

УДК 538.975.

ISSN 1729-4428

Б.К. Остафійчук, І.П. Яремій, В.І. Кравець, С.Я. Клюка, С.І. Яремій
**Вплив кристалічної структури епітаксійних плівок ЗІГ
на профілі деформації**

*Прикарпатський національний університет ім. Василя Стефаника,
вул. Шевченка, 57, 76000 Івано-Франківськ, Україна, тел: +(03422) 59-60-75*

В роботі проведено аналіз трансформації кристалічної ґратки епітаксійних плівок ЗІГ різної товщини. Показано, що елементарна комірка плівок ЗІГ є ромбоєдрично деформована, а ступінь деформації суттєво залежить від товщини плівки. Досліджено вплив ступеня деформації плівок ЗІГ на процеси дефектоутворення при імплантації іонами B^+ та профілі деформації.

Ключові слова: ферит-гранатові плівки, іонна імплантація, профілі деформації, кристалічна ґратка.

Стаття поступила до редакції 15.03.2006; прийнята до друку 15.06.2006.

Вступ

Епітаксійні плівки залізо-ітрієвого гранату (ЗІГ) використовуються у техніці надвисоких частот та для створення сенсорних пристроїв візуалізації просторового розподілу неоднорідних магнітних полів [1]. На значну залежність магнітних характеристик гранатових плівок від їх структурної досконалості вказується в [2].

В роботі [3] показано, що плівки ЗІГ володіють великою структурною досконалістю, однак в них все ж існують мікронапруги, які виникають за рахунок різниці в сталих ґратки плівки і підкладки, а також за рахунок різниці в їх термічних коефіцієнтах. Крім того, вирощені плівки в повній мірі відтворюють дефекти, які існували на поверхні підкладки [4]. Із вказаних причин відбувається підвищення потенціальної енергії гетероструктури, що сприяє погіршенню структурної досконалості епітаксійних плівок, а перевага одного з механізмів виникнення механічних напруг при певній товщині плівки призводить до різної структурної досконалості та магнітних характеристик плівок з різною товщиною навіть при вирощуванні в однакових умовах. Результати іонної імплантації плівок різної товщини також можуть бути різними в залежності від ростових напруг, які виникають в плівках. Тому метою даної роботи було вивчення структурних характеристик епітаксійних плівок ЗІГ різної товщини до і після їх модифікації шляхом іонної імплантації.

I. Методика дослідження та обробки експерименту

Для дослідження використовувалися ферит-гранатові плівки ЗІГ товщинами 0,49, 0,95; 2,14; 5,11 та 10,2 мкм, вирощені на підкладках гадоліній-галієвого гранату (ГГГ) з площиною зрізу [111].

Імплантація проводилась іонами B^+ в режимі $E=80$ кеВ, $D=3 \cdot 10^{14}$ см⁻². Рентгенодифрактометричні дослідження проводилися на дифрактометрі ДРОН-3 в Si_{Ka1} випромінюванні з використанням двокристалльної схеми ($n, -n$). В якості монохроматора використовувався досконалий монокристал ГГГ. Міжплощинна відстань визначалася методом Бонда з відбивань (444), (888) та (880). За експериментально одержаними кривими дифракційного відбивання (КДВ), обчислювались профілі деформації.

В [5] показано, що при імплантації іонами B^+ профіль дефектів має дві складові: дефекти, які утворюються внаслідок зіткнень з ядрами мішені та дефекти, що є результатом збудження електронної підсистеми. Зважаючи на те, що при невеликих дозах профіль деформації пропорційний профілю дефектів, який можна описати сумою асиметричної та спадної гаусіан, профіль деформації $\frac{\Delta d}{d}(z)$ також вибирався у вигляді суми асиметричної та спадної гаусіан:

$$D = \begin{cases} D_{\max}^A \exp[-(z - R_p^A)^2 / \sigma_1^{A2}], & \text{якщо } z < R_p^A \\ D_{\max}^A \exp[-(z - R_p^A)^2 / \sigma_2^{A2}], & \text{якщо } z \geq R_p^A \end{cases} + D_{\max}^E \exp[-(z - R_p^E)^2 / \sigma^E],$$

