

1

Metode de analiză bazate pe împrăștierea elastică a particulelor încărcate

1.1 Introducere

Folosirea împrăștierii elastice în câmp Coulombian ca metodă de analiză prezintă avantaje majore, datorită următoarelor caracteristici specifice

- Interacția electromagnetică este cunoscută în detaliu și permite o modelare analitică simplă.
- Secțiunea eficace a procesului de împrăștiere coulombiană elastică are o valoare relativ mare ceea ce determină o sensibilitate ridicată a metodelor de analiză bazate pe acest proces de interacție.
- Energia particulelor împrăștiate are o dependență clară de masa atomilor țintei, ceea ce face ca acest tip de metode de analiză cantitativă să fie foarte precise.

Cel mai simplu aranjament experimental este prezentat în Figura 1.1. El constă din următoarele elemente: camera de reacție,

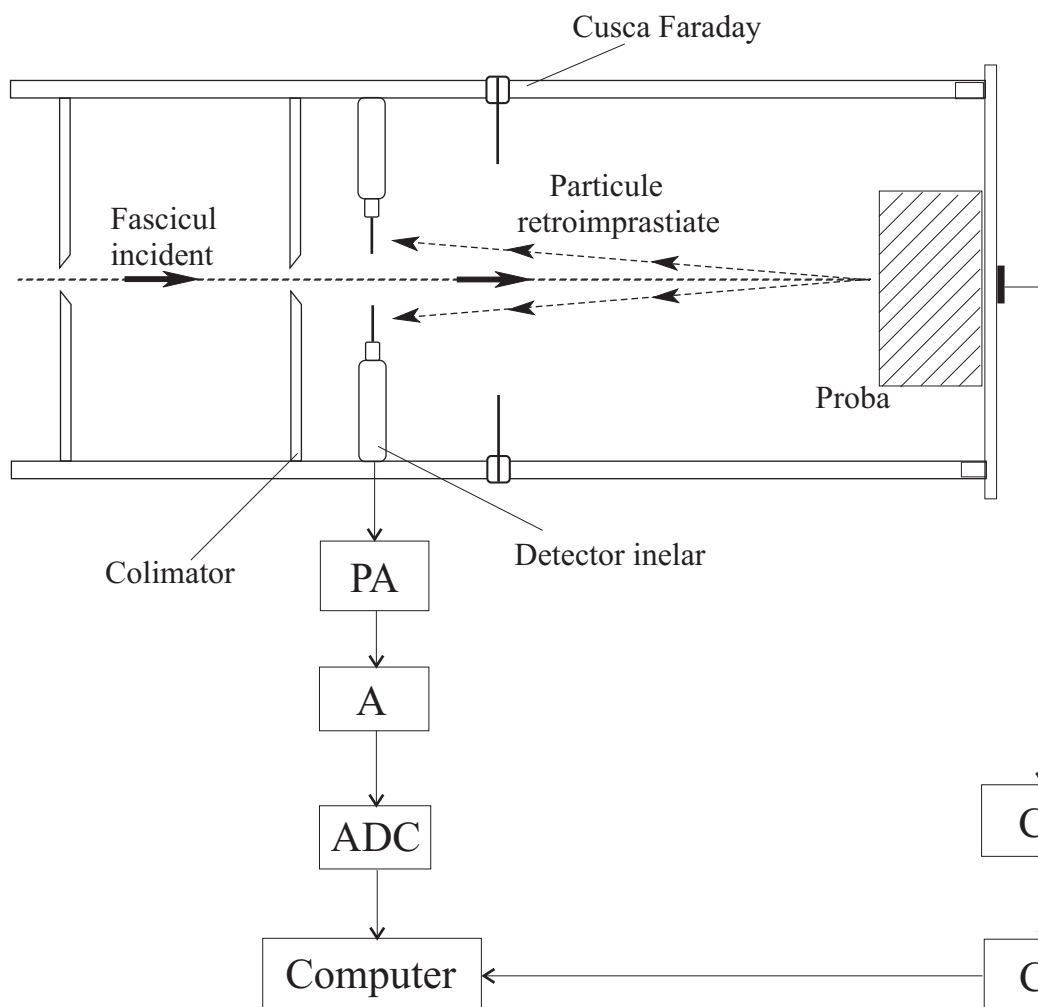


Figure 1.1: Aranjament experimental tipic pentru metoda RBS

tile care pot proveni de la un accelerator de particule sau de la o sursă radioactivă), ținta (care reprezintă chiar proba de analizat) și sistemul spectrometric de detecție. În mod curent, se folosesc proiectile cu mase cuprinse între proton și ^{63}Cu , cu energii în jurul valorii de 0.5 MeV/nucleon. Detectorul este, în cele mai multe cazuri, o diodă de Si cu rezoluție energetică cât mai bună. Valorile tipice pentru rezoluția energetică sunt: 15-20 keV FWHM pentru protoni și 30-40 keV pentru ioni grei (^{19}F , ^{16}O , ^{12}C). În măsurătorile efectuate în geometrie de retroîmprăștiere, intensitatea și energia particulelor împrăștiate sunt direct legate de compoziția țintei. Interpretarea spectrelor energetice măsurate este complicată de faptul că particulele încărcate incidente, ca și cele emergente, pierd energie în materialul probei, pierdere de energie caracterizată de o anumită funcție de stopare. Așadar, asupra spectrului energetic măsurat al particulelor împrăștiate pe un atom țintă localizat la o anumită adâncime în interiorul probei, trebuie aplicate corecții care să țină cont atât de pierderea de energie a fasciculului incident până ajunge la atomul țintă, cât și de energia pierdută de particulele împrăștiate până la ieșirea din țintă. Aceste corecții, care necesită o cunoaștere foarte precisă a puterii de stopare, sunt făcute prin simulare pe calculator (de exemplu codul TRIM dezvoltat în laboratoarele IBM). O alta corecție este impusă de faptul că secțiunea eficace de împrăștiere experimentală poate devia de la forma simplă Rutherford din cauza efectelor rezonante nucleare. În final, trebuie aplicate corecții datorate abaterii de la geometria ideală, care țin cont de dimensiunea finită a petei fasciculului pe țintă, de unghiul solid al detectorului, etc..

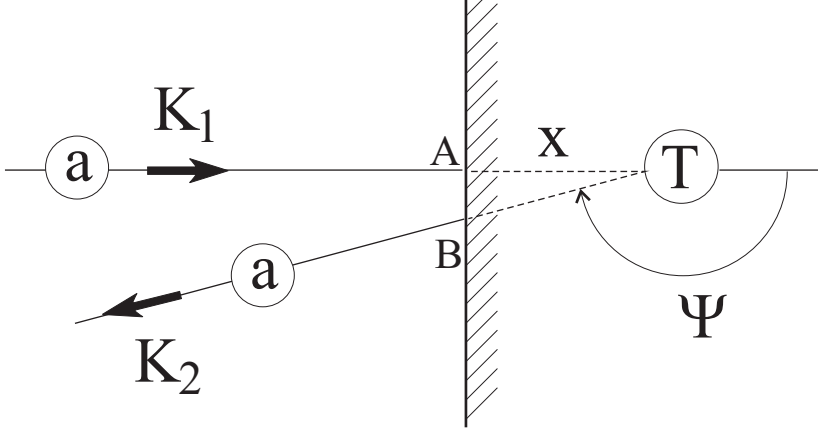


Figure 1.2: Parametrii geometrice utilizați în calculele RBS

1.2 Consecințe cinematice

1.2.1 Energia particulelor împrăștiate

Reprezentările consacrate pentru împrăștierea elastică a unui proiectil "p" pe o țintă "T" sunt de forma

$$p + T \longrightarrow p + T \quad \text{sau} \quad T(p, p)T \quad (1.1)$$

Dacă m este masa proiectilului și M este masa țintei (nucleu considerat inițial în repaus), atunci raportul (k) dintre energiile cinetice inițiale (K_1) și finale (K_2) ale proiectilului este dat în cazul nerelativist de relația ?? în care $Q = 0$ și $m \leq M$

$$k = \frac{K_2}{K_1} = \frac{2 \cos^2(\psi) + (M/m)^2 - 1 + 2 \cos(\psi) [(M/m)^2 + \cos^2(\psi) - 1]^{1/2}}{(1 + M/m)^2} \quad (1.2)$$

Această relație arată că parametrul k scade monoton cu raportul maselor m/M și cu cosinusul unghiului de împrăștiere ψ .

