



T.C.  
ULUDAĞ ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**Co/Cu ÇOK KATMANLI NANOYAPILAR ÜZERİNE Fe  
İÇERİĞİNİN ETKİSİ**

**Atakan TEKGÜL**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI**

**BURSA-2010**



T.C.  
ULUDAĞ ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**Co/Cu ÇOK KATMANLI NANOYAPILAR ÜZERİNE Fe  
İÇERİĞİNİN ETKİSİ**

**Atakan TEKGÜL**

**Prof. Dr. Mürsel ALPER  
(Danışman)**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI**

**BURSA-2010**


T.C.  
ULUDAĞ ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

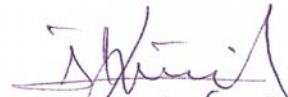
Co/Cu ÇOK KATMANLI NANOYAPILAR ÜZERİNE Fe İÇERİĞİNİN ETKİSİ

Atakan TEKGÜL

YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI

Bu Tez 13/01/2010 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği/oy çokluğu  
ile kabul edilmiştir.

  
Prof. Dr. Mürsel ALPER  
(Danışman)

  
Doç. Dr. İlker KÜÇÜK

Yrd. Doç. Dr. Ali KARA



## ÖZET

Bu çalışmada CoFe/Cu ferromanyetik çok katmanlı yapılar elektrokimyasal sentezleme tekniği ile kendi iyonlarını içeren çözeltilerden Ti (hekzagonal sıkı paket, hcp) alt tabaka üzerine 3  $\mu\text{m}$  kalınlığında olacak şekilde büyütüldüler. Bu çok katmanlı filmlerin özellikleri, Fe konsantrasyonu, Cu ve CoFe tabaka kalınlığına göre incelendi. Metallerin depozisyon potansiyelleri, dönüşümlü voltmetri (CV) tekniği ile referans elektroda (doymuş kalomel elektrot SCE) göre, CoFe için -1.5 V ve Cu için -0.3 V olarak belirlendi.

Numunelerin, yapısal karakterizasyonları X-ışını difraksiyonu (XRD) tekniği ile yapıldı. Üretilen filmlerin XRD spektrumlarında yüzey merkezli kübik (fcc) yapının (111), (200), (220) ve (311) yansımalarından kaynaklanan pikler açık şekilde gözlemlendi ve bundan dolayı numuneler tek fazlı olarak fcc yapıda kristalleşmektedir. 0.0 M Fe 0.05 M ve 0.1 M konsantrasyonuna sahip çözeltilerden üretilen numunelerin kristal yönelimlerinin, bulk metallerde olduğu gibi rastgele yönetime sahip olduğu bulundu. Fe içeriğinin 0.1 M'a kadar yükseltilmesi ile numunenin fcc fazının Fe'in cisim merkezli kübik (bcc) yapısından dolayı zayıfladığı görüldü.

Filmlerin manyetik karakterizasyonları için titreşimli örnek magnetometresi (VSM) kullanıldı. Ölçüm sonuçlarında Fe konsantrasyonunun 0.0 M'dan 0.1 M'a kadar artırılması ile filmlerin koarsivite değerlerinin azaldığı görüldü. Bu azalma, film içindeki depozit olan yumuşak ferromanyetik yapıya sahip Fe'den kaynaklanmaktadır. Bu da numunelerin koarsivite değerlerinin yumuşak ferromanyetik madde sınırı olan 12.5 Oe değerine doğru yaklaşmaktadır.

Numunelerin manyetorezistans (MR) ölçümleri van der Pauw tekniği ile ölçüldü. CoFe/Cu katmanlı filmler, periyodik yapısından dolayı dev manyetorezistans (Giant magnetoresistance-GMR) etki göstermiştir. 0.0 M Fe konsantrasyonuna sahip çözeltiden üretilen 285[Co(6 nm)/Cu(4.5 nm)] numunesi (285 bilayer sayısına sahip), %10'luk bir GMR değerine sahip iken 0.05 M Fe içeren çözeltiden üretilen numune için bu değer %22'ye kadar çıkabilmektedir. Çözeltideki Fe konsantrasyonu, 0.05 M dan 0.4 M'a kadar olan çözeltilerden üretilen filmlerin GMR değerleri azalarak %3'e kadar düşmektedir. Ayrıca numunelerin magnetorezistans değerleri hem Cu hem de CoFe tabaka kalınlığına bağlı olarak ölçüldü. CoFe tabaka kalınlığı 6 nm de sabit tutularak Cu tabakası 0 dan 10 nm'ye 23 farklı kalınlıkta büyütüldü. En büyük GMR değeri Cu kalınlığı 4.5 nm olduğu zaman elde edildi. Diğer taraftan Cu kalınlığı 4 nm de sabit tutularak CoFe kalınlığı 3-15 nm ye kadar değiştirildi ve en büyük GMR değeri CoFe kalınlığı 6 nm olduğunda gözlemlendi.

**Anahtar Kelimeler:** Elektrokimyasal depozisyon, GMR, CoFe/Cu çok katmanlı yapı, Co/Cu sistemlerine Fe içeriğinin etkisi.

## ABSTRACT

In this study, CoFe/Cu ferromagnetic multilayered structures were grown on polycrystalline Ti (hcp) substrates from electrolytes containing their ions by the electrochemical synthesis technique. The properties of the films were investigated as a function of the concentrations of Fe, magnetic and non-magnetic layers thickness. The deposition potentials of metals vs saturated calomel electrode (SCE) were determined to be -1.5 V for the deposition of the ferromagnetic layers (CoFe) and -0.3 V for non-magnetic layers (Cu), using the cyclic voltammetry method (CV).

The structural characterizations of samples were studied using X-ray Diffraction (XRD). The (111), (200), (220) and (311) peaks of face centred cubic (fcc) crystal structure were clearly observed in XRD patterns of films and therefore, all films have only fcc structure. The crystal orientations of CoFe/Cu films grown from the electrolytes containing 0 M, 0.05 M and 0.1 M Fe were calculated and seen to have a random orientation as in bulk Cu. It is observed that fcc phase of the sample is reduced with increasing Fe content up to 0.1 M owing to bcc phase of Fe.

The magnetic characterizations of samples were measured by the vibration sample magnetometer (VSM) technique. When the Fe concentration is increased from 0 M to 0.1 M, the coercivities of films approach to the soft ferromagnetic limit (12.5 Oe), due to the soft ferromagnetic Fe.

The magnetoresistance (MR) characterizations of samples were studied by the van der Pauw technique. All films exhibited giant magnetoresistance (GMR) due to their periodic structure. The GMR magnitude of a  $285[\text{Co}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(4.5 \text{ nm})]$  film grown from an electrolyte containing 0.0 M Fe is 10 %, but this value increases up to 20% for the  $285[\text{CoFe}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(4.5 \text{ nm})]$  film grown from the electrolyte with 0.05 M. When the Fe concentration in the electrolyte is increased from 0.05 M to 0.4 M the GMR value decreases down to 3%. In addition, the magnetoresistance measurements of samples were performed as a function both Cu and CoFe layer thickness. The CoFe layer thickness was held constant at 6 nm, the thickness of the Cu layer was changed from 0 to 10 nm. For this series, the largest GMR value was obtained to be 16% when Cu layer thickness was 4.5 nm. On the other hand, the Cu layer thickness was fixed at 4 nm and the CoFe layer thickness was changed from 3 nm to 15 nm. For the samples in this group, the maximum GMR value was found to be 22% for the CoFe layer thickness of 4 nm.

**Key Words:** Electrodeposition, GMR, CoFe/Cu multilayered structure, the effect of Fe content in Co/Cu systems.

## İÇİNDEKİLER

<b>ÖZET</b> .....	<b>i</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>ii</b>
<b>İÇİNDEKİLER</b> .....	<b>iii</b>
<b>SİMGELER DİZİNİ</b> .....	<b>v</b>
<b>ŞEKİLLER DİZİNİ</b> .....	<b>vii</b>
<b>TABLolar DİZİNİ</b> .....	<b>ix</b>
<b>1. GİRİŞ</b> .....	<b>1</b>
<b>2. KURAMSAL BİLGİLER</b> .....	<b>4</b>
<b>2.1 ELEKTROKİMYA’YA GENEL BAKIŞ</b> .....	<b>4</b>
<b>2.2 ÇOK KATMANLI YAPININ ELEKTROKİMYASAL DEPOZİSYONU</b> .....	<b>8</b>
2.2.1 Co,Fe ve Cu metalleri .....	8
2.2.2 CoFe/Cu Çok katmanlı yapıları .....	9
<b>2.3 MANYETİZMA VE MANYETOREZİSTANS</b> .....	<b>11</b>
2.3.1 Yumuşak manyetik maddeler.....	12
2.3.2 Sert manyetik maddeler.....	13
2.3.3 Elektriksel direnç kavramı .....	14
2.3.4 Manyetorezistans (MR).....	15
<b>3. MATERYAL VE YÖNTEM</b> .....	<b>21</b>
<b>3.1 ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYON</b> .....	<b>21</b>
<b>3.2 ÇOK KATMANLI YAPILARIN HAZIRLANMASI</b> .....	<b>24</b>
3.2.1 Alttabakanın hazırlanması.....	24
3.2.2 Elektrokimyasal depoziyon işlemi .....	24
3.2.3 Çok katmanlı yapıların alttabakadan kaldırılması.....	26
<b>3.3 YAPISAL KARAKTERİZASYON</b> .....	<b>26</b>
3.3.1 X-Işını difraktometresi (XRD).....	26
3.3.2 Taramalı Elektron mikroskobu (SEM).....	28
<b>3.4 MANYETİK VE MANYETOREZİSTANS KARAKTERİZASYONU</b> .....	<b>29</b>
3.4.1 Titreşimli örnek magnetometresi (VSM).....	29
3.4.2 Manyetorezistans .....	30
<b>4. ARAŞTIRMA VE SONUÇLAR</b> .....	<b>33</b>
<b>4.1 Giriş</b> .....	<b>33</b>
<b>4.2 ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYONLAR</b> .....	<b>33</b>
<b>4.3 YAPISAL KARAKTERİZASYON</b> .....	<b>38</b>
4.3.1 X-ışını difraksiyonu .....	38
4.3.2 Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji dağılımı x-ışını (EDX)....	42
<b>4.4 MANYETİK VE MANYETOREZİSTANS KARAKTERİZASYONU</b> .....	<b>45</b>
4.4.1 Manyetik karakterizasyonlar üzerine Fe içeriğinin etkisi .....	45

4.4.2	Manyetik karakterizasyonlar üzerine CoFe tabakasının etkisi.....	47
4.4.3	Manyetik karakterizasyonlar üzerine Cu tabakasının etkisi.....	49
4.4.4	Manyetorezistans üzerine Fe konsantrasyonunun etkisi.....	51
4.4.5	Manyetorezistansın ferromanyetik tabaka (CoFe) kalınlığı ile deęiřimi....	53
4.4.6	Manyetorezistansın manyetik olmayan tabaka (Cu) kalınlığı ile deęiřimi.	55
<b>5.</b>	<b>TARTIřMA .....</b>	<b>60</b>
	<b>KAYNAKLAR .....</b>	<b>63</b>
	<b>TEřEKKÜR .....</b>	<b>67</b>
	<b>ÖZGEÇMİř.....</b>	<b>68</b>

## SİMGELER DİZİNİ

Simge	Adı
A	Yüzey Alanı, Amper
c	Metal iyonu konsantrasyonu
D	Difüzyon katsayısı
d	Kristal düzlemleri arasındaki uzaklık
$\vec{E}$	Elektrik alan
E	Denge elektrot potansiyeli
$E^{\theta}$	Standart elektrot potansiyeli
$E_F$	Fermi enerji seviyesi
$e^-$	Elektron
F	Faraday sabiti
$f_a$	Aktiflik katsayısı
H	Manyetik alan şiddeti
$H_C$	Koarsivite
I	Şiddet
J	Akım yoğunluğu
M	Metal atomu, mıknatıslanma
$M^{+n}$	Metal iyonu
$M_a$	Bağlı atomik kütle
$M_s$	Doyum mıknatıslanması
MR(%)	Manyetorezistanstaki yüzde değişim
N	Mol sayısı
n	Yansıma mertebesi, değerlik elektron sayısı
R	İdeal gaz sabiti
$R_E$ ve $R_B$	Van der Pauw direnci
q	Elektronun yükü
T	Mutlak sıcaklık
V	Potansiyel farkı
v	Hız



$\sigma$	İletkenlik
$\rho$	Özdirenç
$\phi$	Manyetik akı
$\theta$	Bragg açısı
$2\theta$	Difraksiyon açısı
$\lambda$	X-ışını dalga boyu

## ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1	Üç elektrotlu elektrokimyasal hücre. ....	7
Şekil 2.2	(a) Sıkı paketli altıgen yapı (hcp), (b) Cisim merkezli kübik yapı (bcc), (c) Yüzey merkezli kübik yapı (fcc).....	9
Şekil 2.3	CoFe/Cu Çok katmanlı nano yapısı. ....	10
Şekil 2.4	Depozisyon Olayı. ....	11
Şekil 2.5	Fe'in [100] yönündeki tipik mıknatıslanma eğrisinin yüksek ve düşük alan skalasında domainlerin de meydana gelen değişim (O'Handley 2000).....	13
Şekil 2.6	Solda, Fe/Cr çok katmanlı yapısı için Fe kolay açılı yönelimleri, akım ve alan (Baibich 1988); sağda, artan alan ile çok katmanlı yapılarda mıknatıslanma sürecinin şematik gösterimi (O'Handley 2000). ....	16
Şekil 2.7	GMR etkinin keşfinde elde edilen deneyimler. (A. Fert's team in Orsay 1988). ....	17
Şekil 2.8	Yüzey ve arayüzey saçılmalarında oluşan dirençlerin gösterimi. Ferromanyetik tabaka (FM), manyetik olmayan tabaka (NM).(a) Paralel Ferromanyetik Durum (FM). (b) Antiparalel ferromanyetik durum (AFM). .	19
Şekil 3.1	(a) Dönüşümlü voltamogramın elde edilmesinde kullanılan potansiyelin zamanla değişimi. (b) Bu potansiyele karşılık gelen akım değişimi (Hibbert 1993). ....	22
Şekil 3.2	Oda sıcaklığında, 0.04 M CuSO <sub>4</sub> çözeltisinin dönüşümlü voltametri (CV) eğrisi. ....	22
Şekil 3.3	Elektrokimyasal depozisyon sistemi. ....	23
Şekil 3.4	Co/Cu ve CoFe/Cu filmlerin depozisyonunda kullanılan deneysel sistemin diyagramı. ....	25
Şekil 3.5	X-Işını kırınımının şematik gösterimi. ....	27
Şekil 3.6	X-ışını Kırınımı. ....	27
Şekil 3.7	VSM bobinleri ve numune. ....	30
Şekil 3.8	Van der Pauw Tekniği. ....	31
Şekil 4.1	2.7 pH değerine sahip 20°C sıcaklığındaki CoFe/Cu çözeltisinin (çözelti G) ilk dört devrini içeren dönüşümlü voltametri (CV) ....	34
Şekil 4.2	(a) Co/Cu ve (b) CoFe/Cu örneklerinin akım-zaman geçişleri. ....	35
Şekil 4.3	Çözelti içindeki Fe konsantrasyonunun değişime göre akım-zaman geçişleri. ....	37
Şekil 4.4	0.025, 0.05, 0.1 M Fe içeren C, G, K çözeltilerden yapılan numunelerin 40°-100° arasındaki XRD sonuçları ....	39

Şekil 4.5	G çözeltisinden üretilen 0.05 M Fe içeren numunelerin 40-100 derece arasındaki manyetik tabaka kalınlığı sabit tutulmak üzere manyetik olmayan tabaka kalınlığına göre XRD desenleri.....	41
Şekil 4.6	0.05 M Fe konsantrasyonuna sahip G çözeltisinden, çözelti sıcaklığı (a) 20 <sup>0</sup> C; (b) 30 <sup>0</sup> C olduğunda üretilen 285[CoFe(6 nm)/Cu(4.5 nm)] çok katmanlı yapının yüzey morfolojisi.....	43
Şekil 4.7	CoFe/Cu filminin, filmin manyetik alana hem paralel hem de dik ölçümleri için elde edilen histeresis eğrileri.....	46
Şekil 4.8	C,D,E ve J çözeltilerinden üretilen numunelerin histeresis eğrileri.....	46
Şekil 4.9	Fe içeriğinin, doyum mıknatıslanmasına göre grafiği.....	47
Şekil 4.10	Fe konsantrasyonunun koarsiviteye göre grafiği.....	47
Şekil 4.11	Ferromanyetik tabaka kalınlığının değişimine göre histeresis eğrileri.....	48
Şekil 4.12	Manyetik tabaka kalınlığı değişimine göre (a) doyum mıknatıslanması ve (b) koarsivite.....	49
Şekil 4.13	Manyetik olmayan tabaka kalınlığı değişimine göre (a) doyum mıknatıslanması ve (b) koarsivite.....	50
Şekil 4.14	A çözeltisinden üretilen demir içermeyen Co/Cu çok katmanlı nanoyapısı..	51
Şekil 4.15	(a) 0.0125 M Fe'li B çözeltisinden; (b) 0.05 M Fe'li G çözeltisinden; (c) 0.1 M Fe'li K çözeltisinden üretilen numunelerin GMR eğrileri.....	52
Şekil 4.16.	Çözeltideki demir konsantrasyonuna göre GMR ın değişimi.....	53
Şekil 4.17	CoFe/Cu çok katmanlı yapıları için CoFe kalınlığının 3 nm den 12 nm ye kadar yapılan %MR ölçümleri. Cu kalınlığı 4 nm için CoFe kalınlığı: (a) 3 nm (b) 6 nm (c) 8 nm (d) 10 nm.....	54
Şekil 4.18	Ferromanyetik tabaka kalınlığının (CoFe), MR etkisi.....	55
Şekil 4.19	[CoFe(6 nm)/Cu(0 nm)] yapısı için van der Pauw tekniği ile yapılan ölçümde gözlemlenen AMR eğrisi.....	56
Şekil 4.20	pH 2.6 olan oda sıcaklığında bazı numunelerin Cu tabaka kalınlığının değişimine göre % MR değişimleri.....	58
Şekil 4.21	CoFe/Cu yapıda Cu tabakasının %MR değişimine etkisi.....	58

**TABLULAR DİZİNİ**

Tablo 2.1	25°C’ de sulu çözelti içindeki bazı metaller için volt (V) olarak NHE ve SCE’ ye göre standart elektrot potansiyelleri (SEP) (Bard ve Faulkner 1980)	6
Tablo 4.1	CoFe/Cu ince filminin büyütülmesinde kullanılan çözeltiler	36
Tablo 4.2	Fe konsantrasyonu değişime göre numunelerin kristal yönelimleri	40
Tablo 4.3	Fe konsantrasyonu değişimi ile numunelerde ölçülen örgü sabiti, düzlemler arası uzaklık ve bağıl şiddetler	40
Tablo 4.4	CoFe tabaka kalınlığı 6 nm’de sabit tutularak, Cu tabaka kalınlığı değişimi ile büyütülen numunelerin kristal yönelimleri	41
Tablo 4.5	Aynı kalınlıkta (3 µm) üretilmiş CoFe/Cu filmlerin Cu tabaka kalınlığı değişimine göre XRD sonuçları. tCoFe = 6 nm (sabit)	44
Tablo 4.6	Aynı kalınlıkta (3 µm) üretilmiş CoFe/Cu filmlerin CoFe tabaka kalınlığı değişimine göre XRD sonuçları. tCu = 4 nm (sabit)	44
Tablo 4.7	EDX analizinde numuneler içinde belirlenen atomların yüzdesi	45

## 1. GİRİŞ

Çok katmanlı nano yapılar günümüzün bilimsel ve teknolojik açıdan ilgi çeken, endüstride kullanım alanı gittikçe yaygınlaşan malzemelerden biridir. Bu sistemlerin bilinmeyen özellikleri gün geçtikçe ortaya çıkmakta ve teknolojide bu sayede hızlı bir değişim süreci geçirmektedir. Ferromanyetik ve manyetik olmayan maddelerin nano boyutlarda üst üste eklenmesi ile meydana gelen bu sistemleri değişik tekniklerle üretmek mümkündür. Bu tekniklerin günümüzde en çok kullanılanları; Moleküler Demet Epitaksi (MBE), Püskürtme (Sputtering) ve Elektrokimyasal depozisyon (Elektrodepozisyon) dur. Elektrodepozisyon oda sıcaklığı ve atmosfer basıncında, istenilen geometride, hızlı ve ekonomik bir üretim sürecine sahip olmasından dolayı günümüzde önemi artmaktadır.

Elektrokimyasal depozisyon tekniği ile hazırlanan çok katmanlı nano yapıların özellikleri film kalınlığı, alttabaka seçimi, kristal yönelimi gibi fiziksel parametreler yanında depozisyon potansiyelleri, çözelti sıcaklığı, pH ve konsantrasyon gibi elektrokimyasal parametrelerden de etkilenmektedir. Bu parametrelerin uygun seçimleri üretilen numunelerin kalitesini de arttırmakta ve özelliklerinin iyileştirilmesini sağlamaktadır.

Elektrodepozisyon tekniği ile depozit edilmiş demir grubu metallerin (Fe, Co ve Ni) ve onların alaşımlarının manyetik ince filmleri bilgisayar okuma-yazma kafalarında (Chiu ve ark 1996, Androcacos ve Robertson 1998) ve mikro elektromekanik (MEMS) sistemlerdeki (O'Sullivan ve ark. 1998, Liu ve ark. 1999, Rasmussen ve ark. 2001), potansiyel uygulamalarından dolayı geliştirilmeye başlandı. Bilgisayar bilgi depolama disklerindeki (Androcacos ve Robertson 1998, Osaka ve ark. 1998) kapasitenin artması, gün geçtikçe yüksek performanslı ve minyatürize olması gereken yeni yumuşak materyallerin gereksinimini doğurdu (Daheum ve ark. 2003).

Antiferromanyetik çift Fe/Cr çok katmanlı yapılarında GMR'ın keşfinden beri (Baibich ve ark. 1988, Binasch ve ark. 1989), manyetorezistans sensörler için umut vaat eden farklı biçimlerde çok katmanlı sistemler geliştirildi (Simmonds 1995, Dahlberg ve Zhu 1995, Prinz 1995). Şimdiye kadar birçok manyetik çok katmanlı yapılar püskürtme ve MBE ile atomik ölçekte en iyi kalitede üretilebilmektedir. Püskürtme yöntemi ile üretilen  $Co_{90}Fe_{10}/Cu$  düşük doyum alanlarında  $Co/Cu$  sistemleri (Mosca ve ark. 1991, Parkin ve ark. 1992) ile karşılaştırıldığında yüksek GMR oranları gözlemlendiğinden (Saito ve Inomara 1991, Inomata ve Saito 1993) bu materyaller teknolojik uygulamalarda büyük ilgi görmektedir (Kakuno ve ark. 1999). Vakum sistemleri ile üretilen katmanlı tabakalardaki GMR etkisinin ardından elektrodepozisyon gibi teknikler ile üretilen sistemlerde de GMR etkisi araştırılmaya başlandı. Elektrodepozit edilen NiCo/Cu katmanlı tabakalarının da önemli ölçüde GMR özelliğine sahip olduğu bulundu (Alper ve ark. 1993). Bu gözlemin ardından elektrodepozisyon ile üretilen ferromanyetik süperörgüler ve nanoteller gibi yapılar üzerindeki çalışmalar daha çok yoğunlaştı. Bu araştırmalar çeşitli makalelerde özetlenmiştir (Alper 2003, Jyoko ve ark. 1997, Schwarzacher ve Lashmore 1996, Bird ve Schlesinger 1995, Lenczowski ve ark. 1995, Piraux ve ark. 1994, Blondel ve ark. 1994). Özellikle düşük manyetik alanlarda yüksek GMR değerleri elde etmek için Fe içerikli çok katmanlı tabakalar üzerindeki araştırmalar ilgi çekmiştir. Chang ve Romankiw elektrokimyasal depozisyon ile yaptıkları  $Co_{90}Fe_{10}/Cu$  çok katmanlı yapılarında GMR etkisini başarılı bir şekilde gözlemlediklerini rapor etmişlerdir (Chang ve Romankiw 1994).

Bu çalışma, bölümümüzde geliştirilen elektrokimyasal depozisyon tekniği kullanılarak üretilen Co/Cu çok katmanlı nano yapılarının Co tabakalarına Fe ilave edilerek titanyum (Ti) alttabaka üzerine büyütülmesi, kimyasal, yapısal ve magnetorezistans özelliklerinin incelenmesi ile ilgilidir. Tezin kapsamı Giriş, Kuramsal Bilgi, Materyal ve Yöntem, Araştırma Sonuçları ve Tartışma olmak üzere beş bölüme ayrılmıştır. Giriş bölümünde yapılan çalışmalar hakkındaki bilgiler yanında tezin bölümleri tanıtılmaktadır. Bölüm 2 de, elektrokimyasal depozisyon ve bunu etkileyen faktörler, magnetorezistans olayı hakkında kuramsal bilgiler verilmiştir. Materyal ve Yöntem bölümünde numunelerin üretildiği çözeltinin elektrokimyasal karakterizasyonu için gereken dönüşümlü voltametri (CV) tekniği, numune hazırlama ve alttabakadan

kaldırma işlemlerinden bahsedilmiştir. Yapısal analizlerinde kullanılan X-ışınları difraksiyonu (XRD) ve magnetorezistans(MR) özelliklerini ölçerken kullanılan Van der Pauw (VDP) teknikleri kısaca tanıtılmıştır. Üretilen CoFe/Cu filmlerin incelenen özelliklerinden elde edilen veriler ve yorumları Araştırma Sonuçları ve Tartışma bölümünde yer almaktadır.

