

І.П. Яремій

Рентгенодифрактометричне дослідження приповерхневих шарів монокристалічних плівок ЗІГ, імпантованих іонами В⁺

*Прикарпатський університет ім. В. Стефаника,
вул. Шевченка, 57, Івано-Франківськ, Україна*

Досліджено зміни в кристалічній структурі приповерхневих шарів плівок залізо-ітрієвого гранату (ЗІГ) товщиною 2,9 мкм, імпантованих іонами В⁺ з енергією 80 кеВ в інтервалі доз $1 \cdot 10^{14}$ - $1 \cdot 10^{15}$ см⁻². Встановлено, що в межах доз $1 \cdot 10^{14}$ см⁻²- $1 \cdot 10^{15}$ см⁻², профілі відносної зміни міжплощинної відстані змінюються від монотонно-спадного при $D = 1 \cdot 10^{14}$ см⁻² до немонотонного при $D \geq 3 \cdot 10^{14}$ см⁻², що пов'язано з різною швидкістю росту з дозою складових профілів, які описують зміни міжплощинної відстані в іонно-імпантованому шарі за рахунок ядерних та електронних енергетичних втрат.

Ключові слова: залізо-ітрієвий гранат, іонна імпантациа, ядерні та електронні енергетичні втрати, профіль відносної зміни міжплощинної відстані.

Стаття поступила до редакції 16.04.2003; прийнята до друку 22.05.2003

Стан поверхні твердого тіла чинить визначальний вплив на технічні характеристики окремих функціональних елементів пристроїв сучасної напівпровідникової мікро- та наноелектроніки. В цій галузі рентгенодифрактометричний метод, як високочутливий, експресний та неруйнівний спосіб діагностики структури твердого тіла, продовжує відігравати провідну роль. В даній роботі вказаним методом вивчалася структура приповерхневих шарів ферит-гранатових плівок, підданих іонній імпантациі.

Для дослідження використовувалися монокристалічні плівки залізо-ітрієвого гранату (ЗІГ) товщиною 2,9 мкм. Імпантациа іонами В⁺ з енергією 80 кеВ проводилася в режимі, що виключає каналування в інтервалі доз $1 \cdot 10^{14}$ - $1 \cdot 10^{15}$ см⁻². Рентгенодифрактометричні дослідження здійснювалися в бездисперсійній двокристалічній схемі в геометрії Брега в $\text{Cu K}\alpha_1$ випромінюванні на дифрактометрі ДРОН-2.0. В якості монохроматора використовувався досконалий монокристал ГГГ з площиною зрізу (111).

Розрахунки профілів відносної зміни міжплощинної відстані проводилися засобами динамічної теорії розсіяння рентгенівських променів у формі рівнянь Такагі [1]. При цьому вважалось, що в кристалі спотворення є функцією тільки однієї координати – глибини.

В основу розрахунку профілів відносної зміни міжплощинної відстані була покладена динамічна модель іонно-імпантованого шару [2], згідно якої, при дозах $< 9 \cdot 10^{14}$ см⁻² аморфізація порушеного шару починається з поверхні плівки і поширюється в глибину, що пов'язане з електронними енергетичними втратами імпантованого іона, процесами іонного розпилення і стоком дефектів.

При дозах, більших $9 \cdot 10^{14}$ см⁻², крім поверхневого аморфізованого шару на глибині ~ 1200 Å зароджується другий аморфний шар, обумовлений ядерними енергетичними втратами. При дозі $\sim 3 \cdot 10^{15}$ см⁻² обидві аморфні фази зливаються в одну. З подальшим збільшенням дози імпантованих іонів відбувається ріст аморфної фази, максимальна товщина якої визначається протидіючими факторами: просуванням аморфної фази в глибину та розпиленням поверхні плівки.

На основі вище вказаної моделі було проведено розрахунок профілів відносної зміни міжплощинної відстані в монокристалах ГГГ, імпантованих іонами В⁺ з енергією 80 кеВ. За даними [3], при малих дозах профіль відносної зміни міжплощинної відстані пропорційний профілю дефектів. Розподіл концентрації дефектів по товщині імпантованого шару є сумою двох складових: дефектів, утворених внаслідок релаксації електронних збуджень, та дефектів, утворених внаслідок пружних ядерних зіткнень. Профіль дефектів, утворених внаслідок електронних енергетичних втрат, розраховувався за електростатичним механізмом, який є найбільш імовірним при імпантациі ферит-гранатів легкими іонами [4]. Даний профіль має складну залежність від глибини, тому для одержання простої аналітичної формули, і без втрати точності, його можна записати як частину вітки спадної гаусіани. Профіль дефектів, утворених внаслідок пружних ядерних зіткнень, пропорційний профілю ядерних втрат, форму котрого можна задати у вигляді асиметричної гаусіани [3].

