

В.В. Куровець В.Д. Федорів

Механізм аморфізації монокристалічних плівок залізо – ітрієвого гранату іонами гелію

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

У роботі проаналізовано механізм радіаційного дефектоутворення в монокристалічних плівках ЗІГ, імплантованих іонами гелію з енергією 100 кеВ. Встановлено, що імплантація плівок ЗІГ іонами гелію в інтервалі доз $1 \cdot 10^{15}$ - $1 \cdot 10^{16}$ см⁻² не призводить до утворення суцільного аморфного шару, а ступінь аморфізації плівки ЗІГ лінійно зростає від 0,02 до 0,21. Суцільний аморфний шар утвориться за умови $D \geq 8 \cdot 10^{16}$ He⁺/см².

Ключові слова: залізо-ітрієвий гранат, іонна імплантація, радіаційні дефекти, аморфізація.

Стаття постуила до редакції 03.01.2012; прийнята до друку 15.06.2012.

Вступ

Залізоітрієвий гранат (ЗІГ) $Y_3Fe_5O_{12}$ є досить відомим феримагнітним матеріалом, який знаходить широке застосування в якості активного середовища магнітооптичних і радіопристроїв, побудованих на принципах використання циліндричних магнітних доменів або феромагнітного резонансу [1, 2]. Одним із методів модифікації ЗІГ є іонна імплантація, яка дає можливість цілеспрямовано змінювати кристалічну структуру приповерхневого шару матеріалу, а відповідно і його магнітні властивості.

Так, у імплантованих іонами гелію плівках ЗІГ виявлена висока (до 80 % і більше) ефективність імпульсного перетворення обмінних спінових хвиль [3]. Встановлений ефект відкриває широкі перспективи для створення принципово нових надмініатюрних спінхвильових пристроїв аналогової обробки радіосигналів в діапазоні НВЧ аж до міліметрового і субміліметрового діапазону довжин хвиль. Тому дослідження змін кристалічної структури та магнітної мікроструктури, які відбуваються у при поверхневому шарі плівок ЗІГ внаслідок іонної імплантації є актуальним науковим завданням.

Метою роботи було вивчення механізму радіаційного дефектоутворення у ЗІГ, модифікованого іонами гелію з енергією 100 кеВ, шляхом моделювання процесу іонної імплантації, та аналіз ступеня аморфізації монокристалічних плівок ЗІГ в залежності від величини дози опромінення.

І. 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 $Gd_3Ga_5O_{12}$ із кристалографічною площиною зрізу (111), збагачені ізотопом ^{57}Fe до 14 %. Імплантація проводилася іонами гелію з енергією 100 кеВ в інтервалі доз $1 \cdot 10^{15}$ - $1 \cdot 10^{16}$ см⁻² при кімнатній температурі на прискорювачі МРВ-202 в умовах, що виключали самовідпал та каналювання.

Моделювання процесу дефектоутворення у плівках ЗІГ, підданих опроміненню іонами гелію, проводилось за допомогою програми SRIM-2003. Значення порогових енергій зміщення E_d атомів ітрію, заліза та кисню приймалися рівними 66, 56 та 40 еВ відповідно [4]. Опис процесу формування та розвитку каскаду атомних зіткнень здійснювався в наближенні аморфної мішені, що забезпечувалося умовами експерименту.

Спектри від імплантованих гелієм плівок ЗІГ отримано при кімнатній температурі методом конверсійної електронної месбауерівської (КЕМ) спектроскопії за допомогою установки ЯГРС-4М. Джерелом гамма-квантів слугував ^{57}Co у Cr активністю ~ 100 мКи. Калібрування здійснювалось відносно металічного заліза. Для реєстрації конверсійних електронів використовувався пропорційний газопроточний лічильник, що працював на суміші 96 % He + 4 % CH₄.

