	113
La [0,5 ... 3]	9 ... 0	530 ... 495	12,67 ... 12,86	117,2
CeIG	4	–	12,68	–
Ce [0,1 ... 2,5]	29 ... 0	530 ... 520	12,62	115
Er [0,18 ... 0,6]	21 ... 16	530 ... 525	12,61 ... 12,58	103
Er:YAG	–	–	12,00	–

**Tabelle 6.5:** Zusammenstellung ausgewählter Resultate des Kapitels 6.



## 7 Simulation der Faraday-Drehung dünner YIG-Pufferschichten

Um die in dieser Arbeit hergestellten Granatstrukturen besser verstehen zu können, wurde eine Simulation der Faraday-Drehung von dünnen Schichten bzw. Dünnschichtsystemen entwickelt. Mit Hilfe der Simulation können vor allem die Eigenschaften der YIG-Puffersysteme erklärt werden. Des Weiteren ist es auch möglich, verschiedene Granatsysteme auf anderen Substraten und Multilagensysteme zu simulieren. Im folgenden Abschnitt wird zunächst ein kurzer Einblick in die theoretischen Grundlagen gegeben. Anschließend folgt eine Kurzdarstellung des für die Simulation verwendeten Formalismus und wie dieser auf die Schichtsysteme angewendet werden kann.

### 7.1 Polarisiertes Licht

Dieser Abschnitt behandelt die Grundlagen zur Darstellung von polarisiertem Licht. Der Inhalt orientiert sich, falls nicht gesondert Quellen angegeben sind, an den Literaturquellen [3, 7, 139, 143].

Zur Beschreibung der Polarisation des Lichts betrachtet man die Entwicklung des elektromagnetischen Feldstärketensors  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  an einem Punkt  $\vec{r}$  zur Zeit  $t$ . Man bezeichnet das Feld als polarisiert, wenn diese Entwicklung an allen Stellen des Raumes übereinstimmt.

Im Folgenden soll immer von einem kartesischen Koordinatensystem (mit den Koordinaten  $x, y, z$ ) ausgegangen werden, mit einer Ausbreitung der Welle in  $z$ -Richtung.

Aufgrund der Wahl des Koordinatensystems liegt der Vektor  $\vec{E}_0$  immer in der  $x/y$ -Ebene. Man kann die ebene Welle in eine  $x$ - und eine  $y$ -Komponente mit relativer Phasenverschiebung  $\delta$  zueinander zerlegen:

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}_x + \vec{E}_y = \vec{E}_{0x} \cdot \cos(kz - \omega t) + \vec{E}_{0y} \cdot \cos(kz - \omega t + \delta) \quad (7.1)$$

Mit Hilfe dieser Gleichung kann das zeitliche Verhalten des Vektors  $\vec{E}$  als Funktion der Vektoren  $\vec{E}_{0x}$  und  $\vec{E}_{0y}$  sowie der Phasenverschiebung  $\delta$  beschrieben werden<sup>30</sup>.

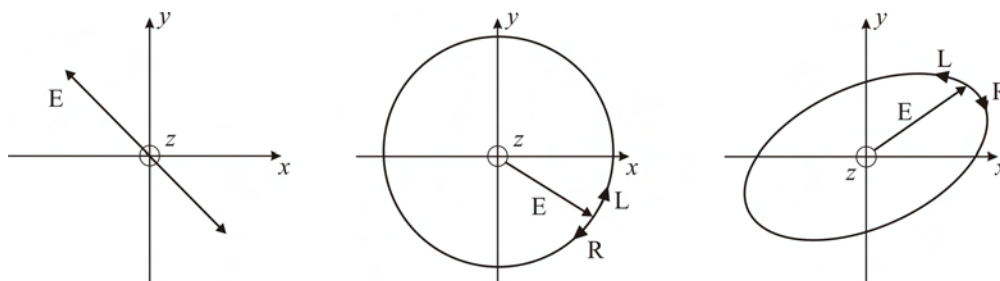
Man unterscheidet nun die Polarisationszustände folgendermaßen [162]:

- Bei *linear polarisiertem* Licht oszilliert der resultierende Vektor in nur einer Richtung (vgl. Abb. 7.1 links). Es gilt  $\vec{E}_{0x} = 0$ ,  $\vec{E}_{0y} = 0$  oder  $\delta = n\pi$ .
- Im Falle von *zirkular polarisiertem* Licht ist  $|E_{0x}| = |E_{0y}|$  und  $\delta = \pm\frac{\pi}{2}$ , also um  $90^\circ$  phasenverschoben. Das bedeutet, dass die Spitze des Vektors  $\vec{E}(z = 0, t)$  als Funktion der Zeit einen Kreis beschreibt. Betrachtet man das Ganze in der Ausbreitungsrichtung  $z$ , so folgt insgesamt für  $\vec{E}$  eine Spiralbahn (Abb.7.1 Mitte). Gilt

<sup>30</sup> Für ein festes  $z$  (z.B.  $z = 0$ ) wird die Überlagerung von zwei zueinander orthogonalen harmonischen Schwingungen gleicher Frequenz beschrieben.

$\delta = +\frac{\pi}{2}$  dreht sich  $\vec{E}$  im Uhrzeigersinn (*rechtszirkular polarisiert*), bei  $\delta = -\frac{\pi}{2}$  gegen den Uhrzeigersinn (*linkszirkular polarisiert*).  $\vec{E}$  besitzt zu jedem Zeitpunkt die gleiche Länge und wird anders als bei linear polarisiertem Licht nie Null.

- Liegt *elliptisch polarisiertes* Licht vor, so gilt  $|E_{0x}| \neq |E_{0y}|$  und die Phasenverschiebung der beiden Komponenten  $E_x$  und  $E_y$  beträgt nicht  $0^\circ$  oder  $90^\circ$  ( $\delta$  beliebig). Der  $\vec{E}$ -Vektor beschreibt dann, beim Blick gegen die Ausbreitungsrichtung der Welle, eine Ellipse in der  $x$ - $y$ -Ebene und breitet sich als eine elliptische Spirale aus (Abb.7.1 rechts). Die Größe und das Vorzeichen der Phasenverschiebung  $\delta$  bestimmen die Orientierung der Halbachsen der Ellipse im  $x$ / $y$ -Koordinatensystem und den Umlaufsinn von  $\vec{E}$ .
- Von *unpolarisiertem oder natürlichem* Licht spricht man, wenn sich  $|E_{0x}|$ ,  $|E_{0y}|$  und  $\delta$  im Laufe der Zeit ändern und die Spitze des E-Vektors keine ausgezeichnete Richtung beschreibt.



**Abbildung 7.1:** Die verschiedenen Polarisationszustände von Licht im Zeigerdiagramm. Links: linear polarisiert, Mitte: zirkular polarisiert, Rechts: elliptisch polarisiert (R: rechtspolarisiert, L: linkspolarisiert).

### Darstellung des Polarisationszustands

Zur Veranschaulichung und Modellierung des Polarisationszustands einer Lichtwelle ist ein geeignetes mathematisches Konzept notwendig. Hierfür existieren mehrere verschiedene Darstellungen: Die *trigonometrische Darstellung*, die *komplexwertige Darstellung* und die *Jones-Darstellung*. An dieser Stelle soll nur auf die *Jones-Darstellung* [163] eingegangen werden.

Bei der Jones-Darstellung wird der Polarisationszustand durch einen komplexwertigen Vektor dargestellt:

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{0x} e^{i\Phi_x} \\ E_{0y} e^{i\Phi_y} \end{pmatrix} \quad (7.2)$$

$E_{0x}$ ,  $\Phi_x$ ,  $E_{0y}$  und  $\Phi_y$  sind dabei reelle Zahlen und beschreiben die Amplitude und Phase der in der  $x$ - $y$ -Ebene schwingenden Welle.

Multipliziert man den Jones-Vektor mit einer beliebigen komplexwertigen Konstanten, so bleibt der Polarisationszustand unverändert. Deshalb ist es zweckmäßig mit der Nor-



malform der Vektoren zu arbeiten [163].

$$\vec{J} = \begin{pmatrix} J_x \\ J_y \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{E_x^2 + E_y^2}} \begin{pmatrix} E_{0x} e^{i\Phi_x} \\ E_{0y} e^{i\Phi_y} \end{pmatrix} \quad (7.3)$$

Linear polarisiertes Licht, dessen Polarisations Ebene mit der  $x$ -Achse einen Winkel  $\theta$  einschließt, erhält in dieser Darstellung die Form:

$$\vec{J} = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} \quad (7.4)$$

Die beiden orthonormalen, zweikomponentigen Jones-Vektoren können durch mehrere Basen beschrieben werden. Die beiden Vektoren  $\vec{X} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  und  $\vec{Y} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  dienen z.B. als Basis zur Darstellung von horizontal und vertikal polarisiertem Licht [143].

Wählt man eine andere geeignete Basis zur Beschreibung der Polarisationszustände in der Jones-Darstellung, so können die normierten Jones-Vektoren für links- ( $\vec{L}$ ) und rechtszirkular ( $\vec{R}$ ) polarisiertes Licht angegeben werden [143]:

$$\vec{R} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \vec{L} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} \quad (7.5)$$

Eine allgemeine Darstellung für elliptisch polarisierte Wellen, als Summe aus links- und rechtszirkular polarisierten Wellen, ist in [3] gegeben.

Ein beliebiger Polarisationszustand kann nun durch Basistransformationen sowohl in der linearen Basis  $\{\vec{X}, \vec{Y}\}$ , als auch in der zirkularen Basis  $\{\vec{L}, \vec{R}\}$  dargestellt werden. Die Darstellungen für linear polarisiertes Licht, als Zusammensetzung aus links- und rechtszirkular polarisiertem Licht, erhalten folgendes Aussehen:

$$\vec{X} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{L} + \vec{R}) \quad \text{und} \quad \vec{Y} = \frac{-i}{\sqrt{2}}(\vec{L} - \vec{R}) \quad (7.6)$$

Zirkular polarisiertes Licht kann durch  $\vec{X}$  und  $\vec{Y}$  dargestellt werden:

$$\vec{L} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{X} + i\vec{Y}) \quad \text{und} \quad \vec{R} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{X} - i\vec{Y}) \quad (7.7)$$

Der Vorteil der Jones-Darstellung liegt darin, dass sich jedes optische System sehr einfach durch  $2 \times 2$ -Matrizen darstellen lässt. Der Polarisationszustand kann bei der Transmission aus der Multiplikation des zugehörigen Jones-Vektors der einfallenden Welle mit einer systembeschreibenden *Jones-Matrix* bestimmt werden. Werden mehrere optische Elemente kombiniert, so ergibt sich die Gesamtmatrix des Systems aus der Multiplikation der einzelnen Jones-Matrizen.

Der Faraday-Effekt und die damit verbundene Faraday-Drehung lassen sich ebenfalls durch  $2 \times 2$ -Matrizen beschreiben. Eine weitere noch allgemeinere Beschreibung für derartige optische Systeme, wie sie auch für die hier entwickelte Simulation verwendet wurde, ist der  $4 \times 4$ -Formalismus nach Pochi Yeh [164].

Im Folgenden wird eine phänomenologische Beschreibung des Faraday-Effekts gegeben.

## 7.2 Phänomenologische Beschreibung des Faraday-Effekts

Die Erläuterungen in diesem Kapitel folgen im Wesentlichen den Darstellungen in [5], [6] und [143].

Die Grundlage zu einer phänomenologischen Beschreibung des Faraday-Effektes sind die Maxwell-Gleichungen in Materie, welche die Ausbreitung von Licht beschreiben.

Unter Berücksichtigung eines Dämpfungsterms lässt sich aus den Maxwell-Gleichungen die folgende Wellengleichung herleiten [165]:

$$\nabla \times (\nabla \times \vec{E}) = -\Delta \vec{E} = -\boldsymbol{\mu} \left( \boldsymbol{\sigma} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \boldsymbol{\epsilon} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \right) \quad (7.8)$$

Hierbei sind der Dielektrizitätstensor  $\boldsymbol{\epsilon}$ , die relative Permeabilität  $\boldsymbol{\mu}_r$ , der Permeabilitätstensor  $\boldsymbol{\mu}$  und die elektrische Leitfähigkeit  $\boldsymbol{\sigma}$  Tensoren zweiter Stufe.

Im optischen Frequenzbereich kann die Magnetisierung dem hochfrequenten magnetischen Wechselfeld der Lichtwelle nicht folgen. Deshalb kann  $\mu_r \approx 1$  gesetzt werden.

Wird eine ebene Welle der Form  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)}$  in Gleichung 7.8 eingesetzt, kommt es zur Eliminierung der  $\nabla$ 's und es ergibt sich folgende Lösungsbedingung:

$$\vec{k}(\vec{k} \cdot \vec{E}) - k^2 \vec{E} + \omega^2 \mu_0 \boldsymbol{\epsilon}^c \vec{E} = 0 \quad (7.9)$$

mit

$$\boldsymbol{\epsilon}^c = \boldsymbol{\epsilon} + \frac{i\boldsymbol{\sigma}}{\omega}. \quad (7.10)$$

Die Leitfähigkeit  $\sigma$  ist in Isolatoren zwar sehr gering, hat jedoch einen endlichen Wert. Dieser entspricht der Absorption der Lichtwelle beim Durchqueren des Materials.

Die Schlüsselgröße für die Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Lichtwelle und Medium ist der Dielektrizitätstensor  $\boldsymbol{\epsilon}^c$ . Seine Komponenten sind im Allgemeinen komplexwertig und hängen sowohl von der Wellenlänge, als auch von der Magnetisierung  $\vec{M}$  ab. Aus dem Dielektrizitätstensor können alle magnetooptischen Eigenschaften gefolgert werden. Für die weiteren Betrachtungen ist es sinnvoll, einen  $\vec{M}$ -abhängigen und einen  $\vec{M}$ -unabhängigen Teil zu unterscheiden:

$$\boldsymbol{\epsilon}^c = \boldsymbol{\epsilon}_0^c + \Delta \boldsymbol{\epsilon}^c(\vec{M}). \quad (7.11)$$

Entwickelt man  $\Delta \boldsymbol{\epsilon}^c(\vec{M})$  nach  $\vec{M}$  in einer Reihe, so folgt

$$\Delta \boldsymbol{\epsilon}^c(\vec{M})_{ij} = \sum_{k=1}^3 K_{ijk} M_k + \sum_{k=1}^3 \sum_{l=1}^3 G_{ijkl} M_k M_l, \quad (7.12)$$

wobei  $\mathbf{K}$  den linearen und  $\mathbf{G}$  den quadratischen magnetooptischen Tensor beschreiben.

Für kubische Kristallsymmetrien und unter Berücksichtigung einer Magnetisierung  $M$  in  $z$ -Richtung ( $\vec{M} = (0, 0, M)$ ), vereinfacht sich  $\boldsymbol{\epsilon}^c$  zur folgenden Form [5]:

$$\boldsymbol{\epsilon}^c = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (7.13)$$

Verwendet man dieses  $\epsilon^c$  und setzt es in Gleichung 7.9 ein, erhält man für eine ebene Welle der Form  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - kz)}$ , die sich in  $z$ -Richtung ( $\vec{k} = (0, 0, k)$  und  $E_z = 0$ )<sup>31</sup> ausbreitet, folgendes Gleichungssystem:

$$\left[ \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_{xx}^r & \epsilon_{xy}^r \\ -\epsilon_{xy}^r & \epsilon_{xx}^r \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} k_z^2 & 0 \\ 0 & k_z^2 \end{pmatrix} \right] \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = 0. \quad (7.14)$$

Es gilt  $\epsilon_{ij} = \epsilon_0 \epsilon_{ij}^r$  mit  $i, j \in \{x, y\}$ . Mit  $\nu^2 = \frac{k_z^2}{\omega^2 \mu_0 \epsilon_0}$  lässt sie sich anschließend zu folgenden zwei Gleichungen zusammenfassen:

$$\begin{aligned} (a) \quad & (\epsilon_{xx}^r - \nu^2) E_x + \epsilon_{xy}^r E_y = 0 \\ (b) \quad & -\epsilon_{xy}^r E_x + (\epsilon_{xx}^r - \nu^2) E_y = 0 \end{aligned} \quad (7.15)$$

Multipliziert man 7.15 (b) mit  $\pm i$  und addiert es zu 7.15 (a), so erhält man zwei zu 7.15 äquivalente Gleichungen:

$$\begin{aligned} (a) \quad & (\epsilon_{xx}^r + i\epsilon_{xy}^r - \nu^2) (E_x - iE_y) = 0 \\ (b) \quad & (\epsilon_{xx}^r - i\epsilon_{xy}^r - \nu^2) (E_x + iE_y) = 0 \end{aligned} \quad (7.16)$$

Dabei stehen die Terme  $(E_x \pm iE_y)$  für links- (+) und rechtszirkular (−) polarisiertes Licht (vgl. Abschnitt 7.1).

Ganz ähnlich ergibt sich durch eine tatsächliche Basistransformation von linear polarisiertem Licht zu zirkular polarisiertem Licht in Gleichung 7.14 [143]:

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{xx}^r + i\epsilon_{xy}^r - \nu^2 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx}^r - i\epsilon_{xy}^r - \nu^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_L \\ E_R \end{pmatrix} = 0 \quad (7.17)$$

Die Wellengleichung hat für  $\nu$  zwei Lösungen

$$\tilde{n}_{\pm} = \sqrt{\epsilon_{xx}^r \pm i\epsilon_{xy}^r}, \quad (7.18)$$

wobei  $\tilde{n}_{\pm}$  zwei Brechungsindizes darstellt. Im Allgemeinen sind  $\epsilon_{xx}^r, \epsilon_{xy}^r$  und folglich auch  $\tilde{n}_{\pm}$  komplex.

Da links- und rechtszirkular polarisierte Lichtwellen unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten beim Durchgang durch das magnetisierte Material der Dicke  $d$  besitzen, erfahren sie relativ zueinander eine Phasenverschiebung  $\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} d(\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-)$ .<sup>32</sup> Die Polarisationsebene des linear polarisierten Lichts wird also um  $\theta = \frac{\Delta\phi}{2}$  gedreht. Das ist der Winkel der Faraday-Drehung. Dieser Effekt, dass verschieden polarisiertes Licht unterschiedlich stark gebrochen wird, tritt auch in anderen Medien (wie Quarz) auf und wird als *Doppelbrechung* bezeichnet.

Der imaginäre Anteil in  $\tilde{n}_{\pm}$  die Ursache für eine Dämpfung. Links- und rechtszirkular polarisierte Wellen werden in diesem Fall beim Durchdringen der magnetisierten Probe

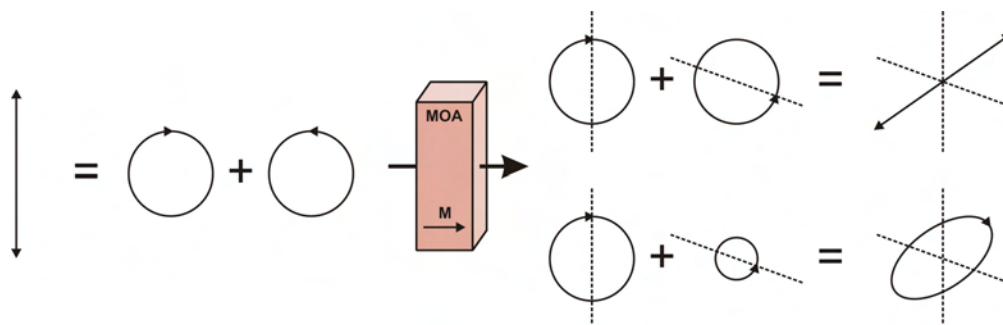
<sup>31</sup>d.h.  $z$ -Komponente und der Term  $\vec{k}(\vec{k} \cdot \vec{E})$  fallen weg

<sup>32</sup>Die beiden Teilwellen werden aufgrund der unterschiedlichen Werte von  $\epsilon_{xy}^r$  für  $\tilde{n}_+$  und  $\tilde{n}_-$  verschieden stark gebrochen und breiten sich dadurch mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten aus.

unterschiedlich stark gedämpft und besitzen, zusätzlich zur relativen Phasenverschiebung, verschiedene Amplituden. Die einfallende linear polarisierte Welle ist somit nach der Transmission elliptisch polarisiert.

Der Winkel  $\psi_F$  der *Faraday-Elliptizität* kann durch  $\psi_F = \frac{\pi}{\lambda} \cdot d \cdot \text{Im}(\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-)$  angegeben werden.

In Abbildung 7.2 wird der beschriebene Sachverhalt nochmals veranschaulicht.



**Abbildung 7.2:** Veranschaulichung der Entstehung von Faraday-Rotation und Faraday-Elliptizität. Licht kann als Summe von links- und rechtszirkular polarisiertem Licht aufgefasst werden. Beim Durchgang durch das magnetisierte magnetooptisch aktive Material erfährt das zirkular polarisierte Licht eine Phasenverschiebung, wodurch sich die Polarisationsrichtung ändert. Erfahren die Teilwellen zusätzlich unterschiedliche Dämpfungen, so entsteht elliptisch polarisiertes Licht.

Die Faraday-Rotation (FR)  $\theta_F$  und die Faraday-Elliptizität (FE)  $\psi_F$  pro Schichtdicke können abschließend in der folgenden Gleichung zusammengefasst werden:

$$\theta_F + i\psi_F = \frac{\pi}{\lambda}(\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-) \quad (7.19)$$

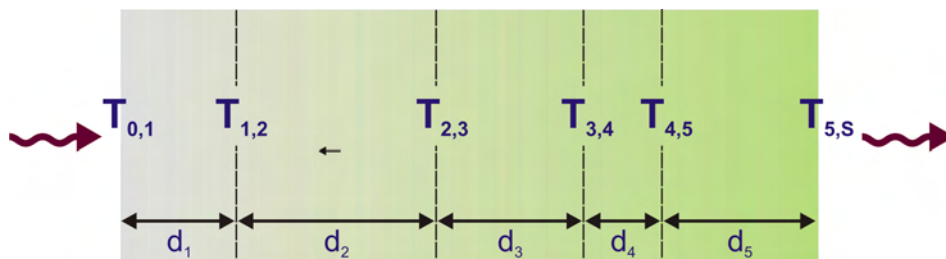
Für die Simulationentwicklung wurde in der vorliegenden Arbeit der  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus von Yeh [164] verwendet, der im folgenden Abschnitt erklärt und auf den Faraday-Effekt übertragen werden soll.

## 7.3 Transfermatrixformalismen nach Yeh

### 7.3.1 Der $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus

Beim  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus werden, ähnlich dem Jones-Formalismus, die einzelnen Grenzschichten eines Multilagensystems durch  $4 \times 4$ -Matrizen wiedergegeben. Dieser Formalismus ermöglicht es, die elektromagnetische Ausbreitung von Licht in anisotropen bzw. geschichteten Materialien zu beschreiben. Jeder Grenzschicht zwischen zwei Filmen wird eine Matrix zugeordnet. Diese werden aneinander multipliziert und liefern ein Gleichungssystem für reflektierte und transmittierte Lichtanteile. Damit können schließlich Rückschlüsse auf die Transmission, Faraday-Rotation und Absorption des Schichtsystems gezogen werden. Diese Zuordnung soll Abb. 7.3 schematisch für ein System aus fünf Schichten grafisch veranschaulichen.

