PACS 85.70-GE

Б.К. Остафійчук, І.М. Будзуляк, Я.Т. Соловко

Вплив лазерного опромінення на структуру Ві-заміщених плівок ферит-гранатів

Прикарпатський університет ім. Василя Стефаника, вул. Шевченка, 57, Івано-Франківськ, 76000, Україна

Методами двокристальної дифрактометрії досліджено вплив імпульсного лазерного опромінення на структуру Ві-заміщених ферит-гранатових плівок вирощених на підкладці галій-гадолінієвого гранату. Показано, що структурні зміни в цих плівках залежать не тільки від густини енергії в імпульсі, а й від способу опромінення, тобто застосування дво- і трикратного опромінення тими ж енергіями.

Ключові слова: ферит-гранатові плівки, двокристальна дифрактометрія, лазерне опромінення, ефект Фарадея.

Стаття поступила до редакції 27.05.2003; прийнята до друку 15.06.2003.

Епітаксійні плівки ферогранатів $(E\Pi\Phi\Gamma)$ складають широкий спектр магнітних середовищ, які інтенсивно розробляються та досліджуються для найрізноманітніших застосувань у пристроях запису й обробки інформації та прикладної магнітооптики. Незважаючи всестороннє на дослідження властивостей цього класу матеріалів, специфічні вимоги до сенсорних пристроїв потребують як розвитку уявлень про процеси перемагнічування і пов'язані з ними фізичні явища, так і створення нового класу ЕПФГ, які відрізняються від широко відомих ферогранатів властивостями магнітної анізотропії, зокрема, володіють напрямком спонтанної намагніченості, близької до площини плівки. У свою чергу, розробка нових матеріалів потребує визначення необхідної для цього сукупності властивостей i відповідно встановлення ïx оптимального хімічного складу та можливості ціленаправленої модифікації фізичних характеристик. Однією із можливостей такого впливу використання потужного лазерного € випромінювання, зокрема випромінювання в області прозорості для даних матеріалів, яке поглинається лише на недосконалостях структури, що в свою чергу дозволяє підібрати такі умови і режими лазерного опромінення при яких вплив недосконалостей на характеристики вказані структур буде мінімальним [1 - 5].

В даній роботі проведено експериментальне дослідження фізичних закономірностей модифікації Ві-заміщених (ЕПФГ) в процесі імпульсного лазерного опромінення, встановлення змін структури в напрямі паралельному і перпендикулярному до площини плівки, змін, що відбулися в дефектній підсистемі, а також перехідному шарі між плівкою і підкладкою.

Процеси, які відбуваються в структурі плівки під дією імпульсного лазерного опромінення представляють безсумнівний інтерес, оскільки вони можуть істотно впливати на характеристики різноманітних пристроїв магнітооптики [6, 7]. Одним із методів за допомогою якого можна вивчати дані зміни є метод високороздільної рентгенівської дифрактометрії [8, 9].

Дослідженню піддавалися Ві-заміщені плівки товщиною 0,5 мкм такого хімічного склалу $(Y_{0.073}Sm_{0.027}Ca_{0.210}Bi_{0.690})_3(Fe_{0.874}Ge_{0.017}Si_{0.109})_5O_{12}, \text{ otmession}$ римані методом Чохральського. В якості розчинника застосовували $PbO-Bi_2O_3-B_2O_3$, який хараквисокою теризується незначною в'язкістю i здатністю до переохолодження, що забезпечує добру відтворюваність і якість поверхні вирощених плівок. Підкладки виготовлялися із монокристалічних галійгадолінієвих гранатів (Gd₃Ga₅O₁₂) з орієнтацією (111).У відібраних зразках наявні блоки когерентності і дислокації невідповідності [10].

Вміст Ві³⁺ приводить до значного зростання фарадеївського повертання площини поляризації. Завдяки ефектам перекачки електронних оболонок $2p(O^{2-})-6p(Bi^{3+})$ і віртуального переносу заряду іона O^{2-} на незаповнену бр-оболонку іона вісмуту хвильова функція 2р-елетронів іону O^{2-} , що близька до іону Ві³⁺ одержує в додаток його бр-стани [11, 12]. Вплив іонів Ві³⁺ на фарадеївське повертання площини поляризації істотним чином пов'язане з кисневими 2р-станами в комплексах (FeO₆)⁹⁻, (FeO₄)⁵⁻ основних магнітооптичних активних центрів феритгранатів. Параметри цієї ефективної взаємодії

Таблиця 1.

