

PACS: 29.27.-a; 41.75.Ak; 82.80.Yc

## APPLICATION OF $^4\text{He}^{2+}$ AND $^3\text{He}^{2+}$ BEAMS OF THE COMPACT ACCELERATOR “СОКОЛ” FOR ION BEAM ANALYSIS

**S.G. Karpus, V.N. Bondarenko, A.V. Goncharov, L.S. Glazunov, A.V. Zats,  
V.V. Kuz'menko, V.M. Pistryak, V.I. Sukhostavets**

*National Scientific Center “Kharkov Institute of Physics and Technology”*

*1, Akademicheskaya st., Kharkov 61108, Ukraine*

*E-mail: [goncharov@kipt.kharkov.ua](mailto:goncharov@kipt.kharkov.ua), [karpus@kipt.kharkov.ua](mailto:karpus@kipt.kharkov.ua)*

Received June 2, 2015

Some planar structures have been studied by  $^4\text{He}^{2+}$  ion beam and the backscattering spectrometry. Thicknesses of separate layers were determined in the optical coating consist of 13 alternated  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  and  $\text{SiO}_2$  layers on the  $\text{SiO}_2$  substrate. Oxygen fraction was measured in VN coating formed by ion beam assisted deposition technique (IBAD) and in  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  coating deposited by laser sputtering. Besides deuterium concentration distribution in titanium deuteride layer on Mo substrate was measured by  $^3\text{He}^{2+}$  ion beam and the  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})^4\text{He}$  nuclear reaction.

**KEY WORDS:** multiply charged ions, ion beam analysis, backscattering spectrometry,  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})$  reaction

### ЗАСТОСУВАННЯ ПУЧКІВ $^4\text{He}^{2+}$ ТА $^3\text{He}^{2+}$ МАЛОГАБАРИТНОГО ПРИСКОРЮВАЧА “СОКОЛ” ДЛЯ ІОННО-ПУЧКОВОГО АНАЛІЗУ

**С.Г. Карпусь, В.М. Бондаренко, О.В. Гончаров, Л.С. Глазунов, А.В. Зац,  
В.В. Кузьменко, В.М. Пістряк, В.І. Сухостаєць**

*Національний Науковий Центр “Харківський фізико-технічний інститут”*

*вул. Академічна 1, м. Харків 61108, Україна*

За допомогою пучка іонів  $^4\text{He}^{2+}$  та спектрометрії зворотного розсіювання проведено дослідження ряду планарних структур. В оптичному покритті, що складається з 13-и почергових шарів  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  та  $\text{SiO}_2$  на підкладці з  $\text{SiO}_2$ , виміряні товщини окремих шарів. Виміряно вміст кисню в покритті VN, що було сформоване шляхом напилення ванадію на підкладку з одночасним опромінюванням іонами азоту (метод IBAD), та у покритті  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , нанесеному за допомогою лазерного розпилення. Крім того, за допомогою пучка іонів  $^3\text{He}^{2+}$  та ядерної реакції  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})^4\text{He}$  виміряний розподіл концентрації дейтерію в шарі дейтериду титану, нанесеного на молибденову підкладку.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** багатозарядні іони, аналіз на іонних пучках, спектрометрія зворотного розсіювання, реакція  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})$ .

### ПРИМЕНЕНИЕ ПУЧКОВ $^4\text{He}^{2+}$ И $^3\text{He}^{2+}$ МАЛОГАБАРИТНОГО УСКОРИТЕЛЯ “СОКОЛ” ДЛЯ ИОННО-ПУЧКОВОГО АНАЛИЗА

**С.Г. Карпусь, В.Н. Бондаренко, А.В. Гончаров, Л.С. Глазунов, А.В. Зац,  
В.В. Кузьменко, В.М. Пистряк, В.И. Сухостаевец**

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»*

*ул. Академическая 1, г. Харьков 61108, Украина*

С помощью пучка ионов  $^4\text{He}^{2+}$  и спектрометрии обратного рассеяния проведено исследование ряда планарных структур. В оптическом покрытии, состоящем из 13-и чередующихся слоев  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  и  $\text{SiO}_2$  на подложке из  $\text{SiO}_2$ , определены толщины отдельных слоев. Измерено содержание кислорода в покрытии VN, сформированном путем напиления ванадия на подложку с одновременным облучением ионами азота (метод IBAD), и в покрытии  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , наносимом с помощью лазерного распыления. Кроме того, с помощью пучка ионов гелия  $^3\text{He}^{2+}$  и ядерной реакции  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})^4\text{He}$  измерено распределение концентрации дейтерия в слое дейтерид титана, нанесенного на молибденовую подложку.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** многозарядные ионы, анализ на ионных пучках, спектрометрия обратного рассеяния, реакция  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})$ .

Электростатические ускорители (ESA) широко применяются в ядерной физике и ионно-пучковом анализе (IBA). Основным преимуществом таких ускорителей является хорошая стабильность по энергии ионов.

Использование источников многозарядных ионов и, соответственно, увеличение энергии пучков расширяет возможности ESA [1-4], в том числе, в задачах IBA.

Конечно, при этом величины токов многозарядных ионов много меньше токов, получаемых на однозарядных ионах. Так, в условиях газового разряда источника количество ионов  $\text{He}^{2+}$  на два порядка меньше количества ионов  $\text{He}^+$  [5]. Но для ряда методов IBA, например, для спектрометрии резерфордского обратного рассеяния (RBS), величина тока ионного пучка не является существенно ограничивающим фактором.

В общем парке ESA свою “нишу” занимают малогабаритные ускорители горизонтального типа, которые удобны тем, что аналитическую установку на их базе можно разместить в относительно небольшом помещении (25-30 м<sup>2</sup>). Для таких ускорителей напряжение на высоковольтном кондукторе обычно не превышает 2 МВ. К данному типу ESA относится и ускоритель “Сокол” ННЦ ХФТИ [6].

Целью настоящей работы является исследование распределения химических элементов в ряде образцов, содержащих слоистые планарные структуры, с помощью методик ИВА на пучке двухзарядных ионов гелия ускорителя “Сокол”.

