

И-485

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

14-89-629

ИЛЬХАМОВ
Равшан Абрарович

УДК 539.1.06: 539.121.7

ИССЛЕДОВАНИЕ
КОНЦЕНТРАЦИОННЫХ ПРОФИЛЕЙ ЭЛЕМЕНТОВ
НА ПУЧКАХ УСКОРЕННЫХ ИОНОВ
ВОДОРОДА И ГЕЛИЯ

Специальность: 01.04.16 - физика
атомного ядра и элементарных частиц

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1989

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики
Объединенного института ядерных исследований, Дубна

Научные руководители: кандидат физико-математических наук
КОБЗЕВ А. П.

кандидат физико-математических наук
ХОЛБАЕВ И.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник
ГАНГРСКИЙ Ю. П.

кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник
ПОЯРКОВ В. А.

Ведущее предприятие: Научно-исследовательский институт ядерной
физики МГУ им. М. В. Ломоносова, Москва

Защита диссертации состоится " " _____ 19 ____ года
в " " час. на заседании специализированного совета Д 047.01.05
при Лаборатории нейтронной физики и Лаборатории ядерных реакций
Объединенного института ядерных исследований (г. Дубна, Московская
область).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ
Автореферат разослан " " _____ 1989 г.

Ученый секретарь
специализированного совета

Ю. В. Таран

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы. Интенсивное развитие науки и техники определило быстрые темпы разработки новых аналитических методов. Причем требования, предъявляемые наукой и техникой, состоят, в первую очередь, в необходимости исследовать не просто интегральное содержание примесей в образце, а находить профили концентраций определяемых элементов в поверхностных слоях, кардинально влияющих на свойства материалов. Поэтому особую весомость приобретают методы исследования поверхности и профилей распределения примесей. Среди этих методов видное место занимают методы локального анализа состава и структуры материалов, основанные на использовании пучков заряженных частиц. Наиболее распространенные в настоящее время методы измерения глубинного распределения примесей требуют послойного травления, т.е. по сути являются методами разрушающего контроля.

В связи с этим повышенный интерес вызывают быстро прогрессирующие неразрушающие методы анализа, основанные на использовании моноэнергетических пучков ускоренных ионов с энергией в несколько мегаэлектронвольт. К ним относятся метод резерфордского обратного рассеяния, метод возбуждения атомов с регистрацией характеристического рентгеновского излучения, метод ядер отдачи и другие. Каждый из перечисленных методов позволяет решать довольно широкий круг задач, однако некоторые из них могут быть решены только путем сочетания нескольких методов, использующих ионные пучки. Такое сочетание методов анализа, основанных на регистрации различных продуктов взаимодействия ионов пучка с веществом значительно расширяет диапазон определяемых элементов и глубин. Так, использование резерфордского обратного рассеяния (РОР) наиболее эффективно при исследовании многослойных структур (состава и толщины последовательно нанесенных тонких пленок), поскольку метод обладает высоким разрешением по глубине. Метод характеристического рентгеновского излучения (ХРИ), возбуждаемого ионами, обладает высокой чувствительностью для большинства элементов и разрешением по массам, позволяющим одновременно определять широкий круг элементов, в том числе и близкие по Z; характеризуется относительно большой глубиной анализа (до

Объединенный институт
ядерных исследований
Дубна

десятков микрон). Самые легкие элементы, в том числе водород, могут определяться методом ядер отдачи. Изучение распределения водорода по глубине образца является весьма актуальным, поскольку присутствие этого элемента оказывает существенное влияние на свойства многих конструкционных материалов.

Цель работы - создание методик определения концентрационных профилей элементов в поверхностных слоях материалов по измерению резерфордского обратного рассеяния, характеристического рентгеновского излучения и протонов отдачи на пучках ускоренных ионов водорода и гелия и использование разработанных методик для решения различных прикладных задач.

Научная новизна.

1. Методом резерфордского обратного рассеяния исследована эффективность геттерирования атомов золота в кремнии n- и p-типа после имплантации ионов неона.

2. Методом характеристического рентгеновского излучения при изменении энергии зондирующего пучка протонов исследовано распределение по глубине концентрации железа в структуре железо-никель.

3. Методом протонов отдачи исследовано содержание водорода в ряде фосфатных стекол, а также изменение концентрационного профиля водорода в поверхностных слоях свинцовосиликатного стекла в результате термической обработки.

Практическая ценность. Созданная экспериментальная установка и разработанные методики использовались для решения ряда научных и народнохозяйственных задач, предусмотренных протоколами и договорами, заключенными ОИЯИ с различными институтами Советского Союза и стран-участниц ОИЯИ.

На защиту выносятся следующие результаты

1. Создание на базе электростатического ускорителя ЭГ-5 ОИЯИ экспериментальной установки для исследования концентрационных профилей элементов в поверхностных слоях материалов методами: а) резерфордского обратного рассеяния, б) характеристического рентгеновского излучения и в) протонов отдачи.

2. Создание диалоговых вычислительных программ для расчета концентрационных профилей элементов.

3. Результаты элементного анализа по глубине в различных конструкционных материалах, связанного с решением научных и народнохозяйственных задач.

Апробация работы. Основные результаты диссертации опубликованы в работах [1-12] и докладывались на:

- 7 Чехословацкой конференции по электронике и вакуумной физике (1985 г., г. Братислава (ЧССР));

- на 16 Всесоюзном совещании по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами (1986 г., г. Москва);

- на 5 Всесоюзном совещании по активационному анализу и другим радиоаналитическим методам (1987 г., г. Ташкент);

- на Международной конференции по ионной имплантации (1988 г., г. Люблин (ПНР)).

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка использованной литературы. Объем диссертации составляет 147 страниц, в том числе 5 таблиц и 54 рисунка. Список литературных источников содержит 127 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы исследования, сформулирована цель работы, обсуждены ее научное и прикладное значение и результаты, полученные при решении поставленной задачи.