## 2. KURAMSAL BİLGİLER

### 2.1 Elektrokimya'ya Genel Bakış

Basit bir elektrokimyasal olay elektriksel ve kimyasal enerjilerin birbirine dönüşümü ve bunun sonucunda ortaya çıkan yükseltgenme ve indirgenme tepkimeleri olarak nitelenebilir. Bu tepkimeler çözelti ve elektrotlardan kurulu bir elektrokimyasal hücrede meydana gelmektedir. Elektrokimyasal hücreler genel olarak iki gruba ayrılmaktadır. Bunlar galvanik elektrokimyasal hücreler ve elektrolitik elektrokimyasal hücreler olarak adlandırılırlar. Bu iki elektrokimyasal hücre çeşidini birbirinden ayıran en önemli özellik enerji ile aralarındaki ilişkidir. Galvanik hücrede kimyasal reaksiyonlar dışarıdan bir enerji verilme gereği duyulmadan kendiliğinden gerçekleşir ancak elektrolitik hücrede ise kendiliğinden bir kimyasal reaksiyon gerçekleşmez. Kimyasal bir reaksiyon gerçekleşebilmesi için dışarıdan sisteme enerji verilmesi zorunludur. Galvanik hücrede katot potansiyeli anoda göre daha pozitif, elektrolitik hücrede katot potansiyeli anoda göre daha negatiftir (Kılıç ve ark. 1998).

Elektrokimyasal hücrelerde elektrot, transfer edilen elektronların veya çözelti içindeki çeşitli iyonların kaynağı (indirgenme için) veya bir kuyu gibi (yükseltgenme için) davranabilir.



Bir metalin elektrodepozisyonunda, metal iyonlarını içeren elektrolitik bir elektrokimyasal hücrenin katodu üzerine metalin indirgenmesi ile gerçekleşir. Bu (2.1)'deki reaksiyonun soldan sağa doğru işlemesine karşılık gelir yani  $M^{n+}$  iyonunun katottan n sayıda elektron alarak  $M$  metaline indirgenmesidir. Burada  $M^{n+}$  ve  $M$  sırasıyla yükseltgenmiş ve indirgenmiş türleri temsil eder.



Depozisyon işleminde bir elektrokimyasal hücre 2 veya 3 elektrottan (Şekil 2.1) oluşabilir. İki elektrotlu sistemlerde elektrotlardan biri anot diğeri katottur, bunlara bağlı olarak sisteme referans elektrot eklenerek 3 elektrotlu hale getirilebilir. Elektrot reaksiyonları yarı reaksiyonlardır ve indirgenme gibi ifade edilirler. Bu bakımdan her metal bir indirgenme potansiyeline sahiptir. Bu potansiyeller bir referans elektroda göre tayin edilir ve buna standart elektrot potansiyel (SEP) denir. Uluslararası kabul görmüş standart potansiyeli sıfır kabul edilen Standart Hidrojen Elektrotu (SHE)'dir. İdeal sayılabilecek bir referans elektrot, bilinen bir çözelti bileşiminden etkilenmeyecek bir potansiyele sahip olmalıdır. Bu durumdan dolayı uygulamada çekilen güçlükler nedeniyle SHE'un yerine kullanımı bakımından yaygın olan doymuş kalomel elektrot (SCE) kullanılır. SCE'nin potansiyeli 25°C'de SHE'ye göre 0.242 volt (V)'tur (Yıldız ve ark. 1997).

Tablo 2.1'de bazı metaller için SHE'ye ve SCE'ye göre standart elektrot potansiyelleri verilmiştir. Burada SEP'i daha pozitif olan metal için daha soy olduğu söylenebilir. Tabloda Cu'nun, Co ve Fe'ye göre daha soy olduğu görülmektedir. İçinde birden çok metal içeren çözeltilerde çok soy olan metal daha az soy olan metale göre daha çok indirgenir. Bundan dolayı çözelti içindeki çok soy olan bir metalin konsantrasyonu diğer metallere göre az bile olsa depozit edilen numune içindeki konsantrasyonları daha yüksek olabilir.

Çözelti içindeki iyonlarının konsantrasyonuna bağlı olarak verilen bir metalin denge elektrot potansiyeli, Nerst Eşitliği ile ilişkilendirilebilir (2.2).

$$E = E^0 - \frac{RT}{nF} \log C f_a \quad (2.2)$$

Burada  $E^0$  standart elektrot potansiyeli, R ideal gaz sabitini, T sıcaklığı, n valans elektron sayısını, F faraday sabitini, C metal iyonlarının molar konsantrasyonunu,  $f_a$  ise metal iyonunun aktiflik katsayısını temsil etmektedir. Hücreden net bir akım gözlemlemek için elektrota onun denge değerinden farklı bir potansiyel uygulamak gerekir. Uygulanan bu elektrot potansiyeli, denge potansiyelinden daha negatifse

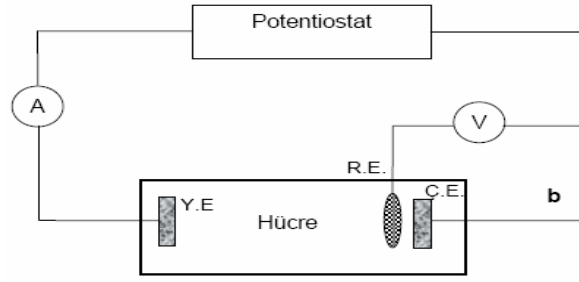
katodik akım geçer ve elektrodepozisyon olayı gerçekleşir. Uygulanan elektrot potansiyeli, denge potansiyelinden daha pozitifse anodik akım geçer.

**Tablo 2.1** 25°C’ de sulu çözelti içindeki bazı metaller için volt (V) olarak NHE ve SCE’ ye göre standart elektrot potansiyelleri (SEP) (Bard ve Faulkner 1980)

Reaksiyon	SHE’ye göre SEP (V)	SCE’ye göre SEP(V)
$Ag^+ + e^- = Ag$	0.7996	0.5581
$Cu^{++} + 2e^- = Cu$	0.3402	0.0987
$Ni^{++} + 2e^- = Ni$	-0.23	-0.4715
$Co^{++} + 2e^- = Co$	-0.28	-0.5215
$Fe^{++} + 2e^- = Fe$	-0.409	-0.6505
$Zn^{++} + 2e^- = Zn$	-0.7628	-1.0043
$Au^+ + e^- = Au$	1.68	1.4385
$Pt^+ + e^- = Pt$	1.2	0.9585
$2H^+ + 2e^- = H_2$	0	-0.2415

Bir elektrot süreci ve elektrot reaksiyonu anlaşıldığı takdirde bu bilgi şunlar için kullanılabilir:

- Elektrot reaksiyonlarında uyarılama yaparken bazı gerekli geliştirmeler veya istenmeyen elektrot reaksiyonları olacaktır, bunlardan kaynaklanan sorunları elektrot materyali değiştirerek veya yeni elektrot materyalleri geliştirerek çözüm bulmada.
- Karmaşık sistemlerle çalışırken çoğu elektrot reaksiyonları art arda olanlar veya aynı zamanda olanları ayırt etmede.
- Elektroaktif türlerin konsantrasyon değerlemesinde potansiyeli seçici bir kullanımı sağlamak veya dış denge durumunda elektrot materyalinin seçimini sağlamak için kullanılabilirler (Brett ve Brett 1994).



**Şekil 2.1** Üç elektrotlu elektrokimyasal hücre.

Şekil 2.1'deki sistemde elektrodepozisyonun meydana geldiği bir elektrolitik hücrenin diyagramı verilmiştir. Depozisyonun gerçekleştiği katot, çalışma elektrotu (ÇE) ucuna bağlanır. Yardımcı elektrota (YE) da anot bağlanır. Referans elektrot (RE) çözelti direncinin olabildiğince azaltılması için ÇE'ye oldukça yakın yerleştirilir. Oluşturulan bu elektrokimyasal hücrede, potentiostat, ÇE ve YE arasındaki potansiyeli değiştirerek ÇE ve RE arasındaki potansiyeli kontrol etmek için kullanılır (Alper 1995, Yıldız ve ark. 1997).

Elektrokimyasal depozisyon sırasında depozit edilen madde miktarı Faraday yasasından (2.3) yararlanılarak bulunabilir. Elektrotlardan ayrılan madde miktarı devreden geçen akım miktarı ile doğru orantılıdır.

$$q = N n F \quad (2.3)$$

Burada  $q$  devreden geçen yük miktarı,  $N$  depozit edilen maddenin mol sayısı,  $n$  metalin değerliğidir. Depozit edilen metalin mol sayısı, kütle ( $m$ ) ve bağlı atomik kütle ( $M_a$ ) ile ifade edilerek film kalınlığı bulunabilir. Buna göre kalınlık ( $t$ ) (2.4) ifadesi:

$$t = \frac{q M_a}{A \rho F n} \quad (2.4)$$

ile hesaplanabilir. Burada  $A$  filmin yüzey alanı,  $\rho$  depozit edilen metalin yoğunluğudur. Böylelikle istenilen metal, metal çiftleri ya da depozit edilmek istenilen madde için

çözelti ile olan ilişkisi, depozit yüzeyi, üretilen numunenin kalınlığı hakkında bilgilere kesin olarak ulaşılmış olur.

## 2.2 Çok Katmanlı Yapının Elektrokimyasal Depozisyonu

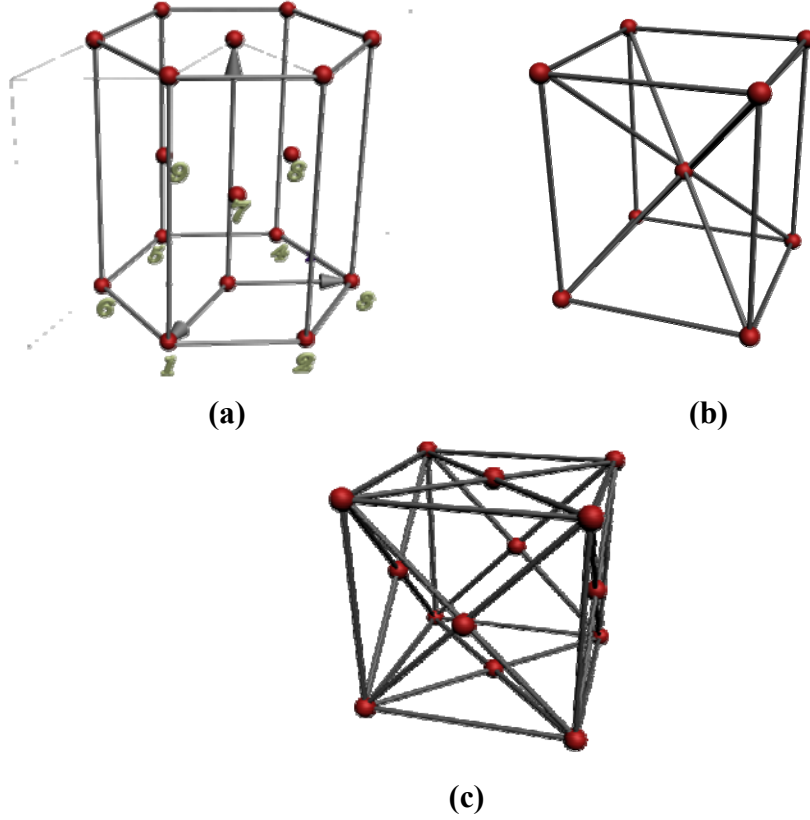
### 2.2.1 Co,Fe ve Cu metalleri

Kobalt (Co) ve demir (Fe) metalleri geçiş elementleri olarak bilinir ve manyetik özelliği en belirgin olan maddelerdendir. Manyetik alana kondukları zaman manyetik alan yönünde net bir mıknatıslanmaya sahip olurlar.

Kobalt, 1735 yılında George Brandt tarafından keşfedilmiştir. Normal şartlar altında metalik gri renkli olan 3d geçiş metallerinden biridir. Manyetik tercihi ferromanyetik olan Co'nun atom numarası 27 dir. Kristal yapısı hekzagonal (hcp) yapı (Şekil 2.2a) örgü sabiti ( $a=2.51\text{Å}$  ve  $c=4.07\text{Å}$ ) Co aynı zamanda fcc yapıda da kristalleşebilir (fcc yapı için örgü parametresi  $a=3.55\text{Å}$ ). Yoğunluğu  $8.90\text{ g/cm}^3$  ve  $20^\circ\text{C}$  deki elektriksel direnci  $62.4\text{ n}\Omega\text{m}$  olan Co sert bir yapıya sahiptir. Elektrokimyasal açıdan sulfat tuzlarından indirgenmeleri kolaydır ve SHE'ye göre standart elektrot potansiyeli  $-0.28\text{ V}$ 'tur.

Demir, yerkabuğunda en çok bulunan metaldir. Co gibi geçiş metalidir. Manyetik tercihi ferromanyetik olan Fe'nin atom numarası 26, kristal yapısı cisim merkezli kübik (bcc) yapı (örgü sabiti  $a=2.87\text{Å}$ ) (Şekil 2.2.b), yoğunluğu  $7.86\text{ g/cm}^3$  ve  $20^\circ\text{C}$  deki elektriksel direnci  $96.1\text{ n}\Omega\text{m}$  dir. Yumuşak bir yapıya sahiptir. SHE'ye göre standart elektrot potansiyeli  $-0.409\text{ V}$ 'tur.

Bakır (Cu), metali ise ilk defa Kıbrıs'ta rastlandığı için tüm dillerdeki isimlerinin Cyprium kelimesinden türediği tahmin edilen 3d geçiş metalidir. Manyetik tercihi diamanyetik olan Cu'nun atom numarası 29, kristal yapısı yüzey merkezli kübik (fcc) yapı. (örgü sabiti  $a=3.62\text{Å}$ ) (Şekil 2.2.c), yoğunluğu  $8.96\text{ g/cm}^3$  ve  $20^\circ\text{C}$  deki elektriksel direnci  $16.78\text{ n}\Omega\text{m}$  dir. SHE'ye göre standart elektrot potansiyeli  $0.3402\text{ V}$ 'tur.



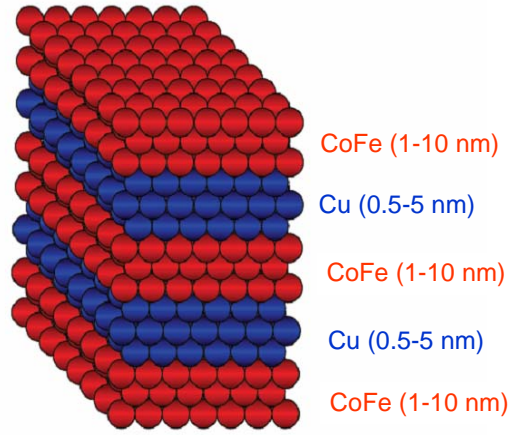
**Şekil 2.2** (a) Sıkı paketli altıgen yapı (hcp), (b) Cisim merkezli kübik yapı (bcc), (c) Yüzey merkezli kübik yapı (fcc).

SHE'ye göre standart elektrot potansiyelleri karşılaştırıldığında Cu, Co ve Fe'ye göre daha pozitifdir. Bundan dolayı Cu üçünün içinde en soy olan metaldir.

### 2.2.2 CoFe/Cu Çok katmanlı yapıları

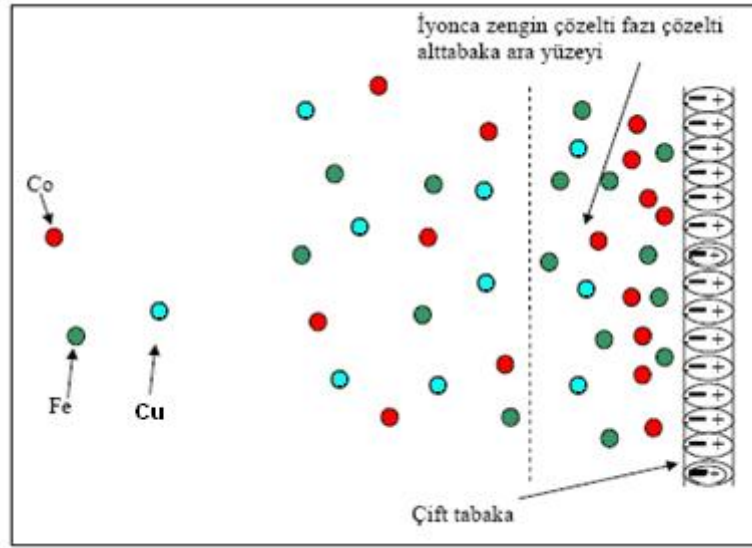
CoFe/Cu ferromanyetik katmanlı yapıları, elektrokimyasal depozisyon yöntemi ile üretilebilecek sistemlerden biridir. Bu sistemler manyetik ve manyetik olmayan tabakaların nanometre mertebesinde bir alt tabaka üzerine üst üste büyütülmesi ile oluşturulurlar (Şekil 2.3).

CoFe/Cu katmanlı yapıları tek bir çözelti kullanılarak, potansiyel ve akım yoğunluğunun değiştirilmesi ile çözelti içindeki farklı SEP'lere sahip metal iyonlarının manyetik ve manyetik olmayan katmanları oluşturabilecek şekilde depozit etmek mümkündür.



**Şekil 2.3** CoFe/Cu Çok katmanlı nano yapısı.

Şekil 2.4'te çözelti içerisinde Co ve Fe iyonları homojen şekilde dağılmıştır. Akım uygulanmadan önce çözelti ile elektrot ara yüzeyi arasında bir elektriksel çift tabaka oluşur. Bu yapı kondansatöre benzetilebilir ve ilk başta verilen akım, nasıl kondansatörlü devrelerde ilk olarak kondansatör yükleniyorsa depozisyon olayında da çift tabaka yüklenir. Bu aşamada depozisyon gerçekleşmez. Elektrota daha fazla potansiyel uygulandığı zaman elektrot negatif yüklenir ve burada çözelti ile elektrot ara yüzeyine doğru pozitif yüklü Co ve Fe iyonlarını çekmeye başlar. Bu sayede depozisyon işlemi uygulanan akım ile başlamış olur. Bölüm 2.2.1'de de anlatıldığı gibi bakırın, kobalt ve demire göre daha soy olmasından dolayı Co ve Fe ile birlikte Cu'da ferromanyetik tabaka (CoFe) ile birlikte depozit olur. Bu nedenle çözelti içinde bakır konsantrasyonu azaltılarak, bu depozisyon sürecinde CoFe ferromanyetik tabakasına depozit olan Cu oranının daha az olması sağlanır. Diğer taraftan Cu'nun depozisyonu için bakırın indirgenme potansiyelinden daha negatif, Co ve Fe'in indirgenme potansiyellerine göre de daha pozitif bir potansiyel uygulanması yeterli olacaktır. Böylece Co/Cu filmi için Co(Cu) alaşımı (A) ve Cu tabakası (B) üst üste ABABAB... şeklinde depozit olur, CoFe/Cu filmi de aynı şekilde bu sefer A olarak CoFe(Cu) alaşımı ve B için Cu tabakası depozit olacaktır.



Şekil 2.4 Depozisyon Olayı.

### 2.3 Manyetizma ve manyetorezistans

Atomik boyutta, çiftlenmemiş elektronları olan her bir atom manyetik momente sahiptir. Bu manyetik momentler, çiftlenmemiş elektronların yörüngesel açısal momentum ve spin açısal momentumları nedeniyle meydana gelir. Katıların manyetik davranışları; her bir atomun manyetik momentinin komşu atomların manyetik momentleriyle nasıl etkileştiğine ve bu manyetik momentlerin bir dış manyetik alana nasıl tepki verdiklerine bağlıdır.

Diamanyetik ve paramanyetik malzemelerde, her bir atomun manyetik momentinin yönü diğerlerinden bağımsızdır. Böylece, dış manyetik alan olmadığında net manyetik moment sıfırdır. Paramanyetik malzemeye dış manyetik alan uygulandığında her bir manyetik moment üzerine bir tork etki eder. Tüm örnek üzerinde oluşan ortalama manyetik moment dış manyetik alanla aynı yöndedir ve büyüklüğü dış alanın büyüklüğü ile orantılıdır. Diamanyetik malzemeye dış alan uygulandığında ise, dış alan yönüne ters yönde net bir manyetik moment oluşur.

Diamanyetik ve paramanyetik malzemelerin tam tersine, ferromanyetik malzemeler zayıf bir dış manyetik alan içinde bile birbirlerine paralel olarak yönelmeye çalışan atomik manyetik dipol momentlere sahiptirler. Bir kere momentler paralel hale getirildikten sonra, dış alan kaldırılrsa bile ferromanyetik malzeme mıknatıslanmış olarak kalacaktır. Bu sürekli yönelim, komşu manyetik momentler arasındaki kuvvetli etkileşimden kaynaklanmaktadır. Bu etkileşim neticesinde ferromanyetik malzeme içinde manyetik momentleri aynı yönde olan atomlardan oluşan bölgeler meydana gelir. Bu bölgeler manyetik domain olarak adlandırılırlar. Domainlerin hacimleri yaklaşık olarak  $10^{-12} - 10^{-8} m^3$  olup, her bir domain  $10^{17} - 10^{21}$  civarında atom içermektedir. Farklı yönelimlere sahip olan domainlerin arasındaki sınırlara domain duvarları denilir (Serway, 1996).

Mıknatıslanmamış bir malzemede domainler net manyetik moment sıfır olacak biçimde rasgele yönelirler. Dış manyetik alan uygulandığı zaman, alanla aynı yönetime sahip olmayan bütün dipoller üzerine bir kuvvet etki eder. Bu kuvvet, domain duvarı atomlarının manyetik dipollerini dış alan yönüne doğru döndürür. Böylece, dış alan yönündeki domainler büyür. Eğer dış alan yeterince güçlüyse, malzeme içerisindeki bütün manyetik dipoller alan yönünde yönelir ve malzeme manyetik doyuma ulaşır. Bu durumda dış manyetik alan kaldırılrsa bile, dış alan yönünde net bir manyetik moment (kalıcı mıknatıslanma) kalır.

### 2.3.1 Yumuşak manyetik maddeler

Mıknatıslanma süreci sırasında domain duvarlarının yönelimi ve domain mıknatıslanma yönüne dönüşleri koarsivite ( $H_C$ ),  $H_C \leq 12.5$  Oe (Jiles 1996) gibi zayıf alanlarda gerçekleştiği zaman bu materyallere yumuşak manyetik madde adı verilir.

Kristalize NiFe alaşımları (permalloy) veya amorf metalik alaşımlar gibi yumuşak manyetik materyalde  $H_C = 12$  mOe gibi düşük olabilir. Karşılaştırma olarak dünyanın manyetik alanı yaklaşık olarak  $30 A/m$  ( $0.4$  Oe)dir. Diğer yumuşak

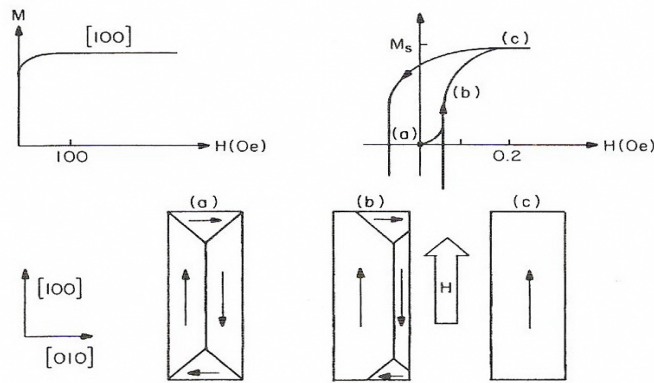


materyaller ise saf Fe içeren, %3-6 oranında Si, Ni eklenmiş Fe, FeNiCo alaşımlar ve  $(\text{MnZnO})\text{Fe}_2\text{O}_3$  veya  $(\text{NiZnO})\text{Fe}_2\text{O}_3$  gibi feritlerdir.

Yumuşak manyetik materyallerin özelliği akım değişimleri soğurup böylece materyaldeki değişimleri rölatif olarak zayıf olmasını sağlamasıdır.

Yumuşak manyetik materyaller transformatörlerde, indüktörlerde motorlarda ve jeneratörlerde kullanılırlar. Ayrıca manyetik kaydedicilerde alan sensörleri olarak ve zor/gerilim ölçümlerinde kullanılırlar.

Şekil 2.5'te Fe'nin [100] yönelimi için mıknatıslanma eğrisinde gözlemlenen yüksek ve düşük alanlardaki domainlerinin değişimi gösterilmiştir.



**Şekil 2.5** Fe'in [100] yönündeki tipik mıknatıslanma eğrisinin yüksek ve düşük alan skalasında domainlerin de meydana gelen değişim (O'Handley 2000).

### 2.3.2 Sert manyetik maddeler

Bazı manyetik materyallerde  $H_c = 125$  Oe (Jiles 1996) gibi çok yüksek olabilir. Bu durumun nedenleri eğer materyalde duvar yönelimlerini engelleyecek kadar bir kusura sahipse veya yüksek manyetik anizotropiye sahip tekli domain parçalarından oluşuyor ise olabilir. Bundan dolayı yüksek manyetik alanlarda mıknatıslanma yönleri değişir. Bu gibi materyallere sert veya sürekli mıknatıs denir. Sert mıknatısların

özellikleri M-H eğrilerinde negatif yönde uygulanan alanlara geri dönüşlerinde göstermiş oldukları zordur. Bunlar negatif alanın varlığında mıknatıslanmamaya karşı göstermiş oldukları direnç negatif uygulanan gücün kaynağına karşı yok edici bir güç uygular. Bu güç sert mıknatısların gücü depolayıp sanki bir kaynak gibi kullanabildiğini gösterir.

### 2.3.3 Elektriksel direnç kavramı

Elektrik denilince akla ilk olarak yükler gelir, bunlar başlı başına elektriğin var oluş nedenleridir. Yükler, iletken içindeki elektrik alanın etkisi ile akım üretmek için hareket ederler. Ancak iletken içinde yüklerin hareketi çeşitli sebeplerden dolayı kısıtlanır, engellenir ve yüklerin tamamı akım üretmek için kullanılamaz. Bu yüklerin madde içerisinde karşılaştıkları zorlayıcı etkiye karşı bir direnç gösterir. Bu direnç elektriksel direnç olarak bilinir.

Bir iletkenin uçları arasına bir potansiyel farkı uygulanırsa, iletken içinde bir  $J$  akım yoğunluğu ve bir  $E$  elektrik alan meydana gelir. Şayet potansiyel farkı sabitse, iletken içindeki akım da sabit olacaktır. iletkenler için akım yoğunluğu, elektrik alan ile doğru orantılıdır. Bu (2.5)'de görüldüğü gibi  $\sigma$  orantı katsayısına iletkenin iletkenliği denir.

$$\vec{J} = \sigma \vec{E} \quad (2.5)$$

İletkenlik (2.6) da görüldüğü gibi  $n$  birim hacimdeki elektron sayısı, elektron yükü ( $e$ ), elektronun kütlesi ( $m$ ) ve ortalama serbest zamana ( $\tau$ ) bağlıdır.

