



مجله سنجش و ايمني پرتو، جلد ۴، شمارهٔ ۱، پاييز ۱۳۹۲

مقایسهٔ دو روش برهم کنش هستهای و پراکندگی تشدیدی برای اندازه گیری نمایهٔ عمقی اکسیژن در آلومینای نانو متخلخل

منیجه رحیمی'، محمد ترکیهای اصفهانی'*، امیدرضا کاکویی' و وحید فتحاللهی'

^۱ گروه فیزیک، دانشکده فیزیک، دانشگاه کاشان، کاشان، اصفهان، ایران. ^۲ سازمان انرژی اتمی تهران، تهران، ایران. ۴ اصفهان، کاشان، بلوار قطب راوندی، دانشگاه کاشان، دانشکده فیزیک، کدپستی: ۵۱۱۶۷–۸۷۳۱۷ بست الکترونیکی: torkiha@kashanu.ac.ir

چکیدہ

شناسایی و تعییین نمایهٔ عمقی اکسیژن در سطح مواد، لایههای نازک و بهویژه در کاربردهای صنعتی که با طیف گستردهای از اکسیدها استفاده می شود، بسیار ضروری است. در این بررسی، از دو روش آنالیز با باریکهٔ یونی (IBA)، یعنی پراکندگی الاستیک تشدیدی (RES) برای اکسیژن می شود، بسیار ضروری است. در این بررسی، از دو روش آنالیز با باریکهٔ یونی (IBA)، یعنی پراکندگی الاستیک تشدیدی (RES) برای اکسیژن ماه (۵, ۵)¹⁶O) و واکنش هسته ای (¹⁷O)¹⁷O و ¹⁶O(d, p0)¹⁷O، برای به دست آوردن نمایهٔ عمقی غلظت اکسیژن در آلومینای آنـدی نانو حفره استفاده شد. با استفاده از نرمافزار های موجود، طیفهای حاصل از آزمایش شبیه سازی شدند و مشخص شد که حداکثر عمق اندازه گیری اکسیژن به دست آمده از روش RES، اگرچه کمتر از واکنش هسته ای (d,p) است، دقت این روش بسیار بالاتر است. این حساسیت بالا به دلیل قلـه تیز سطح مقطع تشدیدی است که باعث تفکیک پذیری عمقی خیلی خوب می شود و برای آنالیزهای دقیق، از اهمیت بسیار بالایی بر خوردار است. کلیدواژگان: آنالیز با باریکه یونی، نمایه عمقی، اکسیژن.

۱. مقدمه

امروزه اندازه گیری نمایهٔ عمقی اکسیژن در مطالعهٔ بسیاری از فرایندهای فیزیکی و شیمیایی همانند فرایندهای خوردگی، تکنولوژی نیمهرساناها، متالورژی و ابررساناهایی با دمای بالا از نظر نظری و عملی، مورد توجه بسیاری واقع شده است. روشهای آنالیزی قابل قبول که بتوان اطلاعات کافی در مورد توزیع اکسیژن در لایهها را بهدست آورد، نیز مورد بررسی است. روشهای مختلفی همانند اسپکترومتری الکترون اوژه^۱ (AES)، اسپکترومتری بهدست آوردن نمایهٔ عمقی اکسیژن به کار یونی^۳ IBA برای بهدست آوردن نمایهٔ عمقی اکسیژن به کار

برده می شود؛ وللی در بین این روش ها، روشی که دارای ویژگی هایی با حساسیت بالا و غیرمخرب بودن باشد، از اهمیت بالایی برخودار است [۱]. روش های هسته ای برای آنالیز مواد براساس پراکندگی ذرات، از نمونه هدف استوارند. در یک پراکندگی، با توجه به نوع پرتابه و هدف و حتی نوع ذرات جدید به وجودآمده، می توان اطلاعات نمونه هدف را به دست آورد. در روش آنالیز با باریکهٔ یونی (IBA) تکنیک هایی همانند NRA^{*} و RES[°] برای تعیین پروفایل عمقی عناصر سبک همانند

