

中国核学会核材料学会讨论会文集

# 核技术在材料科学中的应用

李恒德 主编

科学出版社

## 编 者 的 话

中国核学会核材料学术委员会于 1982 年 11 月在北京举行了核技术学术交流会议，会上主要介绍了核技术在材料科学方面的应用及其重要意义。为促进我国核科学的发展，现将该次会议的有关文章编辑成本论文集供广大读者参考。

本论文集包括十三篇文章，主要介绍背散射分析、离子注入、核反应分析、沟道效应、质子荧光分析、中子衍射、中子活化分析、中子非弹性散射、正电子湮没、穆斯堡尔效应、核磁共振等内容。

中国核学会核材料学术委员会

## 目 录

|                     |                 |       |
|---------------------|-----------------|-------|
| 背散射分析原理和技术·····     | 陶 琨             | (1)   |
| 带电粒子引起的瞬发核反应分析····· | 赵玉华             | (24)  |
| 沟道背散射技术·····        | 王豫生             | (69)  |
| 质子荧光分析原理·····       | 张济忠             | (95)  |
| 离子注入和材料的表面改性·····   | 李恒德             | (124) |
| 离子注入冶金学·····        | 汪泓宏             | (168) |
| 堆中子活化分析·····        | 孙用均             | (207) |
| 快中子活化分析·····        | 张士琛             | (239) |
| 中子衍射·····           | 杨继廉             | (271) |
| 热中子非弹性散射·····       | 李竹起             | (285) |
| 正电子湮没技术 ·····       | 郁伟中 曹必松 何元金 熊家炯 | (305) |
| 穆斯堡尔谱学·····         | 张秀芳 高乃飞 瞿振元     | (338) |
| 核磁共振技术·····         | 冯玉萍             | (369) |

# 背散射分析原理和技术

陶 琨

## 摘 要

离子束背散射法是一种对离子束进行分析的方法。其主要优点是能对材料表层的成分作纵向分析,并且无需材料的标准样品就能作定量分析。本文着重阐述离子束背散射法的基本原理和技术,对其使用范围和特点也作了简要介绍。

## 一、基本概念和设备要求

从离子源产生的离子,由加速器加速到一定的能量,再经过聚焦系统(一般是四级透镜)、磁分析系统(使离子束纯化和单能化)及准直系统之后,射向靶室中的靶——样品。在离子束的能量低于靶原子产生核反应阈能的条件下,入射离子和靶原子发生碰撞而被散射,这就是卢瑟福弹性散射过程。当入射能量和散射方向固定时,散射离子的能量与靶原子的质量有关,也与入射离子在靶表面下的深度有关,因此,在散射离子的能谱中含有上述信息。测得散射离子的能谱,即可对靶中所含元素作定性、定量和深度分析(纵向分布)。

由于离子在固体材料中的射程很小,所以背散射是一种表层分析方法,适用于分析约  $1\text{ }\mu\text{m}$  左右的表层范围。它的主要优点是可以作深度分析和在没有标准样品的情况下作定量分析。

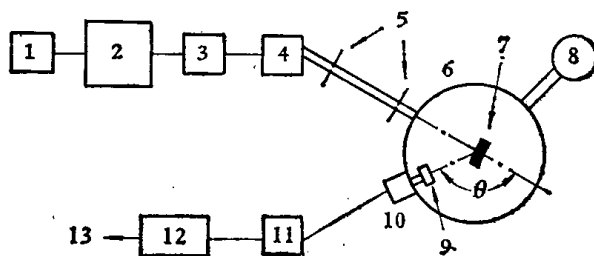


图1 背散射分析设备示意图

1. 离子源; 2. 加速器主体; 3. 聚焦系统; 4. 磁分析器; 5. 光栏; 6. 靶室; 7. 样品;  
8. 真空泵; 9. 探测器; 10. 前置放大器; 11. 主放大器; 12. 多道分析器; 13. 输出

散射离子能谱的测量可以采用面垒探测法、静电分析法或飞行时间法。其中以面垒探测法最简单,所以测量时一般用此种方法。面垒探测法的设备如图1所示。其中加速器可以是静电加速器或串列静电加速器。为保证较好的离子束流质量,必须经常调节离子源和更换部件。但由于离子源处在极高的电位上(对地而言),并与加速管密封在高压钢筒中,因此其调节、维修和更换部件都比较困难。

串列静电加速器是一种改进型的加速器。它的特点是将静电加速器的加速管分成两

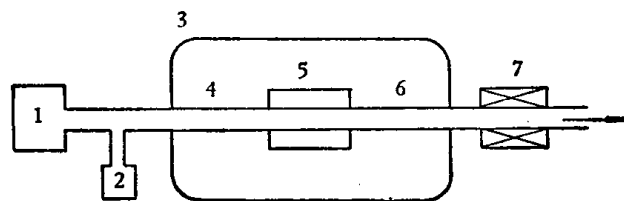


图2 串列静电加速器示意图

1. 离子源; 2. 铷加热室; 3. 高压钢筒,内充高压绝缘气体; 4. 前段加速管; 5. 高压端,由此处可向中心真空管道充微量气体; 6. 后段加速管; 7. 聚焦系统

段,如图2所示。对地的正高压(如 1000 kV)加在两段加速管中间的高压端上,而对地的离子源只有几 kV 的电压。离子源产生正离子,引出的离子束首先要穿过碱金属的蒸气,并且把得到的电子转荷成为负离子而进入前段加速管,在电场的作用下加速至加速器中心,当到达高压端时,已具有 1 MeV 的能量。在高压端的中心管道内,设置极薄的箔或充以极少量的  $O_2$  或  $N_2$ ,离子束与它们碰撞时丧失电子又转荷为正离子束。而后在后段加速管的电场作用下再次加速,则最终变为 2 MeV 的正离子束。因此串列静电加速器的离子源的电位很接近于地电位,易于调节和维修更换。另一方面,由于经过两次转荷,其束流强度较小,一般约 200 nA。但通常背散射分析的典型束流强度仅约 20 nA,所以串列静电加速器能满足此要求而又比较简便。

在第二次转荷时,各离子失去的电子数并不相等,所以可以得到不同电荷的离子,例如  $He^+$  和  $He^{++}$ 。双电荷离子在后一段加速时将增加 2 MeV 的能量而使其具有 3 MeV 的能量(对高压是 1000 kV 而言),因此可以用调节磁分析器的方法选用单电荷或双电荷离子束。

对背散射分析而言,一般用 1—3 MeV 的  $\alpha$  离子束做分析束,也可以用  $\sim 300$  keV 的质子束。如果能量过高则会发生核反应而不利于分析。