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \quad (2.6)$$

$\sigma$  elektriksel iletkenlik türünden elektriksel direnç (2.7) ile verilmektedir (Chiu ve ark. 1996).

$$\rho = \frac{1}{\sigma} = \frac{m}{ne^2\tau} \quad (2.7)$$

(2.7) denkleminde direnci etkileyen en önemli faktör ortalama serbest zamandır. Ortalama serbest zamanın kısa olması filmin direncini artırır (Kittel 2005, Mathon 1991)

#### 2.3.4 Manyetorezistans (MR)

Manyetik alana yerleştirilen bir maddenin elektriksel direncinde meydana gelen değişime manyetorezistans (MR) denir. Manyetik olmayan metaller için MR etkisi yüksek manyetik alanlar için büyük bir etki olmasına rağmen düşük manyetik alanlar için çok küçüktür. Dirençteki değişim,  $\Delta\rho$ , her iki manyetik alanda boyuna ( $\Delta\rho_B$ ) ve enine ( $\Delta\rho_E$ ) akım yönleri için  $\rho_E > \rho_B$  olmak üzere pozitiftir. Bu tür etkilere normal manyetorezistans (NMR) denir.

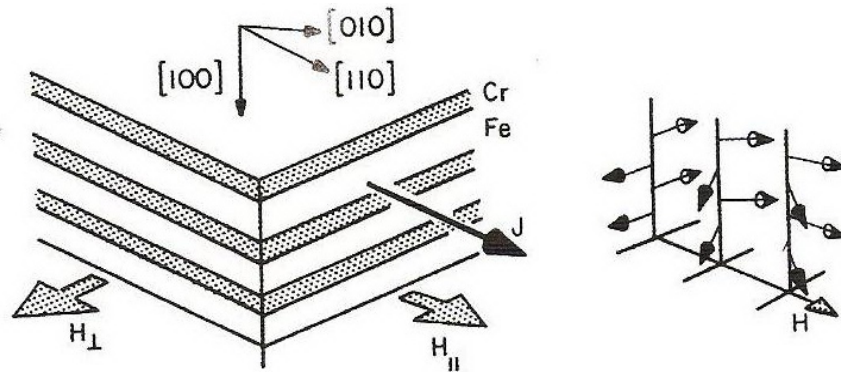
Direnç, artan manyetik alan ile birlikte artabilir (pozitif MR) ya da azalabilir (negatif MR). Herhangi bir metal için ölçülen MR sadece uygulanan manyetik alanın şiddetine bağlı değil, aynı zamanda metalden geçen akıma göre uygulanan manyetik alanın yönüne de bağlıdır. Ferromanyetik maddelerde ve bunların alaşımlarında Anizotropik Manyetorezistans (AMR) gözlenir. AMR de manyetik alan akıma dik olduğu zaman enine manyetorezistans (EMR), paralel olduğu zaman boyuna manyetorezistans (BMR) ölçülür. Cu ve Ag gibi ferromanyetik olmayan metallerde hem enine hem de boyuna olan MR (manyetorezistans) uygulanan manyetik alanın artmasıyla çok az bir artış gösterir. Demir grubu elementlerde (Fe, Ni, Co) ve bunların alaşımlarında elektriksel direnç manyetik alan akıma paralel olduğu zaman manyetik alan arttıkça artar, dik olduğu zaman manyetik alan artarken direnç azalır. Her iki durumda da belli bir manyetik alan değerinin üstünde dirençteki azalma veya artma doyuma ulaşır (Androcacos ve Robertson 1998).

Son yıllarda ferromanyetik süperörgülerde ve çok katmanlı nano yapılarda gözlenen manyetorezistans, EMR'sı ve BMR'sı manyetik alan arttıkça azalan türdedir.

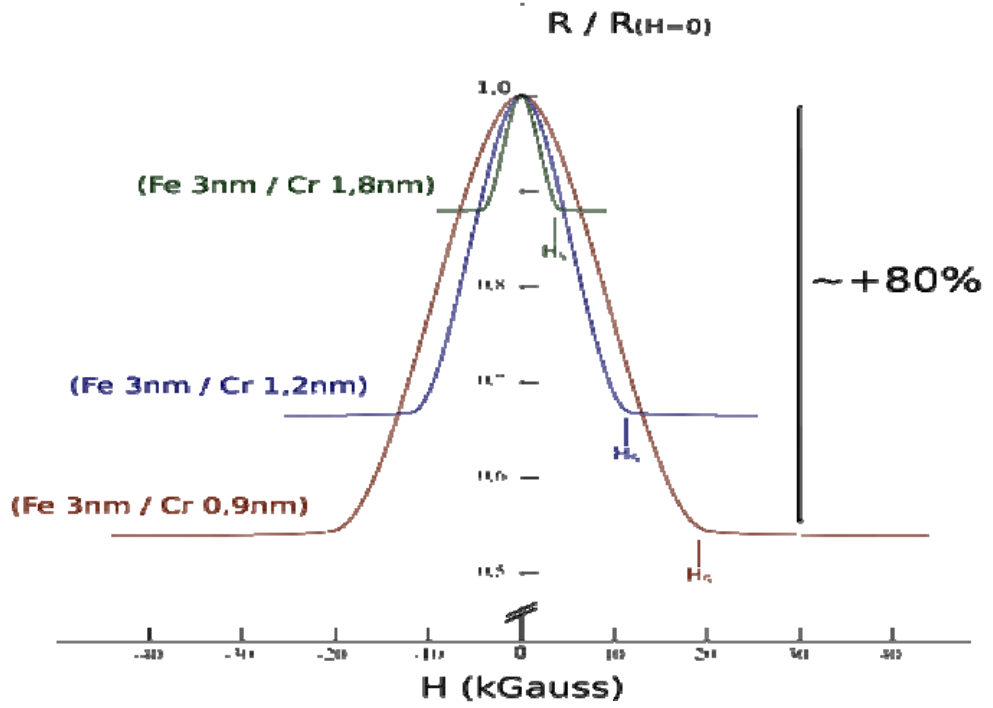
Bu azalma düşük manyetik alanlarda ve beklenenden daha fazla olduğu takdirde bunlardaki değişime “dev manyetorezistans” (Giant Magneto Resistance-GMR) denir. NMR’dan farkı ise uygulanan manyetik alanın büyüklüğüdür. NMR’da 500 kOe değerlerinde dahi %1-2 oranında değişim gözlenmesine rağmen GMR’da 1kOe değerinin altındaki değerlerde bile yüksek MR göstermesidir.

GMR, 1988 Paris Sud Üniversitesinde Baibich ve arkadaşları (Baibich ve ark. 1988) tarafından MBE tekniği ile büyütülen Fe/Cr süperörgülerinde keşfedildi (Şekil 2.6). Oda sıcaklığında 2T’lık alanda GMR etki %13; 4,2K’de 2T’lık alanda etki %48 dir. Bundan bağımsız olarak Fe/Cr/Fe tabakalı yapılarında GMR etki gösterdiği Grunberg ve arkadaşları (Binasch 1989) tarafından bulundu. Bu iki çalışma nano teknolojinin gelişmesinin önünü açmış oldu ve 2007 Nobel Fizik Ödülü ile ödüllendirildi. Daha sonra bu anormal etki CoNiCu/Cu (Alper ve ark. 1993), Co/Cu (Bird ve Schlesinger 1995), CoFe/Cu (Kakuno ve ark. 1999) gibi çok sayıda nano yapıda da gözlemlendi.

Şekil 2.7 bu tür yapıların ölçümler sonucunda oluşan GMR eğrileri görülmektedir. Burada manyetik alan her iki yönde de uygulandığı zaman hem enine manyetorezistans (EMR) hem de boyuna manyetorezistans (BMR) düşüş eğilimindedir. Düşük bir manyetik alan uygulanmasına rağmen numunenin direncinde keskin bir düşüş olabilmektedir.



**Şekil 2.6** Solda, Fe/Cr çok katmanlı yapısı için Fe kolay açılı yönelimleri, akım ve alan (Baibich 1988); sağda, artan alan ile çok katmanlı yapılarda mıknatıslanma sürecinin şematik gösterimi (O’Handley 2000).



**Şekil 2.7** GMR etkinin keşfinde elde edilen deneyimler. (A. Fert's team in Orsay 1988).

GMR olayı ferromanyetik metaldeki (Fe, Ni, Co) iletkenlik olayının iki farklı türünü göz önüne alınarak açıklanabilir. Bu modele göre, iletim elektronları iki sınıfa ayrılır:

- 1) Spin momentlerin, lokal mıknatıslanması paralel olanlar
- 2) Spin momentlerin, lokal mıknatıslanması antiparalel olanlar

Bir metalde elektron akımına karşı gösterilen direnç elektronların maruz kaldığı saçılma olayları ile tayin edilir. Bu saçılma merkezleri:

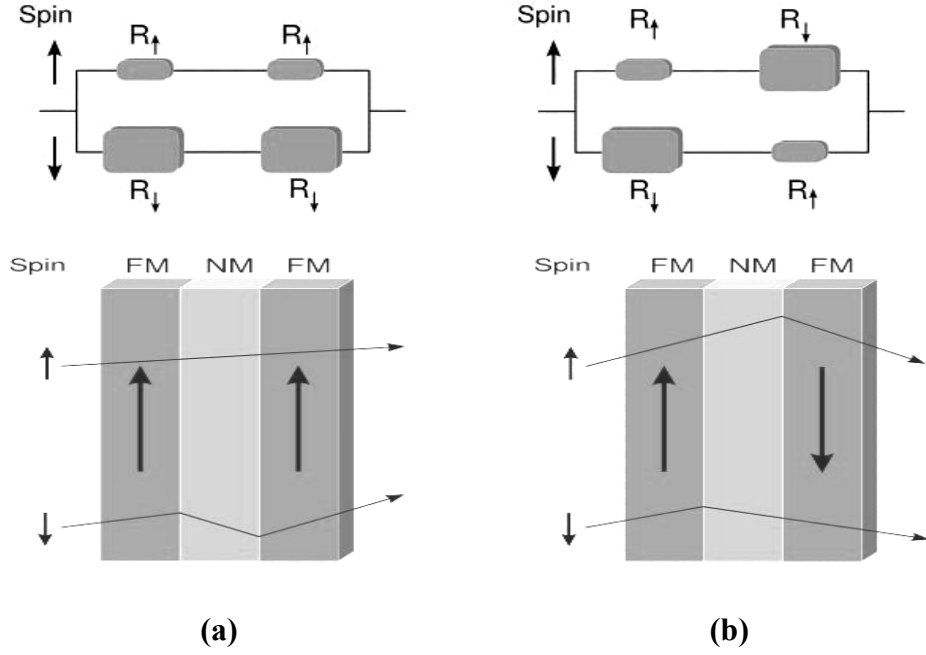
- a) Örgü titreşimleri, fononlar
- b) Yabancı atomlar, örgü kusurları, grain

Eğer saçılma olayları kuvvetli ve etkin ise saçılma olayları arasında elektronların ortalama serbest yolu küçüktür ve direnç büyüktür. Bunun tersine zayıf saçılma olayları daha uzun ortalama serbest yolu ve dolayısıyla daha düşük dirence yol açar.

GMR olayının varlığı iletkenlik elektronlarının bir spin yönü için diğer spin yönüne olandan daha etkin saçılması olayına dayanır. Yani saçıcı merkezler spin paralel ve spin antiparalel elektronları farklı şekilde saçarlar. Dolayısıyla bu elektronların ortalama hızları, ortalama serbest yolları ve Fermi seviyesindeki durum yoğunlukları farklıdır.

Farklı spine sahip elektronların bir madde içindeki saçılmasının GMR etkiye niçin yol açtığı şöyle açıklanabilir. Şekil 2.8.a'da ferromanyetik tabaka ve manyetik olmayan tabakadan oluşan katmanlı yapı görülmektedir. Burada ferromanyetik tabakaların yerel mıknatıslanmaları paralel yönlü olduğunda; spin manyetik momenti  $\uparrow$  'ya doğru olan elektronların bu bölgede katmanlı yapı ile aynı yönlü spinlerinden dolayı saçılmaları zayıf olacaktır. Manyetik olmayan tabakada ise bir mıknatıslanma olmadığı için saçılma gerçekleşmeyecektir. Böylece elektronlar zayıf saçılmalar sonucu daha uzun bir ortalama serbest yola sahip olacaklardır. Dolayısıyla daha düşük bir direnç meydana gelecektir. Diğer taraftan bu katmanlı yapıda, spin manyetik momentleri  $\downarrow$  doğru olan elektronlar için bu sefer ferromanyetik tabakalarda çok şiddetli bir saçılmaya uğrayacak aynı şekilde manyetik olmayan tabakada saçılmayacaklardır. Böylece elektronlar ferromanyetik tabakalardaki şiddetli saçılmalardan dolayı ortalama serbest yollarının çok kısa olacağı görülür. Bundan kaynaklı da yüksek bir direnç meydana gelecektir.

Şekil 2.8.b'de ise antiparalel konfigürasyonda hem paralel spinli elektronlar hem de antiparalel spinli elektronlar ardışık şekilde kuvvetli ve zayıf saçılmaya uğrarlar. Yani mıknatıslanması  $\uparrow$  olan tabakada, spin manyetik momentleri  $\uparrow$  olan elektronlar zayıf saçılırken- ki bu elektronlar bu tabakada çoğunluk taşıyıcılar olurlar- spin manyetik momentleri  $\downarrow$  doğru olan elektronlar (azınlık taşıyıcılarıdır) kuvvetli saçılırlar dolayısıyla daha yüksek dirence sebep olurlar. Oysa mıknatıslanması  $\downarrow$  olan tabakada spin manyetik momentleri  $\uparrow$  olan elektronlar daha kuvvetli saçılırlar (azınlık taşıyıcı) ve yüksek dirence sebep olurlar. Spin momentleri  $\downarrow$  olan elektronlar daha zayıf saçılırlar ve düşük bir dirence sebep olurlar.



**Şekil 2.8** Yüze ve arayüzey saçılmalarında oluşan dirençlerin gösterimi. Ferromanyetik tabaka (FM), manyetik olmayan tabaka (NM). (a) Paralel Ferromanyetik Durum (FM). (b) Antiparalel ferromanyetik durum (AFM).

Böylece iki konfigürasyon arasında önemli bir direnç farkı vardır. Bu spine bağımlı saçılma ferromanyetik maddenin bulk tabakasında hem de ara yüzelerde meydana gelmektedir. Şekil 2.8'deki saçılmalar (2.8) denklemi ile hesaplanmaktadır. Burada görüldüğü gibi dirençler hesaplandığında antiparalel durumda direncin daha büyük olduğudur.

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{R_{es}} &= \frac{1}{2r} + \frac{1}{2R} & \frac{1}{R_{es}} &= \frac{1}{r+R} + \frac{1}{r+R} \\
 R_{es} &= \frac{2rR}{r+R} & R_{es} &= \frac{r+R}{2} \\
 R_{AP} &> R_P & &
 \end{aligned}
 \tag{2.8}$$

### 2.3.4.1 Ferromanyetik tabaka kalınlığı

Ferromanyetik tabaka kalınlığının belli bir değerinde GMR'da bir maksimum gözlenir. Bu kalınlığın altında ve üstünde GMR'da azalma meydana gelir. Bu kalınlığın üstünde ferromanyetik tabaka kalınlığı arttırıldıkça GMR azalır. Bu azalmanın nedeni ara yüzey saçılma etkisinin azalmasından kaynaklanır. Bulk' a göre ara yüzey

yoğunluğu azalır. Çünkü ferromanyetik tabakaların kendi içindeki spine bağımlı saçılma daha etkili olur. Bu kritik kalınlığın altına inildikçe tabakaların sürekliliği korunamaz. GMR'da spine bağımlı saçılma merkezlerinin konumu önemli rol oynar (O'Handley 2000, Shima ve ark. 1999).

#### **2.3.4.2 Ferromanyetik olmayan tabaka kalınlığı**

Ferromanyetik olmayan tabaka kalınlığı arttıkça GMR'daki azalma ardışık manyetik tabakalar arasındaki etkileşimin azalmasından ve ara yüzey yoğunluğundaki azalmadan dolayıdır.

1. Ferromanyetik olmayan katmandaki elektron ortalama serbest yoluna göre ferromanyetik olmayan katman kalınlığının artmasından kaynaklanır.
2. Ara yüzeyler spine bağımlı saçılma için önemli yerlerdir.  
(Parkin ve ark. 1991, O'Handley 2000)



### 3. MATERYAL VE YÖNTEM

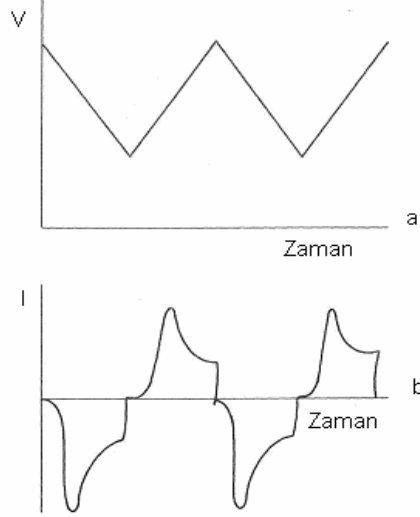
#### 3.1 Elektrokimyasal Karakterizasyon

Dönüşümlü voltametrimin (CV), üretilecek malzemede kullanılacak metallerin indirgenme ve yükseltgenme potansiyellerinin tayininde oldukça önemli bir yeri vardır. Bu yöntem, bir elektrokimyasal hücreye dışardan denge potansiyelinden farklı olarak bir potansiyel uygulanması ile hücrede gerçekleşen tepkimelerin tekrar denge haline getirmeye çalışır ve bu süreç içinde sistemden akım geçişi olur. Bu akım voltametri yöntemi ile ölçülebilir. Voltametri yöntemi küçük alana sahip çalışma elektrotuna uygulanan ve zamanla değiştirilen potansiyele karşı akım değerinin ölçüldüğü elektrokimyasal bir yöntemdir. Bu yöntemden elde edilen potansiyel ile akımlardan oluşan grafiklere voltamogram denir. Eğer potansiyel taraması ileri yönde belli bir potansiyel değerine kadar ulaştıktan sonra doğrusal olarak azalacak şekilde tersine çevrilirse bu yöntemin adı dönüşümlü voltametri (Cyclic Voltametry- CV) olur.

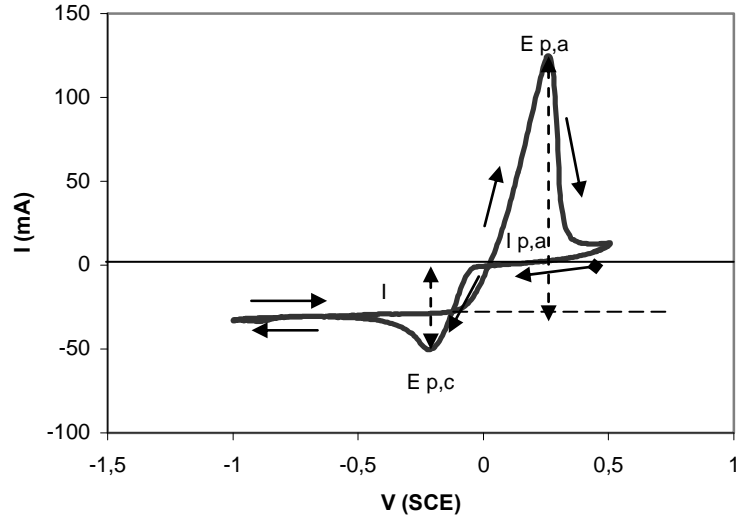
Dönüşümlü voltamogramların elde edilmesi elektrokimyasal sistem hakkında; hücrede indirgenme ve yükseltgenme işlemlerinin kaç adımda, hangi potansiyellerde olduğu, tersinir olup olmadığı, ürünlerin kararlı olup olmadığı, elektrot tepkimesinde rol alan maddelerin yüzeye tutunup tutunmadıkları hakkında birçok bilgi edinmemizi sağlar. Şekil 3.1.a'da dönüşümlü voltamogram elde etmek için uygulanan potansiyel biçimi ve Şekil 3.1.b'de potansiyele karşılık gelen akım değişimi verilmiştir.

Şekil 3.2, 0.04 M CuSO<sub>4</sub> içeren bir çözeltinin CV eğrisini göstermektedir. Bu eğri, katot potansiyeli SCE'ye göre +0.5 V ve -1.0 V değerleri arasında, 20 mV/s tarama hızı ile taranarak elde edilmiştir. Katodik tarafta -0.05 V'dan sonra akım artmaya başlar ve -0.2 V civarında bir I<sub>p,c</sub> pik değerine ulaşır. Bu pik Cu depozisyonuna karşılık gelmektedir. E<sub>p,c</sub>'den sonra elektrot yüzeyine yakın Cu iyonlarının azalması sonucu akım düşer ve ondan sonra Cu'nun sınırlı difüzyonundan dolayı. -0.5 V ve -1.0 V arasında sabit değerde kalır. -1 V'dan sonra tarama yönü ters çevrilmiştir. Akım -1 V'dan -0.1 V'a kadar olan bölgede aynı potansiyel bağımlılığını sürdürür. -0.1 V

civarında anodik akım geçmeye başlar ve +0.25 V civarında  $I_{p,A}$  ile gösterilen maksimum değerine ulaşır. Anodik taraftaki bu pik Cu' in geri çözünmesine karşılık gelir ve Cu tamamen çözünene kadar anodik akım geçişi devam eder.



**Şekil 3.1** (a) Dönüşümlü voltamogramın elde edilmesinde kullanılan potansiyelin zamanla değişimi. (b) Bu potansiyele karşılık gelen akım değişimi (Hibbert 1993).

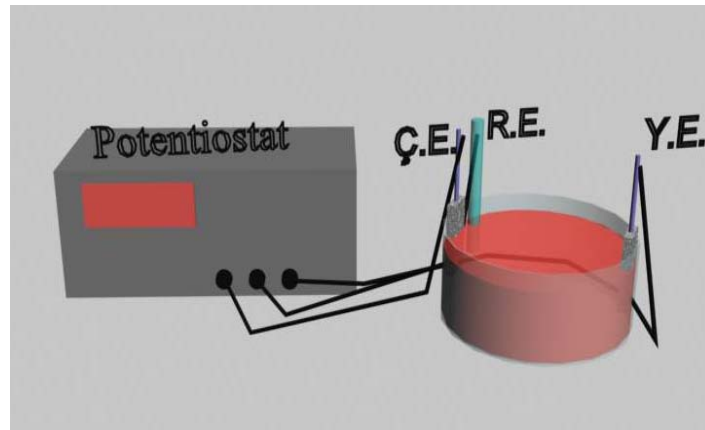


**Şekil 3.2** Oda sıcaklığında, 0.04 M  $\text{CuSO}_4$  çözeltisinin dönüşümlü voltametri (CV) eğrisi.

Şekilde gösterilen katodik akım piki  $I_{p,C}$  ve anodik akım piki  $I_{p,A}$  önemli büyüklüklerdir. Bu akım pikleri metal iyonlarının konsantrasyonuna (C), reaksiyondaki elektronların sayısına (n), tarama hızına ( $\nu$ ) ve difüzyon katsayısına (D) bağlıdır. (Greef ve ark 1990). 25° C' deki pik akım (3.1) bağıntısı ile verilir.

$$I_p = -(2,69.10^5) n^{3/2} C D^{1/2} \nu^{1/2} \quad (3.1)$$

Co/Cu ve CoFe/Cu manyetik ince filmlerin deposit edilmesinde kullanılan çözeltilerin elektrokimyasal özellikleri dönüşümlü voltammetri (CV) tekniği ile incelendi. Bu elektrokimyasal karakterizasyon için Uludağ Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik bölümü Katihal Fiziği Araştırma laboratuvarında geliştirilen sistem kullanıldı. Bu sistem şematik olarak Şekil 3.1'de verilmektedir. Bu düzenekte üçlü elektrot sistemi (Çalışma elektrotu; Ç.E., yardımcı elektrot; Y.E. ve referans elektrot; R.E) kullanılmıştır. Buradaki sistem üç elektrota sahip bir hücre, akım ve potansiyel değerlerini kaydeden bir bilgisayar ve potansiyel değerlerini tayin eden taramalı potentiostat/galvonastat (P/G)'dan oluşmaktadır (Şekil 3.3). Düzenekte Ç.E.'u olarak platin tel, Y.E. olarak platin levha ve R.E. olarak doymuş kalomel elektrot (SCE) kullanılmıştır.



**Şekil 3.3** Elektrokimyasal depozisyon sistemi

### 3.2 Çok Katmanlı Yapıların Hazırlanması

Bu çalışmada CoFe/Cu çok katmanlı yapılar, her biri kendi iyonlarını içeren çözeltilerinden büyütülmüşlerdir. Elektrokimyasal depozisyon süreci üç aşamada gerçekleştirildi.

1. Alttabakanın hazırlanması.
2. Elektrokimyasal depozisyon işlemi.
3. Çok katmanlı yapıların alttabakadan kaldırılması.

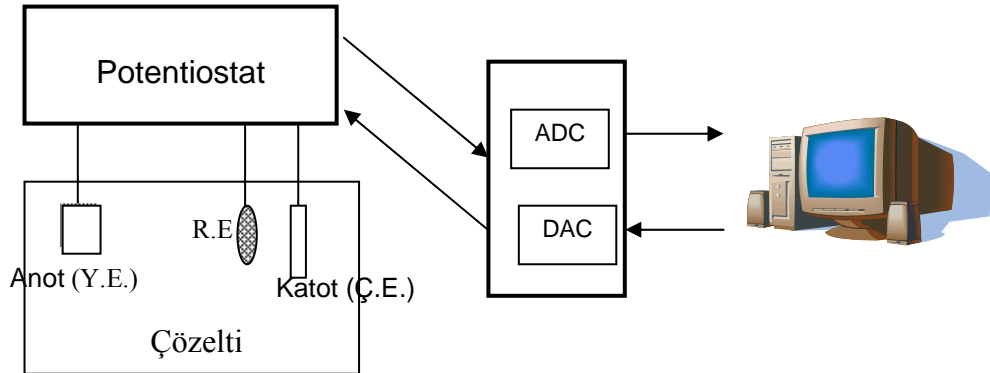
#### 3.2.1 Alttabakanın hazırlanması

Bu çalışmada, alttabaka olarak polikristal titanyum (Ti) seçilmiştir. Ti alttabaka zımpara ile mekaniksel olarak temizlendikten sonra saf su ile yıkanıp kurutulmuş olarak kullanılmaktadır. Çözelti içine yerleştirilmeden önce depozisyon yapılacak bölge belirlenerek bunun dışında kalan bölge yalıtkan bant ile kaplanır ve saf su ile yıkanır.