II. Моделювання процесу радіаційного дефектоутворення при імплантації $Y_3Fe_5O_{12}$ іонами гелію

Проходження високоенергетичної зарядженої частинки крізь тверде тіло супроводжується багаточисельними зіткненнями із атомами ґратки та передачею енергії частинки в ядерну та електронну підсистему мішені. Первинно вибитий атом (ПВА), якщо його енергія перевищує порогову енергію зміщення ($E \gg E_d$) також може зміщувати інші атоми мішені, тобто викликати каскад атомних зіткнень (КАЗ). Отже, радіаційне пошкодження структури матеріалу здійснюються за схемою $He^+ \rightarrow$ ПВА \rightarrow КАЗ. Як підтверджує експеримент [5] аморфна фаза утворюється в області матеріалу, де відбувається КАЗ. Легкі іони створюють окремі ізольовані об'єднання дефектів, що складаються з порівняно невеликого числа зміщених атомів і розташовані на відстані кількох міжатомних відстаней вздовж треку налітаючого іона. Із збільшення дози імплантації відбувається взаємодія окремих дефектних зон та утворення розупорядкованого шару.

Модель аморфізації твердих тіл швидкими

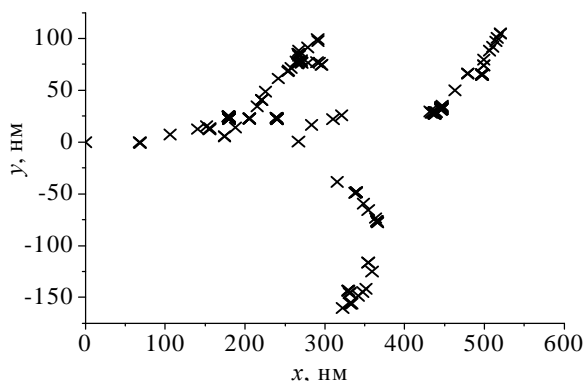


Рис. 1. Каскади атомних зіткнень, утворених у $Y_3Fe_5O_{12}$ при бомбардуванні трьома іонами гелію з енергією 100 кеВ. Хрестиками відмічено зміщені іони матриці.

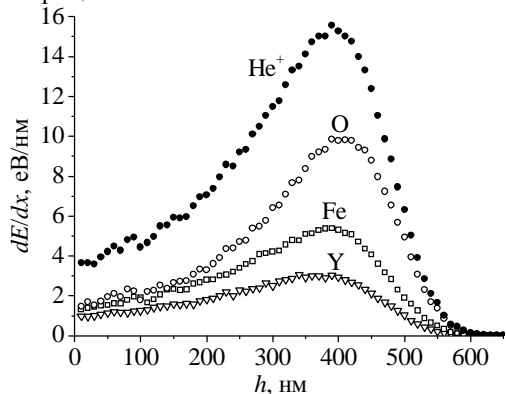


Рис. 2. Розподіл по глибині ядерних втрат іона гелію ($E = 100$ кеВ) при гальмуванні у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$ та розподіли енергій, поглинутих атомами кисню, заліза та ітрію.

частинками запропоновано в праці [6], де показано, що причиною аморфізації є радіаційні дефекти, які обумовлені хаотичним зміщенням атомів із вузлів кристалічної ґратки. У радіаційно модифікованому матеріалі має місце не класична аморфізація, а так звана аморфізація дисторсійного типу. При цьому мова йде про спотворення кристалу у масштабі елементарної комірки.

Деякі змодельованих каскадів атомних зіткнень, що виникають у ЗП при імплантації іонами гелію з енергією 100 кеВ, представлено на рис. 1, з якого видно, що при пружних зіткненнях іонів-імплантатів з атомами мішені окрім точкових дефектів можливе утворення радіаційно розупорядкованих областей (РРО).

При русі в кристалі ЗП із сталюю ґратки 1,2376 нм іон гелію в середньому приймає участь у 20 зіткненнях із атомами мішені, проходячи при цьому середню відстань 30 нм, тобто утворення первинних радіаційних дефектів шляхом ядерного гальмування можливе у кожній двадцятій елементарній комірці матеріалу. Кількість точкових дефектів (пар Френкеля) створюваних одним атомом гелію рівна ≈ 50 . 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. Окрім точкових дефектів зафіксовано ймовірність, яка складає ≈ 5 %, виникнення РРО із числом атомів у каскаді ≥ 10 . Отже, руйнування кристалічної структури відбуватиметься шляхом накопичення точкових дефектів та їх комплексів у процесі зростання дози опромінення.

