

В.В. Куровець

Радіаційне дефектоутворення в імплантованих іонами гелію монокристалічних плівках залізо-ітрієвого гранату

*Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника,
вул. Шевченка, 57, 76000 Івано-Франківськ, Україна, e-mail: kurovec@i.ua*

Представлено результати моделювання процесу дефектоутворення у монокристалічних плівках залізо-ітрієвого гранату $Y_3Fe_5O_{12}$ при імплантації іонів гелію з енергією $E = 100$ кеВ. Встановлено, що найбільш ймовірним є процес генерації пар Френкеля. Теоретично розраховано профіль концентрації радіаційних дефектів, утворених внаслідок пружних та непружних взаємодій іона-імплантата з атомами мішені. Із експериментальних кривих дифракційного відбивання розраховано профілі відносної деформації у приповерхневих шарах імплантованих іонами гелію ($E = 100$ кеВ, $D = 1 \cdot 10^{15} \div 1 \cdot 10^{16}$ см⁻²) плівок $Y_3Fe_5O_{12}$.

Ключові слова: залізо-ітрієвий гранат, іонна імплантатія, радіаційні дефекти, крива дифракційного відбивання, профіль деформації.

Стаття поступила до редакції 15.04.2010; прийнята до друку 15.09.2010.

Вступ

Епітаксійні плівки залізо-ітрієвого гранату $Y_3Fe_5O_{12}$, володіючи цілим рядом унікальних характеристик (наприклад, високою прозорістю в оптичному та ІЧ-діапазоні, великою коерцитивною силою та намагніченістю насичення), широко застосовуються у приладах сучасної НВЧ-техніки [1], магнітооптики [2], магнітного запису інформації [3] тощо. Одним із методів покращення властивостей цих матеріалів завдяки локальній модифікації їх структурних і, відповідно, магнітних властивостей є іонна імплантатія (ІІ). В залежності від режиму ІІ (маси, енергії, дози іонів-імплантатів) у приповерхневому шарі матеріалу виникають радіаційні дефекти (вакансії, міжвузельні атоми, їх скупчення), що призводить до утворення пружно-деформованого приповерхневого шару [4]. Тому, для вивчення властивостей ІІ шару необхідно знати кількість та конфігурації генерованих налітаючим іоном дефектів, а також механізми їх утворення.

I. Об'єкти та методи дослідження

У роботі досліджувалися монокристалічні плівки $Y_3Fe_5O_{12}$ товщиною 2,85 мкм, вирощені методом рідкофазної епітаксії на немагнітній підкладці гадоліній-галієвого гранату $Gd_3Ga_5O_{12}$ із кристалографічною площиною зрізу (111). Зразки опромінювались іонами гелію з енергією 100 кеВ у інтервалі доз $1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16}$ см⁻². Імплантатія

здійснювалась при кімнатній температурі на прискорювачі МРВ-202 в умовах, що виключають каналування та самовідпал.

Дослідження кристалічної структури іонно-імплантованих плівок $Y_3Fe_5O_{12}$ проводилося із використанням двокристалічної X-променевої дифрактометрії на установці ДРОН-2.0 у $CuK_{\alpha 1}$ випромінюванні. В якості монохроматора використовувався монокристал $Gd_3Ga_5O_{12}$ (111).

II. Моделювання процесу радіаційного дефектоутворення

Проходження високоенергетичної зарядженої частинки крізь тверде тіло супроводжується багаточисельними зіткненнями із атомами ґратки та передачею енергії частинки в ядрну та електронну підсистему мішені. Первинно вибитий з ґратки атом, якщо його енергія перевищує порогову енергію зміщення ($E \gg E_d$) також може зміщувати інші атоми мішені, тобто викликати каскад зіткнень. Легкі іони створюють окремі ізольовані об'єднання дефектів, що складаються з порівняно невеликого числа зміщених атомів і розміщені на відстані кількох міжатомних відстаней вздовж треку налітаючого іона. Збільшення дози імплантатії спричинює взаємодію окремих дефектних зон та утворення розупорядкованого шару [5].

