

F离子弹性反冲法分析固体中H的深度分布*

刘家瑞 朱沛然 封爱国

(中国科学院物理研究所)

李大万

(中央民族学院物理系)

1987年2月18日收到

提 要

本文报道7—8MeV F^{4+} 离子弹性反冲法(ERD)分析固体中H的深度分布。实验和理论分析表明,近表面处的深度分辨率为200—300Å。探讨了散射几何条件和入射能量等的最佳化问题。比较了同一样品用F离子ERD法与6.4MeV ${}^1\text{H}({}^{19}\text{F}, \alpha\gamma){}^{16}\text{O}$ 核反应法(NRA)的测试结果。表明F离子ERD法是快速(5—10min)、低辐照(5—10 μC)、深度分辨和灵敏度较好的分析固体中H的深度分布的一种方法。

一、引 言

1976年L'Ecuyer^[1]提出了分析重基体上轻元素的ERD法以来,显示出其广泛的应用前景^[2-4]。在轻元素的(${}^1\text{H}$ — ${}^{16}\text{O}$)分析中H的分析是人们感兴趣的课题。对H的分析而言,共振核反应 ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N}, \alpha\gamma){}^{12}\text{C}$ ^[5](入射N离子共振能量为6.385MeV)和 ${}^1\text{H}({}^{19}\text{F}, \alpha\gamma){}^{16}\text{O}$ ^[6](入射F离子共振能量为6.4MeV或16.44MeV)以及较高能量的重离子ERD法^[2,7](30—35MeV的 ${}^1\text{H}({}^{35}\text{Cl}, p){}^{35}\text{Cl}$)都是很成功的,但均需较高能量的加速器。据此,Doyle^[8]1979年用2.4MeV He^+ 的ERD法分析了H的深度分布。但其深度分辨约700Å,灵敏度约0.1at%,显然不如重离子的ERD法的结果。

本文介绍利用 $2 \times 1.7\text{MV}$ 小串列加速器产生的7—8MeV F^{4+} 的ERD法分析固体中H深度分布的结果^[11]。

二、原理和实验

弹性反冲是一种库仑相互作用的弹性散射过程。当质量为 M_1 、能量为 E_0 的入射粒子与深度 x 处的靶粒子 M_2 弹性碰撞时,碰撞前入射粒子在入射路径上的能量损失为 $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{in}} \frac{x}{\sin \alpha}$,在出射路径上的反冲粒子的能量损失为 $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{out}} \frac{x}{\sin(\theta - \alpha)}$,因此出射的反冲粒子能量为

$$E_3 = KE_0 - [S]x, \quad (1)$$

其中

$$K \equiv \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cos^2 \theta, \quad (2)$$

* 国家自然科学基金资助的课题。

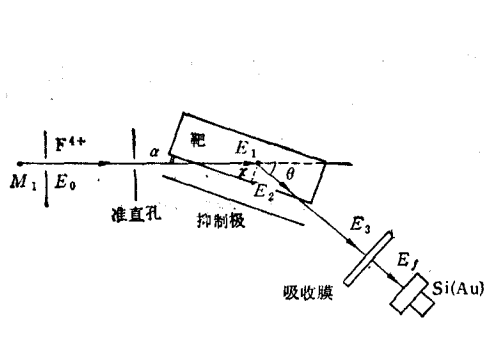


图 1

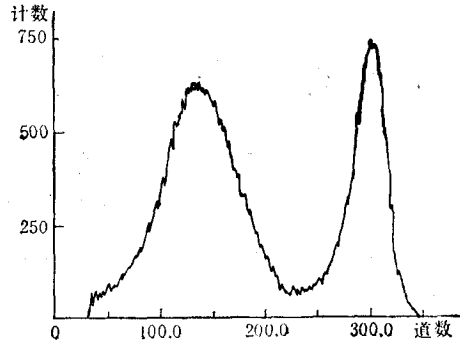


图 2

实验条件: $E_0 = 7.500\text{MeV F}^{4+}$; $\alpha = 10^\circ$; $\theta = 30^\circ$

$$[S] \equiv K \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\text{in}} \frac{1}{\sin \alpha} + \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\text{out}} \frac{1}{\sin(\theta - \alpha)} \quad (3)$$

从(1)式可见,测量反冲粒子的能谱,就能获得反冲元素深度分布的信息.

