

05;06;07;11;12

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ИОНАМИ КИСЛОРОДА НА СПЕКТРЫ ОПТИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ И МАГНИТНОГО КРУГОВОГО ДИХРОИЗМА ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК ЖЕЛЕЗО-ИТТРИЕВОГО ГРАНАТА

© А.И.Стогний,¹ О.Очилов,² К.М.Мукимов,²
В.В.Федотова,¹ М.Г.Халмуратов,² А.Х.Рамазанов²

¹Институт физики твердого тела и полупроводников АНБ
220726 Минск, Белоруссия

²Научно-исследовательский институт прикладной физики ТашГУ,
700095 Ташкент, Узбекистан
(Поступило в Редакцию 15 мая 1995 г.
В окончательной редакции 13 ноября 1995 г.)

Исследованы изменения в спектрах оптического поглощения и магнитного кругового дихроизма эпитаксиальных пленок железо-иттриевого граната в видимой области длин волн, вызванные облучением ионами кислорода в диапазоне энергии от 0.5 до 10 кэВ и доз облучения от 10^{18} до 10^{20} см⁻². Показано, что в оптимальных режимах облучения ионами кислорода с энергией от 1 до 2 кэВ и дозами $2 \cdot 10^{19} \dots 4 \cdot 10^{19}$ см⁻² наблюдается смещение спектральных зависимостей к значениям, характерным для монокристаллов, что обусловлено доминированием процессов распыления поверхности и совершенствования кристаллической структуры пленок по толщине над процессом формирования нарушенного облучением слоя.

Введение

Поиск и разработка методов улучшения свойств эпитаксиальных пленок феррит-гранатов, в том числе железо-иттриевого граната $Y_3Fe_5O_{12}$, занимает существенное место в развитии современной магнитооптики [1,2]. Это может осуществляться путем уменьшения в пленках таких источников дополнительного оптического поглощения (ОП), как примеси свинца технологического происхождения, несовершенства кристаллической структуры образцов и наличие катионов железа с валентностью, не равной трем. В работах [3,4] было показано, что при облучении поверхности пленок железо-иттриевого граната (ЖИГ) ионами кислорода с энергией $E \sim 1$ кэВ и с дозами $D > 5 \cdot 10^{18}$ см⁻² наблюдаются повышение однородности исходных пленок за счет распыления неоднородного поверхностного слоя, уменьшение концентрации

нетрехвалентных катионов железа вблизи поверхности и совершенствования кристаллической структуры по объему. В данной работе были исследованы изменения ОП и магнитного кругового дихроизма (МКД) в пленках ЖИГ при воздействии облучения ионами кислорода в диапазоне энергий $E = 0.5 \dots 10$ кэВ и с дозами $D = 10^{18} \dots 10^{20}$ см $^{-2}$. Особое внимание уделено участку спектра 500...700 нм, внутри которого находится максимум ($\lambda \sim 555.5$ нм), обусловленный присутствием свинца [1,5].

Методы исследований

В качестве объектов исследования использованы монокристаллические пленки ЖИГ толщиной от 6 до 12 мкм, выращенные методом жидкофазной эпитаксии и раствор-расплава PbO/B_2O_3 на подложках галлий-гадолиниевых гранатов ориентацией (111).

Процесс облучения проводился при использовании источника ионов с холодным полым катодом [6], обеспечивающего пучок положительных ионов кислорода с плотностью тока 0.4 мА/см 2 , содержанием $O_2^+/O^+ > 3$ и скомпенсированным по объемному заряду. Образцы помещались на водоохлаждаемом держателе на расстоянии 200 мм от источника ионов в области с рабочим давлением $8 \cdot 10^{-5}$ Тор и предельным вакуумом $\sim 10^{-6}$ Тор. Доза облучения задавалась временем облучения. Температура поверхности пленок при облучении контролировалась индиевым датчиком и составляла не более 150 °С.

Состояние поверхности и состав пленок до и после облучений анализировалось методами растровой электронной микроскопии (РЭМ), обратного резерфордского рассеяния (ОРР) и масс-спектро스코пии вторичных ионов (ВИМС).