Der entscheidende Vorteil der  $4 \times 4$ -Matrix-Methode im Vergleich zum Jones-Formalismus liegt darin, dass sowohl Transmission als auch Reflexion an den Schichtgrenzen berücksichtigt wird. Somit können Interferenzeffekte, welche die Polarisation beeinflussen, mit



**Abbildung 7.3:** Veranschaulichung des  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus nach Pochi Yeh. Jeder Grenzschicht wird dabei eine  $4 \times 4$ -Matrix zugeordnet. In diesem Fall werden jeder Schichtdicke  $d_i$  der fünf Lagen jeweils eine Transfermatrix  $T_{i-1,i}$  zugeordnet.

berücksichtigt werden. Dadurch ist es möglich die Sinusformen der Faraday-Rotations (FR)-Spektren aus Kapitel 7.5 zu erklären.

### 7.3.2 Anwendung der $4 \times 4$ -Matrix-Methode auf den Faraday-Effekt

Im folgenden Teil wird das theoretische Gerüst des  $4 \times 4$ -Formalismus auf den Faraday-Effekt angewendet. Hierbei soll auch die Doppelbrechung miteinbezogen werden. Es werden letztlich nur die resultierenden Ergebnisse angeführt. Eine ausführliche Herleitung und genauere Darstellung der Resultate ist in [139, 143, 166, 167] gegeben.

Für doppelbrechende Systeme, insbesondere jene, die den Faraday-Effekt zeigen, ergibt sich für die ein- und austretende Welle  $E$  ein Gleichungssystem der folgenden Form (aus [143]):

$$\begin{pmatrix} E_+^i \\ E_+^r \\ E_-^i \\ E_-^r \end{pmatrix} = \prod T_{(n-1,n)} \begin{pmatrix} E_+^t \\ 0 \\ E_-^t \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} & 0 & 0 \\ T_{21} & T_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & T_{33} & T_{34} \\ 0 & 0 & T_{43} & T_{44} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_+^t \\ 0 \\ E_-^t \\ 0 \end{pmatrix} \quad (7.20)$$

In dieser Kurzform wird beschrieben, wie links- (+) bzw. rechtszirkular (–) polarisiertes Licht in ein Schichtsystem ( $\prod T_{(n-1,n)}$ ) einfallen ( $i$ ), dort teilweise reflektiert ( $r$ ) und teilweise hindurch transmittiert ( $t$ ).  $E_+^t$  und  $E_-^t$  bestimmen die im Experiment gemessene Polarisationsrichtung des ausfallenden Lichtes. Daraus kann der Drehwinkel (der FR) berechnet werden zu [143]:

$$\theta = -\frac{1}{2} \arg \left( \frac{E_-^t}{E_+^t} \right) = \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{\operatorname{Im} \left( \frac{E_-^t}{E_+^t} \right)}{\operatorname{Re} \left( \frac{E_-^t}{E_+^t} \right)} \right). \quad (7.21)$$

In dieser Gleichung beschreibt  $\arg$  den Winkel des Exponenten einer komplexen Zahl in Polarschreibweise. Damit wird zur Berechnung der Faraday-Rotation lediglich die Phasendifferenz von links- bzw. rechtszirkular polarisiertem Licht verwendet.

Löst man dieses Gleichungssystem für verschiedene Wellenlängen (da der Brechungsindex stark wellenlängenabhängig ist), folgt die Faraday-Rotation als Funktion der Wellenlänge.

Abschließend werden noch die Einzelkomponenten der Transfermatrix  $T_{n-1,n}$ , die letztendlich in die Simulation eingehen, angegeben. Der Übersicht halber sei  $\beta_{\pm}^{(n)} = \frac{\omega}{c} \tilde{n}_{\pm}^{(n)}$ . Die blockdiagonalen Elemente ( $\neq 0$ ) sind dann:

$$(T_{n-1,n})_{11} = \frac{1}{2\tilde{n}_+^{(n-1)}} (\tilde{n}_+^{(n-1)} + \tilde{n}_+^{(n)}) e^{i\beta_+^{(n)}} \quad (7.22)$$

$$(T_{n-1,n})_{12} = \frac{1}{2\tilde{n}_+^{(n-1)}} (\tilde{n}_+^{(n-1)} - \tilde{n}_+^{(n)}) e^{-i\beta_+^{(n)}} \quad (7.23)$$

$$(T_{n-1,n})_{21} = \frac{1}{2\tilde{n}_+^{(n-1)}} (\tilde{n}_+^{(n-1)} - \tilde{n}_+^{(n)}) e^{i\beta_+^{(n)}} \quad (7.24)$$

$$(T_{n-1,n})_{22} = \frac{1}{2\tilde{n}_+^{(n-1)}} (\tilde{n}_+^{(n-1)} + \tilde{n}_+^{(n)}) e^{-i\beta_+^{(n)}} \quad (7.25)$$

$$(T_{n-1,n})_{33} = \frac{1}{2\tilde{n}_-^{(n-1)}} (\tilde{n}_-^{(n-1)} + \tilde{n}_-^{(n)}) e^{i\beta_-^{(n)}} \quad (7.26)$$

$$(T_{n-1,n})_{34} = \frac{1}{2\tilde{n}_-^{(n-1)}} (\tilde{n}_-^{(n-1)} - \tilde{n}_-^{(n)}) e^{-i\beta_-^{(n)}} \quad (7.27)$$

$$(T_{n-1,n})_{43} = \frac{1}{2\tilde{n}_-^{(n-1)}} (\tilde{n}_-^{(n-1)} - \tilde{n}_-^{(n)}) e^{i\beta_-^{(n)}} \quad (7.28)$$

$$(T_{n-1,n})_{44} = \frac{1}{2\tilde{n}_-^{(n-1)}} (\tilde{n}_-^{(n-1)} + \tilde{n}_-^{(n)}) e^{-i\beta_-^{(n)}} \quad (7.29)$$

Somit wurde eine Grundlagen geschaffen, ein System aus verschieden dicken Granatlagen mit dem  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus zu beschreiben.

Im anschließenden Abschnitt wird nun ein kurzer Überblick über doppelbrechende Schichten gegeben.

### 7.3.3 Anwendung der $4 \times 4$ -Matrix-Methode auf Doppelbrechung

Ein Lichtstrahl wird in zwei unterschiedliche Richtungen gebrochen, wenn dieser auf ein optisch anisotropes Medium (wie z.B. Calcit oder Kalkspat) trifft. Diesen Effekt bezeichnet man als *Doppelbrechung* und ist eine Folge der Kristallanisotropie dieser Materialien. Diese Eigenschaft der Kristalle kann durch unterschiedliche Brechungsindizes für verschieden polarisiertes Licht beschrieben werden. Dadurch werden die Teilstrahlen je nach Polarisation und Einfallswinkel des Lichtes ungleichmäßig gebrochen [168]. Der wesentliche Unterschied der doppelbrechenden Effekte zum Faraday-Effekt sind deren reziproken Eigenschaften. Durchläuft der Strahl ein doppelbrechendes Medium zweimal in entgegengesetzter Richtung, so heben sich die doppelbrechenden Effekte auf. Beim Faraday-Effekt hingegen addieren sich die Änderungen.

Bei den in dieser Arbeit untersuchten Schichten trifft das Licht nur senkrecht auf die Probe, wobei es in kristallinem  $\text{SiO}_2$  zu einer Doppelbrechung kommen kann [168]. Dies führt, wie beim Faraday-Effekt, zu einer Drehung der Polarisationsrichtung des Lichts. Als Ursache hierfür können verschiedene Brechungsindizes für links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht angenommen werden.

Zur Beschreibung der Doppelbrechung durch den  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus reicht es in dem betrachteten Spezialfall aus, die Transfermatrix des Faraday-Effektes zu verwenden. Diese beschreibt die unterschiedliche Brechung von links- bzw. rechtszirkular polarisiertem Licht. Für die Beschreibung der Doppelbrechung genügt es dann, die Brechungsindizes  $\tilde{n}_\pm$ , dem verwendeten Material entsprechend, zu modifizieren. Somit unterscheiden sich die Transfermatrizen des Faraday-Effektes und der Doppelbrechung lediglich in ihren Brechungsindizes  $\tilde{n}_\pm$ . Für eine genauere Beschreibung der Doppelbrechung müsste allerdings die Reziprozität berücksichtigt werden.

Zuletzt sei noch erwähnt, dass die Doppelbrechung auch eine optische Begleiterscheinung von Materialspannungen, der sog. *Spannungsdoppelbrechung*, sein kann.

### 7.3.4 Der $2 \times 2$ -Matrix-Formalismus

Ähnlich wie beim  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus lässt sich die Transmission eines Systems aus Multilagenn durch eine  $2 \times 2$ -Matrix beschreiben. Es können damit allerdings nur Transmissionen berechnet werden, da die Faraday-Rotation nicht mitberücksichtigt wird. Wiederum entsteht ein Gleichungssystem für die transmittierten (A) und reflektierten (B) Anteile des Lichts, durch dessen Lösung die Transmission des Systems bestimmt werden kann.

Für ein Multilagennsystem ergibt sich zwischen den Amplituden der Welle in Luft (0) und dem Substrat (S) folgender Zusammenhang:

$$\begin{pmatrix} A_0 \\ B_0 \end{pmatrix} = D_0^{-1} \left[ \prod_{l=1}^m \underbrace{D_l P_l D_l^{-1}}_{\text{Layer } l} \right] D_S \begin{pmatrix} A_S \\ B_S \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_S \\ B_S \end{pmatrix} \quad (7.30)$$

$$\text{mit } \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} = D_0^{-1} \left[ \prod_{l=1}^m D_l P_l D_l^{-1} \right] D_S,$$

wobei  $D_S$  und  $D_0$  für die Transmissionsmatrix des Substrats und der Umgebung der Probe stehen.  $D_l$  und  $P_l$  sind die Transmissions- und Propagationsmatrizen der  $l$ -ten Schicht. Diese werden für  $m$  einzelne Schichten einfach aneinander multipliziert und repräsentieren somit, ähnlich der Beschreibung beim  $4 \times 4$ -Formalismus, das gesamte Schichtsystem (vgl. Gl. 7.20).

$M_{11}$ ,  $M_{12}$ ,  $M_{21}$  und  $M_{22}$  stehen für die Matrixelemente der zusammengefassten Matrizen der Einzelschichten.

Löst man dieses Gleichungssystem für eine senkrecht einfallende Welle  $\vec{X} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ , so ergibt sich die Reflexion und die Transmission für ein Multilagennsystem zu:

$$R = \left| \frac{M_{21}}{M_{11}} \right|^2 \quad \text{und} \quad T = \frac{n_S}{n_0} \left| \frac{1}{M_{11}} \right|^2 \quad (7.31)$$

mit den Brechungsindizes  $n_S$  des Substrates und  $n_0$  für Luft.

Inhomogenitäten in der Schichtdicke haben einen großen Einfluss auf das Transmissionspektrum und müssen deshalb mit berücksichtigt werden. Um die Oberflächenrauigkeit zu bestimmen, wird für die Schichtdickenverteilung eine Gaussverteilung angenommen, so dass sich für die Transmission eines rauen Films folgender Ausdruck ergibt:

$$T_R(\lambda, \sigma_d, d, n, k, s) = \frac{1}{\sigma_d \sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{d' - d}{\sigma_d}\right)^2\right) T(\lambda, d', n, k, s) dd' . \quad (7.32)$$

Dabei bezeichnen  $\lambda$  die Wellenlänge,  $\sigma_d$  die Standardabweichung der Dicke,  $d$  die Schichtdicke,  $n$  der Brechungsindex der Schicht,  $k$  die Dämpfung in der Schicht und  $s$  den Brechungsindex des Substrates.

Integriert man diesen Formalismus in eine Simulation, so können damit sehr gut die Brechungsindizes und Schichtdicken aus den Transmissionsmessungen bestimmt werden. Um die Anpassung des simulierten Spektrums an die Mess-Spektren zu erleichtern, werden zusätzlich noch numerische Fitalgorithmen integriert [169].

Im nächsten Abschnitt wird dazu der Brechungsindex und seine einzelnen Bestandteile genauer betrachtet.

## 7.4 Real- und Imaginärteil des Brechungsindex

Wie bereits in einem vorangehenden Kapitel (vgl. Kap. 7.2) erwähnt wurde, kann der Brechungsindex  $\tilde{n}_{\pm}^{(n)} = n_{\pm}^{(n)} - ik_{\pm}^{(n)}$  in zwei Teile zerlegt werden. Dabei steht  $n_{\pm}^{(n)}$  für den realen Anteil und ist für die Phasenverschiebung der elektromagnetischen Wellen zuständig. Im imaginären Anteil  $ik_{\pm}^{(n)}$  steckt dagegen ein Dämpfungsterm. Auf den Faraday-Effekt übertragen bedeutet dies, dass  $n_{\pm}^{(n)}$  die Faraday-Rotation (FR) und  $ik_{\pm}^{(n)}$  die Faraday-Elliptizität (FE) erzeugen.

Aus anderen Arbeiten (vgl. [3]) ist bekannt, dass die FE sehr gering ist. Es folgt daher  $\tilde{n}_{\pm}^{(n)} = n_{\pm}^{(n)} - ik^{(n)}$ .

### Imaginärteil des Brechungsindex

Zur Beschreibung des Brechungsindex existieren zahlreiche Modelle, wobei meist Imaginär- und Realteil getrennt voneinander betrachtet werden.

Der Imaginärteil des Brechungsindex hat auf die Berechnung bzw. Messung der FR-Spektren keinerlei Einfluss. Er erzeugt lediglich eine Dämpfung, was die FE- oder Transmissionspektren verändert.

Für die hier untersuchten Schichten kamen die entsprechenden Modelle aus [143] zum Einsatz. Dort wurden verschiedene Brechungsindizes ermittelt und im Anschluss daran entsprechende Modelle dafür entwickelt.

Für BIG- und YIG-Schichten verwendet man folgende Formen von  $k$ :

$$k(\lambda)_{YIG} = \frac{\lambda}{4\pi} \cdot \frac{a}{(\lambda - b)^{1,8} + c} . \quad (7.33)$$

und

$$k(\lambda)_{BIG} = \frac{\lambda}{4\pi} \cdot \exp\left[\left(\frac{a}{\lambda}\right)^2 - b\right] \quad (7.34)$$

Die Parameterwerte  $a$ ,  $b$  und  $c$  werden durch Simulation und Anfitzen der Transmissionspektren unterschiedlicher BIG- bzw. YIG-Schichten ermittelt (vgl. Abschnitt 7.4).



### Realteil des Brechungsindex

Wie zuvor auch, so existieren für den Realteil des Brechungsindex eine Vielzahl an Modellen. Beim Faraday-Effekt werden links- bzw. rechtszirkular polarisierte Lichtwellen unterschiedlich stark gebrochen. Der Brechungsindex  $n_{\pm}$  setzt sich dabei aus einem für links- (+) und rechtszirkular (-) identischen und einem sich beide unterscheidenden Teil zusammen, z.B.  $n_{\pm} = n + \Delta n_{\pm}$ .

Außerhalb eines Magnetfeldes gilt für den Brechungsindex der Schichten  $n_{\pm} = n$  und kann mit Hilfe der zuvor erwähnten Modelle bestimmt werden.

Unter Berücksichtigung der jeweiligen Konzentration von Bi in YIG, wurde in dieser Arbeit folgendes Modell für den Brechungsindex der YIG- und BIG-Schichten angenommen [143]:

$$n(\lambda, x) = 2,174 + 0,0593 \cdot 10^{-12} \cdot \frac{1}{\lambda} + (0,103 + 0,0371 \cdot 10^{-12} \cdot \frac{1}{\lambda}) \cdot x, \quad (7.35)$$

wobei  $x$  die Anzahl der Bi-Atome pro Formeleinheit angibt.

Mit Hilfe dieses Modells können nicht nur der Brechungsindex von YIG oder BIG berechnet, sondern auch die unterschiedlichen Konzentrationen von Bi in YIG-Schichten mit berücksichtigt werden. Parameter für andere Substituenten in YIG könnten beispielsweise durch Anfitzen von Transmissionsmessungen oder Ellipsometrie bestimmt werden.

Zur Bestimmung von  $\Delta n_{\pm}$  wird Formel 7.19 ohne die FE betrachtet und es ergibt sich:

$$\theta_F = \frac{\pi}{\lambda}(n_+ - n_-) = \frac{\pi}{\lambda} \cdot 2 \cdot \Delta n, \quad (7.36)$$

wobei  $\theta_F$  die FR in Abhängigkeit der realen Brechungsindizes  $n_{\pm}$  angibt. Aufgrund der Antisymmetrie des  $\epsilon$ -Tensors für den Faraday-Effekt wurde  $\Delta n_+ = -\Delta n_- = \Delta n$  und  $n_{\pm} = n \pm \Delta n$  angenommen.

Unter Verwendung der bereits aus 2.1 bekannten Beziehung<sup>33</sup>  $\theta_F(\lambda) = V(\lambda) \cdot B$  und Gleichsetzen mit Gl. 7.36, ergibt sich das wellenlängenabhängige  $\Delta n$ . Dadurch folgt für  $n_{\pm}$ :

$$n_{\pm} = n \pm \frac{V(\lambda) \cdot B \cdot \lambda}{2\pi}. \quad (7.37)$$

Der einzige unbekannt Parameter in dieser Gleichung ist die sog. *Verdet-Konstante*  $V(\lambda)$ . Diese kann allerdings recht einfach aus den FR-Spektren bekannter Schichten ermittelt werden. Einzige Voraussetzung dafür ist, dass es sich um möglichst dünne homogene Schichten handelt, da die Spektren dann keinerlei oszillatorisches Verhalten, verursacht durch Interferenzen, aufweisen. Die Polarisationsrichtung wird dann ausschließlich durch den Faraday-Effekt gedreht.

### Bestimmung der Brechungsindizes für eine Multilage aus der Transmission

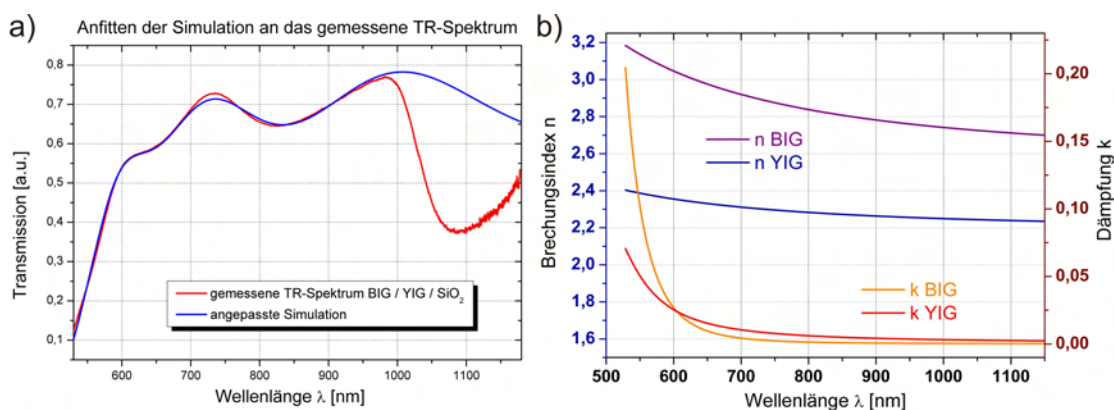
Mit Hilfe der Implementierung des  $2 \times 2$ -Formalismus konnten, wie bereits beschrieben, die Brechungsindizes bestimmt werden.

<sup>33</sup>unter Angabe der relativen FR pro Schichtdicke

Für die daraus resultierende Simulation wurde für die Realteile der Brechungsindizes von YIG und BIG folgendes Modell angenommen [143]:

$$n(\lambda)_{YIG/BIG} = A + \left(\frac{B}{\lambda}\right)^2 \quad (7.38)$$

Die Modelle zur Bestimmung der imaginären Anteile der Brechungsindizes wurden bereits in Glgn. 7.33 und 7.34 angegeben.



**Abbildung 7.4:** a) Angetimmtes Simulationsspektrum an die Transmissionsmessung einer Probe zur Bestimmung der Schichtdicke,  $n$  und  $k$ . b) Real- und Imaginärteil des Brechungsindex wie er von der Simulation ausgegeben werden kann.

Wie in Abb. 7.4a zu erkennen ist, lässt sich mit der Simulation eine reale Messung sehr gut anpassen<sup>34</sup> (hier einer BIG/YIG-Multilage auf einem (10 $\bar{1}0$ )-SiO<sub>2</sub>-Substrat). Am langwelligeren Ende des Spektrums weicht die simulierte Kurve vom gemessenen Spektrum ab, da das Modell die Absorptionskante des BIG im infraroten Spektralbereich nicht berücksichtigt.

Des Weiteren besteht bei diesem Programm die Möglichkeit, jeweils Real- und Imaginärteil des Brechungsindex wellenlängenabhängig anzuzeigen. Ein mögliches Ausgabepektrum (hier einer BIG/YIG/SiO<sub>2</sub>-Probe) ist in Abb. 7.4b zu sehen.

In Tab. 7.1 sind für unterschiedliche SiO<sub>2</sub>-Substrate jeweils die durch das Programm ermittelten Parameter aufgeführt.

Es konnte gezeigt werden, dass die getroffenen Modellannahmen gerechtfertigt sind. Nun sind alle Grundlagen und Parameter für eine Simulation der Faraday-Drehung von Schichtsystemen vorhanden, daher wurde auch für den 4 $\times$ 4-Formalismus ein Programm entwickelt, dessen Implementierung im nächsten Abschnitt etwas genauer beschrieben werden soll.

### Programmablauf der Simulation des 4 $\times$ 4-Formalismus

Der in den vorangegangenen Kapiteln beschriebene Formalismus wurde mit seinen gesamten Brechungsindizes in ein Programm implementiert. Dadurch können nun verwertbare Spektren der FR erzielt werden.

<sup>34</sup>der Brechungsindex von SiO<sub>2</sub> wurde mit  $n=1,54$  angenommen.

SiO <sub>2</sub>	Lage	RBS	Sim.	a	b	c	A	B	$\sigma$
(001)	YIG	14	14	2,63	529,53	1932,87	2,19	241,25	22,76
	BIG	525	560	1647,53	14,36	–	2,5	411,79	
(10 $\bar{1}$ 0)	YIG	53	55	2,95	495	1200	2,19	244	20,21
	BIG	548	522	1710,8	15,75	–	2,49	419,04	
(11 $\bar{2}$ 0)	YIG	104	103	2,52	512,65	1671,73	2	405,2	13,26
	BIG	415	425	1531,14	13,63	–	2,41	456,14	
$QG$	YIG	157	145	3,01	532,74	1784,55	2,19	230,7	17,23
	BIG	625	607	1640,56	15,22	–	2,48	410,73	

**Tabelle 7.1:** Parameter für BIG-YIG-Multilagen-Filme auf unterschiedlichen SiO<sub>2</sub>-Substraten, wie sie mit Hilfe der Simulation und den Modellen für die Brechungsindizes bestimmt werden konnten.

