

© 2009р. С.І. Яремій, В.Д. Федорів, І.П. Яремій, І.М. Фодчук\*,  
Р.А. Заплітний\*, В.П. Кладько\*\*

Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника, Івано-Франківськ

\*Чернівецький національний університет імені Юрія Федьковича, Чернівці

\*\*Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова, Київ

## ВПЛИВ ОПРОМІНЕННЯ ІОНАМИ $\text{He}^+$ НА ДЕФЕКТНУ СТРУКТУРУ МОНОКРИСТАЛІВ ГГГ

Використовуючи методи високороздільної X-променевої дифрактометрії та узагальнену динамічну теорію розсіяння X-променів досліджено кристалічну структуру монокристалів ГГГ до та після імплантації іонами  $\text{He}^+$ . Проведені дослідження дали можливість встановити основні типи ростових дефектів у монокристалах ГГГ та радіаційних дефектів в імплантованому шарі, а також їхні розміри і концентрації.

The crystalline structure of singlecrystals GGG before and after implantation by  $\text{He}^+$  ions is investigated using the methods high resolution X-ray diffraction and the generalized dynamic theory of X-ray scattering. Investigations realized enable to set the basic types of growth defects in singlecrystals GGG and radiation ones in implanted layer, and their sizes and concentrations too.

Монокристали ГГГ широко використовуються як підкладки для ферит-гранатових плівок, що знаходять своє застосування в НВЧ техніці, магнітооптиці, сенсорах магнітних полів, так і в якості матеріалу оптоелектронної техніки (люмінофор для світлодіодів) та при розробці твердотільних лазерів інфрачервоного та видимого діапазонів. Водночас вони є зручними модельними зразками із складним базисом для дослідження фізики процесів, що відбуваються в їх об'ємі та приповерхневому шарі.

Одним із перспективних методів впливу на приповерхневі шари монокристалів, з метою цілеспрямованого надання їм специфічних властивостей, є іонна імплантація. Зокрема, імплантація іонами  $\text{He}^+$  дозволяє суттєво збільшити товщину модифікованого шару, тим самим збільшити кількість дефектів, не приводячи при цьому до його аморфізації. Шляхом іонної імплантації в монокристалах ГГГ проводиться формування приповерхневого хвилевого шару.

Структурні неоднорідності, зумовлені як ростовими так і радіаційно спричиненими дефектами в монокристалах ГГГ, та кінетика їх взаємодії мають визначальний вплив на експлуатаційні характеристики елементів пристроїв, які їх містять. Тому, є необхідність дослідження

дефектної підсистеми вихідних та модифікованих монокристалів ГГГ.

### Об'єкти та методи досліджень

Об'єктом дослідження вибрані пластини монокристалів ГГГ ( $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ ) товщиною 0,49 мм, вирощені методом Чохральського в напрямку (111). Післяростова обробка пластин мстила механічне шліфування, механічне, хіміко-механічне та хімічне полірування; поверхня відповідає 14 класу шорсткості.

Монокристали ГГГ імплантувалися іонами  $\text{He}^+$  з енергією 100 кеВ. Імплантація проводилася в режимі, що виключає каналювання (під кутом  $\sim 7^\circ$  від нормалі до поверхні плівки). З метою мінімізації ефекту самовідпалу, густина іонного струму під час імплантації не перевищувала  $0,2 \text{ мкА/см}^2$ .

Експресно та неруйнівним способом дослідити дефектну структуру реальних кристалів ГГГ, що містять різні за розмірами та концентраціями мікродефекти можна використовуючи методи X-променевої дифрактометрії [1-3].

Вимірювання кривих дифракційного відбивання (КДВ) та контурів ізодифузних ліній від монокристалів ГГГ здійснювалися на високороздільному X-променевому дифрактометрі "X'Pert PRO MRD XL" в  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -випромінюванні. КДВ

від площин (444) та (888) при цьому було отримано методами  $\omega/2\theta$  сканування з використанням трикристальної схеми, та методом  $\omega$  сканування з використанням дво- та трикристальної схем [4].