### ЭКСПЕРИМЕНТ

В настоящее время ускоритель “Сокол” оснащен новым инжектором с источником пеннинговского типа с холодными катодами и продольной системой извлечения [7], что позволяет генерировать пучки двухзарядных ионов гелия с энергией до 4 МэВ и током до 20 нА на мишени.

Эксперименты по ИВА на пучках ионов  $^4\text{He}^{2+}$  и  $^3\text{He}^{2+}$  проводились на одном из выходов ускорителя. Детальная схема использовавшихся экспериментальных устройств представлена на рис. 1.

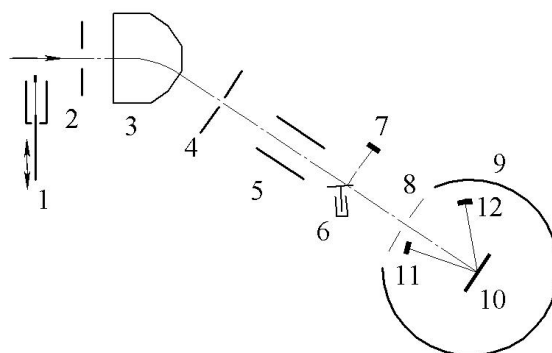


Рис. 1. Схема экспериментальных устройств, расположенных вдоль одного из выходов ускорителя “Сокол”

1 – узел, позволяющий выдвигать тонкую углеродную мишень на траекторию пучка; 2 – диафрагма  $\varnothing 5$  мм; 3 – магнитный масс-анализатор (ММА); 4 – стандартный щелевой прибор в системе стабилизации энергии пучка; 5 – электростатический анализатор (ЕА); 6 – механический прерыватель пучка в системе мониторинга количества ионов, падающих на мишень; 7 – детектор, регистрирующий ионы, рассеянные на вращающихся лопастях прерывателя; 8 – щель 0,9x9 мм; 9 – камера для ИВА; 10 – образец-мишень; 11 – детектор, регистрирующий ионы, рассеянные на мишени; 12 – Si(Li) детектор. Стрелка показывает направление пучка после выхода из ускорителя.

В настоящей работе во всех рассмотренных случаях пучок падал на мишень-образец вдоль нормали к его поверхности. Поверхностно-барьерный детектор 11, использовавшийся при измерении спектров обратного рассеяния (ОР) ионов, был установлен под углом  $\theta=170^\circ$  по отношению к пучку. Si(Li) детектор, применявшийся для регистрации протонов с энергией порядка 13 МэВ из реакции  $\text{D}(^3\text{He},\text{p})^4\text{He}$ , был расположен под углом  $140^\circ$  к направлению пучка.

Теоретический и экспериментальный аспекты анализа образцов с помощью спектрометрии ОР (в том числе, RBS и нерезерфордского рассеяния) подробно изложены в ряде обзоров [8-11].

При выделении из общего ионного пучка, выходящего из ускорителя, двухзарядных ионов  $^4\text{He}$  с энергией  $E_0$  с помощью ММА проявляется эффект одновременного выделения и однозарядных ионов молекулярного водорода с энергией  $E_0/2$ . Эта “примесь” ионов  $\text{H}_2^+$  возникает из-за присутствия остаточного газа  $\text{H}_2$  в ионном источнике, которое обусловлено гажением конструкционных материалов источника, а также присутствием паров воды в остаточной атмосфере [12].

В настоящее время для снижения относительного содержания ионов  $\text{H}_2^+$  в пучке ионов  $^4\text{He}^{2+}$ , падающем на мишень, нами используются две методики: а) диссоциация молекулярного пучка на тонкой углеродной пленке, установленной перед ММА; б) выделение пучков  $\text{H}_2^+$  и  $^4\text{He}^{2+}$  в поперечном поле ЕА, установленного после ММА. В последнем случае доля ионов  $\text{H}_2^+$  в пучке ионов, падающих на мишень, составляет около 3%. Подробно результаты соответствующих экспериментов были представлены в работе [13].

Первая методика обеспечивает несколько больший эффект при очищении пучка ионов  $^4\text{He}^{2+}$  от сопутствующих ионов  $\text{H}_2^+$ , но при этом имеет место увеличение энергетического разброса в пучке, падающем на мишень, что нежелательно при использовании спектрометрии ОР. Поэтому в настоящей работе для очистки пучка применялась вторая методика.

Нужно отметить, что для ряда методик ИВА примесь ионов  $\text{H}_2^+$  в пучке ионов  $^4\text{He}^{2+}$  может не являться существенно мешающим фактором. Так, при использовании спектрометрии ОР, лишь в низкоэнергетической части спектра, которая составляет примерно 25-30% всего энергетического диапазона регистрируемых рассеянных ионов, наблюдается наложение спектров ОР ионов водорода и гелия. Соответственно, высокоэнергетическая часть спектра, в которой регистрируются только обратно рассеянные ионы гелия, может быть проанализирована обычным образом.

### РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

Далее рассмотрены некоторые примеры использования пучка двухзарядных ионов гелия на ускорителе “Сокол” для изучения распределений химических элементов по глубине образцов.

#### Исследование многослойного покрытия $Ta_2O_5/SiO_2/Ta_2O_5/.../Ta_2O_5$ на подложке из $SiO_2$

Покрывание было получено с помощью поочередного осаждения оксидов  $Ta_2O_5$  и  $SiO_2$  на образец. Такого рода покрытия используются достаточно широко. В частности, они находят применение при создании лазерных интерферометров и оптических фильтров [14,15].

В нашем случае слои наносились с помощью лазерного распыления в высоковакуумной камере. Всего на исследуемый образец было попеременно нанесено 7 слоев  $Ta_2O_5$  и 6 слоев  $SiO_2$ . Ниже (в том числе на рис. 2) в общей нумерации нанесенных слоев, начиная с внешнего, к слоям  $Ta_2O_5$  относятся нечетные номера, а к слоям  $SiO_2$  – четные. Таким образом, при осаждении первым наносился 13-й слой, а последним – 1-й.

Образец исследовался с помощью спектрометрии ОР. На рис. 2 представлены спектры ОР ионов от данного образца, измеренные с применением пучков однозарядных и двухзарядных ионов гелия при приблизительно одинаковом значении напряжения на высоковольтном кондукторе ускорителя – около 1,5 МВ.

