

УДК 538.975+537.534.9

Б.К. Остафійчук, В.М. Ткачук
**Процеси дефектоутворення в залізо-ітрієвому гранаті
при імплантації важкими іонами**

*Прикарпатський університет імені Василя Стефаника,
вул. Шевченка, 57, Івано-Франківськ, 76000, Україна
E-mail: valeriy@pu.if.ua*

Отримав дальший розвиток та обґрунтування метод розрахунку ефективності радіаційного дефектоутворення, який ґрунтується на імітаційному моделюванні каскадів атомних зіткнень в багатокомпонентних сполуках методом Монте-Карло. Для оцінки ролі розвитку нелінійних ефектів в каскадах атомних зіткнень при іонному опроміненні $Y_3Fe_5O_{12}$ важкими іонами проведено розрахунок розмірів індивідуальних каскадів та густини енерговиділення. Порівняння модельних розрахунків з даними експерименту показує їх задовільну кореляцію.

Ключові слова: іонна імплантація, дефектоутворення, залізо-ітрієвий гранат, тепловий пік, субкаскад.

Стаття поступила до редакції 11.12.2001; прийнята до друку 12.03.2002.

I. Вступ

Основним інструментом модифікації властивостей приповерхневих шарів монокристалічних плівок ферит-гранатів є іонна імплантація. При цьому визначальним як у зміні мікрокристалічної структури плівки на етапі імплантації, так і у ефективності наступного відпалу порушених шарів є кількість та тип генерованих налітаючим іоном дефектів [1,2].

Кількість досліджень іонно-імплантованих плівок феритів-гранатів різних номінальних складів є значною, однак робіт по вивченню процесів, що відбуваються при імплантації важких іонів у такі структури є обмеженою, наприклад [2,3]. Неможливість прямого експериментального спостереження розсіювання високоенергетичного іону на атомах мішені зумовлює інтерес до використання модельних, розрахункових методів вивчення цих процесів [3,4].

Ряд експериментально спостережува-

них закономірностей [4] формування порушеного імплантацією приповерхневого шару не можуть бути адекватно пояснені в рамках теорії лінійних каскадів. Це стосується і питання механізмів дефектоутворення в гранатових матеріалах при опроміненні важкими іонами. Вказані ефекти зумовлені високою густиною енергії, що виділяється в пружних зіткненнях імплантованого іону з атомами мішені та великою густиною атомів матриці, що приймають участь у розвитку каскаду.

II. Імплантація As: модельне дослідження

Для моделювання розвитку лінійного каскаду зіткнень, викликаного входженням імплантованого іону в мішень, використано підхід, що базується на методі Монте-Карло [3,4]. При високій швидкодії сучас-

них персональних комп'ютерів він забезпечує необхідну точність статистичної оцінки параметрів імплантації при розумних затратах машинного часу. Не дивлячись на те, що кінцевий результат іонної імплантації, її вплив на структуру мішені, визначається нелінійними ефектами (термічний пік, пік зміщень і т.д.), густина енерговиділення на етапі формування самого каскаду може бути оцінена на базі розгляду лінійного каскаду зіткнень.

Характерний вигляд імплантаційного каскаду, генерованого входженням одного іону As з енергією 60 кеВ в мішень номінального складу $Y_3Fe_5O_{12}$, наведено на рис. 1. Профіль розподілу імплантованого As описується наступними параметрами: $R_p = 24$ нм, $\Delta R_p = 11$ нм при поперечному розкиді $\Delta R_{p\perp} = 12$ нм. Окремі області каскаду зіткнень – субкаскади, які на рисунку можна пов'язати з зонами максимального скупчення радіаційних дефектів, не утворюють суцільного об'єму вздовж всього треку імплантованого іону, а розбиваються на ряд рознесених в просторі ло-

кальних включень.

