

高分辨的弹性反冲探测分析技术*

路秀琴 符长波 郭继宇 赵葵 胡桂青
梁刚 李淑媛 刘建成 姜华

(中国原子能科学研究院核物理研究所 北京 102413)

摘要 在中国原子能科学研究院 HI-13 串列加速器上建立了一套高分辨的弹性反冲探测分析技术.用高质量的 ^{127}I 重离子束轰击薄膜或块材靶样品,利用 Q3D 磁谱仪及其焦面探测器和纵向型双电离室 $\Delta E-E$ 望远镜探测器两套探测系统,在前角区测量了靶中各种元素的反冲能谱.利用卢瑟福散射截面和离子在靶材料中的阻止本领,将能谱转换成元素的深度分布.利用 Q3D 磁谱仪系统,对 C 和 H 等轻元素的分析得到纳米级的深度分辨谱.用 $\Delta E-E$ 望远镜探测器可同时得到靶材料上从轻至中重各种元素的深度分布,其深度分辨率达 20—30nm.

关键词 弹性反冲探测, Q3D 磁谱仪, 核分析技术

ELASTIC RECOIL DETECTION WITH HIGH RESOLUTION

LU Xiu-Qin FU Chang-Bo GUO Ji-Yu ZHAO Kui HU Gui-Qing
LIANG Gang LI Shu-Yuan LIU Jian-Cheng JIANG Hua

(Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy (CIAE), Beijing 102413, China)

Abstract A technique for elastic recoil detection with high depth resolution has been developed at the HF-13 tandem accelerator of CIAE. When a high quality ^{127}I beam bombards the target, the recoils are detected by a Q3D magnetic spectrometer following a focal plane detector and a $\Delta E-E$ telescope detector with a longitudinal double-room ionization chamber. The measured spectra are transformed to the concentration profile of the recoil atoms through knowledge of the Rutherford cross section, the stopping power of the projectile and the recoils in the materials. A nanometer depth resolution was achieved for light elements such as C and H with the Q3D spectrometer system. The depth profile of the elements from light to medium could be simultaneously obtained by the $\Delta E-E$ telescope detector with a depth resolution of about 20—30nm.

Key words elastic recoil detection analysis, Q3D magnetic spectrometer, nuclear analysis technology

1 引言

材料的成分及其中的杂质浓度分布直接影响着材料的各种性能.随着材料科学的发展,迫切需要在越来越小的尺度上,对材料中各种成分的分布进行精确测量,从而获得材料性能与材料成分分布或杂质分布的关系,因此,对其精确地测定是新材料的研制中面临的重要问题.核分析技术,如卢瑟福背散射(RBS)、质子 X 射线荧光分析(PIXE)、核反应分析技术(NRA)、俄歇电子法、二次离子质谱(SIMS)等,在近 30 年中得到了广泛的应用和发展,成为进行元素

含量测量及分布测量的有力工具.这些核分析技术手段,有的具有高的元素和同位素灵敏度,有的具有非破坏性,有的具有高深度分辨率,一般都具有与材料的化学或物理状态无关等优点,因此能够适合不同测量要求的需要,并且随着技术的进步,各种测量手段的能力在不断提高.

针对重衬底上的轻元素测量问题,1976 年, L'Ecuyer 等^[1]首次提出采用弹性反冲探测(ERD)分

* 国家自然科学基金(批准号:19775067)资助项目;国际原子能机构基金(批准号:CTR 11314)资助项目

2000-09-04 收到初稿,2000-11-15 修回

析技术.对于重衬底中的轻元素的分析,RBS方法显得无能为力.这是因为在同样的探测角下,轻元素的卢瑟福散射能量和截面都较小,弱的轻元素信号重叠在强的重元素信号的平台上,难于分开.NRA方法虽然可以避免这个问题,但是一次只能分析一种元素,对于多元素的分析,必须进行多次测量,这不但繁琐,而且也增加了对材料的辐射损伤.随着加速器以及粒子鉴别技术和探测技术的发展,ERD分析技术得到了广泛的应用,并且已成为用于轻元素分析和深度分布分析的重要手段.近10年来,国外各大实验室将核物理研究中使用的各种探测技术都应用到了ERD分析中,如飞行时间技术^[2]、 $\Delta E-E$ 望远镜探测器(气体或固体)^[3-5]、磁谱仪^[6,7]和四极质谱仪^[8]、二维位置灵敏探测器^[9],以及符合测量技术等.同时,由于可以用比较高的能量和比较重的离子作为入射炮弹,使得可用ERD分析离子的范围扩大到中重核,可分析的深度也达到4 μm 左右.由于探测手段和加速器技术的发展,使ERD的测量精度和广度不断提高,推动了ERD技术不断完善和发展,为ERD技术开辟了更广阔的应用前景.

