

Б.К.Остафійчук, О.З.Гарпуль, В.В.Куровець

ОСОБЛИВОСТІ ПРОЦЕСУ РАДІАЦІЙНОГО ДЕФЕКТОУТВОРЕННЯ У ПРИПОВЕРХНЕВОМУ ШАРІ ІМПЛАНТОВАНИХ ІОНАМИ Si^+ ПЛІВОК ЗАЛІЗО-ІТРІЄВОГО ГРАНАТУ

*Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника
вул. Шевченка, 57, м. Івано-Франківськ, 76025, Україна
e-mail: ogorishna@ukr.net*

Проведено математичне моделювання процесу імплантації іонів Si^+ у плівку ЗІГ. Показано, що утворення пар Френкеля та дефектів більш складного типу є рівноймовірним. Теоретично розраховано профіль концентрації радіаційних дефектів, який в основному формується дефектами, утвореними внаслідок пружних взаємодій іона-імплантата з атомами мішені. Експериментально встановлено, що імплантація іонів Si^+ у плівки ЗІГ призводить до утворення в приповерхневому шарі монотонно-спадних профілів відносної деформації.

Ключові слова: ферит-гранатові плівки, іонна імплантація, крива дифракційного відбивання, профіль відносної деформації.

B.K.Ostafiychuk, O.Z.Garpul, V.V.Kurovets

PECULIARITIES OF RADIATION DEFECTS FORMATION IN Si^+ IMPLANTED SURFACE LAYERS OF YTTRIUM-IRON GARNET FILMS

*Vasyl Stefanyk' Precarpathion National University
57, Shevchenko St., Ivano-Frankivsk, 76025, Ukraine*

The mathematical modeling of the Si^+ ions implantation process in the YIG film was performed. It is shown that the formation of Frenkel pairs and more complex type of defects is equiprobable. Theoretically calculated concentration profile of radiation defects, which are mainly consist by defects formed as a result of elastic interactions of implanted ions with the target. Experimentally established that implantation of Si^+ ions in subsurface-layer YIG films leads to the formation of monotonically descending strain profiles.

Key words: ferrite-garnet film, ion implantation, rocking curve, strain profile.

Вступ

Ферит-гранатові плівки (ФГП) широко використовуються в якості функціональних матеріалів у приладах сучасної мікроелектроніки, магнітооптики та оптоелектроніки [1]. Одним із перспективних методів модифікації даних матеріалів є іонна імплантація, яка дає можливість цілеспрямовано змінювати кристалічну структуру їхніх приповерхневих шарів, а відповідно і магнітні властивості, внаслідок чого виникає можливість ефективного перетворення імпульсного НВЧ-сигналу в біжучі спінові хвилі та генерації даних хвиль із набагато меншими довжиною та втратами [2], а також застосовується для усунення жорстких магнітних доменів [3]. Процес іонного бомбардування супроводжується внесенням у приповерхневий шар плівки великої кількості радіаційних дефектів (вакансій, міжвузельних атомів, їх скупчень) [4], які викликають появу механічних напруг та призводять до локальних змін властивостей матеріалу.

У зв'язку із цим, встановлення фізичних закономірностей трансформації кристалічної ґратки епітаксійних ФГП внаслідок іонної імплантації при різних режимах, а також вивчення механізмів процесу дефектоутворення, є актуальною науковою проблемою.

Метою роботи було вивчення структурного розупорядкування приповерхневих шарів імплантованих іонами Si^+ монокристалічних епітаксійних плівок залізо-ітрієвого гранату (ЗІГ, $Y_3Fe_5O_{12}$), з урахуванням можливих механізмів дефектоутворення як за рахунок ядерних, так і за рахунок електронних енергетичних втрат.

I. Об'єкти та методи дослідження

Об'єктами дослідження були монокристалічні плівки залізо-ітрієвого гранату, вирощені методом рідкофазної епітаксії на підкладках гадоліній-галієвого гранату $Gd_3Ga_5O_{12}$ із кристалографічною площиною зрізу (111). Імплантація іонів Si^{+} дозою $D = 5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ у діапазоні енергій 100-150 кеВ проводилася на прискорювачі МРВ-202 в умовах, що виключають каналування та самовідпал.

