

	<b>GERENCIA DE FÍSICA - GAIyANN</b> Departamento Interacción de Radiación con la Materia División Física Atómica, Molecular y Óptica Acelerador de Iones Tándem de 1.7 MV		INT-INN_03AIT-007
	<b>Informe Técnico</b>		Página: 1 de 6
<b>TÍTULO:</b> Composición de muestras de óxidos de circonio y cerio.			
<b>1. OBJETIVO</b>  Determinar la composición elemental y espesores de láminas delgadas de óxidos de circonio y cerio sobre un sustrato de silicio, antes y después de ser irradiadas con iones de yodo.			
<b>2. SOLICITANTE</b>  División Física de Superficies.			
<b>Preparó</b>			
<b>Nombre y Apellido (Filiación)</b>			<b>Firma</b>
Esteban D. Cantero (CONICET) Ignacio Cortés (CNEA) Cesar Olivares (CNEA) Guillermo Zampieri (CNEA) Guillermo C. Bernardi (CNEA)			
<b>Aprobó</b>			
<b>Nombre y Apellido</b>	<b>Fecha</b>	<b>Firma</b>	
Oscar Grizzi	19/06/18		
<b>NOTA:</b> Este documento es propiedad de CNEA y se reserva todos los derechos legales sobre él. No está permitida la explotación, transferencia o liberación de ninguna información en el contenido, ni hacer reproducciones y entregarlas a terceros sin un acuerdo previo y escrito de CNEA.			

<b>CNEA</b>	Composición de muestras de óxidos de circonio y cerio.	INT-INN_03AIT-007 Página: 2 de 6
-------------	--	-------------------------------------

## INDICE

1. OBJETIVO.....	1
2. SOLICITANTE .....	1
3. DESARROLLO.....	3
4. REFERENCIAS.....	6
5. INFORMACIÓN DE CONTACTO .....	6
6. ANEXOS.....	6

### 3. DESARROLLO

Se determinó la composición elemental y espesores de tres muestras conteniendo óxido de circonio ( $Zr_xO_y$ ) y tres muestras con óxidos de circonio y cerio ( $Zr_xO_yCe_z$ ), en forma de láminas delgadas sobre un sustrato de silicio. Cada una de las mismas contenía una zona bien delimitada que había sido previamente irradiada con un haz de iones de iodo de 180 keV de energía. En la Figura 1 se muestra una foto del portamuestras con las seis muestras analizadas, una muestra con una lámina de oro sobre silicio que se utiliza para calibrar los espectros en energía y una muestra de  $Al_2O_3$  que permite visualizar la posición y el tamaño del haz. La denominación utilizada para enumerar a las muestras se presenta en la Tabla 1.

Los resultados se obtuvieron irradiando las muestras con un haz de iones de  $He^+$  de 2 MeV de energía del Acelerador de Iones Tándem de 1.7 MV del Centro Atómico Bariloche. Se utilizaron las técnicas de retrodispersión de iones (Rutherford Back Scattering, RBS) y de emisión de rayos x (Particle Induced X-ray Emission, PIXE). La corriente del haz fue del orden de 2 a 7 nA y el diámetro de 1,5 mm. Los espectros se obtuvieron para una carga de haz colectada de 2 ó 3  $\mu C$ .

Los espectros de RBS se analizaron con el programa SIMNRA [1] y los de rayos X con el programa GUPIXWIN [2]. En la Figura 2 presentamos a modo de ejemplo espectros RBS y el correspondiente ajuste de donde se obtienen los valores de composición y espesor para la muestra M1 (Figura 2 (a): zona no irradiada; Figura 2 (b) zona irradiada) y M5 (Figura 2 (c): zona no irradiada).

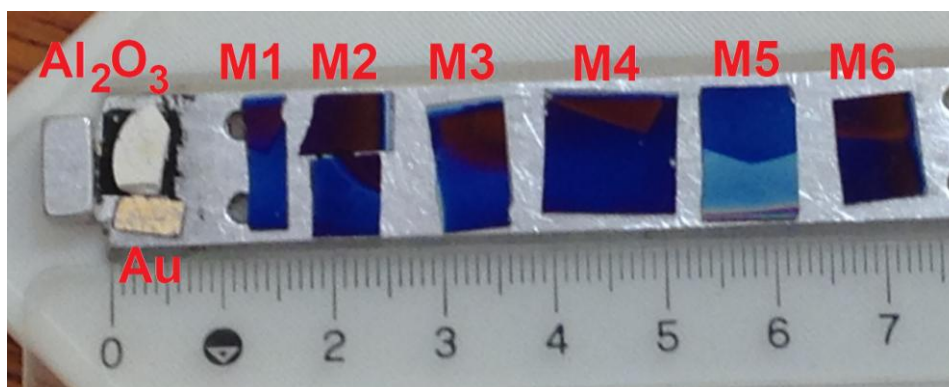


Figura 1: Portamuestras con las muestras analizadas M1 a M6.

Tabla 1: Denominación de las muestras.

