

УДК: 537.534.9 :621.785.5

Кидибаев Мустафа Мусаевич
член-корреспондент НАН КР,
Институт физики им. академика Ж.Жеенбаева
Kidibaev Mustafa Musaevich
corresponding member of the NAS KR
Institute of physics named after academician Zh.Zheenbaev

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОСТАВА И МЕСТОПОЛОЖЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ МЕТОДОМ РЕЗЕРФОРДОВСКОГО ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ

Аннотация. Исследованы внутренняя структура кристаллов ядерно-физическим методом резерфордовского обратного рассеяния (РОР), позволяющего определять состав-тип, распределение концентрации атомов с глубиной.

Ключевые слова: *излучения, структура, атом, энергия, ион, кристалл, дефект, температура, концентрация.*

РЕЗЕРФОРДДУН КАЙРА ЧАЧЫРОО ЫКМАСЫ МЕНЕН КОШУЛМАНЫН ЖАЙГАШУУСУН ЖАНА КУРАМЫН АНЫКТОО

Аннотация. Резерфорддун ядро-физикалык кайра чачыроо ыкмасы менен кристаллдардын ички түзүлүшүн жана тибин, терең жайгашкан атомдордун концентрацияларынын курамы изилденди.

Негизги сөздөр: *нурлануу, түзүлүш, атом, энергия, ион, кристалл, дефект, температура, концентрация.*

DETERMINATION OF THE COMPOSITION AND LOCATION OF IMPURITIES BY THE METHOD OF REZERFORD BACKSCATTERING

Abstract. The processes that occur during the interaction of corpuscular radiation (electron beams and high-energy ions) with lithium and sodium fluoride crystals are considered.

Key words: *radiation, structure, atom, energy, ion, crystal, defect, temperature, concentration.*

Одним из методов исследования внутренней структуры кристаллов является ядерно-физический метод резерфордовского обратного рассеяния (РОР), позволяющий определять состав (тип, концентрацию, распределение концентрации атомов с глубиной) и структуру (вхождение атомов в регулярные позиции кристаллической решетки) вещества [1].

Преимуществом этого метода по сравнению с другими является его простота, точность определения структуры образца и то, что метод РОР является неразрушающим.

Классический анализ спектров РОР строится на предположении однократного упругого рассеяния падающих ионов атомами мишени (рис. 1).