$$D = \frac{\Delta d}{d}, \quad z - \text{відстань, яка відраховується від}$$

поверхні в глибину кристалу, R_p^A – точка зшивки асиметричної гаусіани, σ_1^A , σ_2^A і σ^E – параметри гаусіан, які характеризують їх ширину на піввисоті. Перший доданок, асиметрична гаусіана, – складова профілю, пов’язана з ядерними втратами. В другому доданку $R_p^E < 0$, тобто складова профілю, зв’язана з електронними втратами є монотонно-спадною.

При обчисленні профілів деформації порушений шар умовно поділявся на підшари, в кожному з яких відносна деформація вважалася сталою. У зв’язку з тим, що рівняння Такагі (тип: рівняння Ріккати із змінними коефіцієнтами) в загальному випадку аналітичного розв’язку немає, то амплітуда інтенсивності дифрагованої хвилі обчислювалася за допомогою рекурентних співвідношень, приведених в [6], при цьому, для кожного наступного підшару використовується амплітуда інтенсивності дифрагованої хвилі від підкладки, ідеальної частини плівки та всіх нижчезалежачих підшарів.

II. Особливості кристалічної структури неімплантованих плівок ЗІГ різної товщини

При вирощуванні епітаксійних структур, при ненульовій різниці в сталих ґратки плівки і підкладки, плівки отримуються деформованими таким чином, що трансляція її ґратки в площині росту повторює трансляцію структури підкладки. Враховуючи співвідношення товщин підкладки і плівки, останню можна розглядати як деформовану в напрямку, перпендикулярному площині росту (рис. 1). В роботі [7] показано, що плівки ЗІГ, вирощені на підкладці ГГГ з площиною зрізу [111], мають ромбоєдричну структуру, а можлива відмінність Δl від нуля пояснюється наявністю дислокацій невідповідності.

Для порівняння та інтерпретації одержаних результатів, крім параметрів ґратки ромбоєдрично-деформованої плівки a_p та кута при вершині ромбоєдра α , використовувалися обчислені параметри псевдокубічної ґратки $a_{hkl} = d_{hkl} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$ у припущенні, що деформація відсутня.

На рис. 2 представлені графіки залежностей експериментально визначених параметрів ґратки плівки a_p , a_{888} та a_{880} . Як бачимо, на відміну від монотонно зростаючого з товщиною плівки параметра a_{888} , який характеризує зміну міжплощинної відстані в перпендикулярному до площини росту напрямку, зміна параметра a_{880}

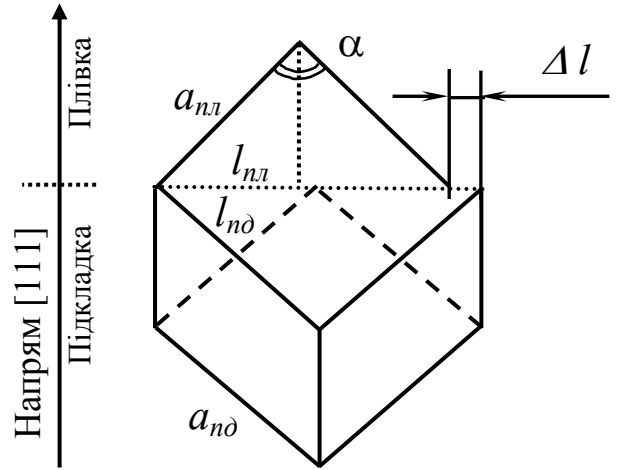


Рис. 1. Елементарний ромбоєдр.

(характеризує міжплощинну відстань в напрямку $\approx 35^\circ$ до нормалі) має немонотонний характер.

Монотонна зміна параметра a_{888} пов’язана з тим, що в напрямку [111] в процесі росту для зміщення атомів перешкод немає. При охолодженні вирощених плівок, в них, крім напруг, викликаних розходженням сталих ґраток плівки і підкладки, виникають напруги, пов’язані різницею в їх термічних коефіцієнтах. Характер зміни параметра a_{880} , імовірно, пов’язаний зі зміною співвідношень у вкладах вище вказаних причин виникнення деформації у плівках різної товщини.