^{1.} Auger electron spectroscopy

^{2.} Secondary ion mass spectrometry

^{3.} Ion beam analysis

^{4.} Nuclear Reaction Analysis

^{5.} Resonance Elastic Spectroscopy

اکسیژن بهدلیل ضریب جنبشی کوچک و سطح مقطع پراکندگی کوچک آن با دشواریهایی روبهرو است؛ ولی این روشها در مقایسه با روشهای دیگری که برای تعیین اکسیژن مفید شناخته شدهاند، از جمله اسپکترومتری الکترون اوژه (AES) و اسپکترومتری جرم یونی (SIMS) که آثار زیانباری بر ماده دارند، بیشتر مورد توجهاند [۲].

در روش های تشدیدی با توجه به حساسیت سطح مقطع واکنش به انرژی و همچنین کاهش انرژی ذرات در عمق، همواره برای ذرات در یک عمق مشخص، شرایط تشدید برقرای می شود. با دنبال کردن قله تشدید نمایه کردن عمقی یک عنصر خاص صورت می گیرد.

روش NRAیک ابزار مناسب برای مطالعهٔ نمایههای عمقی عناصر سبک در لایههای نازک است. این روش برای تحلیل عناصر سبک (همانند اکسیژن، کربن، نیتروژن و...) حساسیت زیادی دارد. با توجه به برد محدود یونهای پرانرژی مورد استفاده و نیز توان توقف زیاد محصولات برهم کنش ایجادشده، روش NRA عملاً برای آنالیز ناحیهٔ نزدیک به سطح به کار میرود. با اندازه گیری انرژی ذرات باردار گسیل شده، امکان تعیین نمایهٔ عمقی غلظت عناصر مشخص در ناحیهٔ نزدیک سطح ممکن می شود. این روش دارای تفکیک پذیری با حساسیت ممکن می شود. این روش دارای تفکیک پذیری با حساسیت مراد می گیرد و ماتریس ماده هدف می تواند تا μ 6 را آشکارسازی کند [۳، ۴].

پس پراکندگی رادرفورد (RBS) نیز روشی غیرمخرب است که با استفاده از باریکهای از ذرات باردار، با انرژی مگالکترون ولت، به مطالعه و بررسی خواص فیزیکی مواد جامد می پردازد. این روش به صورت گسترده برای تعیین ضخامت و غلظت عناصر استفاده می شود [۴، ۵].

استفاده از روش RBSاستاندارد برای بهدست آوردن پروفایل عمقی اکسیژن، بهدلیل سیگنال ضعیف اکسیژن در مقابل پسزمینهٔ قوی ناشی از ماتریس مواد، با چالش روبهرو است.

برای غلبه بر این مانع، اندازه گیری رزونانس هسته ای الاستیک برای بالا بردن حساسیت اندازه گیری اکسیژن استفاده می شود. پراکندگی الاستیک رزونانسی (RES)¹⁶O(α,α) روشی مشهور از روش های IBA برای به دست آوردن نمایهٔ عمقی اکسیژن است که به سبب حساسیت بسیار بالا و توان تفکیک عمقی خوب آن استفاده می شود. اگرچه در این روش آنالیزی نیز با توجه به اندازه گیری های پرز حمت و ابهاماتی که در انرژی رزونانسی هست، مشکلاتی وجود دارد، حساسیت بالای این روش و غیر مخرب بودن آن باعث شده بیشتر چشمگیر باشد [۶].

در این مطالعه، پروفایل عمقی و غلظت اکسیژن در نمونههای اکسیدآلومینای آندی با استفاده از دو روش پراکندگی الاستیک رزونانسی ¹⁶O(a, a)¹⁶O و واکنش هستهای الاستیک رزونانسی ¹⁶O(d, p)¹⁶O و واکنش هستهای مقایسهای بین این دو روش از نظر دقت اندازه گیری و پروفایل عمقی اکسیژن انجام گرفت.