Das Vorgehen im Algorithmus zur Berechnung eines FR-Spektrums sieht dabei folgendermaßen aus:

- Berechnung der Transfermatrizen  $T_{(n-1,n)}$  aus Gl. 7.20 für alle betrachteten Wellenlängen  $\lambda$
- Lösung des Gleichungssystems 7.20 für alle Wellenlängen (wobei  $E_+^i$  und  $E_-^i$  als einfallender Strahl bekannt sind)
- Berechnung der Faraday-Rotation  $\theta_F$  der jeweiligen Wellenlänge  $\lambda$  aus den mit Hilfe des Gleichungssystems erhaltenen Größen  $E_+^t$  und  $E_-^t$  und Gl. 7.21

Der Algorithmus wurde mittels der frei erhältlichen Software SciLab umgesetzt. Mit Hilfe von SciLab können einerseits Gleichungssysteme gelöst oder Matrizenmultiplikationen durchgeführt werden, andererseits existiert eine recht übersichtliche graphische Ausgabeoption für die simulierten Spektren.

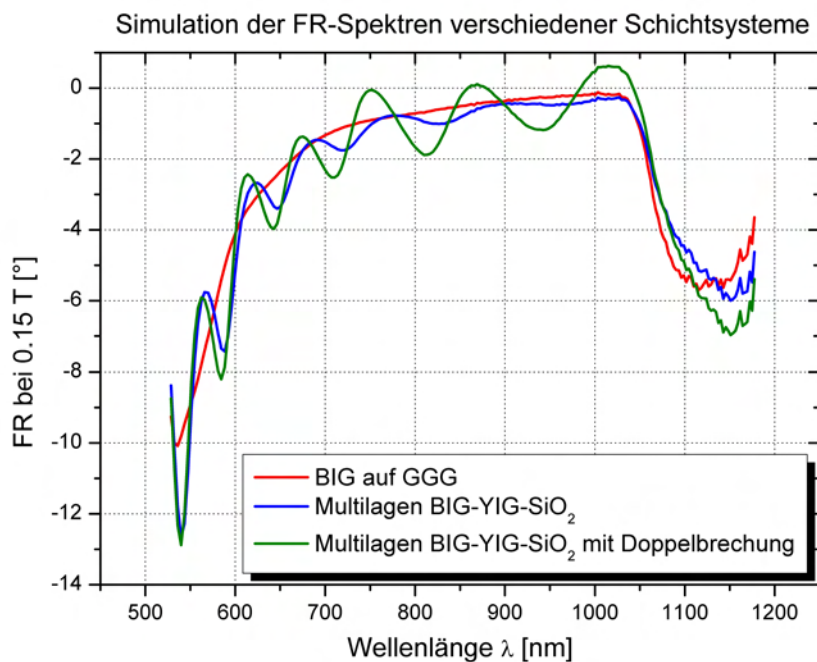
Eine genauere Beschreibung sowie der Programm-Quellcode sind in [139] ausführlich beschrieben.

## Ergebnisse der Simulation

Während den ersten Testsimulationen zeigte sich, dass es im FR-Spektrum unter Berücksichtigung einer Granat-Luft-Grenzschicht zu leichten Oszillationen kommt, die auf Interferenzen des reflektierten Lichts zurückzuführen sind. Dieses oszillatorische Verhalten konnte durch verschiedene Messungen an sehr glatten Proben bestätigt werden.

Ausschlaggebend für das Auftreten von Reflexionen sind stark unterschiedliche Brechungsindizes. Bei der Simulation eines GGG-YIG-BIG-Schichtsystems kommt es daher zu keinen erkennbaren Oszillationen, da die Brechungsindizes von GGG, YIG und BIG fast identisch sind ( $n \approx 2,2 \pm 0,2$ ).

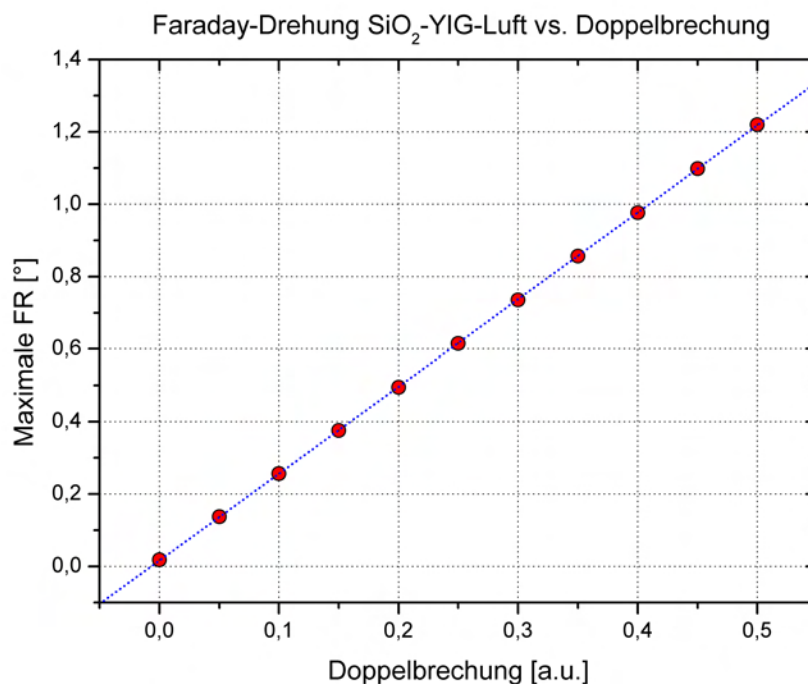
Verwendet man an Stelle von GGG- ( $n \approx 2$ ) ein Quarz-Substrat ( $n \approx 1,4$ ), so kommt es zu deutlichen Oszillationen im FR-Spektrum. In Abbildung 7.5 ist exemplarisch die Simulation eines derartigen  $\text{SiO}_2$ -BIG-YIG-Luft-Schichtsystem angeführt. Deutlich zu erkennen ist das oszillatorische Verhalten (blau), das unter Annahme einer, bei kristallinen Quarz-Substraten auftretenden, starken Doppelbrechung verstärkt wird (grün). Der Vollständigkeit halber ist auch ein BIG-Film auf GGG gezeigt (rot).



**Abbildung 7.5:** Simulierte FR-Spektren eines BIG-Filmes auf GGG (rot), eines Multilagensystems (BIG/YIG/ $\text{SiO}_2$ ) (blau) und eines  $\text{SiO}_2$ -BIG-YIG-Luft-Schichtsystems mit stark doppelbrechendem  $\text{SiO}_2$ -Substrat (grün). Deutlich zu erkennen sind die verschiedenen oszillatorischen Interferenzeffekte im Spektrum.

Ein weiteres wichtiges Merkmal zur Erklärung oszillatorischer Effekte ist die quantitative Einflussnahme der Doppelbrechung auf die FR.

Im Folgenden wird eine 10 nm dicke YIG-Schicht in einem  $\text{SiO}_2$ -YIG-Luft-Schichtsystem betrachtet. Trägt man die Maximaldrehung über der angenommenen Doppelbrechung des  $\text{SiO}_2$  auf, so ergibt sich der in Abbildung 7.6 gezeigte lineare Zusammenhang, der im weiteren Verlauf noch an Bedeutung gewinnen wird.



**Abbildung 7.6:** Maximaldrehung eines  $\text{SiO}_2$ -YIG-Luft-Schichtsystems gegenüber der angenommenen Doppelbrechung des  $\text{SiO}_2$ .

Mit diesem kurzen Überblick werden nun die Simulationseigenschaften abgeschlossen. Im nächsten Kapitel wird die Simulation nun verwendet, um die getroffenen Modellannahmen zu bestätigen und die durchgeführten Messungen mit der Simulation zu vergleichen.

## 7.5 Untersuchung und Simulation von YIG-Puffersystemen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden etwa 400 dünne YIG-Puffer-Schichten auf unterschiedlichen Glas- bzw.  $\text{SiO}_2$ -Substraten aufgebracht. Eine Vielzahl dieser Proben zeigte einen atypischen oszillatorischen Effekt (OE) in den dazugehörigen FR-Spektren. Eine derartige Messung ist exemplarisch in Abbildung 7.7 gezeigt. Weder die großen Amplituden noch die deutlichen Oszillationen können durch den Faraday-Effekt erklärt werden, denn der Faraday-Effekt erlaubt für solch dünne YIG-Schichten eine maximale FR von ca.  $0,05^\circ$ . Dieses unterscheidet sich grundlegend von den Rotationsspektren wie sie z.B. für BIG in [3, 14] gemessen wurden. Deshalb wird im folgenden Abschnitt auf dieses außerordentliche Verhalten näher eingegangen und ein passender Lösungsansatz mit Hilfe der Simulation erarbeitet.

### Untersuchung der YIG-Puffer

Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit bestand darin, thermodynamisch instabile Granatschichten, wie z.B. BIG, auf Nicht-Granat-Substraten zu integrieren. In einem ersten Schritt wird zunächst eine thermodynamisch stabile YIG-Granatstruktur mittels

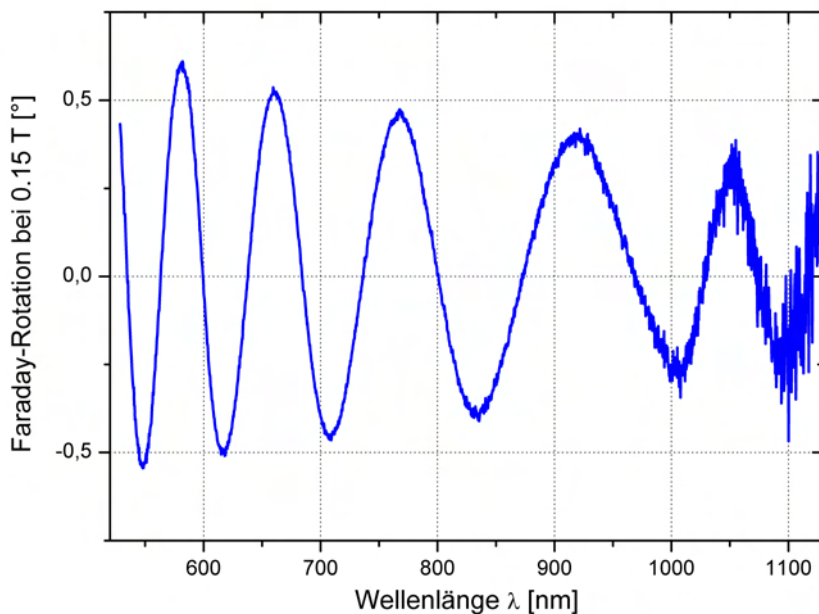


Abbildung 7.7: Beispiel des *merkwürdigen* Verhaltens der FR der betrachteten Proben.

PLD auf das Substrat aufgebracht (vgl. Abschnitt 5.2.3). Bei den Substraten handelte es sich um kristallines  $\text{SiO}_2$  mit  $(11\bar{2}0)$ -,  $(10\bar{1}0)$ - oder  $(001)$ - Schnitt) und amorphes Quarzglas. Durch einen zusätzlichen Annealing-Prozess entstanden bei ca.  $1000^\circ\text{C}$  dünne polykristalline YIG-Schichten. Diese dünnen Granat-Puffer dienten als Grundlage für den weiteren Beschichtungsprozess mittels PLD und ermöglichten anschließend eine Deposition von BIG in kristalliner Form. Die Proben zeigten aber bereits nach dem Annealing-schritt das merkwürdige Verhalten in den FR-Messungen.

Die genaue Untersuchung der reinen Pufferschichten fällt auf, dass lediglich die Filme auf  $(11\bar{2}0)$ - oder  $(10\bar{1}0)$ -  $\text{SiO}_2$  den oszillatorischen Effekt im Spektrum aufweisen. Schichten auf  $(001)$ -  $\text{SiO}_2$  oder amorphem Quarzglas zeigen diesen nicht.

Um den oszillatorischen Effekt reproduzieren zu können, sind kristalline  $\text{SiO}_2$ -Proben nötig, wobei der Schnitt der Substrate berücksichtigt werden muss, da  $(001)$ -orientierte Proben in keinem Fall oszillierten.

In Abbildung 7.8 sind typische FR-Spektren für die verschiedenen Substrattypen gezeigt, die zuvor mit 17 nm YIG beschichtet wurden.

Nach dieser ersten groben Einteilung der Proben wurden explizite Untersuchungen an den entsprechenden Substraten zur Klärung des OE durchgeführt. Im folgenden Abschnitt sollen die dabei entdeckten außergewöhnlichen Abhängigkeiten kurz erläutert werden.

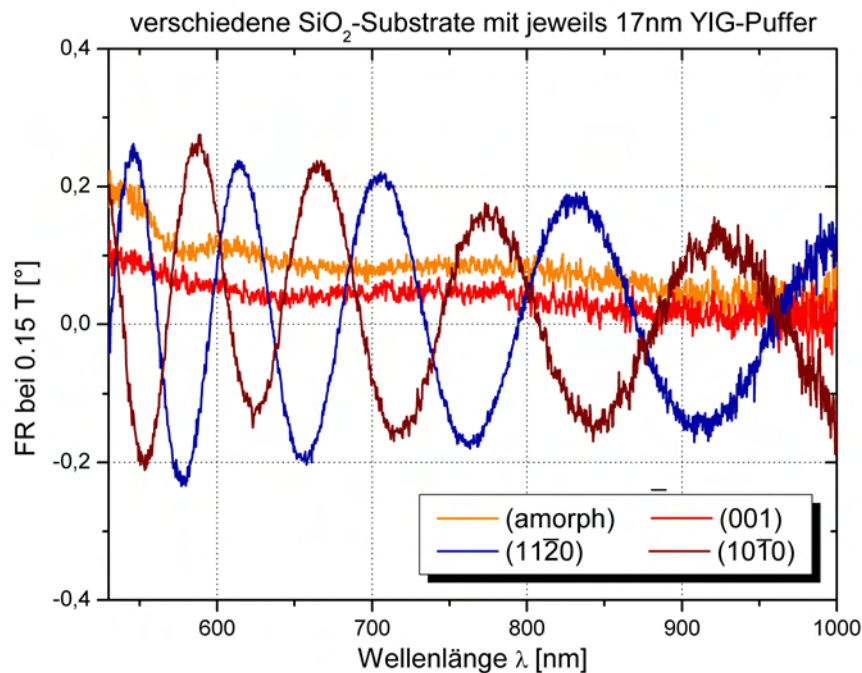


Abbildung 7.8: Typische FR-Spektren von annealten YIG-Puffern auf verschiedenen Substraten

## 7.6 Lösungsansätze zur Erklärung der oszillatorischen Effekte

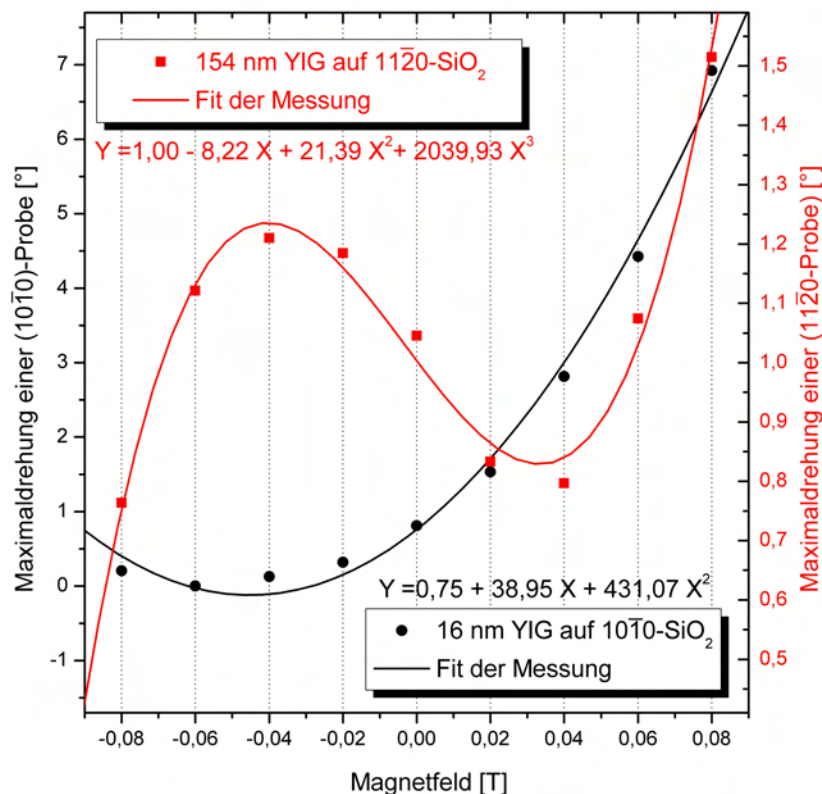
### Abhängigkeit vom magnetischen Feld

Da für die ungewöhnlich hohen Faraday-Drehungen dieser Proben keine Erklärung gefunden werden konnte, wurden deren Magnetfeldabhängigkeiten bestimmt.

Wie in Abbildung 7.9 zu sehen ist, ergibt sich ein deutlicher Zusammenhang zwischen der maximalen FR der Proben (maximalen Amplitude der Oszillationen) und dem angelegten Magnetfeld.

Entgegen der erwarteten linearen Abhängigkeit der maximalen FR vom Magnetfeld ergibt sich ein quadratischer Zusammenhang, den beide dargestellten Proben deutlich zeigen.

In den jeweiligen Graphen sind die ermittelten Fitparameter mit angegeben. Der lineare Anteil lässt sich durch den Faraday-Effekt erklären, denn dieser liefert durch die Granat-Schichten im Magnetfeld seinen Beitrag zur FR. Der deutlich erkennbare quadratische Anteil, sowie der Term dritter Ordnung der Funktionen, hat dagegen nichts mit dem Faraday-Effekt zu tun und kann nicht auf diesen zurückgeführt werden. Außerdem ergeben sich für negative Magnetfelder entgegen den Erwartungen für den Faraday-Effekt positive Drehungen. Eine Erklärung für die außergewöhnlichen FR-Spektren und ihr Verhalten wird in den folgenden Abschnitten gegeben.



**Abbildung 7.9:** Magnetfeldabhängigkeit der maximalen FR für zwei untersuchte Proben. Dünne YIG-Puffer zeigen eine quadratische Abhängigkeit. Schichten ab etwa 100 nm weisen eine Abhängigkeit höherer Ordnung auf.

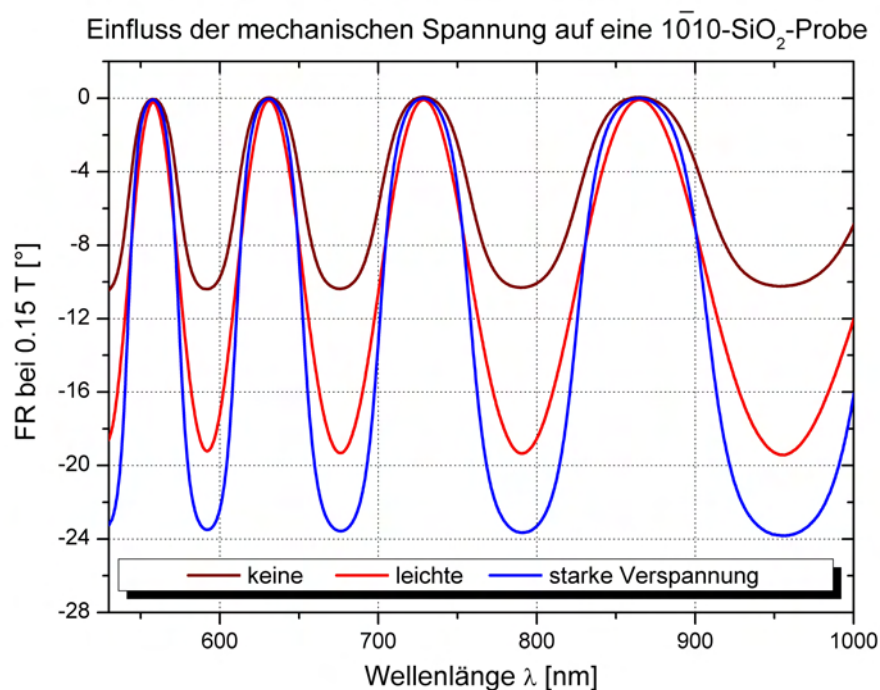
### Mechanische Spannung

Zu Beginn der Untersuchungen konnte keine der FR-Messungen reproduziert werden. Die Oszillationen änderten willkürlich ihre Form und Amplitude in den Spektren. Der Probenhalter wurde in mehreren Schritten um 360° gedreht und bei jeder Stellung ergaben sich andere Messwerte. Somit kam nur die Ausrichtung der Probe und die Messposition auf derselben im Halter in Frage.

Letztendlich stellte sich als Ursache für die unterschiedlichen Messergebnisse heraus, dass das Spektrum von der Kraft, mit der die Proben in den Halter geklemmt werden, abhängt. Die Oszillationen in den FR-Spektren stehen also in direktem Zusammenhang mit der mechanischen Spannung, die auf die Proben ausgeübt wird. Diese Tatsache ist in Abbildung 7.10 deutlich zu erkennen. Sowohl Form als auch Amplitude der FR-Spektren korrelieren stark mit der mechanischen Spannung.

Interessant dabei ist, dass eine große Spannung auf die Schicht auch eine hohe FR-Maximaldrehungen mit sich bringt. Die gesamte Verspannung der Probe muss allerdings nicht zwingend durch den Halter erzeugt werden. Eine höhere Verspannung kann auch vom Annealingprozess herrühren, da die obersten Schichten der SiO<sub>2</sub>-Substrate





**Abbildung 7.10:** FR-Spektren einer  $(10\bar{1}0)$ - SiO<sub>2</sub>-Probe bei der die mechanische Spannung, durch unterschiedliches Festklemmen im Probenhalter, variiert wurde.

aufschmelzen und YIG ins Substrat diffundieren kann. Beim Abkühlvorgang stellen sich dann Verspannungen im Substrat ein.

### Spannungsdoppelbrechung

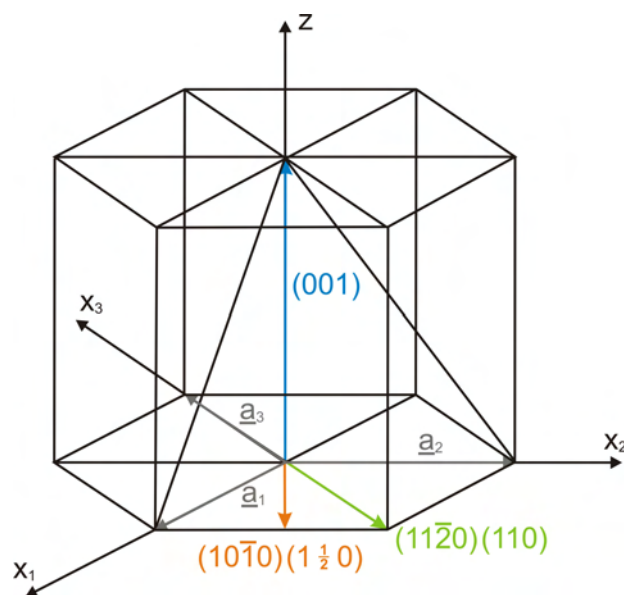
Der zuvor beschriebene Effekt der mechanischen Spannung kann die relativ großen Amplituden, verglichen mit denen die durch den Faraday-Effekt erzeugt werden, nicht alleine erklären. Es muss ein weiterer Effekt für die großen Doppelbrechungen verantwortlich sein. Des Weiteren muss ein Zusammenhang zum Schnitt der kristallinen Substrate vorhanden sein, der von der mechanischen Spannung abhängt.

Zur Erklärung der Oszillationen kann die Spannungsdoppelbrechung herangezogen werden, die auch in homogenen isotropen Materialien auftritt. Dieser Effekt konnte erstmals von Sir David Brewster beobachtet werden, der feststellte, dass die ansonsten isotropen Stoffe unter Belastung anisotrop werden und ein doppelbrechender Charakter erzeugt wird.