材料中氢元素的分析是十分重要的,然而氢元素的分析又是特别困难的.这是由于氢具有特殊的原子结构和原子核结构,使得俄歇电子法、二次离子质谱(SIMS)和卢瑟福背散射(RBS)等核分析手段无法测量它.对氢分析来说,ERD方法无疑是最合适的方法之一.它能绝对定量和非破坏性地分析氢在样品中的含量和深度分布.

本文将介绍在北京HI-13串列国家实验室利用 $\Delta E-E$ 探测器和Q3D磁谱仪系统的动量分析技术,对材料进行高分辨ERD分析的方法和结果,特别是对氢元素分析的一些最新结果.

2 原理与方法

ERD分析方法,可直接探测由重离子入射束在靶材料中产生向前反冲的轻原子核的能谱.利用入射核和反冲核在靶材料中的能量损失数据和反冲离子的能量,可推算出反冲离子产生的深度;利用卢瑟福散射截面与离子种类和能量的依赖关系^[10],可推算出该种离子在样品中的含量.从而可将能谱转换为元素在样品中的深度分布谱.在将能谱转换成离子浓度的深度分布时,由于入射核和出射核的能量和阻止本领都是随深度变化的,在计算时要将样品看成若干个足够薄的薄层,在每一个薄层中,入射核

和出射核的能量和阻止本领可以认为是不变的.然后逐层计算入射核和出射核的能量和阻止本领以及散射截面.

当能量与质量分别为 E_1 和 M_1 的离子轰击质量为 M_2 的靶核时,靶核在与入射方向呈 θ 角处的反冲能量 E_2 为

$$E_2 = \left[4 M_1 M_2 / (M_1 + M_2)^2 \right] E_1 \cos^2 \theta. \quad (1)$$

反冲核的截面为

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

如果入射核足够重,即满足 $M_1 \gg M_2$ 时,则有

$$E_2 / M_2 \approx (4 E_1 / M_1) \cos^2 \theta, \quad (3)$$

$$\sigma_r \approx \left[\frac{Z_1 M_1 e^2}{2 E_1} \right]^2 \left[\frac{Z_2}{M_2} \right]^2 \cos^{-3} \theta. \quad (4)$$

通常 $Z_2 / M_2 \approx 0.4 - 0.5$.由(3),(4)式可以看出,当采用足够重的入射炮弹时,全部反冲核有相近的速度,所有的反冲元素具有相近的散射截面.这为同时进行从轻至中重的多元素的分析提供了很好的条件,因为它们具有相近的灵敏度.

在影响探测深度分辨率的因素中,除了束流能量离散度、发散度、样品表面光洁度等因素外,重要的因素是探测反冲离子能谱的探测系统所带来的能谱歧离.所以,采用高分辨的能谱测量系统,可以提高深度的测量精度.而Q3D磁谱仪^[12]正是具有高分辨率的能谱测量系统,它的能量分辨率可达 10^{-4} .另外,北京HI-13串列加速器能量离散度也仅有 10^{-4} ,高品质的束流和高性能的反冲离子探测系统,奠定了高分辨ERD测量的基础.另外,Q3D磁谱仪还具有大探测立体角和较高的运动学修正能力等特性.由于探测立体角大,对测量小含量杂质有利;而运动学修正,可消除由于运动学效应带来的能量弥散.