При гальмуванні іона гелію у плівці $Y_3Fe_5O_{12}$ найбільш інтенсивним є процес передачі енергії у електронну підсистему мішені. Електронні 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 ЗП представлено на рис. 2 ($\bar{\sigma}_n = 8,6 \cdot 10^{-18}$ см²). Максимум ядерних втрат припадає на глибину 400 нм.

Як видно з рис. 3, найефективніше енергія іонів гелію передається у аніонну підґратку мішені (співвідношення зміщених атомів O:Fe:Y становить 14:6:3). Теоретично розрахований розподіл іонів гелію (рис. 3) характеризується середнім проекційним пробігом $R_p = 460$ нм і його можна описати “зшивкою” двох гаусівських розподілів з стандартними відхиленнями $\Delta R_{p1} = 100$ нм ($h \leq R_p$) і $\Delta R_{p2} = 60$ нм ($h > R_p$); максимальна глибина залягання впроваджених іонів гелію складає порядку 600 нм.

У ряді теоретичних [7, 8] та експериментальних робіт [9, 10] утворення стійкої розупорядкованої ділянки можливо при передачі бомбардуючим іоном первинно вибитому атому енергії ≥ 1 кеВ. Враховуючи вище сказане, було проведено оцінку

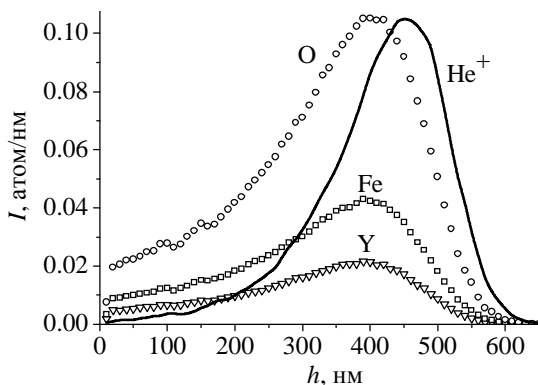


Рис. 3. Теоретичний розподіл зміщених іонів матриці та розподіл іонів гелію (без шкали) з енергією 100 кеВ, імплантованих у плівку ЗП.

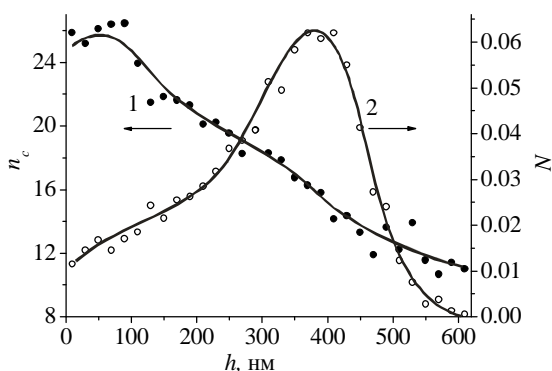


Рис. 4. Теоретично розраховане середнє число атомів у каскаді n_c (1) та відносна кількість каскадів (2), утворених на ділянці проективного пробігу $\Delta x = 20$ нм іона гелію.

ймовірності виникнення РРО по глибині імплантованого шару, вважаючи, що РРО мають форму еліпсоїда. Як показали розрахунки середній лінійний розмір каскадів становить 10 нм, тому II шар розбивали на ділянки товщиною 20 нм, щоб вміщувався цілий каскад.

Розрахований розподіл середньої кількості атомів n_c у РРО та відносної кількості каскадів N на ділянці проективного пробігу $\Delta x = 20$ нм іона-імплантата представлено на рис. 4. Як виявилось, РРО із найбільшою кількістю атомів утворюються у приповерхневій ділянці матеріалу, проте максимальна кількість РРО знаходиться на глибині 370 нм. Отже, аморфізація плівки буде починатися в області кристала де кількість РРО є найбільшою шляхом їх об'єднання у комплекси із наступним злиттям у суцільний аморфний шар.