Im vorliegenden Fall weist das kristalline SiO<sub>2</sub> unter mechanischer Belastung eine zusätzlich induzierte Doppelbrechung auf. Dies führt z.B. dazu, dass je nach Belastung des Kristalls rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht unterschiedlich gebrochen wird und dadurch verschiedene Brechungsindizes besitzt [168, 170].

Da die *Kristallstruktur* für die Doppelbrechung eine entscheidende Rolle spielt, ist es wichtig, die Richtung des einfallenden Lichts in Bezug auf ausgezeichnete Kristallachsen zu betrachten. Bei den hier verwendeten SiO<sub>2</sub>-Substraten handelt es sich um optisch einachsige Kristalle, deren doppelbrechender Charakter von der Einfallsrichtung

des Lichts abhängt. Damit kann die beobachtete Abhängigkeit vom Substrattyp erklärt werden, denn Spannungsdoppelbrechung tritt nur dann auf, wenn Licht senkrecht zur Hauptachse des Kristalls einfällt (siehe Abb. 7.11)<sup>35</sup>. Bei amorphen Quarz-Substraten kommt es daher zu keiner starken Doppelbrechung, da nur eine sehr geringe Spannungsdoppelbrechung vorhanden ist [168]. Bei Substraten mit (001)-Schnitt entspricht die (001)-Einfallrichtung gerade der  $z$ - also der Hauptachse des Kristalls. Betrachtet man die Lage der  $(11\bar{2}0)$ - bzw.  $(10\bar{1}0)$ -Richtungen, so erkennt man, dass diese senkrecht auf der  $z$ -Achse und somit senkrecht zur Hauptachse des Kristalls sind. Bei Messungen in Transmission kann es bei diesen Schnitten zu starker Doppelbrechung kommen.



**Abbildung 7.11:** Schematische Darstellung der Kristallrichtungen im hexagonalen Gitter eines  $\text{SiO}_2$ -Kristalls. Es sind sowohl die Gittervektoren  $\underline{a}_1$ ,  $\underline{a}_2$  und  $\underline{a}_3$ , als auch die für die verschiedenen Schnitte der Substrate wichtigen Kristallrichtungen eingezeichnet.

Mit Hilfe dieser Überlegungen kann die Substratabhängigkeit des oszillatorischen Verhaltens erklärt werden. Da die Spannungsdoppelbrechung von der mechanischen Spannung abhängt, ist die gemessene Abhängigkeit der Faraday-Drehung von der mechanischen Spannung einleuchtend. Diese Abhängigkeit kann allerdings nur schwer quantitativ ausgedrückt werden und wird deshalb in der Simulation nicht berücksichtigt.

Zur Implementation in die Simulation der YIG-Pufferschichten ist ein geeignetes Modell für die betrachteten Schichtsysteme notwendig. Dieses wird im folgenden Kapitel hergeleitet und näher beschrieben.

## 7.7 Interferenzerscheinungen und Schichtsystem-Modell

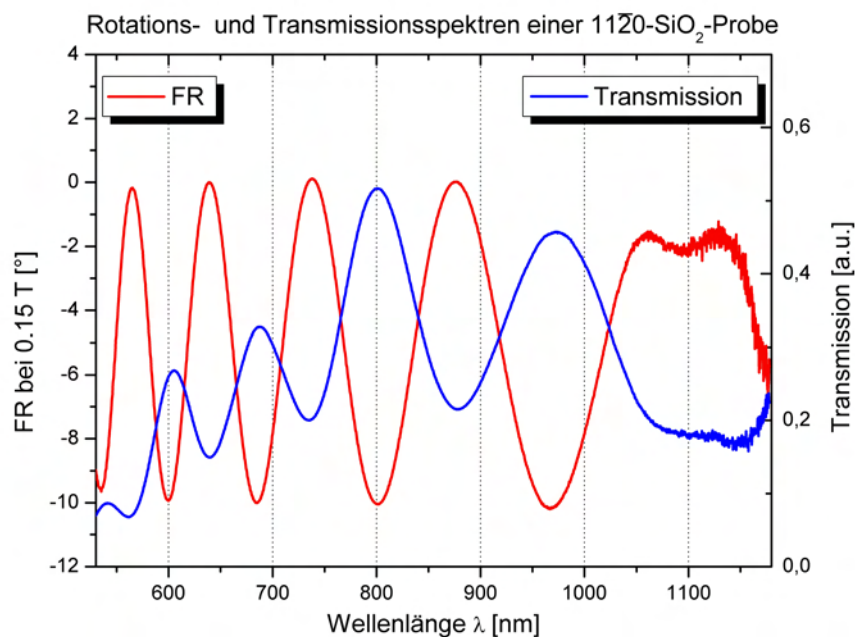
In Abschnitt 7.4 wurde bei der Diskussion der Simulation bereits darauf hingewiesen, dass zur Beschreibung des oszillatorischen Verhaltens Reflexionen vorausgesetzt werden müssen. Diese finden an den Grenzschichten statt, woraus Interferenzen resultieren, die zu kleinen Oszillationen in den FR-Spektren führen können.

<sup>35</sup>Beim hier vorliegenden hexagonalen  $\text{SiO}_2$ -Kristall liegt die optische Hauptachse parallel zur  $z$ -Achse [6].

Der Entstehungsvorgang der Oszillationen soll kurz anhand einer einzelnen Pufferschicht durchgespielt werden. Das einfallende linear polarisierte Licht wird in links- und rechtszirkular polarisiertes Licht aufgeteilt und transmittiert durch die Probe. Die beiden links- und rechtszirkularen Anteile besitzen je nach Schicht unterschiedliche Brechungsindizes, weshalb sie sich mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten ausbreiten und verschieden stark an den Grenzschichten reflektiert werden. Abhängig von der Anzahl der Reflexionen, kommt es so zu unterschiedlichen Laufwegen, die sich um Vielfache der Schichtdicken unterscheiden. Diese Periodizität überträgt sich auf die Phasen der Lichtanteile und führt so in regelmäßigen Abständen zu größeren und kleineren Drehungen des Lichtes, was sich letztendlich in den Oszillationen der FR-Spektren widerspiegelt.

Ein zusätzlicher Hinweis auf Reflexionen in den Schichtsystemen ergab sich aus den Transmissionsspektren. Abbildung 7.12 zeigt exemplarisch das Transmissions- und FR-Spektrum einer  $(11\bar{2}0)$ -Probe mit einer dünnen YIG-Schicht. Deutlich erkennt man das gegenläufige Verhalten der Transmission zur FR-Drehung. Die Maxima fallen bei gleicher Wellenlänge mit den Transmissionsminima zusammen und umgekehrt, was auf Interferenzen und Reflexionen zurückzuführen ist.

In [143] wurde bereits festgestellt, dass Reflexionen, die sich mit weniger oft oder gar nicht reflektierten Wellenanteilen überlagern, kleine Oszillationen in den Transmissionsspektren verursachen. Aus diesen können z.B. die Brechungsindizes und Schichtdicken der einzelnen durchstrahlten Lagen bestimmt werden.



**Abbildung 7.12:** Transmissions- und FR-Spektrum einer  $(11\bar{2}0)$ - $\text{SiO}_2$ -Probe. Beide Messungen zeigen zueinander passende Oszillationen in ihren Spektren.

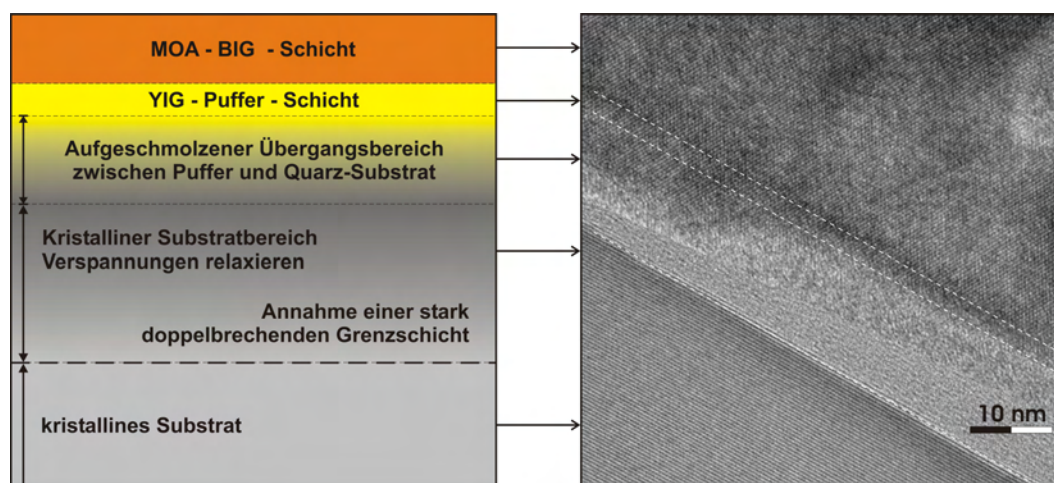
Zum vollständigen Verständnis des Schichtsystemaufbaus wurde das im Folgenden beschriebene Modell entwickelt.

Das *Erklärungsmodell* basiert hauptsächlich auf der durch den Herstellungsprozess bedingten Veränderung der Grenzfläche (Interface) zwischen Puffer und Substrat. Nach

der Deposition der dünnen Puffer-Schicht auf das jeweilige  $\text{SiO}_2$ -Substrat, folgt ein Anheilungsprozess bei ca.  $1000^\circ\text{C}$ , wodurch sich eine polykristalline Phase ausbildet. Dabei wird die oberste Schicht des Substrates aufgeschmolzen und Bestandteile des Granaten, wie z.B. Y oder Fe (bei YIG), können eindiffundieren [138]. Dieser Übergangsbereich wird von einem kristallinen  $\text{SiO}_2$ -Substratbereich gefolgt, in welchem sich Verspannungen abbauen und dort Spannungsdoppelbrechung verursachen. Diese können sowohl von außen, als auch von der aufgetragenen Schicht herrühren. Mit Hilfe der Simulation konnte weiter festgestellt werden, dass die Verspannungen innerhalb eines etwa  $1\ \mu\text{m}$  tiefen Bereiches relaxieren. Dies kann z.B. mit Oberflächenwellen verglichen werden, die ebenfalls ca.  $1\ \mu\text{m}$  tief in die Probe eindringen und in diesem Bereich große Verzerrungen der Oberflächen verursachen. Untersuchungen dazu werden in Kapitel 8.3 kurz geschildert.

In Abbildung 7.13 ist das verwendete Modell des Schichtsystems schematisch dargestellt, welches durch eine TEM-Studie bestätigt werden konnte. Der zuvor beschriebene doppelbrechende Charakter wird durch eine einzelne stark doppelbrechende Grenzschicht (wie in Abb. 7.13 gekennzeichnet) in der Simulation berücksichtigt.

Zwischen den beiden nicht-doppelbrechenden Bereichen (unterhalb des aufgeschmolzenen Bereichs und dem kristallinen Substrat) werden Verspannungen abgebaut. Da der vorhandene Spannungsgradient, der die beiden Bereiche verbindet, nicht bestimmt werden kann, wird dieser zu einer einzigen stark doppelbrechenden Grenzschicht, für den gesamten verspannten Bereich, zusammengefasst. Diese Vereinfachung der Spannungsdoppelbrechung scheint legitim, da diese richtungsabhängig ist und nur an den Grenzen der Verspannungen stattfindet.

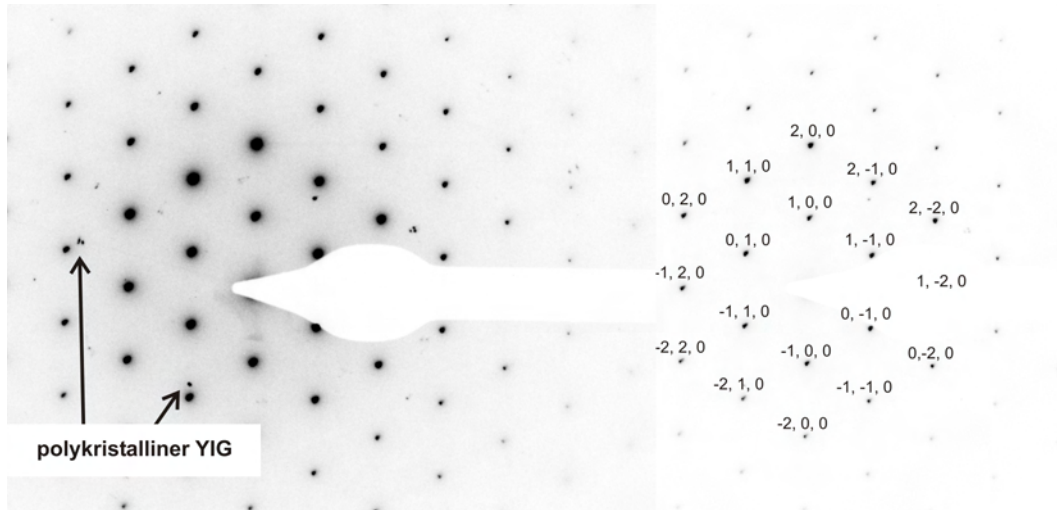


**Abbildung 7.13:** Links: Entwickelte Modellannahme des Schichtsystems für YIG-Pufferschichten. Die dünne YIG-Schicht liegt auf einem Übergangsbereich aus geschmolzenem  $\text{SiO}_2$  mit eindiffundiertem Y und Fe, die dann in kristallines Substrat übergeht; Rechts: TEM-Aufnahme einer  $(10\bar{1}0)$ -Probe zur Bestätigung des Modells. Aufgeschmolzene und kristalline Bereiche, sowie die deponierten Schichten sind gekennzeichnet.

Das entwickelte Modell konnte durch eine ausführliche TEM-Studie an ausgewählten Proben bestätigt werden. In Abbildung 7.13 ist neben der beschriebenen Modellannahme die TEM-Aufnahme des Schichtsystems einer  $(10\bar{1}0)$ -Probe gezeigt. Deutlich zu erkennen sind die amorphe BIG- und die kristalline YIG-Schicht. Darunter folgt der aufgeschmolzene, nicht-kristalline Übergangsbereich. Auffallend sind leichte Verfärbungen in diesem

Bereich. Diese deuten auf eindiffundiertes Y bzw. Fe hin.

In Abbildung 7.14 ist zusätzlich noch das Beugungsbild des Schichtsystems zu sehen. Die angegebenen hexagonalen Reflexe wurden mittels der Auswertungssoftware CaRIne indiziert. Für den polykristallinen YIG zeigen sich jedoch nur schwache und über das gesamte Beugungsbild verteilte Reflexe, da nur ein kleiner Bereich aufgenommen wurde. Es bestätigen sich die großen kristallinen Bereiche des Substrats.



**Abbildung 7.14:** Links: TEM-Beugungsbild eines Schichtsystems. Neben den Substratreflexen sind auch Reflexe des polykristallinen YIG zu erkennen. Rechts: Indizierung der hkl-Indizes des hexagonalen Gitters der Beugungsreflexe mittels der Software CaRIne.

Zur Vervollständigung des entwickelten Modells folgt zuletzt noch die Erklärung der Magnetfeldabhängigkeit der Proben.

### Erklärung der Abhängigkeit vom magnetischen Feld

Um das entwickelte Modell zu komplettieren, muss für die in Abschnitt 7.6 beschriebene quadratische Abhängigkeit vom Magnetfeld eine Erklärung gefunden werden. Dabei wird hauptsächlich von Spannungsdoppelbrechung ausgegangen, da der Faraday-Effekt lediglich einen linearen Beitrag leistet.

Wird die Probe durch eine von außen angreifende Kraft verspannt, so kommt es zu Spannungsdoppelbrechung. Deshalb müssen die Kräfte betrachtet werden, die im Magnetfeld auf die Probe wirken. Durch die verschieden tiefe Diffusion von Y und Fe entsteht im aufgeschmolzenen Übergangsbereich zwischen  $\text{SiO}_2$  und Puffer ein Konzentrationsgefälle. Dieses hat einen magnetischen Suszeptibilitätsgradienten zur Folge. Es lässt sich zeigen, dass auf diesen im äußeren Magnetfeld eine Kraft  $F$  wirkt, die direkt proportional zum Quadrat des Magnetfeldes  $B$  ist. Diese Kraft  $F$  verspannt darüber hinaus das Substrat und erzeugt dort zusätzliche Doppelbrechung. Dieses Gefüge soll nun auch rechnerisch bestätigt werden (vgl. [165]).

Für das von außen angelegte Magnetfeld gilt:  $\vec{B}_{ext} = \mu_0 \vec{H}$ . Die auf ein magnetisches Dipolmoment  $\vec{\mu}$  wirkende Kraft  $F$  im Magnetfeld der Flussdichte  $\vec{B}$  ist:

$$\vec{F} = \vec{\nabla}(\vec{\mu} \cdot \vec{B}_{ext}) = (\vec{\mu} \cdot \vec{\nabla}) \vec{B}_{ext} .$$

Mit der Magnetisierung  $\vec{M} = \frac{\vec{\mu}}{V}$  ( $V$ : Volumen) und  $\vec{M} = \chi \vec{H}$  ( $\chi$ : magnetische Suszeptibilität) folgt für die Kraft  $\vec{F}$ :

$$\vec{F} = V \vec{M} \vec{\nabla} \vec{B} = V \frac{\chi}{\mu_0} \vec{B} \vec{\nabla} \vec{B}. \quad (7.39)$$

Vereinfacht sollen nun zwei Schichten verschiedener Suszeptibilität  $\chi_1$  bzw.  $\chi_2$  mit einer dazwischenliegenden Grenzschrift der Fläche  $A$  und Dicke  $s$  betrachtet werden.

Der in der Grenzschrift resultierende Gradient der magnetischen Flussdichte lässt sich dann folgendermaßen beschreiben:

$$\nabla B = \frac{dB}{dy} \approx \frac{1}{s}(B_1 - B_2) = \frac{\mu_0 H}{s}(1 + \chi_1 - 1 - \chi_2) = \frac{1}{s} B_{ext}(\chi_1 - \chi_2), \quad (7.40)$$

wobei  $B_1$  und  $B_2$  die  $B$ -Felder der einzelnen Schichten beschreiben.

Mit Gleichung 7.39 ergibt sich für die Kraft auf die Schicht mit der Suszeptibilität  $\chi_1$ :

$$F = V \frac{\chi_1}{\mu_0 s} (\chi_1 - \chi_2) B_{ext}^2 = A \cdot \frac{\chi_1}{\mu_0} \cdot (\chi_1 - \chi_2) \cdot B_{ext}^2. \quad (7.41)$$

Das Volumen  $V \approx A \cdot s$  bezieht sich im betrachteten Fall nur auf die Grenzschrift, da nur dort der Gradient im  $B$ -Feld besteht.

Die resultierende Kraft  $F_{ges}$  auf den gesamten Übergangsbereich kann mit einem stetigen Suszeptibilitätsgradienten durch die Funktion  $\chi(y)$  ausgedrückt werden zu:

$$F = \frac{A}{\mu_0} \cdot B_{ext}^2 \cdot \int_{\chi(0)}^{\chi(y)} \chi d\chi \quad (7.42)$$

Das Integral liefert einen konstante Größe, die nur von den schwer bestimmbareren Gegebenheiten des Übergangsbereiches abhängen. Es ist jedoch deutlich zu sehen, dass die Kraft  $F$  direkt proportional zu  $B_{ext}^2$  ist.

Mit der Hauptgleichung der Spannungsoptik kann letztlich der Zusammenhang zwischen der Kraft  $F$  und der im Schichtsystem entstehenden Doppelbrechung hergestellt werden. Dieser sieht folgendermaßen aus [171]:

$$\Delta n = C \cdot \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{2\pi}. \quad (7.43)$$

Die Doppelbrechung  $\Delta n$  kann durch die materialabhängige, spannungsoptische Konstante  $C$  und den beiden Spannungswerten  $\sigma_1$  bzw.  $\sigma_2$  der beiden Hauptachsenrichtungen beschrieben werden. Die zuvor berechnete Kraft  $F$  verspannt die Probe allerdings in nur einer Hauptachsenrichtung, wodurch sich der Spannungswert mit  $\sigma = F/A$  annähern lässt<sup>36</sup> [172].

Es entstehen somit folgende Proportionalitäten der Doppelbrechung  $\Delta n$ :

$$\Delta n \propto \sigma = \frac{F}{A} \propto F = \frac{A}{\mu_0} \cdot B_{ext}^2 \cdot \int_{\chi(0)}^{\chi(y_{max})} \chi d\chi \propto B_{ext}^2 \quad (7.44)$$

$$\implies \Delta n \propto B_{ext}^2 \quad (7.45)$$

Das hier entwickelte Modell zeigt, dass die Amplitude der Oszillationen direkt proportional zur Doppelbrechung ist. Somit ist die quadratische Abhängigkeit der maximalen Faraday-Rotation mit oszillatorischem Verhalten bewiesen.

<sup>36</sup>  $A$  bezeichnet die belastete Fläche.

### Erklärungsversuch der $B^3$ -Abhängigkeit

Wie in Kapitel 7.6 bereits erwähnt wurde, zeigen einige Proben Oszillationsamplituden mit einer kubischen ( $\propto B^3$ -) Abhängigkeit vom Magnetfeld. Darüber hinaus treten bei den untersuchten Proben diese  $B^3$ -Abhängigkeiten erst ab einer Pufferdicke von etwa 50 nm auf. Die zuvor durchgeführte Rechnung war jedoch nicht eindeutig in der Verwendung von inneren und äußeren Magnetfeldern. Dementsprechend müssen sie für eine selbstkonsistente Erklärung genauer betrachtet werden.

Damit ist eine Entwicklung des internen Magnetfeldes (in der Übergangsschicht und der YIG-Schicht) nach dem externen Magnetfeld naheliegend. So könnten auch Magnetfeldabhängigkeiten mit  $B^3$ -,  $B^4$ - oder höheren Ordnungen erzeugt werden. Das interne Magnetfeld entspricht damit gerade dem Gradientenfeld, welches selbstkonsistent erzeugt wird. Das externe Magnetfeld verursacht die Magnetisierung auf die eine Kraft wirkt. Die Magnetisierung wiederum nimmt Einfluss auf das Gesamtmagnetfeld und wirkt dem externen Magnetfeld entgegen, schwächt dieses ab, usw. Dabei muss allerdings beachtet werden, dass die  $B^3$ -Abhängigkeiten nur bei dicken YIG-Puffern auftreten. Die durch den Suszeptibilitätsgradienten erzeugte Kraft liefert anscheinend größtenteils quadratische und nur geringe  $B^3$ -Abhängigkeiten. Die  $B^3$ -Terme müssen damit auf ähnliche Art und Weise auf die YIG-Schicht zurückgeführt werden.

Der aufgebrauchte YIG-Puffer könnte dazu durch seinen Ferrimagnetismus weitere Abhängigkeiten vom äußeren Magnetfeld zu liefern, da hier freie Spins in der Schicht vorliegen. Eine Erklärung dieser Abhängigkeiten erfordert tieferes Verständnis der Magnetisierungen, Suszeptibilitäten und magnetoelastischen Effekte. Letztere beschreiben leichte Verkippungen von Spins im verspannten Material, die eine Wechselwirkung mit dem externen Feld zeigen und durch mechanische Spannungen erzeugt werden.