Із вище сказаного, та з метою мінімізації кількості параметрів, якими проводиться наближення, профіль відносної зміни

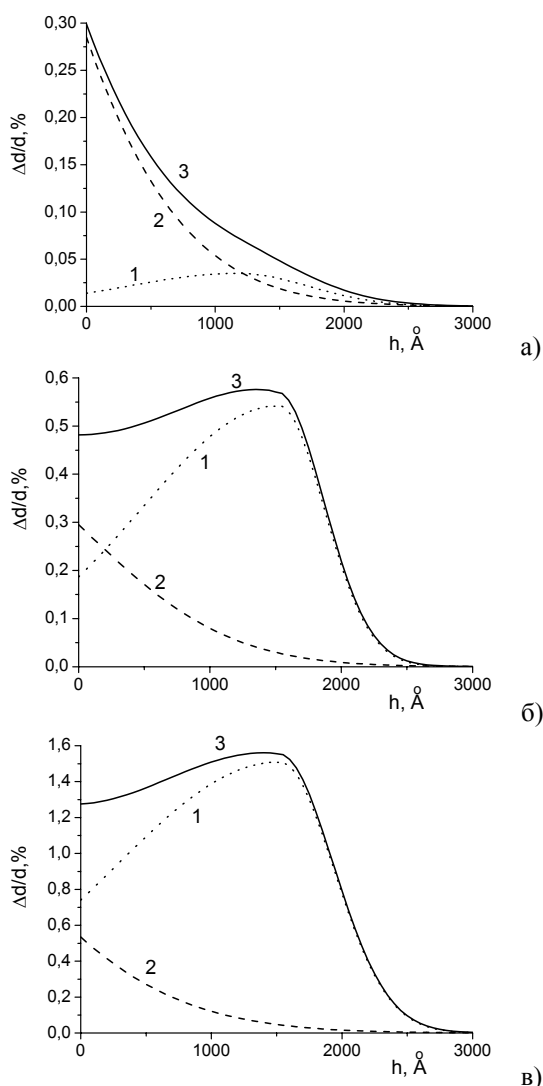


Рис. 1. Профілі відносної зміни міжплощинної відстані в приповерхневому шарі ЗІГ, імплантованому іонами B^+ з енергією 80 кеВ та дозами: а) – $1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, б) – $3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, в) – $1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (1, 2 – складові профілю, пов’язані з ядерними та електронними втратами відповідно, 3 – сумарний профіль).

міжплощинної відстані $\frac{\Delta d}{d}(h)$ вибирався у вигляді суми асиметричної та спадної гаусіан:

$$D = \begin{cases} D_{\max}^{\text{Я}} \exp[-(h - R_p^{\text{Я}})^2 / \sigma_1^{\text{Я}2}], & \text{якщо } h < R_p^{\text{Я}} \\ D_{\max}^{\text{Я}} \exp[-(h - R_p^{\text{Я}})^2 / \sigma_2^{\text{Я}2}], & \text{якщо } h \geq R_p^{\text{Я}} \\ + D_{\max}^{\text{Е}} \exp[-(h - R_p^{\text{Е}})^2 / \sigma^{\text{Е}2}] \end{cases}$$

$D = \frac{\Delta d}{d}$, h – відстань, яка відраховується від поверхні в глибину кристалу, $R_p^{\text{Я}}$ – точка зшивки асиметричної гаусіани, $\sigma_1^{\text{Я}}$, $\sigma_2^{\text{Я}}$ і $\sigma^{\text{Е}}$ – параметри гаусіан, які характеризують їх ширину на піввисоті. Верхні індекси Я і Е означають, що вказані параметри характеризують складові профілю,

пов’язані з ядерними та електронними енергетичними втратами відповідно.

Часткова аморфізація півки, яка описується в рівнянні Такагі фактором Дебая-Валлера, згідно статистичної динамічної теорії розсіяння рентгенівських променів приводить до піднімання лінії фону додаткової осциляційної структури [5]. В досліджуваних зразках вказане піднімання не спостерігалось, тому при обчисленнях вважалося, що фактор Дебая-Валлера рівний нулю. Розрахунок профілів відносної зміни міжплощинної відстані здійснювався за методикою, описаною в [6].