### Ростові дефекти в монокристалах ГТТ

На рис. 1. наведені двокристалні КДВ отримані в режимі  $\omega$ -сканування та трикристалні КДВ отримані в режимі  $\omega/2\theta$ -сканування і  $\omega$ -сканування з нерухомим аналізатором. Як видно з рисунків, всі КДВ є симетричними. Уширення кривих дифракційного відбивання, отриманих методом  $\omega$ -сканування порівняно з  $\omega/2\theta$ -скануванням є незначним, що свідчить про монокристалічність пластин ГТТ.

Із карт двовимірного розподілу інтенсивності в координатах  $\omega$  і  $2\theta$  (рис. 2.) видно, що значної дифузної компоненти розсіяння не спостерігається.

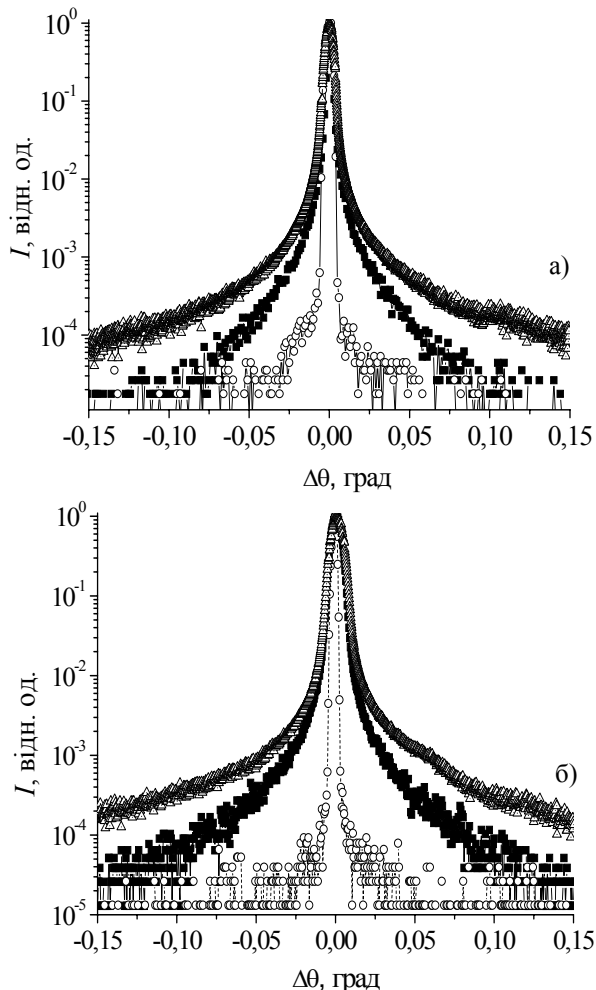


Рис. 1. Криві дифракційного відбивання від площин (444) (а), (888) (б); ■ –  $\omega/2\theta$ -трикристальна зйомка, ○ –  $\omega$ -трикристальна зйомка, Δ –  $\omega$ -двокристальна зйомка.

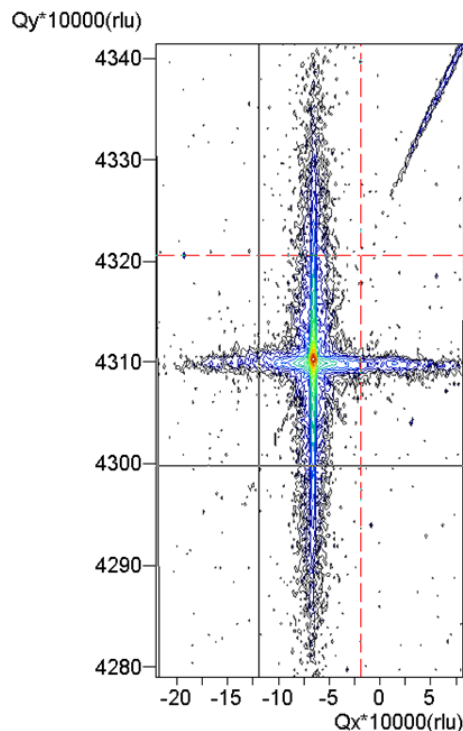


Рис. 2. Карта оберненого простору для монокристалу ГТТ поблизу вузла (444).