В первой главе работы сделан краткий обзор физических основ методов резерфордского обратного рассеяния (РОР), характеристического рентгеновского излучения (ХРИ), возбуждаемого ионами, и протонов отдачи, выбиваемых из мишени налетающими ионами гелия, используемых для исследования профилей распределения элементов по глубине образцов.

Вторая глава посвящена описанию методики эксперимента.

Экспериментальная часть работы была выполнена на электростатическом ускорителе типа Ван-де-Граафа ЛНФ ОИЯИ. При этом экспериментальная установка, камеры облучения создавались таким образом, чтобы использовать преимущества сочетания методов.

В первой части главы описана камера для измерения упруго рассеянных ионов и характеристического рентгеновского излучения. Пучок ионов от ускорителя, на участке ионпровода после раздаточного магнита формируется четырьмя диафрагмами. Последние две диафрагмы - сменные, входящие в состав коллимационного блока, который состоит из графитового цилиндра с четырьмя парами отверстий (1,5 мм; 2 мм; 4 мм; 5 мм), устанавливаемыми на пути пучка. Диаметр цилиндра - 80 мм. Коллимированный пучок ионов падал на мишень, установленную на

многопозиционном держателе. Конструкция держателя предоставляет возможность наклонять плоскость мишени относительно направления пучка на углы 15° , 30° , 45° , 70° .

Для измерения упруго рассеянных ионов в камере под углом 135° к оси пучка установлен кремниевый поверхностно-барьерный детектор. Энергетическое разрешение спектрометрического тракта упругого рассеяния составляло 30 кэВ для α -частиц с энергией 5,499 МэВ от ^{238}Pu .

Выход ХРИ измерялся Si(Li)-детектором, который располагался под углом 90° по отношению к направлению пучка. На пути от мишени к детектору возбуждаемое ионами рентгеновское излучение проходило окошко из покрытого тонким слоем Al майлара толщиной 25 мкм, слой воздуха толщиной 10 мм и бериллиевое окошко детектора толщиной 25 мкм. Энергетическое разрешение спектрометра, измеренное на линии 6,4 кэВ ^{57}Co , составляло 220 эВ.

Накопление спектров проводилось в спектрометрическом модуле, выполненном в стандарте КАМАК на базе мини-ЭВМ МЕРА-60/55. Вычисление площадей рентгеновских линий проводилось на ЭВМ РРР-11/70 с помощью библиотечной программы "ACTIV". Число частиц, падающих на мишень, определялось по измерению заряда, переносимого пучком на мишень за время экспозиции. Для обеспечения этих измерений многопозиционный держатель мишеней электрически изолирован от корпуса камеры и присоединен к интегратору тока, который обеспечивает измерение тока пучка в интервале 0,15 нА - 2,5 мкА с линейностью не хуже 1 %. Постоянная интегратора равна 0,705 имп/нКл. Для подавления вторичной электронной эмиссии, возникающей при бомбардировке мишени пучком ионов, мишень окружена графитовым цилиндром, к которому подключено отрицательное напряжение 300 В.

Эффективность счета Si(Li)-детектора определялась путем измерения характеристического рентгеновского излучения на тонких мишенях пятнадцати элементов от Al до Mo, возбуждаемого протонами с энергиями 1 и 2 МэВ и ионами ^4He с энергиями 2 и 3 МэВ. Для определения числа атомов элемента одновременно измерялось обратное рассеяние ионов. Дополнительно в области высоких энергий были использованы калибровочные радионисточники ^{57}Co (6,4; 14,41 и 122,06 кэВ) и ^{241}Am (11,89; 13,95; 26,35; и 59,54 кэВ). Неопределенность значений эффективности, измеренных с помощью радионисточников (прокалиброванных с точностью $\pm 3\%$), была 4-6 %.

Окончательная эффективность получена путем подгонки шести параметров детектора: толщин бериллиевое окошка, золотого контакта, мертвого слоя Si, чувствительного объема кремния, замороженного слоя (слоя, образованного в результате конденсации паров воды на поверхности кристалла Si, охлажденного до температуры жидкого азота) и телесного угла детектора. При проведении подгонки два параметра были фиксированы: толщина Be-окошка ($26,3 \pm 0,3$ мкм) измерялась непосредственно, а толщина Au-контакта ($27 \pm 1,5$ нм) определялась флуоресцентным методом, с использованием характеристического рентгеновского излучения Rb, возбуждаемого протонами. Это позволило однозначно определить толщину мертвого слоя кремния ($0,5 \pm 0,1$ мкм) и толщину замороженного слоя ($9,5 \pm 0,5$ мкм). Неопределенность абсолютного значения эффективности Si(Li)-детектора оказалась равной 3-8% в области энергий 1,5-150 кэВ. Подгонка проводилась по методу наименьших квадратов с использованием библиотечной программы "FUMILI".

Во второй части главы описана камера для измерения протонов отдачи. Пучок ускоренных ионов гелия коллимировался парой диафрагм диаметром по 0,5 мм. Расстояние между диафрагмами 950 мм. Коллимированный пучок ионов попадал на мишень, установленную на многопозиционном держателе. Конструкция держателя предусматривает возможность изменения угла наклона плоскости мишени к оси пучка (угла α) в интервале $0-90^\circ$ с погрешностью не более $0,2^\circ$. Мишень электрически изолирована от корпуса камеры и присоединена к интегратору тока, с помощью которого определялось число падающих на мишень частиц. Для подавления вторичной электронной эмиссии мишень окружена цилиндром, к которому подводится отрицательное напряжение 300 В. Измерения проводились при энергии ионов гелия 2,0-2,4 МэВ; ток пучка составлял 10-20 нА. Для регистрации протонов отдачи на подвижном кронштейне был установлен кремниевый поверхностно-барьерный детектор. Упруго рассеянные мишенью ионы гелия задерживались алюминиевой фольгой толщиной 9 мкм. Для измерения обратного рассеяния ионов под углом 135° в камере установлен второй кремниевый поверхностно-барьерный детектор. Энергетическое разрешение спектрометрического тракта протонов отдачи составляло 17 кэВ для α -частиц с энергией 5,499 МэВ от ^{238}Pu .