尽管Q3D磁谱仪在做ERD分析时有上述优点,但是它毕竟只能在一定质能积范围内对某些离子进行分析,而且由于它的大色散,仅能探测到这些离子的某一能量段的某一电荷态,因此,无法测量样品中元素的绝对含量.采用 ΔE (气体电离室)- E (金硅面垒探测器)望远镜探测器系统则可探测到从轻(如H)到中重(如Ga)的所有元素,并测定它们的深度分布谱.二者同时使用,比较二者的离子的深度分布谱,用 $\Delta E-E$ 探测器获得的较低精度深度分布谱,去归一Q3D获得的高精度深度分布谱.这样,深度分布谱既有高的分辨能力,又可获得元素的绝对含

量,从而解决了上述矛盾,实现对元素在材料中的含量及深度分布的高分辨和高灵敏度绝对测量.

$\Delta E - E$ 探测器不仅可与 Q3D 磁谱仪配合使用,也可以单独使用,用于深度分辨要求不高的 ERD 分析.

3 实验及结果

实验技术是在中国原子能科学研究所的 HI - 13 串列加速器上建立的.图 1 为实验装置示意图.用该加速器提供的高品质的重离子 ^{127}I 束轰击靶材料.束流经过 $1 \times 4\text{mm}^2$ 的准直器,以与靶面成一定角度掠入射.用两套探测器系统测量反冲产物.在前角区处置一个 Q3D 磁谱仪系统^[12].在其焦面上装有一个充气的重离子焦面探测器^[13].磁谱仪选取某种感兴趣的反冲离子设置磁场,利用其高动量分辨性能和重离子焦面探测器的粒子分辨技术,可得到该离子的

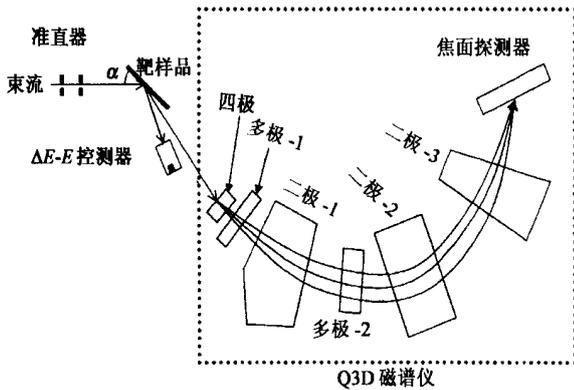


图 1 实验装置示意图

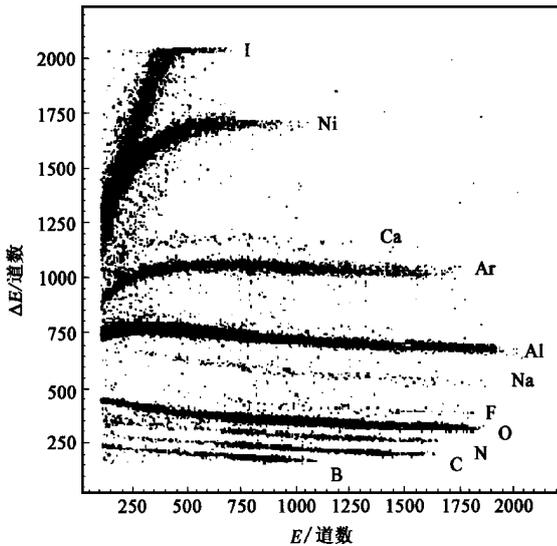


图 2 $\Delta E - E$ 望远镜探测器的典型二维能谱 (样品为反应堆涂层材料)

高分辨能谱.在另一前角区处,置一个纵向型双电离室 $\Delta E - E$ 望远镜探测器^[14]. ΔE 探测器采用双电离室,用金硅面垒型半导体探测器(E)测量剩余能量. $\Delta E - E$ 望远镜探测器的典型二维能谱见图 2.

用上述实验方法已经分析了核反应堆用 Ni/Al 涂层样品、GaN 薄膜、LaSrCuO 超导膜以及一些自制多层靶等多种样品^[11].这里给出一些典型的结果.