În cazul particular în care ținta și proiectilul au mase egale ($m = M$), relația (1.2) devine:

$$k = K_2/K_1 = \cos^2 \psi \quad (1.3)$$

Dacă $m > M$, atunci k are două valori și se deduce imediat din ecuația (??)

$$k = \frac{2 \cos^2(\psi) + (M/m)^2 - 1 \pm 2 \cos(\psi) [(M/m)^2 + \cos^2(\psi) - 1]^{1/2}}{(1 + M/m)^2} \quad (1.4)$$

În acest caz ψ are valoarea maximă

$$\psi_{max} = \sin^{-1} \left(\frac{M}{m} \right) \quad (1.5)$$

La fiecare unghi ψ corespund două valori pentru energia particulelor împrăștiate. Indiferent de valoarea energiei, particulele sunt emise într-un con având deschiderea $\psi_{max}/2$. Pentru $\psi = \psi_{max}$

$$k = \frac{m - M}{m + M} \quad \text{sau} \quad K_2 = K_1 \frac{m - M}{m + M} \quad (1.6)$$

energia particulelor emergente având pentru acest unghi particular o singură valoare.

1.2.2 Rezoluția în masă

Așa cum se poate vedea din relația (1.2), energia unei particule împrăștiate la un anumit unghi ψ este legată direct de masa nucleului împrăștiator. Principiul metodei de analiză elementală prin împrăștiere elastică constă în identificarea unei anumite specii atomice din valoarea masei sale care este dedusă din energia particulelor împrăștiate la un anumit unghi. În practică, proba poate conține mai mulți izotopi ai aceluiași element chimic, care conduc la energii apropiate ale particulelor împrăștiate. Pe de altă parte, proba poate conține atomi diferiți, dar cu mase egale. În acest caz unei anumite energii îi pot corespunde atomi diferiți având însă mase egale (izobari). Din acest motiv rezoluția energetică a detectorului de particule împrăștiate este un parametru experimental critic în efectuarea unui experiment de precizie.

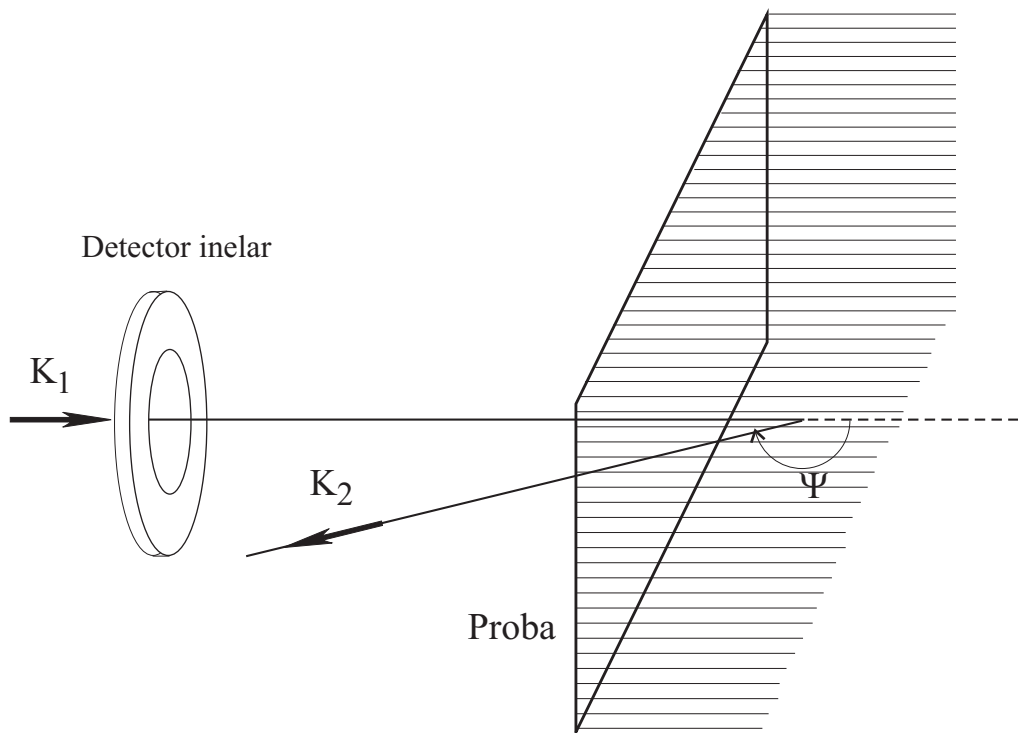


Figure 1.3: Geometria de detecție circulară utilizată în metoda RBS

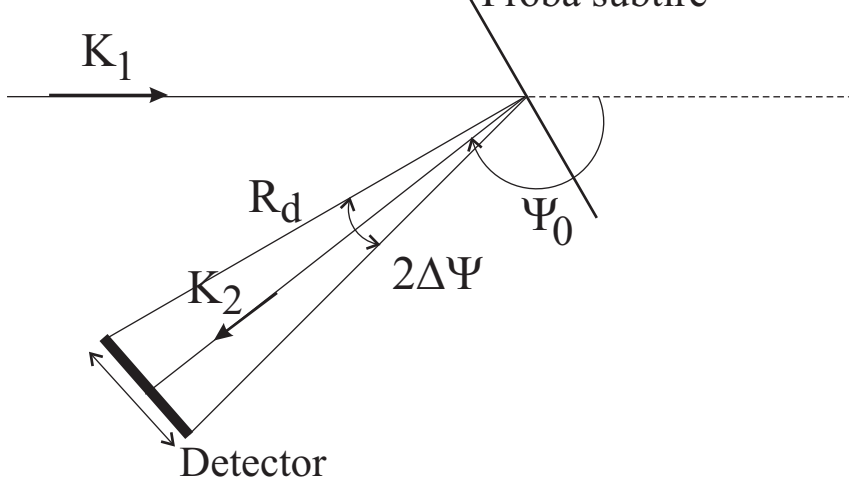


Figure 1.4: Influența dimensiunilor finite ale detectorului asupra rezoluției

În principiu, rezoluția în masă $\Delta E/\Delta M$ poate fi obținută prin derivarea relației (1.2). Prin tabelarea valorilor date de relația (1.2) [10] se poate arată că diferența între două mase adiacente *scade* odată cu creșterea masei M și *crește* cu energia și masa proiectilului. De asemenea, aceasta diferență *crește* cu unghiul de împrăștiere, atingând valoarea maximă la $\psi = 180^\circ$.

Creșterea energiei particulelor incidente îmbunătățește pe de o parte rezoluția energetică, dar pe de altă parte reduce intensitatea particulelor împrăștiate deoarece secțiunea eficace pentru împrăștierea Rutherford (relația ??) este proporțională cu K_1^{-2}). Rezoluția în masă depinde de asemenea de performanțele sistemului de detecție, de complexitatea spectrului măsurat și de procedurile de evaluare a datelor obținute.

