

СУМСКИЙ ФИЗИКО - ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

На правах рукописи

ЗАБАШТА ОЛЕГ ИВАНОВИЧ

УДК 539.12.04

ВОССТАНОВЛЕНИЕ ПРОФИЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ПРИМЕСИ В
МЕТОДЕ РЕЗОНАНСНЫХ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИИ

01.04.01 - Техника физического эксперимента, физика
приборов, автоматизация физических исследований

Автореферат

Диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

СУМЫ - 1993



00802729 (S)

AB 28.140

ладной физики АН Украины,

г. Сумы.

Научные руководители: доктор физико-математических наук,
профессор, член-корреспондент АН Украины
В. Е. Сторижко,
кандидат физико-математических наук
А. И. Кульментаев

Официальные
оппоненты: доктор физико-математических наук,
профессор
Б. А. Немошало,
кандидат физико-математических наук
А. Д. Погресняк

Ведущая организация: Сумский педагогический институт.

Защита диссертации состоится *21 октября* 1993г
в *14* часов на заседании специализированного совета К-058 490 2
в Сумском физико-технологическом институте.

Адрес: 244007, Сумы, ул. Римского-Корсакова, д. 2, тел. 33-34-55

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке СФТИ.

Автореферат разослан *14 сентября* 1993 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв
в одном экземпляре, заверенный печатью организации.

Ученый секретарь
специализированного совета

Флат А. Я.

AB = 28. 7-1-0

Актуальность темы. История использования резонансных ядерных реакций, возбуждаемых высокоэнергетичными лучками ускоренных заряженных частиц, применительно к исследованию структуры и состава приповерхностной области твердых тел насчитывает несколько десятилетий. Такие характеристики метода резонансных ядерных реакций (РЯР), как избирательность, низкие пределы облучения легких элементов и неразрушающий характер анализа сделали его одним из наиболее удобных и точных при исследовании концентраций легких элементов и их распределении по глубине и позволили ему занять важное место среди других методов элементного анализа материалов.

В последние годы в связи с развитием таких отраслей, как микроэлектроника, модификация ионно-плазменными методами поверхностей и т.д., существенно расширился круг объектов, для исследования которых метод РЯР особенно перспективен. Однако развитие этого метода и выявление потенциально заложенных в нем возможностей сдерживалось рядом причин. В частности, до сих пор применяется упрощенный подход, когда для определения профиля распределения концентрации примеси осуществляется простой перевод шкалы энергий в шкалу глубин.

Трудности метода связаны с нерешенностью некоторых математических проблем, таких как некорректный характер уравнения выхода, высокая чувствительность результатов к используемой модели взаимодействия пучка ионов с веществом, а также с необходимостью существенного улучшения параметров используемого экспериментального оборудования: обеспечения возможно меньшего разброса по энергии анализирующего пучка (меньше 100 эВ) и определения энергии пучка с такой же

точность.

В связи с этим, возникла необходимость решения следующих задач:

1. Получение уравнения выхода в методе РЯР, которое адекватно отражало бы современное представление о взаимодействии пучка ионов с твердым телом и было бы достаточно эффективно в вычислительном плане;

2. Создание пакета программ для решения обратной задачи в методе РЯР с учетом некорректного характера задачи решения уравнения выхода;

3. Разработка автоматизированной системы стабилизации энергии пучка ионов и энергетического сканирования применительно к электростатическому ускорителю;

4. Проведение экспериментальных и теоретических исследований распределений примеси по глубине, возникающих в результате различных процессов ионно - плазменной обработки материалов и эволюции таких распределений в различных условиях.

Целью работы является совершенствование возможностей метода РЯР: 1) разработка автоматизированных систем стабилизации и сканирования; 2) создание пакета программ полной обработки кривых выхода в методе резонансных ядерных реакций; 3) исследование возможностей этого метода при решении актуальных практических задач в различных областях науки и техники.