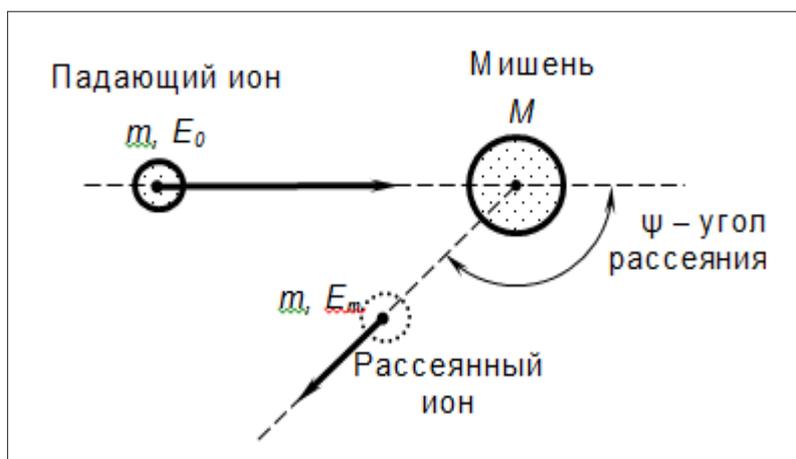


Рис. 1. Элементарный акт однократного упругого обратного рассеяния

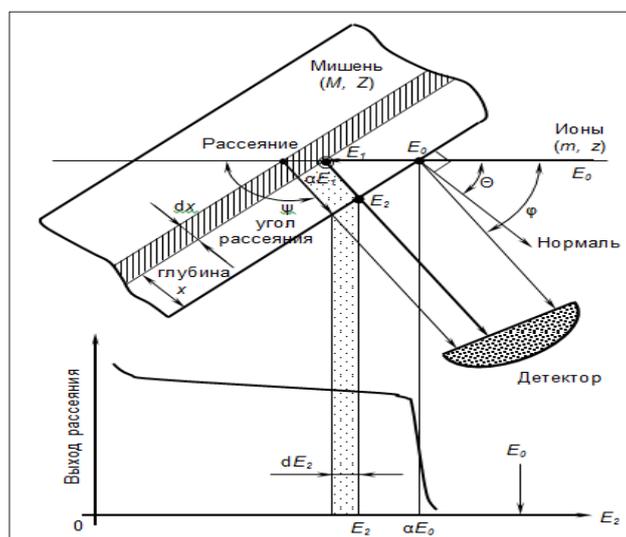


Рис. 2. Схема формирования спектра резерфордского обратного рассеяния

Ионы, соударяясь с атомами вещества, передают им часть своей энергии [2]. Долю энергии, оставшуюся у иона после рассеяния на угол ψ , можно определить, используя законы сохранения энергии и импульса.

Проходя через вещество, бомбардирующие заряженные частицы теряют свою энергию на ионизацию и возбуждение среды, а это значит, что частицы, упруго рассеянные на разной глубине, будут иметь разную энергию.

Таким образом, энергетический спектр зарегистрированных ионов имеет непрерывный характер для любых тел,

толщина которых превышает пробег используемых частиц (рис. 2).

2.2.3. Анализ спектров резерфордского обратного рассеяния (РОР)

Для регистрации обратно рассеянных ионов и продуктов ядерных реакций (на ядрах F19) использовали ППД детектор с фильтром для коррекции спектров.

Спектрограмма экспериментальных результатов, включающая эффекты резерфордского обратного рассеяния и эффекты, связанные с регистрацией продуктов ядерных реакций, приведена на рис. 3 и 4.

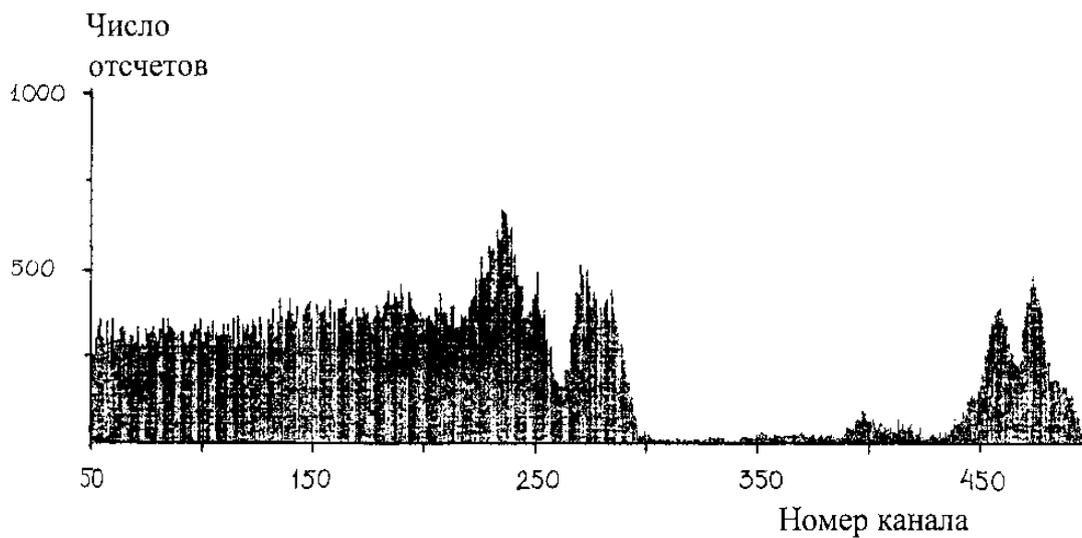


Рис. 3. Спектры резерфордского обратного рассеяния ионов гелия от кристалла NaF-U