Моделювання процесу дефектоутворення у плівках $Y_3Fe_5O_{12}$, підданих опроміненню іонами гелію, проводилось із використанням програми

SRIM-2003 [6]. Значення порогових енергій зміщення E_d для атомів ітрію, феруму та кисню бралися 66, 56 та 40 еВ відповідно [7]. Це дозволило визначити розподіл іонних пробігів та переважаючий тип радіаційних дефектів.

При гальмуванні іона гелію у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$ найбільш інтенсивним є процес передачі енергії у електронну підсистему мішені (рис. 1). Електронні

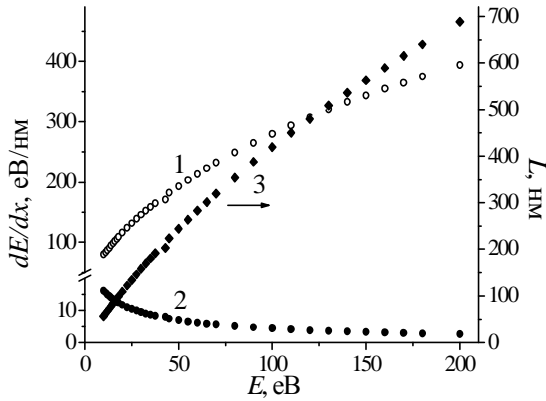


Рис. 1. Розрахункові залежності енергетичних втрат (електронні – 1, ядерні – 2) та величини середнього проєкційного пробігу (3) іона гелію від початкової енергії при гальмуванні у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$.

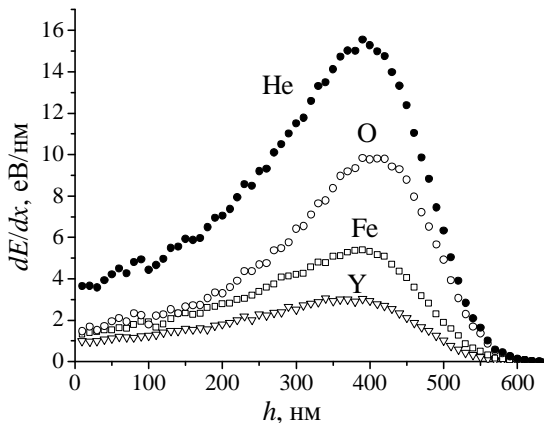


Рис. 2. Розподіл по глибині ядерних втрат іона гелію ($E = 100$ кеВ) при гальмуванні у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$ та розподіли енергій, поглинутих атомами кисню, феруму та ітрію.

втрати іона-імплантата з початковою енергією 100 кеВ складають 95 % від сумарних та становлять ~ 280 еВ/нм, у той час як ядерні лише ~ 5 еВ/нм.

Розподіл по глибині ядерних втрат іона гелію ($E = 100$ кеВ) при гальмуванні у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$ представлено на рис. 2. За даним розподілом розраховувався диференціальний переріз пружного дефектоутворення $s_n(x)$ ($\overline{s_n} = 8,6 \cdot 10^{-18}$ см²). Як видно з рис. 3, найефективніше енергія іонів гелію передається у аніонну підґратку мішені (співвідношення зміщених атомів O:Fe:Y становить 14:6:3). Максимум ядерних втрат припадає на глибину 400 нм. Теоретично розрахований розподіл іонів гелію (рис. 3) характеризується середнім

