

## 微波与光通信用单晶 Bi:YIG 性能表征

章路<sup>1,2</sup>, 杨剑波<sup>1</sup>, 张紫燕<sup>1</sup>, 蔡澎<sup>1,3</sup>

1. 中国科学院城市环境研究所, 福建 厦门 361021;
2. 中国科学院大学, 北京 100049;
3. 中国科学院上海营养与健康研究所, 上海 200031)

**摘要:** 通过液相外延方法制备出单晶 Bi 和 Gd 取代 YIG 薄膜, 并研究了其微波铁磁共振特性与红外磁光性能。测试结果表明, 样品结晶质量较好, 无多余物相, 平均表面粗糙度 0.4 nm, 比饱和磁化强度值 25 emu/g, 饱和外磁场 650 Oe 左右。在 0~20 GHz 的频率范围内, 铁磁共振线宽  $\Delta H$  小于 8 Oe, 且频率与共振线宽呈线性关系。在红外 1550 nm 波长下, 饱和状态的比法拉第转角约为 0.1 ( $^{\circ}$ )/ $\mu\text{m}$ , 两片叠加条件下可以实现  $\pm 45^{\circ}$  法拉第旋转。在 1550 nm 左右透过率接近 90%, 吸收系数低于 16  $\text{cm}^{-1}$ 。该材料在红外磁光器件、微波通信器件方面具有重要的应用价值。

**关键词:** 磁光器件; 铁磁共振; 通信; 法拉第效应; 光吸收

中图分类号: TP391; TN911.73 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20210869

## Characterization of single crystal Bi:YIG for microwave and optical communication

Zhang Lu<sup>1,2</sup>, Yang Jianbo<sup>1</sup>, Zhang Ziyan<sup>1</sup>, Cai Peng<sup>1,3</sup>

1. Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. Shanghai Institute of Nutrition and Health, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200031, China)

**Abstract:** Single crystal Bi and Gd substituted YIG films were prepared by liquid phase epitaxy method, and their microwave and magneto-optical properties were studied. The results show that the crystal quality of the sample is good, and the average surface roughness is 0.4 nm. The special saturation magnetization is 25 emu/g, and the saturation external magnetic field is about 650 Oe. In the range of 0-20 GHz, the Ferromagnetic Resonance Linewidth  $\Delta H$  is less than 8 Oe, and the frequency is linear with the linewidth  $\Delta H$ . At the wavelength of 1550 nm, the specific Faraday rotation angle of saturation state is about 0.1 ( $^{\circ}$ )/ $\mu\text{m}$ , and the Faraday rotation of  $\pm 45^{\circ}$  can be achieved with the superposition of two pieces of films. At 1550 nm, the transmittance is close to 90% and the absorption coefficient is lower than 16  $\text{cm}^{-1}$ . It has important application value in infrared magneto-optic and microwave communication.

**Key words:** magnetic-optic devices; ferromagnetic resonance; communication; Faraday effect; light absorption

收稿日期: 2021-11-22; 修订日期: 2021-11-29

基金项目: 中国科学院重点部署项目 (KGFZD-135-160-024)

作者简介: 章路, 男, 博士生, 主要从事智能计算、智能传感和先进通信技术方面的研究。

导师简介: 蔡澎, 男, 研究员, 博士生导师, 博士, 主要从事先进通信材料制备技术和智慧城市方面的研究。

## 0 引言

众所周知,单晶石榴石是现代激光与通信的基础,是制备激光器、磁光开关、磁光隔离器的核心晶体<sup>[1-2]</sup>。以钇铁石榴石(YIG)单晶为例,其电阻率高、铁磁共振线宽窄、高可靠性的特点被广泛应用于微波毫米波通信器件中,如滤波器、振荡器、环形器等。国外在晶体制备及应用方面起步较早,如美国贝尔实验室、索雷博公司、日本村田实验室、俄罗斯 ELMA 研究所、乌克兰 CARAT 晶体所等,而国内每年需进口数十亿元的核心晶体。因此,开展石榴石类晶体,特别是钇铁石榴石的相关研究是亟需的。