#### 3.2.2 Elektrokimyasal depozisyon işlemi

Bu çalışmada çok katmanlı yapı sistemlerini üretmek için TÜBİTAK tarafından desteklenen TBAG-1771 proje kapsamında geliştirilen (Alper 2003) deneysel sistem kullanıldı (Şekil 3.4). Sistem üç elektrotlu potentiostat/galvanostat (P/G), bilgisayar, digital-analog çevirici (DAC), analog-digital çevirici (ADC) ve elektrokimyasal hücre (çözelti kabı)'den oluşmaktadır. Depozisyon, bilgisayar kontrollü yapılabildiği gibi bilgisayar kontrolsüz de yapılabilmektedir. Sistem potansiyel kontrollü olarak kullanıldığı zaman, P/G Ç.E.'nin potansiyelini R.E.'a göre sabit bir değerde tutulmasını sağlar. Hazırlanan alttabaka çalışma elektroduna bağlanır ve depozisyon bu elektrot yüzeyinde meydana gelir. Deneyde Y.E. olarak 2.5×2.5 cm yüzey alanına sahip bir platin levha kullanılır. Burada platin çözelti ile reaksiyona girmeyen bir metal olduğundan özellikle tercih edilmiştir. Y.E.'un amacı Ç.E.'nin gerektirdiği akımı sağlamaktır. Y.E.'un konumu ve biçimi Ç.E.'nin yüzeyi üzerindeki akım dağılımını belirlediği için önemlidir. Sistemde kullanılan Ç.E.'un yüzey alanı Y.E.'un yüzey alanından daha küçüktür. Homojen bir akım ve potansiyel dağılımı isteniyorsa Y.E.'un

Ç.E.'dan mümkün olduğu kadar uzağa konması gerekir. Deneyde referans elektrot olarak doymuş kalomel elektrot (SCE) kullanılmaktadır. R.E., Ç.E.'ye mümkün olduğu kadar yakın yerleştirilmelidir. Bu deneyde kullanılan elektrokimyasal hücrede Ç.E. ile R.E. arasındaki mesafe yaklaşık 2.5 cm, hücrenin toplam uzunluğu ise 7.5 cm'dir. Ç.E. ve R.E. arasındaki mesafe, bu iki elektrot arasında  $I \cdot R_s$  kadar bir potansiyel düşmesine sebep olur. Meydana gelen potansiyel düşmesi Y.E. ve Ç.E. arasındaki potansiyel farkından çok daha küçüktür. DAC ve ADC, bilgisayar ile P/G arasındaki iletişimi sağlar. DAC, bilgisayardan gelen sinyali bir analog sinyale (potansiyele) çevirir ve bu değer R.E.'a göre Ç.E.'nin potansiyeli olarak P/G'a gönderilir. ADC, P/G'dan gelen analog sinyalleri dijital sinyallere çevirerek bilgisayara gönderir. Bilgisayar hücrenin anodu ve katodu arasında geçen yük miktarını elde etmek üzere akımı toplar. Bu yük miktarından yola çıkarak bulunan filmin kalınlığı, istenilen değere ulaştığında bilgisayar potansiyel uygulamasını durdurur. Burada tabaka kalınlığı için gerekli yük miktarı (anot ve katot arasında geçen bütün yük), Faraday kanununa (2.3) göre hesaplanır.



**Şekil 3.4** Co/Cu ve CoFe/Cu filmlerin depozisyonunda kullanılan deneysel sistemin diyagramı.

Bu hesaplamada akım verimliliği %100 kabul edilir. Bu şekilde hesaplanan tabaka kalınlığına o metalin nominal (varsayılan) kalınlığı denir. Pratikte akım verimliliği, hidrojen gazı çıkışı sebebiyle %100'den daha küçük olabileceğinden, filmin kalınlığı nominal kalınlığın akım verimliliği ile çarpımından bulunabilir.

Film depozisyonuna başlamadan önce çözeltinin sıcaklığı ve pH'ı ölçülür. Bilgisayar kullanılarak gerçekleştirilecek deneylerde tabaka kalınlığı, depozisyon

potansiyeli gibi ilgili parametreler bilgisayara girilir. Hazırlanan alttabaka, parlatma işlemi tamamlanır tamamlanmaz oksitlenmeyi önlemek için hemen çözelti içine yerleştirilerek gerekli elektrot bağlantıları hızlı bir şekilde yapılır ve depozisyon başlatılır. Depozisyon süresi tabaka kalınlığına ve uygulanan katot potansiyeline bağlı olarak değişir. Filmin depozisyonu tamamlandıktan sonra numune çözülden çıkarılarak saf su ile yıkanır ve kurulanır.

### 3.2.3 Çok katmanlı yapıların alttabakadan kaldırılması

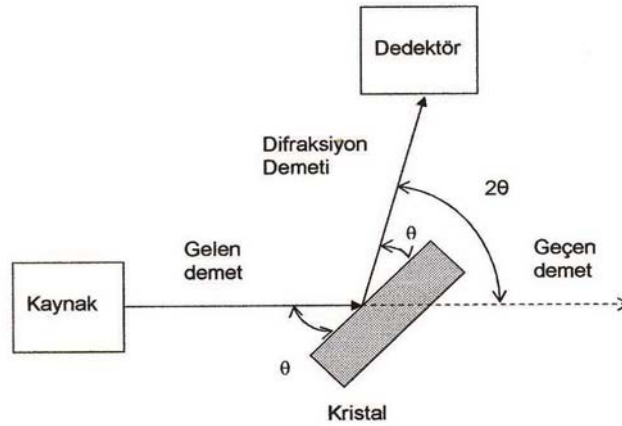
Ti alttabaka üzerine büyütülen numune saf su ile yıkandıktan sonra jilet yardımı ile fiziksel olarak alt tabakadan kaldırılır ve kurutma kâğıdında saklanır.

## 3.3 Yapısal Karakterizasyon

### 3.3.1 X-Işını difraktometresi (XRD)

Çok katmanlı yapılar A ve B gibi farklı maddelerin ardışık olarak ABABAB...biçiminde deposit edilmesi ile oluşur. Yapı periyodik olduğu zaman süperörgü adı da verilir. Bu maddeler içindeki atomlar arası uzaklığın birkaç angström (1-3Å) olduğu göz önüne alınırsa kristal yapılarını belirleyebilmek için X-ışını kırınımı (XRD) tekniği gibi gelişmiş bir uygulamanın kullanılması gerekir. Çok katmanlı yapılar üzerinde yapılacak çalışmadan alınan X-ışını kırınım deseni için yapılan ölçümler X-Işını kırınımı (XRD) cihazı ile yapılır ve bu cihazın şematik gösterimi Şekil 3.5'te gösterilmiştir.

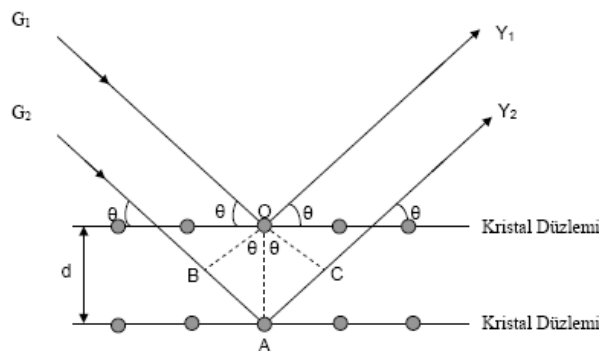
Bu ölçümün temel olarak nasıl olduğu şu şekilde özetlenebilir; madde üzerine x-ışını demeti gönderildiğinde, maddenin atomlarından bu x-ışını demeti bütün yönlerde saçılacaktır. Saçılma sırasında bazı x-ışınları birbirini yok ederken (yıkıcı girişim) bazıları da birbirini kuvvetlendiren yapıcı girişim oluştururlar. Burada önemli olan ilk unsur yapıcı girişimin yalnızca Bragg denklemini (3.2) sağlayan geliş açılarında meydana gelmesidir.



Şekil 3.5 X-ışını kırınımının şematik gösterimi.

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (3.2)$$

Denklem (3.2)'de  $d$  düzlemler arası mesafe,  $\theta$  düzleme gelen ve düzlemden yansıyan ışınlarla düzlem arasındaki açı,  $\lambda$  gelen X-ışınının dalgaboyu ve  $n$  yansıma mertebesidir.  $n=0$  değerini alırsa herhangi bir yansıma gözlenmez.  $n$ 'nin en küçük değeri 1 olmalıdır. Şekil 3.6'da görüldüğü gibi kristal yapı üzerine  $G_1$  ve  $G_2$  ışınları düzlemle  $\theta$  açısı yapacak şekilde gelmiştir. Bu ışınlar kristal yapıdaki atomlarda difraksiyona uğrayarak  $Y_1$  ve  $Y_2$  ışınları gibi saçılırlar. Burada geçen ve yansıyan ışınlar arasındaki açı  $2\theta$ 'dir. Bu değere difraksiyon açısı denir ve deneylerde  $\theta$  yerine  $2\theta$  ölçülür (Cullity 1978).



Şekil 3.6 X-ışını kırınımı

$2\theta$ 'nın fonksiyonu olarak yansımaları veren piklerin şiddetleri ölçülür. Bu pikler indisenerek kristal yapı analizi yapılabilir. Kristal yapısı belirlendikten sonra maddenin örgü sabiti gibi parametreleri tayin edilebilir.

Hazırlanan numunelerin XRD ölçümleri Balıkesir Üniversitesi Kimya Bölümünde bulunan X-ışını difraktometresi ile yapıldı. Co, Fe ve Cu'nun  $K_{\alpha}$  ışımalarının gözlemlendiği bölgede olması için  $2\theta = 40^{\circ} - 100^{\circ}$  seçilerek 0.02'lik adımlar halinde ölçümler alındı.

### 3.3.2 Taramalı Elektron mikroskobu (SEM)

Taramalı Elektron Mikroskobunda (SEM) görüntü, yüksek potansiyel ile hızlandırılmış elektronların, numune üzerine odaklanması ve bu elektron demetinin numune yüzeyinden taratılması sırasında elektron ve numune atomları arasında oluşan çeşitli girişimler sonucu meydana gelir. Meydana gelen etkilerin uygun algılayıcılarda toplanması ve sinyal güçlendiricilerinden geçirildikten sonra görüntü bir katot ışını tüpünün ekranına aktarılmasıyla elde edilir <sup>(1), (2)</sup>.

Taramalı Elektron Mikroskobu'nda (SEM) sıvı olmayan ve sıvı özellik taşımayan her türlü iletken olan olmayan numune incelenebilir. Her çeşit metaller, tekstiller, fiberler, plastikler polimerler, parçacıklar (kum, çakıl, polen...) incelenebilir. İletken olmayan numuneler çok ince (yaklaşık 3 Å/saniye) iletken malzemeyle kaplanarak incelenebilir hale getirilir.

Hazırlık aşamaları sonunda numune elektron mikroskobunda incelenmeye hazır hale gelir. Numunenin yapısına bağlı olarak değişen vakum süresi beklenir; bu süre ortalama 30dk<sup>(2)</sup>'dir. Vakum süresi tamamlandıktan sonra numunenin yüzey şeklinin resmi alınabilir. SEM'de madde içindeki elementlerin analizi için enerji dağılımı x-ışını spektrometresi (EDX) analizi yapılır. Burada iletken örnek üzerine elektron demeti

---

(1) [www.mos.org/sln/sem](http://www.mos.org/sln/sem)

(2) [www.sem.com/analytic/sem.htm](http://www.sem.com/analytic/sem.htm)



gönderilir. İletken üzerine gönderilen elektron demetinin enerjisi 10-20 keV civarındadır. Bunun sebebi iletken maddede ki atomlardan yayımlanan X-ışınlarıdır. X-ışınları madde ile 2 µm kalınlık civarında etkileşirler. Elektron demeti bir katı içerisine gönderildiğinde bu katı içindeki elektronlar ile saçılmalara uğrayabilirler. Eğer katı içerisine verilen elektronlar, elektronların orbitallere bağlanma enerjilerinden daha büyükse atom içerisinden bir elektronu söker. Sonuç olarak burada boşalan elektron yörüngesine bir üst yörüngeden başka bir elektronun bu boş yere geçmesiyle bir X-ışını yayımlanır. Her bir elementin elektronik yapısı birbirinden farklı olacağından oluşan X-ışını fotonu her elementten emilecek olan X-ışınlarına bağlıdır. EDX’de bu soğrulan X-ışınlarına göre elementler tayin edilir.

Bu çalışmada hazırlanan numunelerin yüzey analizi için SEM ile görüntüleri alındı ve buna bağlı olarak EDX analizi yapıldı.

### **3.4 Manyetik ve Manyetorezistans Karakterizasyonu**

#### **3.4.1 Titreşimli örnek magnetometresi (VSM)**

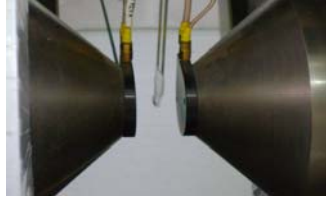
Titresimli Örnek Magnetometresi (VSM), incelenen malzemenin manyetik karakterini ortaya koyan mıknatıslanma eğrisi elde edilmesi için kullanılan bir cihazdır. VSM, elektromanyetik indüksiyon prensibine göre çalışır.

Faraday indüksiyon kanununa göre bir kapalı devredeki manyetik akı değişimi, devrede bir indüksiyon elektromotor kuvveti (e.m.k.) oluşturur.

Elektromanyetik indüksiyon kavramı, manyetik akı değişiminin indüklenen e.m.k.’ya eşit olduğu söylenerek açıklanır. İndüksiyon e.m.k.’sının oluşabilmesi için manyetik akının zamanla değişmesi gerekir. Bunun bir yolu zamanla değişen manyetik alan uygulamak, diğer yolu DC manyetik alana konan örneği titreştirmektir.

VSM'in çalışması, manyetik alanda titreşen örnekle manyetik akı değişimi oluşturulması ve bu manyetik akı değişimi sonucu oluşan indüksiyon e.m.k.'sının ölçülmesine dayanır. İndüklenen e.m.k. titreşen örneğin mıknatıslanması ile orantılı olduğundan bu yöntemle örneğin mıknatıslanması ölçülebilir.

VSM ile mıknatıslanmanın direkt ölçümü yapılır (Şekil 3.7). Algılayıcı bobinler, arasındaki boşlukta örnek varken ve örnek yokken ölçülen manyetik indüksiyon arasındaki fark hesaplanır (David 1996).



**Şekil 3.7** VSM bobinleri ve numune.

Bu ölçüm sonuçları; uygulanan manyetik alan değerine göre mıknatıslanmanın değişimi şeklinde ve VSM kalibrasyonunda elde edilen standart katsayıya bağlı olarak değerlendirilir.

Hazırlanan numunelerin manyetik özelliklerini incelemek için VSM ölçümleri Balıkesir Üniversitesi Fizik Bölümünde bulunan VSM cihazı ile yapıldı. Örneklerin histeresis eğrileri, numunelerin manyetik alan içine hem paralel hem de dik olacak şekilde titreştirilerek ölçüldü.

### **3.4.2 Manyetorezistans**

Numunelerin manyetorezistans ölçümleri Van der Pauw (VDP) metodu kullanılarak yapıldı. Manyetorezistans ölçümlerinde film bir örnek tutturucu üzerine yerleştirilir ve örnek üzerinden geçen akıma karşılık film üzerindeki potansiyel değerleri kaydedilir. Bu kaydedilen potansiyel değerlerinden faydalanılarak manyetorezistans değerleri hesaplanmaktadır. İki farklı manyetorezistans ölçüm konumu mevcuttur. Bunlar; manyetik alanın uygulanan akıma paralel olduğu 'Boyuna Manyetorezistans

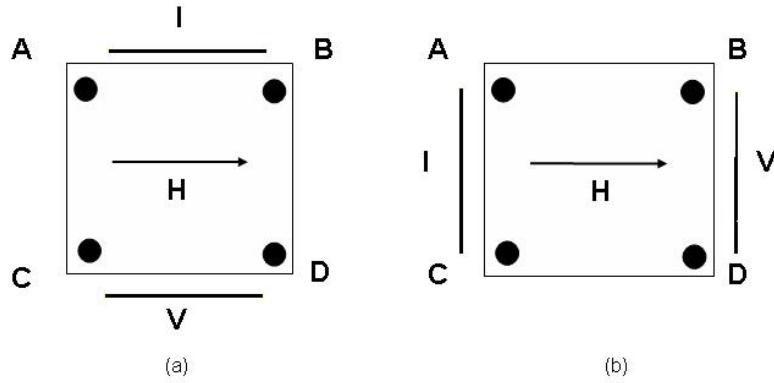
(BMR)' ve uygulanan akıma dik olduğu 'Enine Manyetorezistans (EMR)' olarak bilinmektedirler. Bu manyetorezistans ölçümlerinin yapıldığı geometriler Şekil 3.8'de verilmektedir.

Bu yöntemde ölçülmesi gereken bir numuneye Şekil 3.8.a'daki gibi A ve B uçlarına akım uygulanır ve manyetik alan uygulanır. C ve D uçlarından ise potansiyel ölçülür. Buna boyuna manyetorezistans (BMR) denir. Bu direnç (3.3) denklemi ile hesaplanabilir.

$$R_B = \frac{V_C - V_D}{I_{AB}} \quad (3.3)$$

Aynı numuneye Şekil 3.8.b'deki gibi A ve C uçlarına akım uygulanır, B ve D uçlarından ise potansiyel ölçülürse bunada enine manyetorezistans (EMR) denir. Direnç (3.4) denklemi ile hesaplanabilir.

$$R_E = \frac{V_B - V_D}{I_{AC}} \quad (3.4)$$



**Şekil 3.8** Van der Pauw Tekniği.

Bu işlemler sonucunda elde edilen değerlerden numunenin MR'ındaki değişim (3.5) denklemi ile hesaplanmaktadır.

$$\Delta R(\%) = \frac{R(H) - R(0)}{R(0)} \quad (3.5)$$

Burada  $R(H)$  manyetik alan uygulandığı zaman ölçülen direnç;  $R(0)$  ise manyetik alan uygulanmadığı zaman ölçülen dirençtir.

## 4. ARAŞTIRMA ve SONUÇLAR

### 4.1 Giriş

Bu bölümde, Uludağ Üniversitesi Fen-Ed. Fakültesi Fizik Bölümünde geliştirilen elektrokimyasal depozisyon tekniği ile CoFe/Cu filmler Ti alt tabaka üzerine büyütülmeleri ve bunların elektrokimyasal, yapısal, manyetik karakterizasyon ve manyetorezistans incelenmeleri konu edilmiştir.

### 4.2 Elektrokimyasal Karakterizasyonlar

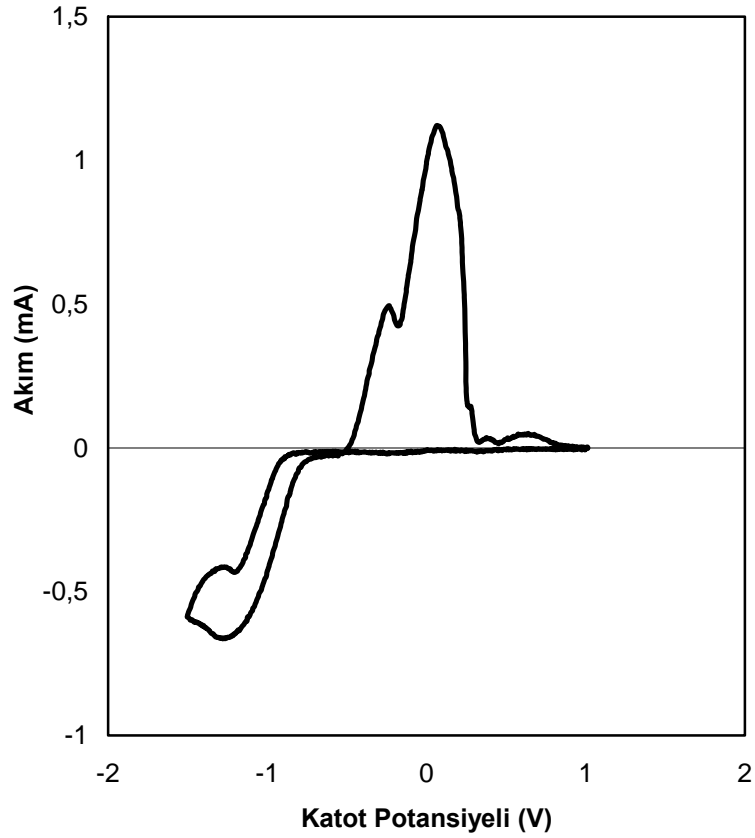
Co/Cu ve CoFe/Cu filmlerin büyütülmesi için Tablo 4.1'deki çözeltiler 300 ml olarak hazırlandı. Çözeltilerin elektrokimyasal karakterizasyonlarını belirlemek için dönüşümlü voltametri (cyclic voltametri-CV) tekniği kullanıldı. Dönüşümlü voltamogramlarını elde etmek amacıyla potansiyel taraması, katodik yönde yani pozitif potansiyelden (SCE' ye göre +1.0 V dan) negatif potansiyele (SCE' ye göre -1.5 V'a) doğru 20 mV/s'lik tarama hızı ile 0.5 mm çaplı platin bir tel elektrot üzerinde gerçekleştirildi.

Şekil 4.1'de 2,7 pH değerine sahip CoFe/Cu çözeltisinin (çözelti G) CV grafiği verilmiştir. Burada +1.0 V'dan -0.3 V'a kadar akım hemen hemen sıfır olarak kalmaktadır. Bu, belirtilen potansiyel aralığında bir metal depozisyonunun gerçekleşmediğini göstermektedir. -0.3 civarında gözlenen küçük pik Cu depozisyonuna karşılık gelir. -0.4 V'tan -0.9 V arasındaki potansiyel bölgesinde Cu'nın sınırlı difüzyonundan kaynaklanan düşük değerli bir akım platosu meydana gelmektedir. Katodik yöndeki bu tarama da -0.9 V değerinden sonra akımın artmaya başladığı görülmektedir. Bu artış Co, Fe ve Cu'nun depozisyonundan dolayıdır. Tarama anodik yönde incelendiği takdirde de +0.4 V civarında Co, Fe, Cu'nun muhtemel girişim yapmış geri çözünme pikleridir. Çözeltinin CV eğrisinden, Co ve Fe in depozisyonu için potansiyel aralığı -1.3 V'tan -1.7 V'a kadar; Cu için ise -0.2 V'tan -0.5 V'a kadar

değişebildiği anlaşılmaktadır. Bu potansiyel aralıklarında filmin metalik parlaklıkta bir görünümü olması için deneme numuneler ile uygun potansiyel seçimleri yapılabilir. Buna göre;

Co, CoFe deposisyonu için, SCE'ya göre	-1.5 V
Cu deposisyonu içinde, SCE'ya göre	-0.3 V

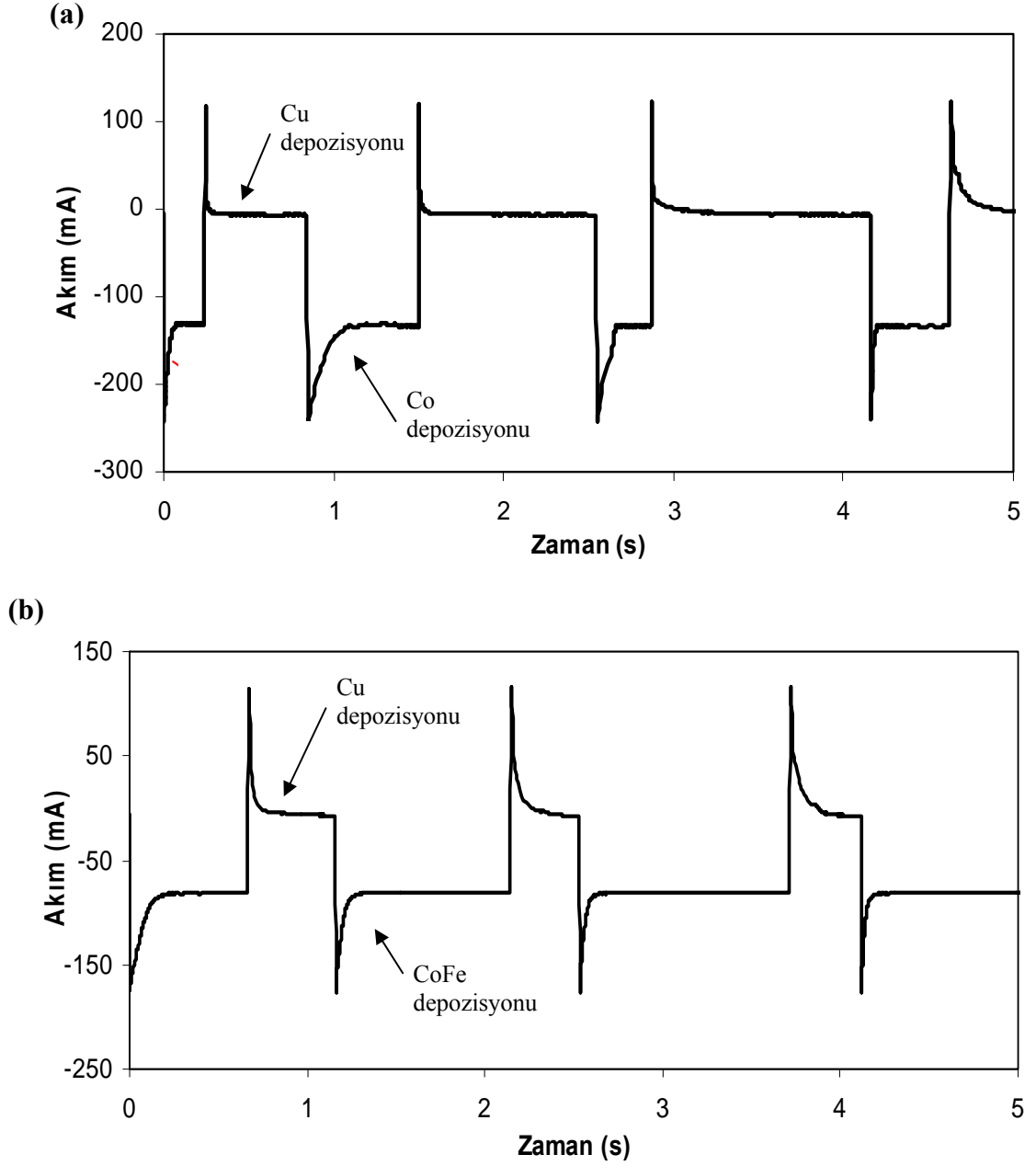
değerleri kullanıldı.