Зразок	W, Дж/см ²	⊖ _{F,} град/мкм	$\Delta \Theta_{ m F,}$ град/мкм	H _u , E	ΔH _u , E
Вих. №1 №2 №3 №4	0 10 17 24 34	1,18 0,94 1,02 1,08 1,06	±0,06	220 231 226 226 228	±9

Зміна магнітних характеристик опромінених зразків

Примітка. W – густина енергії лазерного імпульсу; Θ_F – питоме фарадеївське повертання площини поляризації, H_u – поле насичення.

залежать від геометрії зв'язку Fe³⁺-O²⁻-Bi³⁺. Вііндукований вклад особливо помітний в тому випадку, коли 3d-вклад відсутній.

Для опромінення зразків використовувався імпульсний неодимовий лазер (т_і=2мс, λ =1,06мкм). Густина енергії в імпульсі при опроміненні змінювалася в інтервалі Е=10-70Дж/см². Дослідження зразків проводилось методом високороздільної дифрактометрії в геометрії Брегга. Для рентгенодифрактометричних досліджень застосовувався двокристальний метод по схемі (n,-n) [9]. В якості монохроматора був використаний галійгадолінієвий гранат з орієнтацією (111). Параметр сталої гратки визначився за допомогою методу Бонда. Використовувалися 444 і 888-відбивання в симетричній геометрії Брегга для $CuK_{\alpha 1}$ випромінювання. Отримані криві качання за схемами ω-сканування, θ-сканування (ω-сканування з вузькою щілиною), 0/20-сканування. Вказані схеми дозволяють досліджувати ефекти розмиття вузлів оберненої гратки в напрямі паралельному і перпендикулярному до дифракційного вектора. Інтегральні інтенсивності та півширини кривих качання знімалися і аналізувалися як до так і після лазерного опромінення.

Аналіз розподілу інтенсивності розсіяння паралельно і перпендикулярно напрямку дифракції проводили за методикою описаною в роботі [13]. На кривих качання знятих за схемою θ- і θ/2θсканування спостерігалися мінімуми, які відповідають відбиттю рентгенівських променів ділянками, що розташовані на глибині

$$\begin{aligned} \mathbf{x}_{\min} &= \frac{\ln \left(1 + \frac{\mathbf{I}_2}{\mathbf{I}_1}\right)}{\mu \psi (\vec{\chi}, \vec{n})}, \text{ де} \\ \psi (\vec{\chi}, \vec{n}) &= \frac{\frac{\lambda}{\mathbf{d}_{hkl}} (\vec{\chi} \vec{n})}{\left(\frac{\lambda}{2\mathbf{d}_{hkl}}\right)^2 + \left(\vec{\chi} \vec{n}\right)^2 - 1}, \end{aligned}$$

а I₂ і I₁ - інтегральні інтенсивності ділянок розподілу, розташованих відповідно зі сторони більших та менших кутів від точки з мінімальною інтенсивністю; μ - лінійний коефіцієнт поглинання рентгенівських променів в зразку, λ - довжина хвилі CuK_{α 1}, d_{hkl} — міжплощинна відстань, п і $\vec{\chi}$ — одиничний вектор нормалі і одиничний до дифракційного.

Дослідження магнітних властивостей проводилося магнітооптичним гістеріографом. Питоме фарадеївське повертання площини поляризації вимірювалося компенсаційним методом.

При опроміненні зразків лазерними імпульсами з густиною енергії в межах 10-35 Дж/см² зміна сталої гратки і уширення рентгенівських ліній при оскануванні не перевищувала межі похибок ($\Delta a=\pm 0,0005$ Å і $\Delta \beta=\pm 0,05\cdot 10^{-4}$ рад). При дослідженні магнітних властивостей, таких як намагніченість насичення, питоме фарадеївське повертання площини поляризації, суттєвих змін також не виявлено. Експериментальні дані подані в таблиці 1.

Отже, дані густини енергій не є достатніми для суттєвих змін структури і магнітних властивостей у вихідних зразках. Збільшення густини енергії випромінювання до 40-70 Дж/см² та використання дво- і трикратного опромінення однією і тією ж енергією приводить до видимих змін кривих качання в порівнянні з вихідними зразками (рис. 1 - рис. 2), що свідчить про наявність змін в їх структурі.

Із аналізу двокристальних θ і $\theta/2\theta$ -кривих слідує, що в зразку є присутні градієнти міжплощинної відстані вздовж нормалі до поверхні і розорієнтація блоків.

Зміни кривих відбивання знятих за схемою 0/20 для різних умов опромінення в напрямі (444) подані на рис. 2. Як видно із рисунку, відбувається зміна градієнту міжплощинної відстані вздовж нормалі до поверхні. Крім того, змінюється відстань вздовж нормалі до поверхні між ділянками, що відбивають рентгенівські промені. Розрахунки х_{тіп} між цими ділянками відповідно для плівки і підкладки подані в таблиці 2.