在反冲粒子中,不仅有待测H元素,还有基底材料元素的反冲和入射粒子的前向散射.根据重元素在物质中的阻止本领大于轻元素,因而在探测器前加适当厚度的吸收膜即可吸收大于H元素的其它粒子,但H元素通过时也有能量损失 $\delta E_a(E_3)$,因此,探测器实测能量为

$$E_f(x) = E_3(x) - \delta E_a(E_3). \quad (4)$$

若已知微分反冲截面 $\sigma(E_1)$,在忽略能散的情况下,把能谱曲线上 E_f 处 dE_f 区间的计数 $n(E_f)dE_f$ 与对应深度 x 处 dx 范围内待测元素浓度 $c(x)$ 联系起来

$$n(E_f)dE_f = IQ\sigma(E_1)c(x)dx, \quad (5)$$

其中 I 为入射粒子总数, Q 为探测器对靶点所张立体角,当反冲截面 $\sigma(E_1)$ 是 Rutherford 截面时,则

$$\sigma(E_1) = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)}{2M_2 E_1} \right]^2 \frac{1}{\cos^3 \theta}, \quad (6)$$

其中 Z_1, Z_2 分别为入射粒子和反冲粒子的原子序数.

从(5)式看出,分析能谱曲线可以定出待测元素的浓度分布.

实验安排如图 1 所示.由 $2 \times 1.7\text{MV}$ 小串列加速器产生 $7-8\text{MeV F}^{4+}$ 离子;通过间距 1.1m 的 $1.0 \times 1.0\text{mm}^2$ 的两准直孔(束发散角 $\sim 0.07^\circ$) 打到靶上;靶是固定在三维定角器上(精度为 0.01°);反冲质子在 θ 角方向由 $\delta E_a = 12\text{keV}$ 的 Si(Au) 探测器接收,其信号经前置放大器、主放大器送至 ND683 多道计算机系统处理.

实验中取 $\theta = 30^\circ, \alpha = 7^\circ, 10^\circ, 15^\circ, 23^\circ$.因 ERD 法的深度分辨率和可探测深度等参数对 α, θ 的变化敏感(尤其对 α 很敏感),所以调准离子束、靶和探测器的几何位置是重要的.调节从靶室窗口入射的一束 He-Ne 激光束,使之与离子束轴重合.安置靶片后,其后表面反射光束与入射束重合后作为定角器的零点,这样入射角 α 可精确定位,误差 $\pm 0.02^\circ$. θ 角变化依据探测器固定架刻度,精度 $\pm 0.5^\circ$.探测器距靶 50mm ,其前加 $\phi 2\text{mm}$ 光栏和吸收膜($8\mu\text{m}$ 聚脂薄膜或 $5\mu\text{mAl}$ 膜),靶前设置 -300V 的抑制极.

三、结果与讨论

本工作建立用 F 离子 ERD 法分析固体中 H 的深度分布的技术, 并研究此方法可能达到的水平(深度分辨率、可探测深度、辐照剂量等)及可靠性。所以对同一个非晶硅中注入氢的样品 a-Si:H (注入能量为 25keV, 注入剂量为 $5 \times 10^{16}/\text{cm}^2$), 用不同的人射能量 E_0 (7—8MeV)、不同的人射角 α (7° , 10° , 15° , 23°)、不同的吸收膜($8\mu\text{m}$ 聚脂薄膜, $5\mu\text{mAl}$ 膜)条件作了一系列实验, 获取了有关的能谱。实验表明, 上述不同吸收膜差别不大。