Проведений аналіз півширин КДВ вздовж та впоперек напрямку вектора дифракції показав, що характерне для дефектів II класу за Кривоглазом фізичне уширення дифрактометричних ліній практично відсутнє, і тому впливом даного класу дефектів на КДВ можна знехтувати. Виходячи з вище сказаного, в подальших дослідженнях будемо брати до уваги тільки дані про дифузне розсіяння на дефектах I класу.

Наявність дефектів у кристалічній ґратці досліджуваних матеріалів приводить до необхідності їх врахування при моделюванні поширення X-променів у зразку.

В загальному випадку розсіяння X-променів відбувається на дефектах (дифузна складова) та на "квазіідеальній" частині монокристалу (когерентна складова). В залежності від методу зйомки відбувається врахування однієї чи обох складових розсіяних рентгенівських променів.

При моделюванні кривих гойдання отриманих на двокристалному спектрометрі з широко відкритим вікном детектора, КДВ розраховувалися як сума когерентної  $R_{coh}$  і дифузної  $R_{dif}$  компонент

$$R(\Delta\theta) = R_{coh}(\Delta\theta) + R_{dif}(\Delta\theta)$$

Зростання інтенсивності дифузного розсіяння при збільшенні концентрації та розмірів дефектів відповідним чином приводить до зміни

інтенсивності когерентної складової. Когерентна та дифузна складові розраховувалися за загальною динамічною теорією розсіяння рентгенівських променів, згідно [5, 6].

Передбачалося, що в досліджуваному зразку можуть бути різні типи ростових дефектів. Однак, спроби наближення експериментальних КДВ теоретичною в припущенні існування сферичних чи дископодібних кластерів не були успішними у зв'язку із суттєво іншою залежністю ходу "хвостів" для даних типів дефектів.

Найкраще наближення теоретичної КДВ до експериментальної спостерігається при введенні в розрахунки дислокаційних петель певних розмірів. Проте, при обчисленні теоретичних КДВ із врахуванням петель тільки малих розмірів спостерігалось добре наближення тільки на "хвостах" КДВ (далеко від головного брегівського піка). При врахуванні петель тільки великих розмірів відбувалося хороше наближення в області головного брегівського піка і значно гірше на "хвостах". Оптимальне наближення спостерігалось при наявності дислокаційних петель двох розмірів, таблиця 1.

Приклад наближення сумарної теоретичної КДВ з урахуванням апаратного уширення до експериментальної при зазначених в таблиці 1. розмірах та концентраціях дефектів наведено на рис. 3.

Таблиця 1. Концентрації і розміри дислокаційних петель

$hkl$	Розмір, Å	Концентрація, $\text{см}^{-3}$	Розмір, Å	Концентрація, $\text{см}^{-3}$
444	50	$1 \cdot 10^{15}$	6000	$1,2 \cdot 10^{10}$
888	54	$1 \cdot 10^{15}$	5900	$1,1 \cdot 10^{10}$

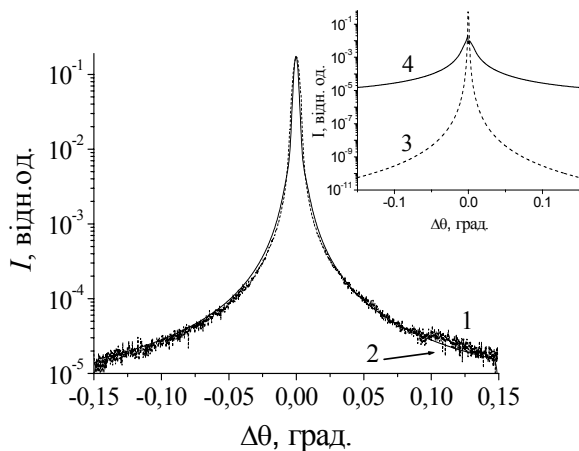


Рис. 3. Експериментальна (1) та теоретична з урахуванням апаратного уширення (2) КДВ від пластини монокристалу ГТТ (444). На вставці – когерентна (3) та дифузна (4) складові теоретичної КДВ.

Моделювання  $\omega/2\theta$ -кривих дифракційного відбивання при визначених типах дефектів, та їх порівняння з відповідними експериментальними КДВ показало, що вони гарно співпадають як в області головних брегівських піків, так і на "хвостах".