测量离子能量的面垒探测器是一种半导体探测器。它的基体一般是 N 型硅,在其表面镀上一层大约 200 Å 厚的金,使表面形成一薄层 P 型半导体。由此基体和 P 型半导体之间形成一个表面位垒,常称金硅面垒探测器。使用时在基体和金层间加一定的电压。当一个离子射入时就产生电子空穴对,电子空穴对在电场作用下的移动就形成一个电流脉冲。因为每产生一个电子空穴对所需的平均能量是一个常数,所以电流脉冲的大小就正比于入射离子的能量。也就是说,面垒探测器是具有能量分辨力的,如配合以多道脉冲高度分析器就可以同时测量接收到的散射离子的能谱。一般它对离子的探测效率达 100%。在室温下,对能量约为  $\sim 1$  MeV 的  $\alpha$  粒子,能量分辨率可达  $\sim 15$  keV (以半高宽 FWHM 计算),其脉冲上升时间一般小于 10 ns,寿命约数百小时。

探测器输出的脉冲经过前置放大器(电荷灵敏放大器)和主放大器,按线性规律放大并转换而成电压脉冲,然后输入多道脉冲高度分析器。脉冲高度分析器对每个脉冲的高度(正比于对应离子的能量)加以鉴别,按“道”数正比于脉冲高度的规律将逐个收到的脉冲累计于对应的“道”(实际上就是一个存储单元)中,并将各道的累计数同时显示于阴极射线管的荧光屏上。因此荧光屏上显示的是道数(正比于接收到的离子的能量)——每道的总计数这一关系曲线,即是探测器收到的离子的能谱。

这样一套测量系统可以同时记录散射离子的能谱,而性能好的多道脉冲高度分析器

还具有相当多的数据处理功能,因此可以大大加快工作速度。外接计算机还可以进行进一步的数据处理,也可以采用多道-计算机系统(计算机本身即可作为多道脉冲高度分析器使用)。只使用单道脉冲高度分析器也可以测量能谱,但需逐点测量,因此效率低2—3个数量级,同时还会受到束流强度波动等因素的影响。

## 二、基本物理概念

### 1. 运动因子 $K$

当一定能量(对应于一定速度)的离子射到靶上时,入射离子和靶原子发生弹性碰撞,入射离子的部分能量传给了被撞的靶原子,它本身则被散射,散射的方向随一些参量而变化,如图3(质心坐标系)所示。设 $Z_1, Z_2$ 分别为入射离子及靶原子的原子序数, $m, M$ 分别为它们的原子质量, $e$ 为单位电子电荷量, $V_0$ 为入射离子的速度, $b$ 为碰撞参量或瞄准距离(即入射轨迹延伸线与靶原子核的距离), $\chi$ 为散射角。由分析力学可以推导出

$$\operatorname{ctg} \frac{\chi}{2} = \frac{m V_0^2}{Z_1 Z_2 e^2} b \quad (1)$$

此式实际上不是一个人射离子而是一束离子,且 $b$ 值有大有小。由上式可知 $\chi$ 最大可达 $180^\circ$ ,即存在着大角度的被反弹回来的离子,如图4所示。RBS分析中用的正是这种离子,所以叫“背”散射。

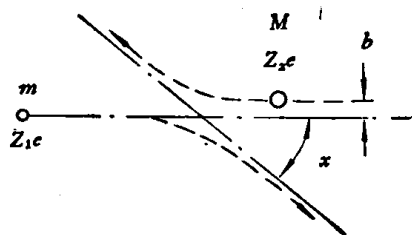


图3 弹性散射(质心坐标系)

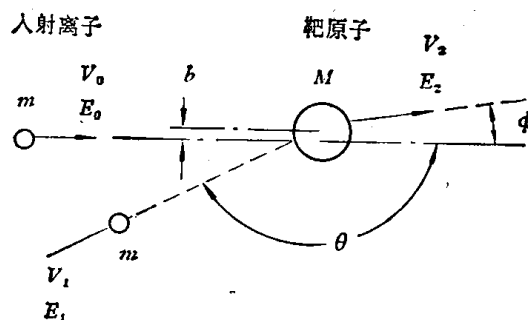


图4 大角度弹性散射示意图(实验室坐标系)

图4是实验室坐标系的背散射示意图。入射离子和靶原子碰撞前的速度分别为 $V_0$ 和0,碰撞后为 $V_1$ 和 $V_2$ ,散射角为 $\theta$ 。可以证明,在 $m \ll M$ 的条件下, $\theta \simeq \chi$ ,即实际上存在着被反向散射的离子。

按照能量守恒及动量守恒定律,可以得到下述三个关系式

$$\frac{1}{2} m V_0^2 = \frac{1}{2} m V_1^2 + \frac{1}{2} M V_2^2 \quad (2)$$

$$m V_0 = m V_1 \cos \theta + M V_2 \cos \phi \quad (3)$$

$$0 = m V_1 \sin \theta - M V_2 \sin \phi \quad (4)$$

在 $m \leq M$ 的条件下,可解得

$$\frac{V_1}{V_0} = \frac{m \cos \theta + (M^2 - m^2 \sin^2 \theta)^{\frac{1}{2}}}{m + M} \quad (5)$$

假定入射离子碰撞后及碰撞前的能量之比为运动因子 $K$ ,则有

$$K \equiv \frac{E_1}{E_0} = \frac{V_1^2}{V_0^2} = \left[ \frac{m \cos \theta + (M^2 - m^2 \sin^2 \theta)^{\frac{1}{2}}}{m + M} \right]^2 \quad (6)$$

式中  $E_0$ 、 $m$  和  $\theta$  均可由实验条件确定而为已知量, 则  $E_1$  (或  $K$ ) 与  $M$  成单值函数关系,  $M$  大则  $E_1$  大 (即  $K$  值大)。因此测得  $E_1$  (或  $K$ ) 即可确定靶原子的质量数  $M$ , 这就是背散射定性分析的基本原理。

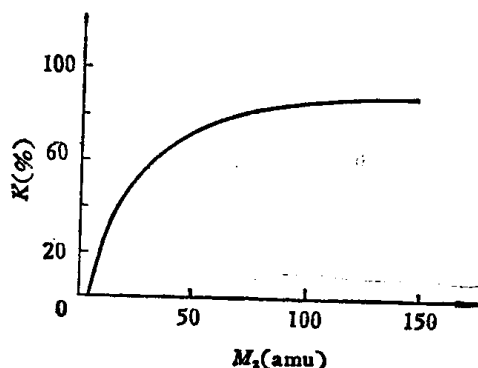


图5  $K$ - $M$  关系图 ( $\alpha$  粒子束)

由(6)式可得  $K$  与  $M$  的关系, 如图5所示。由图可见,  $dK/dM$  (及  $dE_1/dM$ ) 随  $M$  的增大而减小。同时, 由于探测器的能量分辨率是有限的, 因此这个方法测定轻元素区的质量分辨率尚可, 而测定重元素区的质量分辨率则较低。