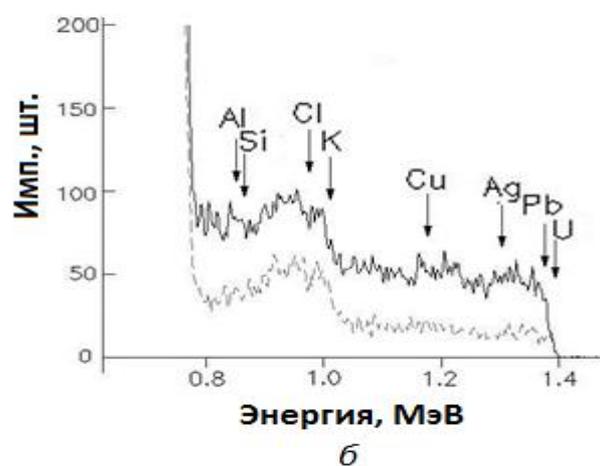
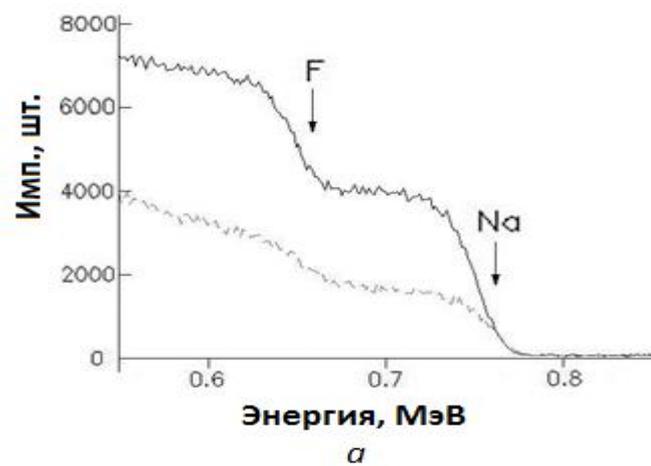


Рис.4. Спектры обратного рассеяния для кристалла NaF-U при произвольной ориентации образца (—) и канализовании (- - -). Рис.а и рис.б отличаются масштабом

Пики в высокоэнергетической части спектра (рис.3) обусловлены протонами, возникшими вследствие реакции $F^{19}(\alpha, p)Ne^{22}$. Зафиксированы эффекты рассеяния, связанные с наличием в образцах тяжелой примеси урана на уровне порядка $\sim 10^{-3}$ мол.%. В ходе эксперимента наблюдалось снижение выхода рассеянных частиц вследствие каналирования только на атомах Na, F и U. Для атомов других примесей каналирование не наблюдалось из-за их весьма малой концентрации (рис.4).

В работе [3] показано, что энергетический спектр для относительно короткопробежных многозарядных ионов (с энергией несколько МэВ), рассеянных "толстой" мишенью, имеет вид

$$F(E_2) = N_0 d\Omega n \sigma(E_1, \psi) \frac{1}{S(E_2)} \frac{S(PE_1)}{KS(PE_1) + PS(E_1)}, \quad (1)$$

где E_2 - энергия частиц на выходе из мишени; N_0 - число частиц, упавших на мишень; $d\Omega$ - телесный угол детектора; n - концентрация рассеивающих атомов; $\sigma(E_1, \psi)$ - дифференциальное сечение рассеяния; E_1 - энергия иона непосредственно перед рассеянием на угол ψ ; $S(E)$ - тормозная способность мишени; $k = \cos\theta / \cos\varphi$ - геометрический фактор; θ - угол между направлением падающего пучка и нормалью к поверхности мишени; φ - угол между нормалью и направлением на детектор;

$$\alpha = \left(\frac{m \cdot \cos(\psi)}{m + M} + \sqrt{\frac{m^2 \cdot \cos^2(\psi)}{(m + M)^2} + \frac{M - m}{M + m}} \right)^2 < 1; \quad (2)$$

P - коэффициент отдачи – доля энергии остающаяся у частицы, после упругого рассеяния на угол ψ ; m и M - массы иона и рассеивающего атома.

Связь между энергиями E_2 и E_1 определяется интегральным уравнением

$$\int_{E_0}^{E_1} \left[\frac{K}{S(E)} + \frac{P}{S(PE)} \right] dE = \int_{PE_0}^{E_2} \frac{dE}{S(E)}, \quad (3)$$

где E_0 - начальная энергия ионов.