Співпадання параметрів дефектів, отриманих при різних методах сканування та від різних рефлексів свідчить про адекватність вибраної моделі дефектної підсистеми та розмірів і концентрацій основних типів дефектів. Визначені параметри надалі використовувалися при моделюванні ідеальної частини ГБП монокристалу.

### Радіаційні дефекти в монокристалах ГТТ імплантованих іонами $\text{He}^+$

Деформація ґратки пластин монокристалів ГТТ впливає, наприклад, на показник заломлення хвилеводного шару, і тому її аналіз є важливим для функціонування пристроїв. При цьому виникає ряд проблем. Так, якщо зміну відносної деформації з глибиною можна отримати із КДВ для симетричних (444) і (888) відбивань, то знаходження зміни міжплощинної відстані в площині пластини (визначає напружений стан шаруватої структури), через відсутність достатньої точності досить складно визначити навіть з асиметричних відбивань (наприклад (880)). Тому, для одержання необхідної інформації, виконуються детальні вимірювання карт оберненого простору (рис. 4) із зосередженням на можливих відхиленнях лінії  $SL$  ( $S$  – вузол оберненої ґратки підкладки,  $L$  – вузол деформованого шару) від лінії повної деформації [7]. У повністю напруженому стані ( $\Delta a_{||}/a=0$ ) точки оберненої ґратки  $S$  і  $L$  з'єднані прямою лінією (лінією повної деформації), яка паралельна нормалі до поверхні.

Із карт оберненого простору імплантованих іонами  $\text{He}^+$  монокристалів ГТТ (рис. 4) видно, що розподіл інтенсивностей у площині пластин є дуже вузьким (близьким до теоретичної ширини), а згідно [7] це дає можливість досягнути точності  $2 \cdot 10^{-5}$  у визначенні зміни міжплощинної відстані в площині пластини. Незважаючи на те, що величина міжплощинної відстані в перпендикулярному до площини пластини напрямі сильно змінюється по товщині імплантованого шару, міжплощинна відстань в площині імплантованого шару точно відповідає аналогічній величині у кристалічній матриці (рис. 4), що дає можливість зробити висновок про повні-

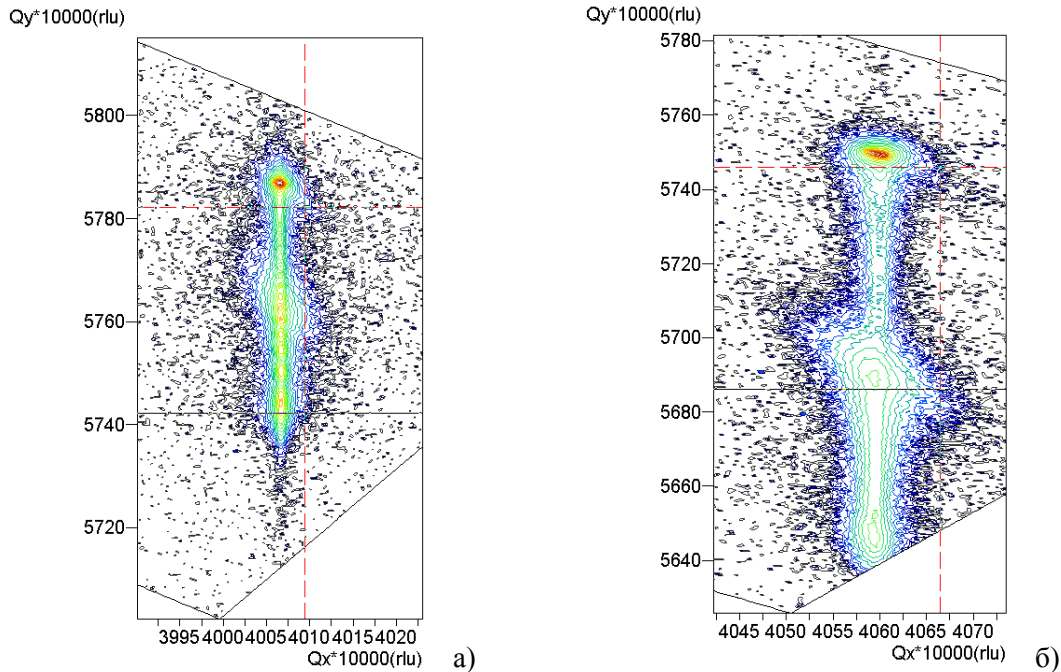


Рис. 4. Карти оберненого простору для імпантованих іонами  $\text{He}^+$  монокристалів ПТ поблизу вузла (880) з дозою опромінення  $D=2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$  (а),  $D=6 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$  (б)

