

國立臺灣師範大學理學院物理學系

碩士論文

Department of Physics

College of Science

National Taiwan Normal University

Master's Thesis

退火溫度對鈹鐵石榴石磁異向性之影響

The Effect of Annealing Temperature on the Magnetic

Anisotropy of TmIG

王偉丞

Wang, Wei-Cheng

指導教授：駱芳鈺 博士

Advisor: Lo, Fang-Yuh Ph.D.

中華民國 114 年 07 月

July 2025

致謝

自進入師大，也有了六年的時光。在大學時期，我到處摸索，加入過天文觀測的實驗室，最後成為了碩士班考試入學的考試戰士。在碩士時期，加入了稀磁性半導體實驗室，一路闖蕩至今。雖然進入 DMSLAB 也只有短短了兩年。然而，這兩年正是我蛻變與進步最多的時光。首先，我要先感謝我的指導教授駱芳鈺老師，在實驗上包容我的不足，當儀器在我操作時發生故障，總會安慰我，告訴我「儀器用久了故障是正常的，不要太放在心上」，讓我放下可能要賠錢的焦慮，專注於後續的實驗。此外，感謝老師也願意抽出時間來和我討論數據，給我諸多指引。還記得第一次見到老師時，是在大一時的物批課，感受到了老師對於研究嚴謹與認真，覺得老師很嚴肅。但在後來的普物實驗三，體會到老師對待學生的耐心與關懷。正因如此，將能加入老師的實驗室為我的第一選擇，也是我的榮幸。

接著，我想感謝一同在實驗室奮鬥的夥伴。首先，要感謝剛進實驗室時帶領我的施語柔學姊，在我還一問三不知的時候，教我儀器操作流程、帶我跑台大 VSM 測量、壓 REIG 的靶材。感謝鍾招毅學弟，透過閒聊得知，是你帶頭接納那個加入了實驗室一年但無法融入的我，祝福你在台大讀碩，甚至未來出國攻博都能順順利利。感謝沈如芸，我的同屆 aka DMSLAB 之光，自從在跑中研院那時，就看見了你的能力和滿滿的經驗，也因此開始到處麻煩妳，我想說我一定很煩人，也肯定不會變成朋友，沒想到最後一年，變成可以一起熬夜處理數據、半夜校園閒晃、吃吃宵夜的好朋友，謝謝妳在實驗上的建議，謝謝妳在我很沮喪的時候給予我肯定，祝福你未來在業界工作時一路升遷，但也不要忘了幫一下那個消夜會請妳吃雞排的我。(妳說：「偉丞，如果哪天你要借錢，我一定沒問題」，這我一定記得)。謝謝彭兆銘學弟，感謝你幫忙測量 MCD 數據，雖然我最後自己還是重新量一次，希望你能順順利利準時畢業。謝謝林昱承學弟，和我聊一堆我玻璃心的事，並在我拚碩論的時候當我的 Uber Eat，讓疲憊的我省下出門買晚餐的力氣，期望你未來讀碩士順利。謝謝簡延安學長，教會了我打線(雖然我最後根本用不到)，並

常常口出金句，讓大家笑到肚子痛。謝謝張簡雲翊 aka LAS 分析大師，以後實驗室的 VSM 和第一原理計算就靠你了。謝謝宸緯、世帆、雋恩等學弟妹以及後面加入實驗室的學妹們，是你們讓我的實驗室生活有了不一樣的色彩，祝你們未來順順利利。

感謝我在師大六年以來結識的朋友，謝謝我的大餐好夥伴陳奕誠和林冠璋，約我一起吃飯、聊天、聊實驗，並給了我很多幫助，祝福奕誠未來找工作順利，冠璋讀博士順利。謝謝我的好室友洪宗廷，忍受我懶得出門時候幫我買食物、分享家裡寄來的水果，並在我實驗的最後幫忙我預約了他實驗室的機台讓我操作，祝福宗廷成功當老師，有正式教職成功上岸。

最後，我要感謝我的家人，謝謝他們在我念碩班的一路上的金援，使我不用擔心生活費不夠，沒有金錢壓力。感謝他們對我的關心，即使我搞失蹤，也會定期的打電話來關心，並在壓力的時候，隨時有個可以傾訴的窗口。感謝家裡的支持，讓我能順利完成學業。



摘要

本研究利用脈衝雷射沉積法在 YAG(111) 與 GGG(111) 基板上製備 YIG 與 TmIG 薄膜，並系統性探討退火溫度對其結晶結構、磁性及磁光特性的影響。X 光繞射結果顯示，所有薄膜皆沿(111)基板方向異質外延生長，並具有明顯的 (444) 繞射峰。成長於 YAG 基板的薄膜因高溫退火導致鋁離子進入薄膜，造成晶格收縮及壓縮應變加劇。GGG 基板上的樣品則顯示出不同應力表現，YIG 樣品中觀察到雙層結構對應拉伸與壓縮應力，而 TmIG 樣品則為壓縮應力，並隨退火溫度上升逐漸釋放，歸因於 Ga^{3+} 與 Fe^{3+} 半徑相近，使擴散效應微弱。高溫退火主要以應變鬆弛及缺陷修復為主，應變逐步釋放。

磁性方面，隨著退火溫度升高，成長於 YAG 與 GGG 基板的 YIG 與 TmIG 薄膜，其飽和磁化量 (M_s) 均明顯下降，推測主因為高溫退火導致鐵離子向基板擴散，造成磁性離子缺失，進而削弱整體磁性表現。磁易軸方面，YIG/YAG 薄膜的磁易軸由垂直逐漸轉變為無明顯易軸，TmIG/YAG 與 TmIG/GGG 薄膜在各退火條件下皆無明顯磁易軸，而 YIG/GGG 薄膜則始終保持平行磁易軸。矯頑場 (H_c) 方面，成長於 YAG 基板之薄膜與 TmIG/GGG 薄膜皆隨退火溫度升高而增加，顯示其磁性由軟磁性逐漸轉為硬磁性，唯有 YIG/GGG 薄膜之 H_c 對退火溫度變化不具明顯趨勢。

磁光分析顯示，所有樣品的法拉第旋轉角及磁圓二色性強度均隨退火溫度升高而下降，並觀察到對應 O-Fe 能階躍遷的吸收峰逐漸消失，佐證了鐵離子擴散現象。

綜合而言，退火溫度為影響 REIG 薄膜結構與磁性的重要關鍵參數。適度退火有助於改善結晶品質及應變釋放，但過高溫度會導致結構劣化及性能下降。本研究結果有助於 REIG 薄膜磁異向性及磁光性能的進一步調控，並為其在自旋電子學與磁光元件之應用提供重要參考。

關鍵字：脈衝雷射沉積 (PLD)、稀土鐵石榴石 (REIG)、退火溫度、磁性各向異性、磁光效應

Abstract

In this study, yttrium iron garnet (YIG) and thulium iron garnet (TmIG) thin films were fabricated on (111)-oriented YAG and GGG substrates using pulsed laser deposition (PLD). The effects of post-annealing temperature on the films' crystal structure, magnetic properties, and magneto-optical characteristics were systematically investigated. X-ray diffraction results showed that all films exhibited heteroepitaxial growth along the (111) direction, with distinct (444) diffraction peaks. For films grown on YAG substrates, high-temperature annealing led to the inward diffusion of Al^{3+} ions from the substrate, resulting in lattice contraction and increased compressive strain. In contrast, the GGG-based samples showed different strain behaviors: the YIG films exhibited a bilayer structure corresponding to tensile and compressive stress components, while the TmIG films exhibited compressive strain that gradually relaxed with increasing annealing temperature. This relaxation is attributed to the comparable ionic radii of Ga^{3+} and Fe^{3+} , which limits interdiffusion and allows strain release and defect repair to dominate at high temperatures.

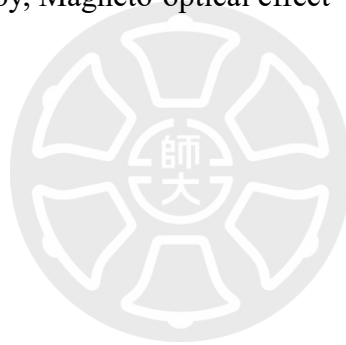
Magnetic measurements revealed that the saturation magnetization (M_s) of all YIG and TmIG films decreased significantly with increasing annealing temperature, which is attributed to Fe ion diffusion into the substrate and the consequent loss of magnetic ions. Regarding magnetic anisotropy, the YIG/YAG films exhibited a transition from out-of-plane to no clear easy axis; both TmIG/YAG and TmIG/GGG films showed no defined magnetic easy axis under any annealing condition. In contrast, the YIG/GGG films consistently exhibited in-plane magnetic anisotropy. Coercivity (H_c) increased with annealing temperature for YAG-based films and TmIG/GGG films, indicating a transition from soft to hard magnetic behavior. However, YIG/GGG films showed no clear correlation between H_c and annealing temperature.

Magneto-optical analysis showed that both the Faraday rotation angle and magnetic circular dichroism (MCD) strength decreased with increasing annealing temperature.

Furthermore, the gradual disappearance of absorption peaks corresponding to O–Fe electronic transitions provided additional evidence for Fe ion diffusion.

In conclusion, annealing temperature plays a critical role in determining the structural, magnetic, and magneto-optical properties of REIG thin films. While moderate annealing improves crystallinity and strain relaxation, excessive annealing leads to structural degradation and performance deterioration. These findings offer valuable insight for the optimization of REIG thin films and their applications in spintronics and magneto-optical devices.

Keyword: Pulsed Laser Deposition (PLD), Rare-earth Iron Garnet (REIG), Annealing Temperature, Magnetic Anisotropy, Magneto-optical effect



目錄

致謝.....	I
摘要.....	III
Abstract.....	IV
目錄.....	VI
第一章 緒論.....	1
第二章 基本原理.....	6
2-1 材料特性.....	6
2-1-1 釷鐵石榴石 (Yttrium iron garnet, YIG).....	6
2-1-2 鐳鐵石榴石 (Thulium iron garnet, TmIG).....	7
2-1-3 釷鋁石榴石 (Yttrium aluminum garnet, YAG).....	8
2-1-4 釷鎳石榴石 (Gadolinium gallium garnet, GGG).....	9
2-2 磁性.....	9
2-2-1 磁性簡介.....	9
2-2-2 磁性物質.....	10
2-2-3 磁滯曲線.....	11
2-2-4 磁異向性.....	12
第三章 實驗原理與儀器介紹.....	15
3-1 脈衝雷射沉積法 (Pulsed Laser Deposition, PLD).....	15
3-1-1 PLD 原理.....	15
3-1-2 PLD 鍍膜系統.....	16
3-2 X 射線繞射 (X-ray diffraction, XRD).....	17
3-2-1 X-ray 光譜.....	17

3-2-2 布拉格繞射 (Braggs' Diffraction)	18
3-3 振動樣品磁力計 (Vibrating sample magnetometer, VSM)	19
3-4 磁光法拉第效應 (Magneto-optic Faraday effect, MOFE)	20
3-4-1 MOFE 原理	20
3-4-2 MOFE 測量系統	21
3-5 磁性圓二色性 (Magnetic Circular Dichroism, MCD).....	22
第四章 樣品製備	23
4-1 基板清洗.....	23
4-2 鍍膜流程.....	23
4-3 退火流程.....	25
第五章 實驗結果分析	26
5-1 晶體結構特性.....	26
5-2 薄膜磁性特性.....	31
5-3 薄膜磁光特性.....	35
5-3-1 磁光法拉第分析	35
5-3-2 磁圓二色性分析	37
第六章 結論與未來展望	47
參考文獻.....	49

第一章 緒論

隨著資訊科技與人工智慧快速發展，對於高速度、低功耗、長壽命且非揮發性的記憶體需求持續攀升。在眾多新興記憶體技術中，磁性隨機存取記憶體(magnetoresistive random access memory, MRAM)因其資料保持性、讀寫快速以及高耐用性，被視為次世代主流儲存方案之一^[1]。近期更衍生出利用自旋軌道矩(spin-orbit torque, SOT)進行寫入操作的 SOT-MRAM，透過利用自旋霍爾效應(spin Hall effect)或 Rashba effect 產生的自旋電流，能有效地控制磁化翻轉，實現比傳統 MRAM 更低功耗、更快速且具更高穩定性的記憶體架構^[1,2]。因此，如何精確控制與優化材料的磁性異向性，成為發展 SOT-MRAM 的關鍵基礎技術之一。

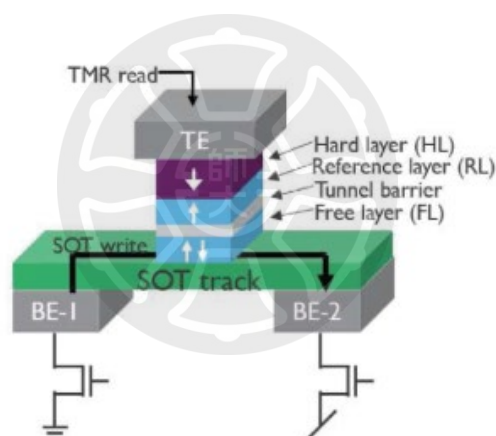


圖 1-1 SOT-MRAM 示意圖^[2]

在實現穩定且可操控磁異向性的材料中，稀土鐵石榴石(rare-earth iron garnet, REIG)因其低磁阻尼、高磁光活性以及優異的熱穩定性，受到廣泛關注。REIG 的磁性主要源於八面體與四面體位置的 Fe^{3+} 離子，以及十二面體稀土離子(RE^{3+})間的超交換交互作用，使得磁性與磁異向性可藉由化學組成等進一步調控。此外，REIG 具有優良的磁光效應，已被應用於磁光調變器及磁場感測器等，展現其多功能應用潛力^[3]。

在多種 REIG 材料中，有關鈮鐵石榴石(yttrium iron garnet, YIG) 研究最為廣泛，具備極低磁阻尼常數^[4]、良好的磁光特性、低介電損耗及窄鐵磁共振線寬(narrow

ferromagnetic resonance linewidth)^[5]，適用於高頻磁性與磁光元件。然而，YIG 薄膜在基板上成長時，通常因顯著的形狀異向性能^[6]與較小的磁晶異向性能量，表現出面內磁異向性(in-plane magnetic anisotropy)^[7-9]，難以滿足需要垂直磁異向性(perpendicular magnetic anisotropy, PMA)的 SOT-MRAM 設計需求。

Saeedeh Mokarian Zanjani 通過計算各個 REIG 薄膜在不同基板上的磁異向能，預測薄膜的磁異向性^[10]，如圖 1-2。其中，銩鐵石榴石(thulium iron garnet, TmIG)由於 Tm^{3+} 離子具有較強的自旋軌道耦合，且沿(111)晶向具有負磁致伸縮常數，因此可顯著地誘導薄膜的垂直磁異向性，實際中在 GGG 基板上皆成功實現顯著的 PMA^[11-14]，如圖 1-3，在 Pt/TmIG/GGG 的三層結構中，通過改變磁場方向測量霍爾電阻，可在磁場垂直於薄膜面時，發現有磁滯曲線的現象^[12]。同時預測在 YAG 基板上也會呈現 PMA，因此成為實現 SOT-MRAM 所需垂直磁化結構的理想候選材料。

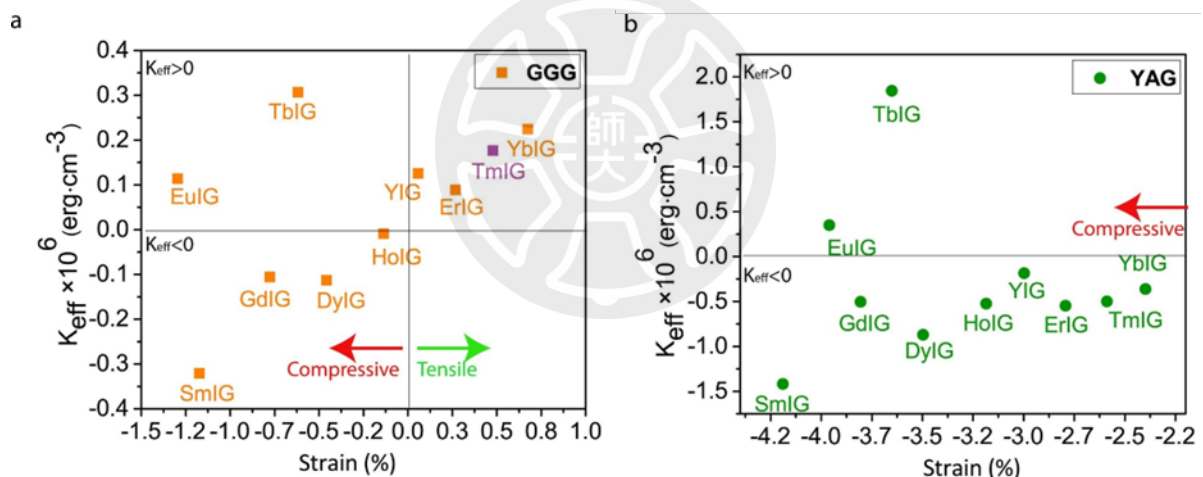


圖 1-2 預測 REIG 薄膜在不同基板上的磁異向能對應力關係圖^[10]

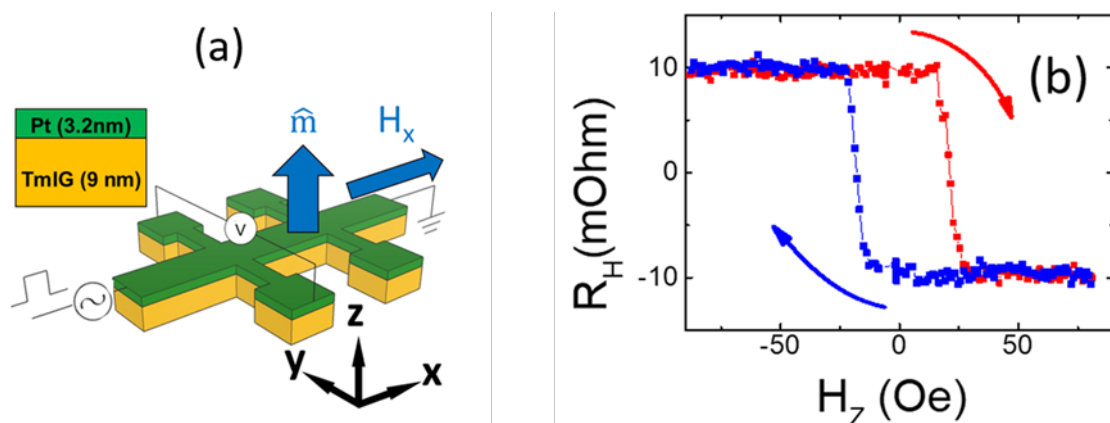


圖 1-3(a)Pt/TmIG/GGG 元件示意圖 (b)霍爾電阻 R_H 對磁場 H_Z 變化圖^[12]

根據上述文獻回顧，本實驗室亦曾針對各種 REIG 薄膜於 YAG 基板上進行成長與分析。透過 XRD 分析，我們確認 SmIG、HoIG 及 YIG 薄膜呈現面外壓縮應變，而 ErIG 與 TmIG 則呈現面外拉伸應變。此外，根據 VSM 的測量結果發現(圖 1-4)，SmIG 與 HoIG 薄膜展現較強的垂直磁異向性(PMA)，其與材料本身負磁致伸縮常數及面外壓縮應變有關；相較之下，ErIG 與 TmIG 薄膜的垂直磁異向性較弱，推測因退火過程導致晶格產生畸變所致。另外，我們藉由磁光法拉第效應的量測結果(圖 1-5)，各薄膜在不同波長下的法拉第旋轉角具顯著差異，並可成功測得磁滯曲線。此結果也進一步證實，透過調整稀土離子種類，可有效調控稀土鐵石榴石薄膜的磁光特性^[7]。此外，通過改變稀土元素的參雜比例，以及減少薄膜厚度，可有效使薄膜的磁易軸由平面內轉變為面外方向，達到調控磁異向性的目的^[15,16]。