典型的能谱如图 2 所示。能谱图高能段的尖峰为表面吸附 H 峰, 低能区的宽峰是注入 H 离子的分布。

同一样品, 在不同的人射能量 E_0 、不同的人射角 α 下获取的能谱分别如图 3 和图 4 所示。

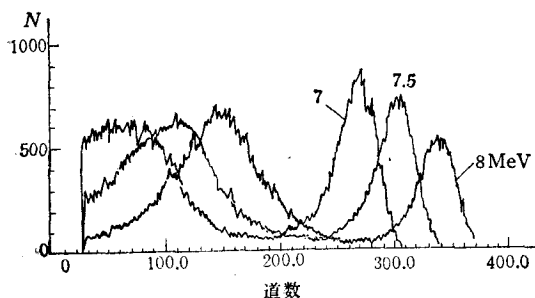


图 3 不同 E_0 下的反冲质子能谱
 $\alpha = 7^\circ$; $\theta = 30^\circ$

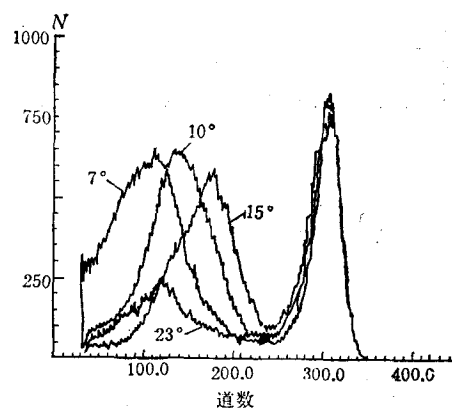


图 4 不同 α 下的反冲质子能谱
 $E_0 = 7.500\text{MeV}$; $\theta = 30^\circ$

下面讨论从能谱图得到元素浓度分布的方法; 深度分辨率的计算; 最佳实验条件的选择以及 ERD 法与 NRA 法的比较。

1. 从能谱得出待测元素浓度分布 $c(x)$ 的方法

利用 ND683 多道计算机系统, 模拟谱与实验谱比较逐次逼近方法, 从能谱得到待测元素的浓度分布 $c(x)$ 。

先根据已知样品条件, 设定一元素的浓度分布, 利用自编 CSERD 程序输入设定的浓度分布, 即可得出一计算机模拟谱; 通过模拟谱与实验能谱比较, 修改初设的浓度分布; 再输入 CSERD 程序, 得到新的模拟谱; 反复四、五次得到模拟谱与实验谱基本重合的元素浓度分布。实际上这是考虑了分辨率的影响后得出的浓度分布, 更接近真实值。

在 CSERD 程序中, 有关能损 (F 离子在 Si 中的能损、H 在 Si 中能损及 H 在吸收膜中的能损) 的计算采用文献[9]的程序。浓度的绝对值采用 NRA 法所测注入 H 峰的值,

即 $3.95 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 。

如此得到的H浓度的深度分布如图5所示。为比较起见,同时示出本实验室用 $6.4\text{MeV } ^1\text{H}(^{19}\text{F}, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$ 核反应所测结果^[10]。

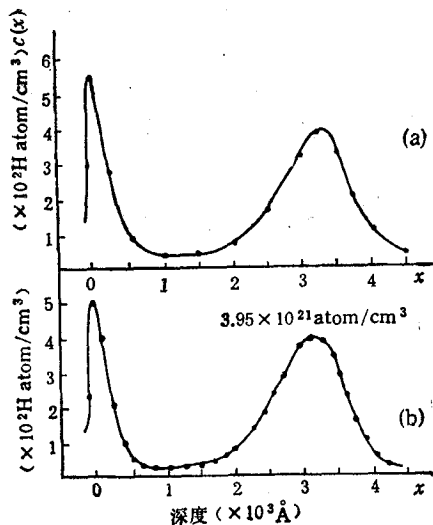


图 5

a-Si:H 样品; (a) 为 ERD 法; (b) 为 NRA 法

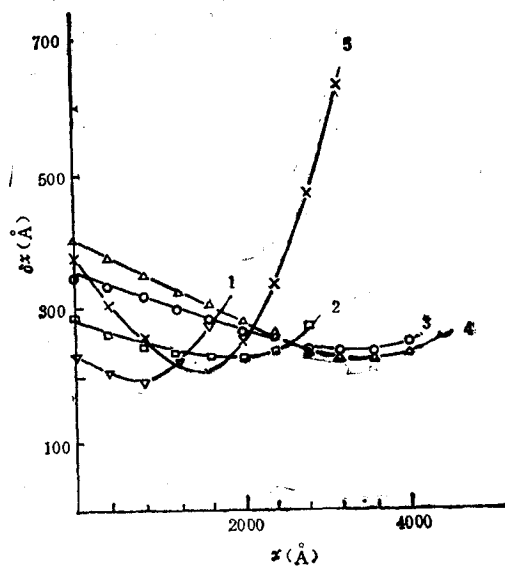


图 6

$E_0 = 7\text{MeV } \text{F}^{4+}$; $\theta = 30^\circ$; 1— $\alpha = 5^\circ$;
2— $\alpha = 10^\circ$; 3— $\alpha = 15^\circ$; 4— α
= 20° ; 5— $\alpha = 25^\circ$