提高质量分辨率的方法有:

(1) 提高入射能量  $E_0$ 。如前所述,  $E_0$  过高会使入射离子和靶原子发生核反应, 故不能过高。当使用  $\alpha$  粒子束时, 一般  $E_0$  不宜大于 3 MeV。

(2) 不同  $M$  时的  $K$ - $\theta$  关系如图6所示。可见增大  $\theta$  可以使  $dE_1/dM$  增大, 因此在实验安排上要使  $\theta$  尽量接近  $180^\circ$ 。

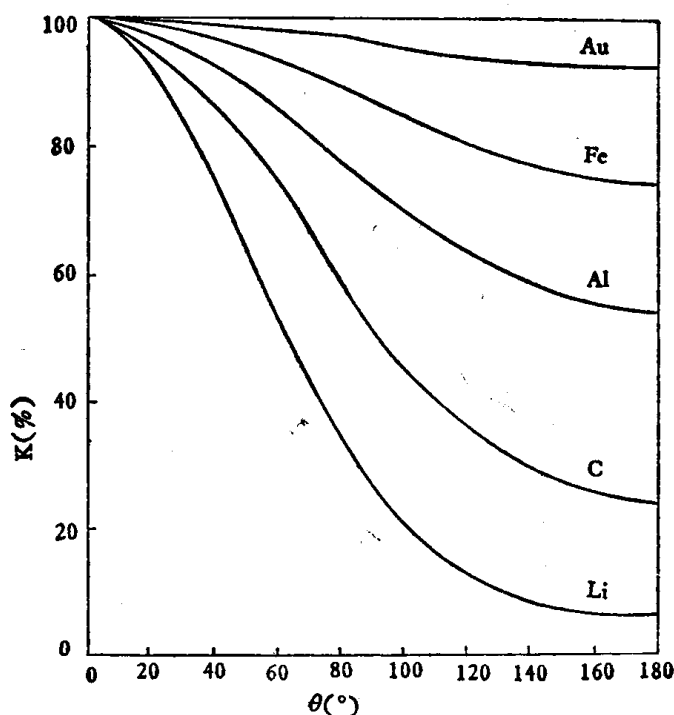


图6  $K$ - $\theta$  关系图<sup>[13]</sup> ( $\alpha$  粒子束)

(3) 增大  $m$ , 就是使用更重些的入射离子。可以证明在常用条件下, 当  $M/m = 3.73$  时质量分辨率最佳。但对于重离子, 金硅面垒探测器的能量分辨率大大下降, 因此, 用面垒探测器法实际上不能利用增大  $m$  值的方法来提高质量分辨率。

(4) 有待于探测器能量分辨率的提高。静电分析器法的能量分辨率高于面垒探测器法, 但设备复杂, 亦有其它弱点。

## 2. 散射截面 $\sigma$

散射截面的作用是测量发生散射的几率, 它关系到背散射离子的数目, 即与定量分析及灵敏度有关。

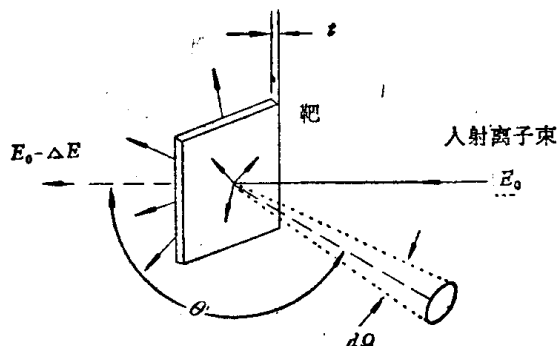


图7 薄靶的背散射

设  $Q$  为射到单元素薄靶(相对于离子的射程而言)上的离子总数,  $dQ$  为位于  $\theta$  散射角的探测器处的微分立体角,  $dQ$  为探测器接收到的离子数,  $N$  为靶原子的体积密度,  $t$  为靶的厚度 ( $Nt$  为靶原子的面积密度, 亦即质量密度), 如图7所示。定义微分散射截面为

$$\frac{d\sigma}{dQ} = \frac{1}{Nt} \cdot \frac{1}{Q} \cdot \frac{dQ}{dQ} \quad (7)$$

而对于探测器的整个接收面积, 则有平均微分散射截面(背散射分析中, 一般简称之为散射截面)

$$\sigma = \frac{1}{Q} \int \frac{d\sigma}{dQ} dQ \quad (8)$$

式中  $Q$  为探测器的立体角。对于足够小的探测器,  $\sigma \simeq d\sigma/dQ$ 。

由(7)、(8)两式, 可得探测器接收的离子总数  $A$  为

$$A = \sigma \cdot Q \cdot Q \cdot N \cdot t \quad (9)$$

在一个具体的实验中,  $A$ 、 $Q$  和  $Q$  都可测得,  $\sigma$  亦可算出, 则  $Nt$ ——单位面积的靶中的原子总数即可求出。这便是背散射定量分析的基本原理。

在实验室坐标系中, Darwin 在 1914 年便得出

$$\frac{d\sigma}{dQ} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \left[ 1 - \left( \frac{m}{M} \sin \theta \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \cos \theta \right\}^2}{\left[ 1 - \left( \frac{m}{M} \sin \theta \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (10)$$

式中  $Z_1$  和  $Z_2$  分别为入射离子和靶原子的原子序数,  $E$  为入射离子在散射前的瞬时能量,

单位是电子伏特 (eV),  $e$  为电子电荷量, 即  $4.803 \times 10^{-10}$  静电单位. 对于  $E = 1\text{MeV}$ ,  $(e^2/E)^2 = (e/10^6\text{V})^2 = (4.803 \times 10^{-10} \times 299.8/10^6)^2 = 2.0731 \times 10^{-26}\text{cm}^2 = 0.02073\text{b}$ . 则由(10)式可计算  $d\sigma/d\Omega$  之值. 由上式可知:

(1)  $d\sigma/d\Omega$  正比于  $Z_1^2$ . 因此对提高灵敏度而言, 用  $\alpha$  粒子束比用质子束有利.

(2)  $d\sigma/d\Omega$  正比于  $Z_2^2$ . 所以分析重元素的灵敏度高于分析轻元素的灵敏度.

(3)  $d\sigma/d\Omega$  反比于  $E^2$ . 因而入射离子在表面被散射的几率低于在表面下一定深度处被散射的几率; 这是因为当入射离子穿透一定深度的靶材料时, 在入射行程中已损失了一定的能量, 使  $E$  降低, 所以在此时的散射几率要比表面处大.

(4) 当  $m \ll M$  时, 由(10)式可以推得  $d\sigma/d\Omega$  近似正比于  $(\sin \frac{\theta}{2})^{-4}$ . 因此当  $\theta$  减小时散射截面增加很快. 当质量分辨率不成问题时, 可以利用此性质适当减小  $\theta$  而提高灵敏度.