Із розподілів середньої кількості атомів у РРО та відносної кількості каскадів (рис. 4) було отримано розподіл зміщених іонів матриці при високоенергетичних зіткненнях іонів гелію з атомами мішені (рис. 5). Як виявилось, крива отриманого розподілу співпадає з розрахованим із експериментальних кривих дифракційного відбивання профілем відносної деформації приповерхневого шару імплантованих плівок ЗП, отриманим нами раніше у роботі [11].

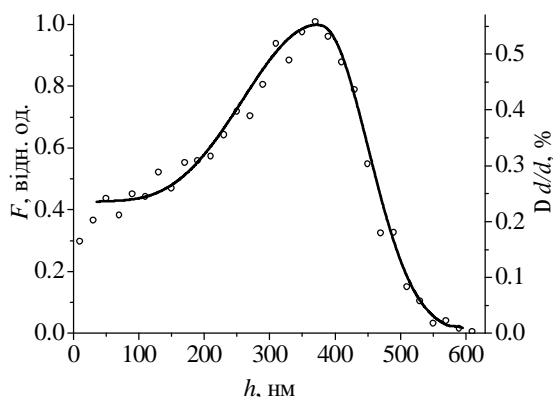


Рис. 5. Функція розподілу зміщених іонів матриці при високоенергетичних зіткненнях іона гелію (точки) та експериментально розрахований профіль відносної деформації (суцільна лінія) [11].

III. Результати експерименту та їх обговорення

Згідно [8-10] частка аморфізованої речовини в одиниці об'єму, що утворюється у матеріалі внаслідок іонної імплантації визначається

$$\Omega = 1 - \exp\left[-\frac{D(\gamma w + q)}{N}\right],$$

де D – доза опромінення, w – ймовірність утворення аморфної зони на одиниці шляху іона, N – кількість атомів мішені в одиниці об'єму, q – кількість точкових дефектів на одиниці шляху іона.

Вирази для w і q мають вигляд

$$w = 2gN \left[\frac{1}{\sqrt{e_1 E}} - \frac{1}{E\sqrt{I}} - \frac{1}{E_1} \ln \left(\frac{1 + E_1/\sqrt{Ee_1}}{1 + E_1/(E\sqrt{I})} \right) \right]$$

$$q = \frac{gN}{E_d} \frac{\ln \left(1 + \sqrt{I} \frac{E}{E_1} \right)}{E/E_1},$$

$$\text{де } r_1 = 0,47 \cdot 10^{-8} \text{ см; } E_1 = \frac{8e^2}{pr_1} z_i z_a j \sqrt{\frac{M_i}{M_a}},$$

$$g = \frac{p^2}{8} \frac{z_i z_a}{j} e^2 r_1 \sqrt{\frac{M_i}{M_a}}, j = (\sqrt{z_i} + \sqrt{z_a})^{2/3},$$

$$I = \frac{4M_i M_a}{(M_i + M_a)^2},$$

E_d – порогова енергія зміщення, M_i , M_a – маси іона і атома мішені, z_i , z_a – атомні номери іона і атома мішені, e – заряд електрона, $\epsilon_1 = 1000$ еВ, $v_0 = 500$.

За даними співвідношеннями було розраховано ступінь аморфізації Ω плівки ЗП внаслідок імплантації іонів гелію з енергією 100 кеВ у залежності від дози опромінення (рис. 6). Згідно [9] при імплантації плівки ЗП іонами гелію з параметрами, що відповідають $\Omega = 0,85$, відбувається

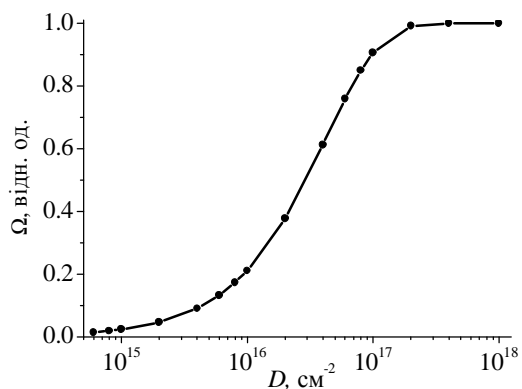


Рис. 6. Теоретично розрахований ступінь аморфізації плівки ЗП іонами гелію з енергією 100 кеВ у залежності від величини дози опромінення.