Енергія, що виділяється імплантованим іоном, розподілена в просторі в області каскаду зіткнень. Середньостатистичний індивідуальний об'єм каскаду можна розглядати як еліпсоїд з півосями, рівними середньоквадратичним розмірам каскаду Δx та Δz в поперечному та поздовжньому напрямках відповідно:

$$V = \frac{4}{3} \pi \Delta x^2 \Delta z. \quad (1)$$

При оцінці цієї величини необхідно розділяти розмір окремого, індивідуального каскаду зокрема V_0 та його середньостатистичний об'єм V [4]. Як слідує з ре-

зультатів моделювання, величина $\delta = \frac{V_0}{V}$ прямує практично до одиниці тільки у випадку важких іонів при енергіях, що не перевищують 5 кеВ.

Під розміром індивідуального каскаду надалі ми будемо розуміти середні розміри області, в яку проходить виділення енергії вздовж траєкторії кожного з імплантова-

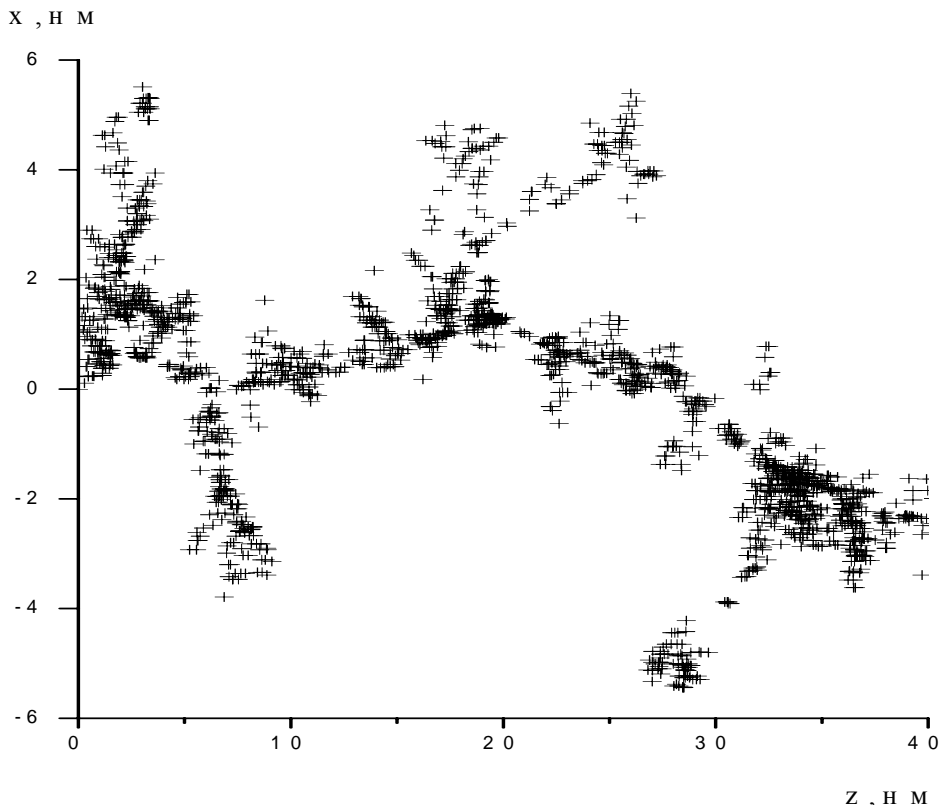


Рис. 1. Характерний вигляд імплантаційного каскаду зіткнень, викликаного входженням іону As з енергією 60 кеВ в $Y_3Fe_5O_{12}$. Хрестиками відмічено зміщені іони матриці.

них іонів зокрема. Для правильної оцінки густини енерговиділення та розрахунку параметрів дефектоутворення якраз використання об'єму цієї області є найбільш коректним.