Научная новизна работы заключается в том, что в ней:

1) Разработана схема решения уравнения выхода в методе РЯР при решении обратной задачи с учетом некорректного характера

этого уравнения.

2. Предложена система стабилизации и изменения энергии электростатического ускорителя.

3. Определены профили примесей алюминия и титана, образовавшиеся в результате ионной имплантации в матрицу Fe. Восстановлен состав слоистой структуры TiN-Cu. Исследовано влияние вгндренных атомов благородных газов на процесс образования таких структур.

Практическая ценность заключается в разработке системы стабилизации и изменения энергии электростатического ускорителя, создании пакета программ, предназначенного для полной обработки спектров в методе РЯР и отработке методики определения легких примесей.

Результаты работы могут найти применение в организациях, имеющих ускорители прямого действия как для модернизации их конструкций, так и совершенствования используемых методик анализа вещества: ХФТИ (Харьков), ФЭИ (Обнинск), НИИЭФА (Санкт-Петербург), ИИЯФ МГУ (Москва), ИЯИ (Киев), ИИЯФ (Томск), ОИЯИ (Дубна).

Апробация работы. Материалы работы докладывались и обсуждались:

- на III Всесоюзной конференции по микроанализу на ионных пучках (Сумы, 1990)

- на научно - технической конференции преподавателей, сотрудников и студентов СФТИ (Сумы, 1992г)

- на XXII международном совещании по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами (МГУ, 1992).

на XI Международной конференции по анализу с использованием ионных пучков IBA -11 (Бенгрия, 1993).

Публикации. По теме диссертации опубликовано 7 работ.

Объем и структура диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав, общих выводов и списка цитируемой литературы, включающего 113 наименований работ. Работа изложена на 161 странице машинописного текста, содержит 29 рисунков и 2 таблицы.

Автор защищает, представляя настоящую работу как диссертацию на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, следующие основные положения, изложенные в диссертации:

1. Математическая модель описания энергетической зависимости выхода резонансной ядерной реакции для определения профиля концентрации элементов по глубине из решения обратной задачи с учетом некорректного характера уравнения выхода, теоретическая и экспериментальная проверка этой модели.

2. Автоматизированная система стабилизации энергии пучка ионов и энергетического сканирования применительно к электростатическому ускорителю.

3. Результаты определения профиля распределения Al, Ti, имплантированных в α -Fe.

4. Результат экспериментальных исследований влияния внедренных атомов благородных газов на процесс образования слоистых структур типа TiN-Cu.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В начале работы приведены сравнительные характеристики различных методов исследования структуры и состава приповерхностной области твердых тел. Анализ возможностей этих методов показывает, что эта актуальная для многих областей науки и техники задача может быть успешно решена в рамках ядерно-физических методов анализа. Наиболее перспективным среди этих методов при исследовании распределения легких элементов по глубине образца является метод РЯР, в котором профиль концентрации $C(t)$ определяется из кривой выхода $Y(E_1)$ возбужденной резонансной реакции на ядрах искомой примеси. Основной проблемой в методе РЯР является восстановление точных распределений $C(t)$. Здесь же собраны и проанализированы данные о резонансных ядерных реакциях, используемых при глубинном профилировании различных примесей, от Н до Сг.

Далее в работе получено уравнение выхода в методе РЯР. В общем случае задача восстановления $C(t)$ из кривой выхода $Y(E_1)$ сводится к решению интегрального уравнения

$$Y(E_1) = I K \int_a^b C(t) q(t, E_1) dt, \quad (1)$$

где I - ток пучка ионов, K - постоянная для данных условий эксперимента величина, включающая в себя эффективность регистрации детектирующей системы и т.д., $C(t)$ - искомое распределение примеси по глубине, $q(t, E_1)$ - ядро интегрального уравнения (1) - вероятность возбуждения ионом рассматриваемой ядерной реакции на глубине t . Интегрирование в (1) идет по всему интервалу $[a, b]$ распределения исследуемой примеси в образце.