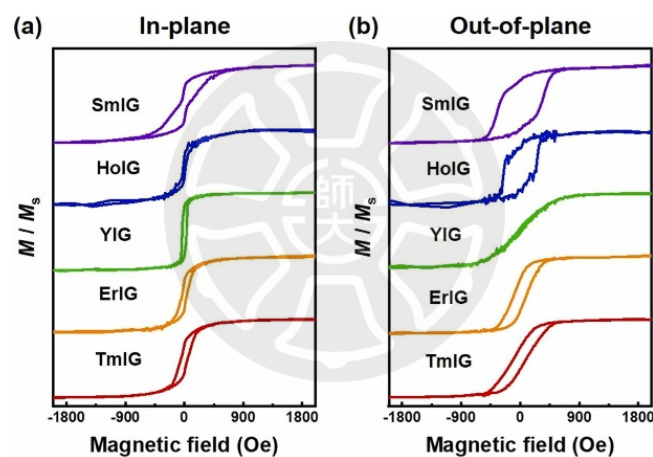


圖 1-4 REIG 薄膜(a)IP (b)OP 的磁滯曲線圖^[7]

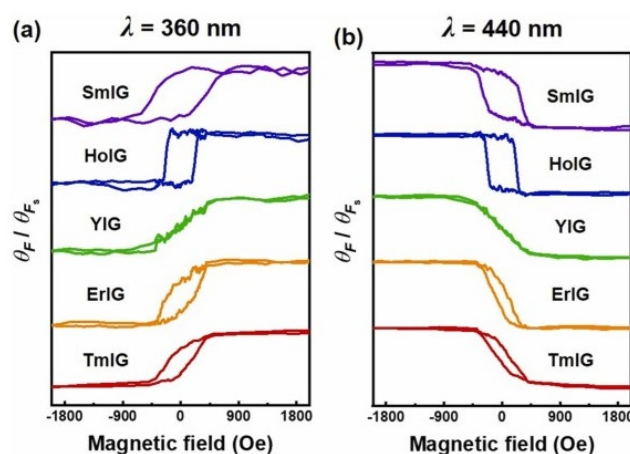


圖 1-5 REIG 薄膜(a)360 nm(b)440 nm 的法拉第磁光效應圖^[7]

然而，影響 REIG 薄膜磁異向性的因素不僅限於稀土元素的摻雜或基板的選擇，退火處理扮演重要角色。退火過程可顯著影響薄膜的結晶品質、應變狀態以及元素擴散行為。根據 Yan Zhang 等人在 Si 基板上成長 YIG 薄膜發現沉積時的基板溫度與退火溫度會影響薄膜的飽和磁化量，其中在基板溫度 400°C 與退火溫度 800 度後，薄膜的飽和磁化量可接近塊材值^[17]。根據 Phuoc Cao Van 等人的研究指出，YIG 薄膜成長於 GGG 基板上並經過不同退火溫度處理後，會導致 FMR 光譜的線寬變化(圖 1-7)，退火溫度在 875°C 時，樣品有最小的 FMR 線寬 1.9 Oe^[5]，較小的 FMR 線寬代表著較小的阻尼常數，因此適合用於自旋電子傳輸等應用。此外，Phuoc Cao Van 等人利用金屬有機沉積法在 GGG 基板上成長的 HoIG 薄膜，發現當退火溫度過高時，同樣會導致薄膜內的鐵離子向基板擴散，從而改變其磁性補償溫度^[18]，如圖 1-8。因此，本研究藉由系統性改變退火溫度，以深入探討其對 TmIG 薄膜結構與磁性所產生之影響。

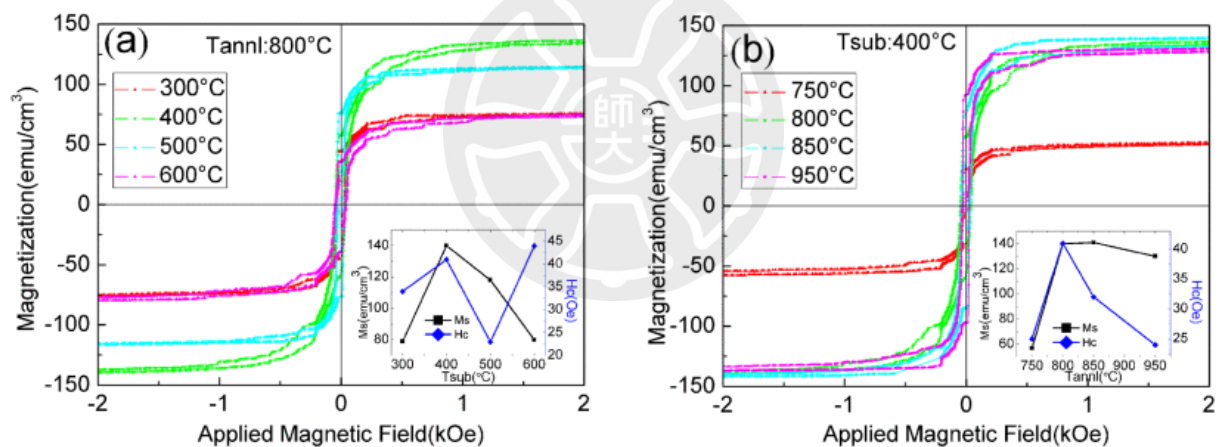


圖 1-6 YIG/Si 不同(a)基板溫度(b)退火溫度之 IP 磁滯曲線圖^[17]

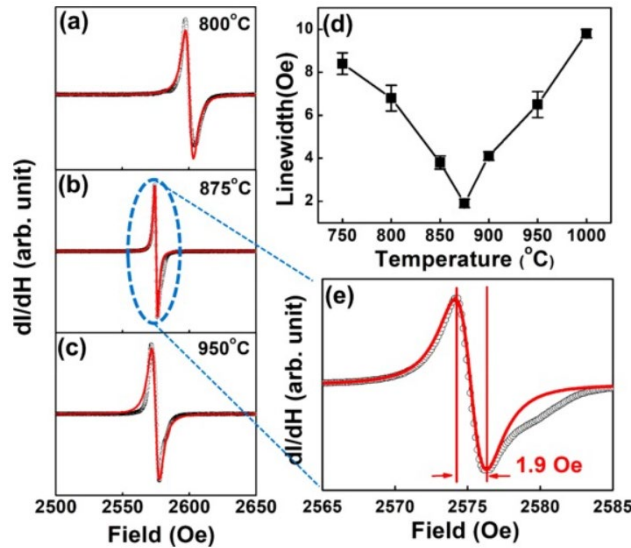


圖 1-7 (a)~(c)不同退火 60 nm YIG/GGG 薄膜 FMR 光譜 (d)線寬對退火溫度關係^[5]

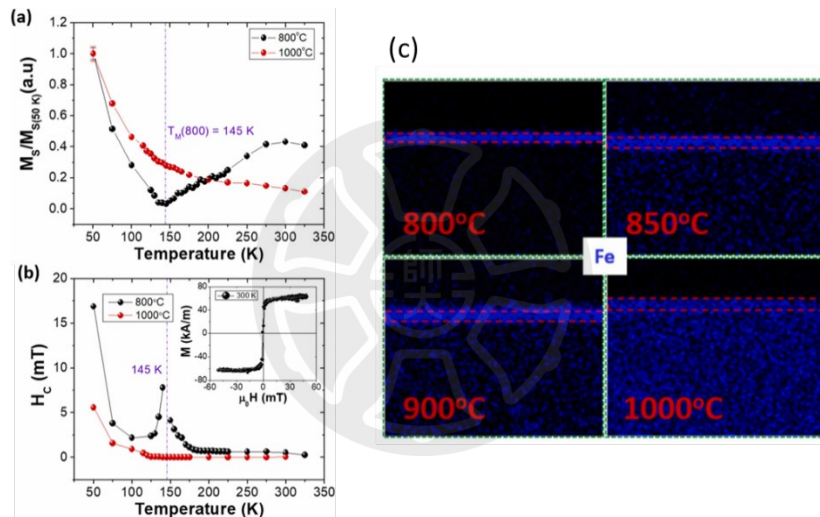


圖 1-8 不同退火溫度 HoIG 薄膜(a)飽和磁化量(b)矯頑場對溫度圖(c)能量色散 X 線光譜

[18]

本研究是使用脈衝雷射蒸鍍法(pulsed laser deposition, PLD)，在 YAG 和 GGG(111) 晶向基板上製備釷鐵石榴石(YIG)與鈹鐵石榴石(TmIG)薄膜，並透過改變退火溫度以調控薄膜特性。我們利用 X 光繞射(X-ray diffraction, XRD)確認薄膜的晶體結構，並以振動樣品磁量計(vibrating sample magnetometer, VSM) 量測不同磁場方向下之磁滯曲線，以確認磁易軸方向。此外，我們亦透過法拉第磁光效應(magneto-optical Faraday effect, MOFE)和磁圓二向性光譜(magnetic circular dichroism, MCD) 分析薄膜之磁光特性。藉由綜合分析上述各項測量結果，探討不同退火溫度對於鈹鐵石榴石薄膜磁異向性之影響。

第二章 基本原理

2-1 材料特性

稀土鐵石榴石(rare earth iron garnet, REIG)是一種磁性絕緣體，呈亞鐵磁性，具有典型的石榴石型(garnet)晶體結構，化學通式為 $A_3B_5O_{12}$ 。其中，A 與 B 分別對應兩種不同配位的金屬離子：A 位(十二面體位)通常由稀土離子如： $(Y^{3+}$ 、 Tm^{3+} 、 Sm^{3+} 等)佔據，B 位(八面體位與四面體位)則主要由 Fe^{3+} 佔據。透過摻雜不同的稀土離子，可調控其晶格常數，進而影響其磁性、磁光及微波等特性，因此在自旋電子學、微波元件與磁光應用領域均有大量研究文獻。

2-1-1 鈮鐵石榴石 (Yttrium iron garnet, YIG)

鈮鐵石榴石(yttrium iron garnet, YIG)的基本性質如表 2-1，其化學式為 $Y_3Fe_5O_{12}$ ，其中的鈮與鐵離子均為三價陽離子。其晶體結構屬於體心立方結構(body-center cubic, bcc)，並由三種不同配位的子晶格構成，分別為十二面體(dodecahedral site)、八面體位(octahedral site)以及四面體位(tetrahedral site)。在一個完整的單位晶胞內，包含八個化學單位的 $Y_3Fe_5O_{12}$ ，如圖 2-1 所示。其中，十二面體的中心由鈮離子(Y^{3+})佔據，八面體與四面體位的中心則由鐵離子 Fe^{3+} 佔據^[19]。

在磁性方面，因為十二面體中的鈮離子本身不具備磁性，因此鈮鐵石榴石的磁性主要是來自八面體位和四面體位中的鐵離子的貢獻。然而，這兩個子晶格中的鐵離子彼此距離較遠，無法直接發生交互作用，而必須通過中間的氧離子以超交互作用(super-exchange)來進行耦合，使其自旋方向排列呈現反平行(antiferromagnetic coupling)。又因八面體和四面體晶格中磁矩大小不相等，相互抵消下仍留有磁矩，材料因而呈現亞鐵磁性，其居禮溫度為 560 K^[5]。

由於鈮鐵石榴石具有較強的法拉第磁光效應及較低的阻尼常數($\alpha = 3 \times 10^{-5}$)^[4]，因此經常應用於磁光效應(magneto-optical effect)與自旋波(spin wave)^[20]等相關研究。鈮鐵

石榴石的易軸方向沿晶體的(111)晶向，因此在薄膜材料的研究製備中，會使用同為(111)晶向的基板進行磊晶成長。

表 2-1 鈮鐵石榴石的基本性質

物理特性	數值
晶格常數	12.376 Å
飽和磁化強度	143 emu/cm ³
矯頑場	10 Oe
特徵阻尼常數	3 × 10 ⁻⁵

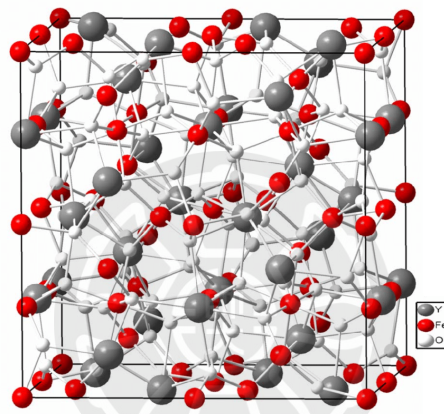


圖 2-1 鈮鐵石榴石的晶體結構^[19]

2-1-2 銩鐵石榴石 (Thulium iron garnet, TmIG)

銩鐵石榴石(thulium iron garnet, TmIG)的基本性質如表 2-2，化學式為 $Tm_3Fe_5O_{12}$ ，其中的銩與鐵離子均為三價陽離子。其晶格結構與鈮鐵石榴石類似，只是十二面體位中由鈮離子改為銩離子佔據。

在磁性方面，銩鐵石榴石的磁性不僅來自八面體與四面體位的 Fe^{3+} 離子，亦包含十二面體位 Tm^{3+} 離子的貢獻。由於這些離子之間的距離較遠，仍須透過中間的氧離子進行超交換作用以耦合。且隨著溫度的變化， Fe^{3+} 與 Tm^{3+} 兩種磁性子晶格的磁矩會相互消長，最終導致材料呈現磁補償行為 (magnetic compensation)，其對應的補償溫度為 15 K^[21]，居禮溫度則為約 360 K^[22]。

表 2-2 鈹鐵石榴石的基本性質^[10]

物理特性	數值
晶格常數(lattice constant, a)	12.324 Å
飽和磁化強度(saturation magnetization, M_s)	111 emu/cm ³

2-1-3 鈹鋁石榴石 (Yttrium aluminum garnet, YAG)

鈹鋁石榴石(yttrium aluminum garnet, YAG)的基本性質如表 2-3，且為逆磁性，其化學式為 $Y_3Al_5O_{12}$ ，其中鈹和鋁離子皆為三價陽離子。其晶體為立方晶系的石榴石結構。每個單位晶胞由八個化學單位的 $Y_3Al_5O_{12}$ 組成，其中包含 24 個鈹離子、40 個鋁離子以及 96 個氧離子，佔據 c 位點的為鈹離子並被八個氧離子包圍，形成八角十二面體，其離子半徑為 1.019Å；而鋁離子有 16 個佔據 a 位點被 6 個八面體對稱的氧離子包圍，其餘則佔據 d 位點並被 4 個 4 面體對稱的氧離子包圍，晶格常數分別為 0.535Å 及 0.39Å，如圖 2-2 所示^[23]。

表 2-3 鈹鋁石榴石的基本性質

物理特性	數值
折射率	1.833
晶格常數	12.005 Å

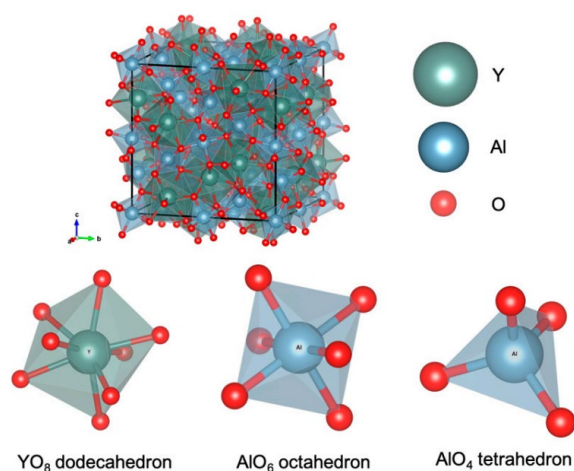


圖 2-2 YAG 單位晶格及陽離子位點圖^[23]

2-1-4 釷鎳石榴石 (Gadolinium gallium garnet, GGG)

釷鎳石榴石(gadolinium gallium garnet, GGG)的基本性質如表 2-4，為順磁性，其化學式為 $Gd_3Ga_5O_{12}$ ，其中釷和鎳離子皆為三價陽離子。其晶格為立方晶系，與釷鐵石榴石結構相似，皆為鐵石榴石結構。相較於釷鐵石榴石，釷鎳石榴石晶格中十二面體位由釷離子取代原有的釷離子，八面體與四面體位中則由鎳離子取代原本的鐵離子。

由於釷鎳石榴石的晶格常數和其他稀土鐵石榴石(REIG)的材料相當接近，具有更低的晶格失配度，可有效降低薄膜成長過程中的界面應力和晶體錯位，故使用釷鎳石榴石基板能夠磊晶出更高品質、低缺陷的稀土鐵石榴石薄膜，廣泛應用於磁光、自旋電子學等先進元件的開發研究。

表 2-4 釷鎳石榴石的基本性質

物理特性	數值
折射率	1.95
晶格常數	12.383 Å

2-2 磁性

2-2-1 磁性簡介

材料的磁性源自於其內部原子的磁矩。由於原子核的磁矩通常比電子的磁矩小數千倍，可予以忽略，因此材料的總磁性主要來自未成對電子所貢獻的電子磁矩。而電子的磁矩來自於自旋角動量與軌道角動量的耦合。材料對於外加磁場的反應可以由磁化率(magnetic susceptibility, χ)來描述^[24]:

$$\chi \equiv \frac{M}{H} \quad (2.1)$$

其中， M 為磁化強度(magnetization)，通常定義為單位體積內的總磁矩， H 為外加磁場強度，單位為 oersted (Oe)， χ 為磁化率(magnetic susceptibility)，可量化材料被磁化的難易度，並進一步區分其磁性類型。

2-2-2 磁性物質

1. 反磁性^[24]

當材料置於外加磁場中時，根據冷次定律(Lenz's law)，電子軌域會產生感生電流，進而形成方向與外加磁場相反的感應磁矩，此現象即稱為反磁性(diamagnetism)。即使外加磁場保持穩定，根據量子機制(Landau diamagnetism)仍會產生相同的反向磁矩。移除磁場後，感應磁矩隨即消失，材料不會永久磁化。反鐵磁材料的磁化率為負值且數量級約為 $10^{-6} \sim 10^{-5}$ ，為弱磁性，沒有溫度相關性。常見的反磁性材料包括石英、鈹、銅、銀、水等。

2. 順磁性^[24]

當材料置於外加磁場中時，其內部未配對電子的磁矩傾向與外加磁場方向一致，從而產生正磁化的反應，此種現象稱為順磁性(paramagnetism)。在無外加磁場下，未配對電子的磁矩隨機排列，彼此互相抵消，使得整體材料無磁性。順磁性材料的磁化率為正值且數量級約 $10^{-5} \sim 10^{-3}$ ，為弱磁性。此磁化率會隨著溫度升高而降低，並遵守居禮定律(Curie's law)成反比，如式(2.2)所示。

$$\chi = \frac{C}{T} \quad (2.2)$$

其中 C 為材料的居里常數， T 為絕對溫度，單位為 Kelvin (K)。常見的順磁性材料有鋁、鈦。

3. 鐵磁^[24]

當材料內部磁矩因交換交互作用(exchange interaction, $J > 0$)自發地排列成平行方向，形成自發磁化，即稱為鐵磁性(ferromagnetism)。鐵磁性材料即使在無外加磁場的情形下仍有磁性。在低於居里溫度時，鐵磁性材料的磁化率為正值且數量級約為 10^4 ，為強磁性，並具有明顯的磁疇(magnetic domain)與磁滯現象(hysteresis)。當溫度高於居里溫度時，內部磁矩因熱擾動而趨於隨機排列，導致材料從鐵磁性轉變為順磁性，此時磁化率則遵守居里-魏斯定律(Curie-Weiss law)，如式(2.3)所示。

$$\chi = \frac{C}{T-T_C} \quad (2.3)$$

其中 T_C 為居里溫度(Curie temperature)。常見的鐵磁材料為鐵、鈷、鎳等。

4. 反鐵磁^[24]