Проведемо аналіз трансформації кристалічної ґратки кожної з плівок.

З рис. 2 і 3 бачимо, що у плівки товщиною 0,49 мкм стала ґратки зростає до значень, не характерних для чистого ЗІГ, а кут при вершині ромба суттєво перевищує 90° . Величина Δl практично рівна нулю, тобто плівка, зважаючи на її малу товщину, є розтягнутою в площині росту до майже

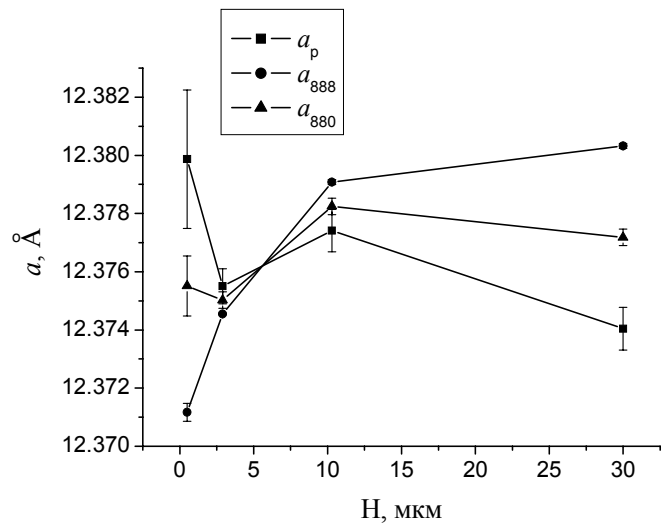


Рис. 2. Залежність експериментально визначених параметрів ґратки від товщини плівки.

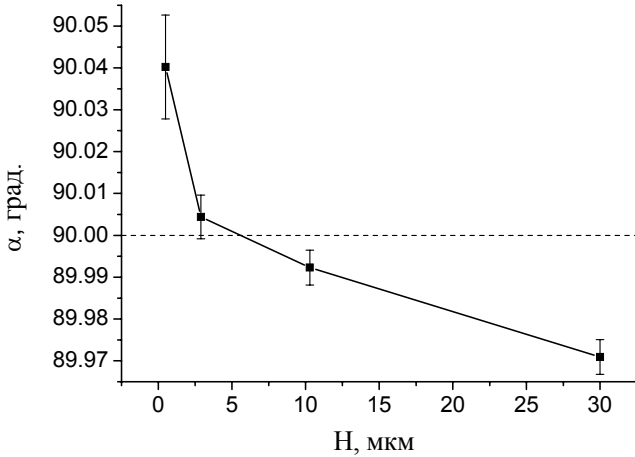


Рис. 3. Залежність кута при вершині ромбоєдра від товщини плівки.

повного співпадання параметрів l_{nl} і l_{nd} ($l_{nd} = a_{nd}\sqrt{2}$, $l_{nl} = 2a_p \sin(\alpha/2)$, a_{nd} – стала ґратки кубічної підкладки) для плівки і підкладки відповідно.

При товщині плівки 2,9 мкм кристалічна ґратка набуває характерних для монокристалів ЗІГ розмірів і форми ($a \approx 12,3760 \text{ \AA}$, $\alpha \approx 90,00^\circ$ [8]). Оцінюючи за допомогою співвідношення, наведеного в [7],

$$\sigma = \frac{(l_{nd} - l_{nl})^2}{(l_{nd} l_{nl})^2}$$

густину дислокацій невідповідності,

з рис. 4 бачимо, що при переході до даної товщини відбувається зростання їх кількості. Імовірно, при цій товщині відбувається деяка мінімізація енергії плівки, пов'язана як зі зняттям напруг у плівці через утворення дислокацій невідповідності.