Спектры ОП измерялись на автоматизированной спектральной установке, собранной на базе монохроматора МДР-23. Погрешность воспроизводимости спектров составляла не более 0.5%. Точность повышения лазера при измерении с использованием лазера. В этом случае луч лазера расщеплялся при помощи полупрозрачной пластины и регистрировался двумя фотодиодами, собранными по балансовой схеме. После разделения на пути одного из лучей устанавливался образец. Сигнал с выхода преобразователей ток-напряжение подавался на вольтметр В7-46, работающий в режиме измерителя отношения сигналов. Измерение спектров МКД производилось методом модуляции поляризованного света, описанного в работе [7].

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Для ряда пленок ЖИГ были проведены измерения коэффициента ОП k в интервале длин волн 500...1100 нм. При измерении использовались образцы, на поверхности которых отсутствовали механические повреждения, микронеровности рельефа поверхности составляли менее 100 нм и для которых был проведен анализ однородности состава по толщине. Тем не менее исходные образцы отличались друг от друга значениями k на определенной длине волны, причем для более толстых пленок наблюдалось увеличение k . Поэтому в дальнейшем исследования проводились только на образцах, которые по характеру спектров

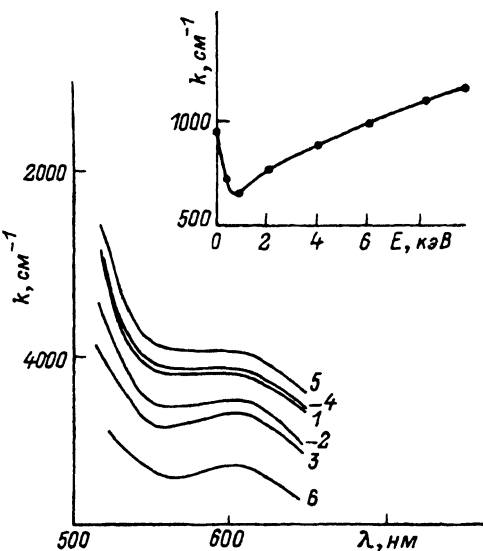


Рис. 1.

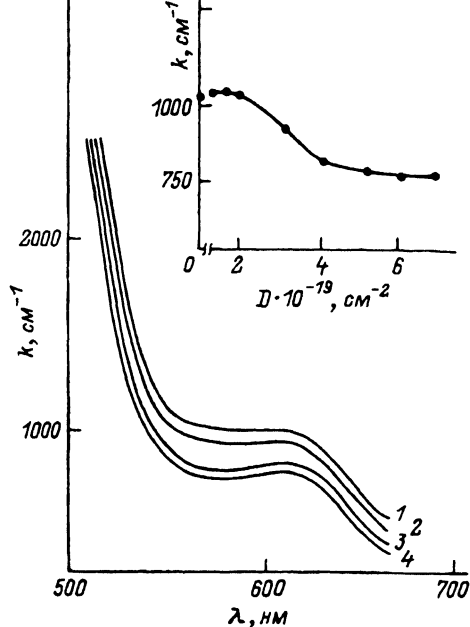


Рис. 2.

ОП и величине k были близки спектрам пленок ЖИГ, приведенных в [8], характеризующиеся минимальными отклонениями от спектров ОП монокристалла ЖИГ.