當材料內部的磁矩因交換交互作用(exchange interaction, $J < 0$) 而導致相鄰的兩個子晶格的磁矩反平行排列，使材料無磁性，稱為反鐵磁性(antiferromagnetism)。與鐵磁性材料不同，反鐵磁材料在無外加磁場下也無磁性。在低於尼爾溫度(Néel temperature, T_N) 時，材料內磁矩呈反平行排列，此時磁化率接近零，為弱磁性。隨著溫度升高至尼爾溫度時，磁化率出現最大值。溫度超過尼爾溫度後，磁矩因熱擾動破壞，材料轉變為順磁態。常見的反鐵磁材料為錳、氧化鈷、氧化鎳等。

5. 亞鐵磁性

當材料內磁性離子分佈在不同的子晶格中，其磁矩方向呈反平行排列，但由於各子晶格的磁矩大小不同，因而產生非零的總磁矩，稱為亞鐵磁性(ferrimagnetism)。當溫度低於居禮溫度時，晶格內的磁矩呈現穩定且有序排列，材料表現出強磁性。當溫度高於居禮溫度時，磁矩因熱擾動干擾，材料轉為順磁性。此外，在部分亞鐵磁材料中，兩個子晶格的磁矩會隨溫度上升以不同速率減弱，當兩子晶格磁矩大小相等且方向相反時，整體總磁矩會降至零，該特定溫度稱為磁補償溫度(compensation temperature, T_{comp})。此時材料的磁性行為類似反鐵磁性，且其磁光特性有顯著變化。本研究所探討的稀土鐵石榴石，即為典型的亞鐵磁材料代表。

2-2-3 磁滯曲線

當對鐵磁性材料施加外部磁場 H 時，材料內部的磁矩會逐漸翻轉並沿外場方向重新排列，使材料的磁化強度 M 隨之增加；當所有磁矩完全沿外場方向對齊時，材料達到飽和磁化(magnetic saturation, M_S)。若此時將外加磁場降回零，磁矩並不會完全恢復到原先的隨機分佈狀態，而是保留部分的磁化強度，此殘餘磁化強度即稱為殘磁(magnetic remanence, M_r)。為使磁化歸零，必須施加一個方向相反的磁場，而此所需的外加磁場

強度即稱為矯頑場(coercivity, H_c)。若進一步將外加磁場由零繼續施加至反向飽和，再回掃至正向飽和，則磁化強度 M 與外加磁場 H 在圖上會形成一個封閉的曲線，即稱為磁滯曲線(hysteresis loop)^[24]。

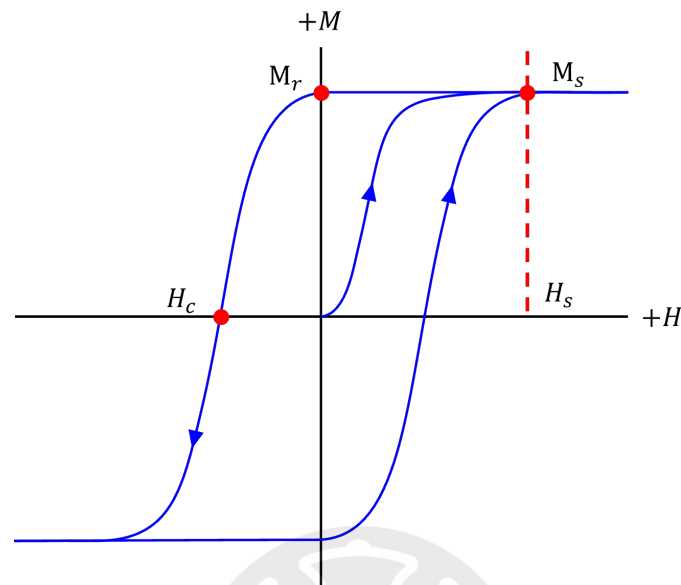


圖 2-3 磁滯曲線示意圖

2-2-4 磁異向性

磁異向性(magnetic anisotropy)是指當沿著不同方向對材料施加磁場時，材料的磁化行為(磁滯曲線的形貌)會隨方向不同而產生差異的現象。在微觀尺度下，材料的磁化方向來自電子自旋角動量與軌道角動量之間的耦合作用。當外加磁場 \vec{H} 與原本的磁化方向 \vec{M} 不一致時，需額外的能量才能翻轉磁矩，該能量稱為磁異向能(magnetic anisotropy energy, MAE)，關係式如下。

$$E = -\vec{H} \times \vec{M} \quad (2.4)$$

磁異向能並非單一來源，而是多種磁異向性能量的總和。影響磁異向性的因素包括材料的幾何形狀、晶體結構以及界面或多層異質結構所造成的效應。依據其物理來源的差異，磁異向性主要可分類為以下幾種：

1. 磁晶異向性

磁晶異向性(magneto-crystalline anisotropy)是指磁性材料在不同晶體方向(晶向)上，其磁化所需能量存在差異的現象。其源於電子的自旋-軌道耦合(spin-orbit coupling, SOC)，導致電子磁矩傾向沿特定晶向排列以達到能量最低。因此，磁矩翻轉所需的能量，稱為磁晶異向能。以本論文所使用之材料為例，其晶體結構屬於立方晶系，對應的磁晶異向性能量：

$$E = K_1(a_1^2 a_2^2 + a_2^2 a_3^2 + a_3^2 a_1^2) + K_2(a_1^2 a_2^2 a_3^2) \quad (2.5)$$

其中 K_1 、 K_2 為一階與二階磁晶異向性常數， a_1 、 a_2 、 a_3 分別為對應[100]、[010]、[001]的方向餘弦^[20,24]。

2. 形狀異向性

形狀異向性(shape anisotropy)是指材料因自身幾何外形而產生的磁異向性。當鐵磁材料被磁化時，內部與表面會出現等效磁荷，進而產生與材料幾何相關的退磁場(demagnetizing field, H_d)。退磁場與材料的磁化向量耦合，所產生的能量稱為退磁場能(demagnetizing energy)，亦常稱為形狀異向能(shape-anisotropy energy, E_{shape})。

$$E_{shape} = 2\pi N_i M_s^2 \quad (2.6)$$

其中 N_i 為退磁因子， $N_x + N_y + N_z = 1$ ， M_s 為飽和磁化量。

而對於薄膜($N_z = 1$)的形狀異向能密度為^[10,24]：

$$K_{shape} = 2\pi M_s^2 \quad (2.7)$$

3. 應力異向性

應力異向性(stress anisotropy)是磁性材料在受到機械應力(如外部拉伸、內部應變、晶格失配等)時，不同磁化方向對應的磁化能量出現差異的現象。其源自於磁致伸縮(magnetostriction)與晶格應力耦合，屬於磁彈性效應(magneto-elastic effect)，其關係式如下：

$$E_{stress} = -\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \cos^2 \theta \quad (2.8)$$

其中 λ_s 為磁致伸縮常數， σ 為施加在材料上的應力， θ 為磁化方向與應力的夾角。

而稀土鐵石榴石長在(111)方向的基板上，由磁彈性耦合(magneto-elastic coupling)而產生的異向能密度為：

$$K_{indu} = -\frac{3}{2}\lambda_{111}\sigma_{\parallel} \quad (2.9)$$

其中 λ_{111} 為沿著(111)方向的磁致伸縮常數，在室溫下通常為負值， σ_{\parallel} 為因薄膜與基板之間的晶格不匹配而在材料中產生的平面應力，由下列公式得出：

$$\sigma_{\parallel} = \frac{Y}{1-\nu}\varepsilon_{\parallel} \quad (2.10)$$

其中 Y 是彈性係數(elastic modulus)， ν 是帕松比(Poisson's ratio)，平面應變(ε_{\parallel})則利用 XRD 得出的晶格常數計算：

$$\varepsilon_{\parallel} = \frac{a_{film} - a_{bulk}}{a_{bulk}} \quad (2.11)$$

其中 a_{film} 為薄膜的晶格常數， a_{bulk} 為塊材的晶格常數^[10,14]。

4. 交換異向性

交換異向性(exchange anisotropy)，又常被稱為交換偏壓(exchange bias)，是指當鐵磁層(FM)與反鐵磁層(AFM)形成異質結構時，介面間交換耦合所導致的磁化方向難易。典型的交換偏壓系統($T_N^{AFM} < T_C^{FM}$)，在退火冷卻過程中同時施加外加磁場，當溫度降至鐵磁層的居禮溫度以下時，鐵磁層的磁矩首先恢復排列，並在外加磁場的作用下被固定於特定方向。隨著溫度進一步下降至反鐵磁層的尼爾溫度，反鐵磁層開始建立自旋排列，其介面自旋因交換耦合受到鐵磁層磁矩的影響而定向。冷卻完成後，反鐵磁介面自旋被固定於特定方向，並在後續磁滯曲線量測時對鐵磁層施加一個單向的偏壓，使磁滯曲線沿磁場軸方向產生整體平移，此平移量即稱為交換偏壓場(exchange bias field, H_{ex})^[25]。

第三章 實驗原理與儀器介紹

3-1 脈衝雷射沉積法 (Pulsed Laser Deposition, PLD)

3-1-1 PLD 原理

脈衝雷射沉積(pulsed laser deposition, PLD)是一種物理氣相沉積法(physical vapor deposition, PVD)，能夠於高真空環境或特定氣體壓力條件下進行薄膜生長。其基本原理為利用高能量脈衝雷射轟擊靶材表面，使靶材在極短時間內迅速氣化並形成高動能的電漿團(即所謂的羽流 plume)。隨後羽流沿著靶材的法線方向擴散至基板表面，逐步形成薄膜。PLD 由於能有效保留靶材的成分及結構特性，因此廣泛應用於功能性氧化物、磁性材料及高溫超導材料等薄膜的研究與製備。

PLD 的流程可分成四道步驟：

1. 靶材吸收脈衝雷射。
2. 靶材形成羽流。
3. 羽流抵達並沉積於基板表面。
4. 沉積物質在基板表面結晶成長。

PLD 的優點：

1. 靶材可瞬時氣化或電漿化，對於高熔點或多成分複合材料的薄膜製備有利。
2. 靶材成分可以完整轉移到薄膜上。
3. 可以通過調整雷射輕易地控制薄膜厚度與成長速率。

PLD 的缺點

1. 鍍膜面積小，若鍍膜面積過大則易造成薄膜不均勻。
2. 電漿團在氣化時可能含有較大尺寸的顆粒，導致結晶品質下降。
3. 對比化學氣相沉積(CVD)等技術，PLD 無法實現大規模量產。

3-1-2 PLD 鍍膜系統

PLD 系統的設置可分為三個部分，分別是脈衝雷射、高真空腔體以及真空幫浦系統，整體實驗裝置如下圖 3-1。

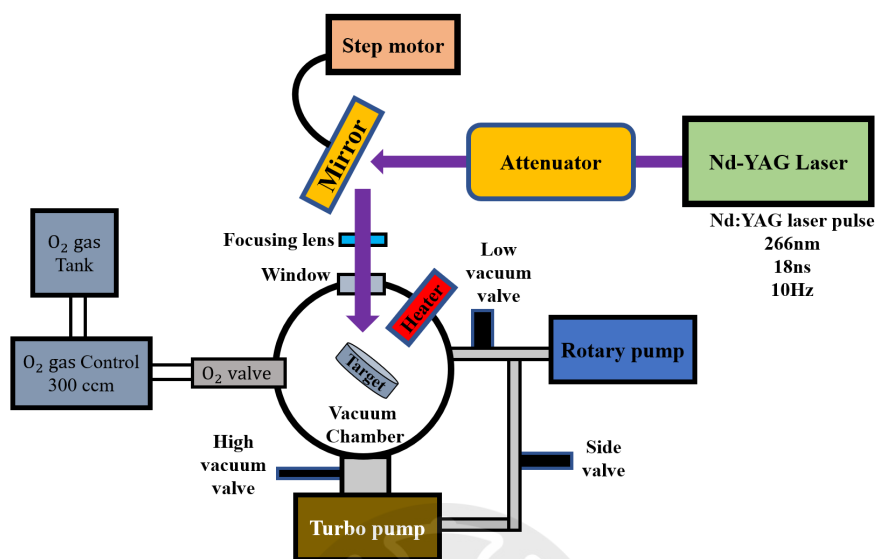


圖 3-1 PLD 鍍膜系統示意圖

脈衝雷射是使用 Nd:YAG 固態雷射作為雷射源，產生脈衝寬度 18 ns、波長 1064 nm 的紅外光雷射，經由四倍頻晶體得到波長 266nm 的紫外光雷射。雷射脈衝經衰減片 (attenuator) 調整至所需的能量，透過反射鏡反射，以透鏡聚焦，穿透真空視窗，打在靶材表面。此外通過程式控制步進馬達控制反射鏡，使雷射光點週期性地沿圓周軌跡打在靶材表面，確保靶材表面消耗均勻，以避免局部損耗，進而維持薄膜沉積速率與均勻度。

真空腔體為不鏽鋼材質，具備良好的密封性與耐腐蝕性。腔體內部配備加熱棒，可加熱基板至所需溫度，以促進薄膜成長品質與結晶性。腔體上設有氧氣進氣閥，並搭配質量流量控制器 (mass flow controller, MFC)，可精準控制沉積過程中的氧氣流量與腔體內部的氧氣分壓，有利於氧化物薄膜的成分與結構控制。抽氣設備由機械幫浦 (rotary pump) 以及渦輪幫浦 (turbo pump) 組成，可將腔體抽至 $10^{-7} \sim 10^{-8} \text{ mbar}$ 。

3-2 X 射線繞射 (X-ray diffraction, XRD)

3-2-1 X-ray 光譜

X 光的波長範圍介於 0.01~10 nm，對應的能量範圍介於 0.1~100 keV，屬於高能電磁波。X 光主要有兩種產生方式。

第一種為 X 光管，其原理是透過對陽極施加高電壓，使陰極發射出的電子獲得高動能後加速撞擊金屬靶材（如銅），在撞擊過程中產生 X 光，包括連續輻射與特徵輻射 (characteristic radiation)^[26]。

連續輻射的原理是當高速電子撞入陽極靶材時，受到原子核的庫倫力吸引而發生偏轉與減速，電子所損失的動能以電磁波形式釋放出來，即為所謂的制動輻射 (Bremsstrahlung)。由於入射電子的動能與其和原子核交互作用的強度皆為連續變化，因此所產生的輻射波長也呈現連續分布，形成連續光譜。

特徵輻射的原理是當高速電子撞擊靶材原子時，其部分動能可傳遞給原子內層(如 K 或 L 殼層)電子，使該電子被激發並逸出，留下一個能階空洞。隨後，外層電子為填補此空洞而發生能階躍遷，釋放出對應的電磁波便是特徵輻射。由於不同電子殼層之間的能階能量差為定值，因此產生的輻射波長為離散的。

第二種為同步輻射光源(synchrotron radiation)，其原理是粒子加速器中，當高能電子以接近光速沿特定軌道運行並在轉彎處發生加速變化時，會釋放出具有高度方向性與高亮度的 X 光。

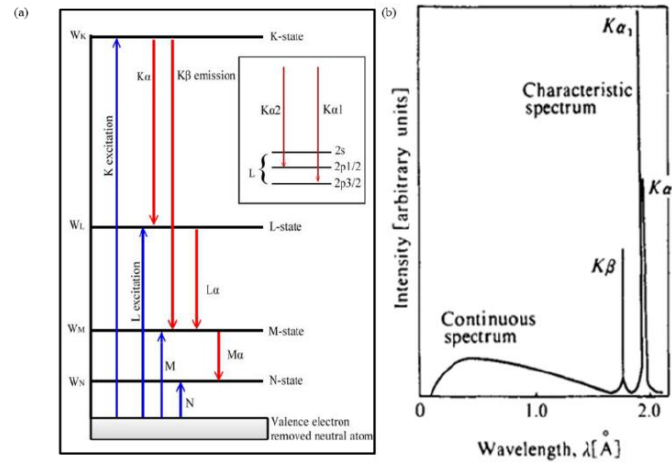


圖 3-2 (a)特徵輻射(b)連續輻射圖

3-2-2 布拉格繞射 (Bragg's Diffraction)

布拉格繞射(Bragg Diffraction)是指波進入晶體時，因晶體內部原子呈週期性排列，導致入射波在晶面反射後產生建設性干涉的現象。假設晶體中有若干層相距 d 且彼此平行的晶面，當 X 光以入射角 θ 射入時，會在晶面上被晶體中的原子如鏡面般反射，如圖 3-3。若相鄰兩晶面所反射的波之路徑差為入射波波長的整數倍，則反射波將產生建設性干涉，形成明顯的繞射訊號。X 光光程差公式為：

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (3.1)$$

其中， n 為繞射級數(正整數)， λ 為入射光的波長， d 為晶格間距(interplanar spacing)， θ 為 X 光的入射線與繞射晶面的夾角。

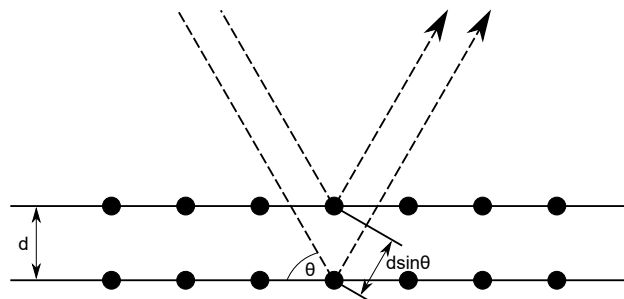


圖 3-3 布拉格繞射示意圖^[27]

透過 X 光照射晶體並量測其在不同晶面上的繞射角度，即可根據布拉格定律計算出各晶面之間的晶面間距(d)，進而推算晶體的晶格常數與晶粒尺寸等結構資訊。以本文所研究的材料 YIG 和 TmIG 為例，兩者皆屬立方晶系，其薄膜在 XRD 測量中皆以(111)晶向進行掃描。在立方晶系中，晶格間距(d)與晶格常數(a)的關係式如下：

$$d = \frac{a}{\sqrt{h^2+k^2+l^2}} \quad (3.2)$$

對於(444)繞射面(即 $h = k = l = 4$)，可代入得：

$$d_{(444)} = \frac{a}{\sqrt{4^2+4^2+4^2}} = \frac{a}{\sqrt{48}} \quad (3.3)$$

晶粒尺寸(D)則使用謝勒公式(Scherrer equation)計算：

$$D = \frac{k\lambda}{FWHM \times \cos \theta} \quad (3.4)$$

其中 D 為晶粒尺寸， k 為形狀因子，範圍為 0.8~1.2，通常設定為 0.9， λ 為銅靶 $K_{\alpha 1}$ 的 X-ray 波長($\lambda = 1.5406\text{\AA}$)，FWHM 為繞射峰的半高寬， θ 為繞射峰位置。

3-3 振動樣品磁力計 (Vibrating sample magnetometer, VSM)

振動樣品磁強計(vibrating sample magnetometer, VSM)是透過機械振動樣品並即時偵測感應線圈訊號的方式，能快速且準確地量測材料的磁化特性。測量時，將樣品在均勻外加磁場中以固定頻率上下振動。當樣品具磁化時，其磁矩隨振動位置的改變，導致拾波線圈(pickup coil)中的磁通量隨時間變化。根據法拉第定律，該時變磁通量在線圈中誘發感應電壓(電流訊號)，透過鎖相放大器偵測並放大後，所測得的訊號強度與樣品磁化強度成正比^[28]。藉此即可計算出材料的磁性參數，如：飽和磁化量(Saturation magnetization)、殘磁(remanence)、矯頑力(Coercivity)等，並繪製出磁滯曲線。

本實驗測量所使用的儀器為 MicroSense 公司的 EZ9，樣品振動頻率為 75Hz，且最高可施加 2.6T 的磁場。



MicroSense® EasyVSM™

圖 3-4 MicroSense EZ9 VSM^[28]