Вирощування товстих плівок (10,3 та 30 мкм) пов'язане із рядом особливостей, головними з яких є випаровування свинцю та збіднення на гранатоутворюючі компоненти розплаву в процесі росту. Це приводить до зниження температури росту, в зв'язку з чим змінюється склад вирощуваних плівок за рахунок зростання в них кількості іонів свинцю Pb^{2+} [9]. Як показано в [10], плівки, які містять свинець, є нестехіометричними. В них, за рахунок порушення електронейтральності, появляются іони Fe^{4+} в тетраедричних і Pb^{4+} та Fe^{2+} в октаедричних положеннях гранату, а також утворюються кисневі вакансії. Крім іонів свинцю в плівку впроваджуються також іони Pt^{4+} з матеріалу тигля. Розподіл іонів між підґратками гранату в плівках ЗІГ, що містять іони Pb^{2+} і Pt^{4+} може бути записаний у вигляді $\{Y_{3-x}Pb_x\}\{Fe_{2-x-y}Y_xPt_y\}(Fe_3O_{12})$ [10].

В інтервалі товщини 2,9-10,3 мкм відбувається зростання сталої ґратки з одночасним зменшенням кута при вершині ромбоєдра. Із вище сказаного можна зробити висновок, що зростання сталої ґратки відбувається за рахунок входження в плівку іонів Pb^{2+} . Крім того, в плівці очевидно існує деяка кількість кисневих вакансій, які, згідно моделювання

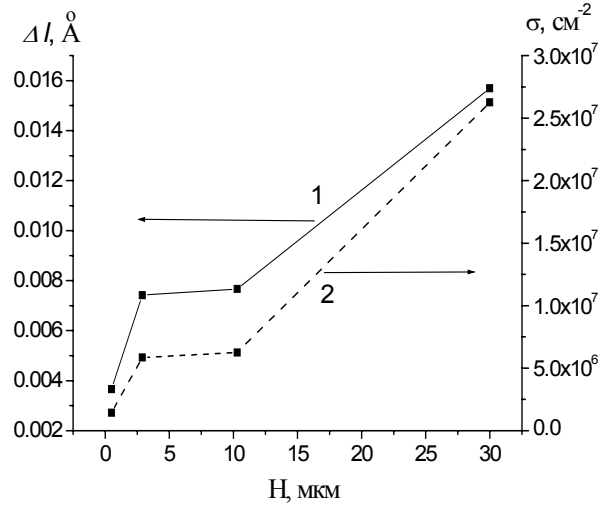


Рис. 4. Залежність величини Δl ($\Delta l = l_{nd} - l_{nl}$) – (1) і густини дислокацій невідповідності – (2) від товщини плівки.

засобами молекулярної динаміки, приводять до зменшення кута при вершині ромбоєдра. Величина l_{nl} , а отже і кількість дислокацій невідповідності, залишається майже без змін, що очевидно пов'язане з тим, що при даній товщині існуючих в плівці напругах енергетично вигідніша деформація кристалічної ґратки плівки, ніж утворення дислокацій невідповідності. Така ситуація зберігається до товщин плівок ~ 15 мкм, при яких, за даними [11], гетероструктура володіє найбільшою енергією. Подальше зростання товщини плівки приводить до релаксації накопичених напруг, що відображається в різкому зростанні кількості дислокацій невідповідності при переході до товщини плівки 30 мкм (рис. 4).

Деформація елементарних комірок ЗІГ з $H=30$ мкм у вигляді ромбоєдрів, витягнутих вздовж нормалі до площини плівки, та зменшення сталої ґратки плівки. Крім того, при таких умовах зйомки одержувалася інформація тільки з поверхневого шару

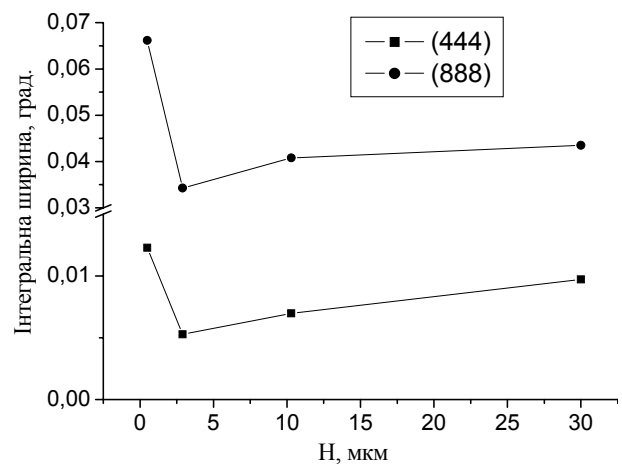


Рис. 5. Зміна інтегральної ширини головного брегівського піка плівки ЗІГ (відбивання (444) та (888)) в залежності від товщини плівки.