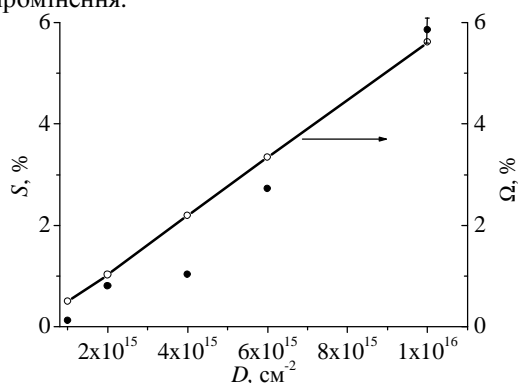


Рис. 7. Відносна інтегральна інтенсивність парамагнітного дублету у КЕМ-спектрі (точки) та теоретично розрахований ступінь аморфізації (суцільна лінія) імплантованої іонами гелію з енергією 100 кеВ монокристалічної плівки $Y_3Fe_5O_{12}$ у залежності від величини дози опромінення.

об'єднання окремих аморфних зон у суцільний шар, тобто доза аморфізації для наших умов експерименту становитиме $8 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. Таке ж значення величини дози аморфізації плівки ЗП іонами гелію ($E = 100 \text{ кеВ}$) одержується при моделюванні процесу радіаційного пошкодження плівки ЗП, застосовуючи програму SUSPRE. При цьому товщина аморфного шару складає порядку 600 нм, а концентрація впроваджених іонів гелію становить $\approx 5 \text{ ат. \%}$.

Згідно з [12] при кімнатній температурі РРО являють собою парамагнітні включення в феримагнітній матриці. Як впливає із результатів месбауерівських досліджень, при дозах опромінення $\leq 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ спостерігається лінійний ріст інтегральної інтенсивності дублетної компоненти КЕМ-спектру (рис. 7). Оскільки месбауерівський спектр формується шляхом інтегральної реєстрації електронів конверсії з глибин $\sim 150 \text{ нм}$ [13] було проведено перерахунок ступеня аморфізації плівки ЗП іонами гелію у приповерхневому шарі товщиною 150 нм, враховуючи функцію розподілу зміщених

іонів матриці при високоенергетичних зіткненнях.

Порівняльний аналіз залежностей відносної інтегральної інтенсивності парамагнітного дублету у КЕМ-спектрі імплантованої монокристалічної плівки ЗП та теоретично розрахованого ступеня аморфізації плівки у залежності від дози опромінення іонами гелію (рис. 7) показує на узгодженість теоретичних розрахунків із експериментальними даними.

Отже, у досліджуваному інтервалі доз опромінення ($1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{см}^2$) ступінь аморфізації плівки ЗП лінійно зростає від 0,02 до 0,21. Імплантація плівок ЗП іонами гелію з енергією 100 кеВ в інтервалі доз $1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ не призводить до утворення суцільного аморфного шару. Зародження заглибленого аморфного шару буде відбуватися при дозі $\geq 2 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{см}^2$ при концентрації впровадженої домішки 1 ат. %, суцільний аморфний шар утвориться при дозі опромінення іонами гелію $\geq 8 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$.

Висновки

Проведене моделювання процесу радіаційного дефектоутворення у ЗП при імплантації іонів гелію з енергією 100 кеВ показало, що найбільш ймовірним є утворення пар Френкеля – 65 %, розвиток каскадів із двох атомів віддачі становить 15 %, трьох – 7 %, чотирьох – 4 % і т. д. Виникнення КАЗ числом атомів у каскаді ≥ 10 можливе у $\approx 5 \text{ \%}$ випадків.

Середній проекційний пробіг іонів гелію складає 460 нм максимальна глибина залягання впроваджених іонів гелію складає порядку 600 нм.