钇铁石榴石( $Y_3Fe_5O_{12}$ )是适用于微波器件、光学通信器件常用的晶体之一。离子掺杂取代及制备工艺的调节,是目前常用的薄膜基器件电磁、光学性能调控常用方法之一<sup>[3-4]</sup>,含铁石榴石薄膜由于其特殊的非互惠光学效应,如法拉第效应、克尔效应等,可以打破时间反演对称性,在红外光学隔离器、微波环形器等方面具有特殊而重要的应用价值。

$Bi^{3+}$ 引入钇铁石榴石 YIG 晶体中正十二面体的中心 c 位时,会增强其磁光性能,产生巨磁法拉第旋光效应,在红外光通信用隔离器、磁光开关方面具有重要的应用价值<sup>[5]</sup>。以红外磁光隔离器为例,纯 Bi 取代 YIG 饱和外磁场较高,需要较大永磁体提供偏置磁场,不利于降低器件尺寸,有研究表明,Gd 的引入可以降低饱和外磁场,利于器件小型化<sup>[6-8]</sup>。常用的钇

铁石榴石薄膜的制备方法有射频磁控溅射、激光脉冲沉积、分子数外延等,但从结晶质量、成膜均匀性等角度来讲,制备大尺寸单晶薄膜液相外延(LPE)是目前最优的方法<sup>[9]</sup>。文中通过液相外延方法制备 Gd、Bi 掺杂的 YIG 单晶薄膜,分析了样品的物相、磁特性及光学特性,并测试了其在红外 1550 nm 波段的磁光法拉第效应,计算了其吸收系数、透过率等参数。

## 1 样品制备与表征

$Bi^{3+}$ 离子在晶格中的掺入,可以增强薄膜的磁光法拉第效应<sup>[10]</sup>;Gd 的掺入,可以降低薄膜的饱和磁化强度<sup>[11]</sup>。生长 YIG 常用的 GGG 衬底晶格常数为 12.84 Å (1 Å=10<sup>-10</sup> m),Bi 与 Gd 的引入会引起晶格失配<sup>[12-14]</sup>,选用晶格常数更大的 SGGG 衬底可以减小晶格失配,有利于薄膜长厚,而不引起脱落或开裂。通过传统液相外延法,以 PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 作为助溶剂,配方分子式为 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>,主要生长参数如表 1 所示,样品厚度可以通过调节生长温度与生长时间控制。样品生长完毕后,通过划片机切成 10 mm×10 mm 的样品以备测试,晶体物相结构通过高分辨率 X 射线衍射仪(HR-XRD, D1 Evolution, JVS, 德国)测试,使用原子力显微镜(AFM, SEIKO SPA-300 HV)对膜表面质量进行分析,使用振动样品磁力计(VSM, BHV525, IWATSH, 日本)进行磁性能分析,利用实验室自建的法拉第测试系统对膜的磁光特性进行分析。

表 1 样品膜的主要生长参数

Tab.1 Main growth parameters of sample films

Sample numbe	Growth rate/ $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$	Thickness/ $\mu\text{m}$	Temperature/ $^{\circ}\text{C}$	Rotation rate/ $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$	Growth time/ min
1	0.6	1.8	899-898	60	3
2	0.65	19.5	895-894	60	30
3	0.6	60	879-878	60	100
4	0.75	120	877-876	60	160

## 2 结果与分析

根据 X 射线衍射分析的特点,X 射线将难以穿透过厚的膜,从而难以测到衬底的物相信息,因此取制备的四个样品中较薄的样品 1 进行 X 射线衍射分析。图 1 为所制备的 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 样品 1 的高精

度 XRD 测试曲线,可以看出所制备的单晶膜样品只存在一个衍射峰,无其他杂相与杂峰,并且该衍射峰与 (111) 取向的 SGGG 衬底的衍射峰几乎完全重合。根据液相外延的工艺特点,单晶衬底外延生长出单晶膜,因此基本可判断所制备的膜为单晶石榴石结构,且膜的晶面指数 (444) 与 SGGG 衬底的 (111) 指数