Для визначення зміни напруг в досліджуваних зразках було обчислено відносні зміни інтегральних півширин дифракційних кривих. Експериментальні дані для опромінених зразків імпульсами з густиною енергій 40-70 Дж/см² подані в таблиці 3 і 4.

При порівнянні даних таблиць 2 і 3 видно суттєві зміни вздовж нормалі до площини плівки. Зменшення інтегральних півширин, а й відповідно



Рис. 1. Двокристальні криві качання вихідного зразка для напряму (444) (тут *пл.* – відбивання від плівки, *пд.*- відбивання від підкладки.

Рис. 2. Криві качання ($\theta/2\theta$ -скан.) для зразків опромінених різними енергіями в напрямі (444): а) 45 Дж/см²; б) двократне опромінення по 45 Дж/см²; в) двократне опромінення по 60 Дж/см².

Таблиця 2.

Зміна градієнту міжплощинної відстані вздовж нормалі в залежності від густини енергії

	-		
Зразки	x _{min} , м×10 ⁻⁷ (пл.)	x _{min} ,м×10 ⁻⁷ (пд.)	W, Дж/см ²
Вих.	0,5	0,9	0
№ 1	2,4	2,6	45
Nº2	4,6	4,0	2×45
N <u></u> 23	2,3	2,5	60
Nº4	3,8	3,3	2×60
№ 5	2,5	3,0	3×60

опромінення

Таблиця 3.

Відносні зміни інтегральних півширин кривих дифракції (ω-, θ- і θ/2θ-сканування) в порівнянні із вихідним зразком.

		(444),		(444),		(444),			
Зразки	W,	ω-скан.		θ-скан .		0 /2 0- скан.			
	Дж/см ²	Дж/см ² пл.	пд.	пл.		ПЛ.		пд.	
				(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)
Вих.	0	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Nº1	45	1,11	1,16	1,09	1,49	1,10	1,29	1,14	1,00
N <u>⁰</u> 2	2×45	0,93	0,79	1,28	1,05	0,99	1,16	0,93	0,80
N <u></u> 23	60	0,66	0,66	1,12	0,98	0,93	0,93	0,80	0,75
Nº4	2×60	0,48	0,48	1,07	0,59	0,88	0,75	0,61	0,56
№ 5	3×60	0,59	0,59	1,14	0,93	1,06	1,03	0,98	0,86
Похибка		$\pm 0,05$							

мікронапруг в плівці пов'язане із зменшенням товщини перехідного шару між плівкою і підкладкою. Зміни в площині плівки (як видно із даних при θ -скануванні) пов'язані, ймовірно, із зменшенням кута розорієнтації між блоками когерентності і радіусу кривизни плівки. Експериментальне підтвердження цьому є зростання майже в два рази інтенсивності відбитого випромінювання для зразка двократно опроміненого густиною енергії 60 Дж/см² в порівнянні із неопроміненим зразком.

Зростання інтегральної півширини для зразка опроміненого густиною енергії 45 Дж/см², може бути пов'язане із розпадом складного дефекту і

недостатнього часу імпульсу для відпалу вторинних компонент [1]. Тому вже при двократному опроміненні тією ж густиною енергії спостерігається зменшення інтегральної півширини кривих качання.

Зміни сталої гратки для перших чотирьох відпалених зразків не виявлено (табл. 4). При опромінені трьома імпульсами енергією 60 Дж/см² спостерігається зростання сталої гратки плівки на 0,0009Å. Збільшення сталої гратки характеризується зменшенням числа вакансій. Практично у всіх досліджуваних зразках спостерігається зменшення інтегральної півширини кривих відбивання в порівнянні із вихідним зразком. Уширення лінії при трикратному опроміненні обумовлене,

Таблиця 4.

Зразки	W,	Δa_{pl} ,	Δa_{pd} ,	$\Delta \alpha_1$,	Δα ₂ ,
	Дж/см ²	Å	Å	град	град
Вих.	0	0	0	0,013	0,013
Nº1	45	0	0	0,009	0,010
<u>№</u> 2	2×45	0	0	0,005	0,005
<u>№</u> 3	60	0	0	0,004	0,005
Nº4	2×60	0	0	0,004	0,003
№ 5	3×60	0.0009	0	0,007	0,007
Похибка		±0,0005		±0,001	

Зміни сталих ґраток плівки і підкладки, а також кутів між піками 1 і 2.