В случае многокомпонентной мишени энергетический спектр рассеянных ионов представляет собой суперпозицию спектров частиц, рассеянных атомами отдельных компонентов. Вследствие различия значений коэффициентов отдачи P_j для атомов различных компонентов мишени спектр содержит ряд обрывов или "ступенек", соответствующих максимальным значениям энергии $E_{2j}=P_jE_0$ ионов, рассеянных атомами отдельных компонентов. В известных геометрических условиях эксперимента массу рассеивающего атома можно определить по величинам E_{2j}^{\max} . Если в общем энергетическом спектре выделить один из парциальных спектров $F_j(E_2)$, соответствующий рассеянию ионов на угол θ от атомов j -го компонента мишени, то при известной тормозной способности вещества мишени к ионам данного сорта можно определить концентрацию выделенного компонента (например, примеси) и ее зависимость от глубины. В последнем случае предполагается, что концентрация остальных компонентов постоянна, а концентрация примесных атомов настолько мала, что вкладом этих атомов в величину потерь энергии ионов можно пренебречь. В случае, когда масса атомов примеси больше масс атомов остальных компонентов мишени, парциальный спектр от примесных атомов присутствует в общем спектре в частично выделенном виде. В этом случае чувствительность методики максимальна и значительно упрощаются расчеты.

Особенностью системы NaF-U является очень сильная разница в массах примесных атомов и атомов, составляющих матрицу. Это обстоятельство, с одной стороны, увеличивает чувствительность метода, с другой, не позволяет использовать энергетические спектры ионов, рассеянных на матрице, в качестве внутреннего эталона для определения концентрации примесных атомов. Дополнительным мешающим фактором при проведении измерений является сильная люминесценция кристаллов при облучении многозарядными ионами, свет которой ухудшает энергетическое разрешение детектора.

На рис. 5 приведен один из спектров, измеренный на угле рассеяния $\theta=135^\circ$. Энергетический спектр содержит лишь парциальный спектр ионов от атомов урана. Вследствие малости коэффициента отдачи даже для тяжелого элемента матрицы ($P_{\text{Na}}=0,086$) частицы, рассеянные матрицей, полностью поглощаются светозащитной пленкой (алюминизированный лавсан толщиной 2 мкм) и вклада в спектр не дают. Это позволяет использовать повышенные токи частиц без опасения перегрузок спектрометрического тракта и сократить время измерения. В качестве эталонной мишени для определения концентрации примесных атомов использован никель - материал, для которого имеются достаточно надежные экспериментальные данные тормозной способности к ионам азота. Тормозные способности NaF рассчитаны по программе TRIM, использующей правило аддитивности Брэгга. Кривая зависимости тормозной способности NaF от энергии ионов азота приведена на рис. 6.

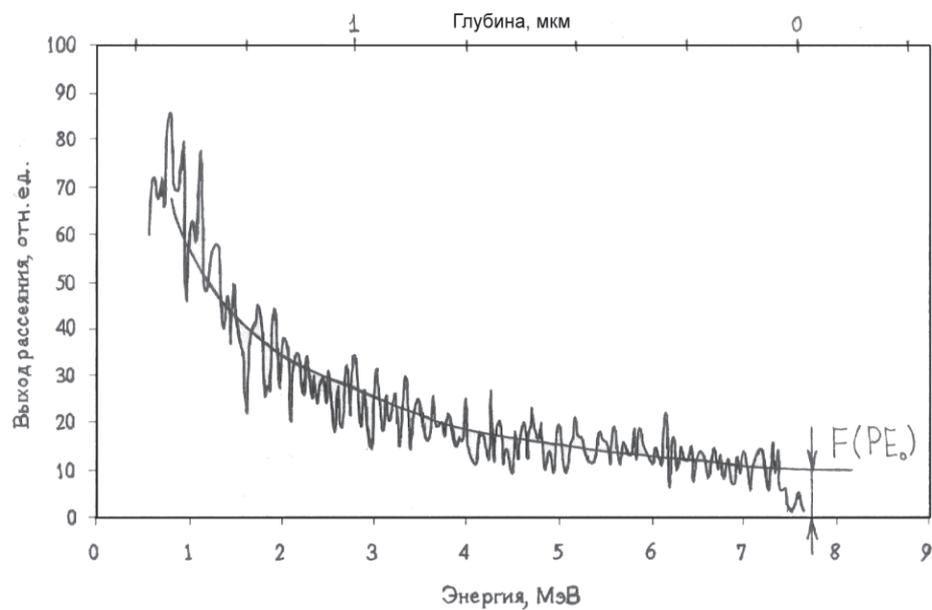


Рис. 5. Спектр обратного рассеяния ионов азота N^{3+} с энергией 10 МэВ на кристалле $NaF(U)$