Імплантована мішень є трикомпонентною, тому всі субкаскади можна розділити на три типи:

1. Генеровані вибитим киснем. В них концентрація зміщених іонів не перевищує 1 % атомної густини, а густина енерговиділення завжди менша температури плавлення. Для $Y_3Fe_5O_{12}$ ця величина рівна $\sigma = \frac{3}{2} kT_{пл} \approx 0.26 \frac{eV}{\text{вт}}$.
2. Генеровані вибитими іоном Fe. Максимальна концентрація зміщених іонів не перевищує 4 атомних процентів, а густина енерговиділення лежить в області температури плавлення.
3. Генеровані вибитими іонами Y. Концентрація зміщених іонів не перевищує 7-8 % атомної густини при густині енерговиділення в області субкаскаду, що в 2-3 рази перевищує температуру плавлення кристалічної ґратки.
4. Генеровані самим імплантованим As в кінці свого руху. Концентрація зміщених іонів матриці в межах 5 % при густині виділеної тут енергії, що близька до температури плавлення.

Енергетичний спектр вибитих іонів, які виникають при пружних зіткненнях, з розрахунку на один імплантований іон, приведено на рис. 2. Середня густина енерговиділення σ монотонно зменшується з ростом енергії іону (див. таб. 1), тому вплив нелінійних ефектів, пов'язаних з високою густиною енерговиділення, можна очікувати в області низьких енергій. Необхідно зауважити, що всі приведені вище величини є середньостатистичними, а високі густини енерговиділення при входженні іону As^+ реалізується тільки в 50 % окремих субкаскадах, які мають достатньо компакту форму. Це підтверджується детальнішим аналізом вигляду окремих субкаскадів. В залежності від динаміки розвитку процесу зіткнень при одному і тому ж

об'ємі субкаскаду його просторовий вигляд може мінятись в широких межах: від

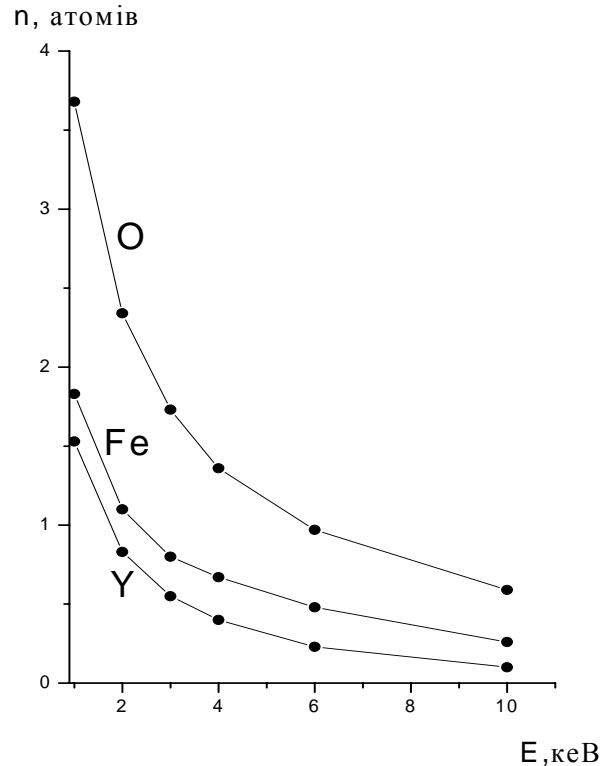


Рис. 2 Енергетичний спектр первинно вибитих імплантованим As з енергією 60 кеВ іонів матриці.

одного компактного до набору окремих, просторово рознесених субкаскадів.

Руйнування кристалічної ґратки внаслідок тепловому піку зумовлене тим, що "гаряча пляма" в області субкаскаду, генерованого ітрієм в результаті швидкого охолодження переходять в аморфний стан. Оцінка швидкості охолодження в тепловому піку дає для цієї величини значення $\approx 10^{13} \text{ K} \cdot \text{с}^{-1}$. Малі часи існування такої області не дозволяють за критерій прояву нелінійних ефектів у каскаді зіткнень взяти енергію термічного руху атомів при температурі плавлення. Такі температури є надто низькими, щоб в об'ємі піку за час його існування змогло пройти суттєве дифузійне перемішування.