Низкоэнергетическая часть экспериментального спектра “b” (область каналов 30-170) представляет собой суперпозицию спектров ОР ионов  $^4He$  и ионов  $H^+$ , поскольку очистка примеси ионов  $H_2^+$  от основного пучка  $^4He^{2+}$  с помощью ЕА не дает стопроцентный результат (если не приносить в жертву интенсивность тока основного пучка). Особенностью этой части спектра является группа из 7-и узких пиков, соответствующих рассеянию ионов  $H^+$  на тантале, входящем в состав вещества слоев  $Ta_2O_5$  (область каналов 80-170). Но в данном случае эта часть спектра практически не добавляет информации в отношении исследуемого образца, по сравнению с информацией, извлекаемой из высокоэнергетической части спектра (170-650 кан.), связанной с рассеянием исключительно ионов гелия.

Спектр “b” измерялся при энергии, несколько меньшей энергии 3,034 МэВ резонанса упругого рассеяния ионов  $^4He$  на ядрах  $^{16}O$  [16], чтобы свести к минимуму присутствие нерегулярностей в спектре.

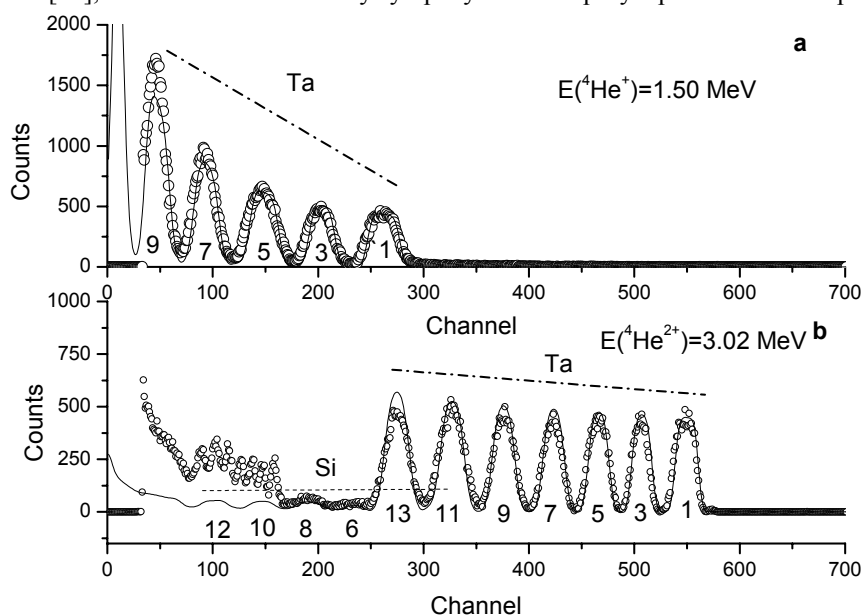


Рис. 2. Энергетические спектры ионов, обратно рассеянных на многослойном покрытии  $Ta_2O_5/SiO_2/.../Ta_2O_5/SiO_2$ . а – спектр, полученный при использовании пучка однозарядных ионов  $^4He$ , б – спектр, полученный при использовании двухзарядных ионов.

В обоих спектрах (рис. 2) сплошная линия представляет собой результат подгонки с помощью моделирования спектров ОР ионов гелия. Спецификой данной задачи является то, что каждый из пиков в спектрах соответствует определенному химическому элементу из определенного слоя в покрытии. В соответствии с этим и дана маркировка пиков (цифры относятся к номерам нанесенных слоев в их общей последовательности, начиная с внешнего слоя). В обоих спектрах штрих-пунктирной линией над пиками выделена область, в которой регистрируются ионы гелия, рассеянные на ядрах атомов Ta из слоев  $Ta_2O_5$ . Кроме того, в спектре “b” пунктирной линией выделена область, в которой регистрируются ионы гелия, рассеянные на Si из слоев  $SiO_2$ .

В спектре “a” и высокоэнергетической части спектра “b” (область каналов 180-600), относящейся только к ОР ионов гелия, слои  $Ta_2O_5$  покрытия проявляются в виде отделенных друг от друга пиков, каждый из которых соответствует определенному диапазону энергий регистрируемых ионов  $^4He$ , рассеянных на ядрах атомов  $^{181}Ta$ . Слоям, которые ближе к внешней поверхности образца, соответствуют в спектрах большие энергии рассеянных

ионов. Промежутки с минимальным выходом ОР между этими пиками связаны с потерей энергии ионов первичного пучка и рассеянных ионов в слоях  $\text{SiO}_2$ , в которых тантал отсутствует.

Можно видеть, что в спектре “b” проявляются все 7 слоев нанесенного  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , в то время как в спектре “a” проявляются лишь 5 “верхних” слоев  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , что в последнем случае связано с недостаточной глубиной анализа при использовании пучка однозарядных ионов гелия с энергией 1,5 МэВ.

Кроме того, в спектре “a” слои  $\text{SiO}_2$  вообще непосредственно не проявляются, а в экспериментальном спектре “b” (см. область 170-250 кан.) ряд таких слоев (8-й и 6-й в общей нумерации слоев) проявляются в виде небольших пиков, соответствующих рассеянию ионов гелия на ядрах атомов Si, входящих в состав вещества этих слоев. Малая величина этих пиков по сравнению с пиками рассеяния на Ta связана с гораздо меньшей величиной сечения рассеяния ионов гелия на ядрах атомов Si по сравнению с сечением рассеяния на ядрах атомов Ta.

В связи с еще меньшей величиной сечения рассеяния ионов гелия на ядрах атомов кислорода, в спектре “b” совсем не проявляются вариации выхода рассеяния, связанные с разным содержанием кислорода в слоях  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  и  $\text{SiO}_2$ .

При обработке спектров “a” и “b” в качестве внешнего стандарта использовался образец из чистого Ta. Обработка проводилась по обычной процедуре путем сравнения экспериментального спектра с модельным.

Моделирование спектров ОР ионов гелия проводилось в предположении, что сечения рассеяния описываются формулой Резерфорда с учетом поправки на экранировку ядра электронами оболочками атома [17], а траектории иона до рассеяния на ядре какого-либо атома и после рассеяния являются прямолинейными. Как обычно, при моделировании учитывались конечно энергетическое разрешение спектрометра и эффект энергетического страгглинга ионов, который усиливается по мере продвижения ионов сквозь вещество.