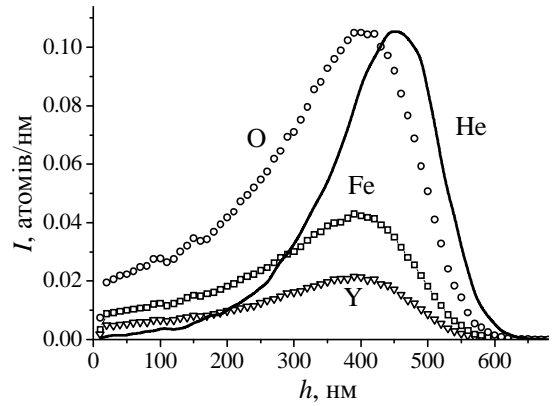


Рис. 3. Теоретичний розподіл зміщених іонів матриці та розподіл іонів гелію (без шкали) з енергією 100 кеВ, імплантованих у плівку $Y_3Fe_5O_{12}$.

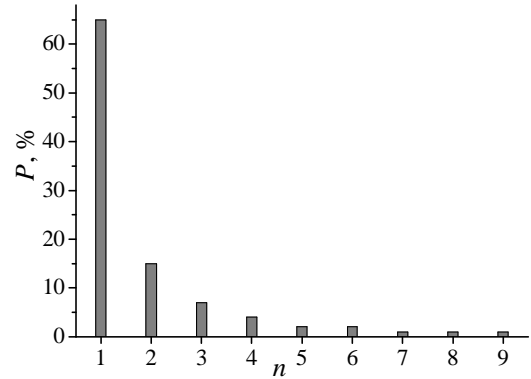


Рис. 4. Ймовірність утворення каскадів вторинних зміщень атомів матриці із різною кількістю іонів n при опроміненні плівки $Y_3Fe_5O_{12}$ іонами гелію.

проєкційним пробігом $R_p = 450$ нм і його можна описати “зшивкою” двох гаусівських розподілів з стандартними відхиленнями $\Delta R_{p1} = 100$ нм ($h \leq R_p$) і $\Delta R_{p2} = 50$ нм ($h > R_p$); максимальна глибина залягання впроваджених іонів гелію складає порядку 600 нм.

Статистична обробка інформації про утворення каскадів атом-атомних зіткнень дала наступні результати. Для застосованих умов експерименту найбільш ймовірним є процес утворення пар Френкеля – 65 %; розвиток каскадів із двох атомів віддачі – 15 %, трьох – 7 %, чотирьох – 4 % і т. д. (рис. 4).

При проходженні крізь плівку $Y_3Fe_5O_{12}$ із сталою ґратки 1,2376 нм іон гелію в середньому приймає участь у 20 зіткненнях із атомами мішені, тобто утворення первинних радіаційних дефектів шляхом ядерного гальмування можливе у кожній двадцятій елементарній комірці матеріалу. Тому, руйнування структури відбуватиметься шляхом накопичення точкових дефектів та їх комплексів у процесі зростання дози опромінення.

Для розрахунку диференціального перерізу непружного дефектоутворення було використано роботу авторів [9]. В рамках електростатичного механізму показано, що при імплантації високоймовірним є утворення дефекту внаслідок релаксації збудженої електронної підсистеми

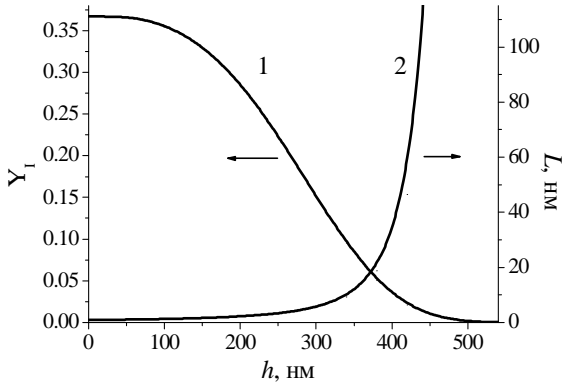


Рис. 5. Розподіл по глибині порушеного шару середньої ймовірності іонізації одного атома мішені на 1 нм проективного пробігу (1) та середньої довжини вільного пробігу (2) імплантата між двома послідовними актами іонізації.