اکسید آلومینیوم آندی یک مادهٔ نمونهای کلیدی بـرای سـاخت نانوساختارهایی مانند نانوسـیم، نانولولـه و... اسـت. فراینـد آنـدایز آلومینیوم که منجر به تشکیل نمونههای آلومینای متخلخل میشـود، آرایهای از نانوحفرههای موازی با چگالی بالا را نتیجه میدهد.

۲. روش آزمایش نمونه های اکسید آلومینای نانومتخلخل مورد استفاده در این آزمایش، با روش الکتروشیمی در محلول الکترولیت اسید اکسالیک ۳/۰ مولار، با روش آندایز ولتاژ ۴۰ تهیه شدهاند.

آنالیز نمونه ها در آزمایشگاه واندوگراف سازمان انرژی اتمی ایران، با استفاده از شتاب دهندهٔ واندوگراف بالای MeV ۳ انجام شد. اندازه گیری ها شامل بمباران لایهٔ اکسیدی آلومینیوم آندایز شده با باریکهٔ کاملاً موازی هلیوم و دوترون بود و آشکارسازی ذرات آلفا پس پراکنده شده و نیز پروتونهای خروجی واکنش (d-p) توسط آشکارساز سد سطحی سیلیکونی (SBD) بود. باریکه ها با زاویهٔ نرمال بر سطح نمونه

برخورد کرده و ذرات پس پراکنده تحت زاویه ۱۶۵ درجه نسبت به بردار نرمال بر سطح نمونه آشکار شد. قدرت تفکیک انرژی باریکهٔ یونی آلفا بهتر از ۵۰۰ الکترون ولت، قدرت تفکیک انرژی آشکارساز ۱۵کیلو الکترون ولت و همچنین قدرت تفکیک انرژی آشکارساز و الکترونیک آشکارسازی بهتر از ۲۰ کیلوالکترون ولت است.

باریکه هلیوم با انرژیهای ۳/۰۹۵ ۳/۰، ۳/۰۹۰، ۳/۳۵ و ۳/۱۸ در روش آنالیزی RESاستفاده شد.

واکنش های هستهای ¹⁶O(d,p₀)¹⁷O , ¹⁶O(d,p₀) با باریکهٔ دوترون فرودی با انرژی ۱/۴ MeV انجام شد. برای حذف محصولات دیگر ناشی از واکنش هستهای و نیز دوترون های پس پراکنده شده، فیلترهای کپتون به کار برده شد. آنالیز کمی و شبیه سازی طیف های حاصل از آزمایش با کد SIMNRA انجام شد [۸].



شکل ۱: طیف آلفای پس پراکنده از واکنش رزونانسی ¹⁶O(α, α)¹⁶O در انرژیهای ۳-۳/۱۸ MeV

۳. نتايج و بحث

۱.۳. پراکندگی تشدیدی کشسان

طیف آلفای پس پراکنده از واک نش رزونانسـی ¹⁶O(α, α) در انــرژیهـای ۳/۱۳۵، ۳/۰۹۰، ۳/۰۴۵ MeV و ۳/۱۳۵۰ از آلومینای آندی، در شکل (۱) نشان داده شده است. لبههای انتهایی طیفهای حاصل (کانال ۳۵۰ تا ۴۵۰) با توجه به فاکتور سینماتیکی آلومینیوم که عنصر سنگینی نسبت به اکسیژن است، مربوط به ذرات آلفای برگشتی از این عنصر است که توسط آشکارساز شمارش شده است. قلههای رزونانسی موجود در کانال های ۲۰۰ تا ۳۵۰، ناشی از ذرات آلفای برگشتی از اتمهای اکسیژن است کے بےصورت رزونانسے یے پراکنے دہ شدهاند. این قلهها با زمینهای از آلفاهای برگشتی غیر رزونانسی از آلومينيوم همراه است. با افزايش انرژي، قلهٔ رزونانسي ناشي از رزونانس اتمهای اکسیژن با ذرات آلفای باریک، بـهسـمت انرژیهای پایینتر کشیده میشود، در واقع با افزایش انرژی فرودی، توان توقف ذرات آلفا نفوذی به عمق کاهش می یابد و باعث می شود تا عمق های بیشتر نفوذ کرده و ذرات پس پراکنده نیز انرژی کمتری را بهدلیل نفوذ در عمق خواهند داشت. پس حساسیت روش بیشتر شده و تفکیک پذیری عمقی افزایش مییابد؛ بنابراین، تعیین ضخامت و ترکیب لایـهای را ممکـن میسازد. همچنین این افزایش انرژی پروفایـل عمقـی را بـرای اتمهای اکسیژن انجام میدهد.