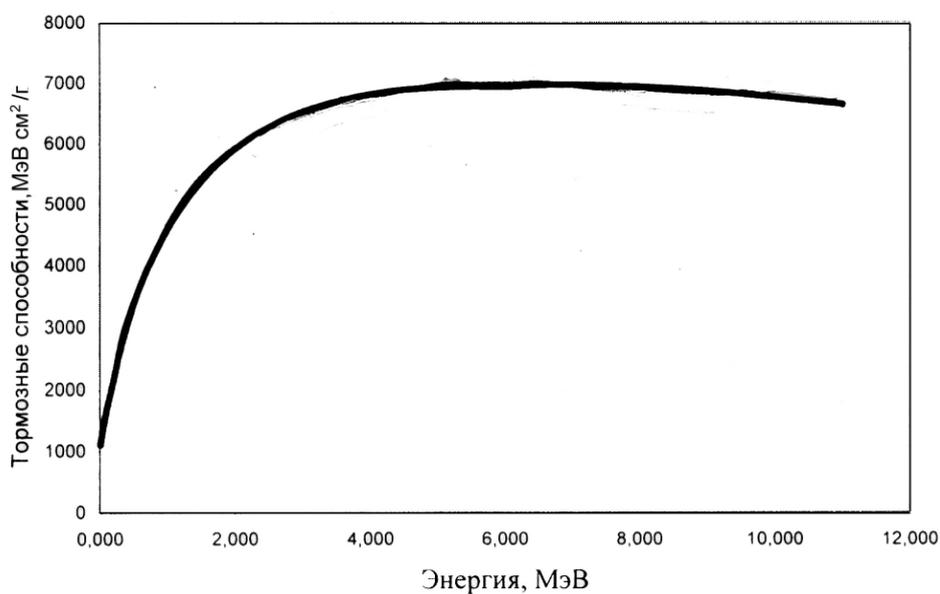


Рис. 6. Зависимость тормозной способности ионов азота N^{3+} от энергии в кристалле NaF

Концентрация примеси в поверхностных слоях мишени (случай $E_2=PE_0$) относительно эталонной мишени может быть определена в этом случае по формуле:

$$\frac{n_u}{n_{Ni}} = \frac{F_U(P_U E_0) \sigma_{Ni}(E_0) P_U S_{NaF}(E_0) + K S_{NaF}(P_U E_0)}{F_{Ni}(P_{Ni} E_0) \sigma_U(E_0) P_{Ni} S_{Ni}(E_0) + K S_{Ni}(P_{Ni} E_0)} . \quad (4)$$

По нашим измерениям концентрация урана в приповерхностных слоях NaF-U составляет $n_U=(0.06 \pm 0.009)$ ат%. Увеличение выхода рассеяния с глубиной является следствием не увеличения концентрации, а увеличения сечения рассеяния с уменьшением энергии ионов.

Сплошная кривая на рис. 5 - рассчитанная форма спектра от равномерно распределенной примеси урана в эталонном кристалле Al_2O_3 . Кристалл Al_2O_3 был выбран в качестве эталонного, поскольку тормозные способности кристаллов Al_2O_3 и NaF можно считать близкими, так как усредненный атомный номер Z_{cp} у них одинаков. Из сравнения расчетных и экспериментальных данных можно сделать вывод, что, по крайней мере, до глубины 1 мкм атомы урана равномерно распределены по объему кристалла.

Таким образом, результаты исследований показали, что уран входит в регулярную структуру кристалла NaF (почти 100 % атомов находятся в узлах кристаллической решётки), концентрация урана внутри кристалла порядка 0,01 % (доля урана, вошедшего в кристалл из шихты, – около 10 %); концентрация примеси урана в кристалле на порядок меньше, чем в шихте. Этот результат подтвердили исследования, описанные в [4], где показано, что количество урана, вошедшего из шихты в кристаллы NaF:0,1 мол.%U и NaF:0,01 мол.%U при их выращивании, составило соответственно 0,012 и 0,005 мол.%. Таким образом, увеличение количества урана в шихте в 10 раз отражается лишь 2,5-кратным увеличением содержания урана в выращенных кристаллах, что говорит о насыщении матрицы NaF атомами U.