При определении концентрационного профиля водорода в исследуемых образцах необходимо учитывать состояние поверхности образцов, условия их хранения до установки в камеру исследований, и, главное, вакуумные условия в камере. Наличие водорода на поверхности мишени приводит к

появлению фона на спектре протонов отдачи. В связи с этим подробно исследован один из вариантов проведения измерений, который позволил получить достаточно надежную информацию о концентрационном профиле водорода в условиях вакуума в камере 10^{-6} Тор. Речь идет о локальном вымораживании паров углеводородов вблизи мишени. Вымораживание осуществлялось с помощью охлаждаемого жидким азотом медного цилиндра диаметром 80 мм, который находился внутри теплового экрана из алюминия диаметром 120 мм. Как показали исследования, такая система достаточно хорошо вымораживает водородосодержащие соединения в объеме, окружающем мишень, значительно снижая при этом их осаждение на анализируемую поверхность образца.

Третья глава посвящена описанию методики и программы обработки спектров обратного рассеяния с целью извлечения профиля элементов по глубине образца и применения метода POP для исследования геттерирования атомов золота в кремнии.

Возможность зондирования малых толщин, высокое разрешение по глубине метода упругого рассеяния ионов позволяют проводить неразрушающий анализ сложных многослойных образцов. Как правило, проведение количественного анализа оказывается слишком сложным для вычислений вручную. Поэтому была разработана вычислительная программа RBSM для анализа энергетических спектров упругого рассеяния. Суть подхода состоит в построении модели образца (количество и толщина слоев, их элементный состав), для которой генерируется теоретический спектр. Исходя из полученных отклонений экспериментального и теоретического спектров, модифицируют исходную модель, и вычисления повторяют. Таким образом, в нескольких итерациях получается модель образца, для которой теоретический спектр хорошо совпадает с экспериментальным. Преимуществом такого подхода является его надежность и универсальность.

Число отсчетов N_i в i -том канале идеализированного спектра обратного рассеяния определялось следующим выражением:

$$N_i = \sigma(E_i) \Omega Q N(x_i) \frac{\delta E}{[S(E_i)] \cos \theta_i} \frac{S(KE_i)}{S(E_{i,i})}$$

где $\sigma(E_i)$ - дифференциальное сечение рассеяния, вычисляемое для энергии ионов E_i ; Ω - телесный угол детектора; Q - число частиц, падающих на мишень, $N(x_i)$ - число атомов в единице объема, δE - энергетическая ширина канала в многоканальном анализаторе импульсов,

θ_i - угол между направлениями падения ионов на мишень и нормалью к ее поверхности, S - удельные потери ионов, $[S]$ - параметр тормозной способности, K - кинематический фактор обратного рассеяния; $E_{i,i}$ - энергия регистрируемых ионов.

При работе с программой RBSM используются входные экспериментальные данные, куда входят: энергия ионов; геометрия эксперимента; энергетическая калибровка и разрешение измерительного тракта; число ионов, падающих на мишень; телесный угол детектора; а также данные модели образца: количество, толщина и элементный состав каждого слоя. Используются также необходимые табличные данные для каждого элемента от водорода до урана: порядковый номер элемента, массовое число, атомная плотность и данные по тормозным способностям.

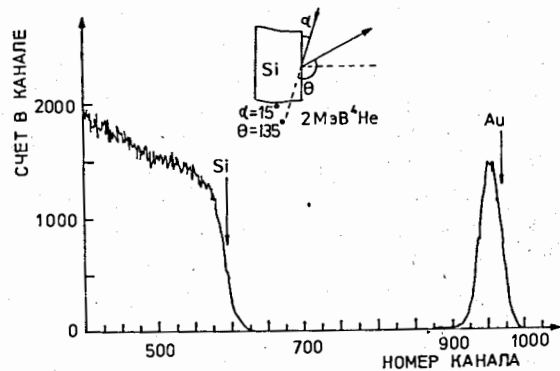
Особенности формирования энергетического спектра упруго рассеянных ионов, влияние на форму спектра параметров, посредством которых пользователь управляет моделированием спектра, иллюстрируются на спектрах, генерированных для модельных образцов. Особенности обработки экспериментальных спектров продемонстрированы на измерениях, выполненных при:

- а) определении содержания тантала в ниобии;
- б) исследовании состава и структуры многоэлементного образца стекла, содержащего элементы O, Si, K, Zr, Te и имеющего на поверхности напыленный слой Ti;
- в) исследования состава и структуры многослойного образца Si/Cr/Ni/Au/;
- г) исследования состава и структуры многослойного образца Si/SiO₂/Si₃N₄/CrSiON/W₂Ti/Al/.

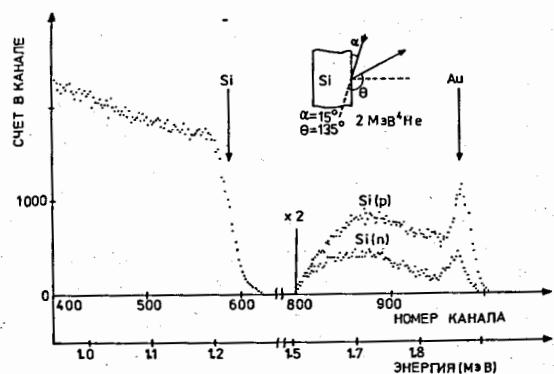
Метод POP был применен для исследования эффективности геттерирования атомов золота в кремнии n - и p -типа. В последнее время в полупроводниковой технологии нарастает интерес к геттерированию как методу удаления нежелательных быстро диффундирующих примесей-металлов в полупроводниках. Эффект геттерирования является результатом различных механизмов захвата примесных атомов дефектами. Процедура геттерирования состоит из двух шагов: повреждения поверхностных слоев каким-либо способом для создания дефектной области и отжига при достаточно высокой температуре (600-1000°C), при котором примесные атомы диффундируют из объема в область дефектов.