3.1 C/LiF 多层靶的 ERD 分析

利用 HI - 13 串列加速器提供的 100MeV 的 ^{127}I 束,轰击 C/LiF 多层靶.该多层靶是用真空蒸发法制备的.在硅衬底片上,顺次蒸发上 C - LiF - C - LiF - C 薄层,共 5 层,其中 C 三层 LiF 两层.每层厚度均为 $0.75\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 左右. ^{127}I 束与靶面成 10° 夹角掠入射. Q3D 磁谱仪置于相对束流方向 15° 处.为了得到最佳分辨,在加速器分析磁铁入口和出口处使用小的狭缝,再用 $1 \times 4\text{mm}^2$ 的准直器光栏在靶室入口处限制束流的发散度.在测量该靶之前,先用自撑 C 膜作靶,调节磁谱仪的多极磁场,将运动学展宽效应减到最小.最后用 Q3D 磁谱仪测量 C/LiF 多层靶中 C 元素的深度分布,表面分辨率达到 1.2nm .图 3 是典型的 C 的深度分布.

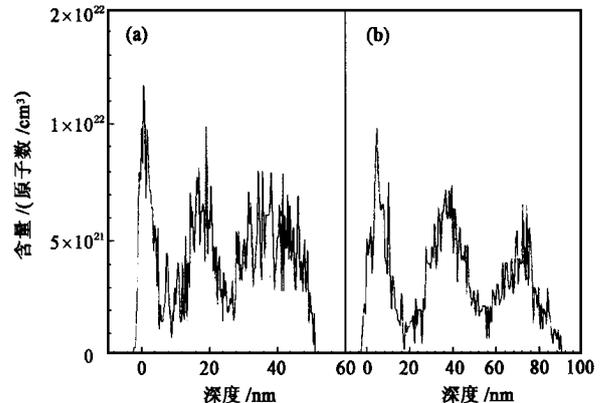


图 3 C/LiF 多层靶中 C 的深度分辨谱

(a) LiF 厚度约 $0.75\mu\text{g}/\text{cm}^2$; (b) LiF 厚度约 $1.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$

3.2 氢元素的 ERD 分析

为了验证此技术对氢分析的应用,特意制备了 H/Al/H 多层样品.在约 $30\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚的 Al 膜两面用真空蒸发法各蒸上约 $5\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚的三聚氰胺 ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$).用 100MeV 的 ^{127}I 束轰击它.测量采用透射几何,即束流垂直于靶面入射,在前角区测量反冲产物. Q3D 磁谱仪系统置于与束流方向成 15° 处,为了测氢, Q3D 磁谱仪的焦面探测器采用轻粒子焦面探测器.同时,将 $\Delta E - E$ 望远镜探测器置于与束流方向成 30° 处.测量的困难在于氢在探测器内的能量

损失小,于是信号小,容易淹没在噪声中.因此,在实验期间,对探测器的气压和工作电压等都按估算进行了仔细的调试.结果如图4所示.图4(a)为Q3D磁谱仪测量的H在H/Al/H多层样品的深度分布.深度分辨率为2—3nm,远好于国内已有的氢测量的20—30nm的最好分辨率.图4(b)是 $\Delta E-E$ 望远镜探测器的测量结果,给出了样品中的Al以及杂质C和N的深度分布.

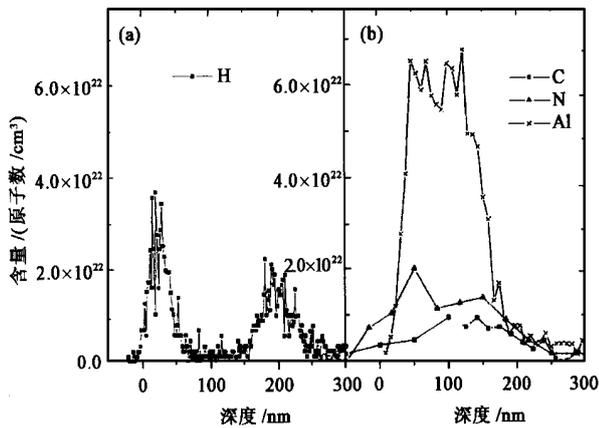


图4 H/Al/H多层靶
(a) H深度分布, Q3D谱仪在 15° ; (b) Al, C, N深度分布
 $\Delta E-E$ 探测器在 30°

3.3 GaN中的杂质测量

GaN膜是新型光电材料,其中所含的碳、氢和氧等杂质严重地影响着它的发光性能,因而测定这些杂质在该膜中的深度分布至关重要.用170 MeV的 ^{127}I 束以掠入射方式轰击GaN膜.图5是得到的结果.图5(a)为用Q3D磁谱仪得到的杂质H在GaN