Limitarea în rezoluția în masă datorată sistemului de detecție rezultă parțial din faptul că detectorul de particule subîntinde un unghi solid finit. Dacă considerăm un detector circular cu diametrul d poziționat la distanța D de spotul fascicului pe țintă

unghiulară este o funcție cosinus. Maximul variației în unghiul de împrăștiere pe detector este dat de

$$\Delta\psi = \frac{1}{2} \frac{d}{D} \quad \text{rad} \quad (1.7)$$

Lărgimea la semiînălțime (FWHM) a distribuției în unghiuri este

$$\delta\psi = 0.87 \frac{d}{D} \quad \text{rad} \quad (1.8)$$

Împrăștierea în energie δK_2 corespunzătoare unei împrăștieri în unghi $\delta\psi$ poate fi calculată prin diferențierea relației $K_2 = kK_1$

$$\delta K_2 = K_1 \delta k \quad \text{unde} \quad \delta k \approx \left(\frac{\partial k}{\partial \psi} \right)_{\psi_0} \delta\psi \quad (1.9)$$

Din ecuația (1.2) se obține în cazul $m < M$ valoarea derivatei

$$\left(\frac{\partial k}{\partial \psi} \right)_{\psi_0} = \frac{-2 \sin(2\psi_0) - 2 \sin(\psi_0)[(M/m)^2 - \sin^2(\psi_0)]^{1/2}}{(1 + M/m)^2} - \frac{2 \sin(\psi_0) \cos^2(\psi_0)[(M/m)^2 - \sin^2(\psi_0)]^{-1/2}}{(1 + M/m)^2} \quad (1.10)$$

Folosind ecuațiile (1.8,1.9,1.10) se obține

$$\delta K_2 = 0.87 \frac{d}{D} K_1 \left(\frac{\partial k}{\partial \psi} \right)_{\psi_0} \quad (1.11)$$

În particular, pentru $\psi_0 = 180^\circ$, se obține $\delta K_2 \approx 0$, așadar, împrăștierea în energie introdusă de dimensiunea finită a detectorului este neglijabilă pentru unghiuri mari de împrăștiere.

Pentru $\psi = 90^\circ$, împrăștierea energetică este maximă și are valoarea

$$|\delta K_2| = 1.74 K_1 \frac{d}{D} \frac{[(M/m)^2 - 1]^{1/2}}{(1 + M/m)^2} \quad \text{MeV} \quad (1.12)$$

În cazul real, dimensiunea petei fasciculului pe probă este finită. Atunci când această dimensiune nu este neglijabilă în raport cu d , în formulele de mai sus trebuie înlocuit d cu o valoare efectivă d_{eff} care se determină în cele mai multe cazuri prin simulări numerice.

corp solid care au un răspuns practic liniar și rezoluție constantă pe un domeniu energetic întins. Deoarece detectorul este păstrat la un unghi constant, energia particulelor împrăștiate K_i se poate exprima în funcție de energia particulelor incidente pe probă K_0 prin relația

$$K_i = k_i \cdot K_0 \quad (1.13)$$

în care k_i se obține din relația (1.2). Spectrul particulelor retroîmprăștiate constă într-o succesiune de picuri de diferite amplitudini. Fiecare pic corespunde unei anumite mase care se poate calcula cu relația (1.13). În afara particulelor împrăștiate, în spectre se observă și producții diferitele reacții nucleare, care însă au intensități mult mai reduse.

1.2.3 Fluxul particulelor împrăștiate

Intensitatea fluxului de particule împrăștiate poate fi estimat, într-o primă aproximație, pornind de la formula lui Rutherford (??). O aproximație simplă a acesteia poate fi făcută atunci când $m \gg M$:

$$\sigma(\psi) = 1.296 \left(\frac{Z_p Z_T}{K_1} \right)^2 \left[\frac{1}{\sin^4(\psi/2)} - 2 \left(\frac{m}{M} \right)^2 \right] \text{ mb/ster} \quad (1.14)$$

În cazul cel mai frecvent, ținta și proiectilul sunt nuclee diferite. Pentru aceste cazuri, secțiunea eficace Rutherford este o funcție monotonă de energia proiectilelor și de unghiul de împrăștiere (Figura 1.5). Este de asemenea direct proporțională cu pătratul numerelor atomice ale proiectilului și țintei. Aceste dependențe simple, împreună cu relațiile cinematice, constituie baza metodei de analiză a suprafețelor prin împrăștierea elastică a particulelor încărcate electric. Trebuie remarcat însă că există anumite limitări ale formulei Rutherford, limitări care vor fi discutate în continuare.

Limitări la energii joase

În toate considerentele anterioare asupra formulei Rutherford,

plet ionizat. În realitate, foarte rar (doar la ionii ușori și la energii mari) el este complet ionizat. De asemenea, nucleele țintei au o structură atomică complexă. Așadar, ne așteptăm ca la energii mici de bombardare, efectele atomice să fie foarte importante, secțiunea eficace de împrăștiere diferind considerabil de cea dată prin relația (1.14) În general, este acceptat faptul că formula Rutherford este validă la energii mai mari de 50 keV pentru protoni și 200 keV pentru particule alfa.

Pentru energii mai mici, potențialul Coulomb nu mai constituie o aproximație realistă și se utilizează potențialul Coulomb ecranat

$$V_{scr} \propto \frac{Z_T Z_p}{r} e^2 e^{-r/\alpha} \quad (1.15)$$

care constituie o aproximație a potențialului de interacție între doi atomi atunci când este considerat efectul de ecranare produs de electronii atomici. În acest caz, secțiunea de interacție și cinematica proceselor se evaluează numeric.

Limitări la energii mari pentru ionii grei

Termenul de *ioni grei* se utilizează pentru toate proiectilele mai grele decât particulele alfa. În deducerea formulei Rutherford se face ipoteza unor particulele ce urmează traiectorii hiperbolice determinate de forța Coulombiană repulsivă. Această imagine clasică este validă atunci când lungimea de undă λ asociată proiectilului este mai mică decât raza nucleară R , cum este cazul ionilor grei cu energii de ordinul MeV/nucleon.

Traietoriile clasice sunt caracterizate de parametrul de impact b și de distanța apropierii maxime D . Atunci când $D < R$, traiectoria este perturbată de forțele nucleare și particula va avea o probabilitate mare de a induce reacții nucleare. Aceste concepte sunt ilustrate în Figura 1.5 unde sunt reprezentate traiectoriile corespunzătoare unei deflecții cu 90° în SCM a ionilor de ^{56}Fe . În această figură traiectoriile corespunzătoare unor energii mai mari de 15 MeV intersectează suprafața nucleară, secțiunea Rutherford