Применительно к настоящей задаче исследования многослойного покрытия, при моделировании спектров предполагалось, что каждый слой покрытия состоит из оксида стехиометрического состава ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$  или  $\text{SiO}_2$ ). Это позволило уменьшить число подгоночных параметров модели, поскольку в данном случае таковыми были только искомые толщины слоев.

На рис. 2b модельный спектр рассеянных ионов гелия распространен на всю область энергий. Можно видеть, что 12-й и 10-й слои, содержащие  $\text{SiO}_2$ , проявляются только в модельном спектре. В экспериментальном же спектре они не проявляются из-за интенсивного выхода рассеяния ионов  $\text{H}^+$  в этой части спектра. Кроме того, как в экспериментальном, так и в модельном спектрах не проявляются 4-й и 2-й слои  $\text{SiO}_2$ , что связано с наложением соответствующих пиков малой интенсивности на интенсивные пики, связанные с рассеянием на Ta, входящем в состав 13-го и 11-го слоев.

В спектрах, представленных на рис. 2, можно видеть, что по мере уменьшения энергии регистрируемых ионов гелия (т.е. по мере заглупления пучка в вещество мишени), степень совпадения между экспериментальным и модельным спектрами несколько ухудшается. Так, в спектре “b” качество подгонки на пике, соответствующем слою 13, несколько хуже качества подгонки, соответствующего слою 1. Аналогично, в спектре “a” качество подгонки на пике, соответствующем слою 9, хуже качества подгонки, соответствующего слою 1. Этот эффект является обычным для алгоритмов, используемых при подгонке спектров ОР, и, в основном, связан с тем, что в таких алгоритмах предполагается прямолинейность траекторий ионов при их продвижении в веществе. В реальности же, траектории ионов не являются строго прямолинейными, а претерпевают отклонения в результате воздействия такого статистического процесса, как многократное рассеяние.

В таблице представлены результаты обработки спектров “a” и “b”. В скобках указаны толщины слоев в мкм, рассчитанные, исходя из плотности  $\text{SiO}_2$ , получаемого термическим путем ( $2,3 \text{ г/см}^3$ ) и плотности  $\beta$ -фазы  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , которая является равновесной при комнатной температуре ( $8,2 \text{ г/см}^3$ ).

Таблица

Толщины отдельных слоев многослойного покрытия  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2/\dots/\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ , определенные с помощью спектрометрии обратно рассеянных ионов гелия.

Номер слоя	Стехиометрический элементный состав	Энергия ионов $E(^4\text{He}^+)=1,50 \text{ МэВ}$		Энергия ионов $E(^4\text{He}^{2+})=3,02 \text{ МэВ}$	
		Толщина слоя, $10^{18} \text{ ат./см}^2$ (мкм)		Толщина слоя, $10^{18} \text{ ат./см}^2$ (мкм)	
1	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	1,3 (0,17)		1,2 (0,13)	
2	$\text{SiO}_2$	1,7 (0,25)		1,7 (0,25)	
3	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	1,0 (0,11)		1,0 (0,11)	
4	$\text{SiO}_2$	1,5 (0,22)		1,6 (0,23)	
5	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	1,1 (0,12)		1,0 (0,11)	
6	$\text{SiO}_2$	1,5 (0,22)		1,6 (0,23)	
7	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	1,0 (0,11)		1,0 (0,11)	
8	$\text{SiO}_2$	1,3 (0,19)		1,8 (0,26)	
9	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	1,2 (0,13)		1,0 (0,11)	
10	$\text{SiO}_2$	–		1,7 (0,25)	
11	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	–		1,0 (0,11)	
12	$\text{SiO}_2$	–		1,8 (0,26)	
13	$\text{Ta}_2\text{O}_5$	–		1,0 (0,11)	

Можно видеть, что величины измеренных толщин для слоев Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> являются близкими, хотя толщина 1-го (внешнего) слоя несколько больше толщин других слоев (это проявляется и в несколько большей полуширине 1-го пика в спектре “а”).

Для первых семи слоев результаты измерения толщин слоев Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> и SiO<sub>2</sub>, полученные при разных энергиях анализирующего пучка, также являются близкими. При этом величины толщин 8-го и 9-го слоев, полученные при энергии ионов 1,5 МэВ, можно считать менее достоверными, поскольку им соответствуют существенный сброс энергии ионов пучка и возрастающая при этом неопределенность в величине тормозной способности ионов (это проявляется и в качестве подгонки пика, относящегося к 9-му слою, в спектре “а”).

Из спектра “b” можно видеть, что в отличие от подгонок на пиках, соответствующих слоям Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> от 1-го по 11-й, на пике, соответствующем 13-му слою, наблюдается заметное расхождение между экспериментальным и модельным спектрами. Причина этого не ясна (возможно, это связано с влиянием шероховатости исходной поверхности подложки), но можно считать, что полученное значение толщины 13-го слоя (см. табл.) является наименее точным.

В целом можно сделать вывод, что применение пучка двухзарядных ионов гелия позволило получить больше информации при исследовании данной многослойной структуры, чем при использовании “штатного” пучка однозарядных ионов гелия.

### Исследование покрытия из пористого VN

Образец представлял собой пленку из нитрида ванадия, нанесенную с помощью напыления ванадия на подложку из графита с одновременным облучением образца ионами азота (метод IBAD [18-20]). Толщина пленки составила 0,12 мкм. Особенностью материала пленки был высокий уровень пористости, который обеспечивается за счет примеси некоторого инертного газа в ионном источнике. Такого рода пленки являются перспективными с точки зрения создания материалов, способных удерживать значительные количества водорода [21]. В данном случае в качестве инертного газа использовался неон, который наряду с азотом напускался в объем ионного источника. Пористость вещества пленки измерялась по методике, сочетающей измерение линейной толщины пленки с помощью профилометра и массовой толщины с помощью спектрометрии RBS [21]. Измеренная величина пористости составила 27 %.

Графит в качестве подложки обеспечивал наименьшую степень влияния на высокоэнергетическую часть спектров ОР, связанную с самим материалом пленки, анализ которой и был целью исследования.