После облучений ионами с энергией в диапазоне $E = 0.5 \dots 10$ кэВ и дозами $D = 10^{18} \dots 10^{20}$ см $^{-2}$ было установлено, что наиболее существенные изменения в спектральных зависимостях ОП наблюдаются в области длин волн 500...650 нм. Причем облучение ионами с энергией $E = 0.5 \dots 4$ кэВ приводит к уменьшению величины k по мере набора дозы более $5 \cdot 10^{18}$ см $^{-2}$ и до значений $D \sim 2 \cdot 10^{19} \dots 4 \cdot 10^{19}$ см $^{-2}$. Дальнейшее увеличение дозы облучения оставляло уровень поглощения неизменным. Максимальное уменьшение величины k достигало 15% и наблюдалось при облучении пленок ионами кислорода с энергиями $E = 1 \dots 2$ кэВ, причем слабо зависело от толщины исходных образцов. По мере увеличения энергии ионов выше 4 кэВ при дозах менее 10^{19} см $^{-2}$ могли наблюдаться лишь незначительные уменьшения в ОП, а по достижении $D > 10^{19}$ см $^{-2}$ происходило увеличение k , но не более чем на 1...3%. Результаты исследований приведены на рис. 1, 2. На рис. 1 показаны спектры ОП в пленке исходной толщины 7.8 мкм до (кривая 1) и после облучений дозой $3 \cdot 10^{19}$ см $^{-2}$ ионами кислорода с энергиями 1 (кривая 2), 2 (кривая 3), 6 (кривая 4) и 10 кэВ (кривая 5). Кривая 6, соответствующая монокристаллу ЖИГ, приведена для сравнения и взята из [1]. Кривая на вставке рис. 1 характеризует зависимость k на длине волны 555.5 нм от энергии ионов при постоянной дозе облучения $3 \cdot 10^{19}$ см $^{-2}$ указанного образца.

На рис. 2 приведена зависимость ОП в пленке толщиной 11.6 мкм от длины волны при различных дозах облучения ионами кислорода с энергией 1 кэВ. Кривая 1 соответствует исходному образцу, кривые 2-4 — облученному с $D = 0.5 \cdot 10^{19}$, $1.5 \cdot 10^{19}$, $\geq 3 \cdot 10^{19}$ см $^{-2}$ соот-

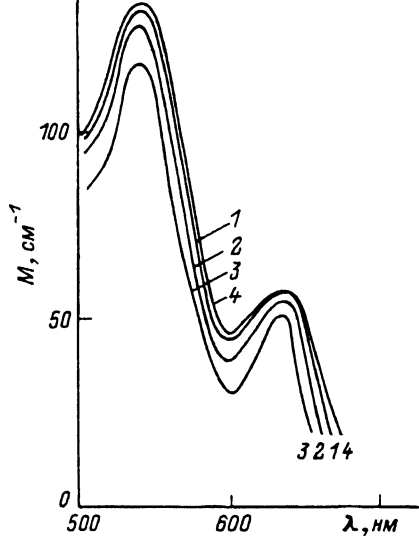


Рис. 3.

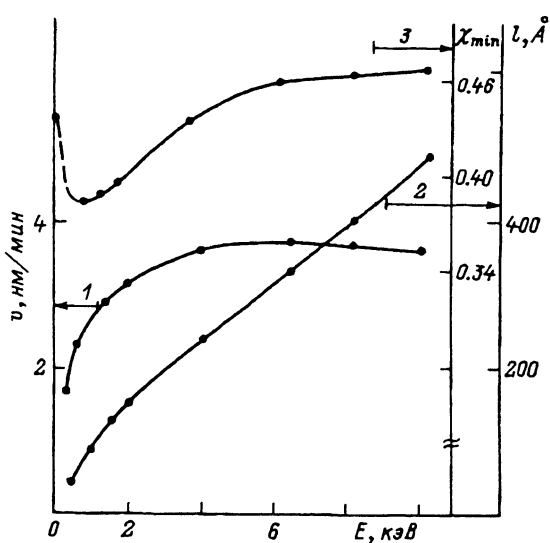


Рис. 4.

ответственно. На вставке рис. 2 показана кривая, характеризующая зависимость k от дозы облучения на длине волны 555.5 нм этого образца.

Анализ спектров МКД после облучений показал, что изменения МКД и ОП имеют идентичный характер. Абсолютное уменьшение величины МКД после облучений не превышало 8%, а ее увеличение с ростом энергии ионов было незначительным. На рис. 3 приведены спектральные зависимости МКД (M) в пленке толщиной 11.6 мкм до (кривая 1) и после облучений (D , кэВ: 2 — $2 \cdot 10^{19}$, 3 — $4 \cdot 10^{19}$, 4 — $2 \cdot 10^{19}$; E , кэВ: 2, 3 — 1, 4 — 6).