Zusammengefasst scheint die Entwicklung des internen Magnetfeldes nach dem äußeren legitim zu sein, so dass  $B^3$ -Abhängigkeiten erklärt werden können (und höhere Ordnungen). Im Ansatz erinnert das an die Landau-Theorie, bei der die freien Energien nach äußeren Parametern (ähnlich wie hier) entwickelt werden und Abhängigkeiten weit höherer und auch gemischter Ordnungen erzeugen können [173].

Der bereits geklärte quadratische Anteil wird damit in führender Ordnung durch das vorhandene Erklärungsmodell gezeigt. Die Entwicklung nach dem äußeren Magnetfeld würde diese Erklärung nicht abwerten, da sie gewissermaßen eine Erweiterung der bestehenden Herleitung darstellt. Diese Entwicklung würde dann einen ersten Ansatz zur Erklärung von Abhängigkeiten höherer Ordnungen liefern.

Im nächsten Abschnitt werden nun die simulierten mit den gemessenen FR-Spektren der Proben verglichen.

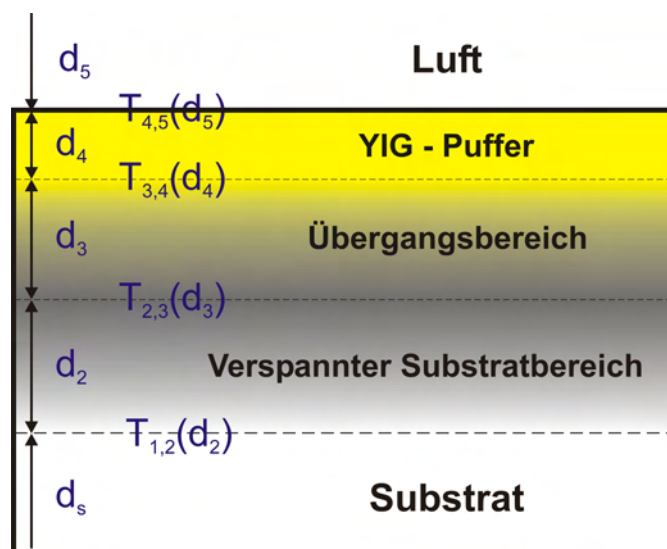
## 7.8 Simulation der FR-Spektren der untersuchten Proben

Im Folgenden werden die gemessenen FR-Spektren mit den Simulationsergebnissen verglichen. Wie in den Abschnitten zuvor bereits beschrieben wurde, eignen sich Proben mit  $(11\bar{2}0)$ - bzw.  $(10\bar{1}0)$ -Schnitt am Besten zur Überprüfung des entwickelten Modells, da nur diese sinusförmige FR-Spektren aufweisen.

In Tabelle 7.2 sind die zur Simulation verwendeten Parameter angegeben. Dabei werden der Übergangsbereich und der YIG-Puffer separat betrachtet. Auch geht die angenommene Tiefe der stark doppelbrechenden Grenzschicht mit ein sowie eine YIG-Luft-Grenzschicht.

Schnitt	$(d_4)$	$(d_3)$	$(d_2)$	$\Delta n$	$(d_5)$
(10 $\bar{1}0$ )	12 nm	24 nm	1630 nm	-0,37	ja
(11 $\bar{2}0$ )	17 nm	24 nm	1640 nm	0,065	ja

**Tabelle 7.2:** Übersicht über die zur Simulation verwendeten Parameter.  $d_4$ : Schichtdicke YIG,  $d_3$ : Dicke des Übergangsbereiches,  $d_2$ : Tiefe der doppelbrechenden Grenzschicht,  $\Delta n$ : Grad der Grenzschicht-Doppelbrechung,  $d_5$ : YIG-Luft-Grenze

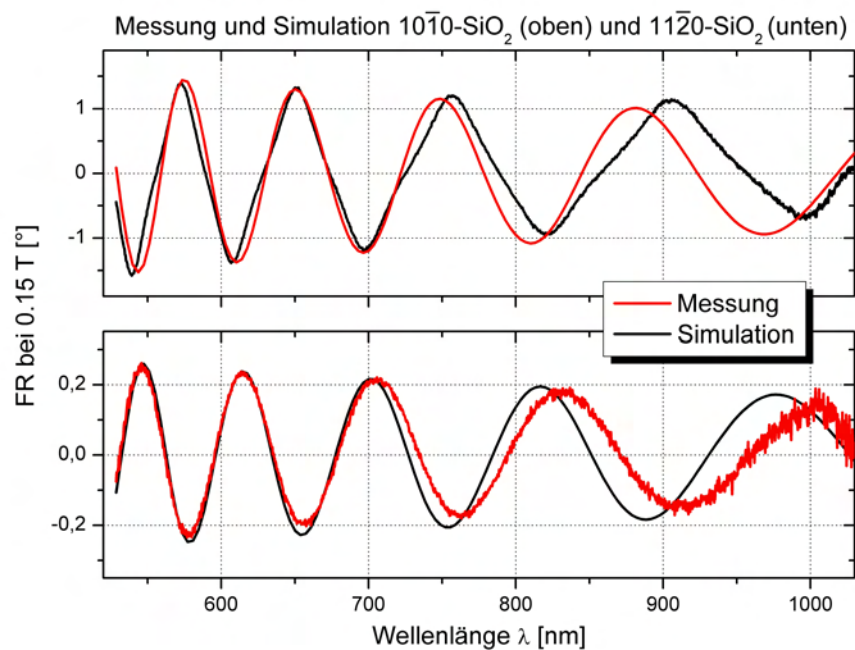


**Abbildung 7.15:** Veranschaulichung der zur Simulation verwendeten Transfermatrizen und Schichten.

Da die Substratdicke in der Simulation nicht berücksichtigt wird, kann durch Modifikation der Dicke des verspannten Bereiches die Tiefe der stark doppelbrechenden Grenzschicht eingestellt werden. In Abbildung 7.15 wird das simulierte Schichtsystem noch einmal schematisch verdeutlicht. Es zeigt sich, dass lediglich die entstehende Grenzschicht zwischen Substrat und verspanntem Substratbereich in die Transfermatrizen eingeht. Die stark doppelbrechende Grenzschicht kann, durch Auswahl der entsprechenden Brechungsindizes  $n_{\pm}$  für den unverspannten Substratbereich, simuliert werden. Deutlich zu erkennen ist auch, dass für die Simulation eine Schichtdicke für Luft notwendig wird, damit die entstehende Grenzschicht mit einberechnet werden kann, die aber keinerlei Bedeutung und Einfluss hat. Die restlichen Schichtdicken und Parameter waren bereits aus anderen Messungen bekannt.

In Abbildung 7.16 wird das Ergebnis des in der Simulation umgesetzten Modells gezeigt. Für die beiden interessanten Substrattypen wird jeweils ein Beispiel angegeben. Simulation und Messung stimmen gut überein, allerdings weichen sie zu größeren Wellenlängen hin voneinander ab, weil die Spannungsdoppelbrechung über den gesamten Wellenlängenbereich als konstant angenommen wurde. Ebenso bleibt die Spannungsverteilung innerhalb der Schicht unberücksichtigt.





**Abbildung 7.16:** Vergleich der gemessenen FR-Spektren mit dementsprechenden Simulationen für je eine mit einem YIG-Puffer beschichtete ( $10\bar{1}0$ )- und ( $11\bar{2}0$ )-SiO<sub>2</sub>-Probe.

In der Simulation können die verformten Sinusschwingungen mancher Messungen nicht modelliert werden, da sie auf weitere, durch das Annealing bedingte, Spannungen im Substrat zurückzuführen sind. Die beiden Simulationen unterscheiden sich hauptsächlich durch ihre unterschiedlichen Spannungsdoppelbrechungen  $\Delta n$ , welche durch verschiedene Grundverspannungen und unterschiedlichen Spannungen während der Messung zu erklären sind.

Das entwickelte Gesamtmodell liefert also eine konsistente Erklärung für den beobachteten, außergewöhnlichen Effekt des oszillatorischen Verhaltens.



## 8 Kurze Zusammenfassung weiterer durchgeführter Studien

Im Folgenden werden weitere im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Studien kurz vorgestellt. Zum Teil konnten diese leider nicht im nötigen Umfang zu Ende geführt werden. Die Ideen stellen eine Grundlage für weitere Arbeiten auf diesem Gebiet dar.

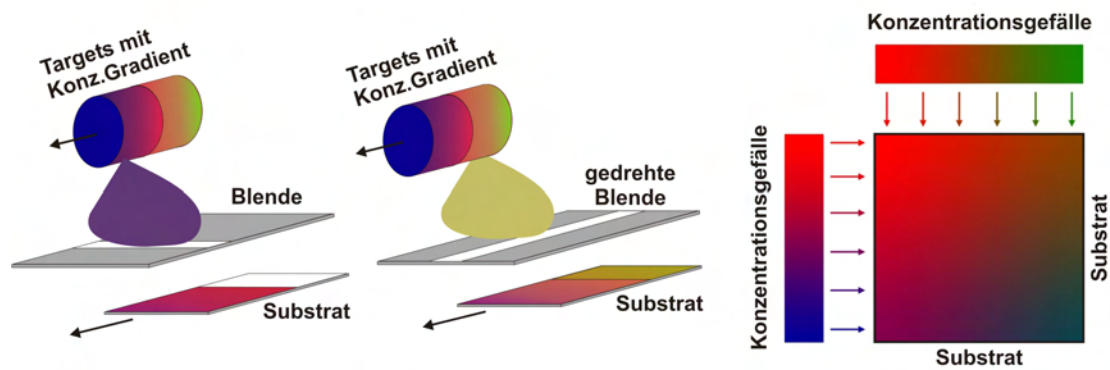
### 8.1 Gradienten-Target

Auf Grund der erfolgreich erzielten Ergebnisse in Kombination mit den Simulationen ist die Optimierung eine Granatdoppellage auf YIG/SiO<sub>2</sub> möglich. Zur gezielten Manipulation der Granatschichten müssen verschiedene Granatmaterialien miteinander kombiniert werden, um deren optischen und strukturellen Eigenschaften einzustellen. Nachdem die Depositionsparameter für verschiedene Substituenten optimiert werden konnten, müssen diese nun über einen Puffer auf SiO<sub>2</sub> deponiert werden.

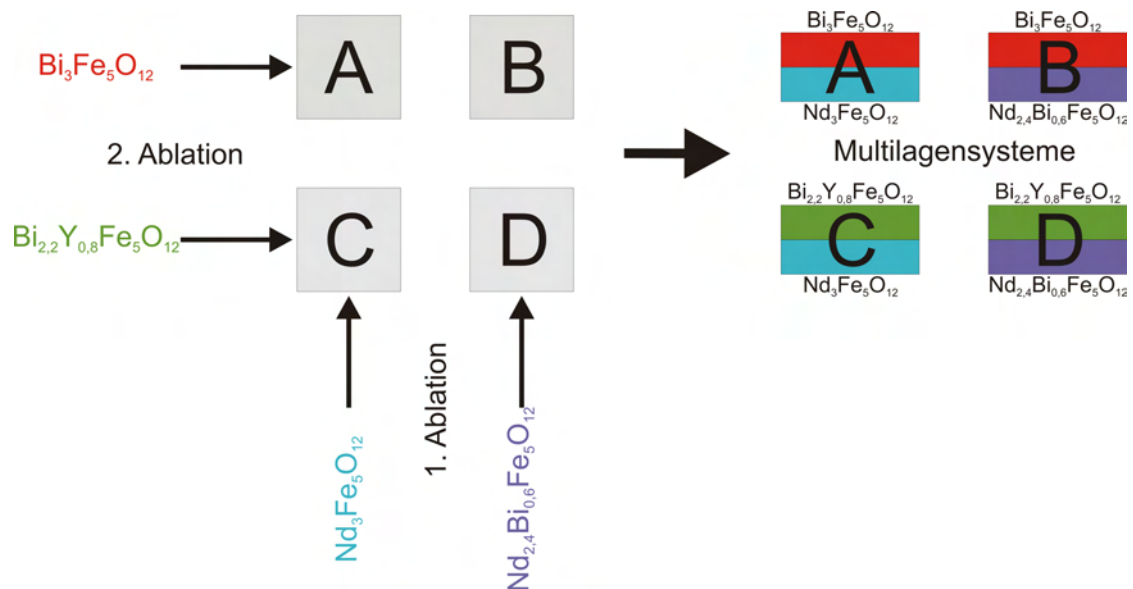
Dabei werden Gradienten-Targets mit einem Konzentrationsgefälle hergestellt, um alle Kombinationsmöglichkeiten zu realisieren. Zusätzlich befindet sich zwischen Target und Substrat eine Blende, wodurch nur ein dünner Streifen des Substrates beschichtet wird. Nach der Abscheidung einer gewissen Schichtdicke  $d$ , wird das Target parallel zur Zylinderachse bewegt, so dass der Laserstrahl auf eine neue Konzentration des Granaten trifft. Simultan wird auch das Substrat in die gleiche Richtung bewegt, wodurch ein neuer Bereich des Substrates mit der neuen Konzentration beschichtet wird. Nun wird das Substrat bzw. die Blende um 90° gedreht und der Vorgang mit dem anderen Target wiederholt.

Abbildung 8.1 zeigt das prinzipielle Vorgehen. Auf diese Weise erhält man in einem Beschichtungsprozess für beide Materialien alle möglichen Kombinationen der jeweiligen Konzentrationen  $x$ . So kann eine große Anzahl von Materialkombinationen getestet werden.

Für die Kombination von YIG-BIG und NdIG-BIG konnte diese Methode bereits erfolgreich angewendet werden. Die kombinatorische Untersuchung dieser beiden Materialsysteme fand dabei nach dem in Abb. 8.2 schematisch skizzierten Schema statt: Es wurde von zwei Targets (Y und Nd dotiert) mit einer linearen Veränderung bzgl. der Bi-Konzentration, ablatiert. Die mit diesen Gradiententargets hergestellten Multilagen entsprachen dabei genau den zuvor simulierten Spektren [139].



**Abbildung 8.1:** Veranschaulichung der Kombinatorik unter Verwendung der Gradiententargets. Während der ersten Beschichtung werden Target und Substrat gleichzeitig verfahren. Für die zweite Beschichtung wird die Blende um 90° gedreht und vom zweiten Target ablatiert.



**Abbildung 8.2:** Ablauf der Beschichtung unter Verwendung der Gradiententargets und der entstehenden Kombinatorik.

## 8.2 Alternative Kristallisierungsmethoden des YIG-Puffers

Wie in der Arbeit gezeigt werden konnte, stellt sich auf Grund des Temperschritts eine polykristalline YIG-Struktur auf  $\text{SiO}_2$  ein. Die Oberflächenmorphologie weist dabei jedoch eine rissige Struktur auf. Für optimale optische Eigenschaften, wie z.B. der Transmission, wären jedoch homogene, gleich orientierte Körner am besten geeignet. In diesem Zusammenhang wurden Studien durchgeführt, um das Riss-Problem zu beheben. Nähere Details hierzu sind in [174] zu finden. Die Grundideen sollen im Folgenden vorgestellt werden.

### 8.2.1 Granat-Keimkristall

Der YIG-Puffer sollte mit einer definierten Vorzugsrichtung aufwachsen. Dazu sollte mit Hilfe eines Keimkristalls eine bevorzugte Wachstumsrichtung beim Tempern initiiert werden [156]. Als Keimkristall diente in diesem Fall ein etwa  $4\text{ mm}^2$  großer GGG-Chip, der auf die beschichtete Probe gelegt wurde.

Dazu wurden verschiedene Reihen bzgl. Annealing-Temperatur und Annealing-Zeit durchgeführt. Es konnte zunächst keine Veränderung der Probe festgestellt werden. Allerdings führte eine längere Annealing-Zeit erfolgreich zu einer Absenkung der Kristallisationstemperatur auf ca.  $730\text{ }^\circ\text{C}$ . Darauf deponierter BIG zeigte äquivalente Eigenschaften.

Die polykristallinen Schichten wiesen aber keine rissfreie YIG-Struktur auf, da die zur Kristallisation notwendige Temperatur immer noch zu hoch war.

### 8.2.2 Laserannealing

In einer Untersuchung sollte der Temperprozess der Pufferproben in-situ durchgeführt werden. Dazu wurde der Ansatz des Laserannealings verfolgt. In der Vergangenheit wurden damit schon sehr gute Ergebnisse erzielt. Das sog. *Doppel-Laserverfahren* konnte 2004 zum Patent angemeldet werden [76].

Dabei wird die abgeschiedene Schicht mit Hilfe eines zum Ablationslaser synchronisierten zweiten Excimerlasers direkt mit UV-Licht bestrahlt. Dadurch wird dem System zusätzlich Energie zur Verfügung gestellt und es können am Probenort Temperaturen von über  $2000\text{ }^\circ\text{C}$  realisiert werden. Diese sollte für die Ausbildung einer polykristallinen YIG-Phase ausreichend sein.

In ersten Versuchsreihen konnte jedoch kein Einfluss der eingestrahlt Laserenergie auf die Phasenbildung oder die lokale Phasenhomogenität des YIG festgestellt werden. Erst durch zusätzliches Heizen bis auf eine Temperatur von ca.  $700\text{ }^\circ\text{C}$  konnte nach etwa 10 Pulsen mit Pulsenergien von  $200\text{ mJ}$  und einer Frequenz von  $5\text{ Hz}$  die Bildung von polykristallinem YIG auf der Probe beobachtet werden. Auf diese Proben konnte anschließend erfolgreich BIG abgeschieden werden.

## 8.3 Einfluss von Oberflächenwellen auf den Faraday-Effekt

In einer weiteren Studie [175] sollte festgestellt werden, welchen Einfluss Oberflächenwellen auf den Faraday-Effekt im Granaten nehmen.

Die Fragestellung bestand darin, ob mit Hilfe von akustischen Oberflächenwellen (Surface Acoustic Waves, SAW) die Faraday-Drehung aktiv manipuliert werden kann. Derartige SAWs werden durch das Einkoppeln einer Hochfrequenz in Interdigital Transducern (IDT) auf piezoelektrischen Substraten erzeugt [176].

Die Wechselwirkung zwischen Faraday-Effekt und Oberflächenwelle liegt auf der Hand, weil dieser sensitiv von den einzelnen Bindungen im Granaten abhängt. Die Auslenkung des Films durch die im Substrat geführte SAW sollte die Bindungsverhältnisse, und somit den die magnetooptischen Eigenschaften im Granaten beeinflussen.

Das Hauptproblem ergab sich jedoch bereits bei der Integration der Granatstrukturen auf die piezoelektrischen Substrate. Eine Abscheidung von YIG und YAG auf den piezoelektrischen LiNbO<sub>3</sub>-Substraten erwies sich als unmöglich, da diese einen großen inversen piezoelektrischen Effekt aufweisen. Auf Grund des pyroelektrischen Effektes<sup>37</sup> von LiNbO<sub>3</sub> blättern die Schichten ab. Deshalb wurde YIG indirekt auf LiNbO<sub>3</sub> mittels einer Pufferschicht aus MgO aufgebracht. Es zeigte sich ein polykristallines Schichtwachstum, ab einer MgO-Puffer-Schicht von 50nm, wobei auf diesen Puffern kein BIG abgeschieden werden konnte.

Ein nächster Versuch waren neuartige Quarz-SAW-Substrate der Firma *Roditi*. Auf diesen konnte mit den standardisierten Parametern polykristalliner YIG und BIG erfolgreich abgeschieden werden. Nach der Integration eines Granatstreifens zwischen zwei IDTs konnten mit speziell angefertigten Chipcarriern Oberflächenwellen während der Messung der Faraday-Rotation angelegt werden.

Da während den Messungen in den Spektren starke Oszillationen auftraten (z.B. durch Verspannungen, vgl. 7.5), war es im Rahmen der Arbeit nur bedingt möglich, den Einfluss der SAW auf den Eisengranaten zu untersuchen.

Es konnte somit kein direkter Zusammenhang für die Auswirkung der akustischen Oberflächenwellen auf die Faraday-Rotation von Eisengranaten festgestellt werden.

## 8.4 Sensorik

Derzeit können Magnetfelder mittels Hall-Sonden und SQUID-Magnetometer detektiert werden. Die in dieser Arbeit gezeigten Schichten stellen eine einfachere Methode zur Analyse von Magnetfeldverteilungen dar. Diese magnetooptischen Sensoren können zweidimensionale Flussdichteverteilung mit der Ortsauflösung einiger  $\mu\text{m}$  auf einer Beobachtungsfläche von mehreren  $\text{cm}^2$  darstellen.

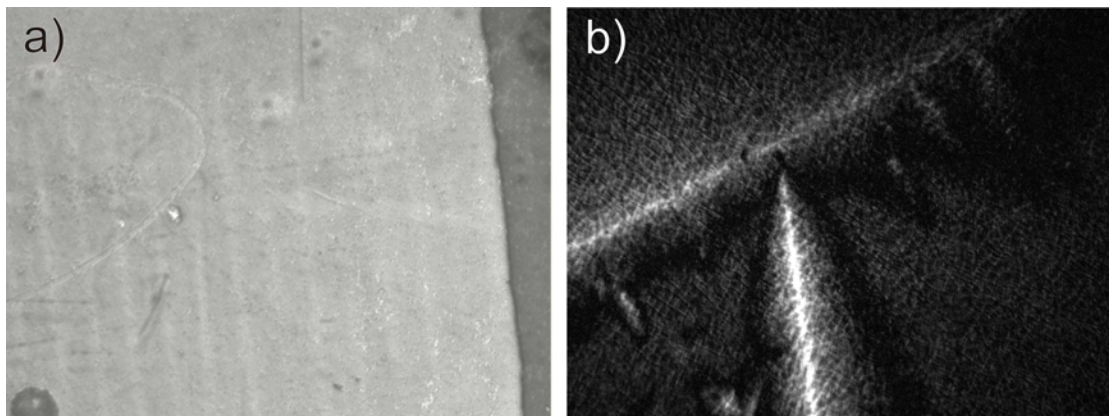
Um eine hohe Sensitivität dieser Sensoren zu erhalten, muss die Magnetisierung der Probe innerhalb der Ebene der dünnen Schicht verlaufen. Durch diese *in-plane* Magnetisierung des Sensors kann der höchstmögliche Kontrast zwischen magnetisierten und unmagnetisierten Bereichen erzielt werden.

Zur Realisierung eines magnetooptischen Sensors wurden zunächst für vorhandene Granatschichten geeignete Verspiegelungsparameter ermittelt. In Abbildung 8.3a sind beispielsweise die magnetisierten Bereiche im Magnetstreifen einer EC-Karte zu sehen. Des Weiteren wurde versucht, das Fluss-Eindringen in einen Supraleiter zu visualisieren (Abb. 8.3b). Die Aufnahmen wurden dabei mit einer Granatschicht auf SiO<sub>2</sub> durchgeführt, die zuvor mit 75 nm Silber bedampft wurde. Die Sensitivität der Sensoren ist hierbei jedoch noch stark zu verbessern.

Um die in-plane-Magnetisierung zu verbessern, wurde versucht die Schichten über die Curie-Temperatur aufzuheizen und sie anschließend im Magnetfeld eines Ringmagneten abzukühlen. Dadurch sollte die Magnetisierung die Richtung des äußeren Feldes einnehmen. Die Granatstruktur und somit auch die Faraday-Drehung blieben dabei aber unverändert.