**Şekil 4.1** 2.7 pH değerine sahip 20°C sıcaklığındaki CoFe/Cu çözeltisinin (çözelti G) ilk dört devrini içeren dönüşümlü voltametri (CV)

Potansiyel tayininden sonra Ti alttabaka üzerinde iletkenliği olmayan bant kullanılarak  $\sim 3\text{cm}^2$  lik bir dikdörtgen alan hazırlandı ve bu alan saf su ile temizlendi. Numunelerin  $3\mu\text{m}$  kalınlıkta üretilmesi kararlaştırıldı. Çözelti içine anot olarak platin, katot için Ti, ve referans elektrot olarak doymuş kalomel elektrot (SCE) saf su ile

temizlendikten sonra 3 elektrotlu sistem kuruldu. Bu sistem potentiostat ve bilgisayar kontrolü ile akım-zaman değerleri kaydedildi.



**Şekil 4.2 (a) Co/Cu ve (b) CoFe/Cu örneklerinin akım-zaman geçişleri.**

Kaydedilen akım, zamanın fonksiyonu olarak çizildi. Akım-Zaman geçişleri olarak isimlendirilen bu eğriler Co/Cu ve CoFe/Cu çok katmanlı yapıları için Şekil 4.2'de verilmiştir. Eğrilerden görüldüğü gibi Co/Cu ve CoFe/Cu filmleri benzer bir

büyüme sürecine sahiptir. Katodik taraftaki ani geçişleri izleyen yüksek akım pulsları Co/Cu sisteminde (Şekil 4.2.a) Co, CoFe/Cu sisteminde (Şekil 4.2.b) CoFe'in deposizyonuna karşılık gelir. Anodik taraftaki yüksek akım pulsları, ferromanyetik Co ve CoFe'nin geri çözünmesinden kaynaklanmaktadır. Bu Co'nun geri çözünme potansiyelinin Cu'nun deposizyon potansiyeline yakın olmasının bir sonucudur. Düşük katodik akım pulsları ise Cu tabakalarının deposizyonunu göstermektedir.

CoFe/Cu sistemlerindeki Fe etkisini araştırmak amacıyla ilk olarak Fe içermeyen Co/Cu filmler üretildi. Co/Cu filmleri üretmek için kullanılan çözelti baz alınarak farklı konsantrasyonlarda  $FeSO_4 \cdot 7H_2O$  ilave edildi. Hazırlanan çözeltilerin içerikleri Tablo 4.1'de verilmiştir. Çözeltideki Fe konsantrasyonu 0.0 M dan 0.4 M'a kadar değiştirilmiştir. Tabaka kalınlıkları ve çözelti pH değeri gibi diğer bütün parametreler sabit tutularak bu çözeltilerin her birinden CoFe/Cu çok katmanlı yapıları hazırlandı.

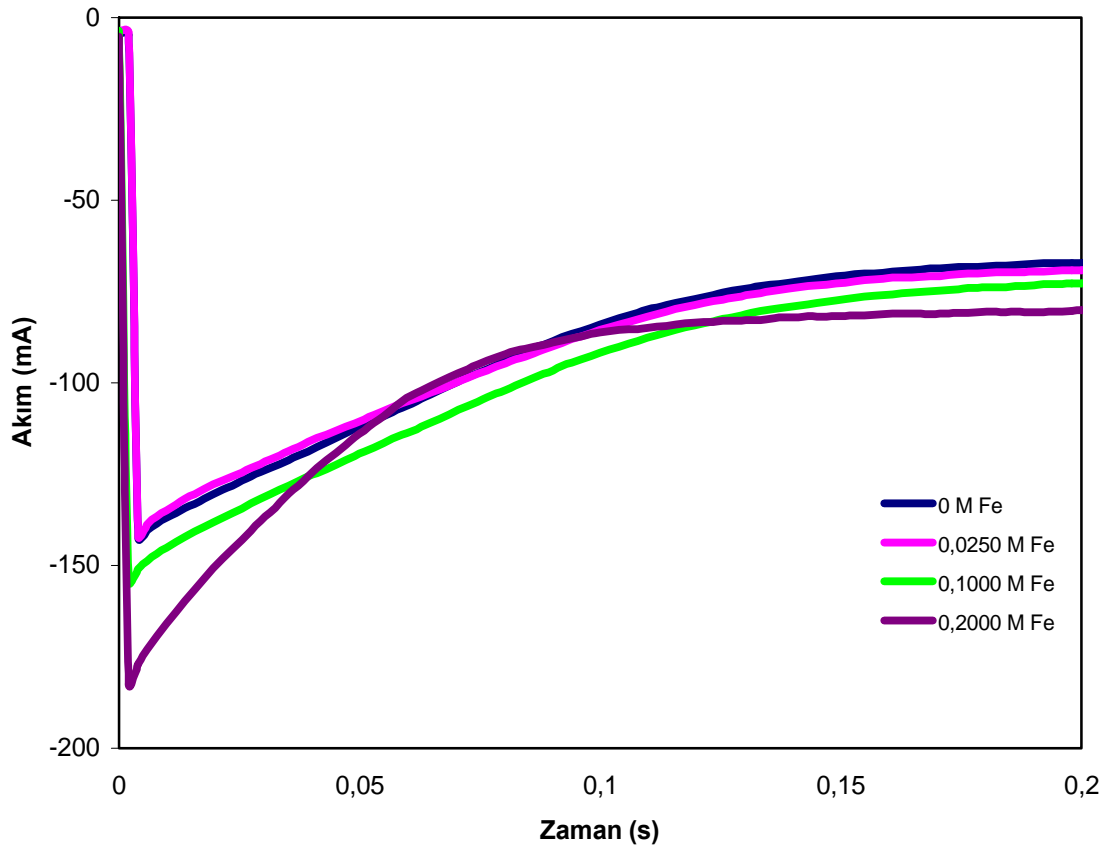
**Tablo 4.1** CoFe/Cu ince filminin büyütülmesinde kullanılan çözeltiler.

Çözelti	Kobalt Sülfat (M) $CoSO_4 \cdot 7H_2O$	Demir Sülfat (M) $FeSO_4 \cdot 7H_2O$	Bakır Sülfat (M) $CuSO_4 \cdot 5H_2O$	Borik Asit (M) $H_3BO_3$	Sülfamik Asit (M) $NH_2SO_3H$
A	0.75	-	0.05	0.25	0.01
B		0.0125			
C		0.025			
D		0.0375			
E		0.0425			
F		0.045			
G		0.05			
H		0.0625			
I		0.065			
J		0.075			
K		0.1			
L		0.2			
M		0.4			



Şekil 4.3'te Fe konsantrasyonlarına göre kaydedilen akım-zaman geçiş grafiklerinden çözeltideki Fe konsantrasyonunun artmasına bağlı olarak depozisyon akımının da giderek arttığı görülmektedir.

CoFe/Cu çok katmanlı yapılarında manyetik tabaka kalınlığının etkisini araştırmak için 0.05 M Fe içeren G çözeltisinden Cu tabakası 4 nm'de sabit tutularak, CoFe tabakasının kalınlığı 3 nm'den 15 nm'ye kadar değişen bir numuneler serisi üretildi. Aynı çözeltiden manyetik olmayan tabaka kalınlığının etkisini incelemek için CoFe tabakası 6 nm'de sabit tutularak Cu tabakası 0 nm'den 10 nm'ye kadar değiştirilerek bir seri numuneler üretildi. Burada üretilen numunelerin akım-zaman geçişleri Şekil 4.3'te görülen eğrilere benzer şekilde fakat bunların akım-zaman geçişlerinde kalınlık değişimine bağlı olarak depozisyon akımında bir değişim gözlenmedi.



Şekil 4.3 Çözelti içindeki Fe konsantrasyonunun değişimine göre akım-zaman geçişleri.

### 4.3 Yapısal Karakterizasyon

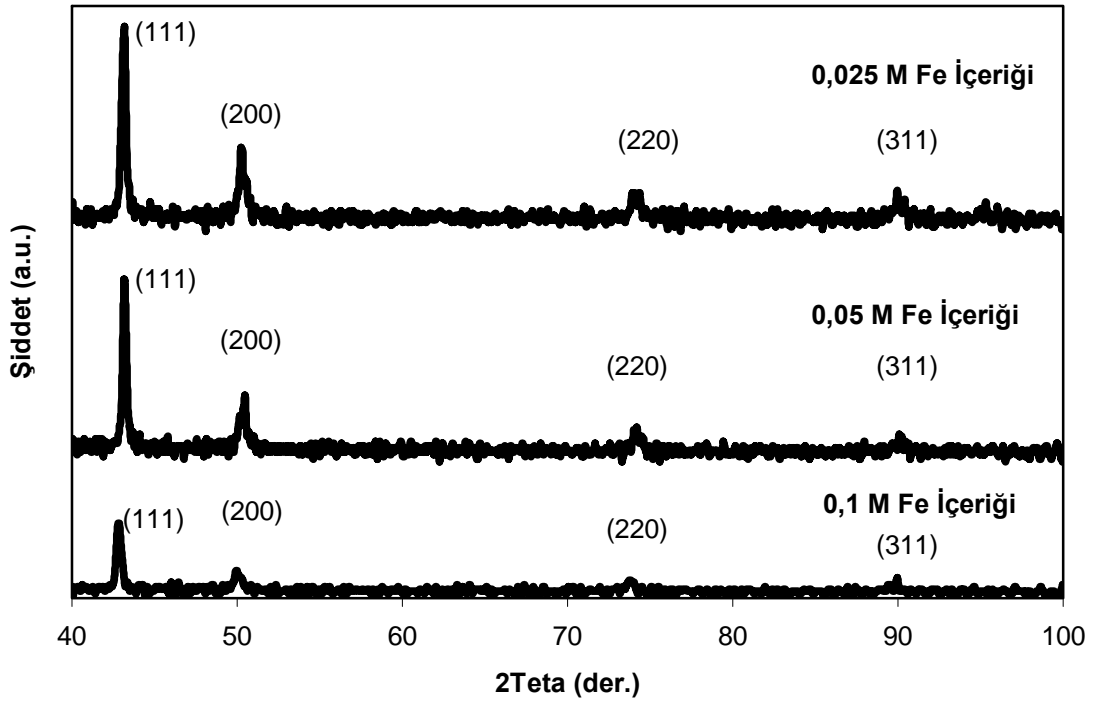
#### 4.3.1 X-ışını difraksiyonu

CoFe/Cu çok katmanlıların kristal yapıları, Fe içeriğine, manyetik olmayan tabaka kalınlığına ve manyetik tabaka kalınlığına bağlı olarak X-ışınları difraksiyon (XRD) tekniği ile analiz edildi. Elde edilen XRD spektrumlarından üretilen bütün CoFe/Cu filmlerde, fcc yapının (111), (200), (220) ve (311) pikleri açıkça ortaya çıkmaktadır ve bu numunelerin tek bir faza sahip olarak fcc yapıda kristalleştiğini göstermektedir.

Şekil 4.4 CoFe/Cu filmlerin ferromanyetik tabakanın Fe içeriğine bağlı olarak XRD spektrumlarını göstermektedir. Şekilden görüldüğü gibi, fcc yapının (111) yansıması  $43^{\circ}$ ; (200)  $51^{\circ}$ ; (220)  $74^{\circ}$  ve (311)  $90^{\circ}$  civarında ortaya çıkmaktadır. Çözeltideki Fe konsantrasyonunun (ve bundan dolayı da filmdeki Fe içeriğinin), 0.025 M'dan 0.1 M artması ile (111) pikinin şiddeti yaklaşık olarak 1/3 oranında azalmaktadır. (220) ve (311) pikleri ise 0.1 M Fe içeren çözeltiden üretilen numunede neredeyse kaybolmaktadır. Bunun sebebi Fe'in bcc yapısından dolayı, Fe oranının artışı ile fcc yapının zayıflamasından kaynaklanmaktadır.

Şekil 4.4'te XRD spektrumu verilen 0.05 M Fe içeriğine sahip çözeltiden büyütülen numune için (111), (200), (220) ve (311) düzlemleri arasındaki uzaklıklar sırasıyla  $d_{111}=(0.20930\pm 0.00162)$  nm,  $d_{200}=(0.18068\pm 0.00158)$  nm,  $d_{220}=(0.12772\pm 0.00139)$  nm ve  $d_{311}=(0.10885\pm 0.00123)$  nm dir. Bu dört düzlemin açıl konumları ve Miller indisleri kullanılarak numunenin örgü sabiti en küçük kareler yöntemiyle  $(0.3605629\pm 0.00677)$  nm olarak bulundu. Aynı şekilde diğer numuneler içinde düzlemler arası mesafeler hesaplandı. 0.025 M Fe içeren çözeltiden üretilen numune için düzlemler arası uzaklıklar sırasıyla  $d_{111}=(0.20939\pm 0.00160)$  nm,  $d_{200}=(0.18142\pm 0.00159)$  nm,  $d_{220}=(0.12745\pm 0.00128)$  nm ve  $d_{311}=(0.10897\pm 0.00110)$  nm dir. 0.1 M Fe içeren çözeltiden üretilen numune için düzlemler arası uzaklıklar sırasıyla  $d_{111}=(0.21088\pm 0.00162)$  nm,  $d_{200}=(0.18230\pm 0.001155)$  nm,  $d_{220}=(0.12825\pm 0.00115)$  nm ve  $d_{311}=(0.10898\pm 0.00110)$  nm'dir.

Ayrıca (111), (200), (220) ve (311) düzlemlerinden gelen piklerin açıl konumlarından ve yarı genişliklerinden yararlanarak film içinde bu yönelimlere ait tane büyüklükleri ( $t$ ) Scherrer bağıntısını (Cullity 1978) kullanarak hesaplandı. 0.025 M Fe içeren çözeltilerden hesaplanan ortalama tane büyüklüğü 30 nm; 0.05 M Fe içeren çözeltilerden üretilen numunenin tane büyüklükleri 30 nm olarak; 0.1 M Fe içeren çözeltilerden üretilen numunenin tane büyüklükleri de 37 nm olarak bulundu.



**Şekil 4.4** 0.025, 0.05, 0.1 M Fe içeren C, G, K çözeltilerden yapılan numunelerin 40°-100° arasındaki XRD sonuçları

Tablo 4.2’de (4.1) denklemi ile hesaplanan kristal yönelim katsayıları verilmiştir. Tablodaki bu sayılar,  $M=1$  değeri rasgele bir yönelim olduğunu yani bulk madde değerleri ile uyumlu olduğunu, 1’den küçük değerlerin bastırılmış yönelim ve 1’den büyük sonuçların tercihli yönelim olduğunu gösterir. Bu verilerden deneysel hatalar içinde numunelerin kuvvetli bir tercihli yönelime sahip olmadığı sonucu çıkarılmakla birlikte düşük Fe konsantrasyonları için zayıf bir (220) yöneliminin olduğu söylenebilir.

**Tablo 4.2** Fe konsantrasyonu deęişime göre numunelerin kristal yönelimleri.

	<b>0 M Fe</b>	<b>0.025 M Fe</b>	<b>0.05 M Fe</b>	<b>0.1 M Fe</b>
<b>M(111)</b>	1.0065	0.9978	0.9919	1.0078
<b>M(200)</b>	1.0102	1.0125	1.0051	1.1662
<b>M(220)</b>	1.2106	1.2228	1.0985	1.0401
<b>M(311)</b>	0.9025	0.7669	0.8244	0.4246

$$M = \frac{I_{(hkl)} / I_{(hkl)}^0}{1/4 \sum_j I_{(hkl)} / I_{(hkl)}^0} \quad (4.1)$$

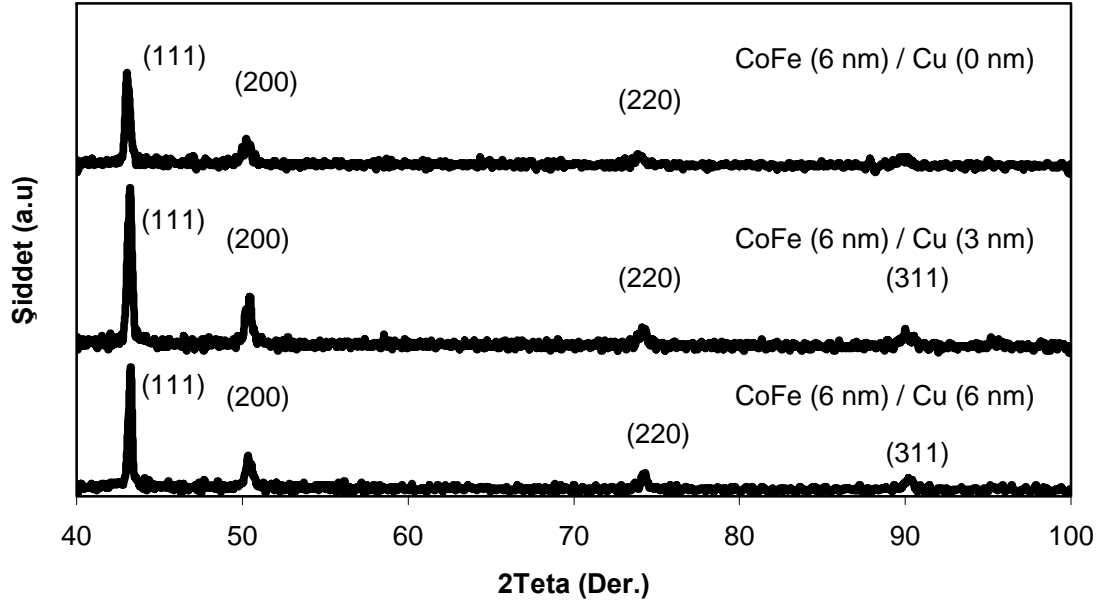
**Tablo 4.3** Fe konsantrasyonu deęişimi ile numunelerde ölçülen örgü sabiti, düzlemler arası uzaklık ve baęıl şiddetler.

<b>Fe Kons. (M)</b>	<b>Örgü Sabiti (nm)</b>	<b>(111)</b>	<b>(200)</b>	<b>(220)</b>	<b>(311)</b>
		<b>d (nm)</b>	<b>d (nm)</b>	<b>d (nm)</b>	<b>d (nm)</b>
<b>0</b>	0.3550	0.20890	0.18010	0.12702	0.10912
<b>0.025</b>	0.3522	0.20939	0.18142	0.12745	0.10897
<b>0.05</b>	0.3502	0.20930	0.18068	0.12772	0.10885
<b>0.1</b>	0.3465	0.21088	0.18230	0.12825	0.10898

Tablo 4.3'te 4 farklı Fe konsantrasyonu için numunelerin örgü sabitleri ve düzlemler arası mesafeleri özet halinde verilmiştir. Burada görülmektedir ki, çözelti içindeki Fe konsantrasyonu arttıkça örgü sabiti deęerleri azalmaktadır, bu bcc yapıya sahip Fe'in daha küçük örgü sabitine sahip olmasının bir sonucudur.

Şekil 4.5'te ferromanyetik tabaka kalınlığı 6 nm'de sabit tutulup, Cu tabaka kalınlığı deęiştirilmiş olan numunelerin XRD ölçümleri verilmiştir. 0 nm Cu tabaka kalınlığı için (311) yansıma piki gözlenmemiştir. Tabaka kalınlığı 3nm'den 6 nm'ye çıkarıldığında ise (311) yansıma piki açıkça görülür hale gelmiştir. Bu da numune içindeki fcc kristal yapısına sahip Cu'ın numune içindeki oranının artması ile numunenin fcc yapısını kuvvetlendirmiştir. Bu numunelerin hesaplanan ortalama tane büyüklükleri ~30 nm'dir ve Cu tabaka deęişimi numunelerin ortalama tane büyüklüklerini etkilememiştir.

Tablo 4.4'te bu numunelerin kristal yönelimleri gösterilmektedir. Deneysel hatalar içinde çok katmanlı yapıların rasgele bir yönelime sahip olduğu söylenebilir. Benzer bir sonuç Rafaja'nın çalışmasında elde edilmiştir (Rafaja 2004). CoFe alaşımı için zayıf bir (220) yönelime sahip olduğu söylenebilir.



**Şekil 4.5** G çözeltisinden üretilen 0.05 M Fe içeren numunelerin 40-100 derece arasındaki manyetik tabaka kalınlığı sabit tutulmak üzere manyetik olmayan tabaka kalınlığına göre XRD desenleri.

**Tablo 4.4** CoFe tabaka kalınlığı 6 nm'de sabit tutularak, Cu tabaka kalınlığı değişimi ile büyütülen numunelerin kristal yönelimleri.

	$t_{Cu}$		
	0 nm	3 nm	6 nm
<b>M(111)</b>	1.1319	1.1473	1.1627
<b>M(200)</b>	0.8317	0.8593	0.7967
<b>M(220)</b>	1.2769	0.9159	1.0742
<b>M(311)</b>	-	1.0775	0.9664

Tablo 4.5'te  $2.5 \pm 0.2$  pH'a sahip çözeltiden CoFe tabaka kalınlığının 6 nm'de sabit tutulan ve Cu tabaka kalınlığının 0 nm'den 6 nm'ye kadar değiştirilen serinin XRD spektrumlarından elde edilen örgü sabiti ve düzlemler arası mesafeleri tablo şeklinde verilmiştir.

Tablo 4.6’da  $2.5 \pm 0.2$  pH’ a sahip çözeltilerden üretilen Cu tabaka kalınlığının 4 nm’de sabit tutulan ve CoFe tabaka kalınlığının 3 nm’den 15 nm’ye kadar değişen numuneler için XRD spektrumlarından elde edilen örgü sabiti ve düzlemler arası mesafeleri tablo şeklinde verilmiştir. Bu verilerde elde edilen spektrumlar daha önce incelenen numunelere benzer özellikler göstermiştir. Tabloda numunelerin örgü sabitleri 0.358 ile 0.361 nm arasında değişen değerler almaktadır.

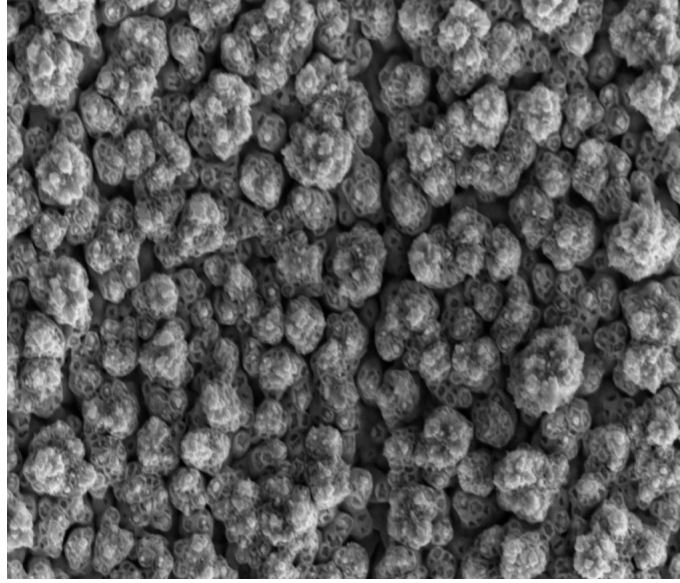
#### 4.3.2 Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji dağılımı X-ışını (EDX)

Yüzey morfolojisinin incelenmesi için taramalı elektron mikroskobu (Scanning electron microscope-SEM) kullanıldı. G çözeltilisinin iki farklı sıcaklığında ( $20^{\circ}\text{C}$  ve  $30^{\circ}\text{C}$ ) üretilen  $285[\text{CoFe}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(4.5 \text{ nm})]$  filmlerin SEM incelemesi yapıldı. Düşük sıcaklıkta üretilen numunede yüzeyin Şekil 4.6.a’da verilen SEM resminde açıkça görüldüğü gibi yumrular halinde aralarında boşluklar kalacak şekilde depozit olduğu görüldü. Buna karşın çözelti sıcaklığının  $30^{\circ}\text{C}$  olduğu zaman üretilen numunenin görünümü (Şekil 4.6.b) düşük sıcaklıkta üretilen numuneye göre daha düzlemsel ve daha boşluksuz bir yapı halini aldığı görüldü. Böylece sıcaklığın yüzey morfolojisinde etkili bir parametre olduğu tespit edildi.

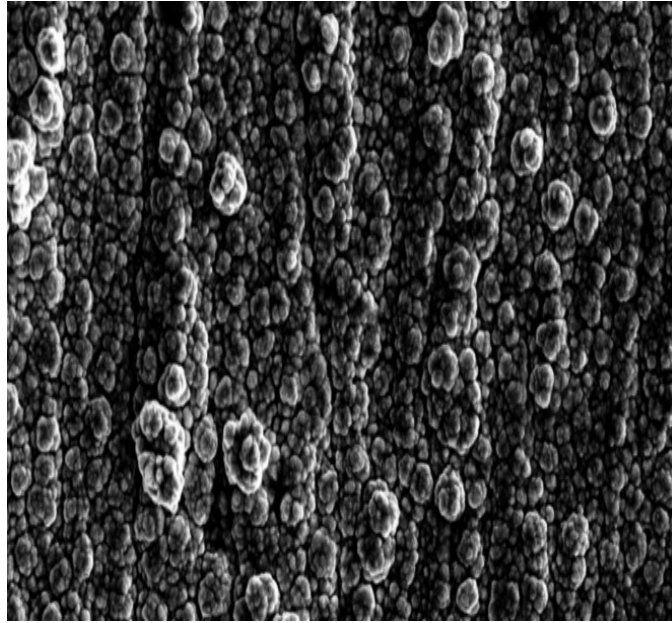
Ayrıca numunelerde bünyesinde hangi elementleri bulundurduğunu belirlemek için Enerji dağılımı X-ışını (EDX) yöntemi kullanıldı. Bunun için numunenin farklı noktalarından ölçümler alındı ve bunların ortalaması ile numune içindeki elementlerin yüzdesi bulunmuş oldu (Tablo 4.7). Tabloda görülen veriler incelendiğinde çözeltilinin düşük sıcaklıklarında Co ve Fe’in katot üzerine depozisyonunun azaldığı daha soy olan Cu’nun %88 gibi yüksek miktarda depozit olduğu görülmektedir. Bu depozit miktarı beklenenden oldukça yüksektir. Üretilen numunede olması gereken Cu miktarı %45 civarında olması beklenir ama bu oran deneysel sonuçlarda daha fazladır, bunun nedeni ferromanyetik tabaka depozit olurken daha soy olan Cu’nda bu tabaka ile depozit olmasıdır. Yani beklenenden değerden fazla olan kısım CoFe ile depozit olmaktadır (Kakuno ve ark. 1999). Çözelti sıcaklığının  $30^{\circ}\text{C}$ ’ye artması durumunda ise numune içindeki Co miktarının %10’dan %18 gibi yaklaşık olarak iki katına çıktığı;

Fe'inse %1.5'tan %4 gibi bir değere ulaştığı görülmüştür. Yine aynı şekilde Cu, burada da CoFe ile beraber depozit olmaktadır.