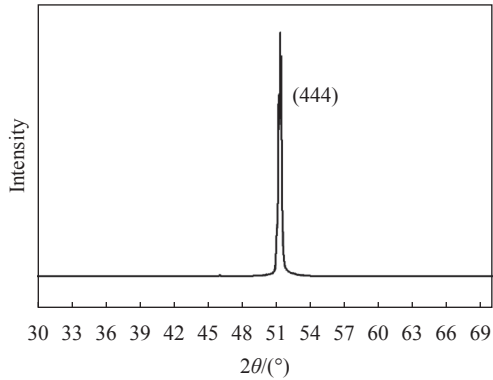


图 1 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 膜的高精度 XRD 图

Fig.1 High-resolution XRD image of (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> film

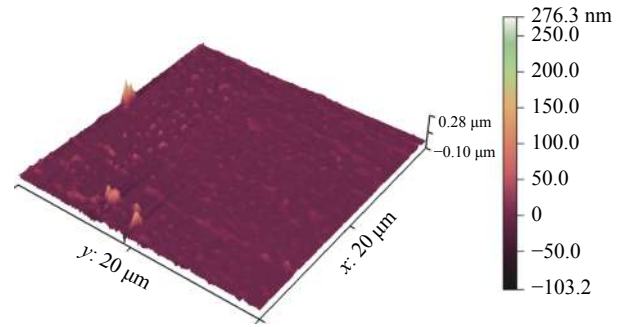


图 2 单晶 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 膜的 AFM 测试图

Fig.2 AFM image of single crystal (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> film

相同。可以得出,单晶膜样品结晶质量较好,无多余物相。

图 2 为表 1 中样品 3 的原子力显微镜测试图,测试范围为  $20\ \mu\text{m}\times 20\ \mu\text{m}$ 。可以看出,膜表面平坦无沟壑,这对于光通信是极其重要的,能够降低插入损耗,但有极少量的熔融体残余物,后期可以通过酸洗或化学机械抛光来移除。平均表面粗糙度 ( $R_a$ ) 为 0.41 nm,均方根表面粗糙度为 0.64 nm,符合液相外延制备薄膜的典型值。

图 3 所示为单晶膜样品 1 的磁滞回线测试图。该数据是通过振动样品磁强计在常温条件下测试所得的数据。可以看出,样品在大约 650 Oe 的外磁场条件下就能达到饱和,比饱和磁化强度值在 25 emu/g 附近,在样品饱和之后,继续增加外磁场,比饱和和磁化强度的数值变化将很小,比典型的 YIG 铁氧体超过 1000 Oe 的饱和外磁场小了约 300 Oe。由此可见,  $\text{Gd}^{3+}$  离子的引入起到了降低饱和磁化强度的作用。

图 4 为样品 1 在 5、10、15、20 GHz 频点下通过

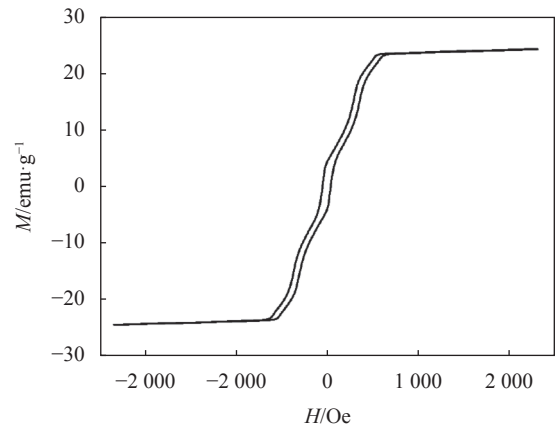
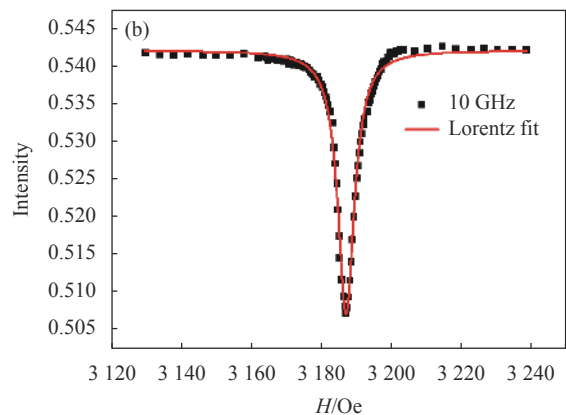
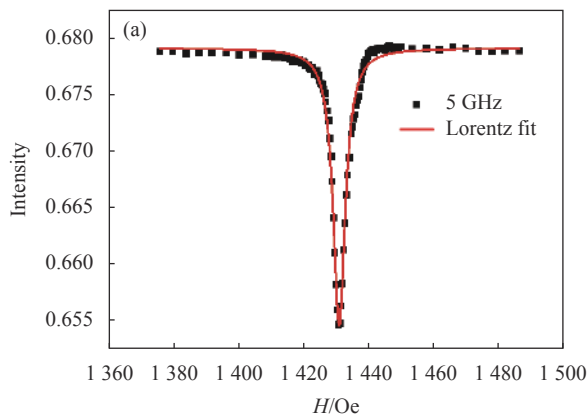