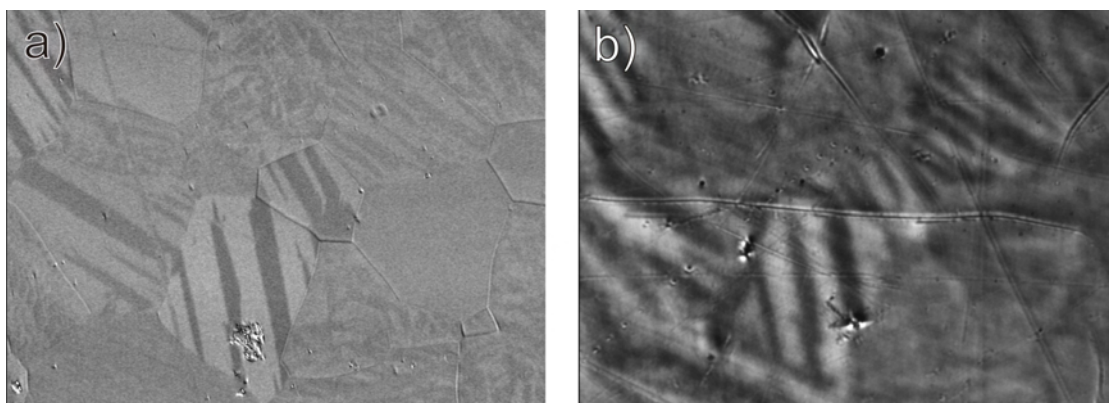
---

<sup>37</sup>durch das Aufheizen und Abkühlen für die Ablation



**Abbildung 8.3:** Magneto-optische Aufnahmen mit einer auf  $\text{SiO}_2$  aufgebrachten Granatschicht. a) Magnetstreifen einer EC-Karte. b) Flusseindringen in einen YBCO-Supraleiter. Die Schichtparameter müssen allerdings noch optimiert werden, um einen besseren Kontrast zu erreichen.

In Abbildung 8.4 sind weitere Ergebnisse zu den Sensorschichten angeführt. Mit Hilfe eines magneto-optischen Sensors sollte versucht werden, Domänenstrukturen einer dünnen Eisenschicht sichtbar zu machen.



**Abbildung 8.4:** a) Aufnahme der Domänenstruktur einer dünnen Eisenschicht mittels Kerr-Mikroskopie mit der Methodik der doppelten Remanenz. b) Aufnahme der gleichen Stelle mit einem magneto-optischen BIG/GGG-Sensor.

In diesem Fall wurden die Domänen der Eisenschicht mittels Kerr-Mikroskopie mit der Methodik der *doppelten Remanenz* sichtbar gemacht (Abb. 8.4a). Mittels einer magneto-optisch aktiven Granatschicht (hier BIG/GGG) konnten diese Domänen ebenfalls visualisiert werden (Abb. 8.4b).

Zusammenfassend ist es für die magneto-optische Sensorik von größter Bedeutung, eine hohe Orts- und Feldauflösung zu realisieren. Entsprechend gilt es möglichst reine, defektfreie Eisengranate herzustellen. Ein weiterer Vorteil ist hierbei, dass eine möglichst 100%ige in-plane Magnetisierung der Schichten vorliegt.

Letztlich können diese Schichten in einen optischen Aufbau integriert werden, um einen eigenständigen und damit ortsungebundenen Sensor zu ermöglichen.





## 9 Zusammenfassung und Ausblick

### Zusammenfassung

Zum Abschluss dieser Arbeit sollen der Inhalt und die wesentlichen Ergebnisse noch einmal kurz rekapituliert werden. Auf Basis der hier erzielten Ergebnisse wird zudem ein Ausblick für zukünftige Tätigkeiten (Arbeiten und Projekte) und mögliche Lösungsansätze gegeben.

Im zweiten Kapitel wurde zunächst der für magnetooptisch aktive Materialien interessante Faraday-Effekt beschrieben. Zur Beschreibung des Effektes wurde davon ausgegangen, dass linear polarisiertes Licht in zwei gegenläufig zirkular polarisierte Teilwellen zerlegt werden kann. Beim Durchgang erfahren diese im magnetooptisch aktiven Material unterschiedlich starke Brechungen, was insgesamt in einer Drehung der Polarisationsrichtung resultiert. Weiter wurde ein Einblick in mögliche Anwendungsmöglichkeiten von magnetooptisch aktiven Granatstrukturen als makroskopische Bauteile, wie z.B. optische Isolatoren oder Sensoren, gegeben und erklärt. Zuletzt wurde die Materialklasse der Seltenerdeisengranate vorgestellt und am Beispiel von Yttrium-Eisengranat die magnetischen, optischen und strukturellen Eigenschaften erläutert. Eine wichtige Rolle spielt dabei die Möglichkeit einer Dotierung.

In Kapitel 3 wurde ein Überblick über die analytischen Verfahren gegeben, die für die Untersuchungen in dieser Arbeit notwendig waren. Dazu wurden Analysemethoden wie RBS, XRD, SEM, ESEM, TEM, AFM, DEKTAK, Photolumineszenz oder ESCA/XPS und der Aufbau zur Messung des Faraday-Effekts vorgestellt. Ein wesentlicher Bestandteil war dabei der im Rahmen dieser Arbeit mitkonzipierte Faraday-Messplatz. Mit diesem Aufbau wurden fast alle deponierten Granatfilme auf ihre Faraday-Drehung und Transmission hin untersucht.

Kapitel 4 gab eine kurze Beschreibung des zur Filmabscheidung verwendeten Verfahrens der gepulsten Laserablation. Auch wurde eine kurze Zusammenfassung über die Theorie und Methodik dieser Depositionsmethode gegeben. Im letzten Abschnitt folgte die Beschreibung des zur Targetherstellung entwickelten Syntheseverfahrens der Sol-Gel-Methode. Dieses Verfahren konnte im Rahmen dieser Arbeit auf die Granatstrukturen übertragen und optimiert werden.

In Kapitel 5 wurde die Deposition und Charakterisierung von Granat-Puffersystemen ausführlich beschrieben. Dabei sollte der Versuch unternommen werden, vollsubstituierten Bismuth-Eisengranat auf Nichtgranatsubstrate zu integrieren. Zur Behebung dieser Problematik wurde systematisch ein stabiles Puffersystem aus Granatmaterial entwickelt. Auf diesem sollte anschließend  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (BIG) erfolgreich abgeschieden werden.

Nach einem ausführlichen Überblick über bereits bekannte Forschungsergebnisse wurde das Wachstum der möglichen Puffersysteme von  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG),  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG) und  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG) studiert. Der Hauptteil der Ergebnisse behandelte dabei die Untersuchungen der YIG-Puffer auf  $\text{SiO}_2$ .

Die systematische Optimierung der Depositionsparameter ergab für alle Puffersysteme

einen Sauerstoffgasdruck im Bereich von  $p_{O_2} = 2-4 \cdot 10^{-2}$  mbar bei einer Substrattemperatur von  $T_{Sub} = 700$  °C als optimale Parameter für die Abscheidung der Puffer auf Nicht-Granat-Substraten. Mit diesen Parametern sowie einer Laserenergiedichte von  $2 \frac{J}{cm^2}$  und einer Laserfrequenz von  $f = 10$  Hz konnten stöchiometrische Schichtübertragungen gewährleistet werden.

Dabei stellte sich heraus, dass sich direkt nach der Abscheidung des Materials auf Si und SiO<sub>2</sub> keine Granat-Struktur ausbildet. Damit war es erforderlich, die Proben nach der Ablation durch einen zusätzlichen Temper-Schritt unter O<sub>2</sub>-Atmosphäre zu behandeln. Die Optimierung der Parameter für diesen ergab eine Temperatur 1050 °C für 30 Minuten, wobei sich nach dem Tempern auf allen Substraten phasenreine polykristalline Granat-Strukturen einstellen. Bei höheren Temperaturen kam es zur Diffusion von Y-Atomen in das Substrat, was durch RBS- und TEM-Analysen bestätigt werden konnte. Durch röntgenographische Analysen wurden die polykristallinen Granat-Phasen auf den verschiedenen Si- und SiO<sub>2</sub>-Substraten nachgewiesen. Filme auf Quarzglas zeigten eine starke Tendenz zur Rissbildung. Verantwortlich hierfür waren die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten. Dabei fiel weiter auf, dass es auf allen Substraten zur Bildung einer Mikrostruktur kommt. Diese unterschiedlich großen Bereiche konnten mittels ESEM und TEM auf unterschiedliche Korn-Orientierungen des polykristallinen Granaten zurückgeführt werden.

Zuletzt wurde auf die verschiedenen Puffer-Systeme Bi<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> abgeschieden. Dabei zeigte sich, dass für die BIG-Deposition eine ca. 10 nm dicke Pufferschicht ausreicht, um diesen erfolgreich darauf abzuschneiden. Dies konnte auf eine geschlossene Flächenbedeckung des Substrates mit YIG zurückgeführt werden. Zwischen den Multilagen konnte keine erkennbare Diffusion nachgewiesen werden. Die kristalline Granatstruktur des BIG wurde mittels XRD und ESEM näher untersucht. Dabei zeigte sich, dass BIG auf den Granat-Puffer aufwächst und die polykristallinen Orientierungen der darunterliegenden Schicht übernimmt. Durch TEM-Untersuchungen konnten die strukturellen Untersuchungen vervollständigt werden. Zuletzt wurden noch die Faraday-Drehungen und die Transmissionen der Multilagen bestimmt. Diese brachten die Erkenntnis, dass die hier erzielten Ergebnisse auf Nicht-Granat-Substraten durchaus mit epitaktisch gewachsenen BIG-Schichten auf GGG-Substraten vergleichbar sind. Es ergaben sich Faraday-Drehungen von über  $30 \frac{^\circ}{\mu m}$  für eine Wellenlänge von 530 nm bei einem Magnetfeld von 150 mT. Mit den durchgeführten Untersuchungen konnte erfolgreich demonstriert werden, dass magnetooptisch aktive Materialien mit einer hohen Faraday-Drehung auf technisch relevante Substrate integrierbar sind. Besonders die verstärkte Aktivität im Infraroten macht dieses Material für die optische Kommunikation, die in diesem Bereich stattfindet, interessant.

In Kapitel 6 wurde zunächst ein Überblick über aktuelle Forschungsergebnisse zu dotierten Granaten gegeben. Im Anschluss daran erfolgte eine Zusammenfassung der in dieser Arbeit durchgeführten Studien zur Dotierung von Eisengranaten mit Bismuth, Neodym, Praseodym, Lanthan, Cer und Erbium. Hierbei wurde besonders auf die Auswirkungen der Substitutionen auf strukturelle und optische Änderungen eingegangen.

Die dotierten Granatfilme wurden alle auf ein möglichst stöchiometrisches und epitaktisches Wachstum hin optimiert. Für alle Substituenten ergaben sich dabei annähernd die gleichen Aufwuchsbedingungen. Diese lagen bei Substrattemperaturen im Bereich von 530 °C–620 °C bei einem Sauerstoffgasdruck von  $3 \cdot 10^{-2}$  mbar. Hierbei bildeten sich epitaktische Filme auf den (100)GGG-Substraten aus, die eine glatte Oberflächenstruktur aufwiesen. Bei allen Proben konnte eine Abnahme der Faraday-Drehung mit steigendem

Dotierungsgrad  $x$  beobachten werden. Dabei verschoben sich sowohl das Maximum der Faraday-Drehung als auch die Lage der Absorptionskante zu kürzeren Wellenlängen hin. Dadurch nahm das Transmissionsvermögen für diese Wellenlänge der maximalen FR zu. Dieses Phänomen wurde auf die Absorptionskante des Bismutheisengranaten im sichtbaren Spektrum zurückgeführt.

Polykristalline Strukturen, die exemplarisch auf  $\text{SiO}_2$ -Substraten abgeschieden wurden, konnten erst nach einem zusätzlichen Tempersschritt, ähnlich wie bei den Pufferschichten, hergestellt werden. Die Schichten wurden jeweils auf ihre Kristallinität, Stöchiometrie, sowie Oberflächenbeschaffenheit hin überprüft.

Die Ce-dotierten Eisengranat-Filme mussten hingegen unter anderen Bedingungen deponiert werden. Dazu wurden die Schichten unter einer  $\text{N}_2$ -Atmosphäre abgeschieden, um die Bildung von  $\text{Ce}^{4+}$ -Ionen zu verhindern. Anschließend erfolgte die Abkühlung der Proben unter  $\text{O}_2$ -Atmosphäre. Die optischen Eigenschaften konnten mit denen von Ce-dotiertem YIG verglichen werden und zeichneten sich durch eine positive Faraday-Drehung bei 450 nm, 700 nm und im infraroten Wellenlängenbereich aus. Die Ce-Dotierung von BIG erwies sich als problematisch, da unter einer  $\text{N}_2$ -Atmosphäre keine Bi-Phasen hergestellt werden konnten. Auf der anderen Seite entstanden unter Verwendung einer  $\text{O}_2$ -Atmosphäre Cer-Ionen mit einer falschen Oxidationsstufe.

Des Weiteren wurden an Er-dotierten YIG-, YAG- und BIG-Granatschichten Strukturierungen und Photolumineszenzmessungen im Hinblick auf die Verwendung in der integrierten Optik durchgeführt. Um den Einsatz dieser Schichten für derartige Bauteile zu ermöglichen, konnten mit der Femtosekundenlaserstrukturierung ein schnelles und sauberes Verfahren zur Strukturierung von dünnen Schichten gefunden werden. Für alle drei Schichtsysteme, vor allem auch die auf  $\text{SiO}_2$  deponierten Proben, konnte Photolumineszenz bei ca. 1550 nm nachgewiesen werden. Dieser Wellenlängenbereich eignet sich besonders gut zur Verwendung in Glasfasertechnologien, da die Fasern hier ein Absorptionsminimum besitzen.

Um die in dieser Arbeit hergestellten Granatstrukturen besser verstehen zu können, wurde in Kapitel 7 eine Simulation der Faraday-Drehung von Dünnschichtsystemen angestrebt. Mit Hilfe der Simulation konnten vor allem die YIG-Puffersysteme erklärt werden.

Dazu erfolgte zuerst die Erarbeitung der zur Simulation notwendigen theoretischen Grundlagen. Es wurden die unterschiedlichen Typen und Darstellungen von polarisiertem Licht gezeigt. Zur Veranschaulichung und Modellierung von Polarisationszuständen einer Lichtwelle wurde auf die *Jones-Darstellung* zurückgegriffen. Mit Hilfe dieser konnten optische Systeme, welche die Polarisation beeinflussen, sehr einfach durch Matrizen beschrieben werden. Die phänomenologische Beschreibung des Faraday-Effekts erfolgte auf Grundlage der Maxwell-Gleichungen in Materie, wobei die Schlüsselgröße für die magnetooptischen Eigenschaften der Dielektrizitätstensor darstellte. Anschließend wurden die zur Simulation verwendeten Transfer-Matrix-Formalismen von Yeh beschrieben. Aus diesen konnten Rückschlüsse auf die Transmission, Faraday-Rotation und Absorption des Schichtsystems gezogen werden.

Die getroffenen Modellannahmen wurden im Anschluss daran in einer Simulation der Faraday-Drehung von Schichtsystemen umgesetzt. Mit Hilfe dieser Simulation konnten die substratabhängigen oszillatorischen Effekte bzw. Interferenzerscheinungen erklärt werden.

Zur Erklärung der Oszillationen wurde hauptsächlich die Spannungsdoppelbrechung herangezogen, die unter mechanischer Belastung auftrat. Das Erklärungsmodell basierte auf

der durch den Herstellungsprozess bedingten Veränderung der Grenzfläche zwischen Puffer und Substrat. Dieses Modell wurde durch eine Herleitung der Magnetfeldabhängigkeit und Einflussnahme der Kristallorientierung, sowie einer Abhängigkeit von der mechanischen Spannung vervollständigt. Der Vergleich der gemessenen Faraday-Spektren mit den angefertigten Simulationsergebnissen zeigte, dass das entwickelte Gesamtmodell eine konsistente Erklärung für die beobachteten, außergewöhnlichen Effekte des oszillatorischen Verhaltens lieferte. Mit Hilfe des entwickelten Programms ist es darüber hinaus möglich, verschiedene Granatsysteme auf anderen Substraten und Multilagensysteme zu modellieren. Durch geschickte Wahl der Schichtdicken in Multilagen könnten dadurch spezifische Maxima und Minima in den Faraday-Spektren erzielt werden.

Eine zweite Simulation lieferte aus den Transmissions-Spektren die Brechungsindizes der abgeschiedenen Proben.

Kapitel 8 gab zuletzt eine Zusammenfassung weiterer interessanter Studien. Es wurde die Herstellung kombinatorischer Multilagensysteme unterschiedlicher Granatstrukturen beschrieben. Durch dieses Verfahren konnte gezeigt werden, dass ein Materialscreening von Granatdoppellagen mit Hilfe der Kombinatorik effektiv durchgeführt werden konnte. Durch die in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse und entwickelten Simulationen kann in Zukunft ein Multilagensystem aus unterschiedlich substituierten Granatlagen vorab simuliert werden.

Des Weiteren wurden alternative Möglichkeiten zur Kristallisation der Pufferschichten vorgestellt. Hier stand im Vordergrund, der YIG-Pufferschicht eine bestimmte kristalline Vorzugsrichtung zu geben. Wie diese Ergebnisse zeigten, bedarf es allerdings noch weiterer Untersuchungen hierzu. Die Untersuchungen zum Einfluss von akustischen Oberflächenwellen auf den Faraday-Effekt scheiterten bereits an der Integration des zur Abscheidung von BIG notwendigen Puffers. Erfreulicherweise konnten zuletzt erste magneto-optische Sensorschichten erfolgreich umgesetzt werden.

## Ausblick

Eine andere Möglichkeit die Faraday-Drehung auf Quarzglas-Substraten deutlich zu erhöhen, ist der Aufbau eines *magneto-photonischen Kristalls*. Bei einem solchen findet eine vielfache Reflexion des Lichtstrahls durch eine Faraday-aktive Schicht statt. In dieser wird mit jedem Durchgang des Lichtes die Faraday-Drehung aufaddiert. Der magneto-photonische Kristall besteht aus einer Zentralschicht, z.B.  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (BIG) und zwei Paketen aus Multilagen von BIG und  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG). Transmittiert Licht durch den Kristall, so erfolgt in der Zentralschicht die Faraday Drehung. Bei geschickter Wahl der Dicke der einzelnen Multilagen kommt es wie in einem Braggreflektor zu einer Rückreflexion des Lichtes, so dass dieses erneut durch die Zentralschicht transmittiert und eine weitere Faraday Drehung erfährt. Auf diese Weise ist auch bei dünnen Filmen eine hohe Faraday Drehung senkrecht zur Oberfläche der Quarzglas erreichtbar, d.h. ein integrierter optischer Isolator realisierbar.

Wie bereits beschreiben wurde, ist das große Ziel der integrierten Optik die Vereinigung der Einzelkomponenten auf nur einem einzigen Chip. Eine besondere Herausforderung stellt hierbei die Kombination der unterschiedlichen Materialklassen der Bauteile dar. So können z.B. Lichtquellen aus Halbleiterbauteilen oder Modulatoren bzw. Isolatoren mit Hilfe von Granatmaterialien verwirklicht werden. Ein absolut neues Forschungsgebiet sind dabei die *Organischen Leuchtdioden (OLEDs)*. Diese stellen eine potentielle Alternative zu den Lichtquellen dar. Sie sind unempfindlich bzgl. der strukturellen Randbedingungen, da sie kein epitaktisches Wachstum erfordern. Deshalb erscheint eine Kombination mit Granatmaterialien recht unproblematisch. In einer aktuellen Forschungsarbeit wird versucht, eine OLED als Lichtquelle mit einem Bismuth-Eisengranaten als Wellenleiter bzw. optischen Modulator auf einem Substrat umzusetzen. Der Aufbau einer OLED ist in Abb. 9.1 skizziert.



Abbildung 9.1: Schematischer Aufbau einer OLED.

Die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse können dabei wesentlich zur Realisierung dieses Bauteils beitragen.



## Literaturverzeichnis

- [1] FARADAY, M.: *On the magnetization of light and the illumination of magnetic lines of force*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Vol. 136 (1), 1846.
- [2] BOLZ, U.: *Dissertation: Magnetooptische Untersuchungen der Flusssdynamik in  $YBa_2Cu_3O_{7-d}$ -Filmen auf ultrakurzen Zeitskalen*. Universität Konstanz, 2002.
- [3] LEITENMEIER, S.: *Dissertation: Zum Wachstum von Magnetooptischen Bismutdotierten Seltenerdeisengranatfilmen*. Universität Augsburg, März 2007.
- [4] HEINRICH, A.: *Habilitation: Magnetooptische Materialien und magnetooptische Untersuchungen an Supraleitern*. Universität Augsburg, März 2006.
- [5] SHINAGAWA, K.: Faraday and Kerr Effects in Ferromagnets in S. Sugano, N. Kojima (Eds.), *Magneto-Optics*. Springer, Berlin, 2000, ISBN 3-540-65961-7.
- [6] BORN, M.: *Optik*. Springer, Berlin, 2006, ISBN-10: 354022131X.
- [7] HUARD, S.: *Polarization of Light*. John Wiley and Sons, Chichester, U.K., 1997.
- [8] DÖTSCH, H., N. BAHLMANN, O. ZHUROMSKYY, M. HAMMER, L. WILKENS, R. GERHARDT, P.J. HERTEL und A.F. POPKOV: *Applications of magneto-optical waveguides in integrated optics: review*. J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 22 (1), 240–253, 2005.
- [9] ZVEZDIN, A.K. und V.A. KOTOV: *Modern Magnetooptics and Magneto-optical Materials*. Institute of Physics Publishing, Bristol, 1997, ISBN 0-7503-0362-X.
- [10] DILLON, J.F.: *Physics of Magnetic Garnets*. Proceedings of the international school of physics Enrico Fermi, edited by A. Paoletti, North Holland Publishing, 1978.
- [11] WINKLER, G.: *Magnetic Garnets*. Vieweg und Sohn Verlagsgesellschaft, Braunschweig, 1981.
- [12] CHERN, M. und J. LIAW: *Study of  $Bi_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  thin films grown by Pulsed Laser Deposition*. Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 36 (3A), 1049–1053, 1997.
- [13] FRATELLO, V.J., S.J. LICHT, C.D. BRANDLE, H.M. O'BRYAN und F.A. BAIOCCHI: *Effect of bismuth doping on thermal expansion and misfit dislocations in epitaxial iron garnets*. J. Crys. Growth, Vol. 142 (1–2), S. 93–102.
- [14] HERBORT, M.: *Diplomarbeit:  $Bi_3Fe_5O_{12}$  – Herstellung mittels Laserablation und Charakterisierung*. Universität Augsburg, 2007.
- [15] LEITENMEIER, S., A. HEINRICH, J. K. N. LINDNER und B. STRITZKER: *Growth of epitaxial bismuth and gallium substituted lutetium iron garnet films by pulsed laser deposition*. J. Appl. Phys. 99, 08M704, 2006.
- [16] LUX, R., A. HEINRICH, S. LEITENMEIER, T. KÖRNER, M. HERBORT und B. STRITZKER: *Pulsed-laser deposition and growth studies of  $Bi_3Fe_5O_{12}$  thin films*. J. Appl. Phys. Vol. 100, 113511, 1. Dezember, 2006.