Для исследования поведения атомов золота в процессе геттерирования, стимулированного имплантацией ионов неона, в образцы кремния n -

и р-типа с сопротивлением 6-8 Ом*см имплантировались ионы Au с энергией 95 кэВ и дозой 10^{16} см⁻². Затем внедрялись ионы Ne с энергией



(а)



(б)

Рис.1. Энергетические спектры обратного рассеяния, измеренные на образцах кремния п- и р-типа, (а) до и (б) после геттерирования

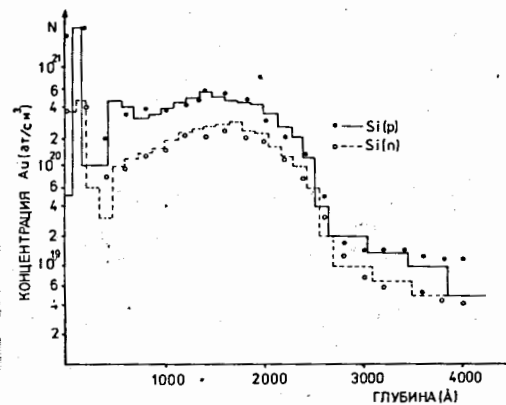


Рис.2. Глубинное распределение геттерированных атомов золота в кремнии п- и р-типа. Кружками обозначены результаты, полученные методом остаточной радиоактивности в сочетании с ионным травлением

95 кэВ и дозой $5 \cdot 10^{16}$ см⁻². В обоих случаях имплантация проводилась в "разориентированном" направлении. Далее образцы отжигались в аргонной атмосфере при температуре 900°C в течение 30 мин. Измерения проводились на пучке ионов ⁴He с энергией 2 МэВ. Коллимированный двумя диафрагмами диаметром 1,5 мм пучок ионов гелия падал на мишень, наклоненную к оси пучка под углом 15°. На рис.1 показаны энергетические спектры обратно рассеянных ионов гелия, измеренные на мишени кремния, до (а) и после геттерирования (б) соответственно. Для сравнения профиль золота в образцах определялся также методом измерения остаточной радиоактивности ¹⁹⁸Au в сочетании с послойным травлением ионами. Глубинные распределения атомов Au, геттерированных с помощью имплантации ионов Ne в кремнии п- и р-типа, представлены на рис.2. Максимумы, вблизи поверхности и на глубине около 0,2 мкм, отвечают двум областям захвата атомов Au - области дефектов, созданных при имплантации золота, и области дефектов, созданных при имплантации неона, соответственно. Полученные результаты указывают на то, что эффективность геттерирования атомов золота в кремнии р-типа приблизительно в два раза выше, чем в кремнии п-типа.

Четвертая глава посвящена описанию методики определения концентрационных профилей методом возбуждения ХРИ ускоренными ионами.

Для определения концентрационного профиля $c(x)$ анализируемая глубина в образце условно разбивалась на определенное число слоев N , где в каждом i -том слое концентрация считается постоянной в пределах от x_{i-1} до x_i ($i=1,2,\dots,N$). Концентрации c_i в каждом i -том слое находились путем измерения выхода ХРИ при разных энергиях E_1, E_2, \dots, E_N налетающих ионов и решения системы линейных уравнений относительно c_i ($i=1,2,\dots,N$):

$$Y(E_j) = \sum_{i=1}^j c_i I_{ij}, \quad (1)$$

где I_{ij} - выход возбуждаемого ионами в i -том слое ХРИ исследуемого элемента с единичной концентрацией при j -той энергии пучка:

$$I_{ij} = Q\epsilon(\rho N_0/A) \int_{x_{i-1}}^{x_i} \sigma(E_j, x/\sin\psi) \exp(-\mu\rho x/\sin\phi) dx.$$

Здесь ϵ - эффективность регистрации ХРИ, ρ - плотность мишени, N_0 - число Авогадро, A - атомный вес исследуемого элемента, σ - сечение возбуждения ХРИ, μ - коэффициент ослабления ХРИ, ψ и ϕ - углы, которые составляют с плоскостью мишени направления падения ионов и детектирования ХРИ соответственно.

Была рассмотрена возможность определения концентрационного профиля на основе экспоненциальной аппроксимации зависимости сечения возбуждения ХРИ от глубины в образце. С помощью этого метода проведено определение концентрационного профиля Cu в пределах от 1 до 6 мкм в образце, приготовленном напылением пленки состава $Al(99\%)-Cu(2\%)$ толщиной 2 мкм на подложку кремния с последующим термическим отжигом. Измерения проводились на пучке ионов 4He с энергиями от 1,4 до 2,4 МэВ при углах падения ионов на мишень $\psi = 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 70^\circ$.

Правильность определения концентрационного профиля элементов проверялась на ряде образцов с однородным распределением концентрации элементов по глубине. Для исследования использовались массивные однородные образцы Si, Ti, Fe, Ni, Cu и Cd . Результаты определения концентрации при разных энергиях протонов показали, что, в пределах ошибок измерений, для всего интервала глубин зондирования, рассчитываемая концентрация исследуемых элементов остается постоянной.