2. 深度分辨率 δx

深度分辨率

$$\delta x = \delta E_s / [S], \quad (7)$$

其中 δE_s 为探测系统总的能量分辨率; $[S]$ 如(3)式所示。

与文献[7]和[8]类似, δE_s 中考虑了: (1) 探测器的能量分辨率 δE_d ; (2) 由于探测器的张角及束的发散引起的几何加宽 δE_g ; (3) 能量歧离 $\delta E'_{es}$, $i = 1, 2, 3$ 分别标记入射束的能量歧离及出射束在靶内和吸收膜中的能量歧离; (4) 多次散射引起的展宽 $\delta E'_{ms}$ 。并假定这些贡献是各自独立的, 那么总的能量分辨率为

$$\delta E_s^2 = \delta E_d^2 + \delta E_g^2 + \sum_{i=1}^3 (\delta E'_{es})^2 + (\delta E'_{ms})^2. \quad (8)$$

如此计算的 δx (见图 6), 在 $E_0 = 7\text{MeV } \text{F}$ 离子, $\theta = 30^\circ$, $\alpha = 10-20^\circ$, $5\mu\text{mAl}$ 吸收膜条件下, $x_{\text{max}} < 4500 \text{ \AA}$, $\delta x \sim 200-300 \text{ \AA}$, 这显然优于 $E_0 = 2.4\text{MeV}$ 、He 离子 ERD 法得到的 δx ^[8]。

3. 最佳实验条件的选取

根据所要分析样品的特征, 即它所提出的 δx 、 x_{max} 以及灵敏度的要求, 选择最佳实验条件(包括 E_0 、 θ 、 α 、吸收膜等)是得到好的实验结果所必须考虑的问题。

(1) 从 δx 考虑

1) 计算表明(见图 6), 入射角 α 对 δx 很敏感, 在近表面处, 一般说 α 小时(如 $\alpha = 5^\circ$), δx 小, 而 $x_{\max} < 4500 \text{ \AA}$, 通常选 $\alpha = 10-20^\circ$ 为宜。

2) 计算表明, 若吸收膜选得刚好全部吸收散射的 F 离子, 则入射能量 E_0 的增加(5—7.5MeV) 对 δx 并不有利, 但其敏感程度不像 α 那样严重, 具体情形见图 7。

(2) 可探测深度 x_{\max}

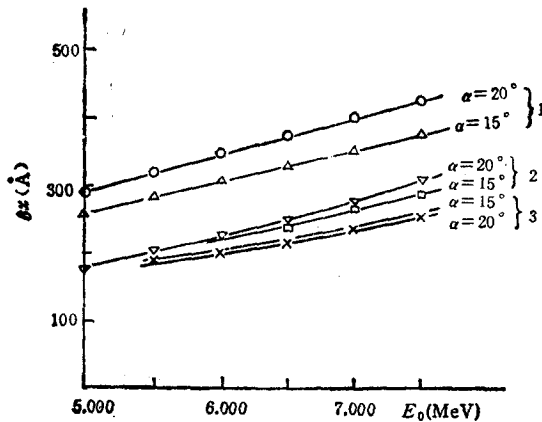


图 7

$\theta = 30^\circ$; 1— $x = 0$; 2— $x = 2000 \text{ \AA}$;
3— $x = 2800 \text{ \AA}$

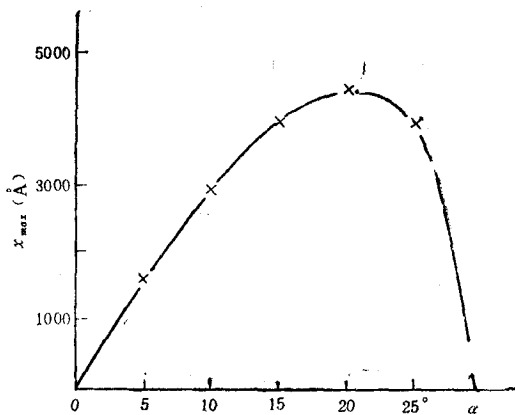


图 8

$E_0 = 7 \text{ MeV F}^{4+}$; $\theta = 30^\circ$; $5 \mu\text{m Al}$ 吸收膜

当 E_0 增加时 x_{\max} 提高是显然的。

在相同 E_0 下, α 对 x_{\max} 也相当敏感。当 α 小(如 $\alpha = 7^\circ$) 时, 固然 δx 小, 但 x_{\max} 却比 α 大(如 $\alpha = 20^\circ$) 时小得多, 如图 8 所示。