对常用的 MeV 能量级的  $\alpha$  粒子而言, 在通常的实验条件下, 典型的散射截面值约几靶到几十靶(每单位立体角).

### 3. 能量损失 $\frac{dE}{dx}$

当入射离子进入靶内  $P$  时, 它将和靶原子的电子和核发生作用从而损失能量. 设能量为  $E_0$  的离子穿透  $\Delta x$  厚的靶后能量减少  $\Delta E$ , 如图 7 所示. 则定义

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta x} = \frac{dE}{dx}$$

为“能量损失(率)”, 单位是  $\text{eV}/\text{\AA}$ .

$dE/dx$  随  $m$  和  $M$  的增加而增加, 亦随靶的密度增加而增加. 同时, 它还随着离子本身能量的变化而变化, 因而在整个射程中它不是一个常数.

在过去的有关工作中, 对不同种类和不同能量的离子在各种单元素物质及化合物中的  $dE/dx$  值作过研究, 积累了大量背散射分析所需要的数据. 对背散射常用到的 0.5~3 MeV 的  $\alpha$  粒子而言,  $dE/dx$  值一般在 10—100  $\text{eV}/\text{\AA}$  之间. 实际资料中的  $dE/dx$  并不以数学函数形式给出, 而是给出不同能量时的  $dE/dx$  值与  $E$  值的关系曲线. 纯元素的  $dE/dx$  值可从文献[4]中查得.

当离子射入某样品时, 则在  $x$  深度处离子的能量为

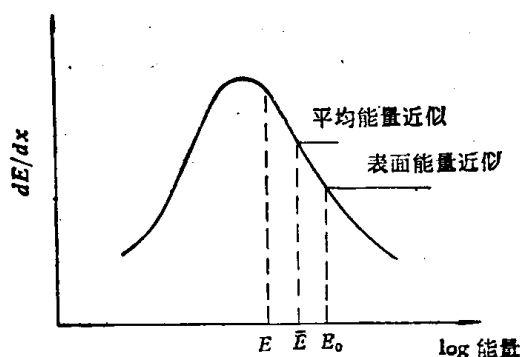


图 8 能量近似示意图

$$E(x) = E_0 - \int_0^x \frac{dE}{dx} dx$$

在具体计算中常采用  $dE/dx$  的近似值,如图 8 所示。若求  $E$  值,可近似认为在离子由  $E_0$  降到  $E$  的行程中的  $dE/dx$  等于在表面处的  $dE/dx$ , 这称为“表面能量近似法”,其结果是

$$E = E_0 - \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} \cdot x \quad (11)$$

另一种为“平均能量近似法”,例如取  $\bar{E} = \frac{1}{2}(E_0 + E)$  时的  $dE/dx$  值为这段行程中的  $dE/dx$ , 则有

$$E = E_0 - \left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}} \cdot x \quad (12)$$

显然,仅在近表面处“表面近似法”才有较好的近似。在散射后的出射行程中亦可采用近似方法。

#### 4. 阻止截面及其可加性

能量损失率的缺点是随靶的元素组成及密度而改变,因而对于具体的靶难以都查到其  $dE/dx$  值,为此需引入“阻止截面”概念。

产生  $dE/dx$  的原因可以视作是入射离子和沿途的每个原子的电子云的作用以及和沿途的核的小角度碰撞作用的总和。设靶厚  $\Delta x$ ,  $N$  为靶原子密度,则在此  $\Delta x$  厚度中损失的能量  $\Delta E$  正比于  $N \cdot \Delta x$ , 假定其比例系数为“阻止截面  $\epsilon$ ”, 则有

$$\epsilon = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \quad (13)$$

其单位为  $\text{eV} \cdot \text{cm}^2/\text{原子}$ , 一般写作  $\text{eV} \cdot \text{cm}^2$  (因其量纲与核物理中的其它截面不同,故亦称之为“阻止本领”).

阻止截面是按每个原子计算的,因此它与靶的密度无关。

$\epsilon$  的另一优点是它具有可加性 (又称布拉格定律): 对于分子式为  $A_m B_n$  的化合物, 每个分子的阻止截面写作  $\epsilon^{A_m B_n}$ , 则有

$$\epsilon^{A_m B_n} = m\epsilon^A + n\epsilon^B \quad (14)$$

式中  $\epsilon^A$  和  $\epsilon^B$  分别为元素 A 和 B 的阻止截面。对于成分与  $A_m B_n$  相同的混合物, 亦可采用上式。

当化合物分子的体积密度为  $N^{A_m B_n}$  时, 则有

$$\frac{dE^{A_m B_n}}{dx} = N^{A_m B_n} \cdot \epsilon^{A_m B_n} \quad (15)$$

若 A 或 B 在纯元素状态下是气体时,此规律会有一定的偏差。

#### 5. 能量歧离

如前所述,能量损失是由于入射离子和靶中的电子和核大量碰撞的结果。对 MeV 级能量的氢离子和氦离子而言,主要是和电子碰撞的结果。这种碰撞是一种随机过程,每个离子的碰撞情况不可能完全一样,因而损失的能量也不同。所以如图 9 (a) 所示,单能离

子束在穿透某一厚度的靶(或到达靶的某一深度处)时,它不再是单能的,而是 有一定的

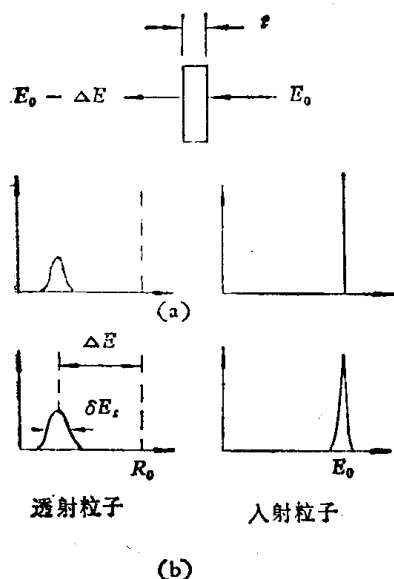


图9 能量歧离示意图

能量分散度。这就称为能量歧离。代表这种能量分散的图9(a)左方的能谱具有一定的规律(即一定的线形),因而可以用它的某一特征宽度 $\delta E_t$ 来表示能量歧离。而总体计算时以它的平均能量计算。在实际能谱测量中,由于入射离子束不是绝对单能以及探测系统分辨率等问题,因此所测得的能谱如图9(b)所示。