Дослідження приповерхневих шарів імплантованих плівок ЗІГ проводилося із використанням методу двокристалічної Х-променевої дифрактометрії, що реалізовувався у бездисперсійній схемі в геометрії Брега на установці ДРОН-2.0 у $CuK_{\alpha 1}$ випромінюванні; в якості монохроматора використовували монокристал гадоліній-галієвого гранату із площиною зрізу (111). Із експериментальних кривих дифракційного відбивання (КДВ) розраховувалися профілі відносної деформації $\Delta d/d(h)$ приповерхневого шару імплантованих іонами Si^{+} плівок ЗІГ, шляхом моделювання взаємодії Х-променів із неідеальним монокристалом засобами динамічної теорії розсіяння у формі рівнянь Такагі.

Вивчення механізму процесу генерації радіаційних дефектів у плівках ЗІГ, спричинених ядерними енергетичними втратами іона Si^{+} , проводилося із використанням програми SRIM-2008; розрахунок профілів радіаційних дефектів, утворених внаслідок електронного гальмування іона-імплантанта проводилося за методикою [5]. Розподіл ступеня структурного розупорядкування кристалічної ґратки ЗІГ внаслідок імплантації іонів Si^{+} було отримано за допомогою програми SUSPRE.

II. Результати дослідження та їх обговорення

Для визначення вигляду функції, якою буде задаватися профіль відносної деформації $\Delta d/d(h)$ приповерхневого шару плівок ЗІГ, імплантованих іонами Si^{+} , розглянемо механізм руху імплантованої частинки в монокристалі детальніше.

Високоенергетичний іон у процесі гальмування в кристалі втрачає свою енергію внаслідок пружних зіткнень із зарядженими ядрами атомів, екранованими електронними оболонками, і непружних зіткнень, зумовлених збудженням та емісією електронів. Внаслідок цього існує можливість утворення дефектів як за рахунок ядерних енергетичних втрат, так і за рахунок електронних енергетичних втрат іона-імплантанта [6]. При малих дозах опромінення обидва процеси можна вважати незалежними. Розподіл іонів за глибиною плівки визначається проекційним пробігом R_p і середньоквадратичним розкидом проекційних пробігів ΔR_p . Оскільки іони Si^{+} належать до іонів середньої маси, які близькі до важких [7], то на профілі розподілу зміщених атомів за глибиною плівки буде існувати прихований максимум концентрації вкоріненої домішки.

Для вивчення особливостей формування радіаційних дефектів та їх розподілу за глибиною в порушеному шарі за рахунок іонно-атомних зіткнень проводилося моделювання процесу імплантації іонів Si^{+} в ЗІГ за допомогою програми SRIM-2008. При розрахунках використовувалися дані роботи [8], згідно якої порогові енергії зміщення іона з вузла ґратки для Y^{3+} , Fe^{3+} та O^{2-} в даній структурі становлять відповідно 66, 56 та 40 еВ. Розрахунки утворення каскадів атом-атомних зіткнень здійснювалися у наближенні аморфної мішені, що є допустимим при застосованих умовах імплантації (7° від нормалі до поверхні плівки).

Як видно з рис. 1, у всьому досліджуваному діапазоні початкових енергій бомбардуючого іона Si^{+} (100-150 кеВ) в процесі гальмування у плівці ЗІГ електронні втрати співмірні з ядерними енергетичними втратами, що складають ~ 420 еВ/нм. Із збільшенням енергії проекційний пробіг іонів-імплантантів лінійно зростає (від 90 до 130 нм).

Результати моделювання процесу імплантації іонів Si^{+} в діапазоні енергій 100-150 кеВ у плівку ЗІГ представлені у табл. 1. При збільшенні початкової енергії E іона Si^{+} положення максимуму пружного дефектоутворення $(dE/dx)_{\max}$ та максимальна глибина залягання радіаційних дефектів лінійно зростають, а максимальне значення концентрації дефектів n зменшується. Зростання початкової енергії іона імплантанта призводить до збільшення величини середнього проекційного пробігу R_p та максимальної глибини проникнення іонів-імплантантів h . Радіаційне розупорядкування є найсуттєвішим в аніонній підґратці, для якої кількість зміщених іонів досягає значення 3 атоми/нм пробігу імплантанта і приблизно втричі перевищує аналогічний показник для підґраток заліза.