кристалу: іонізація L -оболонки оксигену може призвести до утворення короткоживучого іона O^+ і наступний викид його у міжвузля за першу координаційну сферу.

Вираз для залежності диференціального перерізу іонізації i -го атома мішені від координати імплантата має вигляд:

$$s_e(x) = \sum_{a=\Delta a}^{R_{\max}} S_0 \left[\left(\frac{V_0 - (V_0 - U_0)x/a}{U_0} \right)^{1/5} - 1 \right]^2 \cdot I_a/I$$

$$U_0 = \left[\frac{23 \cdot 10^6 E_i}{(z_1 + z_2)^{5/3}} \right] \text{ см/с,}$$

$$S_0 = \left[\frac{33 \cdot 10^{-16}}{(z_1 + z_2)^{2/3}} \right] \text{ см}^2,$$

$$I_a/I = \frac{\int_0^{a+\Delta a} \exp\left[-\frac{(x-R_p)^2}{\Delta R^2}\right] dx}{\int_0^{R_{\max}} \exp\left[-\frac{(x-R_p)^2}{\Delta R^2}\right] dx},$$

де E_i – енергія іонізації глибокої електронної оболонки; z_1, z_2 – порядкові номери іона і атома мішені; V_0 – початкова швидкість іона; x – глибина, що відраховується від поверхні зразка; a – глибина, на якій енергія імплантуемого іона стає меншою E_i ; V_0 – початкова швидкість іона; R_{\max}, R_p – максимальний та проективний пробіги іона; стандартне відхилення $\Delta R = \Delta R_{p1}$, коли $x < \Delta R$, $\Delta R = \Delta R_{p2}$ при $\Delta R > x$. Множник I_a/I вводився для врахування статистичного розподілу пробігів імплантата у мішені. Він визначає відносну кількість імплантуючих іонів, що осіли в межах шару $[a-\Delta a, a+\Delta a]$, іонізуючи мішень на відріжку проективного пробігу $[0, a]$.

Середня ймовірність $y_i(n, \Delta x)$ іонізації електронних оболонок n іонів ґратки на елементі проективного пробігу Δx задається розподілом [10]:

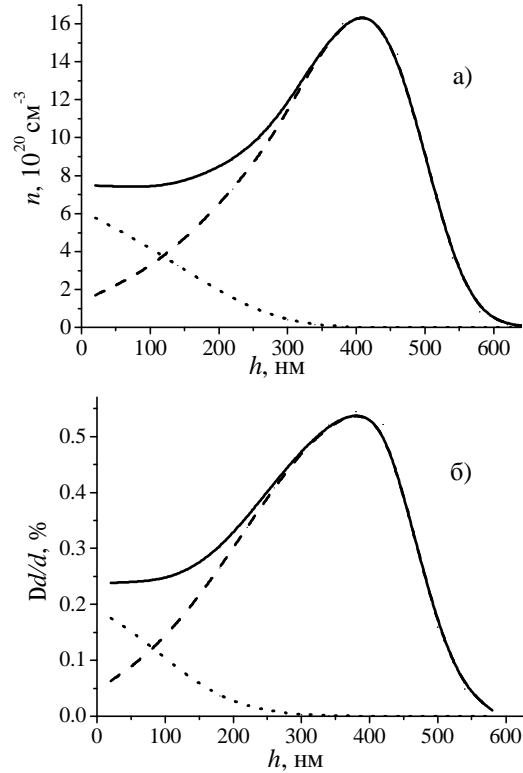


Рис. 6. Теоретично розрахований профіль концентрації радіаційних дефектів (а) та обчислений із експериментальних КДВ профіль деформації (б) у приповерхневому шарі плівок $Y_3Fe_5O_{12}$, імплантованих іонами гелію ($E=100$ кеВ, $D=1 \cdot 10^{15}$ см⁻²). (---) та (···) – складові профілів, пов'язані з ядерними та електронними енергетичними втратами іона-імплантата, відповідно.