能量歧离会造成深度分辨率下降和靶内层原子质量分辨率下降等影响。对于 MeV 级能量的 $\alpha$ 粒子,对其能量歧离有一些理论讨论,也有少量的实验,但实际采用的仍是玻尔 1915 年的计算方法。图9(a)中能量歧离谱的方差为

$$Q_B^2 = 4\pi(Z_1 e^2)^2 N Z_2 t \quad (16)$$

令

$$S^2 = 4\pi(Z_1 e^2)^2 N Z_2 \quad (17)$$

则有

$$Q_B^2 = S^2 t \quad (18)$$

由此可知能量歧离与离子的能量无关,且与靶的单位面积的电子密度 $N Z_2 t$ 成正比。可得出的另一个有用的概念是,单位质量厚度的能量歧离的方差与靶原子序数成正比

$$Q_B / \Delta E \simeq (\bar{E} / \Delta E)^{\frac{1}{2}} \times 10^{-2} \quad (19)$$

此式与一些实验结果基本符合。这可以用于估算能量歧离。

上述玻尔的计算方法的前提之一是能量歧离符合高斯分布。这虽然有一些理论上的问题(高斯分布是无边界的),但大体符合背散射谱的实际状况。需要注意的是, $Q_B$ 是能量歧离谱的标准偏差。而实际工作中采用半高宽(FWHM)更为方便。两者之间的关系是  $\text{FWHM} = 2.355 Q_B$ 。

对于多元素靶而言,能量歧离具有可加性,即总的能量歧离是各元素造成的能量歧离之和,即

$$(Q_B^{A_m C_n})^2 = 4\pi(Z_1 e^2)^2 N^{A_m C_n} (m Z_A + n Z_C) t \quad (20)$$

式中  $A_m C_n$  为化合物的分子式。

### 三、单元素薄膜分析

#### 1. 实际的薄膜背散射谱

当用一束离子射到一个单元素薄靶上时,它产生的背散射谱如图10所示。如果入射束是单能的,则在最表面处被散射的离子是 $KE_0$ ,谱的前沿似乎应是一条垂直线,但实际并不如此。这主要是因为探测器的能量分辨率是有限的\*;此外,还受加速器的能量稳定

\* 散射离子在探测器中造成电子空穴对也是一个随机过程。同样能量的离子产生的电子空穴对数并不完全相等,而是服从一个统计分布规律,因而导致最终的电压脉冲的高度——数目关系是一个高斯分布,探测器的能量分辨率就用此高斯分布的半高宽来表示。

度、能散度、狭缝非无限小、测量系统电子仪器稳定度及探测器面积非无限小等因素的影响,因此谱的前沿是一条曲线。这曲线的微分线形基本上是高斯分布曲线,而其中心值则对应  $KE_0$ , 其半高宽代表整个系统的能量分辨率。

当入射离子束射到最后层处时,已经损失了一定能量,同时也发生了能量歧离。在此处碰撞时运动因子  $K$  值一致,入射离子束在回射行程中又要经过一定的靶中行程,因而能量再度受到损失且其能量歧离加大。所以当到达探测器时,它的平均能量是  $E_1$  而能量分散度更大。此时

$$(\delta E_i)^2 = \sum_i (\delta E_i)^2 \quad (21)$$

式中  $i$  分别为能量歧离、探测系统能量分辨率和加速器稳定度等各项。

谱中  $KE_0$  和  $E_1$  之间的不同能量的部分即对应着靶的相应深度处的原子所散射的离子能量。

从图 10 中还可见到,随着背散射离子的能量的下降,它的计数是增加的。这是因为入射离子进入靶以后,它的能量受到损失而逐渐下降。而散射截面  $\sigma \propto 1/E^2$ , 因此计数增加。

对于这样一个实际的谱,在工作中要计算它各处的高度、总的能量宽度  $\Delta E = KE_0 - E_1$  及面积等。此时可以将它简化成虚线所示的谱,而上述参量并不变化。

在某些工作中还需要计算能量分辨率、能量歧离等,因此需要考虑前沿和后沿的谱形。分析高斯函数可知,图 10 中对应于最大计数高度的 88% 和 12% 的点的能量差就是其微分曲线的半高宽 FWHM。

为简便起见,下文中一般的谱均以上述虚线形的简化谱表示;同时,除特殊注明者外,均以离子束垂直于样品表面入射的情况进行分析。对于倾斜入射的情况可以自行推导或参阅文献[1]。

## 2. 定性分析

单元素自支撑薄膜的背散射谱如图 11 所示。其前沿对应着最表面的原子散射的离子能量,其值为  $KE_0$ 。实验中测得  $KE_0$ , 则由 (6) 式可知靶原子质量数,此即定性分析(单元素的厚靶谱还包括图中虚线所示部分,也由前沿作定性分析)。

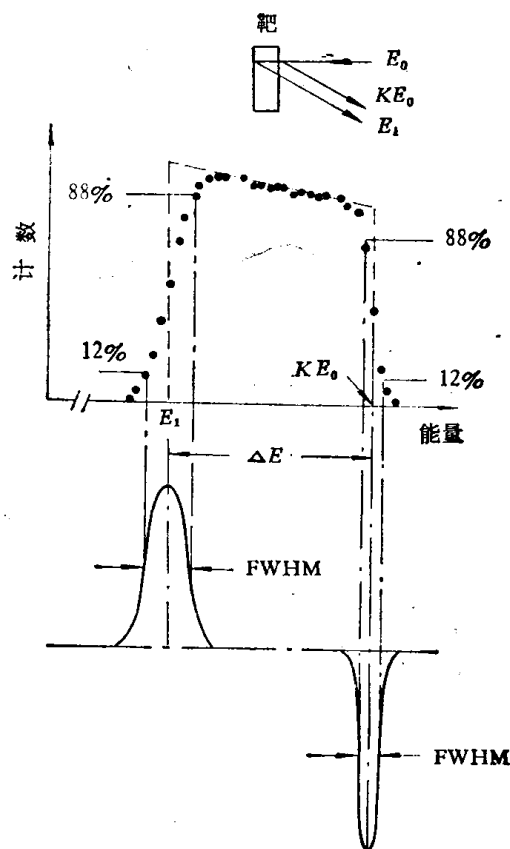


图 10 实际的薄膜背散射谱,它的简化、前沿与后沿的能谱宽度计算

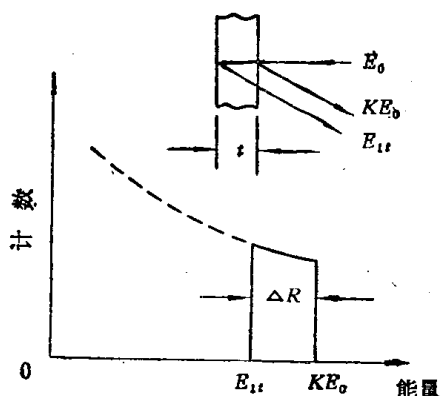


图 11 单元素薄膜背散射谱示意图

### 3. 能谱宽度法膜厚分析

仍如图 11 所示, 薄膜谱的总宽度(对应于膜的厚度)为  $\Delta E = KE_0 - E_{11}$ .

