

УДК 538.911

В.Г. Кириченко, О.В. Коваленко

Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина

61108, Харьков, пр. Курчатова, 31

e-mail: kirichenko@pht.univer.kharkov.ua

ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ФЕРРОГРАНАТОВ

Представлены результаты исследования процессов формирования пленок железо-иттриевого граната ионно-лучевым распылением на подложки галлий - гадолиниевого граната. В результате осаждения по данным мессбауэровской спектроскопии конверсионных электронов образуются аморфные парамагнитные пленки. Анализ пленок по данным спектрометрии резерфордовского обратного рассеяния приводит к выводу о переменном элементном составе пленок ЖИГ.

Ключевые слова: железо-иттриевый гранат, мессбауэровская спектроскопия, парамагнитные пленки.

Введение

В качестве материалов в устройствах на цилиндрических магнитных доменах используются монокристаллические ферриты - гранаты. Метод ионно-лучевой технологии широко применяется для получения тонких пленок железо-иттриевых гранатов [1-3]. Формирование пленок при участии частиц с высокими энергиями (на три-четыре порядка выше энергии частиц, участвующих в термических процессах осаждения) позволяет выращивать монокристаллические пленки ферритов с наноразмерными структурами, малыми переходными слоями, расширенными границами катионных замещений составов гранатов, расширенными границами несоответствия параметров решеток подложки и пленки. Но после синтеза пленки ЖИГ могут оказаться в аморфном состоянии [4-6]. При этом неизбежны диффузионные процессы, как в аморфной пленке, так и в аморфном слое подложки, которые могут привести к увеличению толщины переходного слоя, к существенной неоднородности химического и фазового состава пленки. Поэтому требуется поиск оптимального режима отжига, стимулирующего кристаллизацию и формирование требуемого структурно-фазового и магнитного состояния материала пленки для последующего ее использования в изделиях микроэлектро-

ники.

Целью данной работы являлось применение ядерно-физических методов для анализа и контроля структурно-фазового состояния, элементного и фазового состава нанометрических пленок железо-иттриевых гранатов после их синтеза методом ионно-лучевого осаждения и последующего термического отжига.

Эксперимент

Пленки ЖИГ наносили методом ионно-лучевого распыления (ИЛР) мишени, обогащенной до 25% изотопом ^{57}Fe , на подложки ГГГ ориентации (111). Метод ИЛР осуществляли путем формирования пучка ионов аргона с плотностью тока до 10 mA/cm^2 и энергией 1-3 кэВ в вакуумной камере и направления пучка на мишень распыляемого материала. Перед нанесением пленки ЖИГ на пластины ГГГ проводилась ионно-термическая обработка (ИТО) подложек, заключающаяся в облучении подложки ионами кислорода. Химический состав объема пластин ГГГ определялся с помощью нейтронно-активационного анализа с использованием нейтронного генератора НГ-150М. Структурное совершенство поверхностного слоя подложек ГГГ исследовали как с помощью двухкристального спектрометра по методу Берга-Баррота, так и рентгенографи-

ческого анализа. В первом случае использовался спектрометр ДТС-1, во

втором - дифрактометр ДРОН-3М.

Таблица 1

Сравнение используемых в работе методов

МЕТОД	Глубина анализируемого слоя	Информация
СРОР	3 мкм	Элементный состав слоя Селективность по глубине
МСКЭ	0,3 мкм	Фазовый состав и магнитное состояние железосодержащих материалов. Селективность по глубине
Двухкристальная рентгеноспектрометрия по методу Берга- Баррета,	0,1-1мкм	Структурное совершенство. Относительное содержание кристаллических и аморфных фаз
Рентгенографический анализ	До 3 мкм	Фазовый анализ
Нейтронно-активационный анализ	До 1 см	Элементный состав подложки

Результаты и их обсуждение

Элементный анализ приповерхностных слоев пленок ЖИГ производили с использованием спектрометрии резерфордского обратного рассеяния (СРОР). Использовали пучки протонов ($E=1$ МэВ) или α -частиц ($E=2,2$ МэВ), ускоренных с помощью электростатического генератора Ван-дер-Граафа. Энергетическое разрешение спектрометра не хуже 20 КэВ. Глубина анализируемого слоя составляла до 3 мкм. Имплантацию ионов H^+ проводили с энергией $E=1,5$ МэВ и флюенсом 10^{17} см^{-2} .