图 3 单晶膜样品的磁滞回线测试数据图

Fig.3 The data of hysteresis loop for single crystal film sample

谐振腔法测得的膜的铁磁共振线宽数据,图中,点线为实测数据,红线为洛伦兹拟合数据。5、10、15、20 GHz 频点下的铁磁共振线宽  $\Delta H$  分别为 4.5 Oe, 5.5 Oe, 6.7 Oe 和 7.7 Oe,可以看出,样品共振峰对称性较强、拟合较好,且共振线宽较窄,符合单晶 YIG 的频率共振特性。为了探究样品共振线宽与频率的关系,将测得各频点数据进行汇总并拟合,如图 5



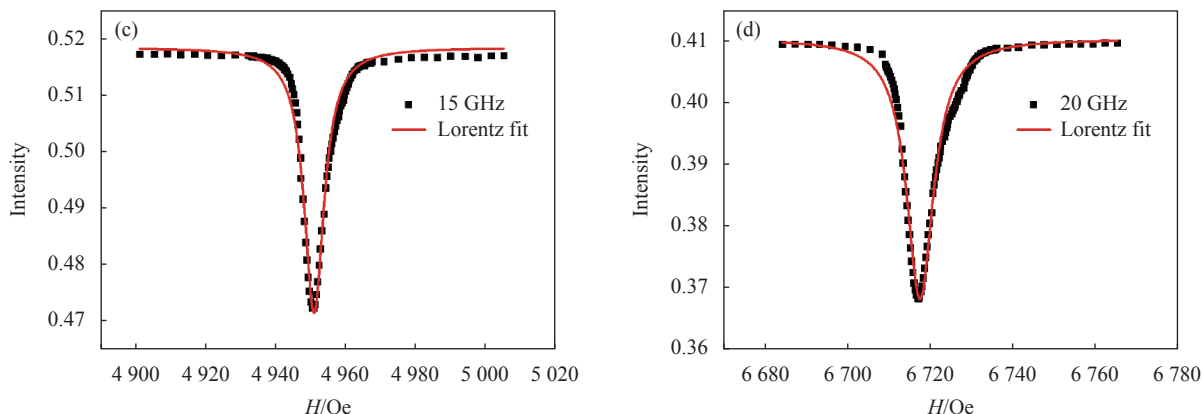


图 4 样品 1 在不同频率点下的铁磁共振曲线图

Fig.4 Ferromagnetic resonance curves of sample 1 at different frequencies

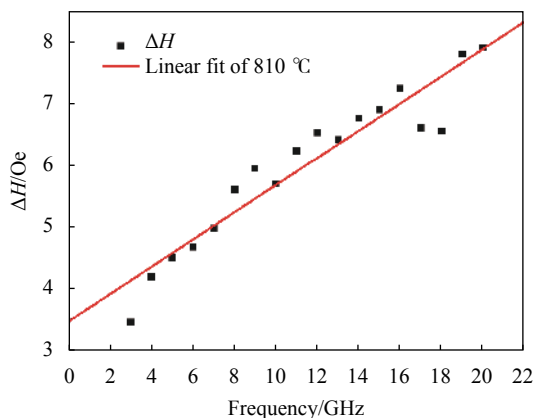


图 5 铁磁共振线宽与频率相关的曲线

Fig.5 Frequency dependent curve of ferromagnetic resonance linewidth

所示,红线为拟合数据。在 0~20 GHz 频段范围内,样品 1 的共振线宽随频率增加线性升高,在 20 GHz 时达到最值,接近 8 Oe。

图 6 为磁光薄膜样品 4 两片叠加,因为单面为 120 μm,样品是双面生长,所以总厚度为 480 μm,在 1550 nm 波长条件下的法拉第转角  $\theta_F$  的测试曲线,可以看出,当外磁场绝对值大于 600 Gs 时,样品的法拉第转角约为 48°,超过 45°满足磁光商用磁光隔离器隔离度指标,45°作为光学隔离器的一个核心参数,±45°的法拉第旋转角,光通过之后再返回刚好形成 90°相位隔离。根据数据与膜厚换算,在 600 Gs 磁场条件下膜样品比法拉第转角约为 0.1 (°)/μm,1 Gs 可换算等于 1 Oe。从图 6 中同时可以看出,样品的饱和外磁场约为 650 Oe,对应图 3 的磁滞回线的饱和外磁场 650 Oe。