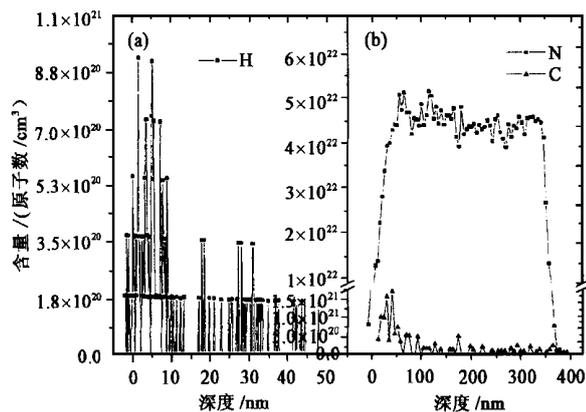


图5
(a) GaN中H的深度分布, Q3D谱仪在 15° ; (b) GaN中N成分及C杂质的深度分布, $\Delta E-E$ 探测器在 30°

中的深度分布;图5(b)为用 $\Delta E-E$ 望远镜探测器得到的N成分以及仅占百分之几的杂质C在GaN中的深度分布.此图中的绝对含量是对样品中氮的含量归一而得到的.

4 结论

利用HI-13串列加速器提供的高质量 ^{127}I 束,对材料表面进行了弹性反冲探测分析.用Q3D磁谱仪及其焦面探测器的高分辨的动量分析,得到了对H和C等元素的纳米量级的深度分辨率.对于C/LiF和H/Al/H多层靶以及C膜两面H沾污的分析结果表明,这一技术具有对每层只有几纳米的多层材料的分析能力.其高分辨和高灵敏度的特点在离子注入材料改性的研究中会起重要作用.对于GaN膜和Ni/Al反应堆涂层材料的分析表明,用 $\Delta E-E$ 望远镜探测器可同时分析靶材料中从轻至中重的所有元素,其深度分辨率为20—30nm,这种对于含有多种元素成分和杂质的材料的分析能力,具有广泛的应用价值.

参考文献

- [1] L'Ecuyer J, Brassard C, Cardinal C *et al.* J. Appl. Phys., 1976, 47:381
- [2] Groleau R, Gujrathi S C, Martin J P. Nucl. Instr. & Meth., 1983, 218:11
- [3] Stoquert J P, Guillaume G, Hage-Ali M *et al.* Nucl. Instr. & Meth., 1989, B44:184
- [4] Assmann W, Reichelt T, Eisenhammer T *et al.* Nucl. Instr. & Meth., 1996, B13:303
- [5] Forster J S, Currie P J, Davies J A *et al.* Nucl. Instr. & Meth., 1996, B13:308
- [6] Doyle B L, Percy P S, Gray Tom J *et al.* IEEE Trans. Nucl. Sci., 1983, NS-30:1252
- [7] Dollinger G, Feastermann T, Maier-Komor P. Nucl. Instr. & Meth., 1992, B64:422
- [8] Gosset C R. Nucl. Instr. & Meth., 1986, B5:481
- [9] Assmann W, Huber H, Steinhausen *et al.* Nucl. Instr. & Meth., 1994, B89:131
- [10] Ziegler J F, Biersack J P, Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids (Vol. 1). New York: Pergamon, 1985
- [11] Lu X Q, Fu C B, Liang G *et al.* Chin. Phys. Lett., 1999, 16:493
- [12] Li Z C, Cheng Y H, Yan C *et al.* Nucl. Instr. & Meth., 1993, A336:150
- [13] Guo J Y, Zhao K, Li Z C *et al.* Chin. Jour. of Nucl. Phys., 1995, 17:73
- [14] 符长波, 路秀琴, 赵葵等. 原子能科学技术, 2000, 34(2):116 [Fu C B, Lu X Q, Zhao K *et al.* Atomic Energy Sci. & Tech., 2000, 34(2):116(in Chinese)]