На рис. 3 представлены спектры ОР ионов гелия от данного образца, измеренные при разных энергиях пучка.

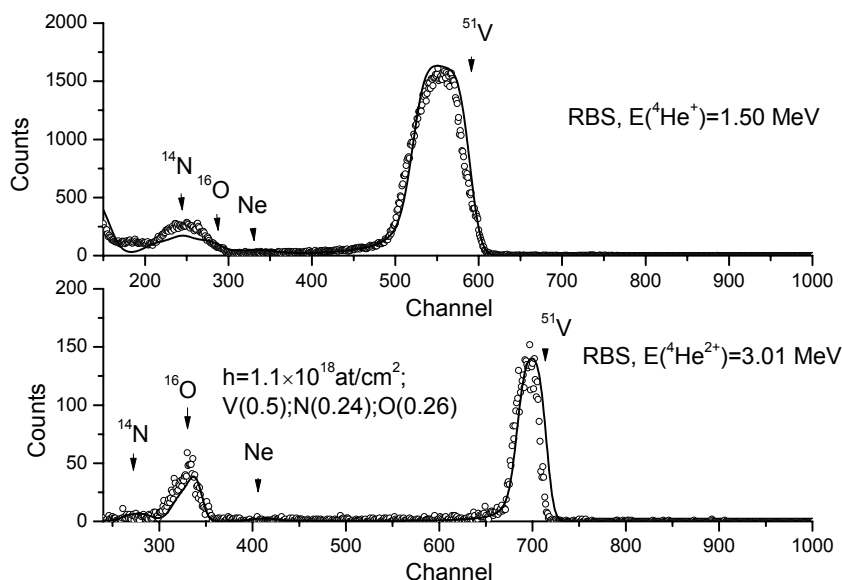


Рис. 3. Спектры обратного рассеяния ионов гелия от пленки из пористого нитрида ванадия, измеренные на пучках однозарядных и двухзарядных ионов <sup>4</sup>He.

В обоих спектрах сплошная линия представляет собой результат подгонки с помощью моделирования спектров ОР ионов гелия. Результаты обработки (толщина пленки *h* и относительные атомные соотношения между компонентами вещества пленки) представлены в комментариях ко второму спектру.

Можно видеть, что во втором спектре, измеренном на пучке двухзарядных ионов гелия при большей энергии, достигается полное разделение пиков ОР, соответствующих азоту и кислороду вещества пленки.

Внедренный неон практически не проявился в спектрах ОР. Это означает, что его содержание в веществе пленки весьма мало.

Обращает на себя внимание необычно высокое содержание кислорода в пленке. Возможно, это является следствием высокой степени пористости пленки и окисления поверхности пор кислородом, проникшим в пленку из внешней атмосферы диффузионным путем.

### Исследование покрытия $\text{Nb}_2\text{O}_5$ на подложке из $\text{SiO}_2$

Покрытие осаждалось на подложку с помощью лазерного распыления оксида ниобия в высоковакуумной камере. Такого рода покрытия, наряду с рассмотренными выше покрытиями из  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , также используются в оптических устройствах [22].

Задачей настоящего исследования было определение содержания кислорода в покрытии, поскольку нельзя было исключить, что при распылении имеет место некоторое изменение стехиометрии вещества покрытия по сравнению с классической стехиометрией.

Для исследования была выбрана методика, основанная на резонансе  $E_{res}=3,034$  МэВ упругого рассеяния ионов  $^4\text{He}$  на ядрах  $^{16}\text{O}$ . В работе [16] дифференциальное сечение рассеяния в окрестности данного резонанса было измерено для угла  $170,5^\circ$  в лабораторной системе координат и показано, что в максимуме сечения его величина в 23 раза превосходит резерфордское значение сечения. Ширина резонанса составляет около 15 кэВ. Эта методика неоднократно применялась при измерении концентрационных профилей кислорода [23].

На малогабаритном ускорителе “Сокол” энергии, необходимой для данной методики, можно достичь только при использовании пучка двухзарядных ионов  $^4\text{He}$ . Для того, чтобы выбрать энергию ионов  $^4\text{He}^{2+}$ , оптимальную для анализа кислорода в пленке  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , предварительно измерялся спектр ОР при энергии ионов 3,00 МэВ, т.е. несколько ниже резонанса 3,034 МэВ упругого рассеяния  $^{16}\text{O}(\alpha,\alpha)$ . Величина толщины пленки, определенная из спектра, составила  $1,0 \cdot 10^{18}$  ат./см<sup>2</sup>. Исходя из этого значения, расчетная величина сброса энергии пучка ионов гелия в данной пленке при энергии ионов, равной или близкой к  $E_{res}$  составила примерно  $\Delta E=43$  кэВ, что по порядку величины сравнимо с шириной данного резонанса. Измерение содержания кислорода в пленке  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  будет корректным, если максимум выхода ОР ионов гелия на ядрах  $^{16}\text{O}$  будет соответствовать слою вещества пленки, который достаточно удален от обеих ее поверхностей. Проще всего энергию пучка выбрать близкой к значению  $E_{res}+\Delta E/2$ . В нашем случае использовалась энергия 3,050 МэВ.

На рис. 4 представлен соответствующий спектр ОР ионов гелия. На рисунке не показана “неинформативная” для нашей задачи низкоэнергетическая часть спектра, в которой происходит наложение спектров ОР ионов гелия и водорода.

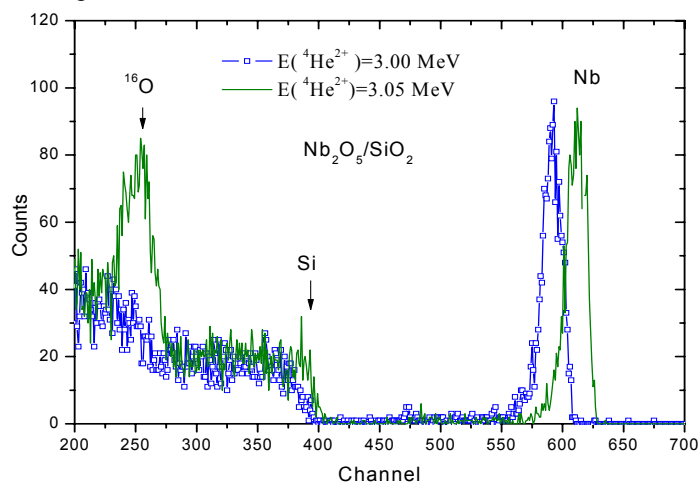


Рис. 4. Спектры обратного рассеяния ионов гелия от пленки  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  на подложке  $\text{SiO}_2$ .  
В качестве первичного пучка использовался пучок  $^4\text{He}^{2+}$ .