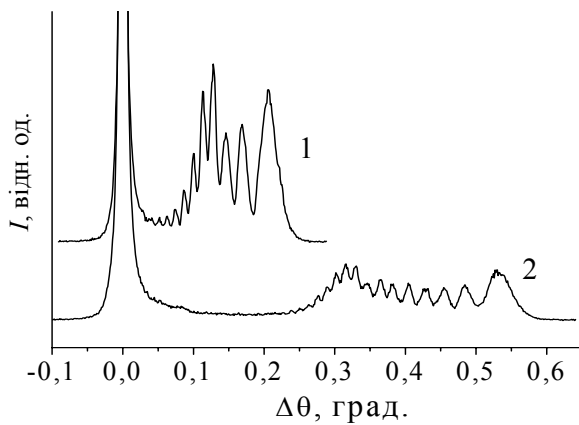


Рис. 5. Експериментальні КДВ, отримані від імпантованих іонами  $\text{He}^+$  монокристалів ПТ з енергією 100 кеВ та дозами:  $2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$  (1),  $6 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$  (2)

стю напружений стан нашої структури у площині пластини.

На КДВ, отриманих від імпантованих монокристалів ПТ спостерігається інтенсивна додаткова осциляційна структура (рис. 5), яка узгоджується із картами оберненого простору.

При розрахунку теоретичних КДВ від іонно-імпантованих монокристалів ПТ допускалася наявність в порушеному шарі точкових дефектів і дислокаційних петель. Точкові дефекти в підкладці та порушеному шарі моделювалися сферичними кластерами розміром 10 Å. Зважаючи на те, що для іонно-імпантованих шарів характерний неоднорідний розподіл дефек-

тів, приповерхневий шар розбивався на підшари, у кожному з яких вважалося, що деформація постійна, а дефекти розподілені однорідно. При цьому не враховуються зміщення атомів кожного підшару за рахунок радіаційних дефектів у інших підшарах.

В наших розрахунках амплітуда когерентної складової від ідеальної частини монокристалу обчислювалася за узагальненою динамічною теорією [5, 6], а від порушеного шару – за рівняннями Такагі для дискретно-шаруватої структури [8].

Дифузну складову порушеного шару, у випадку розсіяння тонким кристалом можна представити як суму дифузних компонент коефіцієнтів відбиття підкладки  $R_{diff}^S$  та порушеного шару  $R_{diff}^L$ :

$$R_{diff}(\Delta\theta) = R_{diff}^S(\Delta\theta) + R_{diff}^L(\Delta\theta).$$

При обчисленні  $R_{diff}^S$  враховувалося поглинання рентгенівських променів в порушеному шарі згідно [9].

Профіль відносної деформації задавався у вигляді суми асиметричної та спадної гаусіан [10], перша з яких описує відносну деформацію за рахунок радіаційних дефектів, що виникли внаслідок ядерних енергетичних втрат, а друга – за рахунок електронних енергетичних втрат:

$$D = \begin{cases} D_{\max}^{\mathcal{Y}} \exp[-(h - R_p^{\mathcal{Y}})^2 / \sigma_1^{\mathcal{Y}2}], & \text{якщо } h < R_p^{\mathcal{Y}} \\ D_{\max}^{\mathcal{Y}} \exp[-(h - R_p^{\mathcal{Y}})^2 / \sigma_2^{\mathcal{Y}2}], & \text{якщо } h \geq R_p^{\mathcal{Y}} \end{cases} \quad (1)$$

$$+ D_{\max}^E \exp[-(h - R_p^E)^2 / \sigma^E2]$$

$D = \Delta d / d$ ,  $h$  – відстань, яка відраховується від поверхні в глибину кристалу,  $R_p^{\mathcal{Y}}$  – точка зшивки асиметричної гаусіани,  $\sigma_1^{\mathcal{Y}}$ ,  $\sigma_2^{\mathcal{Y}}$  і  $\sigma^E$  – параметри гаусіан, які характеризують їх ширину на піввисоті. Верхні індекси  $\mathcal{Y}$  і  $E$  означають, що вказані параметри характеризують складові профілю, пов'язані з ядерними та електронними енергетичними втратами відповідно.

