

Определение профиля концентрации кислорода в тонкоплёночных Si-O-Al-структурах методом ядерного обратного рассеяния (ЯОР)

Determination of the Oxygen Concentration Profile in Thin Films of Si-O-Al by Elastic (non-Rutherford) Backscattering Spectrometry (EBS)

Н. С. Мелесов (melesovns@mail.ru), Е. О. Паршин (par1959@yandex.ru)

Ярославский Филиал Федерального государственного бюджетного учреждения науки
Физико-технологического института имени К. А. Валиева Российской академии наук, Ярославль, Россия

Abstract: This study proposes and tests a method for determining the oxygen concentration in a sample on a substrate of heavy elements. To increase the backscattering signal, the resonance of scattering of α -particles by ^{16}O at an energy of 3038 keV was used. In samples with a thickness of more than 10 nm, it was proposed to reconstruct the oxygen concentration profile based on a series of spectra with different energies of α -particles.

Многослойные плёнки Si-O-Al используются в качестве отрицательных электродов в прототипах литий-ионных аккумуляторов, разрабатываемых в ФТИАН [1]. Замена материала электродов с графита на кремний теоретически позволяет увеличить ёмкость аккумулятора с 372 мА·ч/г до 4200 мА·ч/г. При использовании кристаллического кремния происходит быстрая деградация и разрушение электрода. Для решения этой проблемы предполагается использовать композитные плёнки на основе аморфного кремния. Плёнка состоит из чередующихся слоёв двух типов: первый – с низким содержанием алюминия и кислорода (близок к аморфному кремнию); второй – с повышенным содержанием алюминия и кислорода (армирующие слои).

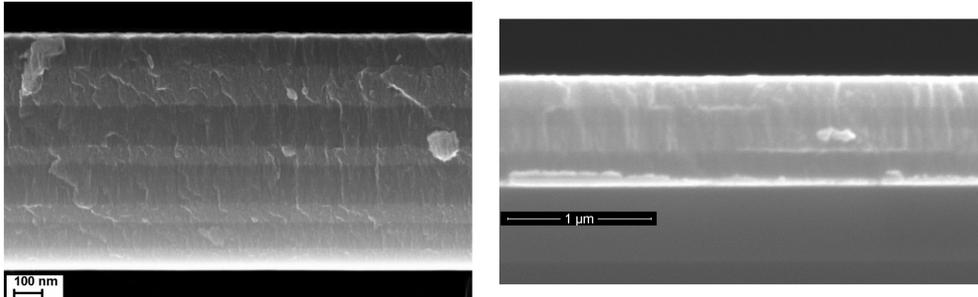


Рисунок 1. Фотография СЭМ (SUPRA 40) поперечного скола образца. Слева: электрод, использующийся в прототипе литий-ионного аккумулятора (8 слоёв, 900 нм); справа: образец, исследовавшийся в данной работе (3 слоя, 700 нм).

Исследование образцов проводилось на линейном ускорителе HVEE K2MV, расположенном в ЯФ ФТИАН. На нём имеется возможность производить анализ пучками быстрых ионов, полученных с высоковольтного терминала потенциалом до 2 МВ. Ранее аналогичные многослойные образцы Si-O-Al нами исследовались методом резерфордского обратного рассеяния (РОР) [2]. Но обработка спектров, содержащих близкие по массам элементы (алюминий и кремний) и более того, имеющих массу меньшую, чем масса подложки (кислород на кремнии) является сложной задачей, поэтому точность измерений была низкой.

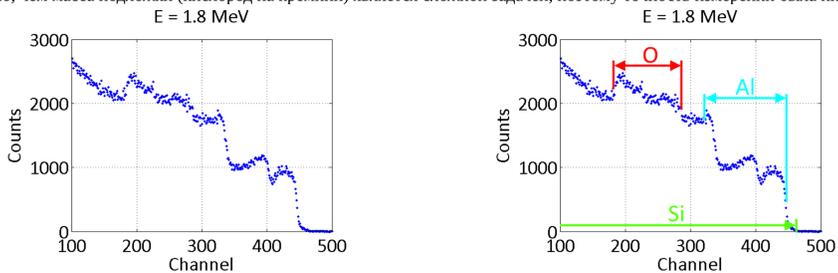


Рисунок 2. Спектр РОР, полученный на образце. Начальная энергия α -частиц $E_0 = 1,8$ МэВ, рассеивание на угол $\varphi = 160^\circ$, телесный угол детектора $\Omega = 3,4$ мср, доза облучения $D = 10$ мкКл (ионы He^+ , $n = 1$), ширина канала $w = 2,28$ кэВ, угол входа ионов в образец $\alpha = 8,6^\circ$, угол выхода ионов из образца $\beta = 27,4^\circ$.