当入射离子穿透  $z$  深度时, 其能量损失了  $\int_0^z \frac{dE}{dx} dx$ , 则与最后层的靶原子碰撞前的瞬时能量为

$$E = E_0 - \int_0^z \frac{dE}{dx} dx \quad (22)$$

离子在此处被散射时的能量为  $KE$ , 在回程中再度穿过靶时需经靶中行程  $|z/\cos\theta|$ , 此时再度损失能量, 则探测器接收到的离子能量为

$$E_{11} = KE - \int_0^{z/|\cos\theta|} \frac{dE}{dx} \cdot dx \quad (23)$$

因此

$$\Delta E = KE_0 - E_{11} = K \int_0^z \frac{dE}{dx} \cdot dx + \int_0^{z/|\cos\theta|} \frac{dE}{dx} dx \quad (24)$$

若用表面近似法, 则有

$$\Delta E = \left( K \frac{dE}{dx} \Big|_{E_0} + \frac{1}{|\cos\theta|} \frac{dE}{dx} \Big|_{KE_0} \right) \cdot z = [s_0] \cdot z \quad (25)$$

式中

$$[s_0] = K \frac{dE}{dx} \Big|_{E_0} + \frac{1}{|\cos\theta|} \frac{dE}{dx} \Big|_{KE_0} \quad (26)$$

称为能量损失因子(表面近似值).

而若用阻止截面, 则有

$$\Delta E = \left( K \cdot \varepsilon(E_0) + \frac{1}{|\cos\theta|} \varepsilon(KE_0) \right) \cdot N \cdot z = [\varepsilon_0] \cdot N \cdot z \quad (27)$$

$$[\varepsilon_0] = K \cdot \varepsilon(E_0) + \frac{1}{|\cos\theta|} \cdot \varepsilon(KE_0) \quad (28)$$

$[\varepsilon_0]$  称为阻止截面因子(表面近似值).

由实验中测得  $\Delta E$ , 在作定性分析后可查出  $dE/dx$  或  $\varepsilon$ , 从上述公式即可算出膜厚或膜的质量厚度.

若采用平均能量近似, 则可得较为精确的结果. 为方便起见, 可采用

$$\bar{E}_{in} \simeq E_0 - \frac{1}{4} \Delta E \quad (29)$$

$$\bar{E}_{out} \simeq E_{11} + \frac{1}{4} \Delta E \quad (30)$$

式中  $\bar{E}_{in}$  和  $\bar{E}_{out}$  分别为入射行程和出射行程的平均能量.

对于约几百埃以下的极薄的膜的膜厚, 不能简单地从上述方法求得. 这是因为实验测得的  $\Delta E$  不仅由膜厚造成, 而且系统能量分辨率、能量歧离等因素均对  $\Delta E$  有贡献. 在膜极薄的情况下, 上述影响所占比例较大, 而且其能谱已不能近似成图 11 中的形状, 而是呈近似高斯分布的一个峰, 如图 12 所示.

#### 4. 能谱面积法膜厚分析

极薄的膜不能自支撑，因而往往是沉积在基体上。轻元素基体上的重元素极薄的膜的背散射能谱，如图 12 所示。

在此情况下，即可用(9)式

$$A = \sigma Q Q N t$$

求出膜的质量厚度  $Nt$  (需知  $Q$  和  $Q$  值)。分析表面杂质吸附或玷污就可用这种方法。

注意图 12 中的基体的谱的前沿能量不是  $K_{\text{基体}} \cdot E_0$ ，而是比此值小。这是因为薄膜会使入射离子及被基体表面散射的离子损失能量。

#### 5. 膜及基体能谱比较法

用图 12 对极薄的膜还可采取另一求法。由前述可知，一定的靶厚对应于一定的能谱宽度，则基体谱（多道分析器上）最前沿处的一道的能量宽度  $R$  就对应于基体厚度为  $\delta t$  的表层。将(9)式应用于这一表层，则  $A$  即成为这一道的高度  $H_0$ ，用表面近似  $\sigma$  即是  $\sigma(E_0)_{\text{基}}$ 。则(9)式成为

$$H_0 = \sigma(E_0)_{\text{基}} \cdot Q \cdot Q \cdot N \cdot \delta t \quad (31)$$

而由(27)式有  $R = [\epsilon_0] \cdot N \cdot \delta t$ ，则(31)式成为

$$H_0 = \sigma(E_0)_{\text{基}} \cdot Q \cdot Q \cdot R / [\epsilon_0] \quad (32)$$

式中  $[\epsilon_0]$  为表面处的阻止截面因子。在表面膜极薄的情况下，上式中用  $\sigma(E_0)$  及  $[\epsilon_0]$  是可以的，则由(9)式及(32)式可得膜厚

$$N \cdot t = \frac{A_{\text{膜}}}{H_{\text{基体前沿}}} \cdot \frac{\sigma(E_0)_{\text{基体}}}{\sigma(E_0)_{\text{膜}}} \cdot \frac{R}{[\epsilon_0]_{\text{基体}}} \quad (33)$$

实际上在一个谱的各能量坐标处  $R$  是不变的。

可以看出，此法比能谱面积法方便的是不需对  $Q$  值和  $Q$  值进行测量。此外由基体能谱前沿的后移也可求出膜厚。

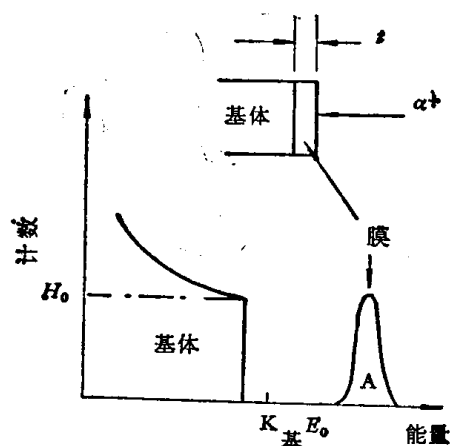


图 12 极薄的膜的背散射谱

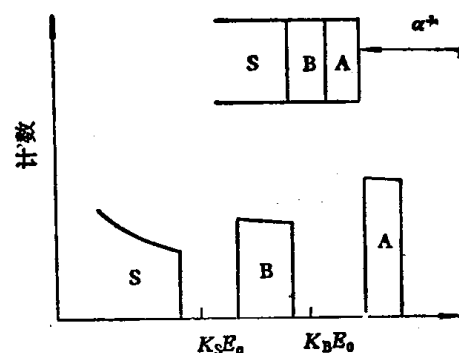


图 13 双层单元素薄膜背散射谱

#### 6. 多层单元素薄膜等问题

若  $S$  元素基体上有  $A$ 、 $B$  两层单元素薄膜，且  $M_S < M_B < M_A$ ，则其能谱示意图如

图 13 所示。倘若  $A$ 、 $B$  两层均极薄,可以忽略膜中的能量损失(不引起  $\sigma$  和  $dE/dx$  的明显变化),则仍可采用上述能谱面积法或膜及基体能谱比较法。若膜较厚则必须涉及谱宽度,此时表面的  $A$  膜的谱不受基体及  $B$  层的影响,则分析方法如前所述。在已求得  $A$  膜厚度之后便可求  $B$  膜。对被  $B$  膜散射的离子而言,  $A$  膜起的作用是使它的人射行程及出射行程增加能量损失,对此过程进行分析就可求出  $B$  膜厚度。