Фазовый состав поверхностных слоев тонких пленок ЖИГ определяли с помощью мессбауэровской спектроскопии на ядрах ^{57}Fe в геометрии обратного рассеяния при регистрации электронов внутренней конверсии. Образец и источник γ -квантов ^{57}Co в Сг находились при комнатной температуре. Для послойного анализа фазового состава пленок ЖИГ с

помощью МСКЭ использовали детектор конверсионных электронов, позволяющий регистрировать селективные по углу падения γ -квантов спектры МСКЭ в диапазоне углов падения $5-90^\circ$. Глубина анализируемого с помощью МСКЭ слоя составляла до 0,3 мкм.

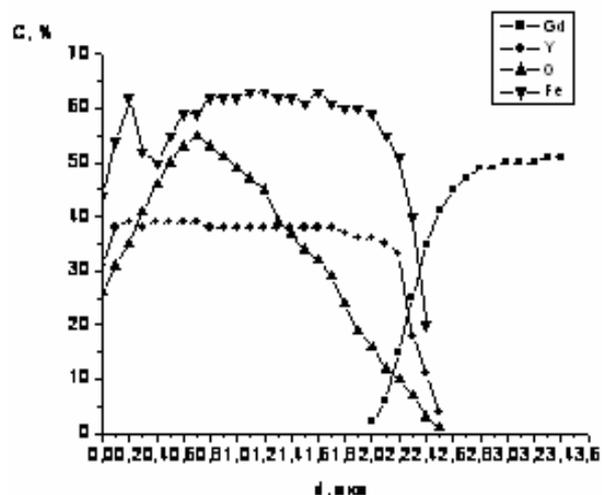


Рис. 1. Распределение компонент (мас.%) подложки и пленки ЖИГ.

Характеристика используемых методов анализа тонких пленок феррит-гранатов приведена в таблице 1.

Элементный состав пленок ЖИГ по данным СРОР неоднороден по толщине пленок (рис. 1). Концентрация кислорода понижена в верхнем поверхностном слое, глубиной до 0,5 мкм (рис. 1-3). Практически во всех случаях в верхних поверхностных слоях (до 0,2-0,4 мкм) понижена концентрация железа и иттрия. Концентрация компонент стабилизируется в диапазоне толщин пленок 0,5-2,0 мкм. На границе с подложкой концентрация кислорода, железа, иттрия уменьшается.

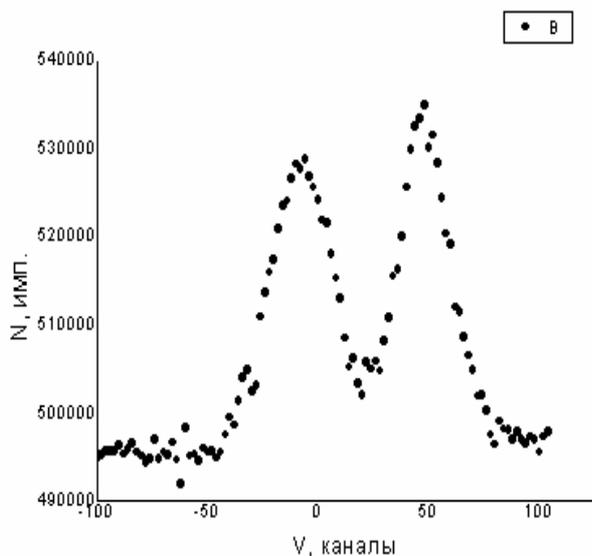


Рис. 2. МСКЭ спектр рассеяния пленки ЖИГ после осаждения.