Для уверенной регистрации кислорода на фоне кремниевой подложки использовалось резонансное рассеяние в потенциале ядерных сил взаимодействия – метод ядерного обратного рассеяния (ЯОР). Наибольшее относительное значение сечения рассеяния α -частиц на ^{16}O (при доступном нам энергиях α -частиц) наблюдается на энергии 3038 кэВ.

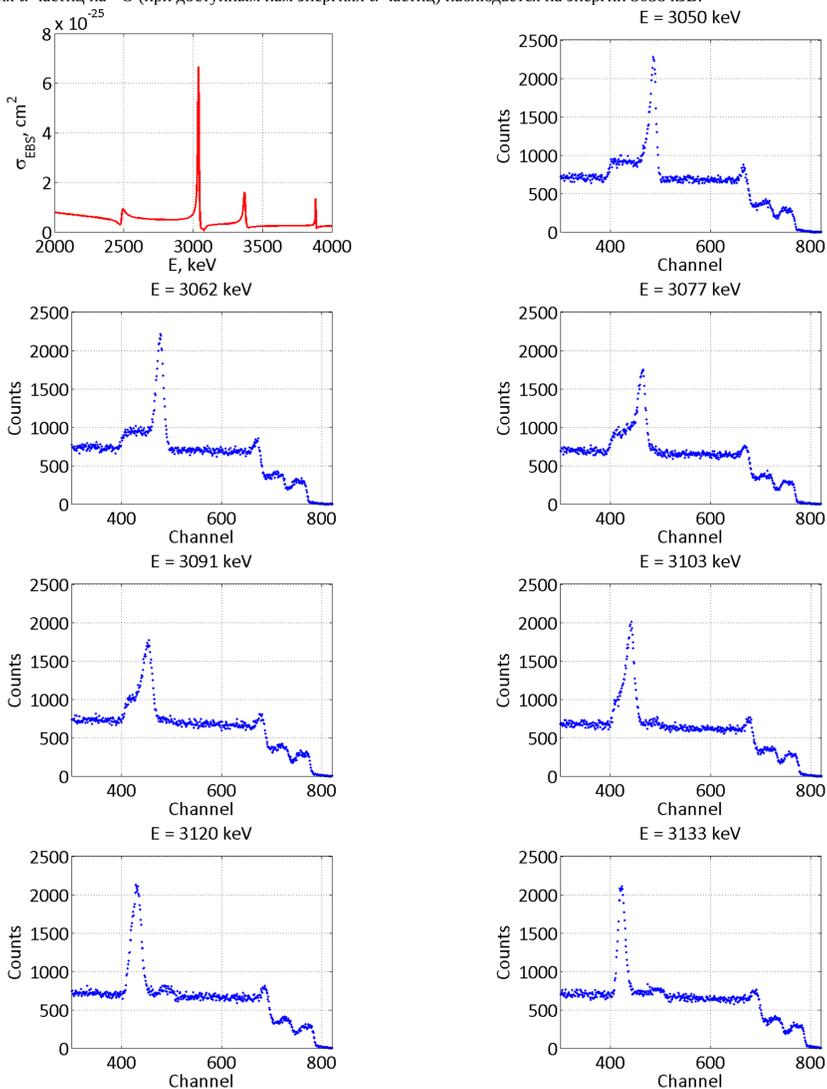


Рисунок 3. Спектры ЯОР, полученные на образце при разных начальных энергиях рассеиваемых α -частиц. Угол рассеяния $\varphi = 160^\circ$, телесный угол детектора $\Omega = 3,4$ мср, доза облучения $D = 20$ мкКл (ионы He^{++} , $n = 2$), ширина канала $w = 2,28$ кэВ, угол входа ионов в образец $\alpha = 8,6^\circ$, угол выхода ионов из образца $\beta = 27,4^\circ$. Сверху-слева: зависимость сечения рассеяния α -частиц на ^{16}O на угол $\varphi = 160^\circ$ от энергии [3].