$$y_i(n, \Delta x) = \exp(-\Delta x/L) (\Delta x/L)^n / n! , \quad (2)$$

що визначається середньою довжиною L вільного пробігу імплантата між двома послідовними актами іонізації $L = (s_e(x) \cdot N_e)^{-1}$ (N_e – число електронів, локалізованих на оболонці, в одиниці об'єму мішені) (рис. 5). Таким чином, розрахована ймовірність іонізації L -оболонки одного атома мішені на 1 нм проективного пробігу іона гелію в приповерхневій зоні $0 \leq x \leq 200$ нм становить $\approx 30\%$. Середній вільний пробіг імплантата між двома послідовними актами іонізації в цій зоні складає 1,4 нм.

Розподіл концентрації радіаційних дефектів, утворених внаслідок пружних та непружних взаємодій налітаючих іонів з атомами матриці, розраховувався за співвідношенням [9]:

$$n_{e,n} = s_{e,n}(x) N_0^{e,n} D , \quad (3)$$

де D – доза опромінення, $N_0^{e,n}$ – концентрація іонів та аніонів мішені відповідно. Для $n_e(x)$ вираз додатково домножувався на ймовірність $y_i(n, \Delta x)$.

Теоретично розрахований профіль концентрації радіаційних дефектів, утворених внаслідок іонізації іона гелію з енергією 100 кеВ ($D = 1 \cdot 10^{15}$ см⁻²) у плівку $Y_3Fe_5O_{12}$, та його складові, пов'язані із електронними та ядерними втратами

іона-імплантата, представлено на рис. 6, а.

III. Результати експерименту та обговорення

Відновлення профілю відносної деформації у приповерхневому шарі імплантованих іонами гелію плівок $Y_3Fe_5O_{12}$ із експериментальних кривих дифракційного відбивання (КДВ) здійснювалося за допомогою програмного забезпечення, яке базується на рівняннях динамічної теорії розсіювання X-променів. Загальний вигляд даних профілів задавався функціонально, з наступним поділом приповерхневої деформованої частини плівки на підшари, в кожному із яких відносна деформація вважалася сталою.

Як показано вище, теоретично розрахований профіль концентрації радіаційних дефектів має дві складові (рис. 6, а), одну з яких можна описати асиметричною гаусіанною [11], а другу – частиною вітки спадної гаусіани. Зважаючи на те, що при невеликих дозах опромінення профіль деформації прямопропорційний профілю дефектів, тому профіль відносної деформації $\frac{\Delta d}{d}(h)$ вибирався у вигляді суми асиметричної та спадної гаусіан [12]:

$$\frac{\Delta d}{d}(h) = \begin{cases} D_{n\max} \exp\left[\frac{(h - R_{pn})^2}{w_{n1}^2}\right], & \text{при } h < R_{pn} \\ D_{n\max} \exp\left[\frac{(h - R_{pn})^2}{w_{n1}^2}\right] + \\ + D_{e\max} \exp\left[\frac{(h - R_{pe})^2}{w_e^2}\right], & \text{при } h \geq R_{pn} \end{cases} \quad (4)$$

де h – відстань, яка відраховується від поверхні у глибину кристала, R_{pn} – точка “зшивки” асиметричної гаусіани, w_{n1} , w_{n2} і w_e – параметри гаусіан, які характеризують їх ширину на піввисоті. Індеси n і e означають, що вказані параметри характеризують складові профілю, пов’язані з ядерними та електронними енергетичними втратами.