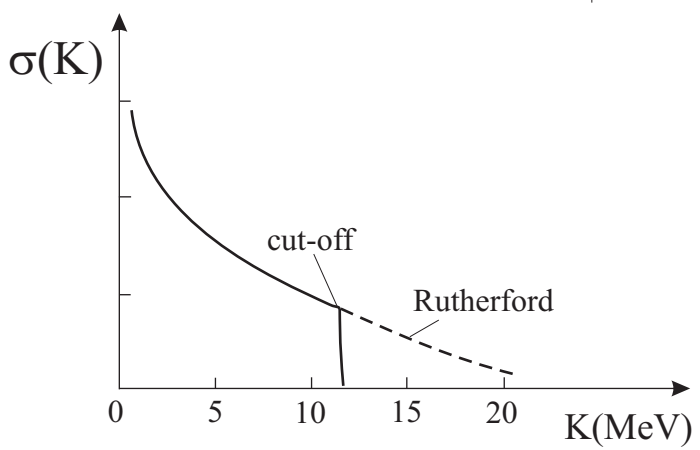
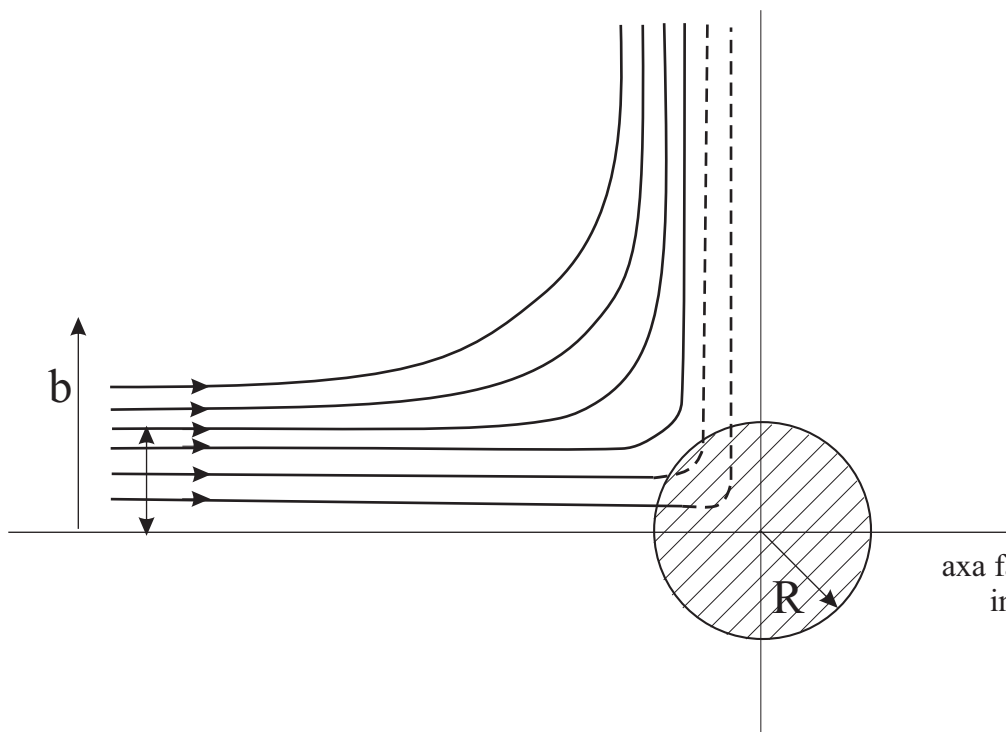


Figure 1.5: Orbitele Rutherford și secțiunea eficace corespunzătoare

MeV, corespunzătoare instalării interacției nucleare.

Distanța apropierei maxime D se poate calcula semiclassical [10] și este dată de relația

$$D = \frac{1}{2} \frac{Z_p Z_T}{K_1^{SCM}} e^2 \left(1 + \frac{1}{\sin(\theta/2)} \right) \quad (1.16)$$

unde K_1^{SCM} este energia în SCM, θ este unghiul de împrăștiere în SCM iar R este raza de interacție

$$R = (R_p + R_T) = r_0(A_p^{1/3} + A_T^{1/3})$$

Energia de tăiere (corespunzătoare primei intersecții a traiectoriei cu suprafața nucleară) se obține din ecuația anterioară pentru $D = R$. Așadar, condiția clasică necesară pentru a avea o împrăștiere Rutherford pură este (la $\theta = 180^\circ$)

$$K_1^{SCM} < \frac{1}{R} Z_p Z_T e^2 \quad (1.17)$$

sau

$$K_1 \equiv K_1^{SL} < \frac{M + m}{M} K_1^{SCM}$$

Secțiunile eficace măsurate indică însă deviații de la secțiunea eficace Rutherford pură chiar la energii inferioare energiei de tăiere. Acest efect poate fi atribuit extinderii spațiale a traiectoriei proiectilului (efect cuantic) și difuzivității suprafeței nucleare (rază finită de acțiune a forțelor nucleare). Pentru a considera aceste efecte cuantice, în practică se calculează o limită superioară (de siguranță) pentru utilizarea secțiunii eficace Rutherford

$$K_1^{safe} < \frac{Z_p Z_T}{4R} e^2 \left(1 + \frac{m}{M} \right) \left(1 + \frac{1}{\sin(\theta/2)} \right) \quad (1.18)$$

unde

$$\theta = \psi + \sin^{-1} \left(\frac{\sin(\psi)}{R} \right) \quad (\theta = \psi \quad \text{pentru} \quad m \gg M) \quad (1.19)$$

La energii mai mari decât cea de tăiere (cut-off), secțiunea eficace scade exponențial și aplicația retroîmprăștierii pentru analize cantitative devine foarte dificilă. Un fenomen similar de tăiere

Pentru probe compuse din elemente ușoare, împrăștiere rezonantă (nucleară) este observată adesea mult sub bariera Coulomb. Interferența nucleară este mult mai probabilă în cazul împrăștierii protonilor comparativ cu împrăștierea ionilor grei. Pentru ținte ușoare ($Z_T < 20$) bariera Coulomb pentru protoni este foarte scăzută și un număr de rezonanțe apare chiar la energii sub barieră. Aceste rezonanțe nu sunt pure de tip Breit - Wigner datorită interferenței cu împrăștierea Coulomb. Pentru ținte mai grele ($Z_T > 20$) se găsesc rezonanțe (de tip izobar analog) chiar sub bariera Coulomb făcând imposibilă stabilirea unei energii sigure sub care interferența nucleară dispăre.

1.3 Studiul suprafețelor solide prin retroîmp (metoda RBS)

Detecția particulelor încărcate împrăștiate la unghiuri mari ($\theta > 160^\circ$) s-a dovedit a fi unul din instrumentele cele mai utile pentru studiul straturilor subțiri, studiul suprafețelor și analiza compoziției compușilor solizi. Metoda este cunoscută în literatura de specialitate sub numele RBS (Rutherford backscattering) sau simplu retroîmprăștiere. Principiul metodei constă în a estima profilul concentrației unei anumite specii atomice dintr-o probă solidă din energia și intensitatea (yield) particulelor retroîmprăștiate. În cele ce urmează se va utiliza termenul de *suprafață* pentru primul strat din probă cu grosimea mai mică de un micron.

Principalele avantaje ale metodei RBS față de împrăștierea la unghiuri înainte constau în: (i) rezoluție în masă crescută și (ii) reducerea semnificativă a efectului unghiului solid de detecție finit. Principalul dezavantaj apare din cauza intensității mai reduse a particulelor retroîmprăștiate, cu efect de reducere a sensibilității.