В дополнение к проведенным измерениям на одноэлементных образцах были исследованы образцы $Fe_{50}Ni_{30}B_{20}$, представляющие собой фольгу толщиной 20 мкм, в которых предполагалось равномерное распределение элементов. Измерения проводились на пучках протонов с энергиями от 1,4 до 3,0 МэВ при двух углах $\psi = 15^\circ$ и $\psi = 45^\circ$. Однородность указанных образцов проверялась путем последовательного химического травления слоев исследуемой фольги и измерения выхода ХРИ на пучке ионов гелия-4 с энергией 1,5 МэВ при скользящем угле падения ионов на мишень после каждого этапа травления. Последующее травление и последующее измерение выхода ХРИ при ионном возбуждении проводилось с обеих сторон фольги. Показано, что концентрация железа и никеля в пределах ошибок по всей глубине до ≈ 12 мкм остается постоянной с обеих сторон фольги. Результаты измерений на чистых металлах и на образцах $Fe_{50}Ni_{30}B_{20}$ подтвердили правильность принятой методики определения глубинных профилей концентрации элементов.

Возможности метода ХРИ продемонстрированы при исследовании концентрационного профиля железа в структуре $Fe-Ni$, которая была получена путем отжига железной фольги, покрытой слоем никеля. Для исследования глубинного профиля железа в образце изменение энергии пучка протонов подбиралось таким образом, чтобы пробег протонов возрастал на 2 мкм. При этом шаг по глубине составлял 1 мкм, поскольку мишень была наклонена к пучку под углом 45° , а, кроме того, как показали расчеты, основная часть излучения в никеле (99%) выходит из глубины, составляющей 70% от пробега протонов с энергией 3 МэВ.

Система линейных уравнений (1) в данном случае записывается в следующем виде:

$$Y(E_j) = \sum_{i=1}^j c_i I_{ij} (1 + r_{ij}), \quad j=1, N;$$

где величина r_{ij} - поправка на вторичное возбуждение ХРИ железа:

$$r_{ij} = Y_{s.c.i}(E_j) / Y_{p.r.i}(E_j).$$

Здесь $Y_{s.c.i}$ - выход вторичного рентгеновского излучения железа, возбуждаемого в i -том слое K_{α} -излучением никеля, $Y_{p.r.i}$ - выход ХРИ железа, возбуждаемого в i -том слое протонами.

Для вычисления величин I_{ij} и r_{ij} необходимо знание концентраций исследуемых элементов в каждом слое. Концентрационный профиль Fe (рис.3) в исследуемом образце был получен путем подгонки расчетной зависимости выхода ХРИ железа от энергии протонов к экспериментальной.

Подгонка проводилась таким образом, чтобы согласие каждого расчетного выхода с экспериментальным находилось в пределах погрешности измерения выхода ХРИ, составляющей около 5%. При этом абсолютная погрешность определения концентрации в глубинных слоях оказывается большой и с глубиной возрастает, т.к. каждая очередная концентрация определяется по выходу из самого глубокого зондируемого слоя, который дает наименьший вклад в общий выход ХРИ.

Для сравнения измерение профиля железа в образце было проведено также разрушающим методом. Для этого поперечный срез образца сканировался электронным микропучком и при этом измерялся выход K_{α} -излучения железа и никеля. Диаметр пучка составлял около 0,06 мкм, а размер излучающей области - порядка 1 мкм. Сканирование осуществлялось под углом 60° к поверхности образца с шагом 0,4 мкм пучком электронов 3 мкА с энергией 20 кэВ. Контрольные измерения были выполнены с помощью растрового электронного микроскопа JSM-840 фирмы JEOL с рентгеновским спектрометром фирмы Link Systems Ltd. на базе Si(Li)-детектора с разрешением 150 эВ на линии Mn- K_{α} (5,9 кэВ). Получено согласие в пределах экспериментальных ошибок вплоть до глубины 10 мкм, а в дальнейшем наблюдается систематическое отклонение значений, полученных при электронном возбуждении, к верхней границе ошибок профиля, измеренного при протонном возбуждении.

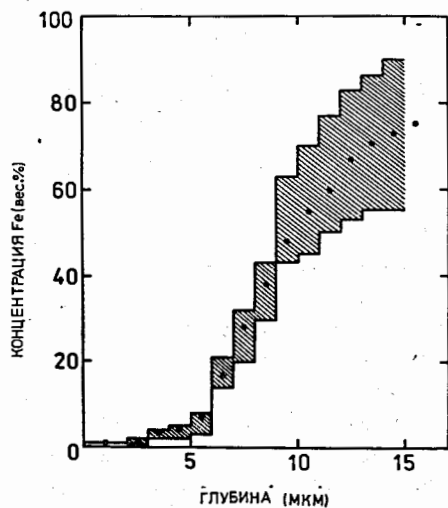


Рис. 3
Измеренный концентрационный
профиль железа в структуре
Fe-Ni

Пятая глава посвящена описанию методики определения концентрационного профиля водорода в поверхностных слоях материалов и применения метода протонов отдачи для исследования профиля распределения водорода в оптических стеклах.

Метод расчета глубинного распределения атомов водорода основан на моделировании теоретического спектра протонов отдачи и сравнении его с экспериментальным спектром. При проведении моделирования учитывается влияние на форму спектра энергетического страгглинга и многократного рассеяния ионов в мишени и в алюминиевом фильтре, а также влияние разрешения спектрометрического тракта. Отправной точкой расчетов является задаваемая модель образца, которая может быть в процессе подгонки изменена с целью приближения теоретического спектра к экспериментальному. Окончательным результатом по концентрационному профилю водорода является тот вариант модели, который обеспечивает удовлетворительное совпадение теоретического спектра с экспериментальным.

Число отсчетов N_i в i -том канале идеализированного спектра протонов отдачи определялось следующим выражением:

$$N_i = \sigma(E_i) \Omega Q N(x_i) \frac{\delta E}{[S(E_i)] \cos \theta_i} \frac{S_t(K E_i)}{S_t(E_{1,i})} \frac{S_f(E_{1,i})}{S_f(E_{2,i})}$$

Здесь $\sigma(E_i)$ - дифференциальное сечение упругого рассеяния, вычисляемое для энергии ионов E_i ; $N(x_i)$ - число атомов водорода в единице объема; S_t - удельные потери протонов в мишени; S_f - удельные потери протонов в фильтре; $E_{1,i}$ - энергия протонов отдачи, вылетающих из мишени; $E_{2,i}$ - энергия регистрируемых протонов отдачи. K - кинематический фактор, определяемый формулой:

$$K = 4M_1 M_2 \cos^2 \theta / (M_1 + M_2)^2,$$

где M_1 и M_2 - массы ионов гелия и протонов отдачи соответственно, θ - угол рассеяния протонов отдачи.