Розраховані з експериментальних КДВ профілі відносної зміни міжплощинної відстані для доз $1 \cdot 10^{14}$, $3 \cdot 10^{14}$ та $1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ представлені на рис. 1. Як бачимо, при дозі $1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ профіль має монотонний характер, тоді як вже при дозі $3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ профілі відносної зміни міжплощинної відстані стають немонотонними з максимумом в області основних ядерних втрат. Прослідкувавши за зміною в співвідношеннях між складовими профілю (рис. 1 а, б, в), бачимо, що при дозах $\leq 1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ основну роль в утворенні деформації в приповерхневому шарі відіграють електронні втрати і, відповідно, складова, пов’язана з ними. При дозах $\geq 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ домінуючу роль в формуванні поля напруг відіграють ядерні втрати і, відповідно, складова, пов’язана з ними, тому сумарний профіль немонотонний. Очевидно, що при дозі $\sim 2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ максимальні деформації в обох складових профілів відносної зміни міжплощинної відстані будуть рівні, а сумарний профіль буде мати два максимуми з деяким мінімумом деформації між ними на глибині $\sim 800 \text{ Å}$.

Для детального аналізу змін, які відбуваються в імплантованому шарі, розглянемо графік залежності “деформаційних” параметрів профілів відносної зміни міжплощинної відстані від дози

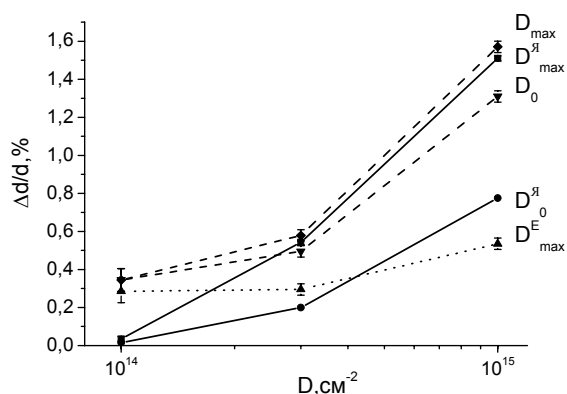


Рис. 2. Залежність параметрів профілів відносної зміни міжплощинної відстані від дози ($D = \frac{\Delta d}{d}$, $D_{\max}^{\text{Е}}$ – максимальна деформація, пов’язана з електронними втратами, $D_{\max}^{\text{Я}}$ і $D_0^{\text{Я}}$ – максимальна деформація та деформація на поверхні, пов’язана з ядерними втратами, D_{\max} і D_0 – сумарна максимальна деформація та деформація на поверхні).

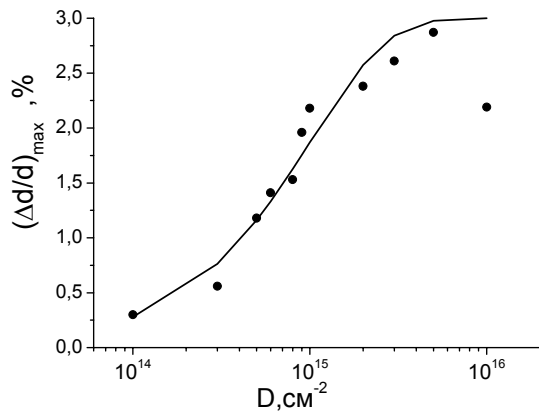


Рис. 3. Дозова залежність максимальної відносної деформації $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\max}$ (D) для плівок ЗІГ, імплантованих іонами B^+ , $E = 80$ кеВ.

опромінення (рис. 2). Як бачимо, швидкість зростання максимальної деформації, пов'язаної як з ядерними, так і з електронними втратами, менша в інтервалі доз $1 \cdot 10^{14} - 3 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$. Очевидно, це пов'язано з тим, що при даному режимі імплантації іони бору в основному займають вузли аніонної підґратки [7]. Ковалентний радіус бору ($0,88 \text{ \AA}$) є меншим за ковалентний радіус кисню ($1,24 \text{ \AA}$), і тому заміщення в вузлах ґратки атомів кисню бором приводить до стиску ґратки. Цей стиск, а також наявність кристалографічних порожнин, в які можуть попадати як атоми бору, так і вибиті атоми матриці, до дози $\sim 2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ частково компенсує деформації, які створюють міжвузельні атоми. З подальшим зростанням дози вклад стиску ґратки в результуючу деформацію зменшується, так як концентрація дефектів росте, а кількість бору в вузлах ґратки в процентному відношенні зменшується і, відповідно, збільшується кількість бору, розподіленого хаотично по об'єму [7].