плівки, товщина якого ~ 10 мкм.

За одержаними при визначенні міжплощинних відстаней кривими дифракційного відбивання було зроблено якісну оцінку ступеня дефектності плівок різної товщини. Як видно з рис. 5, залежність виправленої на товщину плівки H інтегральної ширини брегівського піка плівки від її товщини має характер, подібний до графіка $a_p(H)$ (рис.2). Найменшим фізичним уширенням, і, відповідно, найбільшою структурною досконалістю характеризуються плівки ЗІГ, товщина яких лежить у межах 2–3 мкм.

III. Кристалічна структура приповерхневих шарів плівок ЗІГ різної товщини, імплантованих іонами бору

Іонна імплантація плівок різних товщин дає можливість простежити вплив ростових напруг на ефективність дефектоутворення.

Розраховані з експериментальних КДВ профілі деформації для плівок різної товщини представлено на рис. 6. Як видно з даного рисунка, всі профілі є немонотонними, максимальна деформація

$$\left(\frac{\Delta d}{d} \Big|_{\max} \sim 0,6\% \right)$$
 розміщена на глибині ~ 1500 Å.

Товщина порушеного шару L рівна ~ 3000 Å (під товщиною порушеного шару розуміється глибина, на якій відносна деформація не менша 0,01%). Форма профілю деформації визначається формою його складових, пов'язаних з ядерними (асиметрична гаусіана) та електронними (спадна гаусіана) енергетичними втратами (рис.7). Як бачимо, при дозі $3 \cdot 10^{14}$ см⁻² вирішальною є роль обидвох складових профілю.

Максимальна деформація та деформація на

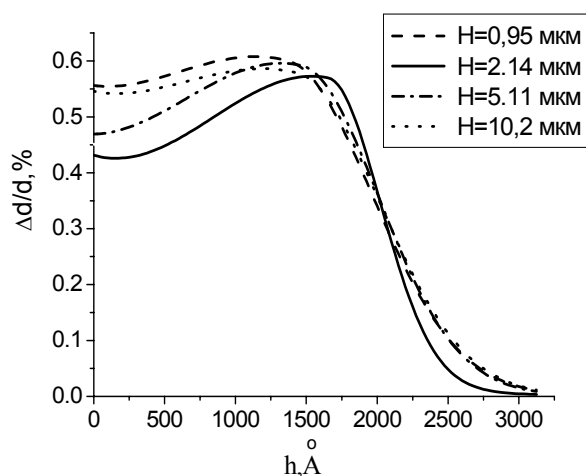


Рис. 6. Профілі деформації в приповерхневому шарі ФГП різної товщини, імплантованому іонами B^+ в режимі: $E=80$ кеВ, $D=3 \cdot 10^{14}$ см⁻².

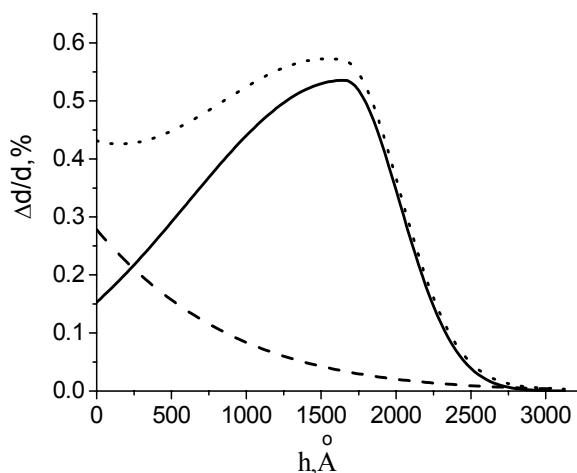


Рис. 7. Профілі деформації в приповерхневому шарі ФГП товщиною 2,14 мкм.