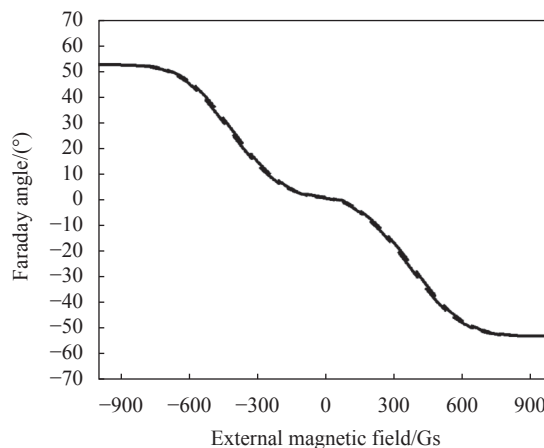


图 6 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 膜的磁光法拉第转角测试数据

Fig.6 The datas of magneto-optic Faraday angle for (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> film

图 7 为样品 2 在不同波长条件下的光吸收系数与透过率,实线为透过率数据,虚线对应吸收系数。可以看出,吸收系数随波长变长呈减小趋势,透过率

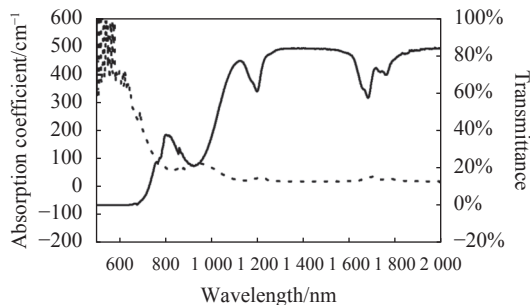


图 7 单晶 (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 波长对应的吸收系数与透过率曲线

Fig.7 Absorption coefficient and transmittance curves corresponding to wavelength of single crystal (YBiGd)<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>

随波长增加总体呈升高趋势,但透过率在 950、1200、1700 nm 左右具有明显的吸收峰,对应吸收系数升高,这可能是由于晶体内部在这几个波长范围左右会产生共振吸收的原因。尽管如此,在 1550 nm 左右宽频带范围无明显吸收峰,吸收系数低于  $15\text{ cm}^{-1}$ ,透过率接近 90%,是用于光通信,特别是红外波段的理想晶体。