Для объяснения полученных экспериментальных результатов был проведен анализ состояния образцов до и после облучений. Анализ показал, что в исходном состоянии пленки характеризуются довольно совершенной кристаллической структурой. Химический состав пленок толщиной от 6 до 12 мкм может быть описан формулой $Y_{3-x}Pb_xFe_5O_{12}$ (где $x \leq 0.1$), за исключением поверхностного слоя толщиной от 0.12 до 0.15 мкм. В этом слое средняя концентрация технологических примесей свинца больше, чем в объеме в 3–5 раз. В составе пленок фиксируется также наличие примесей платины, концентрация которой в общем в несколько раз меньше, чем примесей свинца, однако в поверхностном слое содержание платины возрастает почти на порядок по сравнению с объемным и становится сравнимым с количеством свинца в этом слое. Наблюдаются некоторые изменения в распределении по толщине и основных элементов, но кристаллическая структура сохраняется вплоть до поверхности, где находится структурно нарушенный слой толщиной менее 0.01 мкм.

Процесс облучения сопровождался распылением поверхности, образованием структурно нарушенного облучением слоя толщиной l , содержащего внедрившиеся ионы кислорода, и повышением степени совершенства кристаллической структуры пленки в объеме, характеризуемому уменьшением параметра χ_{\min} . Параметр χ_{\min} , величина которого пропорциональна количеству деканализованных на дефектах кристаллической структуры ионов H^+ , определялся по общепринятой

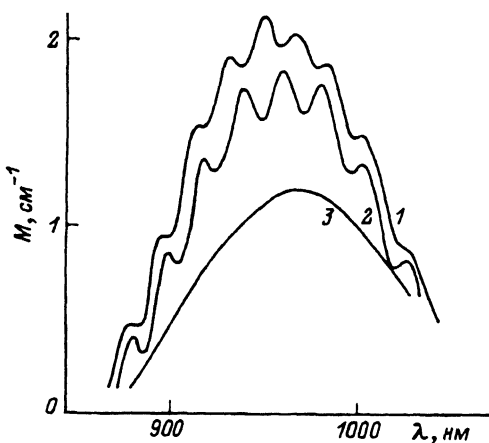


Рис. 5.

методике [9] на глубине 1.2 мкм от поверхности по спектрам ОРР. Скорость распыления v определялась по изменению толщины пленок после облучений на РЭМ фото при увеличении 20 000 крат. Толщина l находилась из спектров ОРР ионов H^+ с энергией 2.3 МэВ согласно выражению $l = n/N$, где n — поверхностная плотность смещенных из узлов кристаллической решетки атомов, N — их объемная концентрация. Механизм воздействия низкотемпературного облучения на кристаллическую структуру объема пленки до конца не ясен.

На рис. 4 показана зависимость скорости распыления v от энергии ионов кислорода E (кривая 1). Измерения показали, что после 10–20 мин с начала облучения при определенной энергии скорость v с точностью до 0.1 имела постоянное значение, т.е. зависела от дозы D . Кривая 2 на рис. 4 характеризует зависимость толщины нарушенного облучением слоя l от энергии ионов при дозе облучения $D = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, а кривая 3 — соответственно параметра χ_{\min} .

На основании приведенных зависимостей уменьшение ОП и МКД при воздействии низкоэнергетичных ионов кислорода может быть объяснено распылением исходного поверхностного слоя ростового происхождения, обогащенного техническими примесями свинца и платины, и улучшением исходной кристаллической структуры в объеме при облучении дозами $D > 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ионов с энергией от 0.5 до 2 кэВ. При энергии ионов $E \geq 5$ кэВ улучшения кристаллической структуры не наблюдалось, а толщина облученного слоя достигала десятков нанометров. Известно, что ОП в облученном слое может значительно скомпенсировано процессом распыления этого структурно нарушенного слоя. Более слабая в отличие от ОП зависимость МКД от параметров облучения в области длин волн 500...600 нм скорее всего связана с его природой, обусловленной разностью в поглощении лево- и правополяризованного света, и, следовательно, с меньшей чувствительностью к нарушениям на поверхности и вблизи ее, если исходить из независимости процессов рассеяния света на дефектах структуры, вызванных большедозовым облучением, от его поляризации.