поверхні, які є результатом сумарного впливу як дефектів, утворених за рахунок пружних ядерних зіткнень, так і дефектів, утворених за рахунок релаксації електронних збуджень, в залежності від товщини плівки представлені на рис.8, з якого видно, що при іонній імплантації найбільша деформація спостерігається в плівки з товщиною 0,95 мкм. Цей факт можна пояснити наступним чином. Як вже було сказано, плівки товщиною менше мікрона розтягнуті в площині плівки практичного до повного співпадання параметрів l_{nl} та l_{nd} . Напруги, які при цьому виникають, понижують енергію дефектоутворення, що приводить до зростання кількості дефектів. З іншого боку, за рахунок того, що $\Delta l \approx 0$, при наявності дефекта елементарні комірки не мають можливості змінювати свої розміри в площині плівки, тому зміна розмірів іде тільки в напрямку, перпендикулярному до площини росту. Вище вказані фактори приводять до того, що в плівках товщиною менше мікрметра максимальна деформація є найбільшою.

В плівках товщиною 2-3 мкм, фактори, які стимулюють дефектоутворення, відсутні. Крім того, є можливість незначного зміщення в площині плівки ($\Delta l \neq 0$). Результатом цього є найменша деформація при іонній імплантації в порівнянні з плівками інших товщин.

В діапазоні товщини плівок від 5 до 10 мкм, як вже було сказано, відбувається зростання механічних напруг (деформація кристалічної ґратки), при незмінній Δl , що і проявляється в деякому зростанні максимальної деформації.

Зауважимо, що в профілях деформації плівок, в яких спостерігаються найбільші ростові напруги, прослідковується зменшення різниці між максимальною деформацією та деформацією на поверхні, тобто ростові напруги сприяють вирівнюванню деформації по товщині порушеного шару. Очевидно, цими ж причинами пояснюється

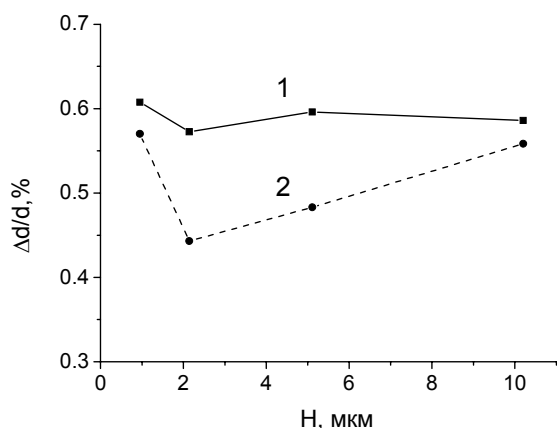


Рис. 8. Залежність максимальної деформації – (1) та деформації на поверхні – (2) від товщини плівки.

збільшення товщини порушеного шару у вказаних плівках.

Одержані результати корелюють з результатами роботи [12], де вплив товщини плівки ЗІГ на процеси дефектоутворення при імплантації іонами V^{+} досліджувався методом резерфордівського зворотнього розсіювання. Залежність параметра дефектоутворення має вигляд, аналогічний вигляду кривої (1), представленій на рис. 8 (мінімум при товщинах плівок 2-3 мкм).

Висновки

Результати вивчення кристалічної структури епітаксійних плівок ЗІГ різної товщини до і після

іонної імплантації показали, що:

- епітаксійні плівки ЗІГ мають ромбодричну кристалічну структуру; ступінь ромбодризації залежить від товщини плівки;
- плівки ЗІГ товщиною ~0,5 мкм деформовані у площині росту до повного співпадання відповідних параметрів плівки і підкладки, а елементарні ромбодри розтягнуті в площині плівки;
- плівки ЗІГ товщиною 2-3 мкм мають найбільш досконалу кристалічну структуру, елементарна комірка є кубічною, а стала ґратки рівна сталій ґратки монокристалічного ЗІГ;
- ефективність дефектоутворення при іонній імплантації максимальна в плівках тих товщин, при яких спостерігається найбільша деформація елементарних комірок. Механічні напруги, які існують в плівках товщинами меншими 1 мкм та більшими 3 мкм сприяють вирівнюванню деформації по товщині порушеного шару.