- [17] HEINRICH, A., T. KÖRNER, J. SIMON, W. MADER, M. KNOLL, A. KALYTТА, S. HORN und B. STRITZKER: *Double-Layered Polycrystalline Iron Garnet Structure of  $Bi_3Fe_5O_{12}$  and  $Y_3Fe_5O_{12}$  grown on  $SiO_2$  substrates by pulsed laser deposition*. J. Mag. Soc. Jap. Vol. 32 (2-2), 130–134, 2008.
- [18] CHU, W.K., J.W. MAYER und M.-A. NICOLET: *Backscattering Spectrometry*. Academic Press, New York, 1978, ISBN 0-12-173850-7.
- [19] SCHREIBER, S.: *Dissertation: Untersuchungen zum epitaktischen Wachstum von 3C-SiC bei Verwendung einer  $C_{60}$ -Kohlenstoffquelle*. Universität Augsburg, 2006.
- [20] ZIEGLER, J.F., J.P. BIERSACK und U. LITTMARK: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press, New York, 1985, ISBN 0-08-021603-X.
- [21] FELDMAN, L.C. und J.W. MAYER: *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*. North-Holland, Elsevier, New York, 1986, ISBN 0-444-00989-2.
- [22] DOOLITTLE, L.R.: *Algorithms for the rapid simulation of Rutherford backscattering spectra*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, Vol. 9 (3), 344–351, 1985.
- [23] DOOLITTLE, L.R.: *A semiautomatic algorithm for rutherford backscattering analysis*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, Vol. 15 (1–6), 227–231, 1986.
- [24] MAYER, M.: *SIMNRA User's Guide*. Report IPP 9/113, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, 1997.
- [25] MAYER, M.: *SIMNRA User's Guide 6.0*. Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, 2006.
- [26] MAYER, M.: *SIMNRA, a Simulation Program for the Analysis of NRA, RBS and ERDA*. Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, J. L. Duggan and I. L. Morgan (eds.), American Institute of Physics Conference Proceedings 475, p. 541, 1999.
- [27] ECKSTEIN, W. und M. MAYER: *Rutherford backscattering from layered structures beyond the single scattering model*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, Vol. 153 (1–4), 337–344, 1999.
- [28] MAYER, M.: *Ion beam analysis of rough thin films*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, Vol. 194, 177–186, 2002.
- [29] MAYER, M., K. ARSTILA, K. NORDLUND, E. EDELMANN und J. KEINONEN: *Multiple scattering of MeV ions: Comparison between the analytical theory and Monte-Carlo and molecular dynamics simulations*. Nucl. Instr. Meth., Vol. 249 (1-2), 823–827, 2006.
- [30] TESMER, J.R., M. NASTASI (EDS.), J.A. LEAVITT, L.C. MCINTYRE JR. und M.R. WELLER: *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*, Chapter 4: Backscattering Spectrometry. Materials Research Society, Pittsburgh, 1995, ISBN 1-55899-254-5.
- [31] STRITZKER, B.: *Materialanalyse mit Ionenstrahlen, Dünne Schichten und Schichtsysteme, Vorlesungsmanuskript des 17. IFF-Ferienkurses*. Kernforschungsanlage Jülich, Jülich, 1986.
- [32] GOLDFUSS, J.: *Dissertation: Herstellung und Modifizierung heteroepitaktischer Oxidschichten auf Si*. Universität Augsburg, 2005.
- [33] SPIESS, L. und W. BEHNKEN: *Moderne Röntgenbeugung*. Teubner, 2005, ISBN-10: 3519005220.



- [34] WILL, G.: *Powder X-Ray Diffraction*. Springer, Berlin, 2006, ISBN: 3-540-27986-7.
- [35] JAMES, R.W.: *The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays*. Oxbow Press, 1982, ISBN-10: 0918024234.
- [36] FRIEDRICH, W., P. KNIPPING und M. LAUE: *Interferenzerscheinungen bei Röntgenstrahlen*. Annalen der Physik, Vol. 41, 971–988, 1913.
- [37] KOPITZKI, K.: *Einführung in die Festkörperphysik*. Teubner-Studienbücher, Stuttgart, 1993, 3. Auflage, ISBN 3-519-23083-6.
- [38] KITTEL, C.: *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag, München, 1999, 12. Auflage, ISBN: 3-486-23843-4.
- [39] KITTEL, C.: *Introduction to Solid State Physics (Seventh Edition)*. John Wiley and Sons, Inc., 1995, ISBN-10: 0471111813.
- [40] BRAGG, W. H. und W. L. BRAGG: *The reflection of X-rays by crystals*. Proceedings of the Physical Society London A, Vol. 88, 428–438, 1913.
- [41] KLUG, H.P. und L.E. ALEXANDER: *X-Ray Diffraction Procedures: For Polycrystalline and Amorphous Materials*. 2<sup>nd</sup> Edition, John Wiley & Sons, New York, 1974, ISBN 0-471-49369-4.
- [42] CULLITY, B.D. und S.R. STOCK: *Elements of X-Ray Diffraction*. Addison-Wesley, London, Amsterdam, 1978, ISBN-10: 0-201-01174-3.
- [43] EBERHART, J.P.: *Structural and Chemical Analysis of Materials*. John Wiley & Sons, Chichester, 1991, ISBN-10: 0-471-92977-8.
- [44] BRAGG, W.H.: *Application of the Ionisation Spectrometer to the Determination of the Structure of Minute Crystals*. Proceedings of the Physical Society London; Vol. 33, 222–224, 1921.
- [45] BRENTANO, J.C.M.: *An X-ray goniometer using beams of large aperture for photographically recording crystal-powder reflections*. Proceedings of the Physical Society London, Vol. 49, 61–77, 1937.
- [46] SCHWEITZER, D.: *Diplomarbeit: Röntgenographische Untersuchungen zur Struktur von laserablattierten  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Schichten*. Universität Augsburg, 1995.
- [47] SEEMANN, H.: *Eine fokussierende röntgenspektroskopische Anordnung für Kristallpulver*. Annalen der Physik, Volume 59, 455–464, 1919.
- [48] BOHLIN, H.: *Eine neue Anordnung für röntgenkristallographische Untersuchungen von Kristallpulver*. Annalen der Physik, Volume 61, 455–464, 1920.
- [49] HIRSCH, P., A. HOWIE, R. NICHOLSON, D.W. PASHLEY und M. J. WHELAN: *Electron Microscopy of Thin Crystals*. Malabas, Florida, 1977.
- [50] POWDER DIFFRACTION STANDARDS, JOINT COMMITTEE ON: *Powder Diffraction File*. International Centre of Diffraction Data, Swarthmore, PA., 2001.
- [51] REIMER, L.: *Scanning Electron Microscopy*. Springer, 1985, ISBN: 3-540-13530-8.
- [52] REIMER, L.: *Transmission Electron Microscopy*. Springer Verlag, 1998, ISBN: 3540639764.
- [53] FULTZ, B. und J.M. HOWE: *Transmission Electron Microscopy and Diffractometry of Materials*. Springer Verlag, Berlin, 2001, ISBN 3-540-67841-7.

- [54] ALEXANDER, H.: *Physikalische Grundlagen der Elektronenmikroskopie*. Teubner Verlag, Stuttgart, 1997, ISBN 3-519-03221-X.
- [55] SCHMIDT, P.F.: *Praxis der Rasterelektronenmikroskopie und Mikrobereichsanalyse*. expert-Verlag: Remingen, 1994.
- [56] AL., JOY ET: *Electron Channeling Pattern in the Scanning Electron Microscope*. J. Appl. Phys., Volume 53 (439–461), 1982.
- [57] REIMER, L. und G. PFEFFERKORN: *Rasterelektronenmikroskopie*. Springer, 1977.
- [58] REIMER, L.: *Elektronenmikroskopische Untersuchungs- und Präparationsmethoden*. Springer, 1967, ISBN-10: 3540639764.
- [59] WENK, H.R.: *Electron Microscopy in Mineralogy*. Springer Verlag, 1976.
- [60] FEI, FIRMA: *Bedienungsanleitung - XL30 ESEM FEG Operating Instructions*. Firma Fei, 1999.
- [61] SIMON, J.: *Diplomarbeit: Abbildende und spektroskopische Untersuchung oxidischer Dünnschichtsysteme im Transmissionselektronenmikroskop*. Universität Bonn, 2002.
- [62] BINNIG, G., C.F. QUATE und C. GERBER: *Atomic Force Microscope*. Physical Review Letters, Volume 56 (9), 930–934, 1986.
- [63] GIESSIBL, F.J., H. BIELEFELDT, S. HEMBACHER und J. MANNHART: *Imaging of atomic orbitals with the Atomic Force Microscope - experiments and simulations*. Annalen der Physik, Volume 10 (11–12), 887–910, 2001.
- [64] GSELL, S.: *Diplomarbeit: Untersuchung der Keimbildungsmechanismen bei der chemischen Gasphasenabscheidung epitaktischer Diamantschichten auf Iridium-Pufferschichten*. Universität Augsburg, 2003.
- [65] *User's Guide to Autoprobe CP, Part II*. Park Scientific Instruments, 1998.
- [66] GIESSIBL, F.J.: *Principle of NC-AFM in S. Morita, R. Wiesendanger, E. Meyer: Noncontact Atomic Force Microscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 2002.
- [67] EINSTEIN, A.: *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*. Ann. Phys. 17, 132 bzw. Vol. 14 (S1), 164–181, 1905/2005.
- [68] WEISS, W. und W. RANKE: *Surface chemistry and catalysis on well-defined epitaxial iron-oxide layers*. Progress in Surface Science, Vol. 70 (1–3), 1–151, 2002.
- [69] (ED.), D. BASTING: *Excimer Laser Technology: laser sources, optics, systems and applications*. Lambda Physik AG, Göttingen, 2001, 1<sup>st</sup> Edition, ISBN 3-00-006395-1.
- [70] BLANK, D.H.A., R.P.J. IJSSELSTEIJN, P.G. OUT, H.J.H. KUIPER, J. FLOKSTRA und H. ROGALLA: *High  $T_c$  thin films prepared by laser ablation: material distribution and droplet problem*. Materials Science and Engineering, Vol. B13 (1), 67–74, 1992.
- [71] VENKATESAN, T. und S.M. GREEN: *Pulsed Laser Deposition: Thin Films in a Flash*. The Industrial Physicist, Vol. 2 (3), 22–24, 1996.
- [72] CHRISEY, D.B. und G.K. HUBLER: *Pulsed laser deposition of thin films*. John Wiley & Sons, New York, 1994, ISBN: 0-471-59218-8.

- [73] GUSAROV, A.V. und I. SMUROV: *Thermal model of nanosecond pulsed laser ablation: Analysis of energy and mass transfer*. J. Appl. Phys., Vol. 97, 014307, 2005.
- [74] BIEGEL, W., R. KLARMANN, B. STRITZKER, B. SCHEY und M. KUHN: *Pulsed laser deposition and characterization of perovskite thin films on various substrates*. Appl. Surf. Sci., Vol. 168, 227–233, 2000.
- [75] MILLER, J.C.: *Laser Ablation: Principles and Applications*. Springer-Verlag, Berlin, 1994, ISBN 3-540-57571-5.
- [76] KÖRNER, T.: *Diplomarbeit: Laserablation von Carbiden*. Universität Augsburg, 2004.
- [77] KONUMA, M.: *Film Deposition by Plasma Techniques*. Springer, Berlin, 1992.
- [78] DREYFUSS, R.W., R. KELLY und R.E. WALKUP: *Laser-induced fluorescence study of laser sputtering of graphite*. Nucl. Instrum. Meth., Vol. B23 (4), 557–561, 1987.
- [79] WIEN, K.: *Fast heavy ion induced desorption of insulators*. Nucl. Instrum. Meth., Vol. B65 (1-4), 149–166, 1992.
- [80] DAVANLOO, F., E.M. JUENGERMAN, D.R. JANDER, T.J. LEE, C.B. COLLINS und E. MATTHIAS: *Mass Flow in Laser-Plasma Deposition of Carbon Under Oblique Angles of Incidence*. Appl. Phys. A, Vol. 54, 369–372, 1992.
- [81] KELLY, R. und R.W. DREYFUS: *Reconsidering the mechanisms of laser sputtering with knudsen-layer formation taken into account*. Nucl. Instrum. Meth., Vol. B32, 341–348, 1988.
- [82] SAENGER, K.L.: *Angular Distribution of Ablated Material in [72]*. Wiley-Interscience, New York, 1994.
- [83] KELLY, R.: *On the dual role of the Knudsen layer and unsteady, adiabatic expansion in pulse sputtering phenomena*. The Journal of Chemical Physics, Vol. 92 (8), 5047–5056, 1990.
- [84] OHRING, M.: *The Materials Science of Thin Films*. Academic Press, San Diego, 1992, ISBN 0-12-524990-X.
- [85] GREENE, J.: *In O. Auciello und J. Engemann (Hrsg.), Multicomponent and Multilayered Thin Films for Advanced Microtechnologies, NATO/ASI Series E, Vol. 234, S. 39*. Springer, 1993.
- [86] CASTRO-RODRIGUEZ, R., D. REYES CORONADO, A. IRIBARREN, B.E. WATTS, F. LECCABUE und J.L. PENA: *Correlation between target substrate distance and oxygen pressure in pulsed laser deposition of complex oxide thin films*. Appl. Phys. A Vol. A81, 1503–1507, 2001.
- [87] RENNER, B.: *Dissertation: Struktur - Eigenschaft - Beziehungen im perowskitartigen Kupfertantalat  $Cu_2Ta_4O_{12}$* . Universität Augsburg, 2003.
- [88] NASSAR, E.J., L.R. AVILA, P.F.S. PEREIRA, C. MELLO, O.J. DE LIMA, K.J. CIUFFI und L.D. CARLOS: *Eu(III) incorporation in sol-gel aluminium-yttrium matrix by non-hydrolytic route*. 2005.
- [89] SCHUBERT, U. und N. HÜSING: *Synthesis of Inorganic Materials (Second, Revised and Updated Edition)*. Wiley, 2004, ISBN: 978-3-527-31037-1.
- [90] KUMAR, N., D.S. MISRA, N. VENKATARAMANI, S. PRASAD und R. KRISHNAN: *Magnetic properties of pulsed laser ablated YIG thin films on different substrates*. J. of Magnet. and Magn. Materials, Vol. 272–276, Supplement 1, e899–e900, 2004.

- [91] BOUDIAR, T., B. PAYET-GERVY, M.-F. BLANC-MIGNON, J.-J. ROUSSEAU, M. LE BERRE und H. JOISTEN: *Magneto-optical properties of yttrium iron garnet (YIG) thin films elaborated by radio frequency sputtering*. J. of Magnet. and Magn. Materials, Vol. 284, 77–85, 2004.
- [92] KAHL, S. und A.M. GRISHIN: *Evolution of properties of epitaxial bismuth iron garnet films with increasing thickness*. J. of Magnet. and Magn. Materials, Vol. 278 (1–2), 244–255, 2004.
- [93] GRIVAS, C., T.C. MAY-SMITH, D.P. SHEPHERD und R.W. EASON: *On the growth and lasing characteristics of thick Nd:GGG waveguiding films fabricated by pulsed laser deposition*. Appl. Phys. A, Vol. 79 (4–6), 1203–1206, 2004.
- [94] GILL, D.S., A.A. ANDERSON, R.W. EASON, T.J. WARBURTON und D.P. SHEPHERD: *Laser operation of an Nd : Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> thin-film optical waveguide fabricated by pulsed laser deposition*. Appl. Phys. Lett., Vol. 69 (1), 10–12, 1996.
- [95] LANCOK, J., C. GARAPON, M. JELINEK, J. MUGNIER und R. BRENIER: *Optical and structural properties of Pr:GGG crystalline thin film waveguides grown by pulsed-laser deposition*. Appl. Phys. A, Vol. 81 (7), 1477–1483, 2005.
- [96] FUKAYA, S., T. HASEGAWA, Y. ISHIDA, T. SHIMODA und M. OBARA: *Fabrication of Nd<sup>3+</sup>, Cr<sup>4+</sup> co-doped GGG thin film waveguide by two-target pulsed laser deposition*. Appl. Surf. Sc., Vol. 177 (3), 147–151, 2001.
- [97] CHEN, X., T. NGUYEN, Q. LUU und B. DI BARTOLO: *Concentration dependence of visible up-conversion luminescence in the laser crystal Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> doped with erbium*. Journal of Luminescence, Vol. 85 (4), 295–299, 2000.
- [98] KATEILNIKOVAS, A., J. BARKAUSKAS, F. IVANAUSKAS, A. BEGANSKIENE und A. KAREIVA: *Aqueous sol-gel synthesis route for the preparation of YAG: Evaluation of sol-gel process by mathematical regression model*. J. Sol-Gel. Sci. Techn., Vol. 41 (3), 193, 2006.
- [99] CABANAS, A., J. LI, P. BLOOD, T. CHUDOBA, W. LOJKOWSKI, M. POLIAKOFF und E. LESTER: *Synthesis of nanoparticulate yttrium aluminum garnet in supercritical water ethanol mixtures*. J. of Supercritical Fluids, Vol. 40 (2), 284–292, 2006.
- [100] AIZAWA, H., T. KATSUMATA, S. KOMURO, T. MORIKAWA, H. ISHIZAWA und E. TOBA: *Fluorescence thermometer based on the photoluminescence intensity ratio in Tb doped phosphor materials*. Sensors and Actuators A (1), Vol. 126 (1), 78–82, 2006.
- [101] AIZAWA, H., T. KATSUMATA, Y. KIYOKAWA, T. NISHIKAWA, T. SASAGAWA, S. KOMURO, T. MORIKAWA, H. ISHIZAWA und E. TOBA: *Evaluation of Cr-doped yttrium aluminum garnet crystals for hybrid fiber-optic thermometer application*. Measurement, Vol. 39 (2), 147–152, 2006.
- [102] DENG, Y., Y.F. GUAN und P.D. RACK: *Combinatorial synthesis and sputter parameter optimization of chromium-doped yttrium aluminum garnet photoluminescent thin films*. Thin Solid Films, Vol. 515 (4), 1721–1726, 2006.
- [103] CHINIE, A.-M., A. STEFAN, S. GEORGESCU, O. TOMA, ELENA BORCA und M. BERCU: *Structural and spectroscopical characterization of RE<sup>3+</sup> (RE = Er, Eu, Tb) doped nanocrystalline YAG produced by a sol-gel method*. J. Optoelectronics and adv. Materials, Vol. 8 (1), 95–98, 2006.

- [104] XU, H. und Z. JIANG: *Ultraviolet and violet upconversion luminescence in Er<sup>3+</sup>-doped yttrium aluminum garnet crystals*. Phys. Rev. B, Vol. 66, 035103, 2002.
- [105] YANG, J.H. und Y. XU: *A study of the Faraday effect in yttrium aluminium garnets doped with cerium*. Zeitschrift für Physik B Condensed Matter, Vol. 101 (1), 23–28, 2004.
- [106] WANG, C.-C. und W.-T. YU: *Synthesis of yttrium iron garnet using polymer-metal chelate precursor*. J. Colloid and Interface Science, Vol. 306 (2), 241–247, 2007.
- [107] AL., H.-J. JANG ET: *The effect of SrTiO<sub>3</sub> addition on the magnetic and microwave properties of yttrium iron garnet*. J. Mater. Sci., Vol. 42 (2), 714–717, 2007.
- [108] POPOVA, E., N. KELLER, F. GENDRON und M. GUYOT: *Structure and magnetic properties of yttrium-iron-garnet thin films prepared by laser deposition*. J. Appl. Phys., Vol. 90 (3), 1422–1428, 2001.
- [109] SUNG, S.-Y., X. QI und B.J.H. STADLER: *Integrating yttrium iron garnet onto nongarnet substrates with faster deposition rates and high reliability*. Appl. Phys. Lett., Vol. 87 (12), 121111, 2005.
- [110] MAO, T.-C. und J.-C. CHEN: *Influence of the addition of CeO<sub>2</sub> on the microstructure and the magnetic properties of yttrium iron garnet ceramic*. J. Magnet. Magn. Mat., Vol. 302 (1), 74–81, 2006.
- [111] CHENG, Z., H. YANG, L. YU, Y. CUI und S. FENG: *Preparation and magnetic properties of Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> nanoparticles doped with the gadolinium oxide*. J. Magnet. Magn. Mat., Vol. 302 (1), 259–262, 2006.
- [112] CHENG, Z., H. YANG, Y. CUI, L. YU, X. ZHAO und S. FENG: *Synthesis and magnetic properties of Y<sub>3-x</sub>Dy<sub>x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> nanoparticles*. J. Magnet. Magn. Mat., Vol. 308 (1), 5–9, 2007.
- [113] NISTOR, I., C. HOLTHAUS, I.D. MAYERGOYZ und C. KRAFFT: *Development of liquid phase epitaxy-grown (Bi, Gd, Lu)-substituted thin-film iron garnets*. J. Appl. Phys., Vol. 99, 08M702, 2006.
- [114] DONG, B., Y. CUI, H. YANG, L. YU, W. JIN und S. FENG: *The preparation and magnetic properties of Gd<sub>x</sub>BiY<sub>2-x</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> nanoparticles*. Materials Lett., Vol. 60 (17–18), 2094–2097, 2006.
- [115] GOMI, M., T. TANIDA und M. ABE: *rf sputtering of highly Bi-substituted garnet films on glass substrates for magneto-optic memory*. J. Appl. Phys., Vol. 57 (8), 3888–3890, 1995.
- [116] MATSUMOTO, K., S. YAMAMOTO, Y. YAMANOBÉ, A. UENO, K. YAMAGUCHI und T. FUJII: *Preparation of Polycrystalline Bismuth and Aluminum Substituted Yttrium-Iron Garnet Films by Repetitive Gel Coating on Glass Substrates*. Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 30 (8), 1696–1700, 1991.
- [117] KOMURO, E., T. HIRANO, T. NAMIKAWA und Y. YAMAZAKI: *Nonstoichiometric Properties of Bi-Substituted Yttrium Iron Garnet Sputtered Films*. Jap. J. Appl. Phys., Vol. 33 (7A), 3902–3906, 1994.
- [118] LE, T.M., F. HUANG, D.D. STANCIL und D.N. LAMBETH: *Bismuth substituted iron garnet thin films deposited on silicon by laser ablation*. J. Appl. Phys., Vol. 77 ( ), 2128–.