Поскольку измерения спектров ОР проводились при несколько отличающихся энергиях первичного пучка, спектры сдвинуты относительно друг друга. В высокоэнергетической области спектров можно видеть пик, соответствующий рассеянию на ядрах атомов Nb, входящих в состав вещества пленки. Кроме того, в спектрах наблюдается ступенька-континуум, соответствующая рассеянию на ядрах атомов Si из состава вещества подложки. Второй спектр отличается от первого присутствием интенсивного пика, соответствующего резонансному рассеянию ионов гелия на ядрах атомов  $^{16}\text{O}$ , входящих в состав вещества пленки. Как образец-стандарт для анализа кислорода использовался оксид кремния  $\text{SiO}_2$ , содержание кислорода в котором составляет  $c^{st}=53,26$  масс. %.

Применительно к геометрии системы пучок – образец – детектор, которая использовалась в настоящей работе (см. выше раздел “Эксперимент”), выражение для массового содержания кислорода в веществе покрытия образца, анализируемом с помощью данной методики, принимает вид:

$$c = c^{st} \frac{kS_m(E_{res}) + \frac{1}{|\cos \theta|} S_m(kE_{res})}{kS_m^{st}(E_{res}) + \frac{1}{|\cos \theta|} S_m^{st}(kE_{res})} \frac{Q}{Q^{st}}, \quad (1)$$

где  $k=k(\theta)$  – кинематический фактор для упругого рассеяния иона  ${}^4\text{He}$  на ядре атома  ${}^{16}\text{O}$  при угле рассеяния  $\theta$ ;  $S_m(E)$  и  $S_m^{st}(E)$  – соответственно, величины массовых тормозных способностей ( $\text{МэВ}\cdot\text{см}^2/\text{мг}$ ) ионов гелия в веществе образца и стандарта как функции энергии  $E$  ионов;  $Q$  и  $Q^{st}$  – площади пиков, соответствующих используемому резонансу  ${}^{16}\text{O}(\alpha,\alpha)$  в спектрах ОР, измеренных на образце и стандарте при одинаковых экспозициях и энергиях пучка.

В результате обработки спектрометрической информации получено следующее соотношение атомных концентраций ниобия и кислорода:  $\text{Nb}(\text{2})\text{O}(\text{5},\text{1})$ , что близко к теоретическому стехиометрическому соотношению.

### Исследование распределения дейтерия в покрытии из дейтерида титана на подложке из молибдена

Приведенные выше примеры относились к использованию спектрометрии упруго рассеянных ионов  ${}^4\text{He}$ . Но для некоторых прикладных задач возникает необходимость и в использовании пучка ионов  ${}^3\text{He}$ . Например, для нахождения распределения дейтерия в приповерхностном слое образцов применяется резонанс ядерной реакции  $\text{D}({}^3\text{He},\text{p}){}^4\text{He}$  с максимумом при энергии  $E_{res}=0,69$  МэВ [10]. Ширина резонанса на его полувысоте составляет 0,72 МэВ. Резонанс является существенно несимметричным относительно максимума: уменьшение сечения реакции вдвое относительно максимума достигается при энергии 0,69-0,26 МэВ с низкоэнергетической стороны резонанса и при энергии 0,69+0,46 МэВ – с высокоэнергетической стороны.

В частности, методика с использованием этого резонанса применяется для нахождения распределения дейтерия в первой стенке термоядерных установок [24].

Предметом настоящего исследования была специальная мишень, выполненная на основе покрытия из дейтерида титана  $\text{TiD}_x$  на подложке из молибдена. Такие мишени используются для генерации потоков нейтронов с помощью реакции  $\text{D}(\text{d},\text{n}){}^3\text{He}$ . Обычно параметр  $x$  изменяется в пределах от 0,8 до 1,8, поскольку при  $x=2$ , т.е. при переходе к дигидриду титана, наступает сильное охрупчивание вещества покрытия.

Предварительно с помощью спектрометрии ядер отдачи на пучке ионов  ${}^4\text{He}^+$  (метод ERDA) было определено, что в исследуемом покрытии нет примеси изотопа  ${}^1\text{H}$  в заметном количестве, а из спектрометрии ОР протонов была найдена толщина покрытия 4,28 мкм.

Основной целью настоящего исследования было измерение концентрационного распределения дейтерия по глубине покрытия. Расчет показал, что если для этой цели использовать пучок однозарядных ионов  ${}^3\text{He}$  с энергией до 2 МэВ, то глубина анализа не превысит 3,7 мкм, что меньше найденной толщины покрытия. Поэтому для измерения данного распределения использовался пучок двухзарядных ионов  ${}^3\text{He}$ . При измерениях ток пучка составлял 3-7 нА.

Для определения концентрации дейтерия в покрытии в качестве стандарта использовался образец с известной стехиометрией  $\text{TiD}_{1,7}$ .

При измерении концентрационного профиля дейтерия проводилось сканирование по энергии  $E_0$  анализирующего пучка ионов  ${}^3\text{He}^{2+}$  в пределах от 1,0 до 3,0 МэВ и измерение выхода протонов из реакции  $\text{D}({}^3\text{He},\text{p}){}^4\text{He}$  как на образце, так и на стандарте.