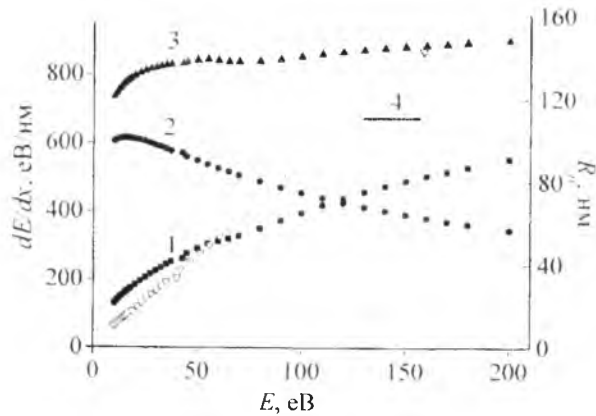


Рис. 1. Розрахункові залежності енергетичних втрат (електронні – 1, ядерні – 2, сумарні – 3) та величини середнього проекційного пробігу (4) іона Si^+ від його початкової енергії при гальмуванні у плівці ЗПГ

Таблиця 1

Параметри моделювання процесу радіаційного дефектоутворення імплантованих іонами Si^+ плівок ЗПГ

Початкова енергія іонів Si^+ E , кеВ	Проекційний пробіг іонів Si^+ R_p , нм	Максимальна глибина проникнення іонів Si^+ h , нм	Максимальні енергетичні втрати іона Si^+ , еВ/нм	Відсоток ядерних енергетичних втрат, %	Положення максимуму енергетичних ядерних втрат $(dE/dx)_{\text{max}}$ нм	Максимальна концентрація дефектів n , $10^{21} \cdot \text{см}^{-3}$	Максимальна глибина залягання радіаційних дефектів, нм
100	90	198	851	53	51	2,39	162
120	111	219	866	49	63	2,31	192
130	120	234	872	47	69	2,29	204
140	130	255	877	46	78	2,24	216
150	135	267	881	44	81	2,22	228

Характерний вигляд каскаду атом-атомних зіткнень бомбардуючого іона Si^+ ($E = 100$ кеВ) з атомами матриці зображено на рис. 2, з якого видно, що, окрім точкових дефектів, спостерігаються певні скупчення (кластери) радіаційних дефектів. Первинно вибиті атоми півки продукують значну кількість вторинних дефектів (~ 88 % від загалу).

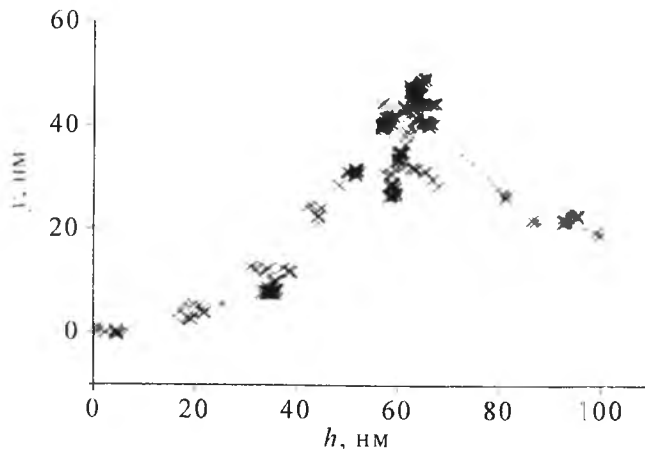


Рис. 2. Каскад атом-атомних зіткнень, викликаних входженням іона Si^+ з енергією 100 кеВ у плівку ЗПГ

Статистична обробка інформації про перебіг генерації і розвитку каскадів вторинних зіткнень для 2000 іонів-імплантантів показала, що для застосованих умов імплантації максимально ймовірним є процес утворення френкелівської пари – 44 %; для розвитку каскаду з двох атомів віддачі – 15 %, трьох – 8 % і т. д. (рис. 3). Ймовірність розвитку каскаду із десяти атомів віддачі і більше складає близько 16 %.

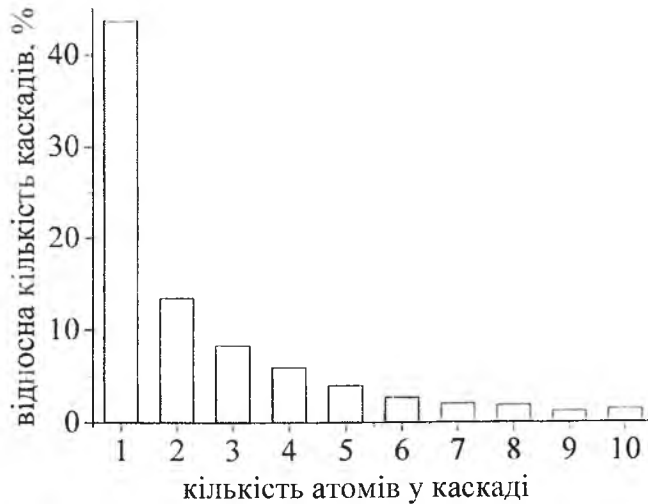


Рис. 3. Ймовірність утворення каскадів вторинних зміщень із різною кількістю іонів при бомбардуванні півки ЗІГ іонами Si