(a)



(b)



**Şekil 4.6** 0.05 M Fe konsantrasyonuna sahip G çözeltisinden, çözelti sıcaklığı (a) 20<sup>0</sup>C; (b) 30<sup>0</sup>C. olduğunda üretilen 285[CoFe(6 nm)/Cu(4.5 nm)] çok katmanlı yapının yüzey morfolojisi.

**Tablo 4.5** Aynı kalınlıkta (3  $\mu\text{m}$ ) üretilmiş CoFe/Cu filmlerin Cu tabaka kalınlığı değişimine göre XRD sonuçları.  $t_{\text{CoFe}} = 6 \text{ nm}$  (sabit).

		$t_{\text{Cu}}$												
		0 nm	0.1 nm	1 nm	1.5 nm	2 nm	2.5 nm	3 nm	3.5 nm	4 nm	4.5 nm	5 nm	5.5 nm	6 nm
<b>Örgü Sabiti (nm)</b>		0.35842	0.35841	0.36113	0.36113	0.35965	0.35990	0.36089	0.35924	0.35957	0.36056	0.35783	0.35808	0.36006
<b>(111)</b>	<b>d (nm)</b>	0.20994	0.20230	0.20847	0.20847	0.20810	0.20847	0.20911	0.20911	0.21004	0.20930	0.20884	0.20893	0.20893
<b>(200)</b>	<b>d (nm)</b>	0.18142	0.17520	0.17589	0.17621	0.18001	0.18075	0.18061	0.17714	0.18142	0.18068	0.18021	0.18095	0.18108
<b>(220)</b>	<b>d (nm)</b>	0.12382	0.12693	0.16048	0.12690	0.12479	0.12760	0.12763	0.12526	0.12783	0.12772	0.12792	0.12772	0.12757
<b>(311)</b>	<b>d (nm)</b>	0.10821	0.10821	0.10830	0.10869	0.10642	0.10862	0.10670	0.10682	0.10874	0.10885	0.10870	0.10884	0.10876

**Tablo 4.6** Aynı kalınlıkta (3  $\mu\text{m}$ ) üretilmiş CoFe/Cu filmlerin CoFe tabaka kalınlığı değişimine göre XRD sonuçları.  $t_{\text{Cu}} = 4 \text{ nm}$  (sabit).

		$t_{\text{CoFe}}$								
		3 nm	4 nm	5 nm	6 nm	7 nm	8 nm	10 nm	12 nm	15 nm
<b>Örgü Sabiti (nm)</b>		0.36045	0.35983	0.35964	0.35957	0.35930	0.35943	0.35912	0.35867	0.35935
<b>(111)</b>	<b>d (nm)</b>	0.20586	0.20560	0.20562	0.21004	0.20539	0.20533	0.20402	0.20510	0.20517
<b>(200)</b>	<b>d (nm)</b>	0.17873	0.17858	0.17842	0.18142	0.17821	0.17811	0.17803	0.17795	0.17804
<b>(220)</b>	<b>d (nm)</b>	0.12681	0.12675	0.12667	0.12783	0.12656	0.12653	0.12636	0.12479	0.12641
<b>(311)</b>	<b>d (nm)</b>	0.10838	0.10819	0.10814	0.10874	0.10802	0.10805	0.10797	0.10642	0.10802



**Tablo 4.7** EDX analizinde numuneler içinde belirlenen atomların yüzdesi.

	Co(%)	Fe(%)	Cu(%)
T=20 <sup>0</sup> C	10.6	1.3	88.1
T=30 <sup>0</sup> C	18.9	3.9	77.2

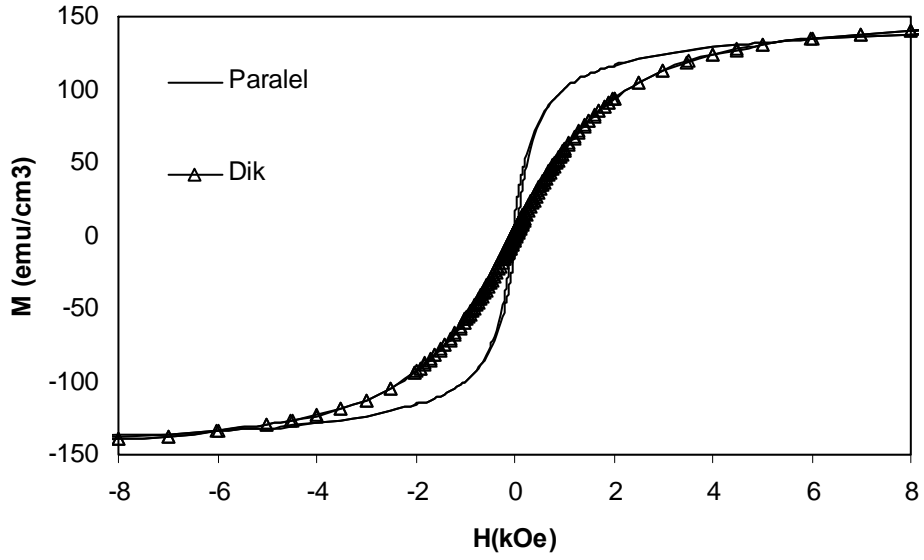
#### 4.4 Manyetik ve Manyetorezistans Karakterizasyonu

Bu bölümde numunelerin manyetik karakterizasyonları ve manyetorezistans ölçümleri, Fe konsantrasyonuna, manyetik tabaka kalınlığına ve manyetik olmayan tabaka kalınlığına bağlı olarak alt başlıklar halinde anlatılacaktır.

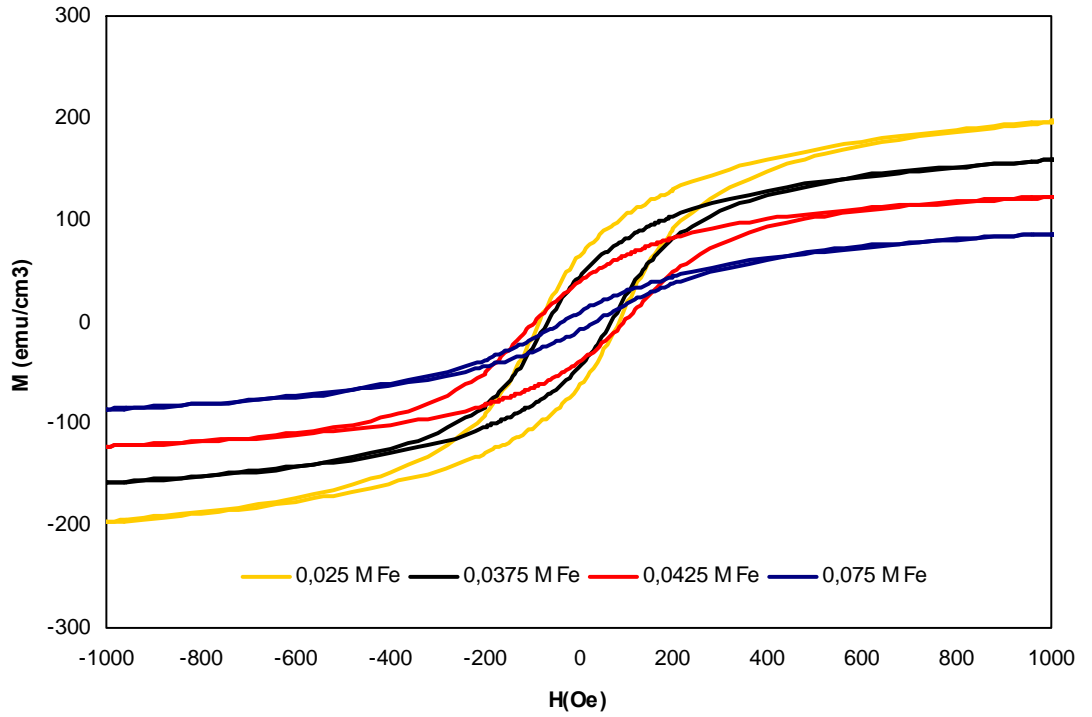
##### 4.4.1 Manyetik karakterizasyonlar üzerine Fe içeriğinin etkisi

Numunelerin manyetik ölçümleri, manyetik alan film düzlemine hem paralel hem de dik uygulanarak yapılmıştır. Şekil 4.7’de numunelerden biri için ölçülen paralel ve dik VSM sonuçları verilmiştir. Numune 8 kOe değerinde doyuma ulaşmaktadır ve bu noktadaki mıknatıslanma değeri  $\sim 140 \text{ emu/cm}^3$ ’dir. Diğer filmlerde de benzer şekilde eğriler elde edilmiştir.

Şekil 4.8’de farklı demir konsantrasyonları içeren numunelerin histeresis eğrileri verilmiştir. Burada çözelti içindeki Fe konsantrasyonu 0.025 M olduğunda 1 kOe manyetik alan değerinde mıknatıslanması  $195 \text{ emu/cm}^3$  tür. Fe konsantrasyonu 0.0375 M’a çıkarıldığında ise  $155 \text{ emu/cm}^3$  değerine düşmektedir. Fe konsantrasyonu 0.075 M değerine arttırıldığında ise  $85 \text{ emu/cm}^3$  değerine kadar azalmaktadır (Daheum ve ark. 2003). Bu sonuç bize Fe içeriğinin arttıkça daha düşük değerlerde mıknatıslanmaya başlayıp daha hızlı bir doyuma ulaşabileceğini gösterir. Şekil 4.9 numunelerin doyum mıknatıslanmasının Fe konsantrasyonuna bağlı olarak değişimini gösterir. Fe konsantrasyonunun 0.0 M dan 0.025 M artması ile doyum mıknatıslanması da artmaktadır, ancak bu noktadan sonra hafif bir azalma göstermektedir.



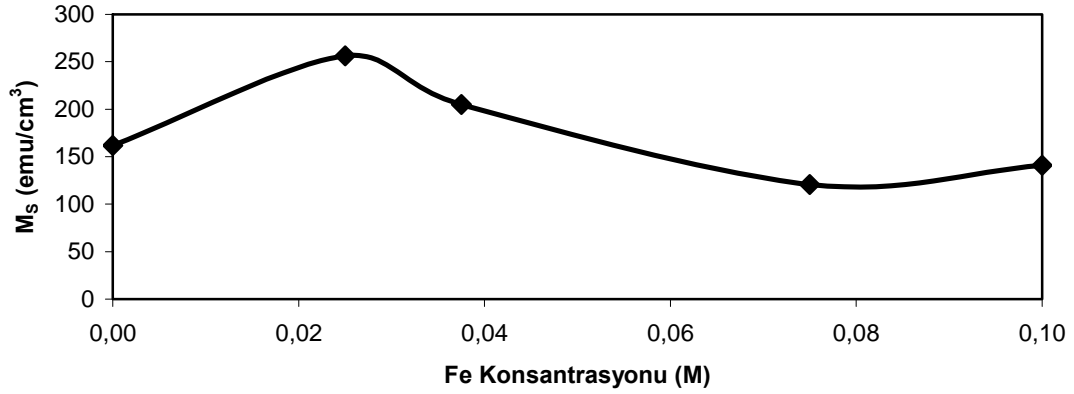
**Şekil 4.7** CoFe/Cu filminin, filmin manyetik alana hem paralel hem de dik ölçümleri için elde edilen histeresis eğrileri.



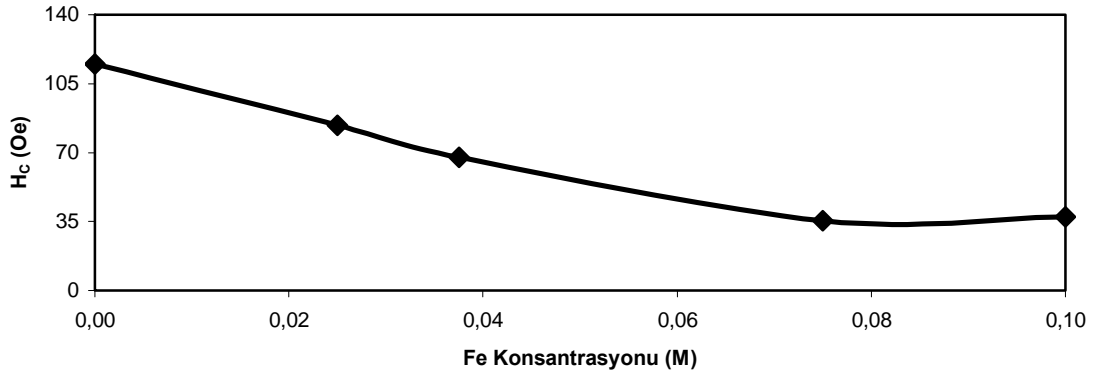
**Şekil 4.8** C,D,E ve J çözeltilerinden üretilen numunelerin histeresis eğrileri.

Şekil 4.10'da çözelti içindeki Fe konsantrasyonu 0 M'dan 0.1 M'a kadar değiştirilen numunelerin koarsivite ( $H_c$ ) değerleri verilmiştir. Burada Fe konsantrasyonu arttıkça koarsivitenin azaldığı görüldü. Benzer bir sonuçta Daheum ve

arkadaşları tarafından gözlenmiştir (Daheum ve ark. 2003). Bu azalmanın nedeni Fe'in yumuşak ferromanyetik bir yapıya sahip olmasıdır. Veriler incelendiğinde elde edilen koarsivite değerlerinin 12.5 Oe yumuşak ferromanyetik madde sınırı ve 125 Oe sert ferromanyetik madde sınırları arasında kaldığı görülür. Fe oranı arttıkça da değerler yumuşak ferromanyetik sınırına doğru yaklaşır.



Şekil 4.9 Fe içeriğinin, doyum mıknatıslanmasına göre grafiği.

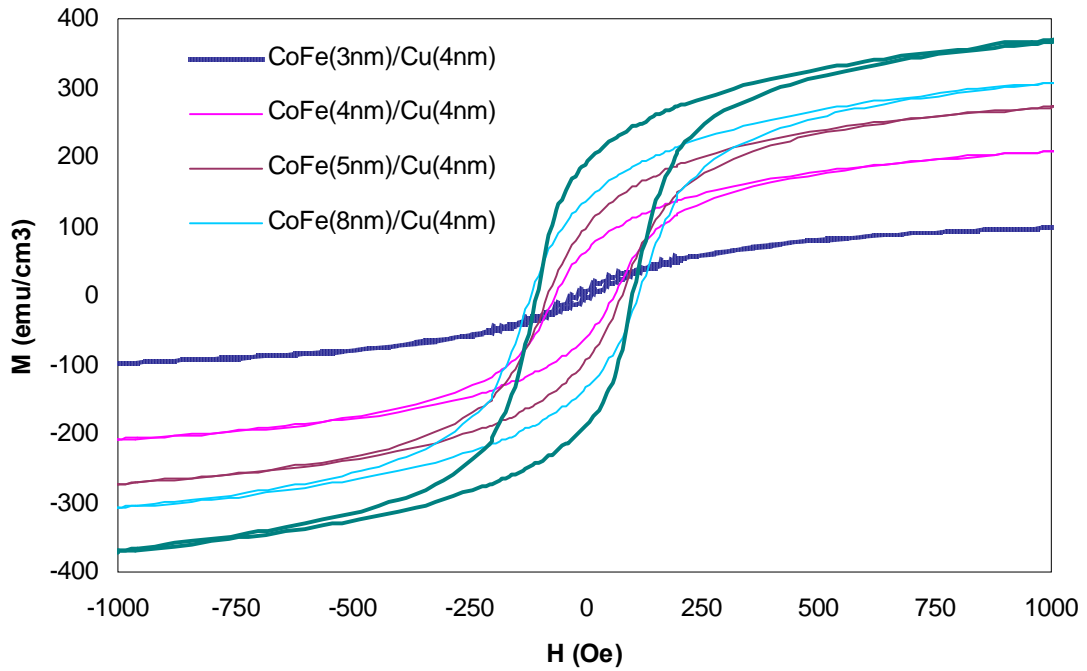


Şekil 4.10 Fe konsantrasyonunun koarsiviteye göre grafiği.

#### 4.4.2 Manyetik karakterizasyonlar üzerine CoFe tabakasının etkisi

Şekil 4.11'de manyetik olmayan tabaka kalınlığı (Cu) 4 nm'de sabit tutularak manyetik tabaka kalınlığı 3 nm'den 8 nm'ye kadar değiştirilerek oluşturulan serinin VSM ile elde edilen histeresis eğrileri gösterilmiştir. Burada 1 kOe'teki mıknatıslanmaların; CoFe tabaka kalınlığı 3 nm olduğu zaman değerinin  $\sim 100$  emu/cm<sup>3</sup>

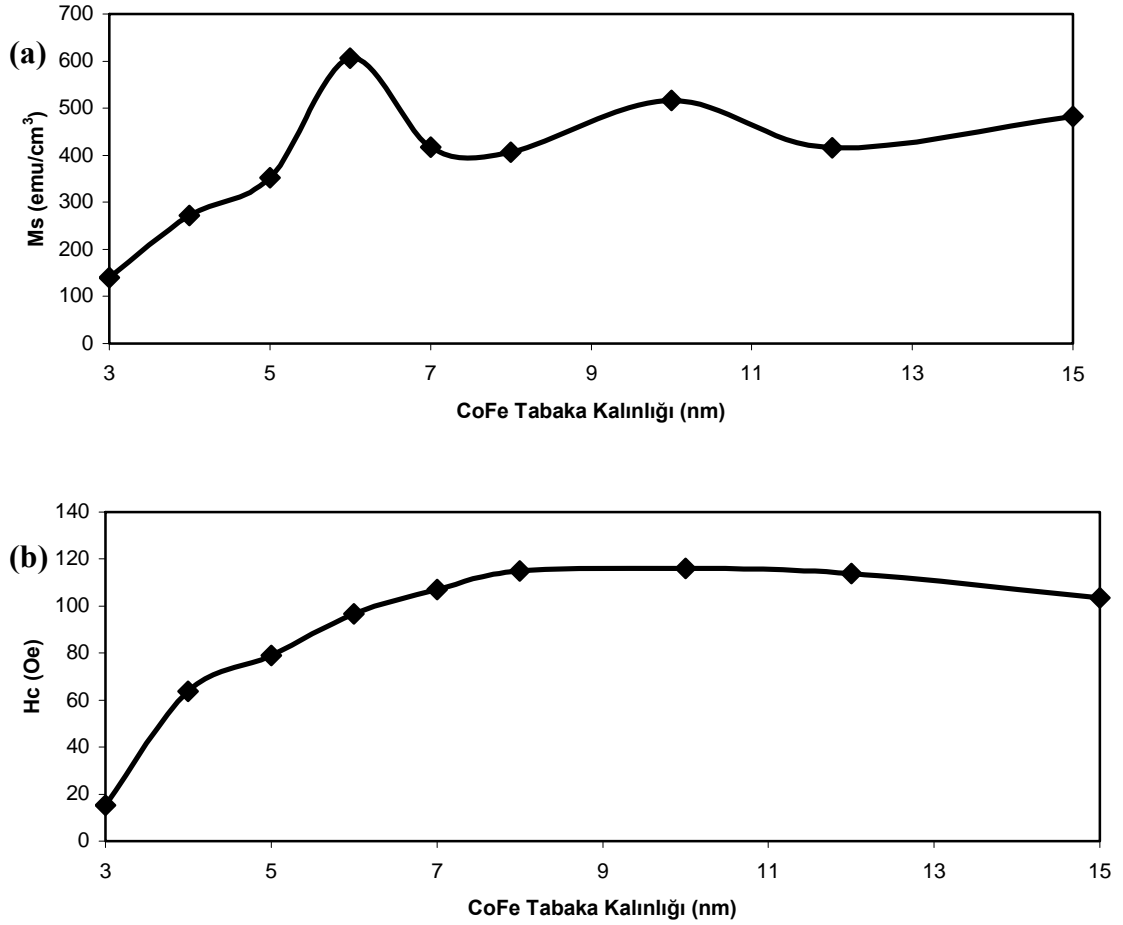
iken bu kalınlıđın 8 nm'ye ıkarıldıđında deđerinin  $\sim 350 \text{ emu/cm}^3$  olduđu grld. Numunelerin mıknatıslanmalarının CoFe tabaka kalınlıđının artması ile daha yksek alanlarda doyuma ulařtıđı anlařıldı. Őekil 4.12.a'da CoFe kalınlıđının 3 nm'den 15 nm'ye kadar olan serinin doyum mıknatıslanması deđerleri verilmiřtir. Dalgalı bir Őekilde artan bir doyum mıknatıslanmasına sahiptir ve yaklaşık  $150 \text{ emu/cm}^3$  deđerinden sonra CoFe tabakasının 6 nm olduđu zaman  $\sim 600 \text{ emu/cm}^3$  deđerine kadar hızlı bir ykseliř izlemiřtir. Bu noktadan sonra bir azalma grlse de grafiđin tamamı deđerlendirildiđinde yaklaşık olarak  $\sim 400 \text{ emu/cm}^3$  deđerine kadar bir ykseliř olduđu sylenbilir. Manyetik tabaka kalınlıđının artması film iindeki demir oranının da artması demek olduđundan bu artıř beklenen bir sonutur. nk oda sıcaklıđında kobaltın ( $M_s = 1400 \text{ emu/cm}^3$ ) ve demirin ( $M_s = 1707 \text{ emu/cm}^3$ ) doyum mıknatıslanmaları (Kittel 2005) deđerleri gz nne alındıđı zaman manyetik tabakanın artması ile birlikte doyum mıknatıslanmasındaki artıř normaldir.



**Őekil 4.11** Ferromanyetik tabaka kalınlıđının deđerimine gre histeresis eđrileri.

Őekil 4.12.b'de bu numunelerin CoFe kalınlıđına gre koarsivite deđerlerinin deđerimini verilmiřtir. Burada manyetik tabaka kalınlıđının artıřı koarsivitenin artıřına neden olmuřtur. Grafikte 3nm CoFe tabaka kalınlıđında yaklaşık olarak 20 Oe olan  $H_C$ ,

8 nm değerine kadar arttırıldığında bu değer 120 Oe değerine kadar yükselen bir seyir izlemiştir ve bu değerden sonra 15 nm'ye kadar deneysel hatalar içinde sabit bir değerde kalmıştır. Bu artış numunelerin içinde artan Co oranının bir sonucudur. Çünkü Co'ın sert ferromanyetik yapısı numunede artan bir  $H_C$  değerine sahip olmasını sağlamıştır. Çünkü çözeltiler Co bakımından zengindir ve alınan EDX sonuçlarında Co, Fe'ye göre daha çok depozit olmuştur.

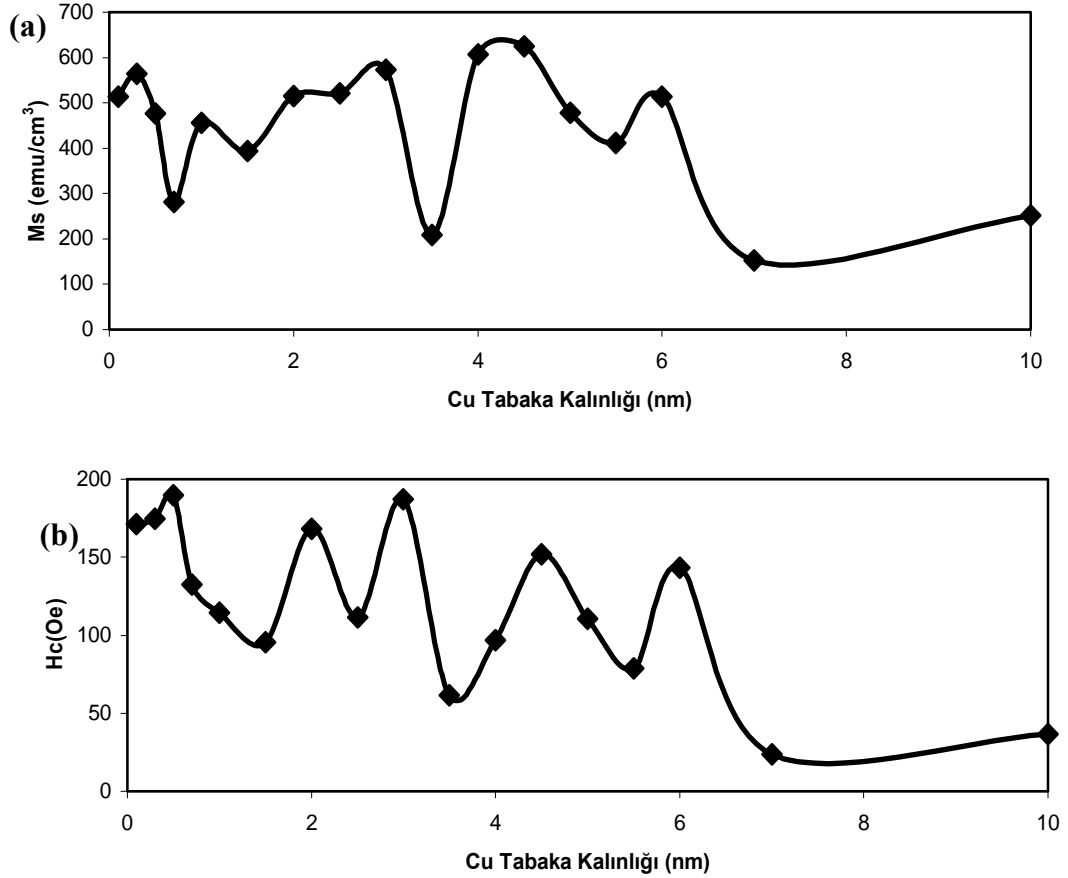


**Şekil 4.12** Manyetik tabaka kalınlığı değişimine göre (a) doyum mıknatıslanması ve (b) koarsivite.

#### 4.4.3 Manyetik karakterizasyonlar üzerine Cu tabakasının etkisi

Şekil 4.13.a'da manyetik olmayan Cu tabaka kalınlığı 0 nm'den 10 nm'ye kadar değiştirilerek VSM ile ölçülen doyum mıknatıslanma değerleri verilmiştir. Cu tabaka kalınlığının 0 nm iken başlayan dalgalı yapıdaki değerler 3 nm'ye kadar devam

etmektedir. 3.5 nm'de ani bir düşüş yaparak 200 emu/cm<sup>3</sup> değerine inmiştir. 4 nm değerinde tekrar bir yükselişle 600 emu/cm<sup>3</sup> değerine ulaşmış olsa dahi artan kalınlıkla azalmaya başlamıştır. 7nm'de ~200 emu/cm<sup>3</sup> değerine inerek 10 nm'ye kadar düşük mıknatıslanma değerlerinde seyretmiştir. Genel olarak bir azalma görülmektedir, bu da Cu'nın diamanyetik özelliğe sahip olmasının bir sonucu olabilir.