В каждой точке профиля массовая концентрация дейтерия определялась из выражения

$$c = c^{st} \frac{Y}{Y^{st}} \frac{S_m(E_{res})}{S_m^{st}(E_{res})}, \quad (2)$$

где  $c^{st}$  – массовая концентрация дейтерия в веществе стандарта;  $Y$  и  $Y^{st}$  – соответственно, выход протонов, измеренный на образце и стандарте;  $S_m(E_{res})$  и  $S_m^{st}(E_{res})$  – массовые тормозные способности ионов  ${}^3\text{He}$  в веществе образца на данной глубине и в веществе стандарта. Ввиду того, что величина  $S_m(E_{res})$  зависит от элементного состава анализируемого вещества, т.е. от той же искомой концентрации  $c$ , то для корректного вычисления концентрации дейтерия с помощью выражения (2) использовался метод последовательных приближений. В дальнейшем массовое содержание дейтерия пересчитывалось в параметр  $x$ , характеризующий анализируемое вещество покрытия  $\text{TiD}_x$ . Поскольку при измерениях пучок падал по нормали к поверхности мишени, то глубина, соответствующая максимуму выхода реакции для данной энергии  $E_0$  ионов и искомой концентрации дейтерия, определялась как разность проективных пробегов ионов  $R_p(E_0)-R_p(E_{res})$ . При расчете тормозных способностей и проективных пробегов использовался код SRIM [25].

Для пересчета массового значения глубины в линейное значение использовалась экспериментальная величина плотности  $\text{TiH}_2$  3,76 г/см<sup>3</sup> [26], которая применительно к нашему случаю с внедренным дейтерием была скорректирована до величины 3,91 г/см<sup>3</sup> в предположении от том, что параметры кристаллической

решетки вещества не изменяются при замене одного изотопа водорода на другой, и с учетом известного соотношения между массами изотопов  $^1\text{H}$  и  $\text{D}$ .

Расчет показал, что при вычислении погрешности определения глубины в покрытии можно не учитывать энергетический страгглинг-ионов, поскольку во всем диапазоне энергий пучка и соответствующих глубин величина страгглинга существенно меньше энергетической ширины самого резонанса. Таким образом, величины данной погрешности определяются параметрами используемого резонанса реакции. Общее разрешение по глубине в покрытии  $\text{TiD}_x$  составило примерно 1,5 мкм и обусловлено энергетической шириной резонанса.

На рис. 5 представлен измеренный концентрационный профиль дейтерия.

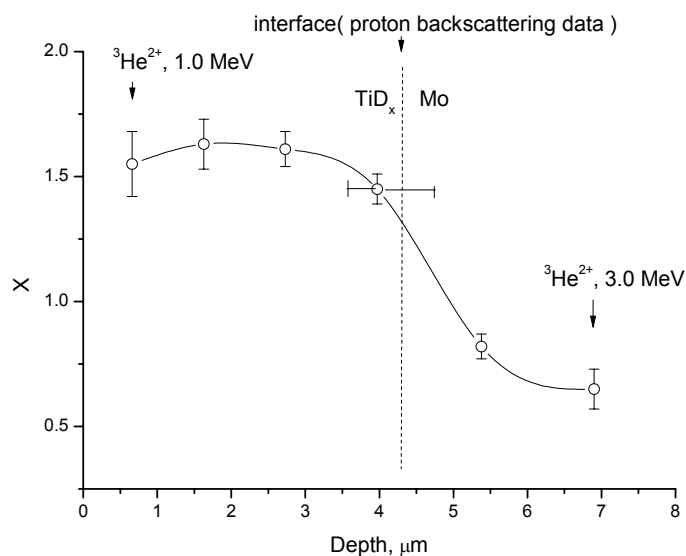


Рис. 5. Распределение дейтерия по глубине покрытия  $\text{TiD}_x$  на молибденовой подложке.

В качестве ординаты выбран стехиометрический параметр  $x$ . Вертикальные “усы” демонстрируют только статистическую среднеквадратичную погрешность.

На рис. 5 горизонтальные усы, демонстрирующие погрешность определения глубины, несимметричны, поскольку, как указано было выше, резонанс является существенно несимметричным относительно максимума.

Экспериментальная зависимость демонстрирует достаточно однородное распределение дейтерия по глубине покрытия. Среднее значение стехиометрического параметра  $x$  в области плато составляет 1,6.

Величина глубины, соответствующей перегибу в распределении дейтерия, близка к значению 4,3 мкм толщины данного покрытия, определенному независимо с помощью спектрометрии ОР протонов.

Из данной зависимости не следует делать вывод, что дейтерий проникает и в вещество подложки, поскольку растворимость водорода и дейтерия в молибдене крайне низка [26]. Кажущееся “расплывание” распределения дейтерия на границе раздела покрытие/подложка обусловлено конечным разрешением по глубине используемой методики.

## ВЫВОДЫ

Таким образом, применение пучка двухзарядных ионов гелия на малогабаритных электростатических ускорителях позволяет расширить возможности используемых методик ионно-пучкового анализа за счет двукратного увеличения энергии ионов и, соответственно, увеличения глубины анализа. В частности, это относится к исследованию покрытий с помощью обратного рассеяния ионов и ядерных реакций. Кроме того, в спектрометрии обратного рассеяния это позволяет увеличить разрешение по массам. Все это было продемонстрировано в настоящей работе на ряде примеров исследования слоистых планарных структур.

Представляется, что использованные методики могут быть полезными при анализе подобных структур, особенно на стадии отработки технологии их нанесения.

В настоящее время ускорители серии “Сокол”, разработанной в ХФТИ, успешно применяются и в других научно-исследовательских центрах, в частности, в Ташкенте (НИИ прикладной физики ТашГУ, Узбекистан), Черногловке (Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН), Сумах (Институт прикладной физики НАН Украины). Можно надеяться, что наш опыт модернизации такой установки в ННЦ ХФТИ в направлении использования двухзарядных пучков может оказаться полезным и для вышеупомянутых центров.