Таблиця 1

Залежність густини енерговиділення σ та об'єму субкаскаду V від енергії та типу первинного іону матриці. $T_{кр}$ – температура, необхідна для аморфізації субкаскаду.

Енергія		0,5 кеВ	1 кеВ	2 кеВ	4 кеВ	8 кеВ
O	σ , еВ/ат	0,64	0,27	0,086	0,028	0,0075
	V , атомів	225	1303	6820	39617	20127
	$T_{кр}$, еВ	1,63	1,07	0,79	0,63	0,56
Fe	σ , еВ/ат	3,04	2,21	1,33	0,56	0,26
	V , атомів	35	138	535	2418	10650
	$T_{кр}$, еВ	4,30	2,37	1,54	0,97	0,76
Y	σ , еВ/ат	3,96	2,71	1,75	0,94	0,48
	V , атомів	29	104	367	1394	5774
	$T_{кр}$, еВ	5,99	2,46	1,54	1,11	0,85
As	σ , еВ/ат	3,36	2,48	1,43	0,77	0,65
	V , атомів	32	114	427	1741	7181
	$T_{кр}$, еВ	4,84	2,50	1,47	1,04	0,82

Якщо прийняти за критерій спонтанного переходу в аморфний стан виникнення в ґратці дефектів атомної структури густиною не менше 10 атомних процентів, тобто за час існування теплового піку імовірність виникнення пари Френкеля порядку 0,1, то температура, необхідна для цього рівна [5] (див таб. 1):

$$T_{кр} = \frac{H}{\ln\left(\frac{2\pi k}{\omega r^2}\right)} \quad (2)$$

де: $\frac{\omega}{2\pi}$ – частота коливань атома в кристалічній ґратці;

лічній ґратці;

H – теплота утворення пари Френкеля;

r – лінійні розміри області теплового піку;

k – коефіцієнт температуропровідності.

Як видно з даних таблиці, тільки вибиті іони ітрію в діапазоні енергій 1-2 кеВ можуть забезпечити умови для виникнення теплового піку із середніми розмірами 100-400 атомів.

Основна частина енергії імплантованого іону передається безпосередньо атомам кристалічної решітки, тому рівняння теп-

лопровідності для розгляду процесів дисипації енергії в таких часових інтервалах застосувати неможливо. Для аналізу динаміки передачі енергії з ядра теплового піку на периферію було використано модель рівноважного гарячого газу, температура якого рівна:

$$T = \frac{2}{3} \frac{E}{V k} \quad (3)$$

В результаті просторово-часової еволюції такого теплового піку, як слідує з результатів моделювання, залишається аморфізоване ядро розміром $\approx (1,0 \div 1,4)V$, оточене дефектною зоною об'ємом $\approx (3 \div 5)V$, яка зберігає свою кристалічну структуру.

Важливим є питання оцінки очікуваної концентрації точкових радіаційних дефектів, бо результати моделювання, що базується на процесах бінарних зіткнень не враховують їх наступної анігіляції на динамічній стадії розвитку каскаду. Врахування можливих релаксаційних процесів, а за нашими оцінками згідно [6] радіус зони нестійкості радіаційної пари вакансія – міжвузловий атом лежить в межах

$4 \div 6 \text{ нм}$, для ефективності процесу дефектоутворення дає коефіцієнти “виживання” точкових радіаційних дефектів, приведені на рис. 3.

Нелінійна залежність коефіцієнту для ітрію в області малих енергій зумовлена високою густиною атомних зіткнень в області субкаскаду.