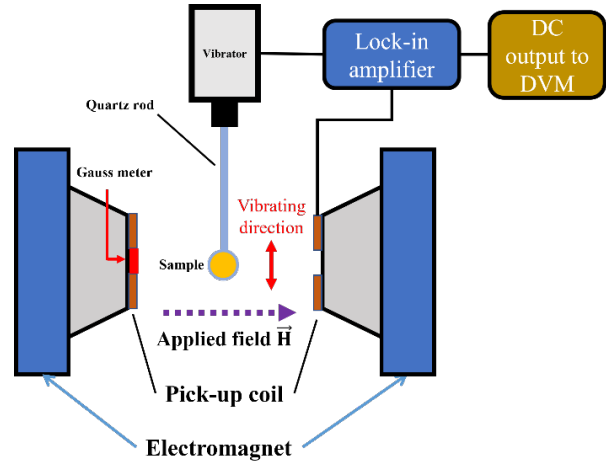


圖 3-5 VSM 儀器示意圖

3-4 磁光法拉第效應 (Magneto-optic Faraday effect, MOFE)

3-4-1 MOFE 原理

磁光法拉第效應(magneto-optic Faraday effect, MOFE)是當線性偏振光通過置於外加磁場中的材料時，光的偏振方向會產生一定角度的旋轉，其角度稱為法拉第旋轉角(Faraday rotation angle, θ_F)。其原理可透過線性偏振光的分解來理解。線性偏振光可視為左旋圓偏振光(left circularly polarized light, LCP)和右旋圓偏振光(right circularly polarized light, RCP)的線性組合。光在通過外加磁場的介質中，左旋和右旋偏振光分別會有不同的折射率 n_- (LCP)和 n_+ (RCP)。由於折射率不同，兩者在材料中傳播的相位也不同，其相位可以表示為：

$$\phi_+ = \frac{\omega}{c} n_+ L \text{ (RCP)}, \quad \phi_- = \frac{\omega}{c} n_- L \text{ (LCP)} \quad (3.5)$$

其中 ω 為入射光的角頻率， c 為光速， L 為材料厚度。

因此這兩個的相位差為：

$$\Delta\phi = \frac{\omega}{c} L(n_+ - n_-) \quad (3.6)$$

若假設入射光為線性偏振光，則其電場可分別表達為 x 和 y 的分量，形式如下：

$$E_x = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\phi_+} + e^{i\phi_-}), E_y = \frac{1}{\sqrt{2}}(-ie^{i\phi_+} + ie^{i\phi_-}) \quad (3.7)$$

令 $\Delta\phi = \phi_+ - \phi_-$ ，以及 $\bar{\phi} = \frac{\phi_+ + \phi_-}{2}$ 帶入上式並整理可得：

$$E_x = e^{i\bar{\phi}}\sqrt{2} \cos \frac{\Delta\phi}{2}, E_y = e^{i\bar{\phi}}\sqrt{2} \sin \frac{\Delta\phi}{2} \quad (3.8)$$

而此時穿透材料的光依舊是線偏振，且和 x 軸形成角度 θ_F ：

$$\theta_F = \arctan \frac{E_y}{E_x} = \frac{\Delta\phi}{2} \quad (3.9)$$

最後，法拉第旋轉角 θ_F 常表示為與磁場 B 和樣品厚度 L 成正比的關係，其關係式為：

$$\theta_F = VBL \quad (3.10)$$

其中 V 為韋爾代常數(Verdet constant)，用以描述材料中法拉第效應的強度，與材料本身、波長與溫度有關^[29]。

3-4-2 MOFE 測量系統

本實驗架設的法拉第磁光效應量測系統如圖所示，整體架構包含氙燈(Xe lamp)作為光源，搭配斬波器(chopper)、起偏器(polarizer)、檢偏器(analyzer)、光電倍增管(photo-multiplier tube, PMT)、鎖相放大器(lock-in amplifier)以及光譜儀。氙燈提供 200 至 600 nm 波長範圍的連續光源；電磁鐵則能產生最高 0.9 T 的磁場，方向與光路平行。量測時，斬波器頻率設定為 163 Hz，用於調制光訊號並搭配鎖相放大器進行偵測。

測量過程中，光源先經過起偏器，產生線性偏振光，接著穿透待測樣品後，因左旋與右旋偏振分量在樣品介質中折射率與吸收率皆不同，產生相位差並形成橢圓偏振光。最後透過檢偏器與光譜儀量測光強度變化，即可推算出法拉第旋轉角度的大小。

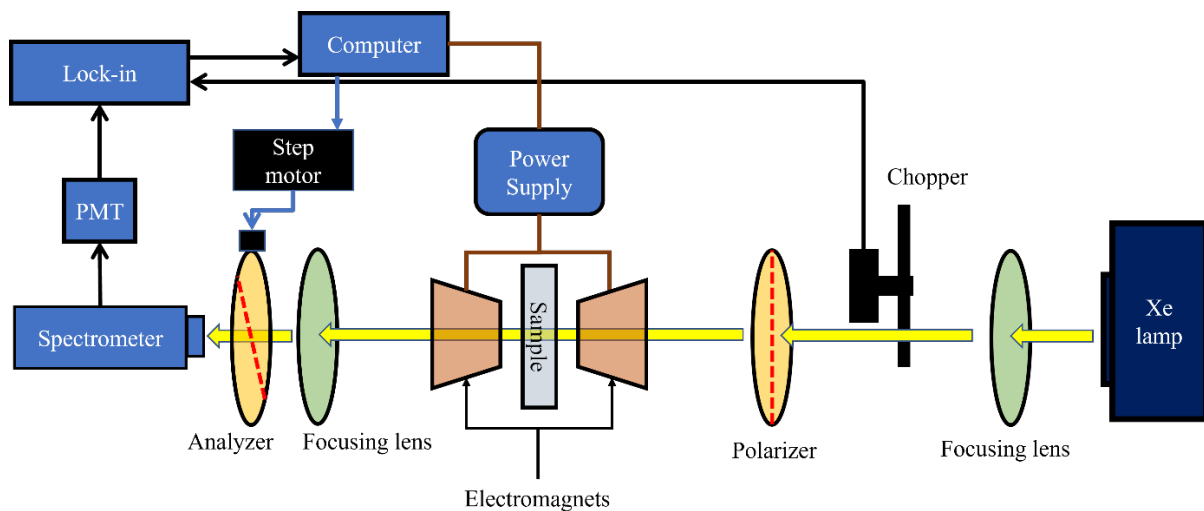


圖 3-6 MOFE 架設示意圖

3-5 磁性圓二色性 (Magnetic Circular Dichroism, MCD)

磁性圓二色性(magnetic circular dichroism, MCD)是一種磁光效應，當材料處於外加磁場中時，對左旋(LCP)與右旋(RCP)圓偏振光的吸收產生差異的現象。其原理是材料在磁場作用下，電子能階會因自旋與軌道角動量與外加磁場的交互作用而發生分裂，這種現象稱為 Zeeman 分裂(Zeeman splitting)。Zeeman 分裂會改變電子在能階間進行磁偶極躍遷(magnetic dipole transition)的選擇規則與躍遷機率，進而影響材料對左、右旋圓偏振光的吸收率不同。這種吸收差異便可透過 MCD 光譜量測呈現，進而提供關於材料電子結構、自旋態與磁性行為的關鍵資訊^[30]。

本實驗的磁性圓二色性光譜測量使用氙燈作為光源，針對 200~600 nm 波段行測量，外加磁場則利用永久磁鐵 1.6 T、0.8 T 以及電磁鐵 0.1 T、0.05 T、0.02 T。

第四章 樣品製備

我們利用脈衝雷射沉積法(PLD)製備所有薄膜樣品，本章節會詳細說明鍍膜流程以及鍍膜條件，如表 4-1。

表 4-1 PLD 鍍膜參數

製備條件			
雷射重複率	10 Hz	雷射波段	266 nm
脈寬	18 ns	雷射能量密度	2.9 J/cm ²
基板與靶材間距	5.0 cm	基板溫度	525 °C
鍍膜前背景壓力	$\leq 8.0 \times 10^{-7}$ mbar	鍍膜氧氣壓力	3.0×10^{-1} mbar
靶材	YIG、TmIG	鍍膜厚度	30 nm
操縱變因			
基板	YAG、GGG	退火溫度	850°C、950°C、1050°C

4-1 基板清洗

1. 將基板從塑膠封膜中取出。
2. 將基板放入盛裝丙酮的燒杯內，放入超聲波震洗機震洗 20 分鐘，以去除殘膠。
3. 將基板放入盛裝酒精的燒杯內，放入超聲波震洗機震洗 20 分鐘。
4. 將基板放入盛裝去離子水的燒杯內，放入超聲波震洗機震洗 20 分鐘。
5. 最後將基板取出置於抽氣平台固定，由氮氣吹乾基板，並確認是否清理乾淨。

4-2 鍍膜流程

鍍膜流程有五道流程，分別是樣品製備、腔體抽真空、通氧升溫、調整雷射、鍍膜。

1. 樣品製備

- i. 所有使用到的器具包含套筒、holder、遮罩(shadow mask)、螺絲、螺絲起子、樣品夾及靶材座，皆需以沾有 IPA 的無塵紙擦拭清潔。
 - ii. 將基板放置於套筒上，並利用 holder 固定於中央，再覆蓋一層遮罩以決定薄膜圖案。確認基板與薄膜圖案均居中後，再依照對角順序逐一鎖緊螺絲。
 - iii. 將靶材以砂紙研磨平整後，安裝至靶材座上。
2. 腔體抽真空
- i. 確認渦輪幫浦對腔體閥門(高真空閥)已關閉後，通入氮氣破除腔體真空。
 - ii. 將套筒及靶材座送入真空腔體內，其中套筒放置於加熱棒上，並升起擋板將套筒遮蔽；靶材座則安裝於可自由旋轉的支架上。
 - iii. 關閉氮氣，開啟機械幫浦對腔體閥門(低真空閥)，將腔體壓力抽至 $5 \times 10^{-3} \text{ mbar}$ (低真空)。
 - iv. 關閉低真空閥後，緩慢開啟高真空閥，同時注意控制渦輪幫浦之負載電流及轉速，將腔體內壓力逐步抽至 $7 \times 10^{-7} \text{ mbar}$ (高真空)。
3. 通氧升溫
- i. 帶腔體達到高真空狀態後，關閉高真空閥。
 - ii. 通入純氧氣(純度 99.999%)，同時藉由調整低真空閥開啟程度，控制並維持腔體內氧氣壓力在 $3 \times 10^{-1} \text{ mbar}$ 。
 - iii. 設定完成加熱棒相關參數後啟動加熱，將套筒上的基板溫度提升至 $525 \text{ }^\circ\text{C}$ 。
4. 調整雷射
- i. 在基板升溫的同時，將雷射開啟並設定在較低能量(25 mJ)，調整光路並檢查雷射光點是否對準於靶材中心位置。
 - ii. 確認定位完成後，將雷射能量提升至(37 mJ)，並調整四倍頻晶體之角度，以達到更高且更穩定的雷射輸出，同時預熱 20 分鐘。
5. 鍍膜

- i. 待基板與雷射預熱完成後，利用衰減盒將雷射能量密度調整至 2.9 J/cm^2 。接著啟動雷射繞圓程式，透過步進馬達操控反射鏡，精準控制雷射光點於靶材上的位置。
- ii. 再次確認擋板已升起後，進行預鍍程序，使雷射先行清潔靶材表面。
- iii. 清靶完成後，記錄當下雷射相關參數，接著將擋板移開，開始正式鍍膜。鍍膜結束後，關閉氧氣，並依序使用機械幫浦及渦輪幫浦將腔體抽回高真空狀態，同時關閉加熱棒並進行降溫。
- iv. 待降溫完成後，通入氮氣以破除真空狀態，隨後取出樣品。

4-3 退火流程

退火是薄膜製程中常見的熱處理方法，藉由使薄膜分子在高溫下重新排列，不僅能有效提升薄膜的結晶品質，亦可降低內部應力、修補材料缺陷，進而改善薄膜的電性與光學性質，達到更穩定且優異的整體性能。

設定參數:

1. 升溫至 $1050\text{ }^\circ\text{C}$: $15\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 。
2. 持溫 4 小時。
3. 降至室溫，速率: $15\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 。

第五章 實驗結果分析

5-1 晶體結構特性

此次實驗於室溫下測量，針對成長於 YAG(111) 與 GGG 基板(111) 上的 YIG 及 TmIG 薄膜，透過改變退火溫度後，進行 X 光繞射測量，測量的角度範圍為 $2\theta = 49.5^\circ \sim 54.5^\circ$ 。

圖 5-1 中，我們皆可在 $2\theta = 52.84^\circ$ 處觀察到基板 YAG(444) 的繞射峰，此外在基板主峰左側亦分別出現 YIG(444) 與 TmIG(444) 的繞射峰。除了薄膜的繞射峰之外，未觀察到其他明顯的繞射峰，表示製備之薄膜具有單晶結構特性且沿著(111)方向生長。隨著退火溫度升高，YIG 與 TmIG 薄膜的繞射峰位置皆出現往高角度方向偏移的現象，繞射峰的強度和寬度也下降及變寬。這代表薄膜的晶格常數隨著退火溫度升高而降低，薄膜結晶品質則隨著退火溫度越高而下降。

圖 5-2 中，我們皆可在 $2\theta = 51.06^\circ$ 處觀察到基板 GGG(444) 的繞射峰。在 TmIG/GGG 的 XRD 光譜中，我們觀察到在基板主峰右側出現 TmIG(444) 繞射峰。而在 YIG/GGG 的 XRD 光譜中，我們發現分別在基板主峰左右兩側出現繞射峰。推測為薄膜內部產生雙層結構所致。此現象與 Ravinder Kumar 等人於 YIG/GGG 薄膜進行高溫退火並自然降溫後所觀察到的雙層結構相符^[31]，其中 peak1 為底層，peak2 為上層。此外，在 950°C 退火的樣品中可觀察到明顯的勞厄震盪(Laue oscillations)。除了薄膜的繞射峰之外，未觀察到其他的繞射峰，表示所製備之薄膜具有單相結構特性且沿著(111)方向生長。與在 YAG 基板上成長的薄膜相比，YIG/GGG 薄膜的繞射峰位置皆隨退火溫度增加往高角度方向偏移，晶格常數隨退火溫度升高而降低。但繞射峰的強度則隨著退火溫度升高而下降，薄膜的結晶品質則以出現明顯勞厄震盪的 950°C 退火樣品為最佳。而 TmIG/GGG 薄膜的繞射峰位置則向低角度方向偏移，晶格常數則隨退火溫度升高而增加，繞射峰的強度與寬度則隨著退火溫度升高而下降與變寬，薄膜的結晶品質隨退火溫度越高而下降。

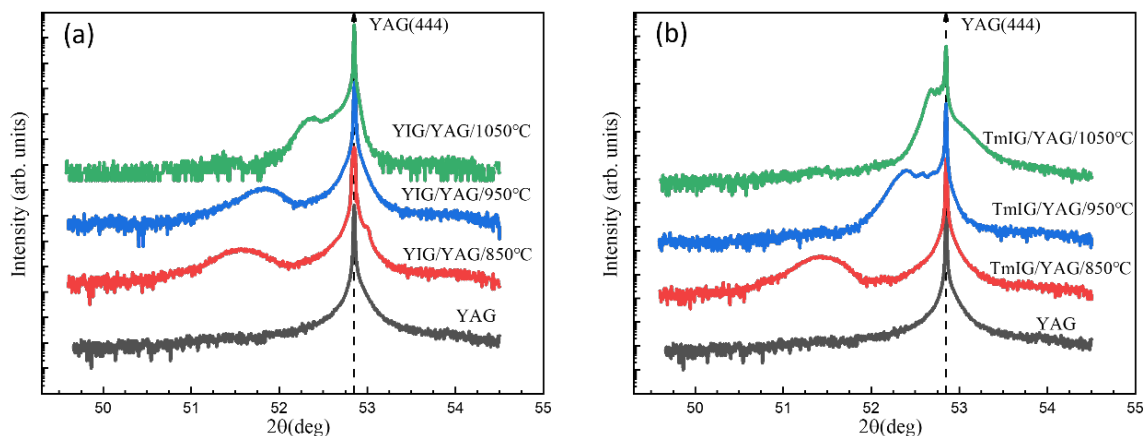


圖 5-1 (a)YIG/YAG 和(b)TmIG/YAG 薄膜樣品的 X 光繞射光譜

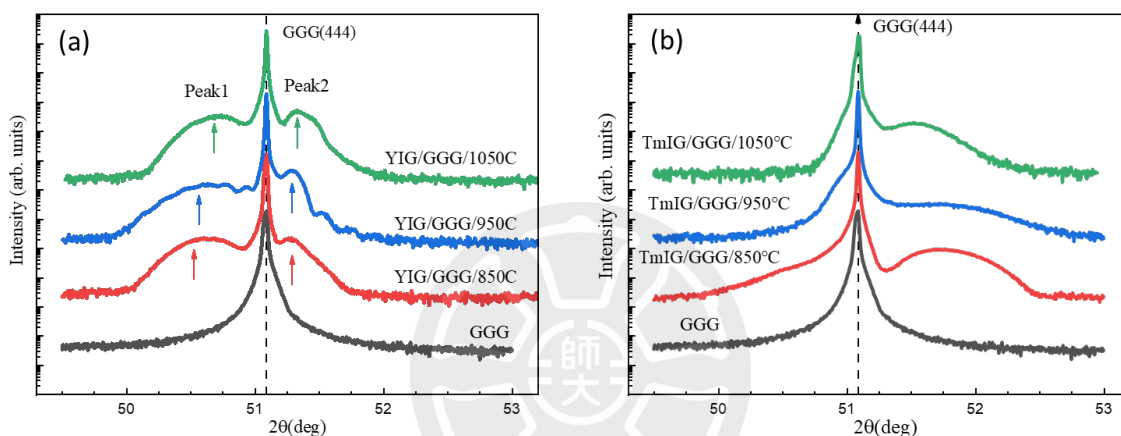


圖 5-2 (a)YIG/GGG 和(b)TmIG/GGG 薄膜樣品的 X 光繞射光譜

藉由對上述 YIG 與 TmIG 成長於 YAG 與 GGG 基板的薄膜之(444)繞射峰進行 Gaussian 函數擬合，得出峰值位置、半高寬 (FWHM) 等參數，並利用式(3.3)、式(3.4) 計算出晶格常數、晶粒尺寸與應變，如表 5-1、表 5-2。

表 5-1 不同退火溫度下 YIG 與 TmIG 長在 YAG 之晶格間距、晶格常數、晶粒尺寸與應變

Annealing Temperature (°C)	d_{444} (Å)		Lattice Constant (Å)		Crystallite size (nm)		Strain (%)	
	YIG	TmIG	YIG	TmIG	YIG	TmIG	YIG	TmIG
850	1.770	1.775	12.266	12.299	15.209	17.970	-0.89	-0.204
950	1.762	1.744	12.213	12.085	18.638	28.568	-1.32	-1.942
1050	1.745	1.735	12.091	12.020	32.007	53.430	-2.30	-2.467

表 5-2 不同退火溫度下 YIG 薄膜長在 GGG 之晶格間距、晶格常數、晶粒尺寸與應變

Annealing Temperature(°C)	d_{444} (Å)		Lattice Constant (Å)		Crystallite size (nm)		Strain (%)	
	Peak1	Peak2	Peak1	Peak2	Peak1	Peak2	Peak1	Peak2
850	1.801	1.781	12.480	12.338	18.836	34.089	0.839	-0.311
950	1.800	1.780	12.472	12.333	15.823	55.352	0.779	-0.345
1050	1.799	1.778	12.462	12.319	20.714	37.863	0.692	-0.458

表 5-3 不同退火溫度下 TmIG 薄膜長在 GGG 之晶格間距、晶格常數、晶粒尺寸與應變

Annealing Temperature (°C)	d_{444} (Å)	Lattice Constant (Å)	Crystallite size (nm)	Strain (%)
850	1.765	12.227	15.268	-0.783
950	1.767	12.246	9.743	-0.637
1050	1.772	12.280	17.906	-0.357