Ниже приводится обработка спектров ЯОР на примере двух начальных энергий α -частиц: $E_0 = 3050$ кэВ и $E_0 = 3103$ кэВ. Вначале убирается зависимость интенсивности спектра от параметров экспериментальной установки:

$$N.Y. = \frac{\text{Counts}}{(D/n) \cdot \Omega \cdot w}, \quad (1)$$

где $N.Y.$ – нормированный выход; Counts – выход многоканального анализатора (МКА); D – доза облучения (в мкКл); n – кратность ионизации иона; Ω – телесный угол детектора (в ср); w – ширина канала МКА (в эВ).

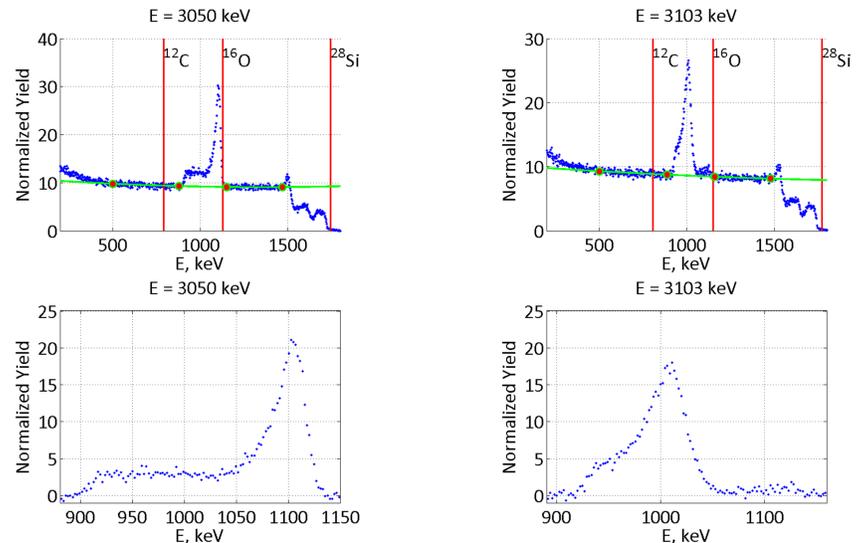


Рисунок 4. Выделение сигнала кислорода из спектров ЯОР.

Перевод шкалы энергий в шкалу глубин осуществлялся решением интегрального уравнения:

$$E_D = K_0 \left[E_0 - \int_0^{t/\cos\alpha} \xi(E) dl \right] - \int_0^{t/\cos\beta} \xi(E) dl \quad (2)$$

здесь E_D – энергия иона, пришедшего в детектор; ξ – удельные потери энергии ионом при движении в веществе (эВ/(10^{15} ат./см 2)); K_0 – кинематический фактор рассеяния ^4He на ^{16}O ; t – глубина в образце (10^{15} ат./см 2).

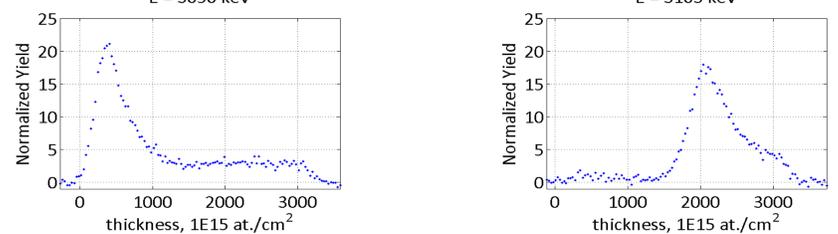


Рисунок 5. Перевод шкалы энергий в шкалу глубин.

Расчёт концентрации кислорода производился на основе связи Normalized Yield с параметрами мишени. Поскольку ξ зависит от C_O , то производились 4 последовательные итерации:

$$N.Y. = \frac{C_O \cdot \sigma_o(E, \varphi)}{e \cdot \cos \alpha \cdot \left(\frac{K_0 \cdot \xi(E)}{\cos \alpha} + \frac{\xi(K_0 \cdot E)}{\cos \beta} \right)}, \quad (3)$$

где C_O – концентрация кислорода; σ_o – сечение рассеяния ^4He на ^{16}O ; E – энергия на глубине t ; e – элементарный заряд.