Folosirea unghiurilor de împrăștiere mari prezintă și avantajul reducerii efectelor datorate neomogenităților superficiale. Geometria de detecție este prezentată schematic în Figura 1.6. Dacă

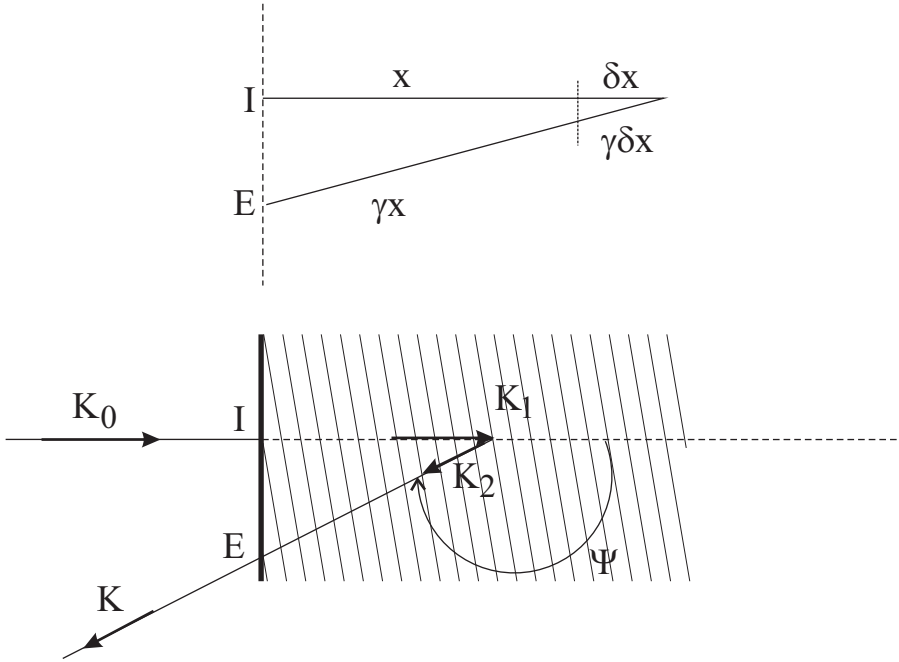


Figure 1.6: Geometria de măsură în metoda de analiză RBS

pătrunde în probă pe distanța "x" și este retroîmprăștiat în urma interacției Coulomb cu un atom din interior, atunci el va părăsi proba în punctul notat cu "E". Dacă distanța \overline{IE} este mică, atunci diferența între lungimea drumului "in" și "out" va fi neglijabilă. Din geometria Figurii 1.6 rezultă

$$\overline{IE} \approx -x \operatorname{tg}\psi \quad (1.20)$$

În cazurile uzuale $0 < x < 10000\text{\AA}$, iar dacă $\psi = 175^\circ$ se obține $0 < \overline{IE} < 875\text{\AA}$.

Să considerăm că proba studiată prin RBS conține un anumit izotop de masă A care are o densitate de distribuție în adâncime dată de funcția $\rho_A(x)$. Se presupune că geometria de măsură este la incidență normală, reprezentată schematic în Figura 1.6. Numărul de particule δI împrăștiate pe secundă în unghiul solid $\delta\Omega$ (unghiul subîntins de către detector), provenite dintr-o regiune δx din jurul adâncimii de penetrare x este dat de expresia

$$\delta I = \frac{dI(x)}{dx} \delta x = I_0 \rho_A(x) \sigma(\psi, K_1(x)) \delta x \delta\Omega \quad (1.21)$$

unde I_0 reprezintă numărul de proiectile care cad în unitatea de timp, pe suprafața probei de studiat, $K_1(x)$ este energia proiectilului înainte de ciocnirea care îl retroîmprăștie, $\sigma(\psi, K_1(x))$ este secțiunea eficace (în barni) pentru împrăștierea elastică, iar densitatea $\rho_A(x)$ se măsoară în număr de nuclee pe gram. Adâncimea x este măsurată în $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$. În notațiile Figurii 1.6 particulele incidente cu energia K_0 bombardează suprafața probei, pătrund la adâncimea x și ajung la atomul retroîmprăștiator cu energia diminuată K_1 , iar în urma evenimentului de împrăștiere rămân cu energia $K_2 = kK_1$. Particulele împrăștiate vor traversa distanța ξx și vor ieși din probă cu energia K . Relația între ξ și ψ este

$$\xi = -\frac{1}{\cos(\psi)} \quad (1.22)$$

Intensitatea $Y(K)\delta K$ a particulelor detectate cu energia în intervalul δK din jurul energiei K este

$$Y(K)\delta K = -\frac{dI(x)}{dx} \frac{dx}{dK} \delta K \quad (1.23)$$

de parametrii cinematici $S(K)$, ξ și k .

În general, puterea de stopare este definită prin relația

$$S(K) \stackrel{def}{=} -\frac{\partial K}{\partial x} \quad \text{MeV}/(\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}) \quad (1.24)$$

Se poate obține relația între energia detectată K și adâncimea de pătrundere x folosind relația (??).

$$x = \int_{K_1}^{K_0} \frac{d\eta}{S(\eta)} \quad \text{și} \quad \xi x = \int_K^{kK_1} \frac{d\eta}{S(\eta)} \quad (1.25)$$

Să considerăm o mică variație în adâncimea de pătrundere δx . Variația corespunzătoare în energia particulei împrăștiată este dată de relația (1.24)

$$\delta K_1 = -S(K_1) \delta x \quad (1.26)$$

iar lungimea drumului de ieșire din probă ξx devine $\xi(x + \delta x)$

$$\xi x + \xi \delta x = \int_{K+\delta K}^{k(K_1+\delta K_1)} \frac{d\eta}{S(\eta)} \quad (1.27)$$

Diferența între relațiile (1.25) și (1.27) este

$$\xi \delta x = \frac{k \delta K_1}{S(kK_1)} - \frac{\delta K}{S(K)} \quad (1.28)$$

care poate fi scrisă folosind relația (1.26) sub forma

$$\xi \delta x = -k \delta x \frac{S(K_1)}{S(kK_1)} - \frac{\delta K}{S(K)} \quad (1.29)$$

sau

$$\frac{\delta x}{\delta K} = -\frac{1}{S(K)} \left[\xi + k \frac{S(K_1)}{S(kK_1)} \right]^{-1} \quad (1.30)$$

Înlocuind variațiile infinitezimale δx și δK prin diferențialele dx și dK și utilizând relația (1.23), se obține

$$Y(K) = \frac{dI}{dx} \frac{1}{S(K)} \left[\xi + k \frac{S(K_1)}{S(kK_1)} \right]^{-1} \quad (1.31)$$

(1.21) se obține în final relația căutată, dintre Yield și energia K_1

$$Y(K) = \frac{I_0 \rho_A \sigma(\psi, K_1) \delta\Omega}{S(K) \left[\xi + \frac{kS(K_1)}{S(kK_1)} \right]} \quad (1.32)$$

Funcția $Y(K)$ reprezintă spectrul particulelor retroîmprăștiate atunci când efectul împrăștierii în energie a particulelor care străbat materialul este neglijat. Această dependență are o variație abruptă la energii mari [10]. Atunci când direcția fasciculului incident formează un unghi α cu normala la suprafața probei, expresia lui $Y(K)$ devine

$$Y(K) = \frac{I_0 \rho_A \sigma(\psi, K_1) \delta\Omega}{S(K) \left[G + kD \frac{S(K_1)}{S(kK_1)} \right]} \quad (1.33)$$

unde

$$G = -\frac{1}{\cos(\psi + \alpha)} \quad , \quad D = \frac{1}{\cos(\alpha)}$$

Energia maximă particulelor retroîmprăștiate corespunde retroîmprăștierii pe suprafața probei, situație în care dispare pierderea de energie prin stopare în materialul probei de analizat.

În general, spectrul particulelor retroîmprăștiate este înregistrat într-un analizor multicanal [14], fiecare canal corespunzând unui interval mic de energie $(\Delta\epsilon)_i$, rezultând o histogramă (spectrul energetic). Numărul de pulsuri din canalul i corespunzător energiei ϵ_i este

$$n_i = Y(\epsilon_i) \Delta\epsilon_i \quad (1.34)$$

Secțiunea eficace σ este bine cunoscută teoretic, puterea de stopare $S(K)$ este de asemenea tabelată pentru multe materiale. Așadar, intensitatea $Y(K)$ poate fi obținută din relația (1.33) și comparată direct cu spectrul măsurat.