Оцінка ефективності непружного механізму виникнення радіаційних дефектів за методикою [8] показала, що при бомбардуванні півок ЗІГ іонами Si⁺ дефектоутворення за рахунок електронних енергетичних втрат іона-імплантанта є менш інтенсивним у порівнянні з дефектоутворенням за рахунок ядерних енергетичних втрат (профілі пружно індукованих радіаційних дефектів отримано за допомогою програми SRIM-2008) (рис. 4).

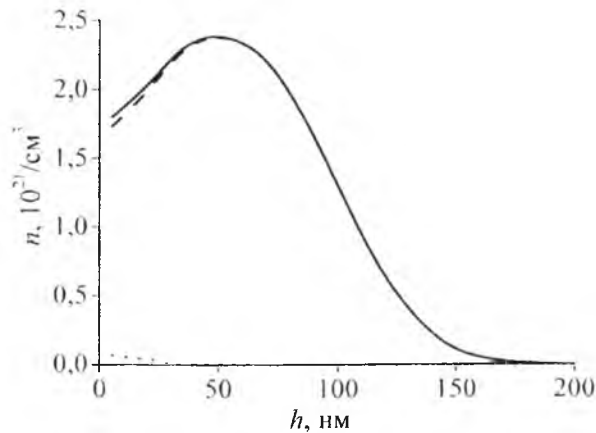


Рис. 4. Теоретично розрахований розподіл концентрації радіаційних дефектів (суцільна лінія) та його складові, пов'язані з електронними (····) та ядерним (- - -) енергетичними втратами іонів Si ($E = 100$ кеВ, $D = 5 \cdot 10^{13}$ см⁻²) при русі у монокристалічній півці ЗІГ

Додатково було проведено розрахунок профілів ступеня структурного розупорядкування кристалічної ґратки ЗІГ іонами-імплантантами за допомогою програми SUSPRE. Для дози імплантації $5 \cdot 10^{13}$ Si⁺/см² в діапазоні енергій 100-150 кеВ суттєвого розупорядкування не спостерігається (рис. 5). Розрахункові профілі розподілу структурного розупорядкування характеризуються максимумом в області 50 нм, що відповідає положенню максимуму на кривих розподілу концентрації дефектів (рис. 4). Структурне розупорядкування приповерхневої області півки ЗІГ для даних умов опромінення становить 16-14 %, досягаючи 100 % при дозі $\approx (13-14) \cdot 10^{14}$ Si⁺/см².

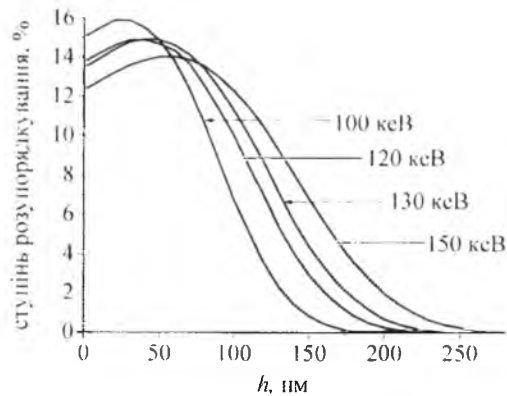


Рис. 5. Теоретично розраховані профілі ступеня структурного розпорядкування кристалічної ґратки ЗІГ, імплантованого іонами Si^- дозою $5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ в діапазоні енергій 100-150 кеВ

При обчисленні профілів відносної деформації з експериментальних КДВ вважалося, що при малих дозах імплантації вони пропорційні профілю радіаційно індукованих дефектів. Розподіл концентрації дефектів за глибиною імплантованого шару, в загальному випадку, є сумою двох складових: дефектів, утворених внаслідок релаксації електронних збуджень, та дефектів, утворених внаслідок пружних ядерних зіткнень [9]. Профіль дефектів, утворених внаслідок пружних ядерних зіткнень (рис. 4), пропорційний профілю енергетичних ядерних втрат, форму якого можна задати кривою, утвореною об'єднанням двох напівгаусіан у точці R_p (асиметрична гаусіана) [10]. Як показали розрахунки, концентрація дефектів, утворених внаслідок електронних енергетичних втрат, є незначною (рис. 4) і даний профіль не впливає на загальний вигляд профілю радіаційно індукованих дефектів.