由圖 5-3 可觀察到，成長在 YAG、GGG 基板上的 YIG 薄膜晶格常數都會從隨著退火溫度的上升而減小，分別從 12.266 Å 降到 12.091 Å (YAG 基板)、12.480 Å 降到 12.462 Å (GGG 基板的 Peak1)、12.338 Å 降到 12.319 Å (GGG 基板的 Peak2)。成長在 YAG 基板上的 TmIG 薄膜晶格常數隨退火溫度的上升從 12.299 Å 降到 12.020 Å；而成長在 GGG 基板上的 TmIG 薄膜晶格常數則隨退火溫度的上升從 12.227 Å 增大到 12.280 Å。

在晶粒尺寸方面，從圖 5-4 中可觀察到，成長於 YAG 基板上的薄膜，晶粒尺寸皆隨著退火溫度的升高而增大，其中 YIG 薄膜從 15.209 nm 增大到 32.007 nm，TmIG 薄膜從 17.970 nm 增大到 53.430 nm。在 GGG 基板上，晶粒尺寸則與退火溫度沒有相關性，其中 YIG 薄膜 Peak1 大約在 15~21 nm、Peak2 大約在 30~56 nm，TmIG 薄膜大約在 9~18 nm。

在垂直應力方面，薄膜所承受的垂直方向的應變 ϵ 為：

$$\epsilon = \frac{d_{444}^{film} - d_{444}^{bulk}}{d_{444}^{bulk}}$$

其中， d_{444}^{film} 是結晶薄膜的 (444) 晶面間距， d_{444}^{bulk} 是塊材晶體的 (444) 晶面間距。成長於 YAG 基板的薄膜均承受壓縮應力，且應力強度隨退火溫度升高而增加。YIG 薄膜的應變強度從 0.89% 增強到 2.3%，TmIG 薄膜的應變則是從 0.2% 增強到 2.5%。相較之下，在 GGG 基板上薄膜所承受的應變則隨著退火溫度升高而有不同的表現：YIG 薄膜的 Peak1 承受拉伸應力，並從 0.84% 降低至 0.69%、Peak2 則承受壓縮應力，並從 0.31% 增加至 0.45%。TmIG 薄膜則仍承受壓縮應力，並從 0.78% 逐漸釋放置 0.35%。

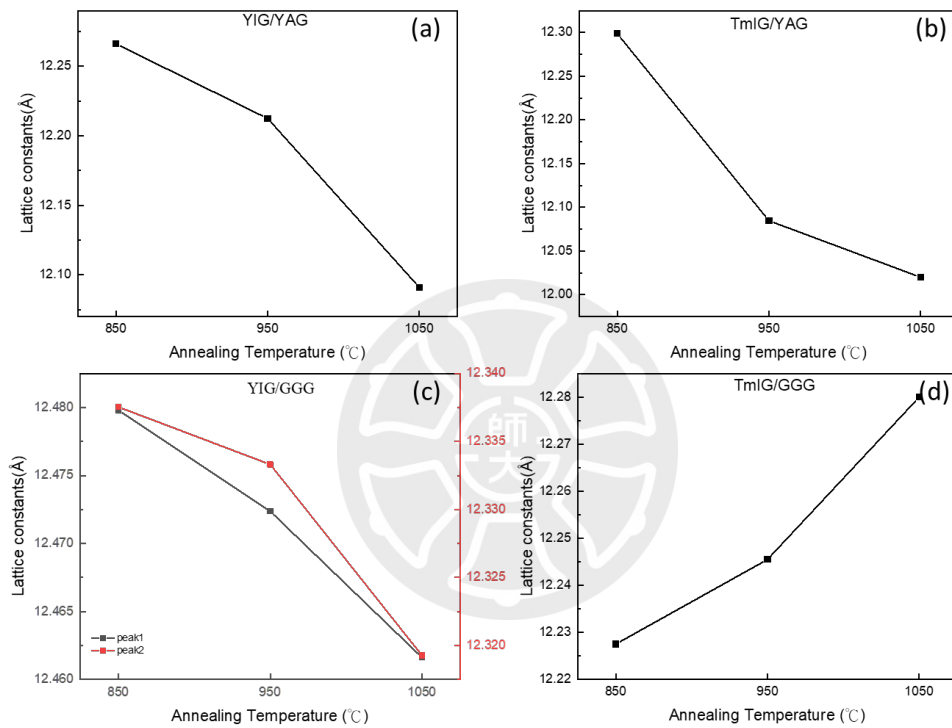


圖 5-3 (a)YIG/YAG (b)TmIG/YAG (c)YIG/GGG (d)TmIG/GGG 薄膜樣品之晶格常數

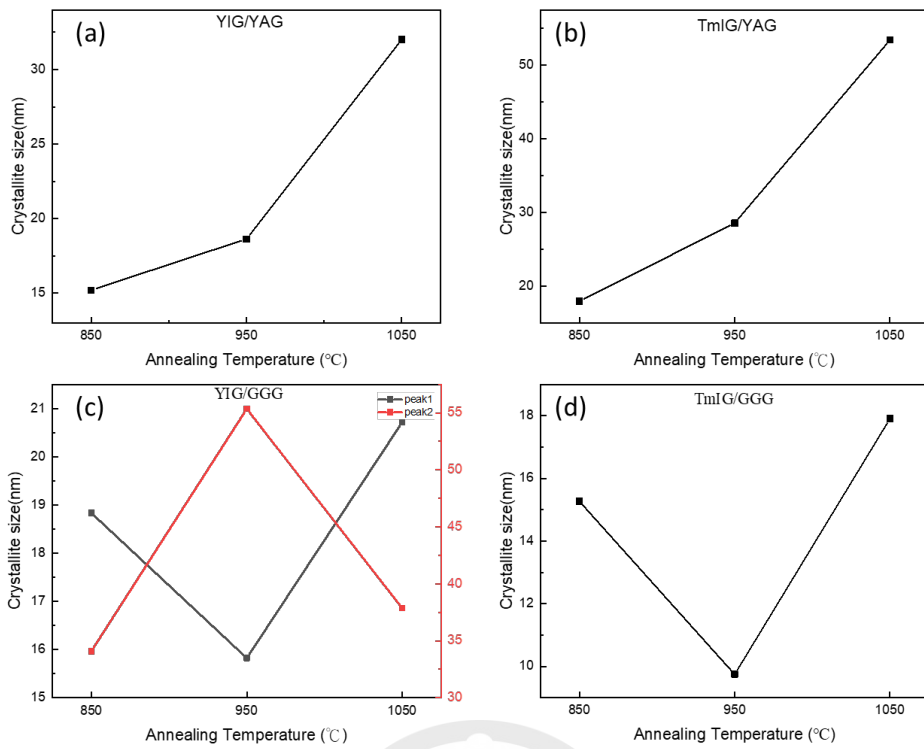


圖 5-4 (a)YIG/YAG (b)TmIG/YAG (c)YIG/GGG (d)TmIG/GGG 薄膜樣品之晶粒尺寸

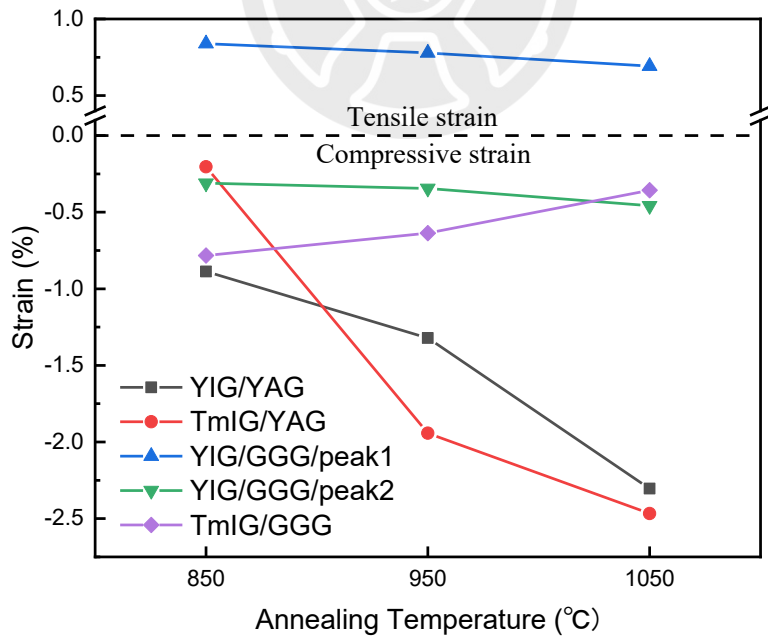


圖 5-5 YIG 與 TmIG 長在 YAG 與 GGG 基板之應變圖

5-2 薄膜磁性特性

我們針對成長於 YAG(111) 與 GGG(111) 基板上的 YIG 及 TmIG 薄膜，在改變不同退火溫度條件後，使用 VSM 測量磁滯曲線，對於成長於 YAG 基板的薄膜外加 12000 Oe 的磁場，對於成長於 GGG 基板的薄膜外加 2000 Oe 磁場，每 15 度改變磁場傾斜角度，測量 0~360 度的磁滯曲線。

圖 5-6 顯示成長於 YAG 基板、不同退火溫度下 YIG 薄膜在不同磁場角度的磁滯曲線，用以分析退火溫度對飽和磁化量(M_s)的影響。圖 5-7 發現隨著退火溫度由 850°C 提升至 1050°C 增加，樣品的飽和磁化量由 32.85 emu/cm³ 下降至 10.62 emu/cm³。其中 950°C 退火樣品校正後的 M_s 略低於 1050°C 退火樣品，是因為 1050°C 樣品的實際膜厚較其他樣品增加約 10 nm。我們觀察到隨著退火溫度升高，殘磁(M_r)在 850 在退火 850°C 的樣品為垂直磁易軸，在退火 950°C 的樣品中無明顯磁易軸，在退火 1050°C 的樣品為水平磁易軸。從方正度(M_r/M_s)的變化可判斷磁易軸走向。在退火 850°C 的樣品為垂直磁易軸。此現象與 Jianbo Fu 等人在晶格失配的 SGGG 基板上沉積 YIG 薄膜中，當厚度削減至臨界厚度(20~40 nm)後，應變異向能克服形狀異向能導致成垂直磁易軸^[32]相同。隨著退火溫度增加，由垂直易軸轉變為無明顯易軸。此外，最大的矯頑場(H_c)則隨著退火溫度由約 140 Oe 增加至 677 Oe，顯示薄膜由軟磁逐漸轉變為硬磁。

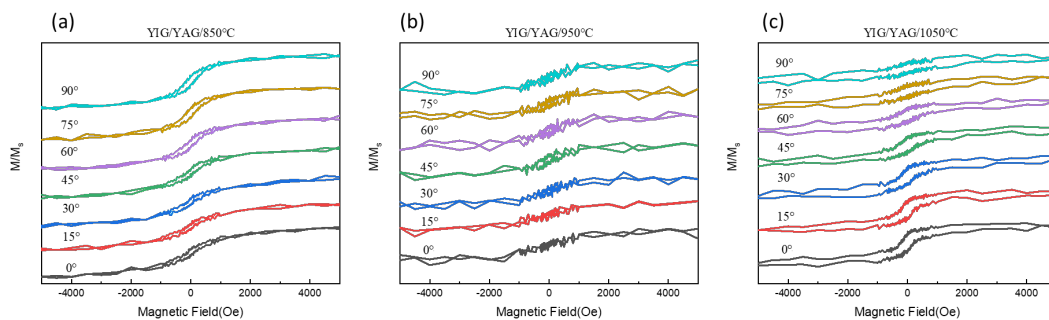


圖 5-6 YIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之磁滯曲線

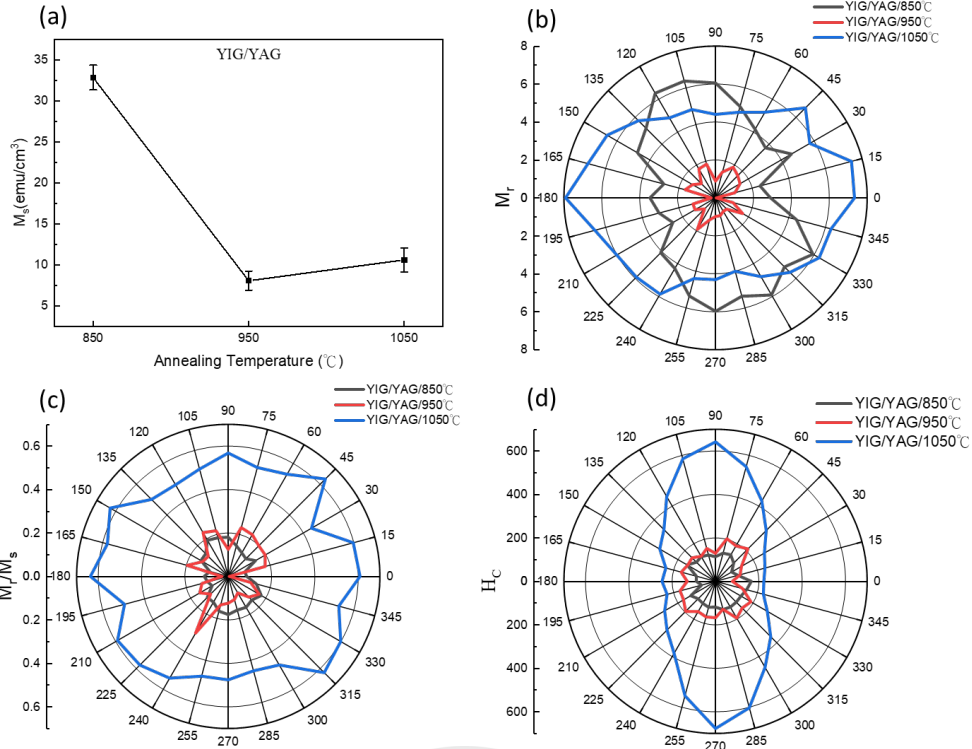


圖 5-7 YIG/YAG (a)薄膜飽和磁化量對溫度圖(b) M_r (c) M_r/M_s (d) H_c 對角度圖

圖 5-8 顯示成長於 YAG 基板、不同退火溫度下 TmIG 薄膜在不同磁場角度的磁滯曲線，用以分析退火溫度對飽和磁化量(M_s)的影響。圖 5-9 發現隨著退火溫度由 850°C 提升至 1050°C，樣品的飽和磁化量由 46.39 emu/cm³ 下降至 10.96 emu/cm³。顯示殘磁(M_r)與退火溫度沒有明顯的相關性，各樣品也無明顯磁易軸。從方正度(M_r/M_s)的分析同樣未觀察到明顯磁易軸。此外，最大的矯頑場(H_c)則隨著退火溫度由約 28 Oe 增加至 267.5 Oe，顯示薄膜由軟磁逐漸轉變為硬磁。

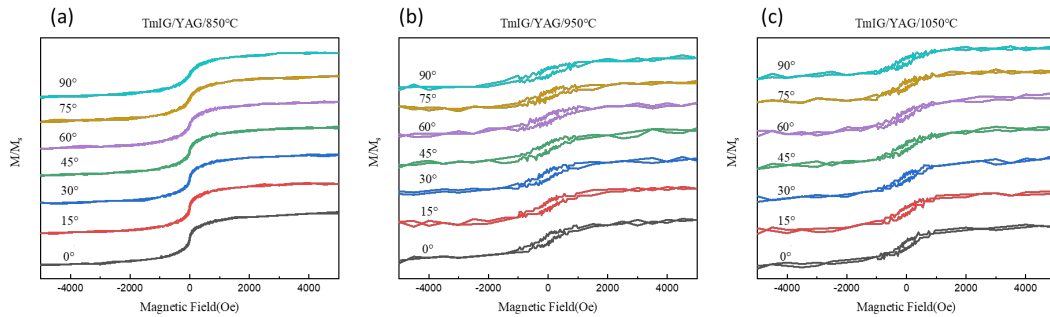


圖 5-8 TmIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之磁滯曲線

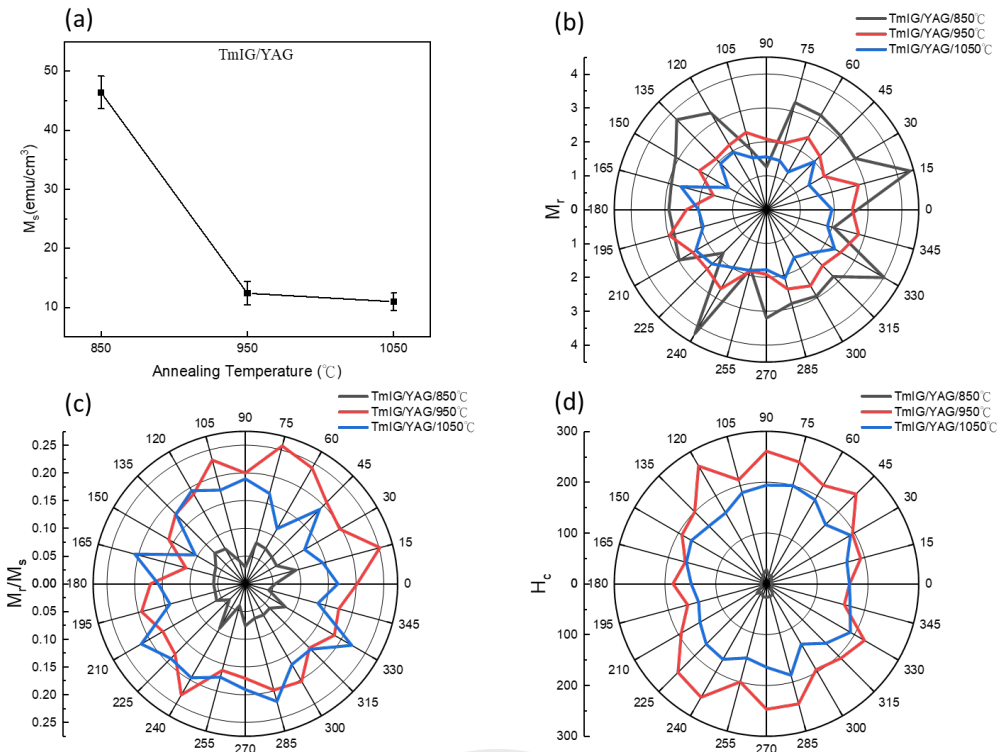


圖 5-9 YIG/YAG (a)薄膜飽和磁化量對溫度圖(b) M_r (c) M_r/M_s (d) H_c 對角度圖

圖 5-10 顯示成長於 GGG 基板上、不同退火溫度之 YIG 薄膜在不同磁場角度下的磁滯曲線，用以分析退火溫度對飽和磁化量(M_s)的影響。圖 5-11 隨著退火溫度由 850°C 提升至 1050°C，樣品的飽和磁化量由 81.73 emu/cm^3 下降至 60.92 emu/cm^3 。與成長在 YAG 基板的 YIG 薄膜不同，GGG 基板上的樣品飽和磁化量標準差較大。各退火樣品的殘磁(M_r)，可見所有樣品的磁易軸皆為水平易軸，且殘磁值在 950°C 樣品中達到最大值。從方正度(M_r/M_s)的分析結果也確認所有樣品均呈現為水平磁易軸特性。此外，矯頑場(H_c)與退火溫度無明顯相關性，其最大值同樣出現在 950°C 退火樣品中。