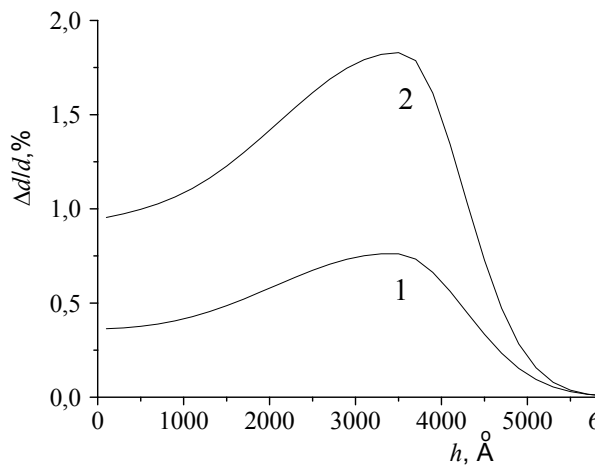


Рис. 6. Профілі відносної деформації в приповерхневому шарі ГТТ, імплантованому іонами He<sup>+</sup> з енергією 100 кеВ і дозами: 2·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup> (1), 6·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup> (2)

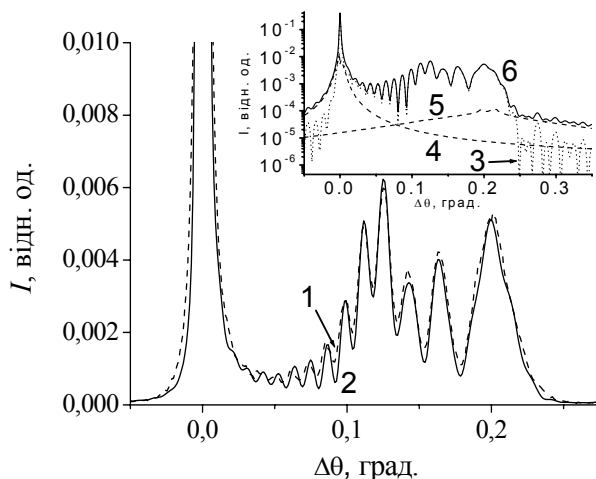


Рис. 7. Експериментальна (1) та теоретична з урахуванням апаратного уширення (2) КДВ від імплантованої іонами He<sup>+</sup> з дозою 2·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup> пластини монокристалу ГТТ (444). На вставці – когерентна (3), дифузна від підкладки (4) та порушеного шару (5) складові теоретичної КДВ, і їх сума (6)

Використовуючи функцію (1) для задання профілю відносної деформації, та цілеспрямовано змінюючи її параметри за допомогою спеціально складеної програми [11], обчислювалися профілі відносної деформації, які для доз 2·10<sup>15</sup>, 6·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup> представлені на рис. 6. Як бачимо, вони є однотипними, а товщина порушеного шару практично незмінною ~ 6000 Å.

При розрахунку теоретичних КДВ розподіл концентрації  $n(z)$  і радіуса дислокаційних петель  $R(z)$  в порушеному шарі задавалися пропорційними профілю відносної деформації  $\frac{\Delta d}{d}(z)$ , тому при автоматичній підгонці теоретичних КДВ до експериментальних цілеспрямованої зміни зазнавали параметри  $n_{\max}$  та  $R_{\max}$  – максимальні значення концентрації та радіуса петель (значення концентрації та радіуса в максимально деформованому підшарі). Розрахунки показали, що в іонно імплантованому шарі наявні дислокаційні петлі з максимальним розміром в межах від 150 до 340 Å у межах концентрацій від 2,5·10<sup>14</sup> до 4·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup>.

Приклад теоретичних та експериментальної КДВ для дози 2·10<sup>15</sup> см<sup>-2</sup> приведений на рис. 7. Як видно з рисунка, при вказаних розрахунках визначальним є форма фону за останньою осциляцією на "хвості" КДВ.