Примітка. Δα₁ і Δα₂ – це є зміни кутів між піками 1 і 2 відповідно для плівки і підкладки. Зміни сталих граток раховані відносно других піків (2). найімовірніше, створенням і накопиченням радіаційних дефектів, при вказаних густинах енергії в імпульсі.

При опроміненні зразків енергіями більшими за 70 Дж/см² спостерігалося їх руйнування. Однією з проблем, яку важко врахувати при багатократному опроміненні є зміна товщини перехідного шару, а також різний коефіцієнт поглинання цим шаром, що приводить до виділення різної кількості теплоти при такому опроміненні.

Таким чином, в даній роботі показано, що структурні зміни у Ві-заміщених ЕПФГ залежать не тільки від густини енергії в імпульсі, а й від способу опромінення, тобто застосування дво- і трикратного опромінення тими ж енергіями. Встановлено, що оптимальним режимом лазерної обробки досліджуваних плівок є двократне опромінення при густині енергії в імпульсі від 40 до 60 Дж/см².

Остафійчук Б.К. – доктор фізико-математичних наук, професор, завідувач кафедри матеріалознавства і новітніх технологій, проректор з наукової роботи; Будзуляк І.М. – кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник;

Соловко Я.Т. – аспірант кафедри матеріалознавства і новітніх технологій.

- [1] Ф.Х. Мирзоев, В.Я. Панченко, Л.А. Шелепин. Лазерное управление процессами в твердом теле // УФН, **166**(1), сс.3-32(1996).
- [2] И.Б. Хайбулин, Л.С. Смирнов. Импульсный отжиг полупроводников. Состояние и нерешенные вопросы // ФТП, 19(4), сс.569-581(1985).
- [3] В.П. Воронков, Г.А. Гурченок. Диффузия примеси в полупроводниках при импульсном лазерном отжиге // ФТП, 24(10), сс.1831-1835(1990).
- [4] А.В. Двуреченский, Г.А. Качурин, Е.В. Нидоев, Л.С. Смирнов. Импульсный отжиг полупроводниковых материалов. Наука, М. 208с. (1982).
- [5] И.Л. Шульпина, В.В. Ратников, О.В. Матвеев. Рентгенодифракционное исследование изменения реальной структуры монокристаллов CdTe в результате лазерного облучения // ФТТ, **43**(3), cc.559-563(2001).
- [6] В.В. Рандошкин, А.Я. Червоненкис. Прикладная магнитооптика. Энергоатомиздат.М. 208с. (1990).
- [7] А.К. Звездин, В.А. Котов. Магнитооптика тонких пленок. Наука. М. 192с. (1988).
- [8] И.Ф. Михайлов, О.Г. Алевердова, М.Я. Фукс. Методика изучения структурного совершенства монокристаллов путем анализа уширения рентген-дифракционных кривых // Заводская лаборатория, **46**(1), с.27(1980).
- [9] С.С. Горелик, Ю.А. Скаков, Л.Н. Расторгуев. Рентгенографический и электронно-оптический анализ. МИСИС. М. 328с. (1994).
- [10] Я.Т. Соловко, І.П. Яремій, В.Д. Федорів, І.М. Будзуляк, Б.І. Яворський. Модель блочної структури епітаксійних ферит-гранатових плівок // ФХТТ, **3**(3), сс.544-547(2002).
- [11] В.Н. Дудоров, В.В. Рандошкин, Р.В. Телеснин. Синтез и физические свойства монокристаллических пленок редкоземельных ферритов-гранатов // УФН, **122**(2), сс.253-295(1977).
- [12] А.С. Москвин, А.В. Зенков. Висмут-индуцированное усиление магнитооптики ферритов-гранатов. Теоретический анализ // ФТТ, 44(10), сс.1811-1818(2002).
- [13] Р.И. Барабаш, А.В. Белоцкий, О.П. Карасевская. Испледование диффузионных процесов методом качающегося монокристалла // Металлофизика, 4(5), сс.103-104(1982).

B.K. Ostafiychuk, I.M. Budzulyak, Y.T. Solovko

Influence of Laser Irradiation on Structure of Bi-Substituted Ferrite-Garnet Films

Precarpathion University named after V.Stefanyk, 57 Shevchenko Str., Ivano-Frankivsk, 76000, Ukraine

The influence of pulse laser irradiation on structural perfection of Bi-substituted ferrite-garnet films which have been grown on a GGG substrate is investigated by the methods of a two-crystal X-ray diffractometry. It is shown, that structural modification on these films are due from energy density on impulse and from manner of irradiation too (through two- and three-time irradiation by those energy).