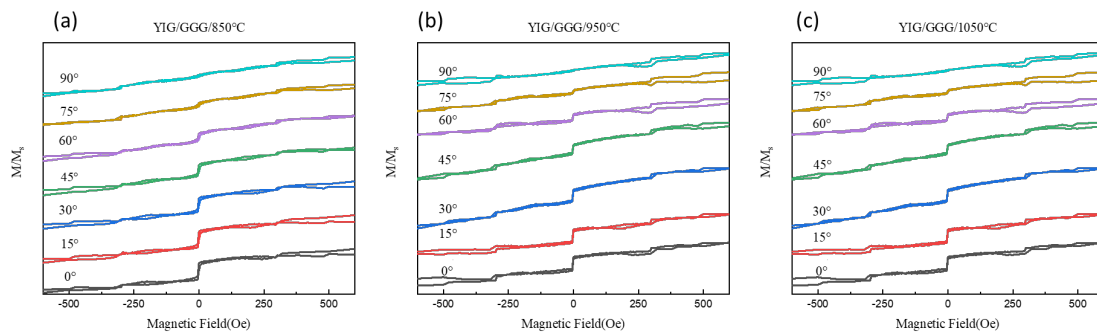


圖 5-10 YIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之磁滯曲線

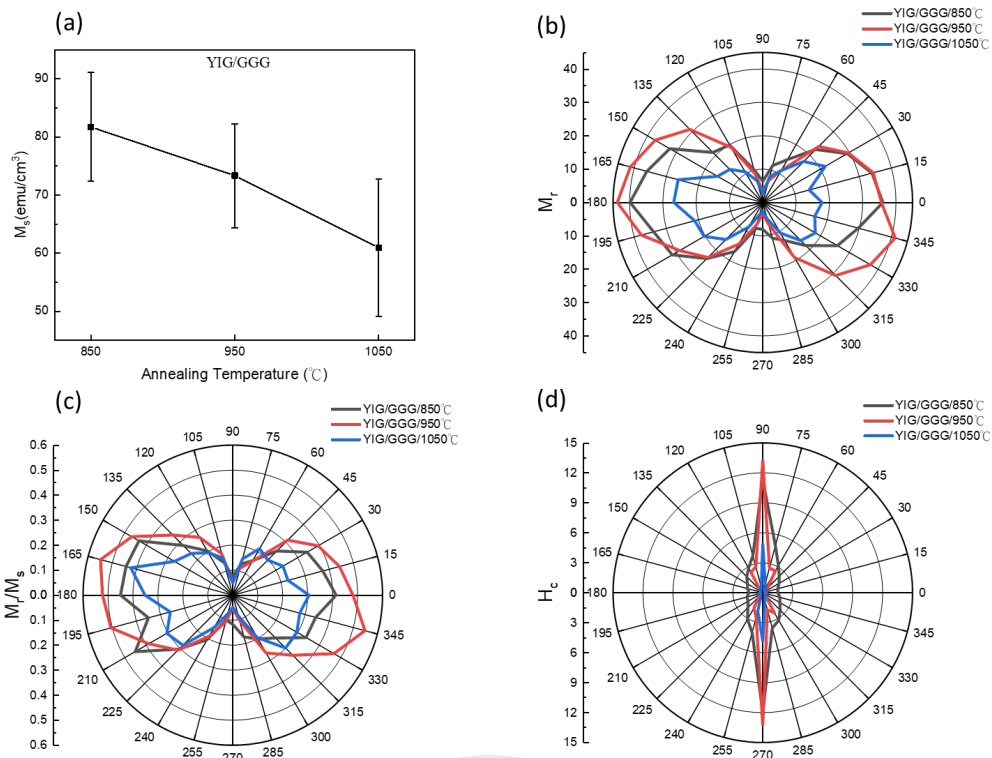


圖 5-11 YIG/GGG (a)薄膜飽和磁化量對溫度圖(b) M_r (c) M_r/M_s (d) H_c 對角度圖

圖 5-12 顯示成長於 GGG 基板上、不同退火溫度之 TmIG 薄膜在不同磁場角度下的磁滯曲線，用以分析退火溫度對飽和磁化量(M_s)的影響。圖 5-13 隨著退火溫度由 850°C 提升至 1050°C，樣品的飽和磁化量由 31.54 emu/cm³ 下降至 17.94 emu/cm³。各退火樣品的殘磁(M_r)，可見所有樣品皆無明顯磁易軸，且殘磁值甚至出現負值，推測與基板本身的磁性貢獻相關。從方正度(M_r/M_s)的分析結果也確認樣品無磁易軸。此外，矯頑場(H_c)與退火溫度隨溫度增大，由 15.83 Oe 上升至 52.93Oe，顯示薄膜由軟磁逐漸轉變為硬磁。

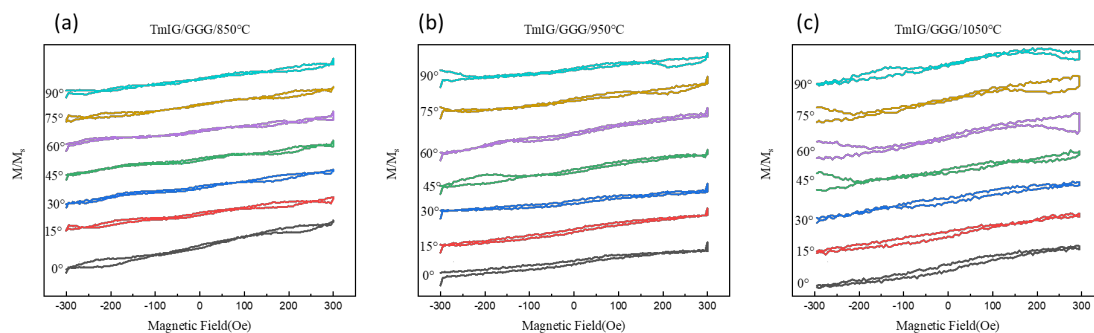


圖 5-12 TmIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之磁滯曲線

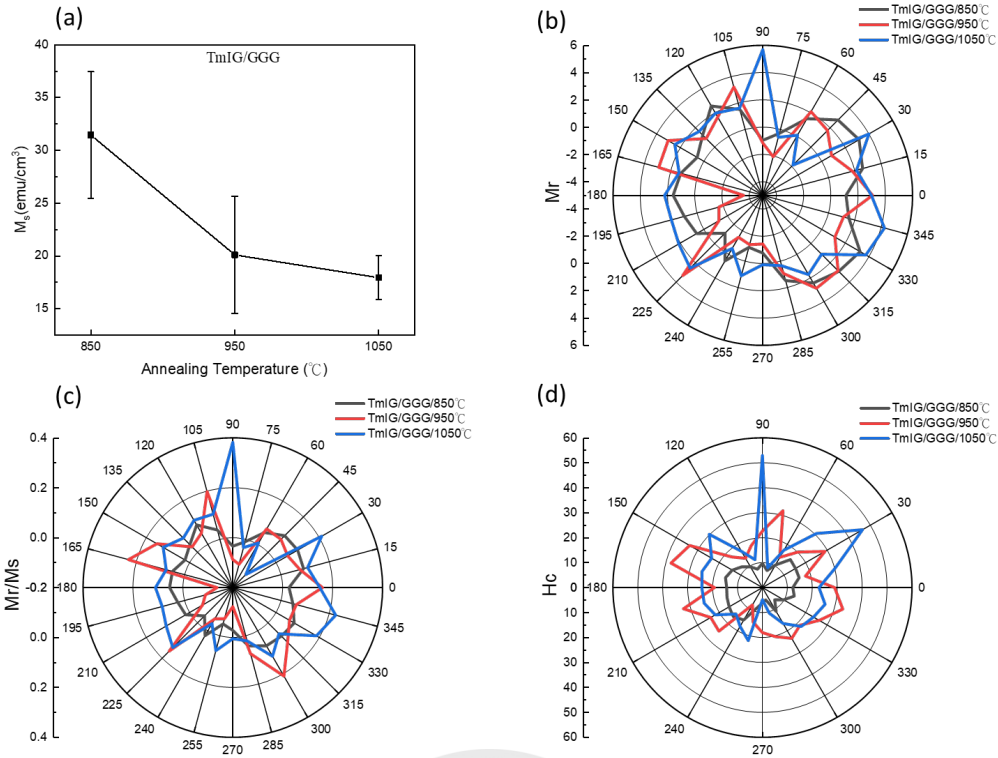


圖 5-13 TmIG/GGG (a) 薄膜飽和磁化量對溫度圖 (b) M_r (c) M_r/M_s (d) H_c 對角度圖

5-3 薄膜磁光特性

5-3-1 磁光法拉第分析

此次實驗於室溫下進行，針對成長於 YAG(111) 與 GGG(111) 基板上的 YIG 及 TmIG 薄膜，在改變不同退火溫度條件後，進行法拉第磁光效應光譜測量。實驗使用氬燈作為光源，並使光線垂直穿透樣品，同時施加方向平行於光路的外加磁場 (± 922 mT)。量測波段範圍設定於 200 至 600 nm，以分析旋轉角隨波長的變化行為，來探討退火溫度對薄膜磁光特性的影響。因為薄膜的厚度只有 30 nm，因此法拉第旋轉角 θ_F 很小，所以我們計算 $\Delta\theta_F$ ，即將外加磁場 +922 mT 下測量到的旋轉角減去外加磁場 -922 mT 下測量到的旋轉角， $\Delta\theta_F = \theta_{F,B=+922mT} - \theta_{F,B=-922mT}$ ，來判斷是薄膜在該波長是否有法拉第磁光效應。

圖 5-14 顯示 YIG 薄膜成長在 YAG 基板上且以 850°C 退火的樣品在 350 ~ 550 nm 具有法拉第磁光效應。隨著退火溫度升高至 950°C 後，薄膜在測量的波段完全沒有法拉第磁光效應。圖 5-15 顯示 TmIG 薄膜成長在 YAG 基板上且以 850°C 退火的樣品在 320 ~ 500 nm 有法拉第磁光效應。此光譜在 400 nm 時，法拉第旋轉角由正值變為負值，這是因為左旋與右旋圓偏振光的折射率差異的緣故，正值代表左旋圓偏振光的折射率大於右旋圓偏振光的折射率，負值則恰好相反。隨著退火溫度升高至 950°C 後，薄膜在測量的波段完全沒有法拉第磁光效應。

圖 5-16 顯示 YIG 薄膜成長在 GGG 基板上與長在 YAG 基板上表現不同，所有溫度退火的樣品在 320 ~ 450 nm 皆具有法拉第磁光效應。其中波長 330 nm 的法拉第旋轉角差隨著退火溫度上升從 10.2 mrad 下降至 8.95 mrad，而波長 430 nm 的法拉第旋轉角差的最大值(1.9 mrad)則是從 950°C 退火的樣品測得。此現象推測是因 950°C 樣品的結晶品質較好，使得法拉第磁光效應都較強。圖 5-17 顯示 TmIG 薄膜成長在 GGG 基板上與長在 YAG 基板上表現不同，在 300 ~ 400 nm 與 460 ~ 490 nm 有法拉第磁光效應。隨著退火溫度升高，這兩個波段的法拉第旋轉角差分別從 4.4 mrad 與 2.1 mrad 逐漸減弱至無響應。

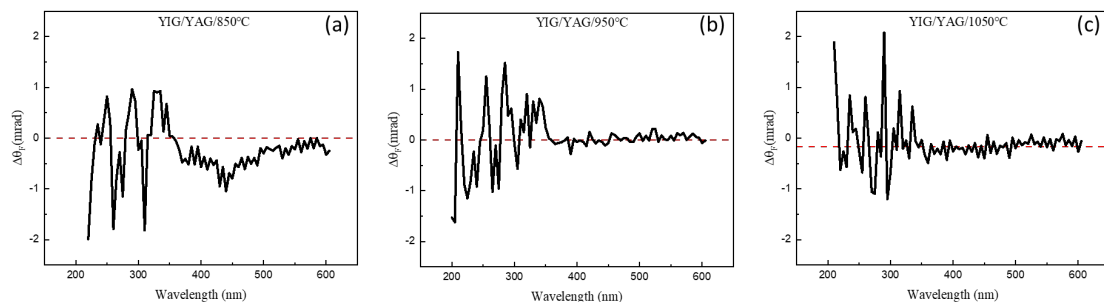


圖 5-14 YIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品的旋轉角差

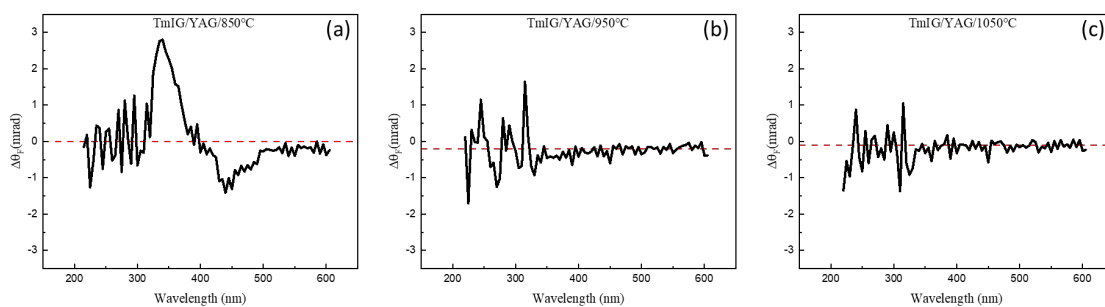


圖 5-15 TmIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品的旋轉角差

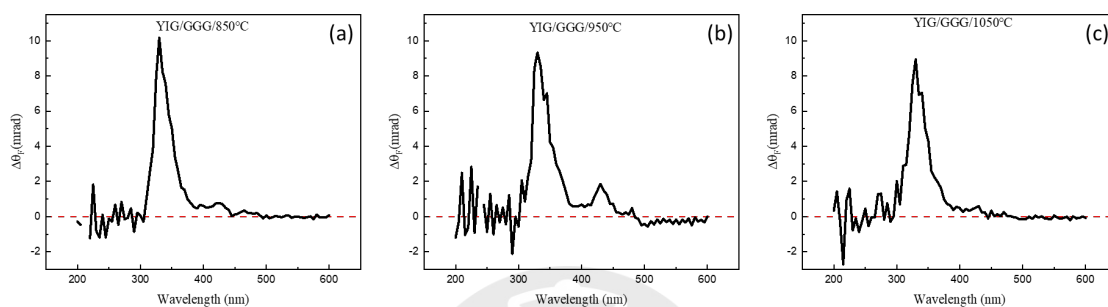


圖 5-16 YIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品的旋轉角差

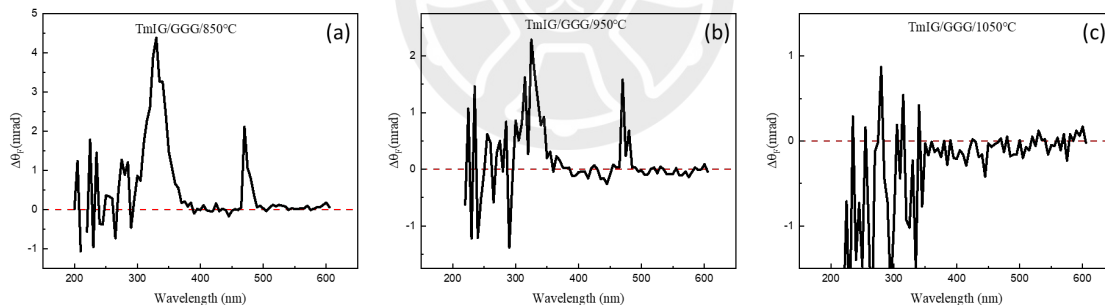


圖 5-17 TmIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品的旋轉角差

5-3-2 磁圓二色性分析

此此次實驗於室溫下進行，針對成長於 YAG(111) 與 GGG 基板(111) 上的 YIG 及 TmIG 薄膜，在改變不同退火溫度條件後，進行磁圓二色性(MCD)的測量。實驗中使用永久磁鐵外加 ± 0.8 T、 ± 1.6 T 以及電磁鐵外加 ± 0.1 T、 ± 0.05 T、 ± 0.02 T 的磁場，±為

標明磁場方向。測量項目為波長 200~600 nm 之間的吸收光譜、圓二色光譜及不對稱因子(g-factor)光譜，以探討退火溫度對於薄膜磁光特性的影響。

圖 5-18 顯示成長在 YAG 基板上 YIG 薄膜的吸收光譜，其吸收率隨著波長增加而逐漸減小。在退火溫度 850°C 時，薄膜有多個明顯的吸收峰，分別位於 210 nm、270 nm、320 nm、360 nm 及 430 nm。當退火溫度升至 950°C 時，430 nm 的吸收峰消失。進一步將退火溫度升高至 1050°C 後，薄膜只剩下 210 nm 與 270 nm 的吸收峰。

圖 5-19 顯示成長在 YAG 基板上 YIG 薄膜的 MCD 光譜。退火溫度 850°C 的薄膜具有四個波段的 MCD 光譜。第一個波段位於 205~220 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，其峰值位於 210 nm，CD 響應約為 8 mdeg。第二個波段位於 220~290 nm，在所有外加磁場皆有 CD 響應，峰值位於 260 nm，CD 值由 10 mdeg 隨磁場增大至 80 mdeg。第三個波段位於 290~450 nm，所有外加磁場皆有 CD 響應，具有多重 CD 峰，最強的 CD 峰位在 320 nm，CD 值由 5 mdeg 隨磁場增大至 45 mdeg。第四個波段位於 470~510 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯 CD 響應，峰值位於 490 nm，CD 值約為 5 mdeg。在退火溫度 950°C 時，MCD 光譜縮減為兩個波段，其中第一個波段位於 210~280 nm，所有外加磁場皆有 CD 響應，峰值位於 260 nm，CD 值由約 6 mdeg 隨磁場增大至 35 mdeg。第二個波段位於 280~450 nm，所有外加磁場皆有 CD 響應，具有多重 CD 峰，最強的 CD 峰位於 310 nm，CD 值由約 5 mdeg 隨磁場增大至 30 mdeg。在退火溫度 1050°C 時，MCD 光譜只有一個波段 240~320 nm，且僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯 CD 響應，其峰值對應之吸收峰在 270 nm，CD 值由約 3mdeg 隨磁場增大 8 mdeg。

不對稱因子 g-factor 為

$$g = \frac{CD}{ABS \times 32980}$$

其中， CD 為薄膜的 CD 值， ABS 為對應的吸收光譜。圖 5-20 顯示成長在 YAG 基板上 YIG 薄膜的 g-factor 光譜與 MCD 光譜相似。在 850°C 退火樣品中，一樣有四個波段，其中第一個波段位於 205~220 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰

位於 210 nm， g 值約 7.77×10^{-4} 。第二個波段位於 220~290 nm，所有外加磁場皆有響應，特徵峰位於 260 nm， g 值由約 1.34×10^{-3} 隨磁場增大而增加至 8.25×10^{-3} 。第三個波段位於 290~450 nm，所有外加磁場皆有響應，特徵峰出現在 320 nm， g 值由約 1.3×10^{-3} 隨磁場增大而增加至 7.05×10^{-3} 。第四個波段位於 470~510 nm，只在僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰位於 490 nm， g 值約 1.42×10^{-3} 。在 950°C 退火樣品中，只有兩個波段，其中第一個波段位於 210~280 nm，所有外加磁場皆有響應，特徵峰位於 260 nm， g 值由約 5.5×10^{-4} 隨磁場增大至 3.05×10^{-3} 。第二個波段位於 280~450 nm，所有外加磁場皆有響應， g 值最強的特徵峰位於 310 nm， g 值由約 1.1×10^{-3} 隨磁場增大至 4.1×10^{-3} 。在 1050°C 退火樣品中，CD 光譜只有一個波段 240~320 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰位在 270 nm， g 值約 6×10^{-4} 。