### Висновки

Комплексне X-променеве дифрактометричне дослідження монокристалів ГТТ з використанням дво- та трикристальної дифрактометрії показало, що в даних монокристалах ГТТ наявні в основному дефекти I класу по Кривоглазу. При цьому, основним типом ростових дефектів є дислокаційні петлі двох розмірів: малі ~50 Å ( $n=1\cdot10^{15}$  см<sup>-2</sup>) та великі ~6000 Å ( $n=1,1\cdot10^{10}$  см<sup>-2</sup>). Незважаючи на великі значення відносної деформації у перпендикулярному до площини пластини напрямі (до 3%), стан у площині пластин іонно-імплантованих монокристалів ГТТ є повністю напруженим. Основними типами радіаційних дефектів, які утворюються в приповерхневих шарах монокристалів ГТТ при імплантації іонами He<sup>+</sup> є точкові дефекти та петлі з розмірами ~150–340 Å.

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

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Кривоглаз М.А.* Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. – Киев: Наук. думка, 1983.
2. *Молодкін В.Б., Низкова А.И., Шпак А.П., Мачулін В.Ф., Кладько В.П., Прокопенко И.В., Кютт Р.Н., Кисловский Е.Н., Олиховский С.И., Фодчук И.М., Дышеков А.А., Хапачев Ю.П.* Дифрактометрия наноразмерных дефектов и гетерослоев кристаллов. – Киев: Академперіодика, 2005.
3. *Golovin A.L., Itatov R.M., Kondrashkina E.A.* Potentialities of New X-Ray Diffraction Methods in Structural Studies of Ion-Implanted Silicon Layers // *Phys. status solidi A.* – 1985. – **88.** - P. 505-514.
4. *Молодкін В.Б., Кладько В.П., Оліховський С.Й., Кисловський Є.М., Владімірова Т.П., Кочелаб Є.В., Середенко Р.Ф., Слободян М.В., Решетник О.В.* Дифракційна характеристика мікрodefектної структури ізохронно відпалених кристалів кремнію // *Металлофізика и новейшие технологии.* – 2009. – **31**, № 9. – С. 1205-1222.
5. *Molodkin V.B., Olikhovskii S.I., Kislovskii E.N., Len E.G., Pervak E.V.* Bragg diffraction of X-rays by single crystals with large microdefects. I. Generalized dynamical theory // *Phys. Stat. solidi. B.* – 2001. – **227**, No.2. – P. 429-447.
6. *Olikhovskii S.I., Molodkin V.B., Kislovskii E.N., Len E.G., Pervak E.V.* Bragg diffraction of X-rays by single crystals with large microdefects. II. Dynamical diffuse scattering amplitude and intensity // *Phys. Stat. solidi. B.* – 2002. – **231**, No/1. – P. 199-212.
7. *Єфанов О.М., Кладько В.П., Мачулін В.Ф., Молодкін В.Б.* Динамічна дифракція Х-променів у багаточастинкових структурах. – Київ: Наукова думка, 2008.
8. *Ковальчук М.В., Кон В.Г., Лобанович Э.Ф.* Измерение малых деформаций в тонких эпитаксиальных пленках кремния методом фотоэлектронной эмиссии, возбужденной стоячей рентгеновской волной // *ФТТ.* – 1985. – **27**, № 11. – С. 3379-3387.
9. *Олиховский С.И., Молодкін В.Б., Кисловский Е.Н., Лень Е.Г., Владимірова Т.П., Скакунова Е.С., Остафійчук Б.К.* Диффузное рассеяние рентгеновских лучей в ионно-имплантированных кристаллах // *Металлофізика и новейшие технологии.* – 2005. – **27**, № 5. – С. 653-675.
10. *Остафійчук Б.К., Федорів В.Д., Яремій С.І., Яремій І.П., Коцюбинський В.О., Бончик О.Ю.* Механізми дефектоутворення при імплантації монокристалів ГТГ іонами  $B^+$  та  $He^+$  // *Металлофізика и новейшие технологии.* – 2008. – **30**, № 9. – С. 1215-1227.
11. *Яремій І.П., Кравець В.І., Пилипів В.М., Яремій С.І.* Структурна діагностика приповерхневих шарів іонно-імплантованих монокристалів та плівок із структурою гранату // *Вісник Прикарпатського університету. Математика. Фізика.* – 2007. – Вип. III. – С. 59-65.