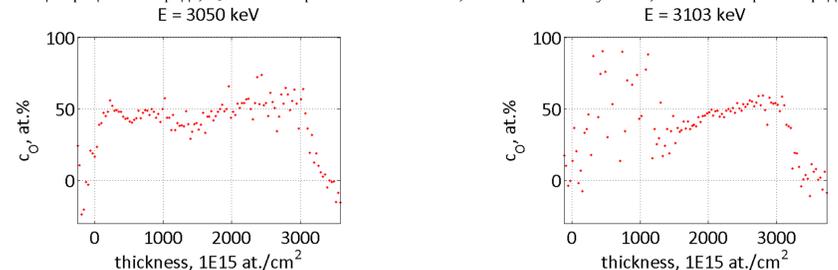


Рисунок 6. Расчёт концентрации кислорода.

На основе данных утилиты ResolNRA[4] данные по концентрации кислорода были усреднены с шагом $125 \cdot 10^{15}$ ат./см 2 (примерно половина разрешения метода в образце). Уровень гауссова шума оценён по квадратичной ошибке шума на подложке – для всех экспериментов составлял около 0,31 Normalized Yield.

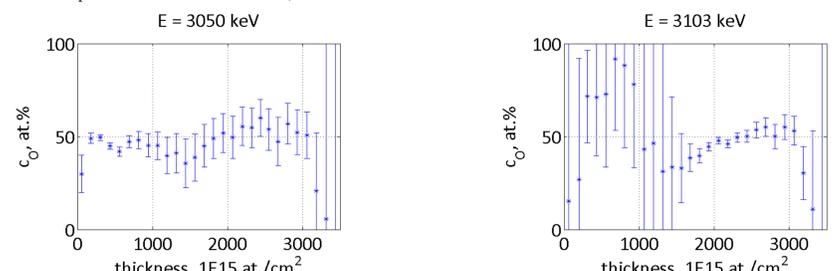


Рисунок 7. Профиль концентрации кислорода в образце совместно в погрешность, обусловленной гауссовым шумом измерительной системы.

Для каждой энергии погрешность, обусловленная гауссовым шумом, минимальна в области, где находится максимум сечения рассеяния. Совмещая концентрационные профили кислорода из разных экспериментов выделяем данные с наименьшей погрешностью.

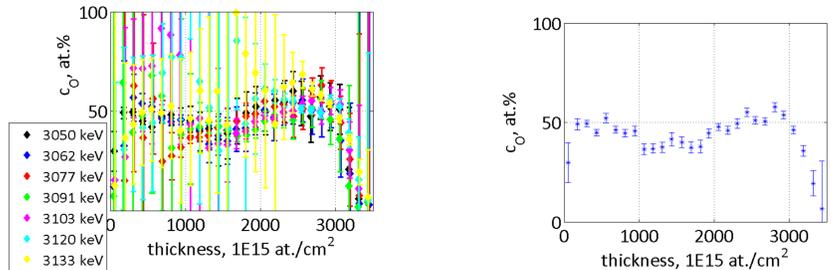


Рисунок 8. Совмещение концентрационных профилей кислорода. Слева: профили концентрации для всех исследуемых энергий. Справа: профиль, полученный по данным с наименьшей погрешностью.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- Mironenko A.A., Fedorov I.S., Rudy A.S., Andreev V.N., Gryzlov D.Yu., Kulova T.L., Skundin A.M. Charge-discharge performances of the Si-O-Al electrodes. – Monatshefte für Chemie, Volume 150, Issue 10, 2019, – pp 1753–1759.
- Бачурин В.И., Мелесов Н.С., Мироненко А.А., Паршин Е.О., Рудый А.С., Симакин С.Г., Чурилов А.Б. Послойный анализ тонкоплёночных Si-O-Al-структур методами вторично-ионной масс-спектрометрии и резерфордского обратного рассеяния. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2019. № 4. С. 38–43.
- Gurbich A.F. SigmaCalc recent development and present status of the evaluated cross-sections for IBA. – Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 371, 2016, – pp 27–32.
- SIMNRA User's Guide / M. Mayer. Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, Germany. 2011. 220 p.