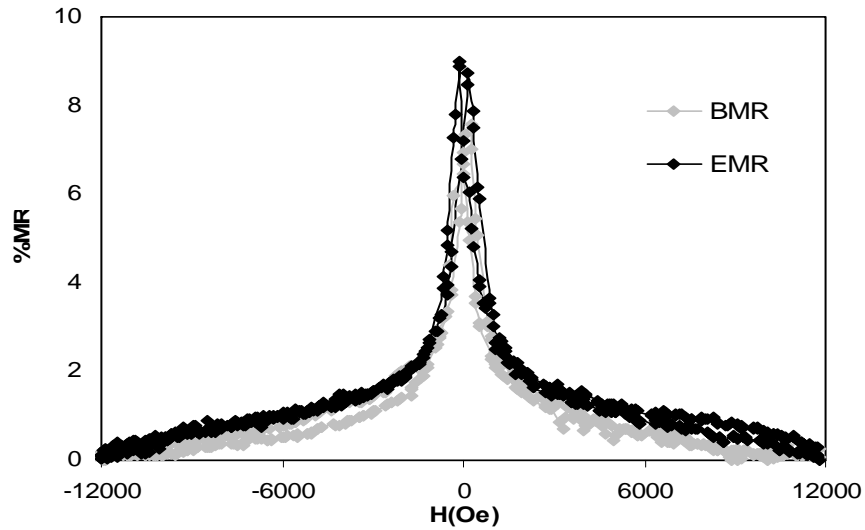
**Şekil 4.13** Manyetik olmayan tabaka kalınlığı değişimine göre (a) doyum mıknatıslanması ve (b) koarsivite.

Şekil 4.13.b'de ise bu numunelerin koarsivite değerleri Cu tabaka kalınlığının fonksiyonu olarak verilmiştir. Burada manyetik olmayan tabaka kalınlığının artışı ile 0.5, 2, 3, 4.5, 6 nm Cu tabaka kalınlığında pikler gözlenmiştir. Grafikte görüldüğü gibi yaklaşık olarak 20 Oe ten maksimum 190 Oe değerine kadar değişen değerler elde edilmiş ve 7 nm daha kalın numunelerde ~50 Oe lik bir koarsiviteye sahip oldukları belirlenmiştir.

#### 4.4.4 Manyetorezistans üzerine Fe konsantrasyonunun etkisi.

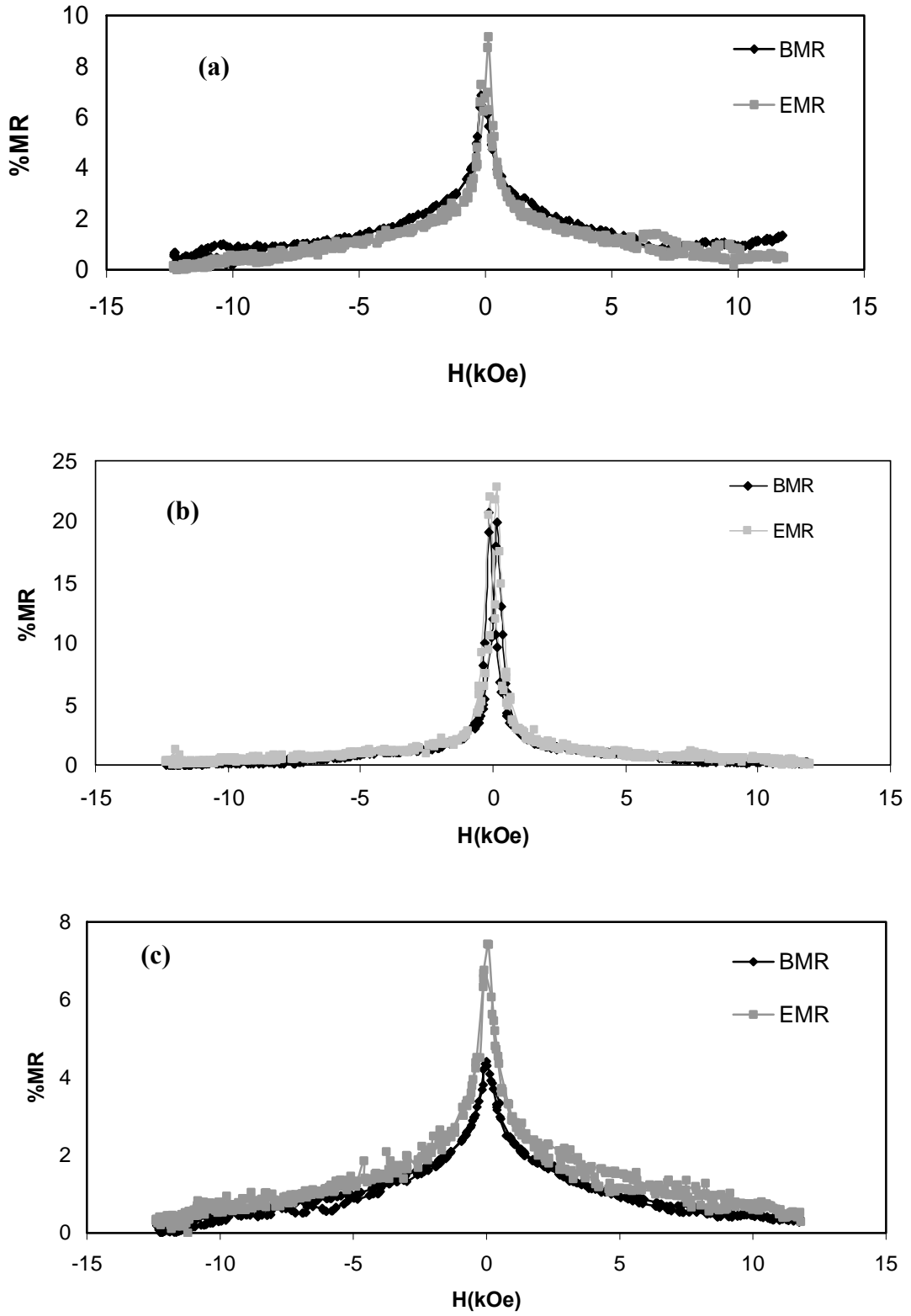
Ti alttabakalardan sökülen CoFe/Cu filmleri manyetorezistans ölçümleri için cam üzerine monte edildi. 4 problu numune tutucuya bağlanarak iki mıknatıs arasına koyuldu ve  $\pm 12$  kOe manyetik alan film düzleminde uygulandı. Bölüm 3.4.2’de açıklanan van der Pauw geometrisi kullanılarak BMR ve EMR ölçümleri yapıldı.

Fe içeriğinin etkisinin incelenmesi için ilk olarak, Fe içermeyen (0.0M) ve pH değeri  $2.5 \pm 0.2$  pH olan çözeltiden 285[Co(6 nm)/Cu(4.5 nm)] biçimine sahip çok katmanlı bir film hazırlandı. Bu numunenin yapılan BMR ve EMR ölçümlerinden GMR etkiye sahip olduğu ve manyetorezistansındaki değişimin %9 olduğu gözlemlendi (Şekil 4.14).



**Şekil 4.14** A çözeltisinden üretilen demir içermeyen Co/Cu çok katmanlı nanoyapısı.

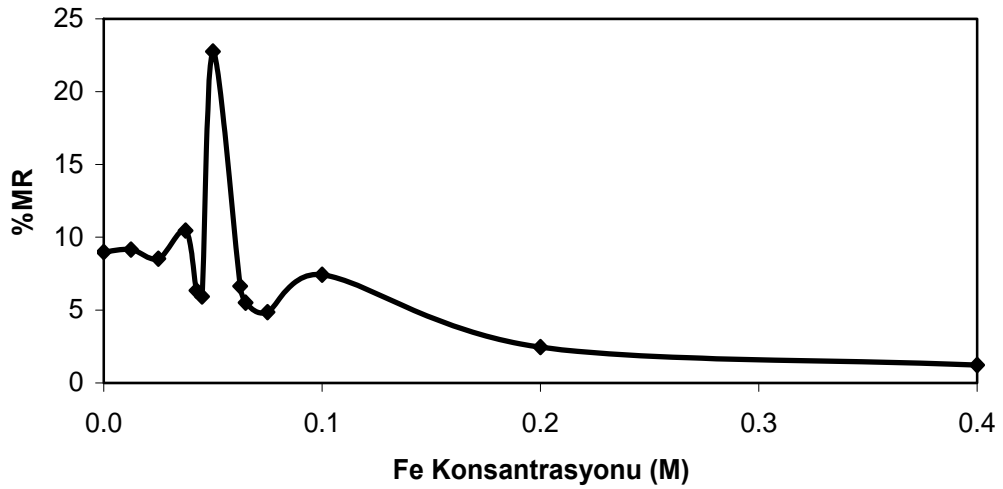
Yukarıda bahsedilen Co/Cu sistemindeki depozisyon şartları korunarak, 0.0125 M’den 0.4 M’a kadar Fe konsantrasyonuna sahip çözeltilerden, 285[CoFe( 6nm)/Cu(4.5 nm)] biçimine sahip farklı Fe içerikli filmleri hazırlandı. Bu numunelerin manyetorezistans ölçümleri yapıldı. Bütün filmlerin GMR etkiye sahip olduğu gözlemlendi. Örnek olarak üç farklı Fe içeriğine sahip filmlerin manyetorezistans eğrileri Şekil 4.15’te verilmiştir. Şekiller GMR üzerindeki Fe içeriğinin etkisini yansıtmaktadır.



**Şekil 4.15** (a) 0.0125 M Fe’li B çözeltisinden; (b) 0.05 M Fe’li G çözeltisinden; (c) 0.1 M Fe’li K çözeltisinden üretilen numunelerin GMR eğrileri.



Düşük konsantrasyonlu Fe içerikli çözeltilerden büyütülen CoFe/Cu filmler, Co/Cu filmler gibi hemen hemen aynı büyüklükte GMR değerlerine sahiptir. Bununla birlikte, Fe konsantrasyonu arttırıldıkça hem numunelerin GMR değerleri artmakta hem de GMR'ın doyuma ulaşması daha küçük manyetik alanlara kaymaktadır. Bu sonuç Fe içeriğinin GMR hassasiyetini artırdığını göstermektedir ki diğer çalışmalar ile de uyumludur (Saito ve Inomara 1992). Fe içeriğinin daha fazla artırılmasıyla, GMR büyüklüğünde tekrar azalma başlar ve azalma artan Fe konsantrasyonu ile devam eder. Diğer taraftan GMR hassasiyeti de azalır. Bu muhtemelen fazla Fe içeriğinin farklı kristal yapısından dolayı filmin kalitesini düşürmesinden kaynaklanır. Çözeltideki Fe içeriği ile GMR'ın değişim eğrisi Şekil 4.16'da verilmiştir. Şekilde görüldüğü gibi 0.05 M'un altında ki Fe konsantrasyonu içeren numunelerin GMR değerleri %9 civarındadır. 0.05 M civarında ani bir yükseliş yaparak %20 nin üzerinde GMR değerlerine ulaşabilmektedir. 0.05 M un üzerindeki Fe konsantrasyonları için sürekli azalarak %1 kadar düşmektedir. Bu Çözeltideki Fe konsantrasyonunun ve bu yüzdende filmdeki Fe içeriğinin GMR üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermektedir.

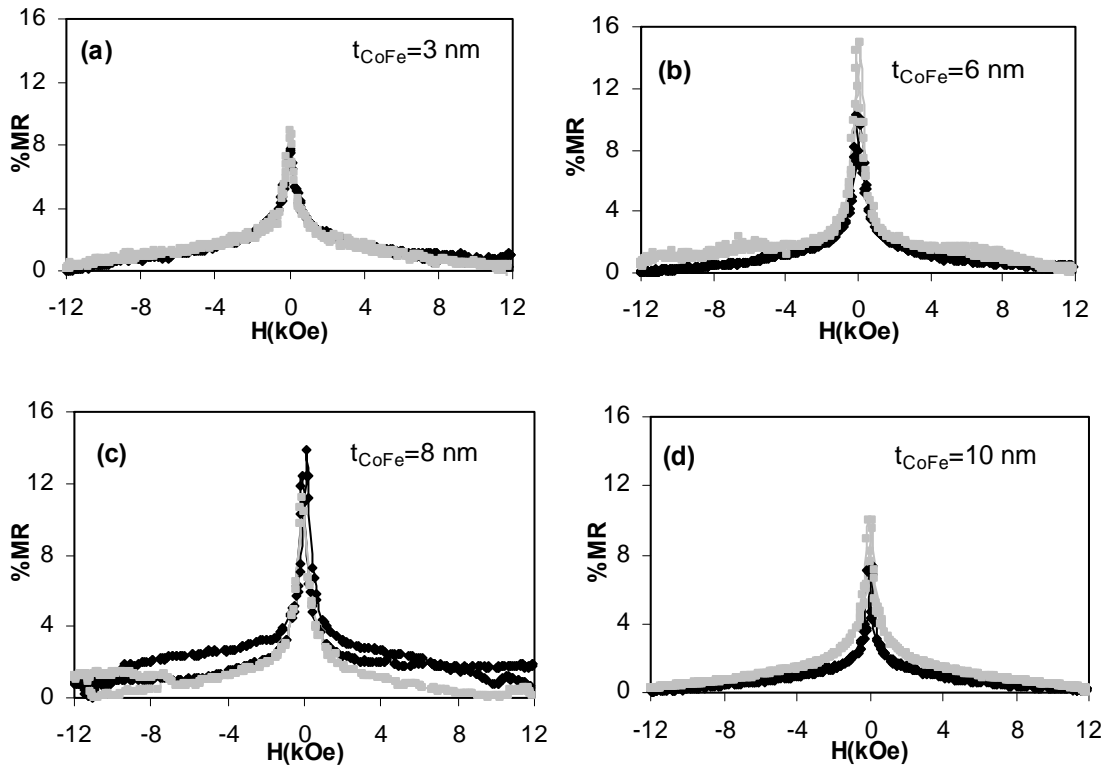


Şekil 4.16. Çözeltideki demir konsantrasyonuna göre GMR ın değişimi.

#### 4.4.5 Manyetorezistansın ferromanyetik tabaka (CoFe) kalınlığı ile değişimi

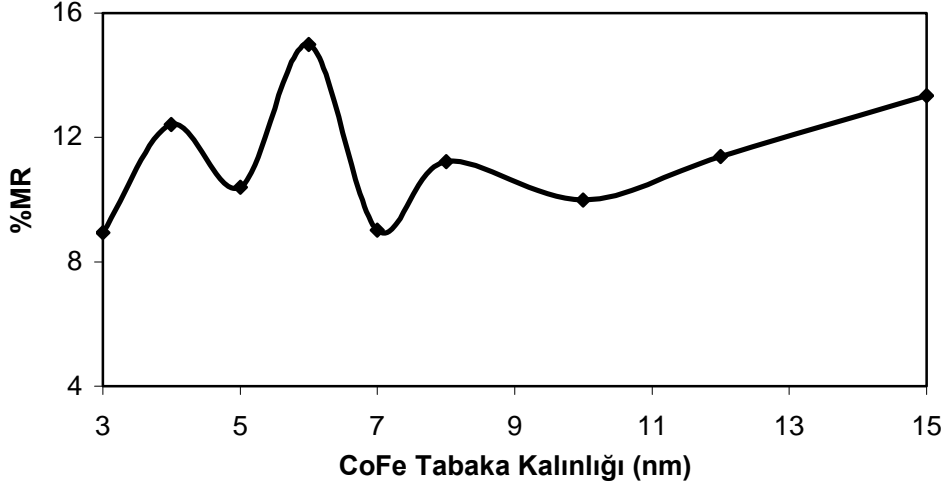
Manyetik tabaka kalınlığının etkisini incelemek için Cu tabaka kalınlığı 4 nm de sabit tutulup CoFe tabaka kalınlığı 3 nm'den 15 nm'ye kadar değiştirilerek bir numune serisi hazırlandı ve bunların manyetorezistans ölçümleri yapıldı.

Şekil 4.17’de farklı CoFe tabaka kalınlıklarına sahip numunelerin GMR eğrileri verilmektedir. Şekillerden görüldüğü gibi bütün numuneler katmanlı yapının periyodikliğinden kaynaklanan GMR etki göstermektedir ve MR davranışları hemen hemen aynıdır. 6 nm’nin altındaki CoFe tabaka kalınlıkları için, tabaka kalınlığı arttıkça GMR değeri de artmaktadır. En büyük GMR değerine (%16), 6 nm lik CoFe tabaka kalınlığının da ulaşılmaktadır. 6 nm den daha kalın CoFe için, GMR artan CoFe kalınlığı ile azalmaktadır. Çünkü ferromanyetik tabakanın kalınlığının artması CoFe, Cu ara yüzeyindeki oluşan saçılmaların etkisini azaltmakta ve böylece ferromanyetik tabakaların kendi içindeki spine bağımlı saçılmaları daha etkin bir şekilde olmaktadır.



**Şekil 4.17** CoFe/Cu çok katmanlı yapıları için CoFe kalınlığının 3 nm den 12 nm ye kadar yapılan %MR ölçümleri. Cu kalınlığı 4 nm için CoFe kalınlığı: (a) 3 nm (b) 6 nm (c) 8 nm (d) 10 nm.

Ferromanyetik tabaka kalınlığı ile GMR’ ın değişimi Şekil 4.18’de özetlenmiştir. Şekilden görüldüğü gibi GMR genel davranışı 3 nm den 6nm ye kadar olan kısımda bir artış, 6 nm civarında bir pik değer ve bu kalınlığın üzerinde genel bir azalma göstermektedir. Bu sonuçlar, önceki çalışmalar ile uyumludur (Ge ve ark. 1997, Wang ve ark. 1997).



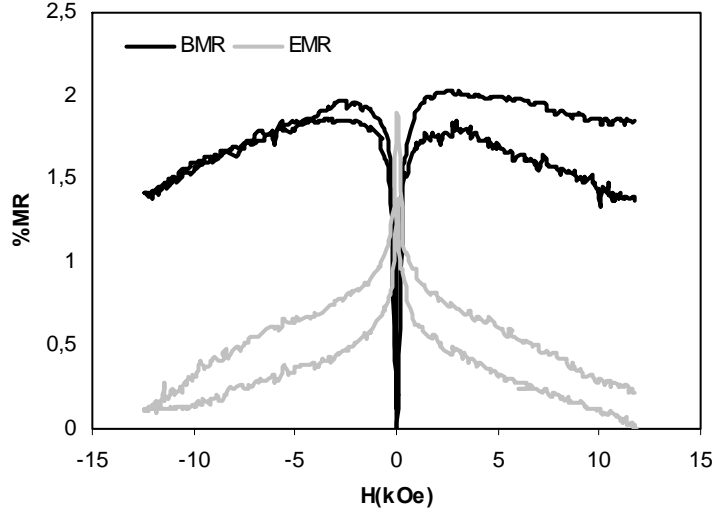
**Şekil 4.18** Ferromanyetik tabaka kalınlığının (CoFe), MR etkisi.

#### 4.4.6 Manyetorezistansın manyetik olmayan tabaka (Cu) kalınlığı ile değişimi

Manyetik olmayan tabaka kalınlığının MR değişimi üzerindeki etkisinin incelemesi için CoFe tabaka kalınlığı 6 nm de sabit tutularak Cu tabaka kalınlığı 0 nm'den 10 nm'ye kadar değiştirilerek bir numune serisi üretildi ve manyetorezistans ölçümleri yapıldı.

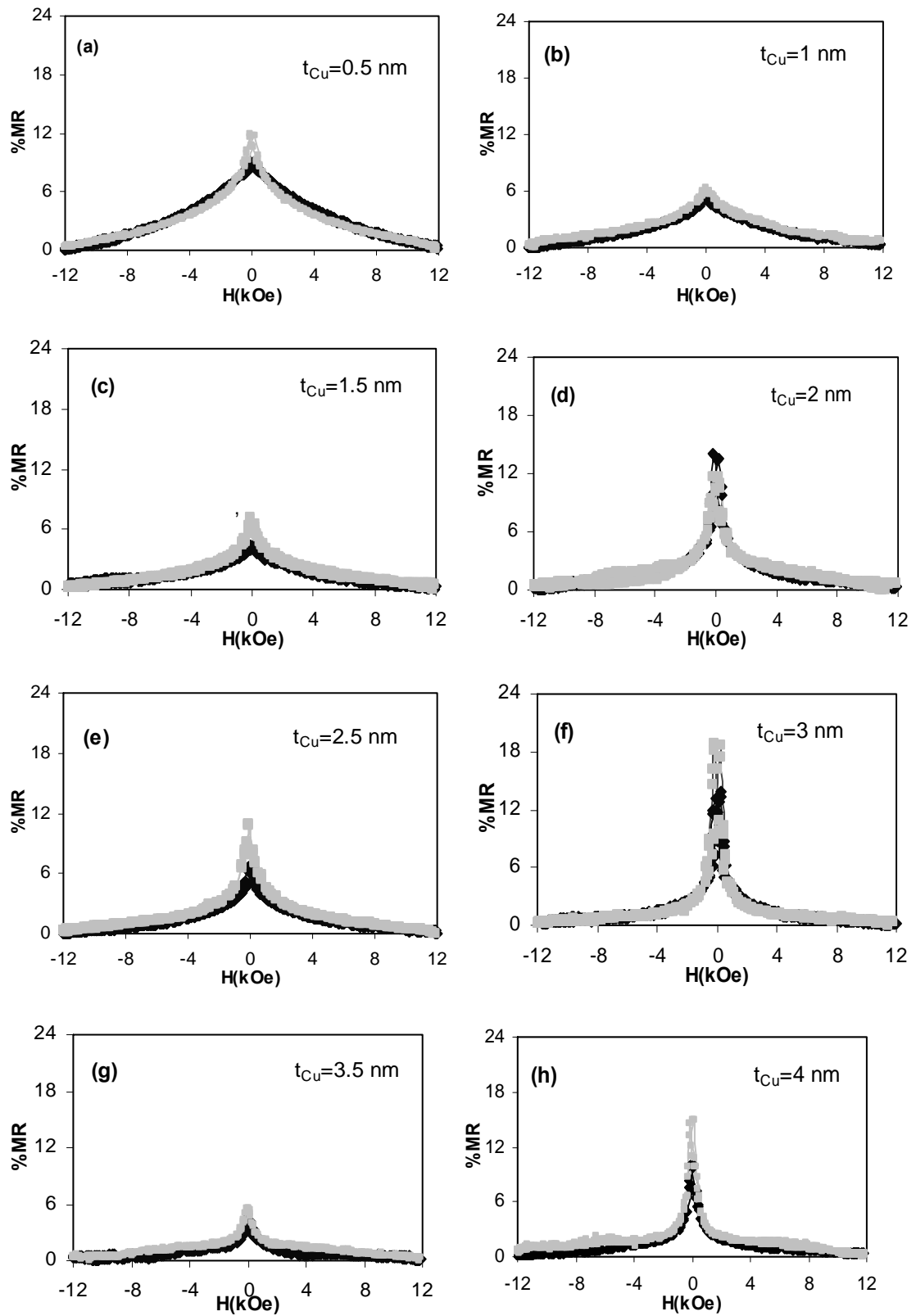
Cu tabaka kalınlığı 0 nm olan numune bir CoFe alaşımıdır ve bunun manyetorezistans ölçümünde görülmüştür ki (Şekil 4.19) BMR'ı artan manyetik alan ile artmakta (yaklaşık %2), oysa EMR'si artan manyetik alan ile azalmaktadır (yaklaşık %2). Bu numunenin tek katmanlı bir ferromanyetik gibi Anizotropik manyetorezistans AMR) etkiye sahip olduğunu gösterir (Freitas ve ark. 1987).