Ядро уравнения (1) можно определить в виде:

$$q(t, E_1) = \int_0^{\infty} \sigma(E) g(E; E_1; t) dE,$$

где $\sigma(E)$ - сечение рассматриваемой ядерной реакции, $g(E; E_1; t)$ - плотность вероятности нахождения частицы пучка в интервале энергий dE волизи E на глубине t при средней начальной энергии частиц E_1 .

функция $g(E; E_1; t)$ определяется следующими факторами: 1) энергетическим разбросом исходного пучка; 2) доплеровским уширением; 3) страгглингом энергетических потерь; 4) тормозными способностями мишени. При $t = 0$ $g(E; E_1; t)$ описывает энергетическое распределение пучка частиц, падавших на мишень, который определяется параметрами конкретного ускорителя заряженных частиц. Обычно принимается, что распределение частиц в пучке является функцией только $E - E_1$, которая выбирается в виде распределения Гаусса. Для большинства экспериментальных установок дисперсия этого распределения лежит в пределах от 100 эВ до 3 кэВ. Энергетический разброс, обусловленный эффектом Доплера, может быть также приближенно описан гауссовой кривой. Вклад эффекта Доплера в энергетический разброс обычно не превышает нескольких десятков эВ. Суммарное влияние некогерентности исходного пучка ионов и вклад эффекта Доплера может быть описано распределением Гаусса с дисперсией распределения $w_{D,D} = (\Delta_D^2 + \Delta_d^2)^{1/2} 21.02$, где Δ_D - ширина начального энергетического распределения пучка ионов, Δ_d - вклад эффекта Доплера.

При $t > 0$ основной вклад в функцию $g(E; E_1; t)$ вносят процессы торможения. Интегрируя по исходному энергетическому

распределению частиц в пучке, получим

$$g(E; E_1; t) = \int_0^{\infty} \sigma_{\text{ст}}(E' - E_1) w(E'; E; t) dE'$$

где $w(E'; E; t)$ - вероятность того, что монохроматический пучок частиц с энергией E' будет иметь энергию E на глубине t . Эта величина определяется страгглингом энергетических потерь. Конкретный вид уравнения, описывающего величину страгглинга, выбирается в зависимости от ширины используемого резонанса и глубины мишени. Для широких резонансов ($\Gamma \geq 1$ кэВ) и/или больших глубин ($x \geq 10$) можно использовать модель Бора, в остальных случаях необходимо пользоваться точным решением Вавилова.

Окончательно, уравнение выхода имеет вид:

$$Y(E_1) = I K \int_a^b C(t) \int_0^{\infty} \sigma(E) \int_0^{\infty} \sigma_{\text{ст}}(E' - E_1) \times \\ \times w(E'; E; t) dE dE' dt$$

Полученное уравнение выхода допускает аналитическое решение только в рамках простейших, чрезмерно упрощенных моделей. Поэтому, для получения функции $C(t)$ необходимо использовать те или иные численные методы.

Задача по определению $C(t)$ путем решения интегрального уравнения (1) является некорректной, поскольку последнее представляет собой уравнение Фредгольма I-го рода. Для ее решения используются различные подходы: прямые методы, представление искомой зависимости $C(t)$ в виде линейной комбинации каких-либо функций или разложение в ряд по системе ортогональных полиномов, различные итерационные методы и т.д.

При этом возникают трудности, связанные с неединственностью и неустойчивостью решения, приводящие к получению физически неприемлимых результатов. Делается вывод о том, что в случае гладких функций, наиболее эффективным методом поиска решений уравнений типа (1) при наложении на них самых общих ограничений является метод регуляризации по Тихонову.