Розраховані профілі відносної деформації порушеного шару плівок $Y_3Fe_5O_{12}$, опроміненіх іонами гелію з енергією 100 кеВ у межах доз $1 \cdot 10^{15}$ - $1 \cdot 10^{16}$ cm^{-2} є однотипними: немонотонні з максимумом величини відносної деформації на глибині максимальних ядерних втрат (рис. 6, б). Товщина деформованого шару становить близько 600 нм. В інтервалі $1 \cdot 10^{15}$ - $6 \cdot 10^{15}$ cm^{-2} дозова залежність величини максимальної відносної деформації має лінійний характер (рис. 7). Вище дози $6 \cdot 10^{15}$ cm^{-2} лінійність цієї залежності порушується, що пояснюється зменшенням концентрації радіаційних дефектів, обумовленою збільшенням ймовірності анігіляції зміщених атомів на вже існуючих вакансіях, що описується рівнянням [13]:

$$n_d(D) = \frac{1}{V_H} (1 - \exp[-N_0 s V_H D]) \quad (5)$$

де V_H – об’єм зони нестійкості, s – повний середній диференціальний переріз дефектоутворення.

Виходячи з того, що деформація кристалічної ґратки обумовлюється введенням радіаційних дефектів і при малих дозах опромінення прямо-

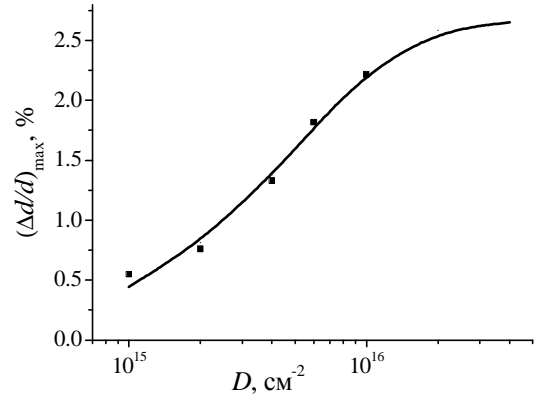


Рис. 7. Залежність величини максимальної відносної деформації плівки $Y_3Fe_5O_{12}$ від дози опромінення (точки – експеримент, суцільна лінія – наближення функцією вигляду (6)).

пропорційна кількості дефектів, можна записати

$$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\max} = \bar{V}_d n_d(D) \quad (6)$$

де \bar{V}_d – ефективний об’єм дефекта, усереднений по дефектах усіх типів.

Апроксимація експериментальної залежності величини максимальної відносної деформації плівки $Y_3Fe_5O_{12}$ від дози опромінення іонами гелію функцією (5) із врахуванням (6) дозволила отримати значення ефективного радіуса дефекта $r_d = 0,11$ нм та радіуса зони нестійкості $r_H = 0,36$ нм, що добре узгоджується із результатами робіт [9] та [13].

Висновки

При опроміненні іонами гелію плівок $Y_3Fe_5O_{12}$ найбільш ймовірним є процес утворення пар Френкеля – 65 %; ймовірність розвитку каскаду із двох атомів віддачі становить 15 %, трьох – 7 %, чотирьох – 4 % і т. д. Ефективний радіус дефекта становить 0,11 нм, радіус зони нестійкості – 0,36 нм.

Теоретично розрахований профіль концентрації радіаційних дефектів має дві складові, одна з яких пов’язана з ядерними, а друга – з електронними втратами іона-імплантата. У приповерхневій зоні ≤ 200 нм ефективність дефектоутворення внаслідок релаксації збуджень електронної підсистеми мішені співмірна з ефективністю дефектоутворення при ядерному гальмуванні.

Профілі відносної деформації приповерхневого шару імплантованих іонами гелію плівок $Y_3Fe_5O_{12}$, розраховані із експериментальних КДВ, є немонотонними з максимумом на глибині максимальних ядерних втрат іона-імплантата. Товщина деформованого шару становить близько 600 нм і співпадає із значенням товщини порушеного шару, отриманого із моделювання процесу іонної імплантації.