În mod practic determinarea lui $Y(K)$ se face în următorii pași:

1. Se reprezintă funcția $S^{-1}(K)$ între K_0 și kK_0 .
2. Se alege o valoare $K - 1$ și se calculează $\sigma(K - 1, \psi)$.

normală.

$$x_1 = \int_{K_1(x_1)}^{K_0} \frac{dK}{S(K)}$$

4. ξx este calculat din relația

$$\xi x = \frac{x}{\cos \theta}$$

5. K se obține din

$$\xi x = \int_K^{kK_1} \frac{dK}{S(K)}$$

limita inferioară a integralei fiind ajustată astfel încât egalitatea de mai sus să fie adevărată.

6. Operațiile de mai sus sunt repetate pentru mai multe valori ale lui K_1 permițând astfel reprezentarea grafică a curbelor $K_1(K)$ și $x(K)$.

Adâncimea maximă X_{max} care poate fi sondată prin RBS corespunde situației în care particulele retroîmprăștiate părăsesc suprafața probei cu energie cinetică zero. Ea se poate obține din relația

$$\xi x_{max} = \int_0^{kK_1} \frac{dK}{S(K)} \quad (1.35)$$

valoare care este practic supraestimată deoarece la energii mici efectele de împrăstiere a traiectoriilor în unghiuri și energii sunt foarte puternice, diminuând acuratețea valorilor măsurate.

1.4 Aplicația metodei RBS la studiul materialelor

1.4.1 Analiza elementală

Compușii solizi simpli cum sunt aliajele metalice, compușii metal-oxid, etc. pot fi analizați cantitativ prin metoda RBS al cărei principiu a fost descris în secțiunea precedentă.

binar $A + B$. Spectrul particulelor retroîmprăștiate va apare ca superpoziția a doua spectre corespunzătoare împrăștierii pe cele două specii atomice A și B prezente în probă

$$Y(K) = Y^A(K) + Y^B(K)$$

$$Y_0(K) = Y_0^A(K) + Y_0^B(K)$$

Calculul intensităților $Y(K)$ se poate face folosind relația (1.32) unde $S(K)$ este puterea de stopare corespunzătoare materialului compus. Dacă formula chimică ce urmează a fi testată este A_aB_b , unde a și b sunt coeficienții stoichiometrici, atunci

$$S(K) = p_a S_a(K) + p_b S_b(K)$$

unde p_a și p_b sunt proporțiile în masă ale elementelor A și respectiv B .

$$p_a = \frac{aM_a}{aM_a + M_b}, \quad p_b = \frac{bM_b}{aM_a + bM_b} \quad (1.36)$$

cu M_i masa atomică a compusului i din amestec.

Având spectrul experimental măsurat, se variază coeficienții stoichiometrici până când spectrul teoretic trece cel mai bine prin punctele experimentale.

cu urme de Fe

Figura (1.7) prezintă spectrul particulelor de ${}^7\text{Li}$, cu energia de 4.7 MeV, retroîmprăștiati de o probă de cuarț (SiO_2). El apare ca o superpoziție a spectrelor corespunzătoare retroîmprăștierii pe O și Si. Se poate vedea că proba conține și urme de Fe care însă nu afectează procedura de analiză.

În proiectarea acestei măsurători, se au în vedere următoarele recomandări de ordin principial și practic în alegerea energiei K_0 și a tipului de proiectil

(a) coeficienții cinematici k trebuie să fie cât mai diferiți pentru cele două elemente A și B prezente în probă.

(b) corecțiile la formula Rutherford trebuie să fie cât mai mici (vezi relația (1.18)) Dacă K_0 este energia proiectilului și ΔK este

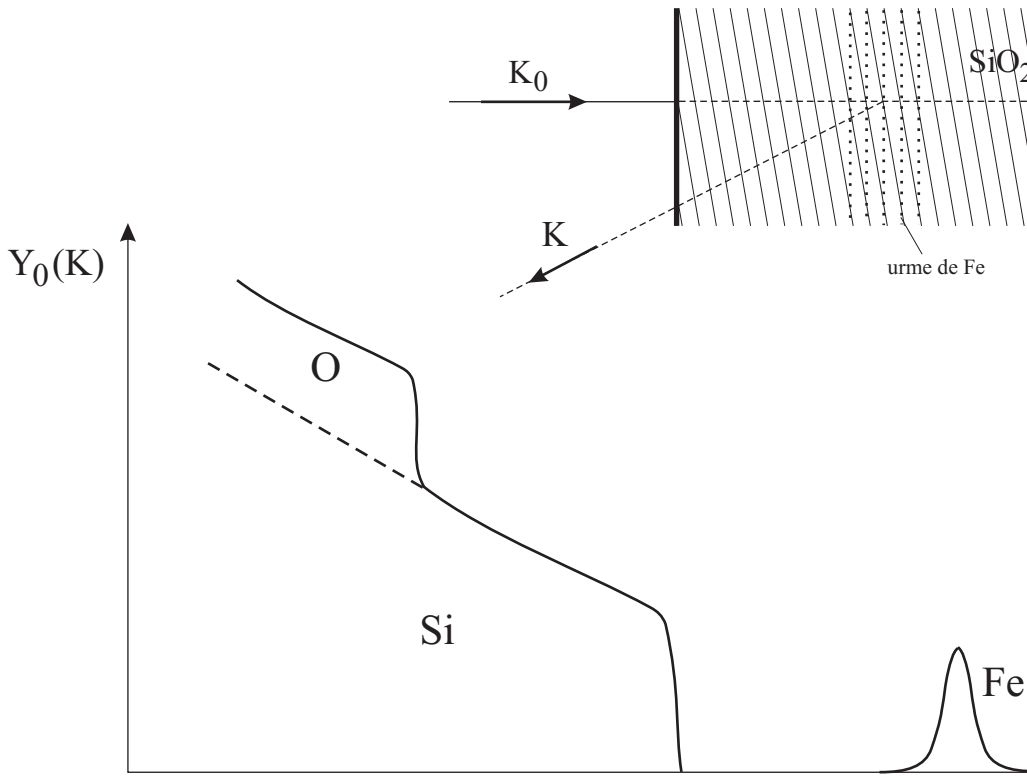


Figure 1.7: Retroîmprăștierea particulelor α pe o probă de cuarț cu urme de Fe

se traduce simbolic prin

$$K_0|k_A - k_B| \gg \Delta K$$

Atunci când diferențele între masele atomice ale celor doi compuși sunt mici, este indicat a se folosi proiectile mai grele (e.g. ^{14}N , ^{19}F , ^{24}Mg ,...) deoarece rezoluția în masă este mai bună.

În multe aplicații de interes tehnologic, compusul de studiat este un strat gros depus pe un substrat (SiO_2 , Si_3N_4 , SiC , Si , SnCl_2 , sticla, SnO_2 ,...) și de interes pentru aplicarea tehnicii RBS este faptul că se poate studia cinetica chimică, sau stabilitatea stratului sub acțiunea unor factori externi de natură mecanică și termică. Fiind o tehnică nedistructivă, RBS permite măsurarea *aceleiași* probe la intervale de timp diferit.

Metoda poate fi generalizată pentru compuși chimici mult mai complicați, estimarea puterii de stopare făcându-se prin aproximații succesive, iar procedura de deconvoluție a spectrului compus în spectre individuale făcându-se prin metode numerice pe computer.