У зв'язку з цим, при обчисленні профілів відносної деформації імплантованих плівок ЗІГ з експериментальних КДВ їх вигляд задавався функцією [11]:

$$\frac{\Delta d}{d}(h) = \begin{cases} \left(\frac{\Delta d}{d} \right)_{\max} \exp \left[- \left(\frac{h - R_p}{w_1} \right)^2 \right], & \text{при } h < R_p \\ \left(\frac{\Delta d}{d} \right)_{\max} \exp \left[- \left(\frac{h - R_p}{w_2} \right)^2 \right], & \text{при } h \geq R_p \end{cases}$$

де h – відстань, яка відраховується від поверхні в глибину кристалу, R_p – точка об'єднання гілок гаусіан, w_1 і w_2 – параметри гаусіан, які характеризують їх ширину на піввисоті.

Розраховані з експериментальних КДВ профілі відносної деформації імплантованих іонами Si^+ плівок ЗІГ для дози $5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ та енергій 100-150 кеВ (рис. 6) є монотонно спадними, їх максимуми припадають на приповерхневий шар та зміщуються у глибину, що пов'язано із зростанням проекційного пробігу іона-імплантанта. Варто звернути увагу на відсутність кореляції у приповерхневій зоні між теоретично обчисленим розподілом дефектів (рис. 5) та розрахованим профілем відносної деформації (рис. 6).

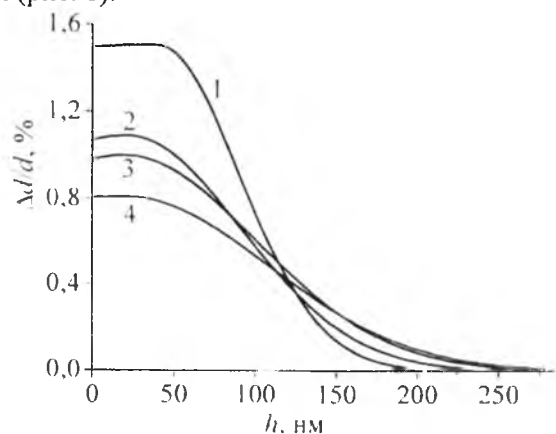


Рис. 6. Профілі відносної деформації в приповерхневих шарах монокристалічних плівок ЗІГ, імплантованих іонами Si^+ дозою $5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ та енергіями: 1 – 100 кеВ, 2 – 120 кеВ, 3 – 130 кеВ, 4 – 150 кеВ

До глибини ~ 50 нм значення величини відносної деформації є незмінним, що можна пояснити дефектоутворенням за рахунок формування локальних теплових піків [12], які призводять до утворення розупорядкованих областей. Зосередження у приповерхневому шарі більшої концентрації дефектів у випадку меншої енергії іонів імплантантів призводить до його значного розупорядкування, що і проявляється в зростанні максимальної деформації порушеного шару при переході від енергії імплантації 150 кеВ до 100 кеВ (рис. 6).

Аналізуючи рис. 5 та рис. 6, видно, що між теоретично розрахованими профілями відносного структурного розупорядкування приповерхневих шарів монокристалічних плівок ЗІГ, імплантованих іонами Si^+ , та експериментально визначеними профілями відносної деформації (рис. 6) спостерігається певна кореляція.

Висновки

Проведені чисельні розрахунки розподілу дефектів, утворених внаслідок пружних та непружних зіткнень іона-імплантанта вздовж проєкційного пробігу в приповерхневих шарах монокристалічних плівок ЗІГ, імплантованих іонами Si^+ з енергією 100-150 кеВ, дозволяють стверджувати, що основний вклад у процес дефектоутворення вносять дефекти, утворені за рахунок ядерних енергетичних втрат. При цьому найбільш ймовірним є утворення пар Френкеля – 44 %; ймовірність розвитку каскаду із десяти атомів віддачі і більше складає близько 16 %.

Імплантація плівок ЗІГ дозою $5 \cdot 10^{13} \text{ Si}^+/\text{см}^2$ в діапазоні початкових енергій 100-150 кеВ зумовлює утворення монотонно спадних профілів відносної деформації. Відсутність кореляції між теоретично розрахованими розподілами пружно-індукованих радіаційних дефектів та профілями відносної деформації у приповерхневій ділянці зумовлена дефектоутворенням за рахунок виникнення теплових піків. У всьому інтервалі досліджуваних енергій імплантації між імплантованим шаром та досконалою частиною плівки ЗІГ утворюється пружно-деформований шар. Установлено, що товщина деформованого шару при збільшенні початкової енергії іона-імплантанта від 100 до 150 кеВ зростає від 200 до 280 нм.