Во второй главе диссертации показано, что реализация этого алгоритма применительно к уравнению выхода в методе РЯР сводится к численной минимизации сглаживающего функционала следующего вида:

$$M^{\alpha} [C(t)] = \alpha \int_a^b \left\{ C^2(t) + \left(\frac{dC(t)}{dt} \right)^2 \right\} dt + \\ + \int_{E_{min}}^{E_{max}} \left[\int_a^b q(E, t) C(t) dt - Y(E) \right]^2 dE$$

Показано, что использование метода регуляризации по Тихонову в задаче определения $C(t)$ в методе РЯР позволило корректно учесть: а) экспериментальные погрешности, б) приближенный характер теоретического описания процесса взаимодействия высокоэнергетичных ионов с веществом, в) вычислительные погрешности, связанные с дискретизацией задачи, а также оценить влияние всех этих факторов на точность получаемого решения.

Проверка правильности предложенной модели для нахождения $C(t)$ проводилась в 3 этапа. На первом проверялась правильность расчета ядра уравнения выхода, на втором - правильность решения обратной задачи методом регуляризации по Тихонову, а

третьем осуществлялась окончательная проверка путем сравнения теоретически рассчитанных и восстановленных профилей распределения примеси для данных условий эксперимента.

Для проверки правильности расчета ядра интегрального уравнения рассматривалась слоистая структура подробно проанализированная в / Mangel B. et al. Nucl. Instr. and Meth. -1982. -197. -P.1-13/. Использовалась ядерная реакция $^{100}\text{Cr}(p, n)^{101}\text{Mn}$. Из решения прямой задачи были восстановлены состав и структура мишени, которые оказались такими же, как и в работе Mangel B.

Для проверки корректности алгоритма решения обратной задачи рассматривалась следующая модель. Предполагалось, что в образце, состоящем из Mo, присутствует примесь Ag с атомным содержанием меньше 1%, профиль распределения которой описывается функцией: $C(x) = C_0 \exp(-\beta x)$.

Для исследования распределения примеси использовалась реакция $^{109}\text{Ag}(p, \gamma)^{110}\text{K}$, сечение которой описывалось формулой Брейта - Витнера с параметрами: $E_p = 1101.8$ кэВ, $\Gamma = 0.040$ кэВ. Начальный энергетический разброс ионов пучка полагался равным 0.3 кэВ, температура образца - 300 К. Энергия пучка изменялась в интервале от 1100 до 1121 кэВ с шагом 512 эВ. С указанными параметрами рассчитывалось ядро уравнения (1), а использование модельной функции $C(x)$ позволило рассчитать функцию выхода $Y(E_p)$. Наличие на кривой статистически обусловленных флуктуаций, моделировалось путем задания новой функции выхода:

$$Y(E_p) = Y(E_p)(1 + \Delta Y_p),$$

где ΔY_p - случайные отклонения, которые разыгрывались с

помощью генератора случайных чисел. Показано, что даже при $\Delta U_1 \ll 1$ прямой метод решения уравнения выхода приводит к физически неприемлемым результатам, в то время, как разработанная схема позволяет корректно восстановить зависимость $C(t)$.

Экспериментальную проверку правильности предложенной модели для нахождения $C(t)$ проводили на образцах Fe, легированных ионами Ti. Имплантация проводилась при ускоряющем напряжении 40 кВ ионным пучком с известным зарядовым составом. Совпадение профилей концентрации Ti, смоделированного с помощью программы TR1.4 для данных условий эксперимента и восстановленного по экспериментально измеренной кривой выхода резонансной реакции $^{48}\text{Ti}(p, \gamma)^{48}\text{V}$ с $E_{c1}=1007$ и $E_{c2}=1013$ кэВ также свидетельствует о правильности предложенной модели в целом.

Третья глава содержит описание спроектированных систем стабилизации и сканирования, обеспечивающих получение следующих параметров: величина энергетического разброса при ускоряющем напряжении 1 МВ ≤ 100 эВ, минимальная величина шага энергетического сканирования - 10эВ, диапазон изменения энергии при использовании системы сканирования $\approx 3\%$ от средней энергии ускоренного пучка ионов.

Разработанная система является абсолютно калиброванной, свободна от эффектов гистерезиса и полностью автоматизирована. Ее использование позволит существенно улучшить возможности метода РЯР при восстановлении профилей распределения примесей по глубине с высоким разрешением.