با برازش (Fit) هر یک از قلههای رزونانسی نیز مشاهده شد که هر چه انرژی افزایش مییابد، سطح زیر قلـه افـزایش و به تبع آن عمق شناسایی اتمهای اکسیژن افزایش مییابد (شکل ۲).

www.SID.ir



انرژی ذرات آلفا باریکهٔ فرودی و بهرههای نرمالیزشده از Al₂O₃ نمونهها در شکل (۳) نشان داده شده است. روشن است که با افزایش انرژی عمق بیشتری از اکسیژن محتوی ماده جاروب می شود و بهره نرمالیز شده اکسیژن نیز افزایش می یابد.



شکل ۳: بهرهٔ رزونانسی نرمالیزشدهٔ اکسیژن در آلومینای آندی بهصورت تابعی از انرژی ذرات آلفای فرودی

سنجش میزان دقت هر روش از اهمیت بالایی برخوردار است. با توجه به اینکه در اندازه گیری غلظت عناصر یا ضخامت لایه ها پارامترهایی چون دقت شدت باریکه، سطح مقطع، پارامترهای هندسی و همچنین بازه (range) ذرات در نمونه بستگی دارد. در این روش، میزان خطا یا عدم دقتی که

در سطح مقطع مورد استفاده در شبیه ازی گزارش شده [۹] همرا با میزان عدم دقت پارامترهای دیگر همانند خطای آماری بر روی قله های اکسیژن، خطای کلی اندازه گیری غلظت اکسیژن را در حدود ٪۶–۵٪ بر آورد می کند.

۳.۲. واکنش d-p

پروتـونهـای سـاطعشـده از واکـنشهـای ¹⁶O(d, p₁)¹⁷O و ¹⁶O(d, p₀)¹⁷O در روش NRA در شــکل (۴) و (۵) و (۶) نشان داده شده است.

این طیف ها شامل ۳ اندازه گیری مختلف است که در شکل (۴)، شمارش ذرات توسط آشکارساز بدون فیلتر کپتون انجام گرفته است. در این طیف، بازده اندازه گیری علاوه بر دوتریوم های پسپراکنده شده از اتم های اکسیژن، دوتریوم های متوقف نشده توسط فیلتر و نیز ذرات آلفای ناشی از واکنش (d, α) نیز محاسبه شده است.



مقابل آشکارساز در شکلهای (۶) و (۵) فیلترهای کپتون تکلایهای ۶ میکرونی و نیز فیلتر کپتون دو لایهای قرار داده شد تا مانع از رسیدن دوترونهای پسپراکندهشده و ذرات آلفای حاصل از واکنش هستهای شود؛ بنابراین، تعداد ذرات

www.SID.ir

پروتون حاصل از واکنش کاهش مییابد؛ ولی تغییر محسوسی در طیفها دیده نمیشود.

قلههای موجود در این طیفها بهرهٔ پروتونهای حاصل از واکنش اکسیژن (Po O, (O p را نشان می دهند. از آنجاکه ایس قلهها بدون پس زمینهٔ دیگر هستند، سطح زیرقلهها می تواند برای بر آورد غلظت اکسیژن به کار رود. با توجه به شکل (۷) آشکار است که اکسیژن دارای غلظت قابل توجهی است و تا ممق زیادی از ماده نفوذ کرده است. شبیه سازی ها غلظت در عمق زیادی از ماده نفوذ کرده است. شبیه سازی ها غلظت در می گذارد. باید توجه کرد که در این روش نیز، عدم دقت ناشی می گذارد. باید توجه کرد که در این روش نیز، عدم دقت ناشی مقطعهای [۱۰] وارد شده در شییه سازی ها به ویژه در انرژی های کمتر از کمان (۱۹۰۸ که با ابهاماتی روبه رو است، باعث شده که این خطا در حدود یک تا دو مرتبه بیشتر باشد.



فيلتر كپتون)



شکل ۶: طیف پروتون واکنش هستهای ¹⁶O(d, p1)¹⁷O و ¹⁶O(d, p0)¹⁷O با استفاده از باریکهٔ دوتریم ۱/۴ MeV(با دو فیلتر کپتون)



شکل ۲: نمایهٔ عمقی اکسیژن حاصل از واکنش هستهای

۴. نتیجه گیری

پراکندگی رزونانسی O¹⁶(α, α)¹⁶O برای شناسایی و توزیع عمقی اکسیژن فیلمهای اکسیدی ابزار قدرتمندی است. اگرچه روش پروب اکسیژن با استفاده از آنالیز واکنش هستهای با باریکهٔ دوترون، عمق آنالیزی بیشتری را در اختیار میگذارد، این روش بهخصوص در آنالیز انرژی با استفاده از سطح مقطعی حاضر، دارای دقت فراوانی در مقایسه با پراکندگی رزونانسی O⁶¹(α, α)¹⁶ نیست. فنون هستهای، جهت فراهم کردن امکان استفاده از تجهیزات آزمایشگاه برای انجام این کار پژوهشی بسیار سپاسگزاریم.

۶. مراجع

- [1] G.L.N. Reddy, P. Rao, J.V. Ramana, S. Vikramkumar, V.S. Raju, S. Kumar, J. "Depth profiling of oxygen in oxide films by ¹⁸O(p, α)¹⁵N nuclear reaction analysis" *J Radioanal Nucl Chem.*, vol. 294, 2012, pp. 401–404.
- [2] S. Nsengiyumvat, J.P. Riviere, A.T. Raji., "Oxygen depth profiling in Kr⁺-implanted polycrystalline alpha titanium by means of ${}^{16}O(\alpha, \alpha){}^{16}O$ resonance scattering" *Journal of Nuclear Materials*, vol. 414, 2011, pp. 150–155
- [3] Y. Wang, M. Nastasi, (eds.), Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis, Second ed., *Materials Research Society*, 2009.
- [4] H.R. Verma, *Atomic and Nuclear Analytical Methods*, Springer, 2007.
- [5] W.-K. Chu, J. W. Mayer, M.-A. Nicolet., Backscattering Spectrometry, *Academic Press INC*, 1978.
- [6] J.C. Jiang , H.S. Cheng , B. Li , Z.H. Wang , Z.Q. Zhang , F.S. Zhang , F.J. Yang. "Quantitative

analysis of the oxygen content in TiO2 films deposited by electron-beam evaporation using ${}^{16}O(\alpha, \alpha){}^{16}O$ resonant elastic scattering".*Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. B*, vol. 190, 2002, pp.514-517.

- [7] H. Krzyzanowska, A.P. Kobzev ,J. Zuk. "Hydrogen and oxygen concentration analysis of porous silicon" *Journal of Non-Crystalline*, vol. 354, 2008, 4367– 4374.
- [8] M. Mayer, SIMNRA user's guide, Report IPP9/113, Max-Institut fur Plasmaphysik, Garching, Germany, 1997.
- [9] J. Demarche, G. Terwagne, "Precise measurement of the differential cross section from the ${}^{16}O(\alpha, \alpha){}^{16}O$ elastic reaction at165° and 170° between 2.4 and 6.00 MeV" *Appl. Phys.*, vol 100, 2006, pp. 124909.
- [10] M. Kakkoris, P. Misaelides, S. Kossaonides, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. B, vol. 249, 2006, pp.77-82.