III. Експеримент: результати та обговорення.

Експериментально досліджувались монокристалічні плівки $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ товщиною 10,2 мкм, вирощені методом рідкофазної епітаксії на підкладці $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ товщиною 500 мкм з кристалографічною площиною зрізу $\langle 111 \rangle$. Зразки імплантувались іонами As з енергією 60 кеВ в широкому інтервалі доз та геометрії, що виключала ефекти каналювання.

Дослідження мікрокристалічної структури імплантованого шару проведено за допомогою мессбауерівської спектроскопії з реєстрацією електронів конверсії. Джерелом гама-квантів служив ізотоп ^{57}Co в хромовій матриці. Вибір методу дослід-

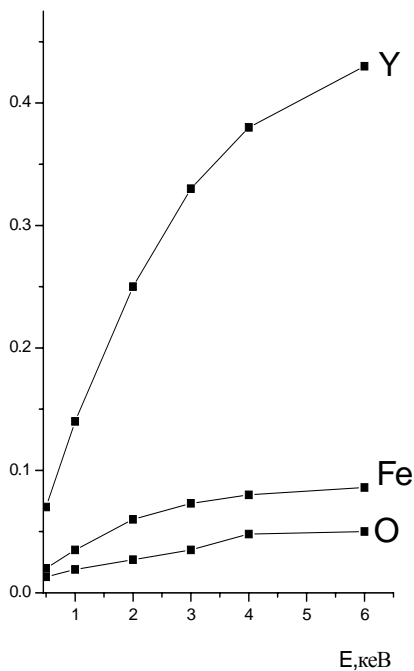


Рис.3. Імовірність “виживання” точкових радіаційних дефектів в залежності від типу та енергії іону, що генерує субкаскад.

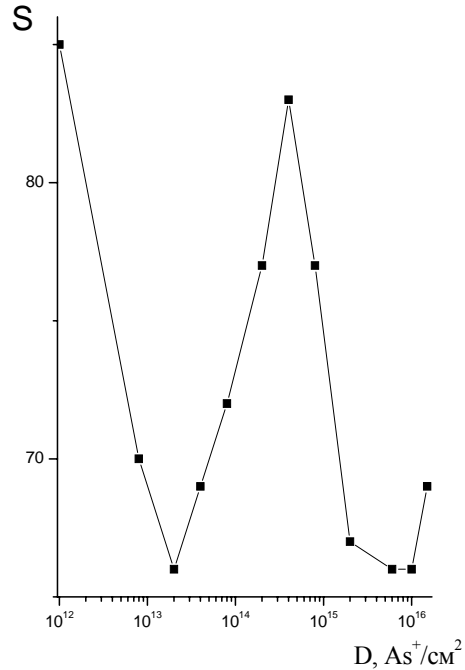


Рис.4. Залежність площі під головним піком функції розподілу $P(H^{Fe})$ від дози іонної імплантації.

ження зумовлений тим, що для ізоотопу Fe^{57} варіації параметрів спектру, викликані змінами локального оточення ядра, можна достовірно зареєструвати. Зручною в цьому плані є аналіз поведінки функції розподілу надтонких магнітних полів $P(H)$ в ході набору дози [3]. За даними про вигляд функції $P(H)$ можна оцінити об’єм області, що відповідає атомам зі спотвореним та неспотвореним локальним оточенням та проаналізувати динаміку накопичення точкових радіаційних дефектів. Як видно з рис. 4, у дозовій поведінці площі центрального максимуму функції $P(H)$, який відповідає неспотвореному локальному оточенню мессбауерівського атому, можна виділити по крайній мірі чотири області. Перший діапазон – до $2 \cdot 10^{13} \text{ As}^+/\text{cm}^2$ – майже адитивне накопичення кількості радіаційних дефектів та поступовий перехід всього об’єму поверхневого шару товщиною 25-30 нм в дефектний стан.