Отримано розподіл зміщених іонів матриці при пружних зіткненнях іона гелію з атомами мішені, в яких передається енергія $> 1 \text{ кеВ}$, вигляд якого повторює експериментальний профіль відносної деформації у приповерхневому шарі плівок ЗП. Радіаційно розупорядковані області з найбільшою кількістю зміщених атомів утворюються у приповерхневій зоні ($\leq 100 \text{ нм}$), проте їхня максимальна кількість знаходиться на глибині 370 нм.

У досліджуваному інтервалі доз опромінення ($1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{см}^2$) ступінь аморфізації плівки ЗП лінійно зростає від 0,02 до 0,21. Імплантація плівок ЗП іонами гелію з енергією 100 кеВ в інтервалі доз $1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ не призводить до утворення суцільного аморфного шару. Зародження заглибленого аморфного шару буде відбуватися при дозі опромінення іонами гелію $\geq 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$, а суцільний аморфний шар утвориться за умови $D \geq 8 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{см}^2$.

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

Федорів В.Д. – к. ф.-м. н., доц. кафедри матеріалознавства і новітніх технологій.

- [1] Rezlescu E., Rezlescu N. Garnet films for storage applications: growth and properties // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 193, pp. 140-142 (1999).
- [2] *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).
- [3] В.В. Тихонов. Резонансный механизм возбуждения обменных спиновых волн в слоистых монокристаллических феррит-ферритовых структурах // *Известия Саратовского университета. Сер. Физика*, 9(1), сс. 17-32 (2009).
- [4] S.V. 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).
- [5] Дубинин С.Ф., Пархоменко В.Д. Теплоухов С.Г. // *ФММ*, 85(6), (1998).
- [6] Дубинин С.Ф., Пархоменко В.Д. Теплоухов С.Г., Гошицкий Б.Н. Аморфизация твердых тел быстрыми нейтронами // *ФТТ*, 40(9), сс. 1584-1588 (1998).
- [7] Мартытенко Ю.В. О радиационном повреждении кристаллов при облучении атомными частицами // *ФТТ*, 11(7), сс. 1968-1972 (1969).
- [8] В.М. Гусев, Ю.В. Мартытенко, К.В. Старинин. Об аморфизации кристаллов кремния при облучении быстрыми ионами // *Кристаллография*, 14(6), сс. 1050-1054 (1969).
- [9] А.В. Маркелис, Л. И. Пранявичюс О механизме подавления “жестких” цилиндрических доменов в ионноимплантированных ферритгранатовых пленках // *Литовский физ. сб.*, 18(5) сс. 647-652 (1978).
- [10] Б.К. Остафійчук, В.М. Ткачук. Процеси дефектоутворення в залізо-ітрієвому гранаті при імплантації важкими іонами // *Фізика і хімія твердого тіла*, 3(1), сс. 81-87 (2002).
- [11] В.В. Куровець. Радіаційне дефектоутворення в імплантованих іонами гелію монокристалічних плівках залізо-ітрієвого гранату // *Фізика і хімія твердого тіла*, 11(4) сс. 884-888 (2010).
- [12] В.Н. Бережанский, В.Е. Петров, В.Л. Козок. Спин-волновой резонанс в ионно-имплантированных феррит-гранатовых структурах // *ФТТ*, 33(11), сс. 3372-3377 (1991).
- [13] О.М. Ткачук, В.М. Ткачук Мессбауерівські дослідження залізо-ітрієвого гранату, імплантованого важкими іонами // *УФЖ* 44(3), сс. 391-393 (1999).

V.V. Kurovets, V.D. Fedoriv

The Mechanism of Amorphization in Single Crystalline Ferrite-Garnet Films by Helium Ions

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

The mechanism of radiation defect formation in single crystalline ferrite-garnet films implanted by helium ions with an energy of 100 keV are investigated. Found that implantation of YIG films by helium ions in the dose range $D = 1 \cdot 10^{15} - 1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ does not lead to the formation of a continuous amorphous layer, and the degree of amorphization of YIG films increases linearly from 0.02 to 0.21. Continuous amorphous layer is formed if $D \geq 8 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$.

Key words: yttrium-iron garnet, ion implantation, radiation defects, amorphization.