(3) 根据 x_{\max} 和 δx 的要求, 大致选定 F 离子的入射能量 E_0 和某种吸收材料的厚度; 但有时找不到合适的吸收膜, 此时按照已有的吸收膜来重新调整 E_0 和 α 等参数是完全必要的。

根据以上三方面的分析, 看出实验条件的最佳选择是重要的, 但也是困难的。本实验室的自编程序可作实验前的模拟计算, 完成实验优化选择。

4. ERD 法与 NRA 法的比较

图 5 表示用 $E_0 = 7.500 \text{ MeV F}^{4+}$ 离子 ERD 法 ($\alpha = 10^\circ$, $\theta = 30^\circ$) 和 6.4 MeV F 离子 ${}^1\text{H}({}^{19}\text{F}, \alpha\gamma){}^{16}\text{O}$ 核反应法对同一样品测得的 H 浓度的深度分布。两种方法所测得结果符合很好(无论是注入 H 峰的位置还是峰宽), 说明所建立的 ERD 法是可靠的, 其深度分辨率也与 NRA 法可比拟。

在 ERD 法中, 为得到峰值计数 $N \sim 500$, 样品承受的剂量约 $5-10 \mu\text{C}$; 而在 NRA 法中, 测每一点(即每个深度)辐照剂量约 $10 \mu\text{C}$, 获取整个能谱过程中样品所承受剂量为 $300 \mu\text{C}$, 比 ERD 法大几十倍。因而, F 离子 ERD 法测 H 深度分布是既快速、经济, 辐照损伤又小的方法。单从分析 H 的深度分布考虑, 两种方法各有所长, 相辅相成, 可根据

测试要求选择采用。

参 考 文 献

- [1] J. L'Ecuyer, C. Brassard, C. Cardinal, J. Chabbal, L. Deschenes, J. P. Labrie, B. Terreault, J. G. Martel and R. Stjacques, *J. Appl. Phys.*, 47(1976), 381.
- [2] J. L'Ecuyer, C. Brassard, C. Cardinal and B. Terreault, *Nucl. Instr. Meth.*, 149(1978), 271.
- [3] C. Nölscher, K. Brenner, R. Knaut and W. Schmidt, *Nucl. Instr. Meth.*, 218(1983), 116.
- [4] J. P. Thomas, M. Fallavier, D. Ramdane, N. Chevarier and A. Chevarier, 218(1983), *Ibid.*, 125.
- [5] W. A. Lanford *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 28(1976), 566.
- [6] D. A. Leich & T. A. Tombrello, *Nucl. Instr. Meth.*, 108(1973) 67.
- [7] C. C. P. Madiba, J. P. F. Sellschop, H. J. Annegarn, B. R. Appleton, *Nucl. Instr. Meth.*, 218(1983), 409.
- [8] B. L. Doyle and P. S. Perry, *Appl. Phys. Lett.*, 34(1979), 811.
- [9] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, (1985), p. 202.
- [10] 罗飞等, 原子核物理, 3(1986), 257.
- [11] Liu Jiarui *et al.*, *Chin. Phys. Lett.*, 4(1987), 249.

DETERMINATION OF HYDROGEN DEPTH PROFILE IN SOLIDS BY DETECTION OF RECOILED PROTON WITH MeV F IONS

LIU JIA-RUI ZHU PEI-RAN FENG AI-GUO

(Institute of Physics, Academia Sinica)

LI DA-WAN

(Department of Physics, Central Nationality Institute of China)

ABSTRACT

Depth profiling of hydrogen in solids has been performed by Elastic Recoil Detection (ERD) with multicharged F ions at a 1.7 MV Tandem accelerator. Both experimental and theoretical analysis show the depth resolution of about 200—300 Å in the near-surface regions of solids. The optimization of the experimental conditions such as scattering geometry and incident beam energy are discussed. The comparison of ERD with multicharged F ions and $^1\text{H}(^{19}\text{F}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$ resonance reaction at 6.4 MeV for the same samples demonstrated that hydrogen profiling by ERD with F ions is a fast and economic method with low radiation damage and perfect depth resolution.