Остафійчук Б.К. – член-кор. НАНУ, доктор фізико-математичних наук, професор, завідувач кафедри матеріалознавства і новітніх технологій;

Яремій І.П. – кандидат фізико-математичних наук, науковий співробітник кафедри матеріалознавства і новітніх технологій;

Кравець В.І. – кандидат фізико-математичних наук, доцент кафедри матеріалознавства і новітніх технологій;

Клюка С.Я. – молодший науковий співробітник кафедри матеріалознавства і новітніх технологій;

Яремій С.І. – молодший науковий співробітник кафедри матеріалознавства і новітніх технологій.

- [1] S.B. Ubizskii. Orientation states of magnetisation in epitaxial (111)-oriented iron garnet films // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **195**, pp. 575-582 (1999).
- [2] С.І. Ющук, С.О. Юр'єв, В.Й. Ніколайчук, Л.І. Осипишин. Вплив орієнтації та якості обробки підкладок на резонансні властивості епітаксійних плівок залізо-ітрієвого гранату // *Вісник Національного університету "Львівська політехніка". Електроніка*, **430**, сс. 17-21 (2001).
- [3] В.Д. Федорів. Влияние ионной имплантации и отжига на формирование кристаллической и магнитной структуры феррит-гранатовых пленок, содержащих ЦМД. *Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук.* Киев (1990).
- [4] *Элементы и устройства на цилиндрических магнитных доменах.* Справочник. Под ред. Евтихеева Н.Н., Наумова Б.Н., Радио и связь, М., 488 с. (1987).
- [5] 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*, **1**, сс. 112-117 (2003).
- [6] 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).
- [7] О.Г. Руткин, А.Н. Агеев, Е.Л. Духовская, Ю.Г. Саксонов, Н.С. Шер. Деформация кристаллической решётки эпитаксиальных плёнок итрий-железного граната, выращенных на плоскости (111) подложки из гадолиний-галиевого граната // *Письма в ЖТФ*, **52**(12), сс. 82-86 (1982).
- [8] База даних: <http://database.iem.ac.ru/mincryst>.
- [9] R. Chez, E.A. Giess. The temperature dependence of garnet liquid phase epitaxial growth kinetics // *Journ. Cryst. Growth*, **27**(2), pp. 221-226 (1974).
- [10] С.І. Ющук. Структура і властивості феритових плівок і феритів для приладів функціональної електроніки. *Автореф. дис. ... докт. техн. наук.* – Львів (1999).

- [11] Г.П. Родриг. Этапы развития ферритовой аппаратуры диапазона СВЧ // *ТИИЭР*, **76(2)**, сс. 29-50 (1988).
- [12] Б.К. Остафийчук, В.А. Олейник, В.М. Пылыпив, Б.Т. и др. Кристаллическая и магнитная структура имплантированных слоев монокристаллических плёнок железо-иттриевого граната // *Препринт 1.91*. – Ин-т металлофизики АН Украины, Киев, 70 с. (1991).

В.К. Ostafiychuk, I.P. Yaremiy, V.I. Kravets, S.Y. Klyuka, S.I. Yaremiy

The Influence of Crystalline Structure of Epitaxial YIG Films on Strange Profiles

*PreCarpathion National University named after V. Stefanyk, 57, Shevchenko Str., Ivano-Frankivsk, 76000, Ukraine,
phone: +(03422) 59-60-75*

The analysis of crystalline lattice transformation of epitaxial YIG films of different thickness is carry out in the work. It is shown that the unit cell of YIG films is rhombic strained, and the extent of deformation substantially depends on the thickness of film. The influence of extent of deformation of YIG films on the defect formation processes at implantation by the B^+ ions and strange profiles is explored.