Мірою об’єму аморфних зон в поверхневому імплантованому шарі може слугувати відносна доля парамагнітної фази в експериментальних КЕМ спектрах (рис. 5). При цих дозах процес їх накопичення від-

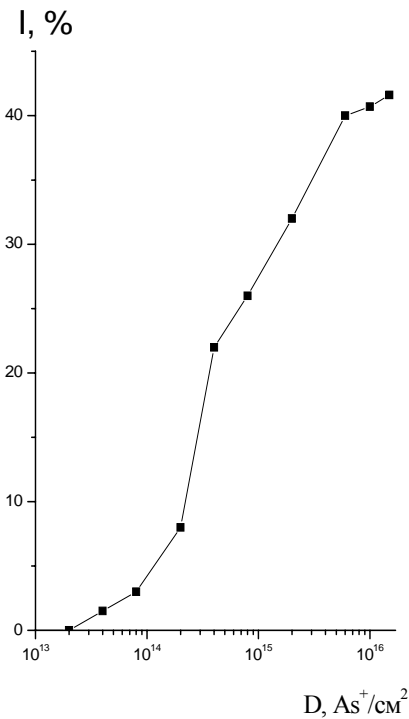


Рис.5. Дозова залежність відносної доли парамагнітної фази у КЕМ спектрі залізо-ітрієвого гранату, імплантованого іонами As⁺ з енергією 60кеВ.

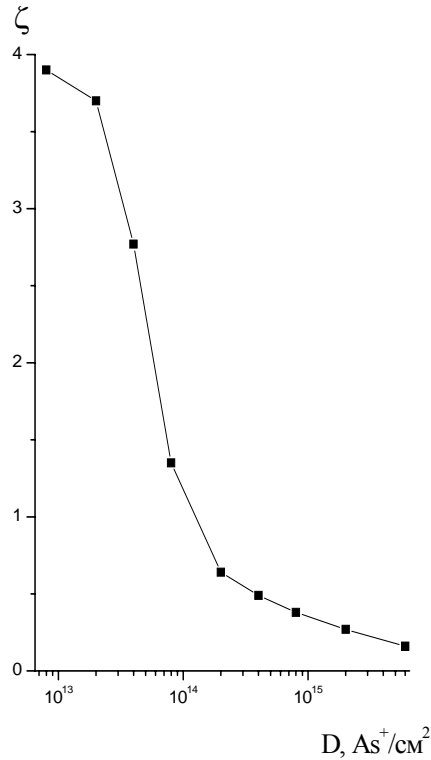


Рис.6. Дозова залежність ефективності процесу дефектоутворення в Y₃Fe₅O₁₂, імплантованому As з енергією 60кеВ.

бувається лінійно з дозою, що зумовлено простим сумуванням числа аморфних зон, генерованих кожним імплантованим іоном зокрема та відсутністю взаємодії між ними.

Кількісний аналіз процесів, що відбуваються в іонно-імплантованому шарі можливий тільки з врахуванням різної імовірності виходу електронів конверсії по товщині імплантованого шару. З врахуванням цієї функціональної залежності та даних рис. 3 для початкових доз, коли взаємодія між окремими каскадами атомних зіткнень практично відсутня, об'єм аморфної зони, створеної одним імплантованим іоном можна оцінити приблизно в 300 атомів, що корелює з результатами моделювання.

Другий діапазон – діапазон доз $2 \cdot 10^{13}$ - $8 \cdot 10^{14}$ As⁺/cm² – об'єм дефектної кристалічної фази практично повертається до свого вихідного значення при різкому та нелінійному зростанні парамагнітної фази. Весь поверхневий шар товщиною близько 25 нм повністю аморфізується.

Третій діапазон – діапазон доз $8 \cdot 10^{14}$ - $6 \cdot 10^{15}$ As⁺/cm² накопичення точкових радіаційних дефектів в області “хвоста” розподілу імплантованого іону та початок прояву ефектів розпилення поверхні мішені. Дозова залежність значною мірою нагадує початкові процеси імплантації, що вказує на ідентичність тут механізмів дефектоутворення. При цьому парамагнітна фаза наближається до свого максимального значення – близько 40 %. Визначальними на цьому етапі є процеси, що відбуваються на глибинах імплантованого шару 25-40 нм.