图 13 中,由于  $S$  和  $B$  都不处在最表面,因而它们的前沿能量都和图 12 中的基体谱一样有类似的后移问题。

对基体上的薄膜及多层薄膜而言,上述图例均是最简单的情况。倘若是重元素基体上的轻元素薄膜,如存在膜较厚,或重膜之上有轻膜等情况,则基体和膜的背散射谱或各膜的背散射谱之间将发生重叠。此时需对基体及各膜之谱进行分离。

用  $\sim 2$  MeV 的  $\alpha$  粒子束进行的一般背散射分析中,测表面薄膜的灵敏度的经验公式为

$$N \cdot t = (Z_{\text{基体}}/Z_{\text{膜}})^2 \times 10^{14} \text{ 膜原子/cm}^2 \quad (34)$$

例:测定 Cu 基体上的 Au 膜厚度。

用串列静电加速器的  $\alpha$  粒子束。用标准放射

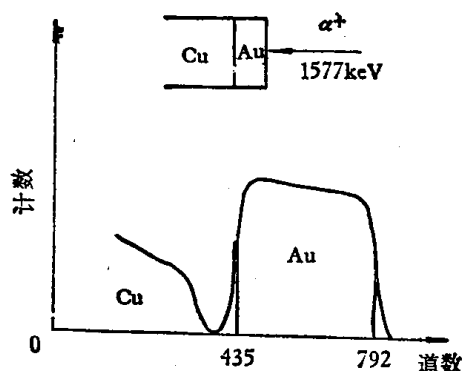


图 14 Cu 基体上的 Au 膜的背散射谱

源法(见本文第七部分)校准能量刻度,所测背散射实验条件下 1024 道分析器的每道能量宽度为 1.846 keV,  $\theta = 150^\circ$ , 得背散射谱如图 14 所示:

Au 谱前沿 792 道,即  $KE_0 = 1462\text{keV}$ . Au 谱后沿 435 道,即  $E_{it} = 803\text{keV}$ ,  $\Delta E = 659\text{keV}$ . 由  $\theta = 150^\circ$  按(6)式得  $E_0 = 1577\text{keV}$ , 则  $\bar{E}_{in} = E_0 - \frac{1}{4} \Delta E = 1412\text{keV}$ ,

$\bar{E}_{out} = E_{it} + \frac{1}{4} \Delta E = 968\text{keV}$ . 由资料查得  $\epsilon_{in} = 118 \times 10^{-15}\text{eV}\cdot\text{CM}^2/\text{原子}$  及  $\epsilon_{out} = 125 \times 10^{-15}\text{eV}\cdot\text{CM}^2/\text{原子}$ . Au 的  $N$  为  $5.905 \times 10^{22}\text{原子/cm}^3$ , 则

$$(dE/dx)_{\bar{E}_{in}} = 118 \times 10^{-15} \times 5.905 \times 10^{22} \times 10^{-8} = 69.7\text{eV}/\text{\AA}$$

$$(dE/dx)_{\bar{E}_{out}} = 125 \times 10^{-15} \times 5.905 \times 10^{22} \times 10^{-8} = 73.8\text{eV}/\text{\AA}$$

$$[S] = 0.927 \times 69.7 + \frac{1}{|\cos 150^\circ|} \times 73.8 = 150\text{eV}/\text{\AA}$$

其膜厚为

$$t = \frac{\Delta E}{[S]} = \frac{659 \times 10^3}{150} = 4390\text{\AA}$$

#### 四、均匀多元素厚试样成分分析

对多元素靶,  $dE/dx$  (及  $\epsilon$ ) 是由多种靶原子与入射离子相作用而造成的;同时,入射离子与不同靶原子碰撞时的  $K$  值也不同。为简单起见,仅粗略讨论两元素靶的情况。

设两元素为  $A$  和  $B$ , 其分子式为  $A_m B_n$ , 其背散射实验如图 15 所示。如(14)式所

述,  $\varepsilon^{A_mB_n}$  (简写为  $\varepsilon^{AB}$ ) =  $m\varepsilon^A + n\varepsilon^B$ . 在  $M_A > M_B$  的情况下, 所得背散射能谱图如图 15 所示. 由于是厚靶, A、B 两元素的谱重叠, 任何重叠之处的谱高度为两谱之和, 即

$$H(E) = H_A(E) + H_B(E) \quad (35)$$

对于 A 谱的前沿高度  $H_{A,0}$ , 用(31)式的推导方法, 可以得出

$$H_{A,0} = \sigma_A(E_0) \cdot Q \cdot Q \cdot N_A^{AB} \delta t \quad (36)$$

式中  $N_A^{AB}$  为单位体积的  $A_mB_n$  中的 A 原子数,  $N^{AB}$  为单位体积中的  $A_mB_n$  分子数, 则有

$$N_A^{AB} = mN^{AB} \quad (37)$$

及

$$N_B^{AB} = nN^{AB} \quad (38)$$

以  $[\varepsilon]_A^{AB}$  表示在物质  $A_mB_n$  中被 A 原子散射的阻止截面因子, 则按照 (28) 式有

$$[\varepsilon]_A^{AB} = K_A \varepsilon_{in}^{AB} + \frac{1}{|\cos \theta|} \varepsilon_{out}^{AB} \cdot A \quad (39)$$

及

$$[\varepsilon]_B^{AB} = K_B \varepsilon_{in}^{AB} + \frac{1}{|\cos \theta|} \varepsilon_{out}^{AB} \cdot B \quad (40)$$

式中下脚标 in 和 out 分别为入射和散射后出射时的参量, 下脚标 A 和 B 分别表示被 A 或 B 原子散射时的参量. 而在表面处或用表面能量近似法则有

$$[\varepsilon_0]_A^{AB} = K_A \varepsilon^{AB}(E_0) + \frac{1}{|\cos \theta|} \varepsilon^{AB}(K_A E_0) \quad (41)$$

及

$$[\varepsilon_0]_B^{AB} = K_B \varepsilon^{AB}(E_0) + \frac{1}{|\cos \theta|} \varepsilon^{AB}(K_B E_0) \quad (42)$$