### 3 结 论

文中采用液相外延方法,在不同温度与生长时间条件下制备了不同厚度的  $(\text{YBiGd})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  单晶薄膜,研究了其微波磁性能与红外 1550 nm 磁光性能。实验结果表明,膜结晶质量较好,平均表面粗糙度  $0.4\text{ nm}$ 。比饱和磁化强度值  $25\text{ emu/g}$ ,饱和外磁场  $650\text{ Oe}$  左右,饱和外场比 YIG 或 BiIG 的典型值低。在  $0\sim 20\text{ GHz}$  范围内,铁磁共振线宽  $\Delta H$  小于  $8\text{ Oe}$ ,且频率与共振线宽呈线性关系,窄的共振线宽有利于降低微波传输损耗,适用于微波器件。在  $1550\text{ nm}$  波长,透过率接近 90%,吸收系数低于  $16\text{ cm}^{-1}$ ,比法拉第转角约为  $0.1\text{ (}^\circ\text{)/}\mu\text{m}$ , $480\text{ }\mu\text{m}$  能实现超过  $45^\circ$  法拉第旋转,可用于制备红外磁光学隔离器。未来在宽带磁光器件、低损耗微波通信器件方面具有重要的应用价值。

### 参考文献:

- [1] Zhou Yongchuan, Yang Fei, Ren Shijing. Effect of  $\text{Bi}^{3+}$  substitution on properties of polycrystalline garnet ferrite materials [J]. *Magnetic Materials and Devices*, 2020, 51(2): 6-8. (in Chinese)
- [2] Zhou Jingtao, Huang Jingxia, Li Li. Nd: GGG laser at 1110 nm and frequency-doubled laser at 555 nm [J]. *Infrared and Laser Engering*, 2015, 44(3): 865-871. (in Chinese)
- [3] Wang Wei, Lan Zhongwen, Wu Zhigang. Effect of the oxygen vacancy of Ce: YIG films on optical absorption and properties [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(4): 481-484. (in Chinese)
- [4] Jiang Yong, Liao Wei, Wang Biyi, et al. Light modulation performance control of the coating on the repaired damage sites in fused silica surface [J]. *Chinese Optics*, 2021, 14(3): 552-559. (in Chinese)
- [5] Li Yilei, Zhang Ding, Luo Min, et al. Terahertz magneto-optical response of bismuth-gadolinium-substituted rear-earth garnet film [J]. *Optics Express*, 2021, 29(15): 23540-23548.
- [6] Li Jingzhao, Chen Zhenqiang, Zhu Siqi. Passively Q-switched laser with a Yb: YAG/ $\text{Cr}^{3+}$ : YAG/YAG composite crystal [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(1): 55-61. (in Chinese)
- [7] Prokopov A R, Vetoshko P M, Shumilov A G, et al. Epitaxial Bi-Gd-Sc iron-garnet films for magnetophotonic applications [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 671: 403-407.
- [8] Halagačka L, Postava K, Vanwolleghem M, et al. Mueller matrix optical and magneto-optical characterization of Bi-substituted gadolinium iron garnet for application in magnetoplasmonic structures [J]. *Optical Materials Express*, 2014, 4(9): 1903-1919.
- [9] Tan Shijie. The study of YIG film materials applied in microwave and magneto-optic components[D]. Mianyang: Southwest University of Science and Technology, 2019. (in Chinese)
- [10] Wang Juanjuan, Li Xuhui, Cao Yang, et al. Bi: Study on growth process and magneto-optical properties of Bi: YIG garnet thin film [J]. *Shandong Chemical Industry*, 2020, 49(10): 36-38. (in Chinese)
- [11] Feng Yagang. Component design and property modulation of rare earth doped (Y, Lu, Gd) $_3$ (Al, Sc) $_5$ O $_{12}$  laser ceramics[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences (University of Chinese Academy of Sciences), 2020. (in Chinese)
- [12] Zhang Shengtai, Wang Lingkun, Xu Baoliang, et al. Rapid synthesis of Nd-doped  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  garnet waste forms by microwave sintering [J]. *Ceramics International*, 2021, 47(15): 21924-21933.
- [13] Qiu Yanpeng. Preparation and study of low dimensional Bi-YIG magneto-optic materials[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2007. (in Chinese)
- [14] Yang Xue, Yang Qinghui, Zhang Huaiwu, et al. Preparation and orientation mechanism analysis of out-of-plane oriented  $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$  magneto-optic single crystal films [J]. *Journal of Physics*, 2021, 70(10): 296-303. (in Chinese)