Четвертий діапазон – дози $6 \cdot 10^{15}$ - $1,5 \cdot 10^{16}$ As⁺/cm² – незначні варіації параметрів КЕМ спектру. Визначальними на цьому етапі є динаміка співвідношення розпилення поверхні мішені і викликане цим зменшення товщини аморфного шару з одного боку, та процеси дефектоутворення та аморфізації на максимальних глибинах імплантованого іону.

Характеристикою ефективності дефектоутворення може служити відношення числа експериментально спостережуваної

кількості дефектів (як точкових, так і аморфних включень) до їх числа, розрахованого в рамках лінійної каскадної теорії:

$$\zeta = \frac{N_{\text{exp}}}{N_0}. \quad (4)$$

Як видно з результатів, приведених на рис. 6, можна виділити ряд областей, для яких величина ζ має принципово різний характер. Її поведінка відповідає динаміці формування імплантованого шару в термінах параметрів КЕМ спектрів та підтверджує результати модельних досліджень.

IV. Висновки

Проведені модельні дослідження та результати експерименту показують роль не-

лінійних ефектів при імплантації на різних етапах набору дози. Важливу роль у процесі радіаційного порушення мішені відіграє її багатокомпонентність та елементний склад. Той факт, що навіть при входженні легких іонів (бор, кисень) завжди генеруються важкі іони матриці з енергіями до 10кеВ, вказує на необхідність враховувати і при іонній імплантації легких іонів можливість виникнення ефектів теплових піків.

Б.К. Остафійчук – д.ф.-м.н., професор, проректор по науковій роботі, зав. кафедрою матеріалознавства та новітніх технологій;

В.М. Ткачук – к.ф.-м.н., науковий співробітник кафедри матеріалознавства та новітніх технологій.

- [1] P. Gerard. Ion implantation in magnetic garnet // *Nucl. Instrum. and Meth. In Phys. Res.*, **19/20**, pp. 843-850 (1987).
- [2] 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 ИМФ 1.91*, Киев, 70 с (1991).
- [3] О.М. Tkachuk, V.М. Tkachuk. The Local Magnetic $Y_3Fe_5O_{12}$ Structure Implanted by As Ions // *Phys. Stat. Sol.(a)*, **172**, pp. 477-484 (1999).
- [4] Б.К. Остафійчук, В.М. Ткачук, О.М. Ворончак, Б.И. Яворский. О возможном механизме аморфизации поверхности феррит-гранатовых пленок вследствие ионной имплантации // *Металлофизика и новейшие технологии*, **16(8)**, сс. 51-54 (1994).
- [5] Ю.В. Мартыненко. О радиационном повреждении кристаллов при облучении атомными частицами// *ФТТ*, **11(7)**, сс. 1968-1972 (1969).
- [6] Т.Д. Джафаров. *Радиационно-стимулированная диффузия в полупроводниках*. “Энергоатомиздат”, М. 288с. (1991).

В.К. Ostafijchuk, V.М. Tkachuk

Processes of Defects Producing in Yttrium-Iron Garnet by Iplantation of Heavy Ions

Vasyl Stefanyk Precarpathian University, 76005,
Ivano-Frankivsk, 57, Shevchenko St.,
E-mail: valeriy@pu.if.ua

Method of effectiveness producing radiation defects computation, based on cascades modeling of atomic collisions in many components targets by Monte-Carlo simulation, was development. Computation of dimensions individual cascades and transferred energy density for development role estimation of nonlinear effects in cascades of atomic collisions attached to ionic $Y_3Fe_5O_{12}$ irradiation by heavy ions was made. Weighing of model computations with experiment data shows their satisfactory correlation.