Четвертая глава посвящена описанию экспериментальных

исследований, выполненных с использованием разработанной системы. На примере исследования диффузии O в Si показана чувствительность результатов к точной форме резонанса, а также проведено сравнение схемы решения прямой и обратной задач. На примере Al , имплантированного в Fe показана важность адекватного описания взаимодействия пучка ускоренных ионов с веществом. Возможность использования метода РЯР в случае нескольких одновременно возбуждаемых резонансов, продемонстрирована на примере Ti , имплантированного в Fe . При этом впервые по дублету близкорасположенных резонансов был восстановлен профиль распределения Ti , образовавшийся в процессе высокочастотной имплантации в Fe . Исследовалось влияние примеси инертных газов на процесс радиационно-стимулированной диффузии. Был восстановлен состав слоистой структуры $TiN - Cu$ и сделан вывод о том, что обработка ионами инертного газа позволяет управлять процессом диффузии Ti .

Отметим основные результаты работы:

1. Разработана адекватная математическая модель описания энергетической зависимости выхода резонансной ядерной реакции для определения профиля концентрации элементов по глубине из решения обратной задачи с учетом некорректного характера уравнения выхода. Проведена теоретическая и экспериментальная проверка этой модели.

2. Создан пакет программ для полной обработки спектров в методе РЯР, включающий в себя решение обратной задачи на основе метода регуляризации по Тихонову, а также решение прямой задачи для слоистых структур.

3. Разработаны автоматизированные системы стабилизации энергии пучка и энергетического сканирования.

4. Определены профили распределения алюминия и титана, образовавшиеся в результате ионной имплантации в матрицу Fe. Восстановлен состав слоистой структуры TiN-Cu.

5. Показана высокая чувствительность получаемых в методе РЯР результатов к заданию точной формы резонанса, выбору адекватной модели процесса взаимодействия ускоренного пучка ионов с веществом.

6. Показана возможность использования метода РЯР для определения профиля примеси не только по изолированному резонансу, но и по группе одновременно возбуждаемых резонансов.

Основное содержание диссертации опубликовано в работах:

1. Забашта О.И., Кульментьев А.И., Сторяжко В.Е., Пиунова Ф.Э. Пакет программ для расчета разрешения по глубине в методе резонансных ядерных реакций //Сб. материалов 3-ей Всесоюзной конференции "Микроанализ на ионных пучках", -1991. -С. 235-239;
2. Дедик А.Н., Забашта О.И., Измайлов В.Н. и др. Определение фтора в образцах почвы методом ядерных реакций на заряженных частицах. //Там же. -С. 271-274;
3. Дедик А.Н., Забашта О.И., Екичев О.И. Камера рассеяния для комплексного элементного анализа материалов //Там же. -С. 144-149;
4. Забашта О.И., Лебедевко Н.А., Савин О.И. Разработка автоматизированной системы стабилизации энергии и энергетического сканирования электростатического ускорителя

ля // Тезисы докл. науч.-тех. конф. преподавателей, сотр. и ст. СФТИ 1992 г. -Сумы, 1992. -С.62;

5. Забашта О.И., Кульментьев А.И., Нестеренко А.Е. и др. Определение профиля концентрации примеси в методе резонансных ядерных реакций //Материалы XXII международного совещ. по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами. -МГУ, 1993. -С.164 - 166.

6. Забашта О.И., Кульментьев А.И., Нестеренко А.Е., Сторишко В.Е. Определение профиля концентрации примеси в методе резонансных ядерных реакций. //Укр. физ. журн. -1993. -Т4. -С.494 - 500.

7. Забашта О.И., Кульментьев А.И., Сторишко В.Е. Глубинное профилирование легких примесей методом резонансных ядерных реакций. //Известия ВУЗов. Серия: "Физика" -1993. -Т5. -С.79-86.

AB 28.140