Подтверждением последнего являются спектры МКД (рис. 5), снятые в интервале длин волн 850...1100 нм для пленки ЖИГ толщиной 11.6 мкм до (кривая 1) и после облучения ионами кислорода до

зой $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ с энергией 2 кэВ (кривая 2). Кривая 3 была получена для сравнения на монокристалле ЖИГ. Согласно рис. 5 уменьшение величины МКД после облучения достигает 30%, а сам спектр смещается к спектру монокристалла. Поэтому, сравнивая рис. 3 и 5, можно сделать вывод, что изменения в спектре МКД определяются скорее различиями в изменении локальных напряжений в тетра- и октаподрешетках железа, вызванных объемным воздействием облучения [9], чем процессами распыления и формирования облученного слоя, так как формирование спектров поглощения в более длинноволновой области (850...1100 нм) происходит в результате переходов в октаэдрических комплексах, а в коротковолновой (500...700 нм) — в тетраэдрических комплексах [2].

Этот вывод согласуется с полученными ранее результатами по объемному воздействию низкотемпературного облучения ионами кислорода на кристаллическую структуру пленок ЖИГ [10], где было показано методами мессбауэровской спектроскопии, что облученные образцы имели более совершенную магнитокристаллическую структуру, чем исходные. При этом, согласно мессбауэровским спектрам облученных пленок, величина квадрупольного расщепления для атомов железа, находящихся в октапозициях, уменьшалась на большую величину, чем находящихся в тетрапозициях для пленок, в которых в исходном состоянии примесное содержание свинца не превышало 0.1 формульной единицы. Последнее свидетельствует о более существенном уменьшении локальных напряжений, связанных с ионами железа, находящимися в октаэдрической подрешетке железа, в результате облучений.

Таким образом, облучение пленок ЖИГ ионами кислорода в режимах $D > 10^{19} \text{ см}^{-2}$ и $E = 0.5 \dots 2 \text{ кэВ}$ может служить средством улучшения оптических и магнитооптических свойств, так как позволяет уменьшить количество примесей свинца технологического происхождения вблизи поверхности путем распыления поверхностного слоя ростового происхождения и способствует улучшению исходной кристаллической структуры в объеме образцов.

Список литературы

- [1] Рандошкин В.В., Червонокис А.Я. Прикладная магнитооптика. М.: Энергоатом, 1990. 320 с.
- [2] Звездин А.К., Котов В.А. Магнитооптика тонких пленок. М.: Наука, 1988. 240 с.
- [3] Гесь А.П., Демченко А.И., Стогний А.И. и др. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 1. С. 47–51.
- [4] Стогний А.И., Федотова В.В., Гесь А.П. и др. // ЖТФ. 1991. Т. 63. Вып. 2. С. 175–181.
- [5] Очилов О., Писарев Р.В. ФТТ. 1980. Т. 22. С. 2504–2506.
- [6] Стогний А.И., Токарев В.В. ПТЭ. 1990. № 3. С. 142–144.
- [7] Valiev U. V., Klochkov A. A., Sizoky P. Czechoslovak J. Phys. Vol. B38. N 6. P 697–698.
- [8] Агеев А.Н., Малыш Н.В., Руткин О.Г., Шер Е.С. ЖТФ. 1983. Т. 53. Вып. 11. С. 2249–2252.
- [9] Feldman L. C., Mayer J. W.. Fundamentals of Surface and Thin Films Analysis. North-Holland, 1986. 342 p.
- [10] Стогний А.И., Федотова В.В., Гесь А.П. Всесоюзная школа-семинар “Новые магнитные материалы для микроэлектроники”. Тез. докл. Ч. 2. Астрахань, 1992. С. 47–48.