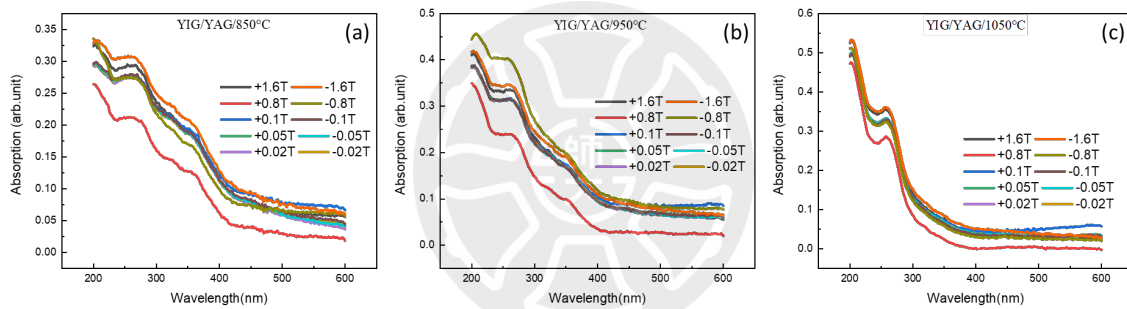


圖 5-18 YIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之吸收光譜

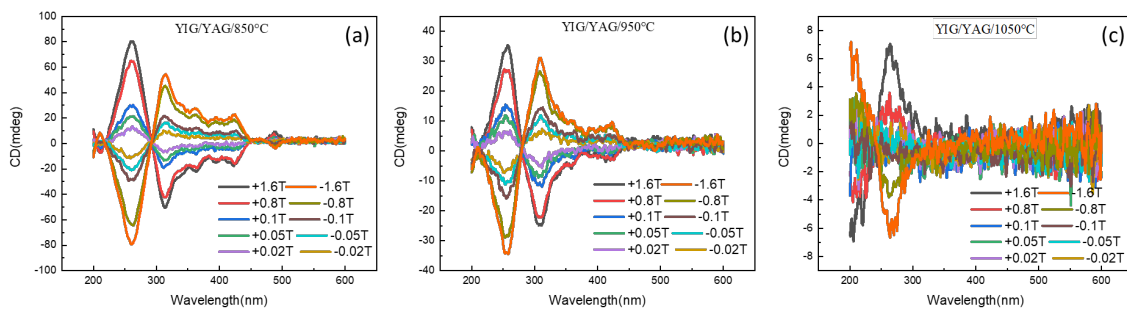


圖 5-19 YIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之圓二色光譜

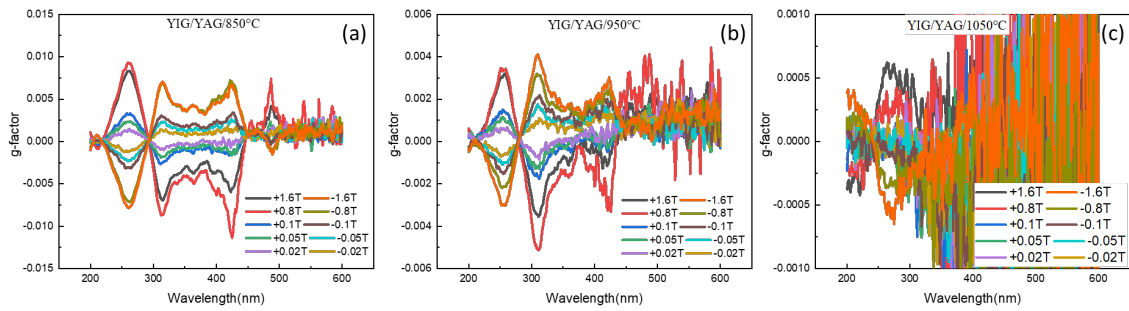


圖 5-20 YIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 g-factor

圖 5-21 顯示成長在 YAG 基板上的 TmIG 薄膜的吸收光譜，其吸收率隨著波長增加而逐漸減小。在退火溫度 850°C 時，薄膜可觀察到多個明顯的吸收峰，分別位於 215 nm、270 nm、320 nm、360 nm、390 nm、425 nm 與 490 nm。這些吸收峰則分別對應不同的能階躍遷，分別是 O-Fe 的能階躍遷 $2p \downarrow \rightarrow t_{2g} \downarrow$ (約 200 ~ 360 nm)、 $2p \downarrow \rightarrow (t_2; e) \downarrow$ (425 nm) 與 $2p \uparrow \rightarrow (e_g; t_{2g}) \uparrow$ (490 nm) 和 O-Tm 的能階躍遷 $2p \uparrow \rightarrow 5d \uparrow$ (270 nm)^[33,34]。當退火溫度升至 950°C 時，320 nm、360 nm、390 nm、425 nm 與 490 nm 的吸收峰消失。進一步將退火溫度升高至 1050°C 後，薄膜只剩下 270 nm 的吸收峰。氧與鐵離子之間的能階躍遷消失這代表著隨著退火溫度的提高，鐵離子缺失的情形。

圖 5-22 顯示成長在 YAG 基板上 TmIG 薄膜的 MCD 光譜。在退火溫度 850°C 時有四個波段，且所有外加磁場皆有響應。第一個波段位於 205 ~ 230 nm，且 CD 峰位於 215 nm，對應的 CD 值約 4.67 mdeg，且隨磁場增強而增大至 20.3 mdeg。第二個波段位於 230 ~ 310 nm，CD 峰位於 270 nm，CD 值由 68.3 mdeg 隨磁場增強而增大至 235.6 mdeg。第三個波段位於 310 ~ 470 nm，具有多重 CD 峰。最強的 CD 峰位在 365 nm，CD 值由約 21.86 mdeg 隨磁場增強而增大至 65.6 mdeg。第四個波段位於 470 ~ 510 nm，CD 峰值位在 490 nm，CD 值約 5.23 mdeg 為隨磁場增大至 14.86 mdeg。在退火溫度 950°C 時，MCD 光譜只剩一個波段，位於 240 ~ 320 nm，且僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯 CD 響應，CD 峰位於 270 nm，CD 值由約 6.1 mdeg 隨磁場增大至 11 mdeg。在退火溫度 1050°C 時，MCD 光譜也只有一個波段 240 ~ 320 nm，且僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，CD 峰值位在 270 nm，CD 值則由約 6.8 mdeg 隨磁場增大 13.1 mdeg。

圖 5-23 顯示成長在 YAG 基板上 TmIG 薄膜的 g-factor 光譜與 MCD 光譜相似。在 850°C 退火的樣品中，一樣有四個波段。第一個波段位於 205~230 nm，特徵峰位於 215 nm，g 值約 1.9×10^{-4} 隨磁場增大至 1.65×10^{-3} 。第二個波段位於 230~310 nm，特徵峰位於 270 nm，g 值由約 6.34×10^{-3} 隨磁場增大而增加至 2.22×10^{-2} 。第三個波段位於 310~470 nm，特徵峰出現在 430 nm，g 值由約 8.58×10^{-3} 隨磁場增大而增加至 2.12×10^{-2} 。第四個波段位於 470~510 nm，特徵峰位於 490 nm，g 值約 4.02×10^{-3} 隨磁場增大至 1.22×10^{-2} 。在 950°C 退火樣品中，只剩一個波段，位於 240~320 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰位於 270 nm，g 值由約 3.9×10^{-4} 隨磁場增大至 8.79×10^{-4} 。在 1050°C 退火樣品中，也只有一個波段，位在 240~320 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰位在 270 nm，g 值約 5.53×10^{-4} 隨磁場增大至 1.28×10^{-3} 。

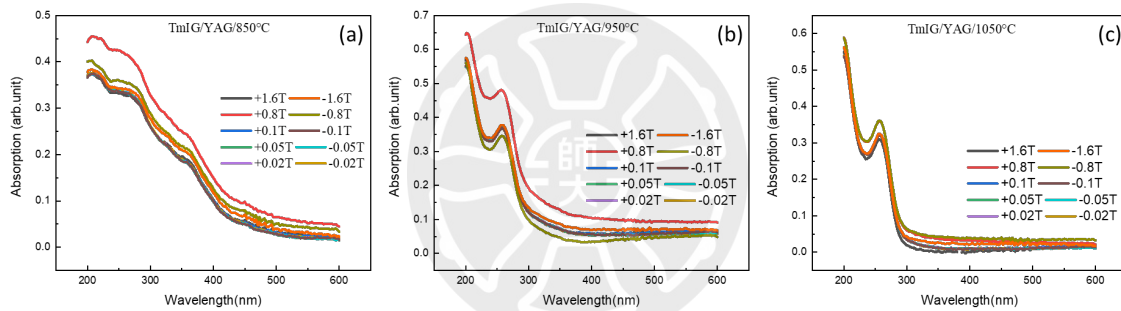


圖 5-21 TmIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之吸收光譜

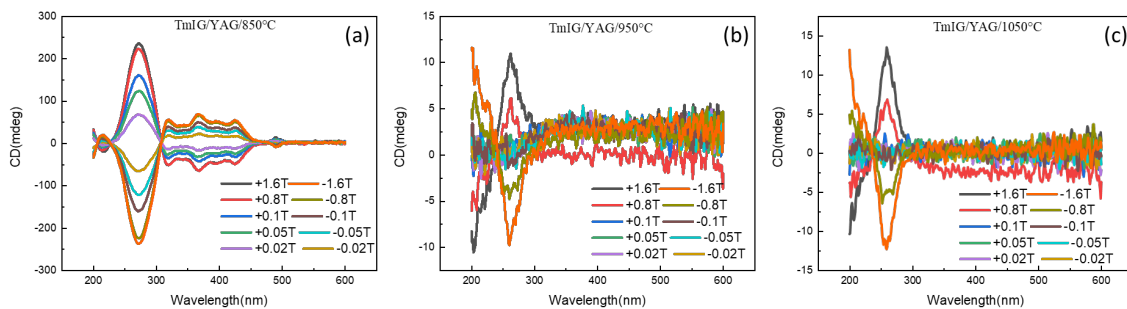


圖 5-22 TmIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 CD 光譜

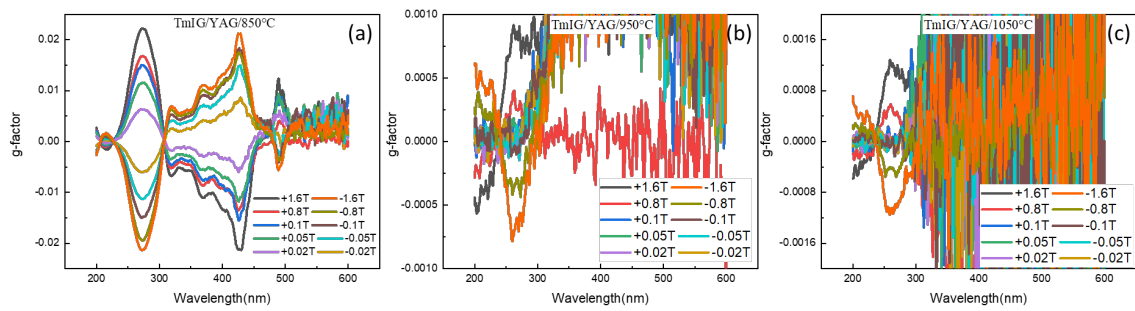


圖 5-23 TmIG/YAG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 g-factor 光譜

圖 5-24 顯示成長於 GGG 基板上的 YIG 薄膜的吸收光譜，其吸收率隨著波長增加而逐漸減小。在退火溫度 850°C 時，薄膜可觀察到多個明顯的吸收峰，分別位於 240 nm、280 nm、320 nm、350 nm、390 nm 與 450 nm。當退火溫度升至 950°C 時，與成長在 YAG 基板的表現不同，吸收峰並無消失。直到退火溫度升高至 1050°C 時，薄膜的 450 nm 吸收峰消失。

圖 5-25 顯示成長於 GGG 基板上的 YIG 薄膜的 MCD 光譜。在退火溫度 850°C 時有三個波段，且所有外加磁場皆有響應。第一個波段位於 240~280 nm，且 CD 峰位於 260 nm，對應的 CD 值約 16.8 mdeg，且隨磁場增強而增大至 625.5 mdeg。第二個波段位於 280~440 nm，具有多重 CD 峰。最強的 CD 峰位於 310 nm，CD 值由 9.9 mdeg 隨磁場增強而增大至 121.35 mdeg。第三個波段位於 440~460 nm，且 CD 峰位於 450 nm，CD 值約 2.7 mdeg。在退火溫度 950°C 時有四個波段，且所有外加磁場皆有響應。第一個波段位於 240~280 nm，CD 峰位於 260 nm，CD 值由約 78.2 mdeg 隨磁場增大至 890.5 mdeg。第二個波段位於 280~440 nm，具有多重 CD 峰。最強的 CD 峰位於 310 nm，CD 值由 90.7 mdeg 隨磁場增強而增大至 362.62 mdeg。第三個波段位於 440~460 nm，且 CD 峰位於 450 nm，CD 值由約 6.05 mdeg 隨磁場增強而增大至 13.2 mdeg。第四個波段位於 480~510 nm，且 CD 峰位於 490 nm，CD 值由約 5.9 mdeg 隨磁場增強而增大至 13.4 mdeg。在退火溫度 1050°C 時，MCD 光譜只有兩個波段，且所有外加磁場皆有響應。第一個波段位於 240~280 nm，且 CD 峰位於 260 nm，對應的 CD 值約 50.1 mdeg，且

隨磁場增強而增大至 804.6 mdeg。第二個波段位於 280 ~ 440 nm，具有多重 CD 峰。最強的 CD 峰位於 310 nm，CD 值由約 15 mdeg 隨磁場增強而增大至 116.7 mdeg。

圖 5-26 顯示成長於 GGG 基板上的 YIG 薄膜的 g-factor 光譜與 MCD 光譜相似。在 850°C 退火的樣品中，只有二個波段。第一個波段位於 240 ~ 280 nm，特徵峰位於 260 nm，g 值約 7.0×10^{-4} 隨磁場增大至 2.5×10^{-2} 。第二個波段位於 280 ~ 440 nm，特徵峰位於 310 nm，g 值約 5.12×10^{-4} 隨磁場增大至 6.0×10^{-3} 。至於 440 ~ 460 nm 波段因其吸收較小，且 CD 響應相較其他波段小很多 因此波段趨近於雜訊沒有明顯的特徵峰。在 950°C 退火的樣品中，有四個波段。第一個波段位於 240 ~ 280 nm，特徵峰位於 260 nm，g 值約 3.7×10^{-3} 隨磁場增大至 3.9×10^{-2} 。第二個波段位於 280 ~ 440 nm，特徵峰位於 310 nm 與 420 nm，310nm 特徵峰的 g 值約 4.91×10^{-3} 隨磁場增大至 1.7×10^{-2} ，而 420 nm 特徵峰的 g 值約 6.1×10^{-3} 隨磁場增大至 1.92×10^{-2} 。第三個波段位於 440 ~ 460 nm，特徵峰位於 450 nm，g 值約 2.3×10^{-3} 隨磁場增大至 6.5×10^{-3} 。第四個波段位於 480 ~ 510 nm，特徵峰位於 490 nm，g 值約 3.7×10^{-3} 隨磁場增大至 1.01×10^{-2} 。在 1050°C 退火的樣品中，可觀察到有兩個波段。第一個波段位於 240 ~ 280 nm，特徵峰位於 260 nm，g 值約 2.89×10^{-3} 隨磁場增大至 1.5×10^{-1} ，該波段的 g 值相較於其他退火溫度樣品明顯較高，是因為 1050°C 退火樣品在此波段的吸收強度低於其他退火樣品，因此在 CD 強度相近的情況下，當其值除以較低的吸收強度時，會導致計算出的 g 值偏大。第二個波段位於 280 ~ 440 nm，特徵峰位於 310 nm，g 值約 9.7×10^{-4} 隨磁場增大至 7.01×10^{-3} 。

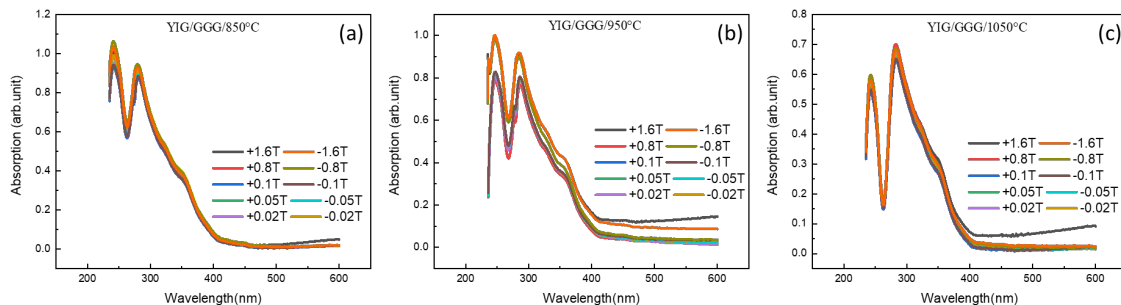


圖 5-24 YIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之吸收光譜

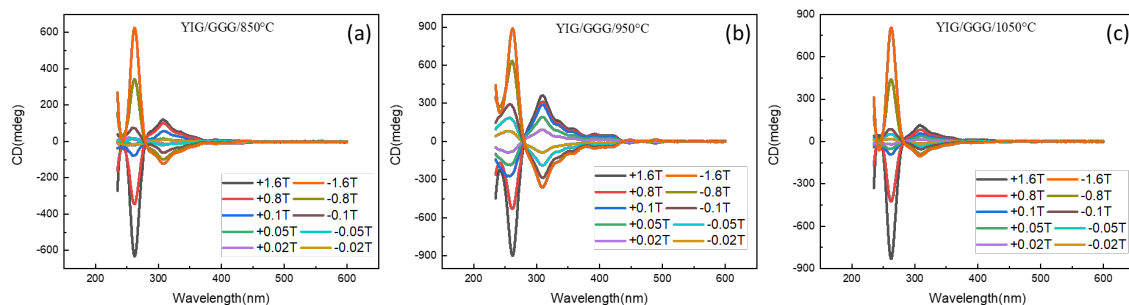


圖 5-25 YIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 CD 光譜

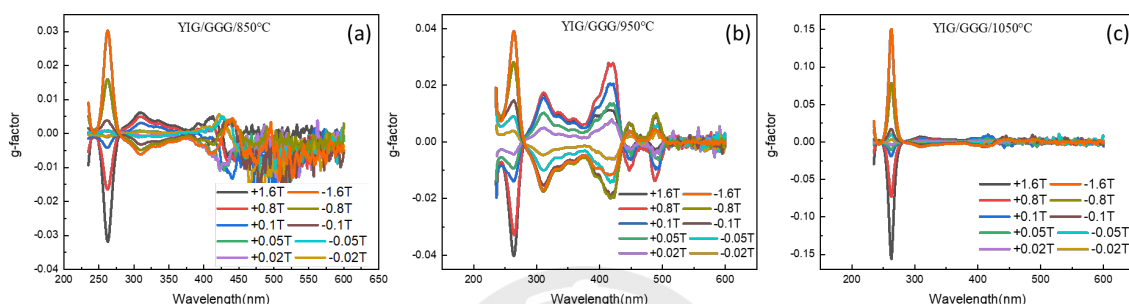


圖 5-26 YIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 g-factor 光譜

圖 5-27 顯示成長於 GGG 基板上的 TmIG 薄膜的吸收光譜。在退火溫度 850°C 時，薄膜有三個明顯的吸收峰，分別位於 240 nm、270 nm 與 360 nm。在退火溫度上升至 950 度後，只剩下 270 nm 的吸收峰，該現象與成長在 YAG 基板上相似。

圖 5-28 顯示成長於 GGG 基板上的 TmIG 薄膜的 MCD 光譜。在退火溫度 850°C 時有三個波段。第一個波段位於 240 ~ 250 nm，僅在外加磁場高於 0.8T 以上有響應，CD 峰位於 245 nm，CD 值由約 15.79 mdeg，且隨磁場增強而增大至 32.48 mdeg。第二個波段位於 240 ~ 285 nm，外加磁場在低於 0.05T 無響應，CD 峰位於 260 nm，CD 值由約 6.05 mdeg，且隨磁場增強而增大至 217.3 mdeg。第三個波段 285 ~ 390nm，僅在外加磁場高於 0.8T 以上有響應，CD 峰位於 310 nm，CD 值由約 2.52 mdeg，且隨磁場增強而增大至 8.15 mdeg。在退火溫度 950°C 時，剩下兩個波段，且僅在外加磁場高於 0.8T 以上有響應。第一個波段位於 240 ~ 270 nm，CD 峰位於 260 nm，CD 值由約 6.1 mdeg，且隨磁場增強而增大至 11.66 mdeg。第二個波段位於 240 ~ 285 nm，CD 峰位於 280 nm，CD 值由約 7.21 mdeg，且隨磁場增強而增大至 14.43 mdeg。當退火溫度升高至 1050°C