В інтервалі доз $1 \cdot 10^{15}$ - $6 \cdot 10^{15}$ cm^{-2} залежність величини максимальної відносної деформації від дози опромінення має лінійний характер, який із

подальшим набором дози порушується.

Куровець В.В. – м. н. с. кафедри матеріалознавства і новітніх технологій

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

- [1] Ю.М. Яковлев, С.Ш. Генделев. *Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике* / Под ред. Матвеева Г. А. Сов. радио, М. 360 с. (1975).
- [2] А.К. Звездин, В.А. Котов. *Магнитооптика тонких пленок*. Наука, М. 189 с. (1988).
- [3] *Элементы и устройства на цилиндрических магнитных доменах: Справочник* / А. М. Балбашов, Ф. В. Лисовский, В. К. Раев и др. Под. ред. Н. Н. Евтихеева, Б. Н. Наумова. Радио и связь, М. 488 с. (1987).
- [4] P. Gerard. Ion implantation in magnetic garnet // *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, 19(20), pp. 843-850 (1987).
- [5] X. Риссел, И. Руге. *Ионная имплантация*. Наука, М. 320 с. (1983).
- [6] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark. *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press, New York. 321 p. (1985).
- [7] S.B. Ubizski, A.O. Matkovskii, N. Mironova-Ulmane, V. Skvortsova, A. Suchocki, P. Potera. Displacement Defect Formation in Complex Oxide Crystals under Irradiation // *Phys. Stat. Sol.*, A(177), pp. 349-366 (2000).
- [8] Т.Д. Джафаров. *Радиационно-стимулированная диффузия в полупроводниках*. Энергоатомиздат, М. 288 с. (1991).
- [9] Б.К. Остафійчук, В.Д. Федорів, В.О. Коцюбинський, І.П. Яремій. Механізми дефектоутворення в монокристалічних плівках залізо-ітрієвого гранату при іонній імплантації легкими іонами // *Фізика і хімія твердого тіла*, 4(1), сс. 63-70 (2003).
- [10] А.В. Двуреченский, А.А. Каранович, А.В. Рыбин. Механизм дефектообразования в кристаллах при неупругом торможении высокоэнергетических ионов // *ЖЭТФ*, 107(2), сс. 493-503 (1995).
- [11] G. Balestrino, S. Lagomarsino, E. Milani, P. Gerard, A. Tucciarone. Reconstruction mechanism in ion implanted yttrium iron garnet films // *J. Appl. Phys.*, 63(8), pp. 2751-2755 (1988).
- [12] І.П. Яремій. Рентгенодифрактометричне дослідження приповерхневих шарів монокристалічних плівок ЗІГ, імплантованих іонами В+ // *Фізика і хімія твердого тіла*, 4(1) сс. 112-117 (2003).
- [13] Б.К. Остафійчук, Л.С. Яблонь, В.О. Коцюбинський. Кристалічна і магнітна мікроструктура приповерхневих шарів монокристалічних плівок LaGa-заміщеного залізо-ітрієвого гранату, імплантованих іонами F+ // *Фізика і хімія твердого тіла*, 5(4), сс. 744-749 (2004).

V.V. Kurovets

Radiation Defect Formation in Helium Irradiated Single Crystalline Ferrite-Garnet Films

Vasyl Stefanyk Precarpathian National University,
57, Shevchenko Str., Ivano-Frankivsk, 76000, Ukraine, e-mail: kurovec@i.ua

The results of defects formation process modelling in helium (100 keV) implanted single crystalline films $Y_3Fe_5O_{12}$ are represented. It is set that the process of Frenkel pairs generation is the most probable. Defect distribution formed as a result elastic and inelastic collisions of implanted ions with the target atoms is calculated theoretically. Strain profiles in the near-surface layers of helium implanted ($E = 100$ keV, $D = 1 \cdot 10^{15} \div 1 \cdot 10^{16}$ cm⁻²) films $Y_3Fe_5O_{12}$ were obtained from the experimental rocking curves.