Теоретично розраховані профілі структурного розупорядкування приповерхневих шарів монокристалічних плівок ЗІГ, імплантованих іонами Si^+ з енергією 100-150 кеВ дозою $5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$, корелюють із експериментально визначеними профілями відносної деформації; розраховане значення дози аморфізації для даних умов імплантації становить $\approx (13-14) \cdot 10^{14} \text{ Si}^+/\text{см}^2$.

Робота виконана за підтримки CRDF/USAID (UKX 2-9200-IF-08) та МОН України (М/130-2009).

1. Ozgur U. Microwave ferrites, part I: fundamental properties / Ozgur U., Alivov Ya., Morkoc H. // J Mater Sci: Mater Electron. – 2009. – V. 20. – P. 789-834.
2. Тихонов В. В. Наблюдение резонансов обменных спиновых волн в имплантированном слое пленки ЖИГ / Тихонов В. В., Толкачев А. В., Остафійчук Б. К. // Письма в ЖТФ. – 1991. – Т. 17. – № 15. – С. 49–52.
3. Эшенфельдер А. Физика и механика цилиндрических магнитных доменов / Эшенфельдер А. – М.: Мир, 1983. – 496 с.
4. Машкова Е. С. Взаимодействие ионов с веществом / Машкова Е. С., Теплова Я. А., Тулинов А. Ф. [та ін.] // Сб. Энциклопедия Московского Университета. Научно-исследовательский институт ядерной физики. – М: Библион-Русская книга. – 2005. – С. 101–120.
5. Остафійчук Б. К. Механізми дефектоутворення в монокристалічних плівках залізо-ітрієвого гранату при іонній імплантації легкими іонами / Остафійчук Б. К., Федорів В. Д., Кошобинський В. О. [та ін.] // Фізика і хімія твердого тіла. – 2003. – Т. 4, № 1. – С. 63–70.
6. Риссел Х. Ионная имплантация / Риссел Х., Руге И. – М.: Наука, 1983. – 320 с.
7. Gerard P. Ion implantation in magnetic garnet / Gerard P. // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. – 1987. – V. 19, №20. – P. 843-850.
8. Ubizsk S. B. Displacement Defect Formation in Complex Oxide Crystals under Irradiation / Ubizskii S. B., Matkovskii A. O., Mironova-Ulmane N. [et al.] // Phys. Stat. Sol. – 2000. A(177). – P. 349–366.
9. Остафійчук Б. К. Дослідження структури змін в монокристалах ГГГ, модифікованих іонами бору при різних енергіях / Остафійчук Б. К., Яремій І. П., Кравець В. І. [та ін.] // Фізика і хімія твердого тіла. – 2002. – Т. 3, № 3. С. 437–440.
10. Balestrino G. Reconstruction mechanism in ion implanted yttrium iron garnet films / Balestrino G., Lagomarsino S., Milani E. [et al.] // J. Appl. Phys. – 1988. – V. 63, № 8. – P. 2751–2755.
11. Остафійчук Б. К. Про можливість однозначного визначення профілів зміни міжплощинної відстані в приповерхневих шарах монокристалів за даними двокристалічної рентгенівської дифрактометрії /

Остафійчук Б. К., Яремій І. П., Кравець В. І. [та ін.] // Фізика і хімія твердого тіла. – 2002. – Т. 3, № 1. С. 148–153.

12. Остафійчук Б. К. О возможном механизме аморфизации поверхности феррит-гранатовых пленок вследствие ионной имплантации / Остафійчук Б. К., Ткачук В. М., Ворончак О. Н. [и др.] // Металлофизика и новейшие технологии. – 1994. – Т. 16, №8. – С. 51–54.

Остафійчук Богдан Костянтинович – член-кореспондент НАН України, доктор фізико-математичних наук, професор, завідувач кафедри матеріалознавства і новітніх технологій ДВНЗ «Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника»;

Гарпуль Оксана Зіновіївна – старший лаборант ННЦДМ ДВНЗ «Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника»;

Куровець Валентина Василівна – молодший науковий співробітник кафедри матеріалознавства і новітніх технологій ДВНЗ «Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника».