

## مقایسه دو روش برهم کنش هسته‌ای و پراکندگی تشدید برای اندازه‌گیری نمایه عمقی اکسیژن در آلومینای نانو متخلخل

منیجه رحیمی<sup>۱</sup>، محمد ترکیهای اصفهانی<sup>۱\*</sup>، امیدرضا کاکویی<sup>۲</sup> و وحید فتح‌اللهی<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> گروه فیزیک، دانشکده فیزیک، دانشگاه کاشان، کاشان، اصفهان، ایران.

<sup>۲</sup> سازمان انرژی اتمی تهران، تهران، ایران.

\* اصفهان، کاشان، بلوار قطب راوندی، دانشگاه کاشان، دانشکده فیزیک، کدپستی: ۵۱۱۶۷-۸۷۳۱۷

پست الکترونیکی: torkiha@kashanu.ac.ir

### چکیده

شناسایی و تعیین نمایه عمقی اکسیژن در سطح مواد، لایه‌های نازک و به‌ویژه در کاربردهای صنعتی که با طیف گسترده‌ای از اکسیدها استفاده می‌شود، بسیار ضروری است. در این بررسی، از دو روش آنالیز با باریکه یونی (IBA)، یعنی پراکندگی الاستیک تشدید (RES) برای اکسیژن ( $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$ ) و واکنش هسته‌ای ( $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}$  و  $^{16}\text{O}(d, p0)^{17}\text{O}$ )، برای به‌دست‌آوردن نمایه عمقی غلظت اکسیژن در آلومینای آندی نانوحفره استفاده شد. با استفاده از نرم‌افزارهای موجود، طیف‌های حاصل از آزمایش شبیه‌سازی شدند و مشخص شد که حداکثر عمق اندازه‌گیری اکسیژن به‌دست‌آمده از روش RES، اگرچه کمتر از واکنش هسته‌ای (d,p) است، دقت این روش بسیار بالاتر است. این حساسیت بالا به‌دلیل قله تیز سطح مقطع تشدید است که باعث تفکیک‌پذیری عمقی خیلی خوب می‌شود و برای آنالیزهای دقیق، از اهمیت بسیار بالایی برخوردار است. **کلیدواژگان:** آنالیز با باریکه یونی، نمایه عمقی، اکسیژن.

### ۱. مقدمه

برده می‌شود؛ ولی در بین این روش‌ها، روشی که دارای ویژگی‌هایی با حساسیت بالا و غیرمخرب بودن باشد، از اهمیت بالایی برخوردار است [۱].

روش‌های هسته‌ای 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 به‌وجودآمده، می‌توان اطلاعات نمونه هدف را به‌دست آورد.

در روش آنالیز با باریکه یونی (IBA) تکنیک‌هایی همانند NRA<sup>۴</sup> و RES<sup>۵</sup> برای تعیین پروفایل عمقی عناصر سبک همانند

امروزه اندازه‌گیری نمایه عمقی اکسیژن در مطالعه 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<sup>۱</sup> (AES)، اسپکترومتری جرم یونی<sup>۲</sup> (SIMS) و آنالیز با باریکه یونی<sup>۳</sup> IBA برای به‌دست آوردن نمایه عمقی اکسیژن به‌کار

1. Auger electron spectroscopy

2. Secondary ion mass spectrometry

3. Ion beam analysis

4. Nuclear Reaction Analysis

5. Resonance Elastic Spectroscopy

برای غلبه بر این مانع، اندازه‌گیری رزونانس هسته‌ای الاستیک برای بالا بردن حساسیت اندازه‌گیری اکسیژن استفاده می‌شود. پراکندگی الاستیک رزونانسی (RES)  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  روشی مشهور از روش‌های IBA برای به‌دست آوردن نمایه عمقی اکسیژن است که به‌سبب حساسیت بسیار بالا و توان تفکیک عمقی خوب آن استفاده می‌شود. اگرچه در این روش آنالیزی نیز با توجه به اندازه‌گیری‌های پرزحمت و ابهاماتی که در انرژی رزونانسی هست، مشکلاتی وجود دارد، حساسیت بالای این روش و غیرمخرب بودن آن باعث شده بیشتر چشمگیر باشد [۶].

در این مطالعه، پروفایل عمقی و غلظت اکسیژن در نمونه‌های اکسید آلومینای آندی با استفاده از دو روش پراکندگی الاستیک رزونانسی  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  و واکنش هسته‌ای  $^{17}\text{O}(\text{d}, \text{p}_1)^{16}\text{O}$  و  $^{17}\text{O}(\text{d}, \text{p}_0)^{16}\text{O}$  مورد بررسی قرار گرفت و مقایسه‌ای بین این دو روش از نظر دقت اندازه‌گیری و پروفایل عمقی اکسیژن انجام گرفت.

اکسید آلومینیوم آندی یک ماده نمونه‌ای کلیدی برای ساخت نانو ساختارهایی مانند نانوسیم، نانولوله و... است. فرایند آندایز آلومینیوم که منجر به تشکیل نمونه‌های آلومینای متخلخل می‌شود، آرایه‌ای از نانوحفره‌های موازی با چگالی بالا را نتیجه می‌دهد.

## ۲. روش آزمایش

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

آنالیز نمونه‌ها در آزمایشگاه واندوگراف سازمان انرژی اتمی ایران، با استفاده از شتاب‌دهنده واندوگراف بالای MeV ۳ انجام شد. اندازه‌گیری‌ها شامل بمباران لایه اکسیدی آلومینیوم آندایز شده با باریکه 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. باریکه‌ها با زاویه نرمال بر سطح نمونه

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 اوزه (AES) و اسپکترومتری جرم یونی (SIMS) که آثار زیانباری بر ماده دارند، بیشتر مورد توجه‌اند [۲].

در روش‌های تشدید 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 برقراری می‌شود. با دنبال کردن قله تشدید نمایه‌کردن عمقی یک عنصر خاص صورت می‌گیرد.

روش NRA یک ابزار مناسب برای مطالعه 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 برهم‌کنش ایجادشده، روش NRA عملاً برای آنالیز ناحیه نزدیک به سطح به‌کار می‌رود. با اندازه‌گیری انرژی ذرات باردار گسیل‌شده، امکان تعیین نمایه عمقی غلظت عناصر مشخص در ناحیه نزدیک سطح ممکن می‌شود. این روش دارای تفکیک‌پذیری با حساسیت  $50 \text{ \AA}$  است که با توجه به نوع برهم‌کنش هسته‌ای مورد استفاده قرار می‌گیرد و ماتریس ماده هدف می‌تواند تا  $6 \mu\text{m}$  را آشکارسازی کند [۳، ۴].

پس پراکندگی رادرفورد (RBS) نیز روشی غیرمخرب است که با استفاده از باریکه‌های از ذرات باردار، با انرژی مگاالکترون ولت، به مطالعه و بررسی خواص فیزیکی مواد جامد می‌پردازد. این روش به‌صورت گسترده برای تعیین ضخامت و غلظت عناصر استفاده می‌شود [۴، ۵].

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

### ۳. نتایج و بحث

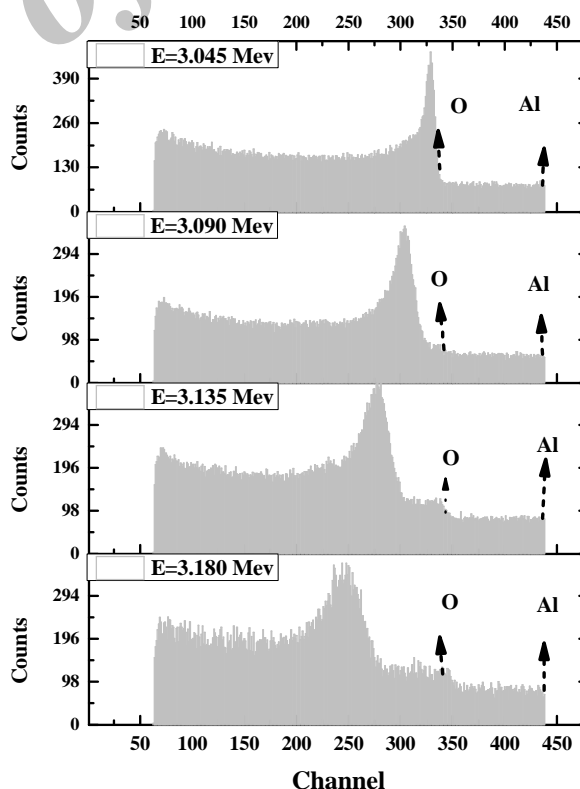
#### ۱.۳. پراکندگی تشدیدی کشسان

طیف آلفای پس‌پراکنده از واکنش رزونانسی  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  در انرژی‌های ۳/۱۸۰، ۳/۱۳۵، ۳/۰۹۰، ۳/۰۴۵ MeV از آلودگی‌های 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 کانال‌های ۲۰۰ تا ۳۵۰، ناشی از ذرات آلفای برگشتی از اتم‌های اکسیژن است که به‌صورت رزونانسی پس‌پراکنده شده‌اند. این قله‌ها با زمینه‌ای از آلفاهای برگشتی غیر رزونانسی از آلومینیوم همراه است. با افزایش انرژی، قله رزونانسی ناشی از رزونانس اتم‌های اکسیژن با ذرات آلفای باریکه، به‌سمت انرژی‌های پایین‌تر کشیده می‌شود، در واقع با افزایش انرژی فرودی، توان توقف ذرات آلفا نفوذی به عمق کاهش می‌یابد و باعث می‌شود تا عمق‌های بیشتر نفوذ کرده و ذرات پس‌پراکنده نیز انرژی کمتری را به دلیل نفوذ در عمق خواهند داشت. پس حساسیت روش بیشتر شده و تفکیک‌پذیری عمقی افزایش می‌یابد؛ بنابراین، تعیین ضخامت و ترکیب لایه‌ای را ممکن می‌سازد. همچنین این افزایش انرژی پروفایل عمقی را برای اتم‌های اکسیژن انجام می‌دهد.

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

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

باریکه هلیوم با انرژی‌های ۳/۰۴۵، ۳/۰۹۰، ۳/۱۳۵ و ۳/۱۸۰ در روش آنالیزی RES استفاده شد. واکنش‌های هسته‌ای  $^{16}\text{O}(d,p)^{17}\text{O}$ ،  $^{16}\text{O}(d,p)^{17}\text{O}$  با باریکه دوتریون فرودی با انرژی ۱/۴ MeV انجام شد. برای حذف محصولات دیگر ناشی از واکنش هسته‌ای و نیز دوتریون‌های پس‌پراکنده شده، فیلترهای کیتون به‌کار برده شد. آنالیز کمی و شبیه‌سازی طیف‌های حاصل از آزمایش با کد SIMNRA انجام شد [۸].



شکل ۱: طیف آلفای پس‌پراکنده از واکنش رزونانسی

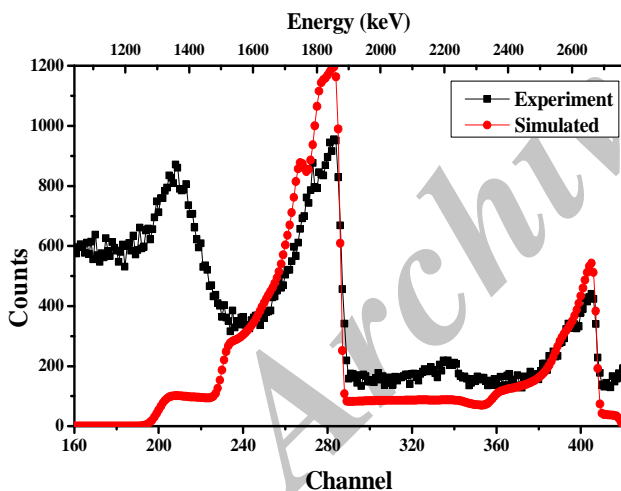
$^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  در انرژی‌های ۳-۳/۱۸ MeV

در سطح مقطع مورد استفاده در شبیه‌سازی گزارش شده [۹] همرا با میزان عدم دقت پارامترهای دیگر همانند خطای آماری بر روی قله‌های اکسیژن، خطای کلی اندازه‌گیری غلظت اکسیژن را در حدود ۵-۶٪ برآورد می‌کند.

### ۳.۲. واکنش d-p

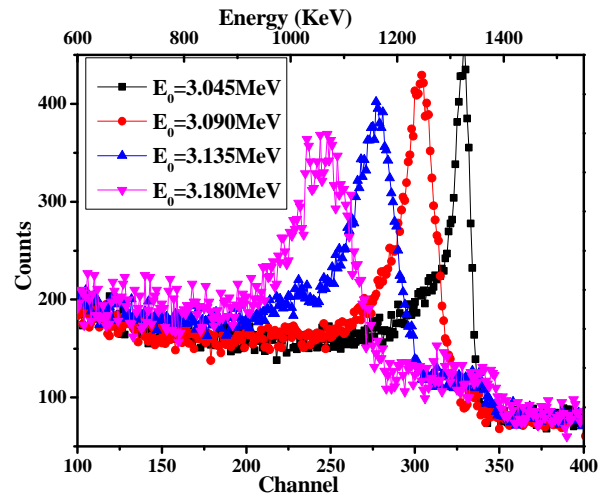
پروتون‌های ساطع‌شده از واکنش‌های  $^{16}\text{O}(d, p_1)^{17}\text{O}$  و  $^{16}\text{O}(d, p_0)^{17}\text{O}$  در روش NRA در شکل (۴) و (۵) و (۶) نشان داده شده است.

این طیف‌ها شامل ۳ اندازه‌گیری مختلف است که در شکل (۴)، شمارش ذرات توسط آشکارساز بدون فیلتر کپتون انجام گرفته است. در این طیف، بازده اندازه‌گیری علاوه بر دوتریوم‌های پس‌پراکنده‌شده از اتم‌های اکسیژن، دوتریوم‌های متوقف نشده توسط فیلتر و نیز ذرات آلفای ناشی از واکنش  $(d, \alpha)$  نیز محاسبه شده است.



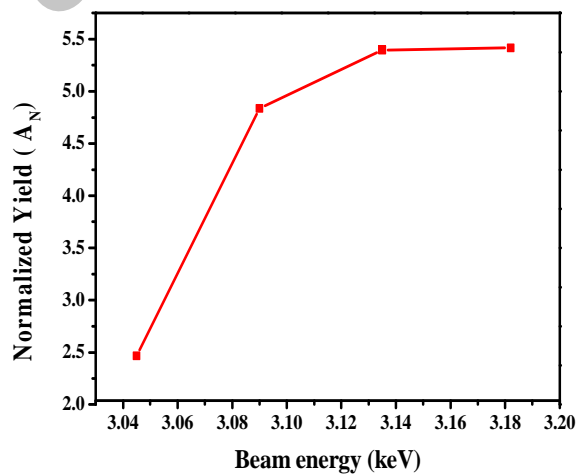
شکل ۴: طیف پروتون واکنش هسته‌ای  $^{16}\text{O}(d, p_1)^{17}\text{O}$  و  $^{16}\text{O}(d, p_0)^{17}\text{O}$  همراه با دوتریون‌های پس‌پراکنده با استفاده از باریکه دوتریم ۱/۴ MeV (بدون فیلتر)

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 دوتریون‌های پس‌پراکنده‌شده و ذرات آلفای حاصل از واکنش هسته‌ای شود؛ بنابراین، تعداد ذرات



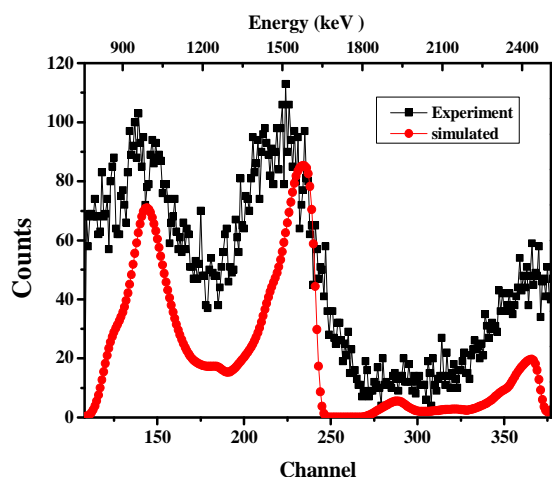
شکل ۲: نمایی از قله‌های رزونانسی با انرژی‌های ۳/۱۸ MeV-۳/۰۴۵

انرژی ذرات آلفا باریکه فرودی و بهره‌های نرمالیزه‌شده از  $\text{Al}_2\text{O}_3$  نمونه‌ها در شکل (۳) نشان داده شده است. روشن است که با افزایش انرژی عمق بیشتری از اکسیژن محتوی ماده جاروب می‌شود و بهره نرمالیزه‌شده اکسیژن نیز افزایش می‌یابد.

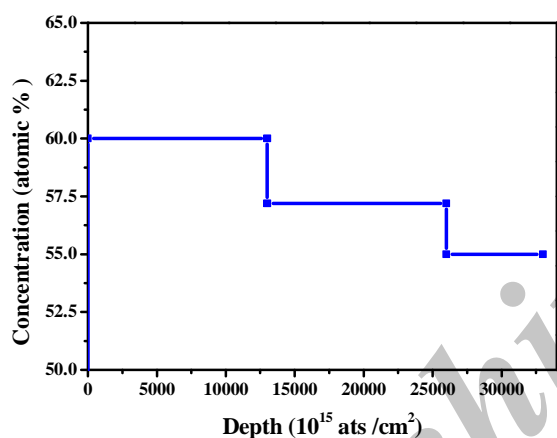


شکل ۳: بهره رزونانسی نرمالیزه‌شده اکسیژن در آلومینای آندی به صورت تابعی از انرژی ذرات آلفای فرودی

سنجش میزان دقت هر روش از اهمیت بالایی برخوردار است. با توجه به اینکه در اندازه‌گیری غلظت عناصر یا ضخامت لایه‌ها 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



شکل ۶: طیف پروتون واکنش هسته‌ای  $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}$  و  $^{17}\text{O}(d, p)^{16}\text{O}$  با استفاده از باریکه دوتریم  $1/4 \text{ MeV}$  (با فیلتر کپتون)



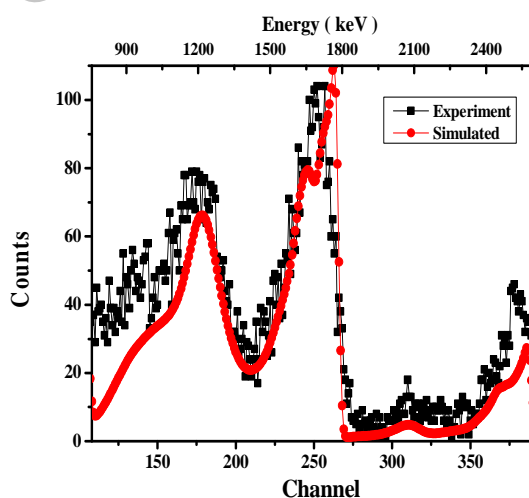
شکل ۷: نمایه عمقی اکسیژن حاصل از واکنش هسته‌ای

#### ۴. نتیجه‌گیری

پراکندگی رزونانسی  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  برای شناسایی و توزیع عمقی اکسیژن فیلم‌های اکسیدی ابزار قدرتمندی است. اگرچه روش پروب اکسیژن با استفاده از آنالیز واکنش هسته‌ای با باریکه 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  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  نیست.

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

قله‌های موجود در این طیف‌ها بهره پروتون‌های حاصل از واکنش اکسیژن  $^{16}\text{O}(p_1, O), p_0$  را نشان می‌دهند. از آنجاکه این قله‌ها بدون پس‌زمینه دیگر هستند، سطح زیرقله‌ها می‌تواند برای برآورد غلظت اکسیژن به‌کار رود. با توجه به شکل (۷) آشکار است که اکسیژن دارای غلظت قابل توجهی است و تا عمق زیادی از ماده نفوذ کرده است. شبیه‌سازی‌ها غلظت در عمق  $10^{15} \text{ atoms/cm}^2$  از اکسیژن را در اختیار می‌گذارد. باید توجه کرد که در این روش نیز، عدم دقت ناشی از اندازه‌گیری، به‌ویژه در خطای آماری ذرات و نیز سطح مقطع‌های [۱۰] وارد شده در شبیه‌سازی‌ها به‌ویژه در انرژی‌های کمتر از  $1500 \text{ KeV}$  که با ابهاماتی روبه‌رو است، باعث شده که این خطا در حدود یک تا دو مرتبه بیشتر باشد.



شکل ۵: طیف پروتون واکنش هسته‌ای  $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}$  و  $^{17}\text{O}(d, p)^{16}\text{O}$  با استفاده از باریکه دوتریم  $1/4 \text{ MeV}$  (با فیلتر کپتون)

## ۵. سپاسگزاری

از ریاست محترم آزمایشگاه و اندوگراف پژوهشگاه علوم و

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  $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$  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  $\text{Kr}^+$ -implanted polycrystalline alpha titanium by means of  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  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  $\text{TiO}_2$  films deposited by electron-beam evaporation using  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  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  $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$  elastic reaction at  $165^\circ$  and  $170^\circ$  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.

Archive