Концентрация активаторных добавок Cu, Ce, Zn и Sc в кристаллах NaF:0,3 мол.%Cu, NaF:0,1 мол.%Ce, NaF:0,1 мол.%Zn и NaF:0,5 мол.%Sc не превышала 0,005 мол.%, т. е. в десятки раз меньше, чем было заложено в шихту. Эти сведения были проверены другими методами: рентгено-флуоресцентным анализом, методом атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой, подтвердившими указанную оценку концентрации примесей Cu, Ce, Zn и Sc.

Полученные данные о вхождении примесей в кристаллы при их выращивании согласуются со следующими представлениями. Известно, что удельная концентрация вакансий в кристалле экспоненциально возрастает с увеличением температуры и достигает при температуре плавления $T_{пл}$ значения порядка 10^{-3} – 10^{-4} мол.% [5,6]. Образование вакансий является следствием разрыва кристаллических связей между регулярными узлами кристаллической решетки. В том случае, если примесь входит в регулярные позиции решетки, она образует вместе с материнскими ионами сложный кластер. Этот кластер находится в узле решетки и не разрывает существующие связи, а лишь модифицирует их. В том случае, если ион примеси не может образовать подобный кластер, он нарушает близлежащие связи, а потому концентрация таких ионов не может превысить указанную выше величину 10^{-3} – 10^{-4} мол.%, поскольку такая концентрация соответствует расплавленному состоянию вещества кристалла, и такой кристалл не сможет сформироваться при выращивании из расплава.

Эти доводы подтверждаются анализом спектров РОР при каналировании ионов He^+ вдоль оси $\langle 100 \rangle$. Так, для кристаллов NaF:0,1 мол.%U и NaF:0,01 мол.%U было обнаружено уменьшение интенсивности выхода обратного рассеяния в позициях, соответствующих равномерно распределённой по глубине примеси урана, что подтверждает данные работы [7] о вхождении ионов урана в регулярные позиции кристаллической структуры NaF. Для прочих примесей каналирования не наблюдалось.

Литература

1. *Кидибаев М.М.* Радиационно-стимулированные процессы в кристаллах (Li,Na) F:U,Me. / - Каракол; Екатеринбург: ИГУ; УГТУ, 1999. 220 с.
2. *Шипатов Э.Т.* Обратное рассеяние быстрых ионов: Теория, эксперимент, практика. - Ростов: Ростовский унив, 1988. 160 с.
3. *Урманов А.Р.* Физические основы анализа твердого тела и модификации свойств полупроводников ионами повышенной энергии. // Дисс... доктора. техн. наук. - Екатеринбург. 1994. УГТУ-УПИ.
4. *Королева Т.С., Кидибаев М.М., Джолдошов Б.К., Pedrini Ch., Hautefeuille B., Lebbou K., Tillement O., Fourtigue J.-M., Шульгин Б.В., Черепанов А.Н., Соломонов В.И., Иванов М.Г.* Радиолюминесцентные свойства крупноразмерных, волоконных и наноразмерных кристаллов NaF-U. // ФТТ. 2005. Т. 47, вып. 8. С. 1417–1419.
5. *Кидибаев М.М., Королева Т.С., Джанарова С.А., Шульгин Б.В.* Исследование радиационной стойкости сцинтилляционных кристаллов. // Труды 4-ой Всероссийской научно-практической конференции «Новое в экологии и безопасности жизнедеятельности». – СПб, 1999. –С.103-104.
6. *Королева Т.С., Кидибаев М.М., Мусаев К.М.* Исследование влияния катионной примеси на оптические свойства необлученных кристаллов LiF-U. // Вестник Иссык-Кульского университета, № 1. - Каракол, Кыргызская Республика, 1999. – С. 16-20.
7. *Багаев В.Н., Куликаускас В.С., Черепанов А.Н., Шульгин Б.В., Кидибаев М.М.* Определение содержания и местоположения примесей урана и церия в кристаллах NaF. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2003. №8. С. 49–51.