1.4.2 Studiul straturilor subțiri

Atunci când un strat subțire de grosime d ($d < x_{max}$ - vezi relația (1.35)) este bombardat cu ioni de energie K_0 , în spectrul $Y(K)$ apare o tăiere la energii mici. Energia de tăiere K^i este definită prin relația

$$d = \int_{K_1} K_0 \frac{d\eta}{S(\eta)} \quad \text{si} \quad \xi_s = \int_{K^i}^{K_1} \frac{d\eta}{S(\eta)} \quad (1.37)$$

K_1 și K^i sunt obținute din (1.37) prin integrarea curbei $S^{-1}(K)$.

Analiza cantitativă a straturilor subțiri omogene se face prin comparația spectrelor măsurate cu cele calculate. Fenomenele de difuzie la interfața între strat și suport apar ca distorsionări ale părții de energie joasă din spectrul particulelor retroâmprăștiate.

Grosimea stratului este data de relația

$$d = x(K^i) \quad \text{g/cm}^2$$

K^i fiind măsurată din spectrul retroîmprăștiat.

În cazul în care grosimea stratului de interes este suficient de mică, astfel încât puterea de stopare a particulelor incidente și retroîmprăștiate să poată fi considerate constante, se pot deduce relații aproximative foarte ușor de utilizat. Astfel, Ziegler și Chu [27] au definit factorul de adâncime pentru RBS, $B(\rho)$ legat de densitatea superficială ρ (atomi/cm²) a stratului și de diferența de energie între particulele incidente și cele retroîmprăștiate $\Delta\epsilon$.

$$\rho = \Delta\epsilon B(\rho) \text{ cu } \Delta\epsilon = kK_0 - K^i \quad (1.38)$$

Dacă stratul subțire produce o degradare în energie $\Delta\epsilon$ comparabilă cu rezoluția detectorului, în referința [10] se deduce următoarea aproximație pentru grosimea d a stratului

$$d = \frac{I_{sc}}{I_0} \frac{A}{\aleph \sigma \delta\Omega} \quad (1.39)$$

unde:

σ = secțiunea eficace Rutherford

I_{sc} = intensitatea fluxului de particule împrăștiate în unghiul solid $\delta\Omega$ (al detectorului)

I_0 = intensitatea fluxului de particule incidente

A = masa atomică a atomilor stratului subțire

\aleph = numărul lui Avogadro.

1.4.3 Măsurarea profilului de concentrație în adâncime

Atunci când densitatea probei în vecinătatea suprafeței ρ_A variază cu adâncimea x , funcția $\rho_A(x)$ poartă numele de *profil în adâncime*. În multe situații, această funcție poate fi determinată prin RBS, această tehnică având avantajul unei sensibilități și precizii ridicate, fiind în același timp nedistructivă.

Rezoluția în adâncime este limitată de împrăștierea în energie, inerentă oricărui proces de interacție a radiației cu substanța. Într-un caz tipic de studiu al unei probe de Si prin retroîmprăștierea particulelor α cu energia de 2 MeV, rezoluția în poziție este de

adâncimi de 1 μm . Această tehnică este convenabilă pentru măsurarea profilelor de adâncime a structurilor de straturi subțiri suprapuse și în determinarea concentrației unor impurități grele într-un substrat cu masa mult mai mică. Principala aplicație constă în determinarea distribuției de parcurșuri a ionilor implantați (As, Zn, Se) în Si și în dielectrici.

În Figura 1.7 este exemplificat modul în care apar urmele de Fe dintr-o probă de cuarț în spectrul particulelor retroîmprăștiate. Se poate vedea că picul provenit de la Fe este complet separat de componentele specifice compusului dominant - SiO_2 . Deoarece Fe se află în concentrații foarte mici, puterea de stopare în SiO_2 nu este alterată și intensitatea fasciculului împrăștiat pe impuritățile de Fe este dată de integrarea ecuației (1.33)

$$Y_0(K) = \int \rho_A(x) \frac{I_0 \sigma(\psi, K_1) \delta\Omega}{S(K) \left[G + D \frac{kS(K_1)}{S(kK_1)} \right]} F(K_1 - K) dK_1 \quad (1.40)$$

Procedura tipică pentru extragerea densității $\rho_A(x)$ din spectrul observat $I_0(K)$ este aceea de deconvolutare. În acest proces, se integrează ecuația (1.40), utilizând aproximații succesive pentru $\rho_A(x)$, pornind de la o funcție de probă care este îmbunătățită la fiecare pas în urma unui test χ^2 [10].

1.4.4 Studiul efectului de canalizare în monocristale

Fenomenul de canalizare a ionilor la interacția cu substanțele cristaline a fost prezentat în Capitolul 5 și este reprezentat schematic în Figura ???. Energia pierdută de particulele încărcate, cu energii de ordinul MeV/nucleon, atunci când străbat corpurile solide, este determinată, în principal, de ciocnirile cu electronii atomici, în timp ce forma traiectoriei este determinată de interacția cu câmpul Coulomb ecranat al nucleelor. Evident, probabilitatea ca ionul să fie deviat la unghiuri mari crește pe măsură ce procesul de interacție are loc mai aproape de nucleu (parametrul de impact mai mic, Figura ??). În cazul interacției unui ion cu un mediu amorf, parametrii de impact ai ciocnirilor succesive sunt distribuiți complet întâmplător și procesul de stopare este independent de direcția traiectoriei. În mediile cristaline însă, atomii

finite între planele atomice, se mișcă într-un mediu în care densitatea electronică efectivă este mult mai mică decât media pe tot corpul solid, astfel încât suferă pierderi de energie anomal de mici. Atunci când direcția ionului incident face un unghi mic ψ cu un plan atomic, traiectoria sa este guvernată de deflecții succesive la unghiuri mici, care tind să confineze traiectoria ionului în regiunea dintre planele cristaline. În afara pierderii de energie mult mai mici a particulelor canalizate, se observă și o lărgire mult mai redusă a picurilor corespunzătoare din spectrul energetic. Raportul dintre intensitatea particulelor canalizate și a celor transmise întâmplător scade rapid când proba este rotită cu un unghi mic în afara direcției de canalizare (direcție paralelă cu planele cristaline), fiind definit în acest sens un unghi critic ψ_{cr} .

Fenomenul de canalizare poate fi exploatat în analiza elementală prin metoda RBS. Pentru aceasta este nevoie de un fascicul incident foarte bine colimat care bombardează o rețea monocristalină. Prin așezarea probei astfel încât fasciculul incident să fie canalizat, sunt puternic defavorizate atât interacțiile Coulomb care determină împrăștierea la unghiuri ridicate, cât și interacțiile nucleare. În schimb, dacă rețeaua conține impurități care *nu sunt situate în nodurile rețelei*, împrăștierea pe ele nu va fi afectată de efectul de canalizare, astfel încât în spectrul RBS ele se vor evidenția prin structuri dispuse pe un fond mult mai redus, în comparație cu retroîmprăștierea pe un material amorf sau cristalin așezat pe o direcție care nu favorizează canalizarea.

Un exemplu tipic este prezentat schematic în Figura 1.8. În partea superioară este desenat spectrul ionilor ^4He cu energia de 1 MeV retroîmprăștiați pe o probă de Si cristalin care *nu este orientată* pe direcția de canalizare. În partea inferioară a figurii este arătat același spectru, dar cu proba *orientată pe direcția de canalizare*. Se poate vedea clar cum, în cel de al doilea caz, sensibilitatea de detecție a impurităților de carbon și oxigen în suprafața (cele două picuri) este mult mai ridicată, amplitudinea retroîmprăștierei pe Si fiind redusă cu un factor de 25.