По мессбауэровским данным пленки ферритов-гранатов, полученные различными способами напыления, сразу после приготовления находятся в парамагнитном состоянии. Спектры МСКЭ представлены уширенными дублетами, с несколько отличающимися параметрами дублета для различных образцов (рис. 2).

Термический отжиг полученных пленок ЖИГ в диапазоне 970 – 1070 К приводит к кристаллизации аморфных слоев и переходу ЖИГ в магнито-

упорядоченное состояние, при этом пленки являются поликристаллическими (рис. 3).

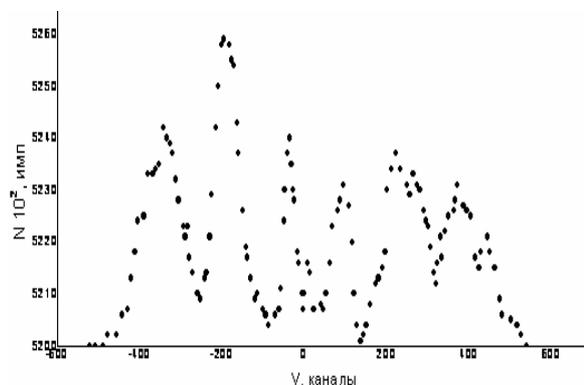


Рис. 3. МСКЭ спектр рассеяния магнитоупорядоченной пленки ЖИГ после отжига при 970 К.

Процесс кристаллизации сопровождается газовой выделением, приводящим к образованию пор. Другой причиной ослабления интенсивности ЖИГ является появление на поверхности ЖИГ гадолиния (по данным СРОР). Согласно литературным данным кристаллизация аморфных пленок ЖИГ происходит уже при $T = 970$ К [7, 8]. Так, мелкодисперсные аморфные частицы ЖИГ размером 200 \AA , полученные химическим соль-гельным методом при нагреве переходили в кристаллическое состояние в интервале температур 920 – 970 К. В пленках ЖИГ, полученных плазменным распылением, аморфная фаза исчезала после отжига при 1470 К в течение 24 ч. Уширенный дублетный спектр состоит из дублетов, соответствующих Fe^{2+} и Fe^{3+} (в тетра - и октаэдрических положениях). Узлы с ионами Fe^{2+} появляется из-за дефицита кислорода, а также наличия четырехвалентных катионов примеси. Можно предположить, что имеется вклад в процессы распыления в виде кластеров. Эти кластеры размером несколько нанометров могут образовываться при рекомбинации испущенных поверхностью ионов. Кластеры объединяют $\approx 20\%$ атомов общего потока [9].

Выводы

Таким образом, в результате исследования с применением ядерно-физических методов анализа тонкопленочных структур, в частности, нанометрических пленок железо-иттриевых гранатов после их синтеза методом ионно-лучевого осаждения, была обнаружена структурно-композиционная неоднородность аморфных парамагнитных пленок на монокристаллических подложках ГГГ. Аморфные пленки феррит-гранатов, трансформируются в кристаллические магнитоупорядоченные слои при отжиге выше 900 К. Послойный анализ пленок по данным МСКЭ приводит к выводу о сегрегации железа в

поверхностном слое и переменном фазовом составе аморфных пленок ЖИГ.