Для расчета теоретического спектра на базе выбранной модели образца нами была написана программа ERDM, построенная по аналогии с программой RBSM.

Экспериментальная проверка абсолютной калибровки методики осуществлялась по измерению концентрации водорода в пленке майлара ($C_{10}H_8O_4$), имеющего известную, однородную по глубине концентрацию водорода. Как видно из рис. 4, достигнуто достаточно хорошее согласие между теоретическим и экспериментальным спектрами протонов отдачи.

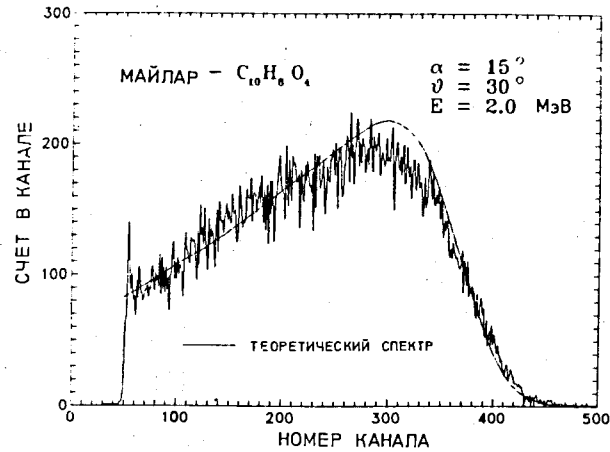


Рис. 4. Экспериментальный и теоретический спектры протонов отдачи для мишени майлара ($C_{10}H_8O_4$) при энергии ионов 4He 2 МэВ. α - угол наклона мишени к оси пучка.

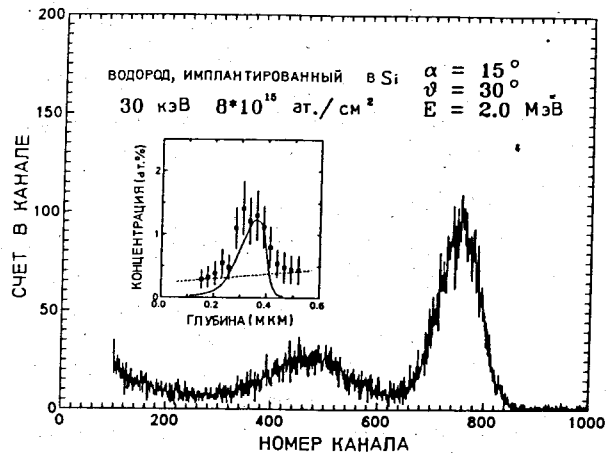


Рис. 5. Спектр протонов отдачи, измеренный на образце Si с имплантированным водородом. Во вставке показаны измеренный и теоретический профили водорода.

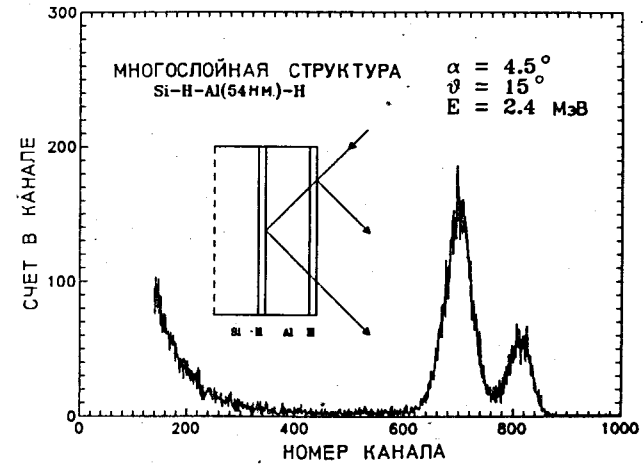


Рис. 6. Спектр протонов отдачи, измеренный при энергии ионов 4He 2,4 МэВ на многослойной мишени Si-H-Al(54 нм)-H.

Проверка правильности метода была проведена также при определении профиля водорода в образце Si, имплантированного водородом при энергии 30 кэВ и дозе $8 \cdot 10^{15}$ ат./см² (см. рис. 5). В результате получено достаточно хорошее согласие ($\pm 15\%$ для пробега и $\pm 5\%$ для абсолютной концентрации в максимуме распределения) с теоретическими параметрами.

Экспериментальное исследование разрешения по глубине проводилось нами с помощью специально приготовленной многослойной мишени. Последняя представляла собой массивный кремний с хорошо полированной поверхностью, на которую наносились два тонких водородосодержащих слоя, разделенных слоем Al толщиной 54 нм. Осаждение водородосодержащих слоев на поверхности мишени проводилось в камере исследований при облучении мишени пучком диаметром 6 мм без вымораживания паров углеводородов в камере. Для геометрии $\alpha=4,5^\circ$ $\theta=15^\circ$ разрешение по глубине составило 26 нм (см. рис. 6).

Разработанная методика протонов отдачи была использована для исследования концентрационного профиля водорода в оптических стеклах. В качестве мишеней использовались полированные пластины исследуемых оптических стекол размером $15 \times 15 \times 1,5$ мм. Для снятия электрического заряда на предварительно обезжиренную поверхность мишеней напылялся слой алюминия толщиной ≈ 10 нм.