Зауважимо, що на обох проміжках доз швидкість зростання максимальної деформації, пов'язаної з електронними втратами менша. Цей факт, очевидно, пов'язаний з тим, що максимум вказаної деформації розміщений на поверхні, а поверхневий шар в процесі іонній імплантації збіднюється на деякі елементи за рахунок розпилення. За даними [7], при низьких дозах в основному руйнується аніонна підґратка, тобто розпилюються в основному іони кисню, і відповідно, відбувається компенсація спричиненої зміщеними іонами матриці деформації. Крім того, на величину зростання деформації кожної з складових профілю впливає ефективність дефектоутворення за тим чи іншим механізмом, і ця ефективність також буде залежати від дози.

Залежність максимальної деформації в ЗІГ від дози опромінення іонами B^+ ($E = 80$ кеВ) представлено на рис. 3 [8]. Максимальна деформація, яка є результатом сумарного впливу

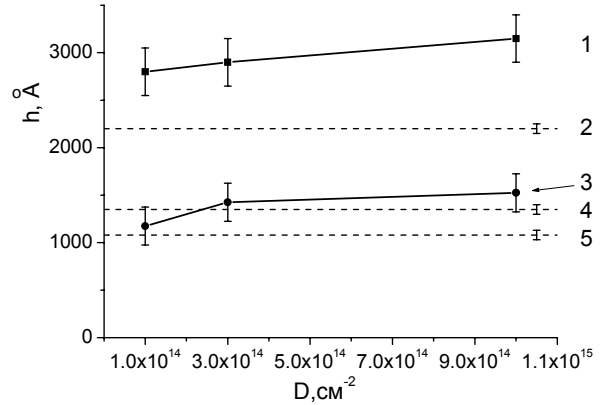


Рис. 4. Залежність глибинних параметрів профілів відносної зміни міжплощинної відстані від дози: 1 – товщина порушеного шару; 2 – максимальними глибинами профілю імплантації; глибина, на яку припадають максимуми: деформації профілю, пов'язаного з ядерними енергетичними втратами – 3, концентрації іонів бору – 4, ядерних енергетичних втрат – 5.

дефектів утворених за рахунок ядерних та електронних енергетичних втрат, оцінювалася за положенням останньої осциляції на КДВ за формулою $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\max} = \text{ctg} \theta_{\text{Бр}} \Delta \theta$, де $\theta_{\text{Бр}}$ – кут Брега для матриці, $\Delta \theta$ – кутова відстань між $\theta_{\text{Бр}}$ та останньою осциляцією на КДВ. Зауважимо, що визначення таким чином максимальна деформація, строго кажучи, справедливе лише у випадку профілю деформації у вигляді сходинки ($\Delta d/d = \text{const}$ при $h \leq l$ і $\Delta d/d = 0$ при $h > l$, де l – товщина однорідно-порушеного шару).

Збільшення концентрації дефектів з ростом дози імплантації приводить до пригнічення динамічного режиму дифракції рентгенівських променів і при критичних значеннях $N_{\text{кр}}$ розсіювання кристалом відбувається згідно з кінематичною теорією [9]. Для кількісної характеристики процесу накопичення структурного розупорядкування приповерхневого шару ФГП експериментальні дані $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\max}$ (D) були апроксимовані залежністю виду:

$$\omega(D) = 1 - \exp\left(-\frac{N_k}{N_{\text{кр}}}\right), \quad N_k = \sigma_n N_0 D \quad [10],$$

де $\sigma_n(x)$ – диференціальний переріз пружного дефектоутворення, D – доза опромінення, N_0 – середнє число атомів в одиниці об'єму мішені (для ЗІГ $N_0 = 8,4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$), $N_{\text{кр}}$ – критичне значення концентрації дефектів (як точкових так і протяжних) (рис.4). Відповідно до розрахунків, $N_{\text{кр}}$ становить $\approx 0,65 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, що відповідає дозі опромінення $\approx 2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$. Таким чином, застосування динамічної теорії дифракції для

структурної діагностики приповерхневих шарів слушне тільки для зразків, імплантованих дозами $\leq 1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$. Спад максимальної деформації при дозах більших $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ пояснюється частковою релаксацією напруг, а при подальшому зростанні дози – процесом злиття комплексів точкових дефектів, утворення та росту аморфних областей, що завершується при концентраціях дефектів $N_{\text{ам}} = 2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ – приповерхневий шар кристалу стає рентгеноаморфним.