Также, элементный состав пленок ЖИГ по данным СРОР неоднороден по их толщине. Кроме того, на поверхность пленок ЖИГ при формировании диффундирует гадолиний. При анализе отожженных пленок ЖИГ обнаружена сегрегация железа и иттрия в приповерхностном слое на глубину около 500 Å. Максимум содержания железа и иттрия на этой глубине по данным СРОР удовлетворительно коррелирует с результатами селективной по глубине пленок методике МСКЭ. Такая неоднородность фазового состава пленок может сказаться на их магнитооптических параметрах.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рандошкин В.В., Червоненкис А.Д. / Прикладная магнитооптика. - М.: Энергоатомиздат. - 1990. - 320 с.
2. Левый С.В., Мачнев А.М., Агалиди Ю.С., Магера В.Н., Турбин Д.А. / Применение магнитооптического преобразователя для восстановления сигнала по неформатным записям // Радиоэлектроника.-2000, №5.-С. 62-66.
3. Получение тонких ферритовых пленок методом ионно-лучевого распыления / Г.Ф. Ивановский, Н.А. Козырева, В.П. Савельев и др. //Электронная промышленность. - 1986. - Вып.4(152). - С. 12-17.
4. Свойства аморфной и кристаллической фаз железоиттриевого граната, полученного методом плазменного напыления / Т.В. Дмитриева, И.С. Желудов, И.С. Любутин и др. // Поверхность, физ., химия, мех. - 1986. - №6 - С. 146-149.
5. Юрченко С.Е., Балдохин Ю.В., Федичкин Г.М. / Исследование структуры и сверхтонких магнитных взаимодействий в имплантированных феррит – гранатовых пленках // Acta Physica Polonica. - 1985. - №2. - Vol. A69. - P. 317 – 321.
6. Yaraaga M., Miyozaki Y. RF-sputtering crystall growth and spectroscopy of Nd doped $Y_3Ga_5O_{12}$ thin film waveguide on $Y_3Al_5O_{12}$ substrate for optical amplifier // Jap. Journ. Appl. Phys.-1984, Vol. 23, N 3. - P. 312-316.
7. Krumme J.P., Doorman V., Eckart R. Bismuth substituted iron garnet films prepared by RF-diode sputtering // IEEE Trans. - 1984. Vol. MAG-30, № 5, Pt 1. - P. 983-985.
8. Preparation of stoichiometric YIG films by sputtering ferrites / K.Yshii, Y.Hoshi, M.Naoe, S.Yamanaka // Proc. Internal. Conf. Kyoto, 1980. - P. 831-834.
9. Schultes N., Schieder H., Litterst J., Kalvius G.M. Structural properties of sputter deposited iron-garnet from Mossbauer spectroscopy // Nucl. hstr. Meth. - 1982, Vol. 199, №1 – 2. - P. 343 – 346.

Стаття надійшла до редакції 27.05.2011

V.G. Kirichenko, O.V. Kovalenko
Kharkov National University, High Technology Institute
31 Kurchatov Str., Kharkov, 61108, Ukraine
e-mail: kirichenko@pht.univer.kharkov.ua

NUCLEAR-PHYSICAL ANALYSIS OF GARNET

In this article there are presented the results of study of yttrium – iron garnet (YIG) films formation processes by means of ion-beam deposition on gadolinium gallium garnet substrate. According to the data of conversion electrons Mossbauer spectroscopy the amorphous paramagnetic films are formed on substrate surface. According to the data of Rutherford backscattering spectrometry the films layer-by-layer analysis leads us to the conclusion about variable elemental composition of YIG films.

Key words: yttrium – iron garnet, Mossbauer spectroscopy, composition of YIG films.

В.Г. Кириченко, О.В. Коваленко
Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
61108, Харків, пр. Курчатова, 31
e-mail: kirichenko@pht.univer.kharkov.ua

ЯДЕРНО-ФІЗИЧНИЙ АНАЛІЗ ФЕРРОГРАНАТІВ

Представлені результати дослідження процесів формування плівок залізо-ітрієвого граната іонно-променевим розпиленням на підкладці галій-гадолінієвого граната. В результаті осадження за даними месбауерівської спектроскопії конверсійних електронів утворюються аморфні парамагнітні плівки. Аналіз плівок за даними спектрометрії резерфордівського зворотного розсіювання приводить до висновку про змінний елементний склад плівок ЗІГ.

Ключові слова: залізо-ітрієвий гранат, месбауерівська спектроскопія, парамагнітні плівки.