時，只剩下一個波段，且僅在外加磁場為 1.6T 以上有響應。第一個波段位於 250 ~ 310 nm，CD 峰位於 270 nm，CD 值約為 4.03 mdeg。

圖 5-29 顯示成長於 GGG 基板上的 TmIG 薄膜的 g-factor 光譜與 MCD 光譜相似。在退火溫度 850°C 時有三個波段。第一個波段位於 240 ~ 250 nm，僅在外加磁場高於 0.8 T 時才出現明顯響應，特徵峰位於 245 nm，g 值約 3.7×10^{-3} 隨磁場增大至 7.01×10^{-3} 。第二個波段位於 240 ~ 285 nm，外加磁場在低於 0.05T 無響應，特徵峰位於 260 nm，g 值約 5.45×10^{-3} 隨磁場增大至 1.35×10^{-1} 。第三個波段 285 ~ 390nm，僅在外加磁場高於 0.8T 以上有響應，特徵峰位於於 310 nm，g 值約 6.04×10^{-4} 隨磁場增大至 1.31×10^{-3} 。在退火溫度 950°C 時，剩下兩個波段，且僅在外加磁場高於 0.8T 以上有響應。第一個波段位於 240 ~ 270 nm，特徵峰位於 260 nm，g 值約 5.35×10^{-4} 隨磁場增大至 1.12×10^{-3} 。第二個波段位於 240 ~ 285 nm，特徵峰位於 280 nm，g 值約 6.63×10^{-4} 隨磁場增大至 1.42×10^{-3} 。當退火溫度升高至 1050°C 時，只剩下一個波段，且僅在外加磁場為 1.6T 以上有響應。第一個波段位於 250 ~ 310 nm，特徵峰位於 270 nm，g 值約 1.43×10^{-3} 。

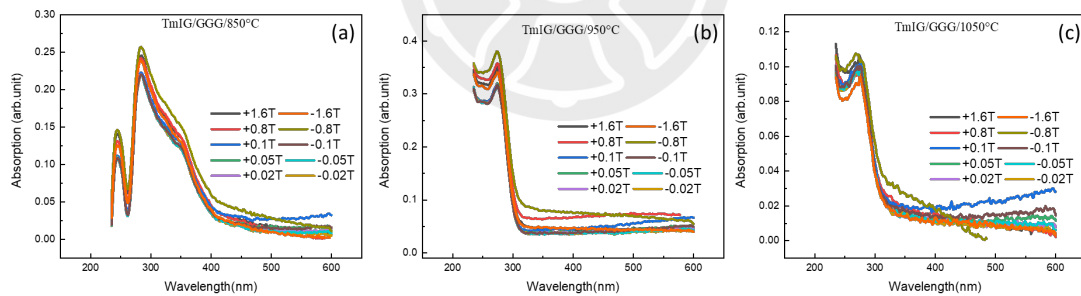


圖 5-27 TmIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之吸收光譜

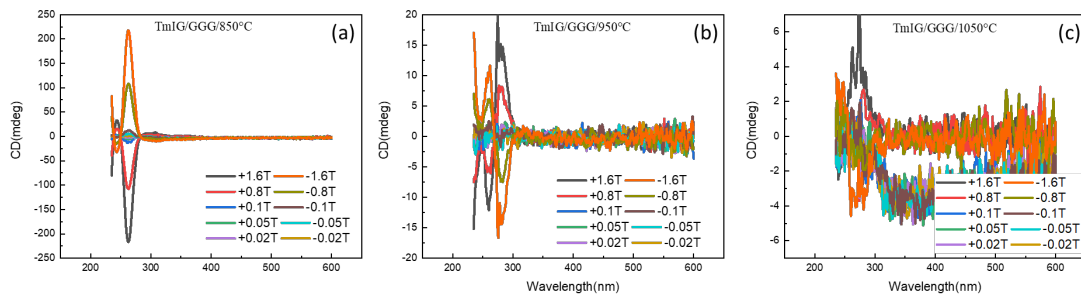


圖 5-28 TmIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 CD 光譜

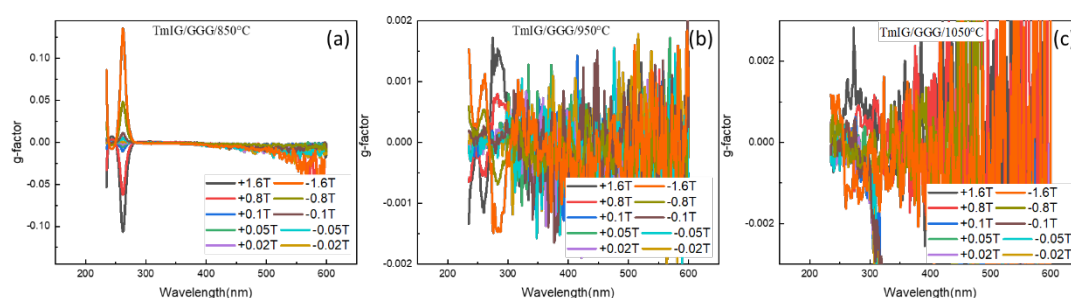


圖 5-29 TmIG/GGG(a)850°C(b)950°C(c)1050°C退火樣品之 g-factor 光譜

綜合上述，成長於 YAG 基板上的 YIG 與 TmIG 薄膜在退火溫度升高時，皆呈現吸收峰數量減少以及吸收光譜範圍縮窄的現象，反映出鐵離子含量降低的趨勢。同時，CD 強度亦隨退火溫度升高而下降，這是因為 CD 響應強度與材料的飽和磁化量相關，而 REIG 薄膜的磁性主要來源為鐵離子。因此，根據吸收與 MCD 光譜隨退火溫度的變化，我們可推論高溫退火導致鐵離子自薄膜向基板擴散，進而降低薄膜的磁性及磁光響應特性。另一方面，成長於 GGG 基板的 TmIG 薄膜亦展現出與 YAG 基板樣品相似的趨勢，皆因高溫退火而使吸收峰消失及 CD 強度下降。然而，對於成長於 GGG 基板的 YIG 薄膜，則需將退火溫度提高至 1050°C 後，才觀察到吸收峰消失及 CD 強度顯著下降的現象。此結果亦與 XRD 測量結果相呼應，顯示 YIG 薄膜在 950°C 具有最佳的結晶品質，當退火溫度超過此條件時，則會出現過度退火現象，導致結構及磁性劣化。

第六章 結論與未來展望

本研究利用脈衝雷射沉積法(PLD)成功在 YAG(111) 及 GGG(111) 基板上製備 YIG 與 TmIG 薄膜，並系統性探討退火溫度對其結晶結構、磁性及磁光特性的影響。

晶體結構方面，成長於 YAG 與 GGG 基板的 YIG 與 TmIG 薄膜皆沿(111)基板方向進行異質外延生長，並展現明顯的(444)繞射峰。對成長於 YAG 基板的 YIG 與 TmIG 薄膜，其晶格常數皆隨退火溫度升高而降低，薄膜承受壓縮應力，且應力強度隨溫度升高而增強。此現象可歸因於高溫退火過程中，鐵離子(Fe^{3+})向基板擴散，並由基板中的鋁離子(Al^{3+})反向填補入薄膜。由於 Al^{3+} (0.535 Å) 半徑顯著小於 Fe^{3+} (0.645 Å)，造成薄膜晶格進一步收縮，導致壓縮應變加劇。相較之下，雖然 GGG 基板上的 YIG 薄膜中 Peak1(底層)與 Peak2(上層)的晶格常數皆同樣隨退火溫度升高而降低，但 Peak1 主要承受拉伸應力，Peak2 主要承受壓縮應力。TmIG 薄膜則隨退火溫度升高，晶格常數增加，並承受壓縮應力。此外，GGG 基板的 YIG 薄膜 Peak1 與 TmIG 薄膜在高溫退火後，垂直應力隨溫度升高而逐漸釋放。此現象可歸因於 Ga^{3+} (0.620 Å) 與 Fe^{3+} 半徑相近，擴散對晶格尺寸影響極小，因此以高溫退火使得結晶變好，最終導致應變減小，而 YIG 薄膜中 Peak2 則因鐵離子與鎵離子的擴散速率不同，薄膜中的鐵離子缺失且同時鎵離子未補入導致應力增加。

磁性方面，隨著退火溫度增加，成長於 YAG 與 GGG 基板的 YIG 與 TmIG 薄膜，其飽和磁化量(M_s)均顯著下降，推測主要因為高溫退火導致鐵離子向基板擴散，造成磁性離子缺失，進而降低整體磁性表現。磁易軸表現方面，YIG/YAG 薄膜的磁易軸由垂直逐漸轉變為無明顯易軸，TmIG/YAG 薄膜則在所有退火條件下無明顯磁易軸，YIG/GGG 薄膜皆呈現面內磁易軸，而 TmIG/GGG 薄膜則在所有退火條件下均無明顯磁易軸特性。成長於 YAG 的薄膜與 TmIG/GGG 的矯頑場(H_c)均隨退火溫度升高而增加，顯示薄膜磁性由軟磁性逐步轉變為硬磁性，YIG/GGG 則的矯頑場與溫度沒有相關性。

磁光方面，法拉第效應顯示，成長於 YAG 與 GGG 基板的 YIG 與 TmIG 薄膜皆因退火溫度升高而導致法拉第旋轉角降低。磁圓二色性結果進一步顯示，CD 強度隨著退

火溫度升高而下降，並觀察到對應於 O-Fe 能階躍遷的吸收峰逐漸消失，提供了鐵離子擴散至基板的重要間接證據。

綜合而言，退火溫度是影響 REIG 薄膜(尤其是 TmIG)結晶品質、磁性以及磁光特性的關鍵參數。雖然適度的高溫退火可促進結晶品質與應變釋放，但過高的溫度會導致鐵離子擴散、結構劣化，進而降低磁性及磁光性能。本研究結果為未來進一步調控 REIG 薄膜磁異向性與磁光性能提供了重要依據，並對其在自旋電子學及磁光元件應用上具有實際參考價值。

未來若能通過掃描電子顯微術(Scanning electron microscope, SEM)或 X 光子能譜(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS)進一步確認薄膜的截面結構與確認薄膜內的離子分佈情形，以了解退火溫度對於離子擴散的影響。此外，未來也可以在薄膜上通過光學微影與蝕刻，進一步縮小元件尺寸，來進行自旋傳輸相關研究。



參考文獻

- [1] Nguyen, V., Rao, S., Wostyn, K., & Couet, S. (2024). Recent progress in spin-orbit torque magnetic random-access memory. *npj Spintronics*, 2, 48. <https://doi.org/10.1038/s44306-024-00044-1>
- [2] Rao, S., Cai, K., Talmelli, G., Franchina-Vergel, N., Janssens, W., Hody, H., Yasin, F., Wostyn, K., & Couet, S. (2023). Spin-orbit torque MRAM for ultrafast cache and neuromorphic computing applications. 2023 IEEE International Memory Workshop (IMW),
- [3] Srinivasan, K., & Stadler, B. J. (2022). Review of integrated magneto-optical isolators with rare-earth iron garnets for polarization diverse and magnet-free isolation in silicon photonics. *Optical Materials Express*, 12, 697-716. <https://doi.org/10.1364/OME.447398>
- [4] Bhoi, B., Kim, B., Kim, Y., Kim, M.-K., Lee, J.-H., & Kim, S.-K. (2018). Stress-induced magnetic properties of PLD-grown high-quality ultrathin YIG films. *Journal of Applied Physics*, 123. <https://doi.org/10.1063/1.5031198>
- [5] Van, P. C., Surabhi, S., Dongquoc, V., Kuchi, R., Yoon, S.-G., & Jeong, J.-R. (2018). Effect of annealing temperature on surface morphology and ultralow ferromagnetic resonance linewidth of yttrium iron garnet thin film grown by rf sputtering. *Applied Surface Science*, 435, 377-383. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.11.129>
- [6] Pan, L., Zhang, X., Wang, J., & Liu, Q. (2017). Structural and magnetic properties of electrospun yttrium iron garnet (YIG) nanofibers. *Ceramics International*, 43, 1236-1241. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.10.070>
- [7] Liu, S.-Y., Lin, Z.-Y., Chang, Y.-R., Liao, Y.-T., Wu, P.-H., Huang, S.-Y., Lin, W.-C., & Lo, F.-Y. (2022). Strain-induced magnetic anisotropy of REIG thin films grown on YAG (111) substrates by pulsed laser deposition. *Journal of Alloys and Compounds*, 922, 166217. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2022.166217>
- [8] Mendil, J., Trassin, M., Bu, Q., Schaab, J., Baumgartner, M., Murer, C., Dao, P. T., Vijayakumar, J., Bracher, D., Bouillet, C., Vaz, C. A. F., Fiebig, M., & Gambardella, P. (2019). Magnetic properties and domain structure of ultrathin yttrium iron garnet/Pt bilayers. *Physical Review Materials*, 3. <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.034403>
- [9] Onbasli, M. C., Kehlberger, A., Kim, D. H., Jakob, G., Kläui, M., Chumak, A. V., Hillebrands, B., & Ross, C. A. (2014). Pulsed laser deposition of epitaxial yttrium iron garnet films with low Gilbert damping and bulk-like magnetization. *APL Materials*, 2. <https://doi.org/10.1063/1.4896936>

- [10] Zanjani, S. M., & Onbaşlı, M. C. (2020). Predicting new iron garnet thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 499, 166108. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.166108>
- [11] Quindeau, A., Avci, C. O., Liu, W., Sun, C., Mann, M., Tang, A. S., Onbasli, M. C., Bono, D., Voyles, P. M., & Xu, Y. (2017). Tm₃Fe₅O₁₂/Pt heterostructures with perpendicular magnetic anisotropy for spintronic applications. *Advanced Electronic Materials*, 3, 1600376. <https://doi.org/10.1002/aelm.201600376>
- [12] Wu, C., Tseng, C., Fanchiang, Y., Cheng, C., Lin, K., Yeh, S., Yang, S., Wu, C., Liu, T., & Wu, M. (2018). High-quality thulium iron garnet films with tunable perpendicular magnetic anisotropy by off-axis sputtering—correlation between magnetic properties and film strain. *Scientific reports*, 8, 1-8. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-29493-5>
- [13] Ciubotariu, O., Semisalova, A., Lenz, K., & Albrecht, M. (2019). Strain-induced perpendicular magnetic anisotropy and Gilbert damping of Tm₃Fe₅O₁₂ thin films. *Scientific reports*, 9, 17474. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-53255-6>
- [14] Agusutrisno, M. N., Obinata, S., Okumura, T., Kamataki, K., Itagaki, N., Koga, K., Shiratani, M., & Yamashita, N. (2024). Large-scale fabrication of thulium iron garnet film with perpendicular magnetic anisotropy using RF magnetron sputtering. *Japanese Journal of Applied Physics*, 63. <https://doi.org/10.35848/1347-4065/ad5aff>
- [15] 張艷壬. (2022). 鈔鈹鐵石榴石薄膜的磁異向性研究 國立臺灣師範大學]. 臺灣博碩士論文知識加值系統. 台北市. <https://hdl.handle.net/11296/ntyjbu>
- [16] 林宗圓. (2023). 摻雜鈹元素的鈹鐵石榴石結構與磁性探討 國立臺灣師範大學]. 臺灣博碩士論文知識加值系統. 台北市. <https://hdl.handle.net/11296/yvfeqa>
- [17] Zhang, Y., Xie, J., Deng, L., & Bi, L. (2015). Growth of Phase Pure Yttrium Iron Garnet Thin Films on Silicon: The Effect of Substrate and Postdeposition Annealing Temperatures. *IEEE Transactions on Magnetics*, 51, 1-4. <https://doi.org/10.1109/tmag.2015.2443776>
- [18] Van, P. C., Kim, H., Thi, T. N., Viet, D. D., Cao, V. A., Nah, J., Park, S. J., Jin, H., Jo, Y., & Park, S.-Y. (2023). Spin Hall magnetoresistance and the effect of post-annealing temperature in the MOD-grown HoIG. *Journal of Alloys and Compounds*, 941, 169019. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2023.169019>
- [19] Hu, B. (2015). Crystal growth of hexaferrite architecture for magnetoelectrically tunable microwave semiconductor integrated devices.
- [20] Taghinejad, H., Yamakawa, K., Huang, X., Lyu, Y., Pritchard Cairns, L., Husain, S., Ramesh, R., & Analytis, J. G. (2025). Low-Field Regime of Magnon Transport in PLD-Grown YIG Films. *Nano Lett*, 25, 6438-6444. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.4c06592>

- [21] Sharma, R., Ojha, P. K., Choudhary, S., & Mishra, S. K. (2023). Magnetic ordering in sol-gel-based Tm₃Fe₅O₁₂ thin film. *Materials Letters*, 352. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2023.135154>
- [22] Zhu, Y., Cai, M., Zhang, Q., Wang, P., Yang, Y., Zhao, J., Zhu, W., & Wang, G. (2025). Quantum Sensing of Local Magnetic Phase Transitions and Fluctuations near the Curie Temperature in Tm(3)Fe(5)O(12) Using NV Centers. *Micromachines (Basel)*, 16. <https://doi.org/10.3390/mi16060643>
- [23] Qadri, S. N., Kim, W., Bayya, S., Shaw, L. B., Qadri, S. B., Kolis, J., Stadelman, B., & Sanghera, J. (2021). Epitaxial growth of single crystal YAG for optical devices. *Coatings*, 11, 644. <https://doi.org/10.3390/coatings11060644>
- [24] Kittel, C. (2005). *Introduce to Solid State Physics* (8th edition ed.).
- [25] Nogués, J., & Schuller, I. K. (1999). Exchange bias. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 192, 203-232. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00266-2](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00266-2)
- [26] Eisberg, R. M. (1974). *Quantum physics of atoms, molecules, solids, nuclei, and particles*. (2nd ed.).
- [27] 維基百科. *Bragg's law*. <https://zh.wikipedia.org/wiki/%E5%B8%83%E6%8B%89%E6%A0%BC%E5%AE%9A%E5%BE%8B>
- [28] MicroSense. *EasyVSM Manual*. <https://www.kla.com/products/other-industries/university-and-industry-research#microsense-easyvsm>
- [29] Mansuripur, M. (2009). *Classical Optics and its Applications* (2nd ed.). <https://doi.org/https://doi.org/10.1017/CBO9780511803796>
- [30] Stephens, P. (1974). Magnetic circular dichroism. *Annual Review of Physical Chemistry*, 25, 201-232.
- [31] Kumar, R., Hossain, Z., & Budhani, R. (2017). Effects of post-deposition annealing on the structure and magnetization of PLD grown yttrium iron garnet films. *Journal of Applied Physics*, 121. <https://doi.org/10.1063/1.4978310>
- [32] Fu, J., Hua, M., Wen, X., Xue, M., Ding, S., Wang, M., Yu, P., Liu, S., Han, J., & Wang, C. (2017). Epitaxial growth of Y₃Fe₅O₁₂ thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Applied Physics Letters*, 110. <https://doi.org/10.1063/1.4983783>
- [33] Chen, J., Hsu, H.-S., & Lo, F.-Y. (2021). Spin-dependent optical transitions in yttrium iron garnet. *Materials Research Express*, 8, 026101. <https://doi.org/10.1088/2053-1591/abe013>
- [34] Chien, W. H. C., Liu, H. A., Lin, J. X., Liao, W. H., Chang, Y. Y., Hu, C. K., Lee, J. S., Granville, S., Chen, J., & Hsu, H. S. (2025). Volatile and Non-Volatile Dual-Function Electrically Controlled Ultraviolet Magneto-Optical Effect in TmIG/Pt. *Advanced Electronic Materials*, 11, 2400459. <https://doi.org/10.1002/aelm.202400459>