Із залежності “глибинних” параметрів від дози опромінення (рис. 4) видно, що при дозі $1 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ максимум складової профілю, пов’язаної з ядерними втратами співпадає з максимумом змодельованого за програмою SRIM 2000 профілю ядерних енергетичних втрат. При зростанні дози, відбувається незначне зміщення в глибину плівки максимуму вказаної складової профілю, і зростання товщини порушеного шару (рис. 4). Під товщиною порушеного шару розуміється така відстань від

поверхні плівки, на якій деформація становить 0,002%. Зростання різниці між максимальними глибинами змодельованого профілю імплантації та профілю відносної зміни міжплощинної відстані свідчить про утворення пружно-деформованого шару, товщина якого незначно зростає при збільшенні дози.

Таким чином, характер зміни поведінки профілів відносної зміни міжплощинної відстані (від монотонного при $D = 1 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ до немонотонного при $D \geq 3 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$) пов’язаний з різною швидкістю росту з дозою параметрів, що характеризують складові профілю відносної зміни міжплощинної відстані на різних дозових інтервалах.

І.П. Яремій – молодший науковий співробітник.

- [1] М.В. Ковальчук, В.Г. Кон, Э.Ф. Лобанович. Измерение малых деформаций в тонких эпитаксиальных пленках кремния методом фотоэлектронной эмиссии, возбужденной стоячей рентгеновской волной // *ФТТ*, **27**(11), сс. 3379-3387 (1985).
- [2] Б.К. Остафійчук, В.Д. Федорив, В.И. Кравец, Б.В. Василишин. Структура приповерхносного слоя феррит-гранатовой пленки, имплантированной ионами бора // *Металлофизика и новейшие технологии*, **17**(2), сс. 67-72 (1995).
- [3] 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).
- [4] 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. 112-117 (2003).
- [5] В.И. Пунегов. Длина корреляции в статистической теории рентгеновской дифракции на одномерно искаженных кристаллах с дефектами. Модель дискретно-слоистой структуры // *Кристаллография*, **41**(1), сс. 23-30 (1996).
- [6] Б.К. Остафійчук, І.П. Яремій, В.І. Кравець, В.Д. Федорів, В.О. Коцюбинський, О.В. Морушко. Про можливість однозначного визначення профілів відносної зміни міжплощинної відстані в приповерхневих шарах монокристалів за даними двокристалльної рентгенівської дифрактометрії // *Фізика і хімія твердого тіла*, **3**(1), сс. 148-153 (2002).
- [7] В.В. Немошкаленко, Б.К. Остафійчук, В.А. Олейник, В.Д. Федорив, А.Ю. Гринченко, Н.А. Скакун. Степень структурного и магнитного разупорядочения в феррит-гранатовых пленках, имплантированных ионами бора // *ФТТ*, **32**(3), сс. 707-713 (1990).
- [8] Б.К. Остафійчук, В.А. Олейник, В.М. Пыльпив, Б.Т. Семен, Л.М. Смеркло, Б.И. Яворский, В.И. Кравец, И.В. Коваль. Кристаллическая и магнитная структура имплантированных слоев монокристаллических пленок железо-иттриевого граната // Препринт 1.91. – Киев: Ин-т металлофизики АН Украины, 70 с. (1991).
- [9] В.Ф. Мачулин, В.И. Хрупа. *Рентгеновская диагностика структурного совершенства слабо искаженных кристаллов*. Киев, Наукова думка, (1995).
- [10] Л. Бранявичюс, Ю. Дудонис. *Модификация свойств твердых тел ионными пучками*. Вильнюс, Мокслас, (1980).

І.П. Яремій

I.P. Yaremiy

The X-ray Investigation of Surface Layers of Monocrystalline YIG Implanted by the B⁺ Ions

Precarpation University, 57, Shevchenko Str., Ivano-Frankivsk, 76000, Ukraine

The crystal structure of boron implanted YIG surface layer changed was investigated. Profiles of implanted layers interplanar distance changed from monotonically descending to nonmonotonic at dose implantation $\geq 3 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$. This result was explained by the domination of different mechanism interplanar distance changes in process of increasing implanted ions dose.