按照(31)式和(32)式的同样推导方法, 在表面处的每道能量宽度  $R$  有

$$R = [\varepsilon_0]_A^{AB} \cdot N^{AB} \cdot \delta t \quad (43)$$

将(37)式和(43)式代入(36)式, 则得到

$$H_{A,0} = \sigma_A(E_0) \cdot Q \cdot Q \cdot m \cdot R / [\varepsilon_0]_A^{AB} \quad (44)$$

同理有

$$H_{B,0} = \sigma_B(E_0) \cdot Q \cdot Q \cdot n \cdot R / [\varepsilon_0]_B^{AB} \quad (45)$$

因此

$$\frac{H_{A,0}}{H_{B,0}} = \frac{\sigma_A(E_0)}{\sigma_B(E_0)} \cdot \frac{m}{n} \cdot \frac{[\varepsilon_0]_B^{AB}}{[\varepsilon_0]_A^{AB}} \quad (46)$$

本节的目的是求靶成分, 即求原子数比  $m/n$ . 用(46)式求  $m/n$  需已知  $[\varepsilon_0]_A^{AB}$  和  $[\varepsilon_0]_B^{AB}$ . 在 1~2 MeV  $\alpha$  粒子入射的情况下, 可近似取  $[\varepsilon_0]_A^{AB} / [\varepsilon_0]_B^{AB} = 1$  (其误差一般小于 10%), 则有

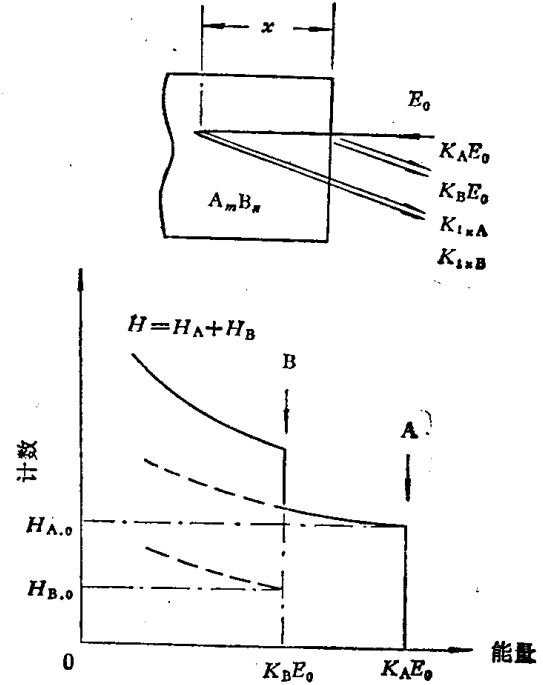


图 15 两元素厚靶背散射谱

$$\frac{m}{n} \simeq \frac{H_{A,0}}{H_{B,0}} \cdot \frac{\sigma_B(E_0)}{\sigma_A(E_0)} \quad (47)$$

由此  $m/n$  的近似值,便可按(14)式、(41)和(42)式求出  $[\epsilon_0]_B^{AB}/[\epsilon_0]_A^{AB}$  的更佳近似值,再按(46)式求出  $m/n$  的一级近似值。一般说来  $m/n$  的误差已小于实验数据误差所导致的误差;倘若误差仍过大,则再循环一次便可。

这就是双元素厚靶的定量分析方法。多元素靶可按相同原理推导。图 16<sup>[5]</sup>是一磁泡材料的背散射谱,由此求得其成分为  $Y_{2.57}Eu_{0.45}Ga_{1.2}Fe_{3.75}O_{12}$ , 而其标准成分为  $Y_{2.45}Eu_{0.55}Ga_{1.2}Fe_{3.8}O_{12}$ 。

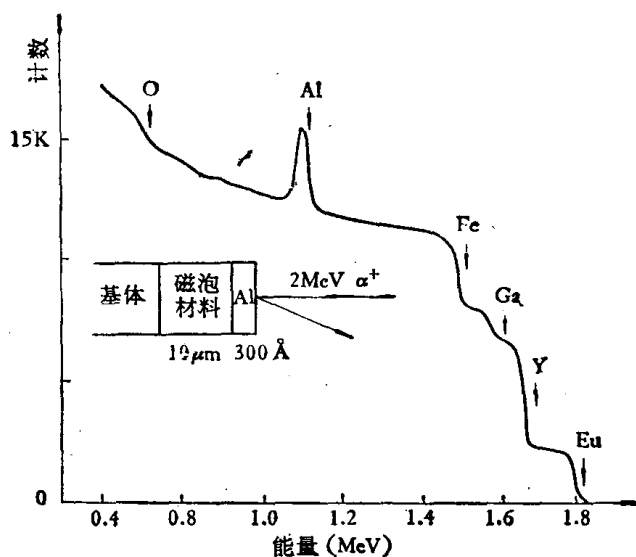


图 16 磁泡材料的背散射谱<sup>[5]</sup>

对于杂质分析,无  $m$  和  $n$  的整数比,可视  $m$  和  $n$  为 A、B 的原子百分数,此时  $m/n = N_A/N_B$ 。一般说来,当进行杂质分析时,若杂质原子浓度超过 1% 时,即需用上述方法。当杂质含量低时,原则上仍用(46)式,但可以简化。若 B 是基体,由于 A 量很少,则可以用  $[\epsilon_0]_A^B$  及  $[\epsilon_0]_B^B$  代替(46)式中的  $[\epsilon_0]_B^{AB}$  和  $[\epsilon_0]_A^{AB}$  以简化计算,则(46)式成为

$$\frac{N_A}{N_B} = \frac{H_{A,0}}{H_{B,0}} \cdot \frac{\sigma_B(E_0)}{\sigma_A(E_0)} \cdot \frac{[\epsilon_0]_A^B}{[\epsilon_0]_B^B} \quad (48)$$

探测杂质的灵敏度和实验条件有关,也和样品有关。在典型条件下,当  $H_{杂质}$  为  $H_{基体}$  的 0.1% 时可以探测到,相对灵敏度大约为

$$N_{杂质}/N_{基体} \geq (Z_{基体}/Z_{杂质})^2 \times 10^{-3} \quad (49)$$

灵活运用背散射分析方法,可以较方便地解决一些材料科学研究中的课题。例如 J. Caywood<sup>[6]</sup> 用它测量 Ge 在 Al 中的固溶度。图 17 是该实验的示意图。在 Ge 上镀一层 Al, 用  $\alpha$  粒子束作背散射。刚镀上去时背散射谱如实线所示。样品经加热处理后 Ge 向 Al 中扩散而达到它在该温度下的固溶度,此时 Ge 到达表面而形成虚线所示的 Ge 谱。由此用本节所述方法即可确定在该加热温度下 Ge 在 Al 中的固溶度。Caywood 测得温度自 120°C 升到 395°C 时,对应的溶解度从 0.034at. % 升到 1.45at. %, 这种研究方法显然比较方便。