- [119] REHSPRINGER, J.L., J. BURSIK, D. NIZNANSKY und A. KLARIKOVA: *Characterisation of bismuth-doped yttrium iron garnet layers prepared by sol-gel process*. J. Magn. and Magn. Mat., Vol. 211 (1–3), 291–295, 2000.
- [120] AICHELE, T., A. LORENZ, R. HERGT und P. GÖMERT: *Garnet layers prepared by liquid phase epitaxy for microwave and magneto-optical applications - a review*. Crysts. Res. Technol., Vol. 38 (7–8), 575–587, 2003.
- [121] HUANG, M. und Z.-C. XU: *Wavelength and temperature characteristics of BiYbIG film/YIG crystal composite structure for magneto-optical applications*. Applied Physics A, Vol. 81 (1), 193–196, 2004.
- [122] LAULAJAINEN, M., P. PATURI, J. RAITTILA, H. HUHTINEN, A.B. ABRAHAMSEN, N.H. ANDERSEN und R. LAIHO: *BixY3-xFe5O12 thin films prepared by laser ablation for magneto-optical imaging of superconducting thin films*. J. of Magnet. and Magn. Materials, Vol. 279 (2–3), 218–223, 2004.
- [123] TEPPER, T. und C.A. ROSS: *Pulsed laser deposition and refractive index measurement of fully substituted bismuth iron garnet films*. J. of Crystal Growth, Vol. 255 (3–4), 324–331, 2003.
- [124] KAHL, S. und A.M. GRISHIN: *Pulsed laser deposition of Y3Fe5O12 and Bi3Fe5O12 films on garnet substrates*. J. of Applied Physics, Vol. 93, 6945–6947, 2003.
- [125] KAHL, S., S.I. KHARTSEV, A.M. GRISHIN, K. KAWANO, G. KONG, R.A. CHAKALOV und J.S. ABELL: *Structure, microstructure, and MO properties of laser deposited BIG GGG films*. J. Appl. Phys., Vol. 91 (12), 9556–9560, 2002.
- [126] KHARTSEV, S. I. und A.M. GRISHIN: *[Bi3Fe5O12/Gd3Ga5O12]<sup>m</sup> magneto-optical photonic crystals*. Appl. Phys. Lett., Vol. 87, 122504, 2005.
- [127] GRISHIN, A.M., S.I. KHARTSEV und S. BONETTI: *Low field driven latching-type Bi3Fe5O12/Gd3Ga5O12 magneto-optical display*. Appl. Phys. Lett., Vol. 88, 242504, 2006.
- [128] JOHANSSON, P., S.I. KHARTSEV und A.M. GRISHIN: *Comparison of Bi3Fe5O12 film giant Faraday rotators grown on (111) and (001) Gd3Ga5O12 single crystals*. Thin Solid Films, Vol. 515 (2), 477–480, 2006.
- [129] LUX, R.: *Masterarbeit: Laserablation von Bi3Fe5O12 als elektrokeramische Funktionsstruktur*. Universität Augsburg, 2005.
- [130] HEINRICH, A., S. LEITENMEIER, R. LUX, T. KÖRNER, M. HERBERT und B. STRITZKER: *Pulsed Laser Deposition and Growth Studies of Bi3Fe5O12 on Gd3Ga5O12 and SiO2*. J. Mag. Soc. Jap. Vol. 30 (6-2), 584–587, 2006.
- [131] OKUDA, T., T. KATAYAMA, K. SATOH und H. YAMAMOTO: *Preparation of polycrystalline Bi3Fe5O12 garnet films*. J. Appl. Phys., Vol. 69 (8), 4580–4582, 1991.
- [132] PETRENKO, O.A., C. RITTER, M. YETHIRAJ und D. MCK PAUL: *Investigation of the Low-Temperature Spin-Liquid Behavior of the Frustrated Magnet Gadolinium Gallium Garnet*. Phys. Rev. Lett., Vol. 80 (20), 4570–4573, 1998.
- [133] *Preparation of Gadolinium Gallium Garnet [Gd3Ga5O12] by Solid-State Reaction of the Oxides*. J. Am. Cer. Soc., Vol. 72 (8), 1376–1381, 1989.
- [134] SZE, S.M.: *Physics of Semiconductor Devices*. John Wiley and Sons, Inc, New York, 1981.

- [135] MUKHOPADHYAY, P.: *High- $T_c$  films on GGG substrates*. Supercon. Sci. Technol., Vol. 7, 298–299, 1994.
- [136] KANG, Y.-M., S.-H. WEE, S.-G. MIN S.-I. BAIK, S.-H. MOON S.-C. YU, Y.-W. KIM und S.-I. YOO: *Magnetic properties of YIG ( $Y_3Fe_5O_{12}$ ) thin films prepared by the post annealing of amorphous films deposited by rf-magnetron sputtering*. J. Appl. Phys. 97 (10), 10A319, 2005.
- [137] RISTIC, M., I. NOWIK, S. POPOVIC, I. FELNER und S. MUSIC: *Influence of synthesis procedure on the YIG formation*. Materials Letters, Vol. 57 (16-17), 2584–2590, 2003.
- [138] BABINI, G.N., A. BELLOSI und P. VINCENZINI: *A diffusion model for the oxidation of hot pressed  $Si_3N_4$ - $Y_2O_3$ - $SiO_2$  materials*. J. Mat. Sci., Vol. 19 (3), 1029–1042, 1984.
- [139] GRIESBAUER, J.: *Diplomarbeit: Kombinatorik von NIG/YIG/BIG-Gradienten und Untersuchung und Simulation oszillatorischer Effekte an YIG-Puffersystemen*. Universität Augsburg, 2008.
- [140] MADER, L.: *Zulassungsarbeit: Deposition und Analyse von Neodym dotierten  $Bi_3Fe_5O_{12}$  Multilagen*. Universität Augsburg, 2007.
- [141] WESTERHAUSEN, C.: *Diplomarbeit: Praseodym- und Lanthansubstituierte Bismutheisengranate*. Universität Augsburg, 2008.
- [142] HACKL, T.: *Diplomarbeit: Herstellung und Charakterisierung sowie Strukturierung Erbiumdotierter Granatschichten für die Integrierte Optik*. Universität Augsburg, 2008.
- [143] KAHL, S.: *Dissertation: Bismuth iron garnet films for magneto-optical photonic crystals*. IMFF Stockholm, 2004.
- [144] SEIFERT, S.: *Yttrium-Eisen-Granat-Dünnschichten für magnetooptische Sensoren*. Frauenhofer ISC Jahresbericht, 2000.
- [145] SLUSKY, S.E.G., J.F. DILLON JR., C.D. BRANDLE, M.P. NORELLI und V.J. FRATELLO: *Magnetic properties of praseodymium iron garnet and neodymium iron garnet*. Phys. Rev. B, Vol. 34 (11), 7918–7923, 1986.
- [146] KAHL, S., V. POPOV und A.M. GRISHIN: *Optical transmission and Faraday rotation spectra of a bismuth iron garnet film*. J. Appl. Phys., Volume 54 (5688–5694), 2003.
- [147] SHANNON, R.D. und C.T. PREWITT: *Effective Ionic Radii in Oxides and Fluorides*. Acta Cryst. Vol. B25, 925–946, 1969.
- [148] SHANNON, R.D.: *Revised Effective Ionic Radii and Systematic Studies of Interatomic Distances in Halides and Chalcogenides*. Acta Cryst. Vol. A32, 751–767, 1976.
- [149] GOMI, M., H. FURUYAMA und M. ABE: *Strong magneto-optical enhancement in highly Ce-substituted iron garnet films prepared by sputtering*. J. Appl. Phys. Vol. 70 (11), 7065–7067, 1991.
- [150] MINOAND, S., A. TATE, T. UNO, T. SHINTAKU und A. SHIBUKAWA: *Structure and Lattice Deformation of Ce-Substituted Yttrium Iron Garnet Film Prepared by RF Sputtering*. Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32 (7), 3154–3159, 1993.

- [151] SHINTAKU, T. und T. UNO: *Preparation of Ce-Substituted Yttrium Iron Garnet Films for Magneto-Optic Waveguide Devices*. Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35 (9A), 4689–4691, 1996.
- [152] SHINTAKU, T., A. TATE und S. MINO: *Ce-substituted yttrium iron garnet films prepared on  $Gd_3Sc_2Ga_3O_{12}$  garnet substrates by sputter epitaxy*. Appl. Phys. Lett. Vol. 71 (12), 1640–1642, 1997.
- [153] IBRAHIM, N.B., C. EDWARDS und S.B. PALMER: *Pulsed laser ablation deposition of yttrium iron garnet and cerium-substituted YIG films*. J. Magn. Mater. Vol. 220 (2–3), 183–194, 2000.
- [154] NAKATA, Y., T. OKADA, M. MAEDA, S. HIGUCHI und K. UEDA: *Effect of oxidation dynamics on the film characteristics of Ce:YIG thin films deposited by pulsed-laser deposition*. Optics and Lasers in Engineering Vol. 44 (2), 147–154, 2006.
- [155] HIGUCHI, S., K. UEDA, F. YAHIRO, Y. NAKATA, H. UETSUHARA, T. OKADA und M. MAEDA: *Fabrications of cerium-substituted YIG thin films for magnetic field sensor by pulsed-laser deposition*. IEEE Trans. Magn. Vol. 37 (4-1), 2451–2453, 2001.
- [156] UNO, T. und S. NOGE: *Growth of magneto-optic Ce:YIG thin films on amorphous silica substrates*. J. Europ. Cer. Soc. Vol. 21 (10–11), 1957–1960, 2001.
- [157] KIM, H., A. GRISHIN und K.V. RAO: *Giant Faraday rotation of blue light in epitaxial  $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  films grown by pulsed laser deposition*. J. Appl. Phys. Vol. 89 (8), 4380–4383, 2001.
- [158] JELINEK, M., A. KLINI, J. OSWALD, V. STUDNICKA, C. FOTAKIS und A. MACKOVA: *Properties of Er-doped layers grown from Er:YAG (YAP) crystalline targets by sub-picosecond laser deposition*. Laser Phys. Lett. Vol. 1 (5), 248–252, 2004.
- [159] SZAPLONCZAY, A.M. und H.H.D. QUON: *Chemical etching of gadolinium-gallium garnet substrates*. Journal of Materials Science 7 (11), 1280–1284, 1972.
- [160] LIFANTE, G.: *Integrated Photonics: Fundamentals*. Wiley & Sons, 1. Auflage, 2003.
- [161] GRUBER, J.B., A.S. NIJJAR, D.K. SARDAR, R.M. YOW, C.C. RUSSEL, T.H. ALLIK und B. ZANDI: *Spectral analysis and energy-level structure of  $Er^{3+} (4f^{11})$  in polycrystalline ceramic garnet  $Y_3Al_5O_{12}$* . J. Appl. Phys. Vol. 97 (6), 063519, 2005.
- [162] DEMTROEDER, W.: *Experimentalphysik: Elektrizität und Optik, 2. Auflage*. Springer, Berlin, 2006, ISBN-10: 3540337946.
- [163] JONES, R. CLARK: *A New Calculus for the Treatment of Optical Systems*. J. Opt. Soc. Am. Vol. 31, 488–493, 1941.
- [164] YEH, P.: *Optical Waves in Layered Media*. Wiley-Interscience, 2005, ISBN-10: 0471731927.
- [165] FLIESSBACH, T.: *Elektrodynamik: Lehrbuch zur Theoretischen Physik II*. Spektrum Akad. Vlg., Hdg., 1997, ISBN-10: 3860257412.
- [166] VIŠŇOVSKÝ Š., K. POSTAVA und T. YAMAGUCHI: *Magneto-optic polar Kerr and Faraday effects in periodic multilayers*. OPTICS EXPRESS Vol. 9 (3), 158–171, 2001.



- [167] VIŠŇOVSKÝ Š., K. POSTAVA und T. YAMAGUCHI: *Magneto-optic polar Kerr and Faraday effects in magnetic superlattices*. Czechoslovak Journal of Physics, Vol. 51 (9), 917–949, 2001.
- [168] BERGMANN, L., C. SCHAEFER und H. NIEDRIG: *Bergmann-Schaefer – Lehrbuch der Experimentalphysik: Band III, Optik*. Walter de Gruyter, Berlin, 2004, ISBN-10: 3110170817.
- [169] WECKERLE, M.: *Diplomarbeit: Film thickness, refractive index and extinction coefficient determination of multilayers by an adapted fitting of transmittance spectra*. Universität Augsburg, 2008.
- [170] POHL, R.W.: *Optik und Atomphysik*. Springer, 1958, ASIN: B0000BMFC8.
- [171] WOLF, B.: *Spannungsoptik*. Springer, 1961.
- [172] GERTHSEN, C. und D. MESCHEDER: *Gerthsen Physik*. Springer, Berlin, 2005, ISBN-10: 354042024X.
- [173] LANDAU, L.D. und E.M. LIFSHITZ: *Course of Theoretical Physics, Vol. 5, Statistical Physics, Part 1*. Pergamon Press, 1980.
- [174] BAUDENBACHER, M.: *Zulassungsarbeit: Herstellung polykristalliner YIG-Puffer-Schichten auf Nicht-Granat-Substraten mittels Keimkristall- und Laserannealing*. Universität Augsburg, 2007.
- [175] MAYER, J.: *Zulassungsarbeit: Der Einfluss von akustischen Oberflächenwellen auf die Faraday-Drehung von Eisengranaten*. Universität Augsburg, 2007.
- [176] FROMMELT, T.: *Dissertation: Mischen und Sortieren mit SAW-Fluidik in Simulation und Experiment*. Universität Augsburg, 2007.

# Eigene Publikationen

1. H. Deppe, S. Warmuth, A. Heinrich, T. Körner; *Laser-assisted three-dimensional surface modifications of titanium implants: preliminary data*; Lasers in Medical Science, Vol. 19 (4), 229–233, 2005
2. A. Heinrich, S. Leitenmeier, T. Körner, R. Lux, M. Herbort, B. Stritzker; *Pulsed Laser Deposition and Growth Studies of  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  on  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  and  $\text{SiO}_2$* ; Journal of the Magnetics Society of Japan, Vol. 30 (6-2), 584–587, 2006
3. R. Lux, A. Heinrich, S. Leitenmeier, T. Körner, B. Stritzker; *Pulsed Laser deposition and growth studies of  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$* ; Journal of Applied Physics, Vol. 100 (11), 113511-1-7, 2006
4. T. Körner, A. Heinrich, B. Stritzker; *Dünnschichtherstellung und Oberflächenmodifikation durch den Einsatz zweier Excimer-Laser zur Herstellung verschleißfester Carbidschichten*; Patentmeldung, 2006
5. A. Heinrich, K. Dengler, T. Körner, C. Haczek, H. Deppe, B. Stritzker; *Laser modified Titanium Implants for improved cell adhesion*; Lasers in Medical Science 23 (1), 55–58 (2008)
6. T. Körner, A. Heinrich, M. Weckerle, P. Roocks, B. Stritzker; *Integration of magneto-optical active bismuth iron garnet on non-garnet substrates*; Journal of Applied Physics 103 (7), 07B337, 2008
7. A. Heinrich, T. Körner, J. Simon, W. Mader, M. Knoll, A. Kalytta, S. Horn, B. Stritzker; *Double-Layered Polycrystalline Iron Garnet Structure of  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  and  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  grown on  $\text{SiO}_2$  substrates by pulsed laser deposition*; Journal of the Magnetics Society of Japan, Vol. 32 (2-2), 130–134, 2008
8. T. Körner, A. Heinrich, B. Stritzker; *Increase of the wear resistance of carbide layers deposited by laserablation in addition with an auxiliary laser*; eingereicht bei Surface and Coatings Technology, 2008
9. S. Autier-Laurent, A. Heinrich, T. Körner, J. Simon, W. Mader and B. Stritzker; *Growth and characterization of  $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films deposited on  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  substrates*; eingereicht bei Optics Communications, 2008
10. S. Leitenmeier, T. Körner, J. Griesbauer, A. Heinrich, B. Stritzker; *Studies on the growth of epitaxial bismuth substituted iron garnet on gadolinium gallium garnet single crystals by pulsed laser deposition*; eingereicht bei Journal of Crystal Growth, 2008
11. S. Leitenmeier, T. Körner, A. Heinrich, J. Griesbauer, B. Stritzker; *Measurement of Faraday rotation spectra of thick  $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films prepared by pulsed laser deposition*; eingereicht bei European Physical Journal, 2008
12. J. Griesbauer, T. Körner, J. Simon, W. Mader, B. Stritzker; *Experimental and theoretical studies on oscillatory effects in YIG buffer systems*; eingereicht bei Journal of Applied Physics, 2008
13. T. Wehlius, T. Körner, H. Karl and B. Stritzker; *Bismuth iron garnet (BIG) for magneto-optical sensors and applications*; Intermag Proceedings 2009

Stehen kurz vor der Einreichung:

13. T. Wehlius, T. Hackl, S. Zoppel, J. Edlinger, T. Körner, H. Karl, W. Brütting, B. Stritzker; *Ultrashort Pulsed Laser Structuring of Garnet Planar Waveguides for Organic-Inorganic Hybride Materials*; 2008
14. T. Hackl, T. Körner, A. Heinrich, A. Laucht, J. Angele, T. Hürlimann, J. Simon, W. Mader, J. Finley, B. Stritzker; *Deposition of Er:BIG and Er:YAG by Pulsed Laser Deposition (PLD) and photoluminescence measurements*; 2008
15. C. Westerhausen, L. Mader, J. Griesbauer, T. Körner, H. Karl, B. Stritzker; *Investigations on Nd-, La- and Pr-substituted garnets grown by pulsed laser deposition*; 2008

# Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Besonders Danken möchte ich,

- Prof. Dr. Bernd Stritzker; für die uneingeschränkten Freiheiten bei meinem Taten-  
drang und die Möglichkeit, diese Arbeit an seinem Lehrstuhl anzufertigen. Er hatte  
stets ein offenes Ohr für alle auftretenden Probleme. Besonderer Dank für die Un-  
terstützung dieser Arbeit, das stets entgegengebrachte Vertrauen, sowie die gute  
Zusammenarbeit. Natürlich auch für die unzähligen Veranstaltungen aller Art.
- Prof. Dr. Armin Reller; für die Bereitschaft, die Zweitbegutachtung dieser Arbeit  
zu übernehmen. Natürlich auch für die Benutzung aller Gerätschaften an seinem  
Lehrstuhl und die zur Verfügung gestellte *Manpower*.
- Dr. Andreas Heinrich und seiner Familie: Danke für das Vertrauen über all die  
Jahre, dem Korrekturlesen dieser Arbeit, der Beschaffung unserer Stellen, der Fi-  
nanzierung der Gruppe,... und natürlich den Unmengen an Weißwürsten, Ausflügen  
und Grillparties.
- Josef Griesbauer; für die lustige Zeit als Zimmerkollege und den unermüdlichen  
Einsatz bei der Korrektur dieser Arbeit. Er war einem *Bierchen* und *Weinchen*  
während den Dienstreisen stets nicht abgeneigt...
- allen (vor allem ehemaligen) Mitgliedern der *Lasercrew*; für die spitzenmäßige Ar-  
beit die alle geleistet haben, die saugute Stimmung, Hilfsbereitschaft und alles was  
dazugehört. Dazu zählten *meine* betreuten Studenten Chris Westerhausen, Tobias  
Hackl, Lucia Mader, Jürgen Mayer, Michael Baudenbacher, Thomas Wehler, Pe-  
ter Spießl, Martin Weckerle, Katrin Dengler, Robert Lux, Michael PAX Herbort,  
Armin Huber, Simon Kreiner, Ben Achzet. Natürlich auch meine Ex-Kollegen und  
Zimmerpartnern Dr. *Princess* Simon Che'Rose, Dr. *Leerer* Johannes Goldfuß, Dr.  
*Wuschel* Bernhard Wörz, Dr. Sandrine Autier-Laurent, Christian Leirer, Emmo  
Stark und natürlich bei Dr. *Cpt.* Stephan Leitenmeier, für die kritische Durchsicht  
dieser Arbeit und einem super Urlaub in den Staaten. Stephan, die Steaks waren  
der Hammer....
- Priv.-Doz. Dr. Helmut Karl; für die Unterstützung der Lasercrew während den  
*fürherlosen* Monaten ...
- Prof. Dr. Siegfried Horn und seinem Lehrstuhl vor allem aber Dr. Matthias Knoll,  
Michael Krispin und Alexandre Santos-Abreu, als Freunde und fleißige XPS-Messer.
- Prof. Dr. Achim Wixforth und seinem Lehrstuhl, vor allem aber Dr. Andreas  
Hörner, Alexander Hupfer, Andreas Spörhase; für die Strukturierung der IDTs,  
der Unterstützung bei den SAW-Messungen und der Bedienung der Target-Pressen.
- Priv.-Doz. Dr. Karl-Heinz Höck, dem treuen Mitglied der Lasercrew&Friends-Frak-  
tion; für die guten Ideen bei der Simulation und den netten Gesprächen auf dem  
Gang.
- Cornelia Ludescher und Claudia Löflath; für die unzähligen Verwaltungsangelegen-  
heiten, privaten Veranstaltungen und immer offenen Ohren für Probleme jeglicher  
Art.
- Wolfgang Reiber; für die angenehmen Jahre als *RBS-Gott* und seine ständige Hilfs-  
bereitschaft bei allen möglichen Problemen.

- dem gesamten Lehrstuhl IV; für die tolle Arbeitsatmosphäre und gegenseitige Unterstützung.
- den Mitarbeitern der Festkörperchemie, die eine lehrstuhlübergreifende Zusammenarbeit für selbstverständlich hielten. Vor allem aber den Dr. Jan Hanss, Dr. Stefan Ebbinghaus und Andreas Kalytta, die zu jeder Zeit für mich da waren und auch den ein oder anderen Fehler immer wieder verziehen haben (konnte ja meist nix dazu...). Nicht zu vergessen Dr. *Bönsel* Bernd Renner, der mich in allen kritischen Phasen des Studiums unterstützte ...
- Prof. Dr. Werner Mader und Jürgen Simon von der Universität Bonn für ihre Kooperation bei den TEM-Analysen unserer Proben. Jürgen Simon insbesondere für die Zeit, die er am Mikroskop geopfert hat.
- Prof. Dr. Johannes Edlinger und seinem Lehrstuhl der FH Dornbirn. Vor allem Sandra Zoppel, die sämtliche Laserstrukturierungen durchführte ...
- dem AMU, Dr. Wolfgang Biegel, Roland Grenz, Agnes Gebauer und Robert Merkle; für die ständige Unterstützung und die uneingeschränkte Nutzung des ESEM. Besonderer Dank gilt meinem Lieblings-FC-WERDER-Anhänger Wolle im Werder-Fan-Forum ...
- Dr. Marcus Kuhn, Dr. Bernd Schey und Dr. Claus Hammerl der Firma AxynTeC; für ihre Unterstützung bei PLD-Fragen und Messungen.
- ein besonderer Dank gilt der Reisekostenabteilung; für die amüsanten Beschäftigungstherapien, denn ohne Sie hätte ich Bayern und Europa nicht so detailliert kennengelernt...
- meinen treuen Sportkameraden der Eishockeymannschaften, vor allem den *Eis-schlampen*, die ein super Puffer für alle Stress-Situationen waren. Insbesondere aber meinen Freunden Tobias Liebert, Ben Bockemühl, Max und Melanie Wagner und der Familie Ruf.
- meiner Familie.

Am Ende meiner Danksagung bitte ich all diejenigen um Verzeihung, die ich nicht erwähnt und im Eifer des Gefechts vergessen haben sollte.

Timo Hans Körner

## Curriculum Vitae

Geburtsdatum: 09. November 1977

Geburtsort: Füssen

Schulbildung:

09/1984 – 07/1986 Grundschule Füssen

09/1986 – 07/1988 Grundschule Halblech

09/1988 – 06/1997 Gymnasium Füssen

Zivildienst:

07/1997 – 08/1998 Psychosomatische Klinik der LVA Schwaben Buching

Studium:

10/1998 – 10/2004  
Universität Augsburg  
Doppelstudium: Physik und LA Gym Ma/Ph  
Abschluss: Diplom  
Diplomarbeit: Laserablation von Carbiden

11/2004 – 07/2008  
Universität Augsburg  
Wiss. Mitarbeiter bei Prof. Dr. B. Stritzker

seit 08/2008  
AMU Augsburg  
Projektmanagement und Marketing