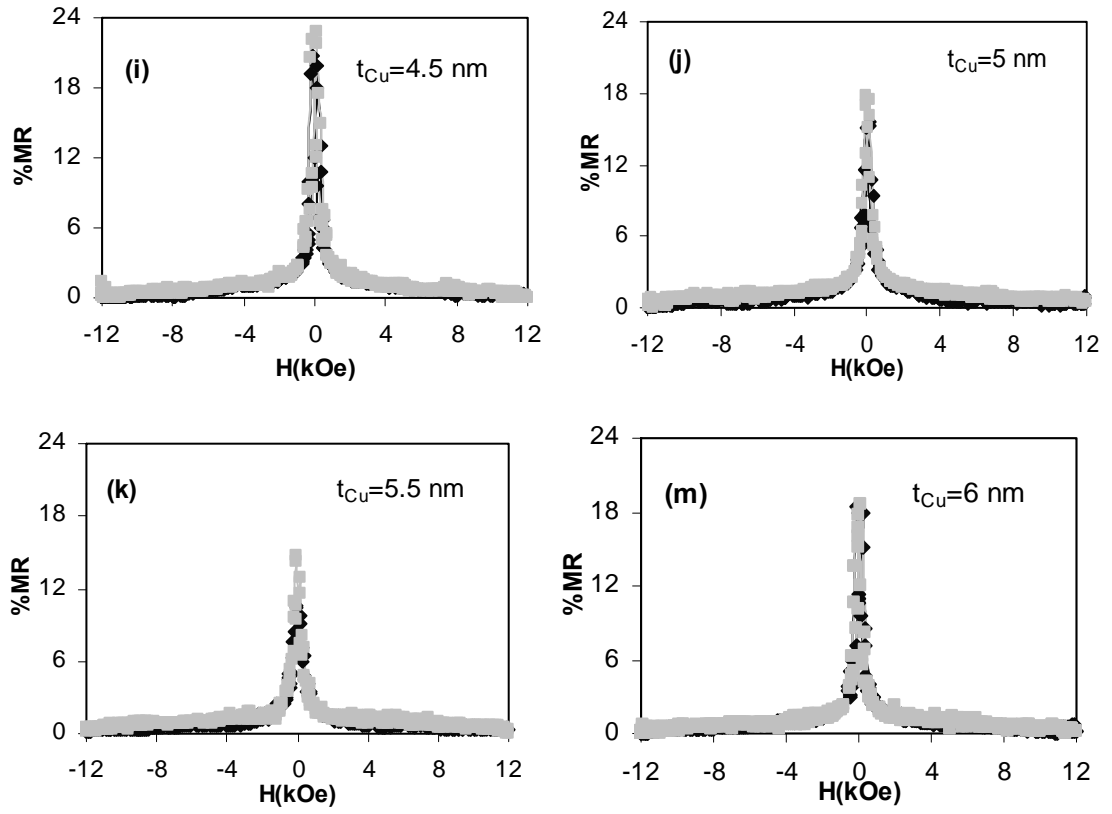
Cu tabaka kalınlığının değişimine göre hazırlanan numune serisinden örnek olarak bazılarının magnetoresistans eğrileri Şekil 4.20'de verilmiştir. Şekillerden görüldüğü gibi bütün numuneler GMR göstermektedir. Cu tabaka kalınlığına göre GMR dalgalı bir değişim göstermektedir. Bu değişimde  $t_{Cu} = 3$  nm olduğu duruma kadar olan numunelerde GMR %5 ile %13 değerleri arasında değişen bir davranış göstermektedir ve tabaka kalınlığına göre bu tür davranışlar bazı çalışmalarda da gözlenmiştir (Jyoko ve ark. 1998, da Silva ve ark. 1999, Kakuno ve ark. 1999, Onishi ve ark. 2004).



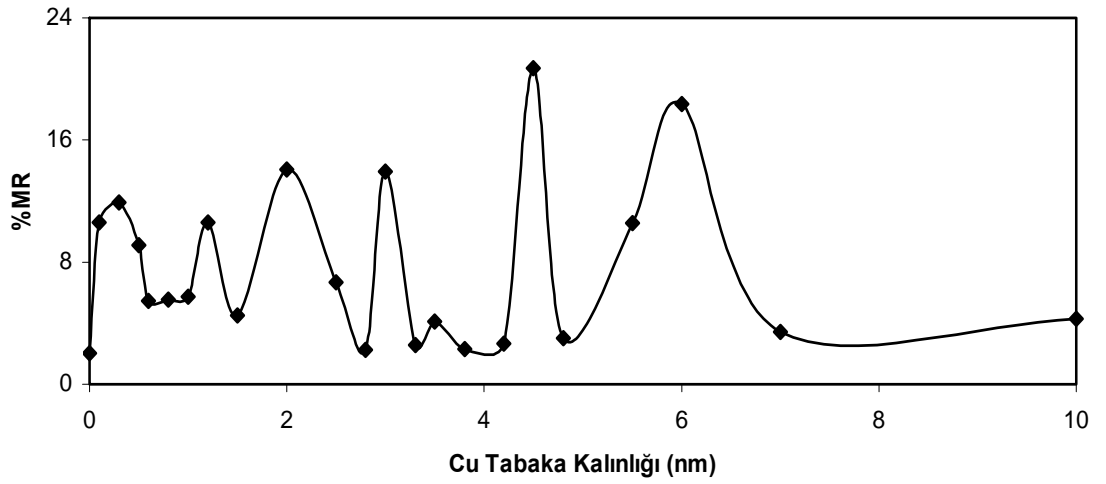
**Şekil 4.19** [CoFe(6 nm)/Cu(0 nm)] yapısı için van der Pauw tekniği ile yapılan ölçümde gözlemlenen AMR eğrisi.

Diğer taraftan 3 nm'den daha ince Cu tabakaları için MR eğrileri daha geniş bir biçime sahiptir, yani MR daha yüksek manyetik alanlarda doyuma ulaşır. 3nm den daha kalın Cu tabakaları için MR eğrileri daralmaktadır, yani MR doyum alanı daha küçük manyetik alanlara doğru kaymaktadır.  $t_{Cu} = 4.5$  nm olan numunede ise GMR %20 gibi maksimum bir değere ulaşmaktadır. Bu sonuçlar gösteriyor ki 3nm den daha ince Cu tabaka kalınlıkları için, manyetik tabakalar arasındaki manyetik etkileşmenin çok kuvvetli etkileşiminden dolayı GMR eğrilerinin yüksek değerlerde doyuma ulaştığı söylenebilir, zira ferromanyetik tabakaları birbirinden ayırmak için Cu tabaka kalınlığı yetersiz kalmaktadır. 3 nm'den daha kalın Cu tabakaları için, ferromanyetik tabakalar arasındaki ayırım kuvvetlenmekte ve bundan dolayı ferromanyetik çiftlenme zayıflamaktadır (da Silva ve ark. 1999, Kakuno ve ark. 1999, Onishi ve ark. 2004).





Şekil 4.20 pH 2.6 olan oda sıcaklığında bazı numunelerin Cu tabaka kalınlığının değişimine göre %MR değişimleri.



Şekil 4.21 CoFe/Cu yapıda Cu tabakasının %MR değişimine etkisi.

Şekil 4.21'de Cu tabaka kalınlığını deęişiminin GMR üzerindeki etkisini göstermektedir. Şekilde görüldüğü gibi GMR Cu tabaka kalınlığı ile titreşimli bir davranış göstermektedir. Bazı Cu kalınlıkları için bir maksimum deęerden ve bazı Cu kalınlıkları için bir minimum deęerden geçmektedir. Bu sonuçlar dięer elektrodepozit edilen katmanlı yapılarıdaki GMR davranışları ile de uyumludur(da Silva ve ark. 1999, Kakuno ve ark. 1999, Onishi ve ark. 2004).

## 5. TARTIŞMA

Elektrodepozisyon, manyetik ince filmlerin üretiminde kullanılan mevcut üretim tekniklerinden en basit ve ekonomik olanıdır. Bu çalışmada TÜBİTAK katkıları (proje no: TBAG-1771) ile bölümümüzde kurulmuş olan 3 elektrotlu elektrodepozisyon deneysel sistemi ile CoFe/Cu çok katmanlı nano yapılar, kendi iyonlarını içeren çözeltilerden Ti alttabaka üzerine büyütüldüler. CoFe/Cu katmanlı tabakaların özellikleri, çözeltideki Fe iyonlarının konsantrasyonuna, ferromanyetik tabaka (CoFe) ve manyetik olmayan (Cu) tabaka kalınlıklarının fonksiyonu olarak incelenmiştir.

Kullanılan çözeltilerin elektrokimyasal karakterizasyonlarının belirlenmesi için dönüşümlü voltametri (CV) tekniği kullanıldı. Hazırlanan farklı Fe konsantrasyonuna sahip çözeltiler için potansiyelin fonksiyonu olarak akım değerleri bilgisayar yardımı ile kaydedildi ve bu veriler kullanılarak akım-potansiyel yani CV eğrileri çizildi. Bu CV eğrilerinden Co, CoFe depozisyon potansiyel aralığı -1.3 ile -1.7 V SCE göre arasında, Cu için SCE göre -0.3 ile -0.5 V olabileceği tespit edildi. Bu potansiyel aralıklarında yapılan deneme numunelerinin metalik parlaklıkları göz önünde bulundurularak en uygun depozisyon potansiyelinin Co, CoFe için -1.5 V, Cu için ise -0.3 V olması gerektiği anlaşıldı. Bütün filmler bu potansiyel değerleri kullanılarak hazırlandı. Co/Cu ve CoFe/Cu filmlerinin akım-zaman geçişlerinden bu iki sistemin de benzer bir büyüme sürecine sahip olduğu anlaşıldı. Ayrıca farklı Fe konsantrasyonu içeren çözeltilerden üretilen numunelerin akım-zaman geçişlerinde Fe içeriğinin artışına bağlı olarak akım değerinin yükseldiği gözlemlendi.

Filmlerin yapısal karakterizasyonları için X-ışını difraksiyonu (XRD) tekniği kullanıldı. Numunelerden 40-100<sup>0</sup> aralığında alınan XRD spektrumlarında fcc yapıya ait (111), (200), (220) ve (311) yansıma pikleri görüldü. Bu numunelerin düzlemler arası mesafeleri ve kristal yönelimleri hesaplandı. Bu dört düzlemin açıl konumları ve Miller indisleri kullanılarak numunelerin örgü sabitleri en küçük kareler yöntemiyle hesaplandı ve bu değerlerin 0.358-0.361 nm aralığında olduğu tespit edildi. Hesaplanan



kristal yönelimlerinde bu numunelerin rasgele bir yönetime sahip olduğu görüldü. Bu yönelimlerde, Fe konsantrasyonu artıkça (311) yansıma pikinin bastırılmaya başlandığı belirlendi. Bu da numunelerin içinde bcc yapıya sahip Fe'nin, fcc yapıyı zayıflatmasından kaynaklanmaktadır. Diğer taraftan manyetik olmayan tabaka kalınlığının 0 nm olduğu yani CoFe alaşımında (311) pikinin zayıf olduğu ancak Cu tabaka kalınlığının 6 nm'ye kadar çıkarıldığı takdirde (311) yansıma pikinin kuvvetlendiği görüldü. Bu da Cu elementinin fcc kristal yapıya sahip olmasından dolayı numunelerin fcc fazını kuvvetlendirmesinin bir sonucudur.

Numunelerin manyetik karakterizasyonlarının belirlenmesi için VSM ile ölçümler yapıldı. Fe içermeyen çözültiden büyütülen filmler yani Co/Cu filmlerinin koarsivitesinin 105 Oe civarında olduğu görüldü ancak 0.1 M kadar Fe içeren çözültülerden büyütülen numunelerin koarsiviteyi 35 Oe kadar azalmaktadır. Bu azalma yumuşak ferromanyetik yapıya sahip Fe'nin film içinde artan oranından kaynaklanmaktadır. Bu da film içindeki Fe oranı ne kadar arttırılırsa numunenin yumuşak ferromanyetik sınırı olan 12.5 Oe değerine doğru yaklaşacağını göstermektedir. 0.05 M Fe içeren çözültiden hazırlanan numunelerin, ferromanyetik tabaka kalınlığının arttırılmasıyla –ki bu Co içeriğinin numune içindeki oranının artmasına yol açacaktır- numune sert ferromanyetik yapı haline geldiğinden doyum mıknatıslanması ve koarsivite değerleri artış eğilimi göstermektedir. Manyetik olmayan tabaka kalınlığının değişiminin etkisi ise koarsivitenin 20 Oe ten 190 Oe değerleri arasında dalgalı ancak genel görünümün itibari ile bir azalma durumuna doğru bir eğilim göstermektedir. Bu azalmanın nedeni 3 mikron kalınlığa sahip olan numunelerin ferromanyetik madde miktarının değişiminin tam tersine manyetik olmayan madde miktarının sistem içindeki oranının artmasıdır.

Manyetorezistans ölçümler van der Pauw geometrisi kullanılarak  $\pm 12$  kOe arasında taranan manyetik alanlarda yapıldı. Yapılan ölçümlerde numunelerin enine manyetorezistansları ve boyuna manyetorezistansların artan manyetik alan ile azaldığı görüldü. Bu çok katmanlı yapılarda gözlenen GMR davranıştır. Fe konsantrasyonunun numunelerin manyetorezistansına nasıl bir etkisinin olduğunu görebilmek için Fe içermeyen ve Fe içeren çözültülerden elde edilen Numunelerin GMR davranışları

karşılaştırıldı. Fe içermeyen bir Co/Cu filminde %9 civarında bir GMR değeri saptandı. Çözelti içindeki Fe konsantrasyonunun 0.05 M'a arttırılması ile %20'nin üzerinde bir GMR değeri elde edildi. Ayrıca artan Fe içeriğinin GMR in doyum manyetik alanının daha küçük alanlara doğru kaydığı gözlemlendi, aynı GMR'daki Fe, GMR hassasiyetini de arttırmaktadır. Diğer yandan çözeltideki Fe konsantrasyonunun daha fazla artırılmasıyla (örneğin 0.1 M ve üzeri) GMR değerinin azaldığı gözlemlendi. Sonuç olarak Fe içeriğinin belli konsantrasyonlara kadar numunelerde GMR değerini arttırdığı fakat belli bir konsantrasyonun üzerindeki Fe içeriğinin GMR değerinde azalmaya neden olduğu tespit edildi. Fe konsantrasyonu 0.05 M'da sabit tutulan çözeltiden ferromanyetik tabaka kalınlıkları değiştirilerek (3 nm den 10 nm) ve Cu tabaka kalınlığı 4nm de sabit tutularak üretilen numune GMR değerleri %6 dan %16 ya kadar değişebilen dalgalı bir yapıda olduğu görüldü. Burada %16 gibi yüksek değere sahip GMR, 6 nm tabaka kalınlığına sahip CoFe numune için elde edildi. CoFe tabaka kalınlığının 6 nm'den daha kalın olduğu numunelerde, artan manyetik tabaka kalınlığı içindeki spine bağımlı etkileşmelerin artmasından dolayı GMR değerleri azalmaktadır. Yine aynı çözeltiden büyütülen numunelerin manyetik olmayan tabaka kalınlığı (0 dan 3 nm kadar) ile GMR'ın değişiminin titreşim yaptığı bulundu (Şekil 4.21). En yüksek GMR değeri (%20'nin üzerinde), 6 nm CoFe tabaka kalınlığına ve 4.5 nm Cu tabaka kalınlığına sahip numunede gözlemlendi. Diğer taraftan 3 nm'den daha ince Cu tabakaları için MR eğrileri daha geniş bir biçime sahiptir, yani MR daha yüksek manyetik alanlarda doyuma ulaşır. 3nm den daha kalın Cu tabakaları için MR eğrileri daralmaktadır, yani MR doyum alanı daha küçük manyetik alanlara doğru kaymaktadır. Bu sonuçlar gösteriyor ki 3nm den daha ince Cu tabaka kalınlıkları için, manyetik tabakalar arasındaki manyetik etkileşmenin çok kuvvetli etkileşiminden dolayı GMR eğrilerinin yüksek değerlerde doyuma ulaştığı söylenebilir, zira ferromanyetik tabakaları birbirinden ayırmak için Cu tabaka kalınlığı yetersiz kalmaktadır. 3 nm'den daha kalın Cu tabakaları için, ferromanyetik tabakalar arasındaki ayırım kuvvetlenmekte ve bundan dolayı ferromanyetik çiftlenme zayıflamaktadır.

**KAYNAKLAR**

ALPER, M., K. R. ATTENBOROUGH, R. HART, S.J. LANE, D.S. LASHMORE, C. YOUNES and W. SCHWARZACHER. 1993. *Appl. Phys.Lett.* 63, 2144.

ALPER, M. 1995. *Elektrodeposited Magnetic Supperlattices*. Ph. D Thesis, University of Bristol, U.K.

ANDROCACOS, P.C., N. ROBERTSON. 1998. *IBM. J. Res. Develop* 42, 671.

BAIBICH, M.N., J.M. BROTO, F. NGUYEN VAN DAU, F. PETROFF, P. ETIENNE, G. CREZEUT, A. FRIEDERICH and J. CHAZELAS. 1988. Giant Magnetoresistance of (001) Fe/(001) Cr Magnetic Superlattices. *Phys. Rev. Lett.* 61, 2474.

BARD, A.J. AND L.R. FAULKNER. 1980. *Electrochemical Methods, Fundamentals and Applications*. John Wiley & Sons, New York.

BERKOWITZ, A.E., J.R. MITCHELL, M.J. CAREY, A.P. YOUNG, S. ZHANG, F.E. SPADA, F.T. PARKER, A.HUTTEN, G.THOMAS. 1992, *Phys. Rev.Lett.* 68, 3745.

BINASCH, G. P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH. And W. ZINN. 1989. *The American Physical Society*, 39, 7.

BIRD, K.D. And M. SCHLESINGER. 1995. *J. Electrochem. Soc.* 142 L65.

BLONDEL, A., J.P. MEIER, B. DOUBIN and J.P. ANSERMET. 1994. *Appl. Phys. Lett.* 65, 3019.

BRETT, C.M.A. and M.A.O. BRETT. 1994. *Electrochemistry Principles, Methods, and Applications*. Oxford University Press, Great Britain. 422.

CHANG, J.W. and L.T. ROMANKIW. 1994. *Magnetic Materials Processes and Devices* ed L T Romankiw and D AHerman (Pennington, NJ: Electrochemical Society) 223.

CHIKAZUMI, S. 1964. *Physics Of Magnetism*. Robert E. Krieger Publishing Company, Malabar, Florida. 554.

CHIU, A., I. CROLL, D.E. HEIM, R.E. JONES, P. KASIRAJ, K.B. KLASSEN, C.D.R.G. SIMMONS. 1996. *IBM J. Res. Develop* 40, 283.

CULLITY, B.D. 1978. *Elements of X-Ray Diffraction* (2. ed.), Addison-Wesley, London.

Da SILVA, R.C., E.M. KAKUNO, D.H. MOSCA, N. MATTOSO, W.R. SCHREINER, S.R. TEIXEIRA. 1999. *J. Magn . Magn. Mater.* 198-199.

DAVID, J. 1996. *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials*, Chapman &Hall, London.

DAHEUM, K., D.Y. PARK, B.Y. YOO, P.T.A. SUMODJO, N.V. MYUNG. 2003. *Electrochimica Acta* 48, 819-830.

FREITAS, P.P., L. BERGER, J.F. SILVAIN. 1987. *J. Appl. Phys.* 61 4385.

GE, S-H., Z-Z. ZHANG, Y-Y. LU, C-X. LI, R-J. GAN. 1997. *Thin Solid Films* 311 33-37.

GETZLAFF, M. 2008. *Fundamentals of Magnetism*. Springer.

HIBBERT, D.B. 1993. *Introduction to Electrochemistry*. The Macmillan Pres Ltd., London. p.161.

HUA, S. Z., D.S. LASHMORE, L. SALAMANCA-RIBA, W. SCHWARZACHER, L.J. SWARTZENRUBER, R.D. McMITCHAEAL, L.H. BENNET and R. HAN. 1992 *J. Appl. Phys.* 76, 6519.

INOMATA, K. And Y. SAITO. 1993. *J. Magn . Magn. Mater.* 126 425.

JILES, D. 1996. *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials*, Chapman and Hall, London, p. 71.

JYOKO, Y., S. KASHIWABARA, Y. HAYASHI, W. SCHWARZACHER. 1998. *IEEE Trans. Magn.* 34 6.

JYOKO, Y., S. KASHIWABARA and Y. HAYASHI. 1997. *J. Electrochem. Soc.* 144 L5.

KAKUNO, E.M., R.C. da SILVA, N. MATTOSO, W.H. SCHREINER, D.H. MOSCA and S.R. TEIXEIRA. 1999. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 32 1209-1213.

KILIÇ, E.,F. KÖSEOĞLU, H. YILMAZ. 1998. *Enstrümantal Analiz Teknikleri*. Bilim Yayıncılık, Ankara.267-411s.

KITTEL, C. 2005. *Introduction To Solid State Physics* 8Th Edition. John Wiley & Sons, Inc. 681.

LENCZOWSKI, S.K., C. SCHÖNENBERGER, M.A.M. GIJS and W.J.M. de JONGE. 1995. *J. Magn. Magn. Mater* 148, 455.

LIU, C., T. TSAO, G.B. LEE, J.T.S. LEU, Y.W. YI, Y.C. TAI, C.M. HO. 1999. *Sens. Actuators* 78, 190.

- MATHON, J. 1991. Contemporary Physics, 32 143.
- McGUIRE, T.R. and R.I. POTTER. July 1975. Anisotropic Magnetoresistance in Ferromagnetic 3d Alloys, IEEE Transactions on Magnetics, 11, 4.
- MOSCA, D.H., F. PETROFF, A. FERT, P.A. SCHROEDER, W.P.JR. PRATT and R. LOLOEE. 1991. J. Magn. Magn. Mater 94 L1.
- O'HANDLEY, C.R. 2000. Modern Magnetic Materials Principles and Applications. John Wiley & Sons, Inc. 740.
- ONISHI, M., R. ISHIHARA, A. KIDA, M. DOI, H. ASANO, M. MATSUI. 2004. J. Magn. Magn. Mater. 272-276.
- OSAKA, T., M. TAKAI, K. HAYASHI, K. OHASHI, M. SAITO, K. YAMADA. 1998. Nature 392, 796.
- O'SULLIVAN, E. J., E.I. COOPER, L.T. ROMANKIW, K.T. KWIENNIK, P.L. TROUILLOU, J. HORKANS, C.V. JAHNES, I.V. BABICH, S. KRONGELB, S.C. HEDGE, J.A. TORNELLO, N.C. LABIANCA, J.M. COTTE, T.J. CHAINER. 1998. IBM. J. Res. Develop. 42, 681.
- PARKIN, S.S.P., R. BHADRA, K.P. ROCHE. 1991. Phys. Rev. Lett. 66, 2152.
- PARKIN, S.S.P., R.F. MARKS, R.F.C.FARROW, G.P. HARP, Q.H. LAM and R.J. SAVOY. 1992. Phys. Rev. B 46, 9262.
- PIRAUX, L., J.M. GEORGE, J.F. DESPRES, C. LEROY, E. FERAIN, R. LEGRAS, K. OUNADJETA and A. FERT. 1994. Appl. Phys. Lett. 65, 3019.
- POLLACK, G. And D. STUMP. 2004. Elektromanyetik Teori. Çev. Editörü: Ş. Türköz, Z.Z. Aydın, M. Zengin. Gazi Kitabevi Ankara. 622.
- RAFAJA, D., J. EBERT, G. MIEHE, N. MARTZ, M. KNAPP, B. STAHL, M. GHAFARI, H. HAHN, H. FUESS, P. SCHMOLLNGRUBER, P. FARBER, H. SIEGLE. 2004. Thin Solid films. 460, 256-263.
- RASMUSSEN, F. E., J.T. RAVNKILDE, P.T. TANG, O. HANSEN, S. BOUWSTRA. 2001. 92, 242
- SAITO, Y. and K. INOMARA. 1991. Japan. J. Appl. Phys. 30, L1733
- SAITO, Y., S. HASHIMOTO ve K. INAMOTO. 1992. IEEE Trans. On Magn. 28, 5.
- SERWAY, R.A. 1996. Physics (IV. Kısım), Çev. Editörü: K. Çolakoğlu. Palme Yayıncılık, Ankara.
- SCHWARZACHER, W and D.S. LASHMORE. 1996. IEEE Trans. Magn. 32, 3133.

SHIMA, M., L. SALAMANCA RIBA, T.P. MOFFAT, R.D. McMICHAEL. 1999. J.Magn. Magn. Mater. 198-199 52.

SIMMONDS, J. L. 1995. Phys. Today April 26. DAHLBERG, E.D. and T.G. ZHU. 1995 Phys. Today April 34. PRINZ, G.A. 1995. Phys. Today April 58 and references therein.

SKOOG, D.A., F.J. HOLLER, T.A. NIEMAN. 1998. Principles of Instrumental Analysis, Harcourt Brace & Company, Çeviri Ed. Kılıç E., Köseoğlu F., Yılmaz H., Bilim Yayıncılık. 591.

XIAO, J.Q., J.S. JIANG, C.L. CHIEN. 1992, Physc. Rev. Lett. 1992, 68, 3749.

WANG, D., J. ANDERSON, J.M. DAUGHTON. 1997. IEEE Trans. On Magn. 33, 5.

[www.mos.org/sln/sem](http://www.mos.org/sln/sem) (07.04.2007)

[www.sem.com/analytic/sem.htm](http://www.sem.com/analytic/sem.htm) (07.04.2007).

## TEŐEKKÜR

Bu tezin planlanmasından sonuçlanmasına kadar her sürecinde deęerli yorum ve katkılarından dolayı danışmanım Prof. Dr. Mürsel ALPER' e sonsuz teşekkürlerimi sunarım. Bu çalışmada, elektrodpozisyon sürecinde sistemle ilgili yardımları için Mürşide (ŞAFAK) HACIİSMAİLOęLU' na teşekkür ederim. Ayrıca XRD ölçümleri için Balıkesir Üniversitesi kimya bölümünden Doç Dr. Halil GÜLER; VSM ve MR ölçümleri için Balıkesir Üniversitesi Araştırma Laboratuvarlarında çalışmamı destekleyen Doç. Dr. Hakan KOÇKAR' a ve bu süreçte yardımları için Elif GÜNGÖR, Öznur KARAAĞAÇ ve Hilal TOPÇU' ya teşekkür ederim. Çalışmalarım süresince bana maddi ve manevi açıdan her türlü yardımlarını esirgemeyen aileme teşekkürü bir borç bilirim.

## **ÖZGEÇMİŞ**

10.05.1982 yılında Bursa'da doğdu. İlköğrenimini İstiklal ilköğretim okulunda, lise öğrenimini Süleyman Çelebi Lisesinde tamamladı. 1999 yılında Balıkesir Üniversitesi İktisadi İdari Bilimler Fakültesi İktisat Bölümünü kazandı. 2003 yılında İktisat bölümünü tamamlamadan, aynı yıl içinde kazandığı Uludağ Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik bölümünü kazandı. Burada 4 yıllık lisans eğitimini tamamladıktan sonra 2007 yılında aynı bölümde yüksek lisans yapmaya hak kazandı.