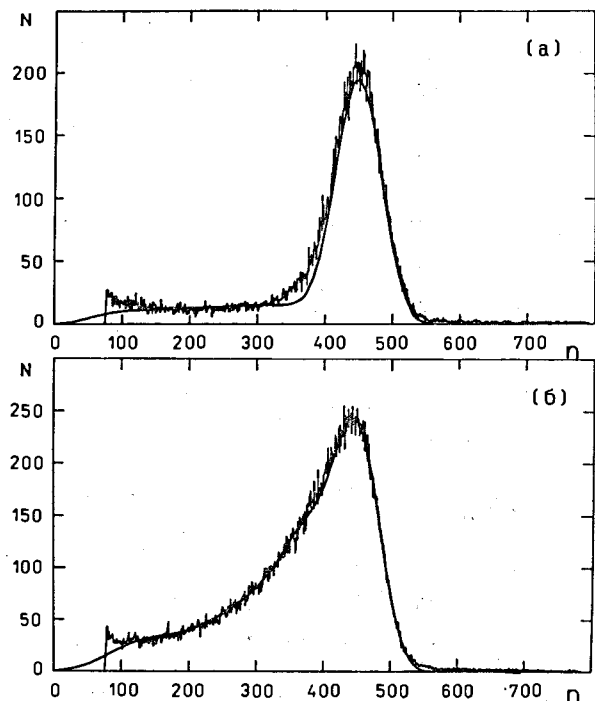


Рис. 7. Спектры протонов отдачи, измеренные при $\alpha=15^\circ$ и $\theta=30^\circ$ на образцах исходного (а) и восстановленного в атмосфере водорода (б) свинцовосиликатного стекла, и результаты их подгонки. N - счет в канале, n - номер канала анализатора импульсов.

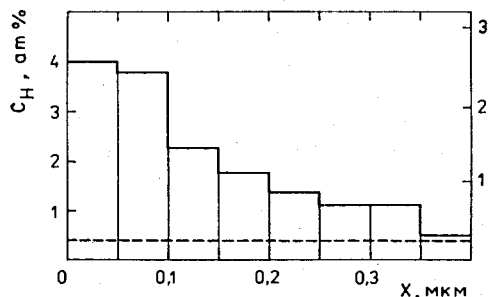
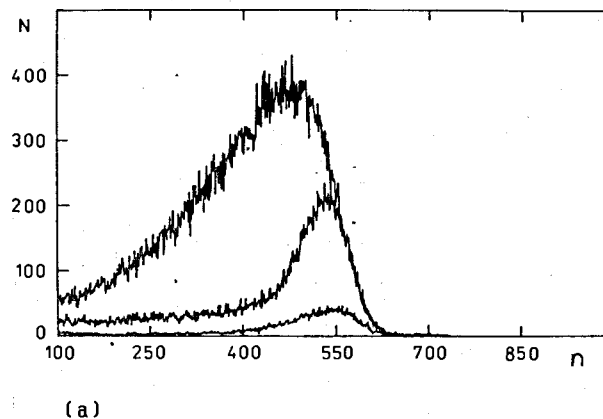


Рис. 8. Концентрационный профиль водорода в свинцовосиликатном стекле: пунктирная линия - исходное; сплошная линия - восстановленное.

На рис. 7 даны экспериментальные спектры протонов отдачи и результаты для исходного и восстановленного в атмосфере водорода свинцовосиликатного стекла. Различия в распределении водорода в исходном и восстановленном стекле отчетливо видны на рис. 8, где приведены расчетные профили концентрации водорода.



(а)

(б)

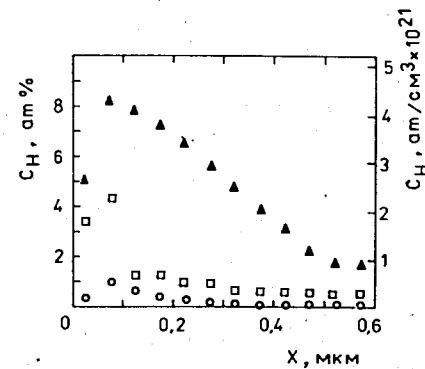


Рис. 9. Спектры протонов отдачи, измеренные при $\alpha=15^\circ$ и $\theta=30^\circ$, (а) и соответствующие концентрационные профили водорода в различных образцах лантановофосфатного стекла (б). N - счет в канале, n - номер канала анализатора импульсов.

На рис. 9 приведены спектры протонов отдачи (а), измеренные на различных образцах фосфатного стекла с высоким содержанием La_2O_3 , и соответствующие извлеченные профили водорода (б). Максимальная концентрация достигает ≈ 10 ат.%, минимальная находится на уровне предела обнаружения.

Измерение спектров протонов отдачи было выполнено для 50 образцов различных оптических стекол. Полученные результаты показали, что метод протонов отдачи может с успехом применяться для исследования концентрационного профиля водорода в оптических стеклах на глубинах до 1 мкм с пределом обнаружения водорода $\approx 0,1$ ат.%. Относительная ошибка в определении концентрации - 20%.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. На базе электростатического ускорителя типа Ван-де-Граафа ЭГ-5 ЛНФ ОИЯИ создана экспериментальная установка для исследования концентрационных профилей элементов в поверхностных слоях материалов методами измерения выхода: а) резерфордского обратного рассеяния, б) характеристического рентгеновского излучения и в) протонов отдачи, выбиваемых ускоренными ионами гелия-4.

2. Для обработки экспериментальных спектров резерфордского обратного рассеяния создана программа RBSM, написанная на языке FORTRAN-77 в операционной системе RSX-11M-PLUS для ЭВМ PDP-11/70. Метод расчета основан на моделировании экспериментального спектра с учетом эффектов энергетического страгглинга и энергетического разрешения измерительного тракта.

3. Методом резерфордского обратного рассеяния исследовано глубинное распределение геттерированных атомов золота в кремнии. Показано, что эффективность геттерирования атомов золота после имплантации ионов неона в кремнии р-типа приблизительно в два раза выше, чем в кремнии n-типа.