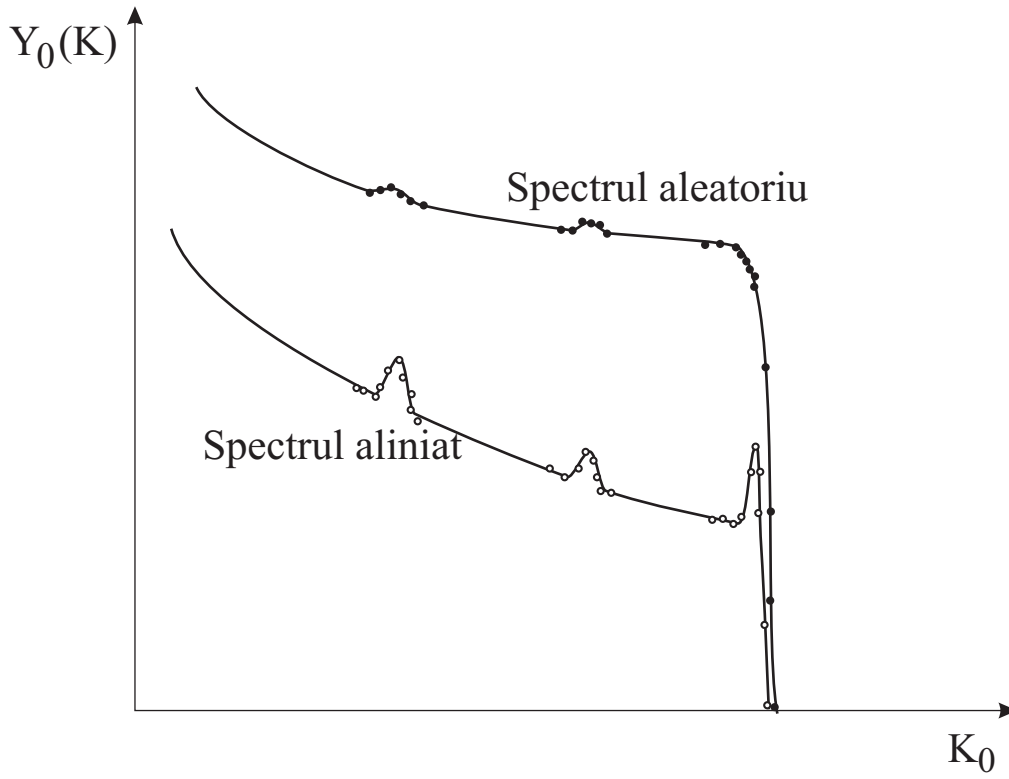


Figure 1.8: Reducerea fondului în RBS prin efectul de canalizare

implantarea ionilor cu energii mici (mai mici de 100 keV) în monocristale de Si (impurificare controlată). Locul în care s-au oprit acești ion de impurități în cristale se determină și prin metoda RBS.

Bibliography

- [1] I.M. Popescu, *Fizică, vol. I (1982), vol. II (1983)*, Editura Didactică și Pedagogică - București
- [2] A.H. Wapstra, G. Audi and R. Hoekstra, *Atomic and Nuclear Data Tables 39 (1988)* 1988
- [3] K. Heyde, *Basic Ideas and Concepts in Nuclear Physics*, Institute of Physics Publishing, London (1994)
- [4] W. Greiner, J.A. Maruhn, *Nuclear Models*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1996
- [5] G. Vlăducă, *Elemente de Fizică Nucleară*, partea I (1988), partea a II-a (1990), Tipografia Universității București
- [6] J. Kantele, *Handbook of Nuclear Spectrometry*, Academic Press Limited 1995
- [7] E. Segree, *Nuclei and Particles*, W.A. Benjamin, Inc., Reading, Massachusetts 1977
- [8] C.M. Lederer, V.S. Shirley (eds), *Table of Isotopes*, John Wiley & Sons, New York 1987
- [9] A. Messiah, *Mecanică Cuantică*, Editura Științifică, București 1974
- [10] G. Deconninck, *Introduction to Radioanalytical Physics*, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam 1978
- [11] A. Berinde, G. Vlăducă, *Reacții Nucleare Neutronice în Reactor*, Editura Tehnică, București 1978

- ciples*, Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.259-281 (1994)
- [13] S. Râpeanu, I. Pădureanu, I. Cristian, V. Cuculeanu, Gh. Rotărescu, M. Avrigeanu, *Tehnici și Măsuări la Reactorii Nucleari*, Editura Academiei, București 1983
- [14] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons Inc., New York 1989
- [15] R.D. Evans, *The Atomic Nucleus*, Krieger, New York 1982
- [16] P. Marmier, E. Sheldon, *Physics of Nuclei and Particles*, Academic Press Inc. New York and London, 1971
- [17] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics, 2nd Ed.*, John Wiley & Sons, New York 1975
- [18] W.R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg 1987, 1994
- [19] N. Tsoulfanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, Taylor & Francis, 1984
- [20] H.A. Bethe, J. Ashkin, *Passage of Radiations through Matter*, in *Experimental Nuclear Physics*, Vol.1, ed. by E.Segree, John Wiley & Sons, New York, N.Y. 1953
- [21] S.P. Ahlen, Rev. Mod. Phys. 52, 121 (1980)
- [22] F. Fano, *Penetration of Protons, Alpha Particles and Mesons*, Annual Review of Nuclear Science, v.13, p.1-66 (1963)
- [23] E.M. Abramovitz, I. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover Publ. Inc. New York (1965)
- [24] L.C. Northcliffe and R.F. Schiling, Nuclear Data Tables A7,233(1970)

- tons and mesons: *Tabulations of Vavilov Distribution*", in National Academy of Sciences Publication 1133, Nuclear Science Series Report No.39 (1964)
- [26] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, 3rd ed., Oxford Univ. Press (Clarendon), London and New York 1954
- [27] J.F. Ziegler and W.K. Chu, "*Stopping Cross Sections and Backscattering Factors for ^4He Ions in Matter*", Atomic Data and Nuclear Data Tables v.13, p.463 (1974)
- [28] P.A.M. Dirac, Proc. Royal Soc. v.126,p.361 (1930)
- [29] A.T. Steward, L.O. Roelling, *Positron Annihilation*, Academic Press, New York (1967)
- [30] P. Hantojarvi, A. Vehanen, *Applications of positron annihilation*, AIEA Conference (1978)
- [31] G.L. Brownell, C.A. Burnham, in *Instrumentation in Nuclear Medicine*, Vol.2, p.135, Academic Press, New York (1974)
- [32] M. Alonso, E. Finn, *Physics*, Addison - Wesley Publishing Company, 1992
- [33] A. Septier (ed.) *Focusing of Charged Particles*, Academic Press, New York 1967
- [34] E. Rodean, *Aparate și metode de măsură, analiză și control cu radiații*, Editura Academiei, București, 1986
- [35] E. Ligeon, M. Bruel, A.Bonetemps, "*Analyse du Phosphore dans le Silicium par Reactions Nucleaires*", Journal of Radioanalytical Chemistry v.16,p.537 (1973)
- [36] J. H. Fremlin, *Applications of Nuclear Physics*, The English Universities Press Limited, London (1964)
- [37] P. Theodorsson, *Measurement of Weak radioactivity*, World Scientific Co.,1996

John Wiley & Sons, New York, 1990

- [39] R. Muller, *Science*, v.196, p.489 (1977)
- [40] M. Ivascu et al. *Accelerator Mass Spectrometry - Applications*
Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.283 (1994)
- [41] R.P. Gardner, R.L. Ely, *Radioisotope Measurement - Applications in Engineering*, Reinhold Publishing Co. New York
1967