Авторы выражают благодарность своим коллегам Плукису А. (Институт физики, г. Вильнюс, Литва) и Гугле А.Г. (ННЦ ХФТИ) за плодотворные дискуссии по отдельным направлениям исследований, представленных в настоящей работе.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Heinicke E., Hellebold J.M., Weber A. Preliminary results with a Penning ion source on a 5.5 MV Van de Graaff accelerator // Nucl. Instrum. and Meth. - 1975. - Vol.124. - P.301-303.
2. Mistra S.N., Gupta S.K., Mehta M.K. Installation of pre-injection ion source-Z/M analyzer system on the 5.5 MV Van de Graaff accelerator at Trombay // Nucl. Instrum. and Meth. - 1976. - Vol.135. - P.477-481.
3. Grimshaw J.A. Use of  $^3\text{He}^{++}$  in RBS analysis of CMT and related epilayers // Vacuum. - 1984. - Vol.24. - No.12. - P.1097-1098.
4. Bartha L., Kiss A.Z., Koltay E., Szabo Gy. Light heavy-ion and molecular beams from a radio-frequency ion source // Nucl. Instrum. and Meth.-1990.-Vol.A287.-P.156-160.
5. Towle J.H., Howe F.A., James G. Production of a nanosecond-pulsed  $\text{He}^{++}$  beam from a 5.5 MV Van de Graaff // Nucl. Instrum. and Meth. - 1968. - Vol.62. - P.77-81.
6. Batvinov L.P., Vergunov A.D., Glazunov L.S., Zac A.V., Levchenko Ju.Z., Novikov M.T., Pistrjak V.M., Storizhko V.E., Chekanov S.Ja. Malogabaritnyj elektrostatičeskij uskoritel' na 2 MjeV gorizontalnogo tipa (predvaritel'nye ispytaniya) // Voprosy atomnoj nauki i tehniki. Serija: Tehnika fizičeskogo eksperimenta. - Moskva. - CNIAtominform. - 1985. - Vyp.1(22). - S.26-28.
7. Glazunov L.S., Zats A.V., Karpus S.G., Kuz'menko V.V., Pistryak V.M. Multi-charged ion source // Problems of Atomic Science and Technology, Series "Nuclear Physics Investigations" (55). - 2011. - No.3(73). - P.68-74.
8. Komarov F.F., Kumahov M.A., Tashlykov I.S. Nerazrushajushhij analiz poverhnostej tverdyh tel ionnymi puchkami. -Minsk: Izd-vo "Universitetskoe", 1987. - 256s.
9. Feldman L., Majer D. Osnovy analiza poverhnosti i tonkih plenok. - M.: Mir, 1989. - 342 s.
10. Tesmer J.R., Nastasi M. (Eds.) Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis. MRS-Materials research Society. Pittsburgh, PA, 1995. - 704 p.
11. Malmqvist K.G. Accelerator-based ion beam analysis – an overview and prospects // Radiat. Phys. Chem. - 2004. - Vol.71. - P.817-827.
12. Roberson N.R., Tilley D.R., Weller H.R. The acceleration of doubly-ionized  $\text{He}^{3+}$  // Nucl. Instrum. and Meth. - 1965. - Vol.33. - P.84-86.
13. Karpus S.G., Goncharov A.V., Pistryak V.M., Zats A.V., Kuz'menko V.V., Bondarenko V.N., Sukhostavets V.I., Glazunov L.S.  $^4\text{He}^{2+}$  and  $\text{H}_2^+$  ion beam separation on "Sokol" IBA facility // Problems of Atomic Science and Technology, Series "Nuclear Physics Investigations" (64). - 2015. - No.3(97). - P.95-98.
14. Parmentier R., Lemarchand F., Cathelinaud M., Lequime M., Amra C., Labat S., Bozzo S., Bocqet F., Charaf A., Tomas O., Dominici C. Piezoelectric tantalum pentoxide studied for optical tunable applications // Appl. Opt.-2002. - Vol.41. - No.16. - P.3270-3276.
15. Yoon S.G., Kang S.M., Yoon D.H. Residual stress and optical properties in a past-annealed  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  multilayer prepared by using dual-ion-beam sputtering // J. Korean Phys. Soc. - 2006. - Vol.49. - No.1. - P.237-240.
16. Leavitt J.A., McIntyre L.C., Ashbaugh M.D., Oder J.G., Lin Z., Dezfouly-Arjomondy B. Cross sections for  $170.5^\circ$  backscattering of  $^4\text{He}$  from oxygen for  $^4\text{He}$  energies between 1.8 and 5.0 MeV // Nucl. Instrum. and Meth. - 1990. - Vol.B44. - P.260-265.
17. Andersen H.H., Besenbacher F., Loftager P., Moller W. Large-angle scattering of light ions in the weakly screened Rutherford region // Phys. Rev. - 1980. - Vol.21. - P.1891-1901.
18. Cuomo J.J., Rosnagel S.M. Property modification and synthesis by low energy particle bombardment concurrent with film growth // Nucl. Instr. and Meth. - 1987. - Vol.B19/20. - P.963-974.
19. Smidt F.A. Use of ion beam assisted deposition to modify the microstructure and properties of thin films // International Materials Reviews. - 1990. - Vol.35. - No.2. - P.61-128.
20. Vasilenko R.L., Goncharov A.V., Guglja A.G., Karpus' S.G., Litvinenko M.A. O mehanizme formirovanija VN pokrytij v uslovijah bombardirovki ionami azota // Poverhnost'. Rentgenovskie, sinhrotronnye i neytronnye issledovanija. - 2008. - No.11. - S.81-87.
21. Goncharov A., Guglya A., Melnikova E. On the feasibility of developing hydrogen storage capable of adsorption hydrogen both in its molecular and atomic states // International journal of hydrogen energy. - 2012. - Vol.37. - Iss.23. - P.18061-18073.
22. Tolenis T., Gaspariunas M., Lelis M., Plukis A., Buzelis R., Melninkaitis A. Assessment of effective-medium theories of ion-beam sputtered  $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$  and  $\text{ZrO}_2\text{-SiO}_2$  mixtures // Lith. J. Phys. - 2014. - Vol.54. - No.2. - P.99-105.
23. Mezey G., Kotal E., Revesz P., Manuaba A., Lohner T., Gyulai J., Fried M., Vizkelethy Gy., Paszti F., Battistig G., Somogyi M. Enhanced sensitivity of oxygen detection of 3.045 MeV ( $\alpha,\alpha$ ) elastic scattering and its applications // Acta Phys. Hung. - 1985. - Vol.58. - P.39-55.
24. Rubel M., Wienhold P., Hildebrandt D. Ion beam analysis methods in the studies of plasma facing materials in controlled fusion devices // Vacuum. - 2003. - Vol.70. - P.423-428.
25. Ziegler J.F. SRIM program. Available from: <<http://www.srim.org/>>.
26. Antonova M.M. Svoystva gidridov metallov. - Kiev: Naukova dumka, 1975. - 128 s.