4. Создана экспериментальная методика определения глубинных профилей концентрации элементов по детектированию характеристического рентгеновского излучения, возбуждаемого ионами водорода и гелия-4 с энергиями 1,0-3,0 МэВ. Экспериментальная проверка методики проведена по измерению ХРИ на однородных одноэлементных образцах и на образцах металлических стекол $Fe_{50}Ni_{30}B_{20}$. Однородность последних проверялась методом последовательного травления и измерения выхода ХРИ после каждого этапа травления.

5. Методом измерения выхода ХРИ при изменении энергии зондирующего пучка протонов исследовано распределение по глубине концентрации Fe в структуре Fe-Ni. Метод расчета основан на моделировании экспериментальной зависимости выхода ХРИ от энергии протонов с учетом эффекта вторичного возбуждения атомов Fe характеристическим излучением никеля для резко неравномерного распределения по глубине концентрации Fe (от долей процента до десятков процентов на глубине 15 мкм).

6. Создана методика определения концентрационного профиля водорода по измерению протонов отдачи, выбиваемых пучком ионов гелия-4 с энергиями 2-2,4 МэВ. Измерения проводились в условиях локального вымораживания паров углеводородов в объеме, окружающем мишень, для ограничения нарастания поверхностного водородосодержащего слоя. Проверка методик осуществлялась с помощью многослойной водородной мишени Si-N-Al-N, майларовой фольги и образцов кремния, имплантированных водородом.

7. Для обработки экспериментальных спектров протонов отдачи создана программа ERDM, написанная на языке FORTRAN-77 в операционной системе RSX-11M-PLUS для ЭВМ PDP-11/70. Метод расчета основан на моделировании экспериментального спектра с учетом эффектов энергетического страгглинга и многократного рассеяния ионов в мишени и в алюминиевом фильтре, а также энергетического разрешения измерительного тракта.

8. Методом протонов отдачи исследовано содержание водорода в ряде фосфатных стекол, а также изменение концентрационного профиля водорода в поверхностных слоях свинцовосиликатного стекла в результате термической обработки. В соответствии с договором, заключенным между ОИЯИ и Государственным Оптическим Институтом им. С. И. Вавилова, метод определения профиля концентрации водорода в приповерхностных слоях оптических материалов внедрен в ГОИ, на основании чего составлен акт внедрения.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИИ ОПУБЛИКОВАНЫ В РАБОТАХ:

1. Ильхамов Р. А., Махайдик Д., Осетинский Г. М., Паяек М., Шандрик Р. Ядерно-физические методы исследования поверхностных и приповерхностных слоев полупроводниковых материалов на электростатическом ускорителе ОИЯИ. - Proceedings of the 7th Czechoslovak Conference on Electronics and Vacuum Physics, Bratislava, September 3-6, 1985. - Part 2. - P.395-404.

2. Ильхамов Р. А., Ли Зен Хо, Осетинский Г. М., Пайек М., Шандрик Р. Определение глубинных профилей концентрации элементов методом возбуждения характеристического рентгеновского излучения ускоренными ионами. - Сообщение ОИЯИ, 14-86-820. - Дубна, 1986. - 10 с.

3. Ильхамов Р. А., Ли Зен Хо, Махайдик Д., Осетинский Г. М., Пайек М., Тер-Нерсесянц В. Е., Шандрик Р., Хушмуродов Ш. Х. Определение концентрационного профиля водорода методом измерения протонов отдачи. - Сообщение ОИЯИ, 14-86-807. - Дубна, 1986. - 18 с.

4. Ильхамов Р. А., Ли Зен Хо, Махайдик Д., Осетинский Г. М. Программа расчета концентрационного профиля водорода по энергетическим спектрам протонов отдачи. - Сообщение ОИЯИ, P10-86-774. - Дубна, 1986. - 12 с.

5. Ильхамов Р. А., Кобзев А. П., Осетинский Г. М., Пестрикова М. В., Тер-Нерсесянц В. Е., Широков Д. М., Хушмуродов Ш. Х. Исследование концентрационного профиля водорода в оптических стеклах. - Сообщение ОИЯИ, P14-87-936. - Дубна, 1987. - 6 с.

6. Ильхамов Р. А., Махайдик Д. Программа для анализа спектров упруго рассеянных ионов методом моделирования. - Сообщение ОИЯИ, P10-87-249. - Дубна, 1987. - 4 с.

7. Ильхамов Р. А., Махайдик Д. Особенности моделирования энергетических спектров упруго рассеянных ионов. - Сообщение ОИЯИ, P10-87-535. - Дубна, 1987. - 9 с.

8. Ильхамов Р. А., Махайдик Д., Осетинский Г. М. Обработка спектров упругого рассеяния при анализе многослойных структур. - Сообщение ОИЯИ, P10-87-926. - Дубна, 1987. - 7 с.

9. Jaworska D., Tarnowska E., Kobzev A.P., Ilkhamov R.A. Depth Distribution of Gettered Au Atoms Measured by Means of RBS and Radioactive Methods. - Phys.Stat.Sol.(a). - 1989. - V.112. - No.1. - P.385-389.

10. Ilkhamov R.A., Khushmuradov Sh.Sh., Li Zen Kho, Machajdik D., Osetinskij G.M., Pajek M., Sandrik R., Shirokov D.M. Depth Hydrogen Profiling by Elastic Recoil Detection. - Phys.Stat.Sol.(a). - 1989. - V.112. - No.2. - P.781-784.

11. Ilkhamov R.A., Kobzev A.P., Sandrik R. Depth profiling of iron concentration in Fe-Ni structure with PIXE method. - Dubna, 1989. - 10 p. (Preprint of JINR: E14-89-22).

12. Pajek M., Kobzev A.P., Sandrik R., Ilkhamov R.A., Khushmuradov S.H. Accurate Efficiency Determination of a Si(Li) Detector in the Si-K and Au-M Absorption Edge Energy Region. - Nucl. Instr. and Meth. - 1989. - V. B42. - No.1. - P.346-358.

Рукопись поступила в издательский отдел
31 августа 1989 года.