Muestra	M1	M2	M3	M4	M5	M6
Denominación	Am119B	Am141B	Am119C	Am124B	Am146B	Am124C
Tratamiento	ZB350	ZF500	ZB500	ZB350	ZF500	ZB500

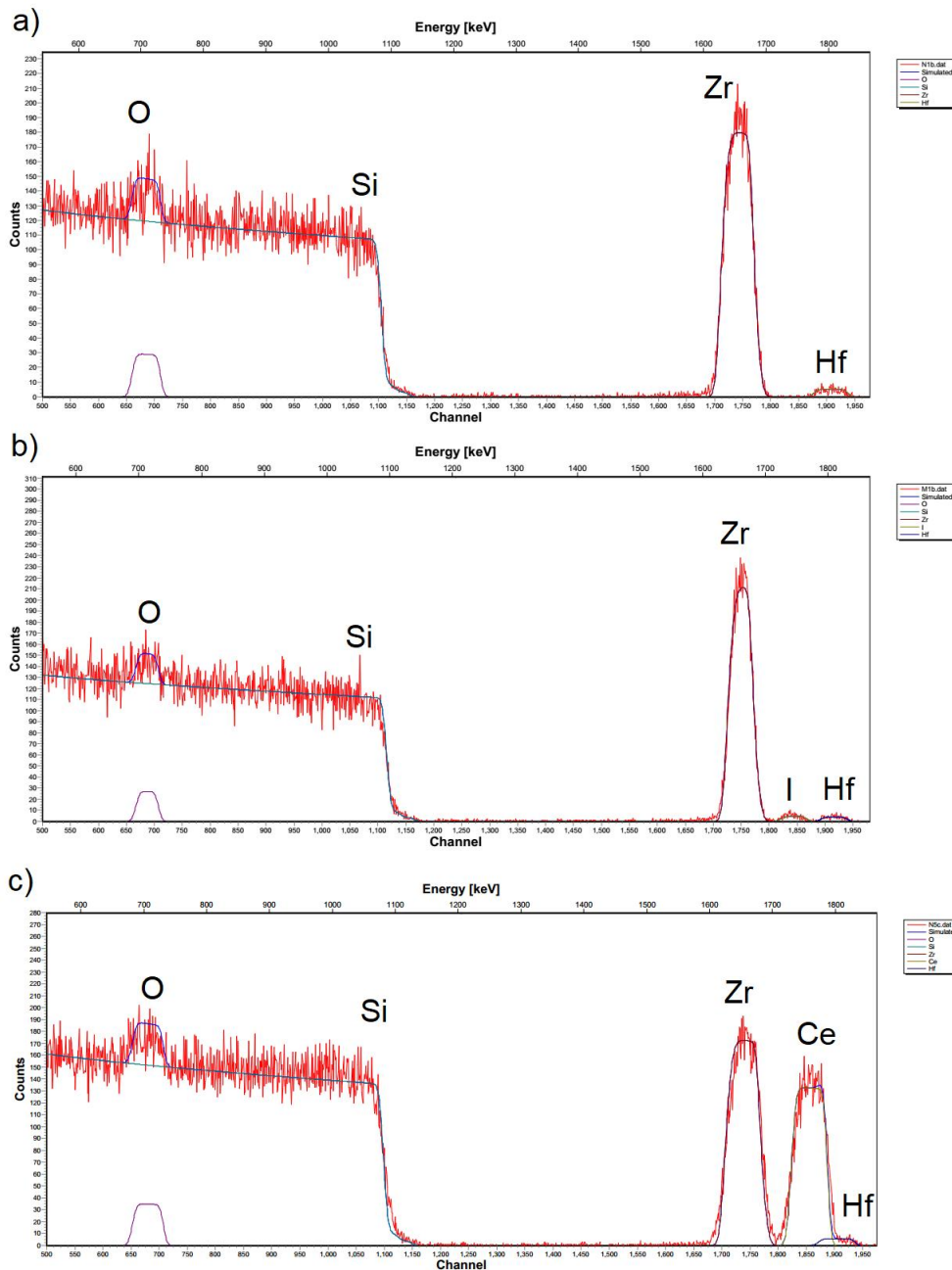


Figura 2: Espectros RBS medidos (líneas rojas) y el ajuste correspondiente obtenido con el código SIMNRA. a) Muestra M1 - zona no irradiada. Se observan los picos correspondientes al Zr, Hf y O de la lámina delgada, y la contribución del sustrato de Si. b) Muestra M1 - zona irradiada. En este caso se observa adicionalmente un pico correspondiente a la retrodispersión en átomos de I que están implantados en la película. c) Muestra M5 - zona no irradiada. Se observa el pico correspondiente al Ce.

<b>CNEA</b>	Composición de muestras de óxidos de circonio y cerio.	INT-INN_03AIT-007 Página: 5 de 6
-------------	--	-------------------------------------

Los datos obtenidos y el tipo de análisis realizado para todos los casos fueron similares a lo presentado en la Figura 2. En las Tablas 2 y 3 se presentan los resultados obtenidos mediante RBS, con las observaciones más relevantes siguientes:

- a) Todas las muestras presentan una leve contaminación con Hf (asociado al Zr), menor al 0,3%.
- b) En todas las zonas irradiadas analizadas se observó la implantación de I en la película, inclusive en el caso de M3 una fracción del I se implantó en el sustrato de Si.
- c) Se observan efectos de sputtering en todas las muestras irradiadas, que se manifiestan como una disminución del espesor de la película.
- d) En las muestras M4, M5 y M6 se observa claramente la presencia de Ce, como era de esperarse debido a su proceso de fabricación.
- e) En la muestra M6 se observó la presencia de S.
- f) Las concentraciones de Zr, Ce y O no se corresponden con una relación estequiométrica como la de los óxidos  $ZrO_2$  y  $CeO_2$ . La concentración de oxígeno es mayor a la esperada, con excepción de la muestra M2 no irradiada.

Tabla 2: Resultados obtenidos con RBS para muestras M1, M2 y M3. Se presentan las concentraciones atómicas porcentuales.

Muestra	M1 no irradiada	M1 irradiada	M2 no irradiada	M2 irradiada	M3 no irradiada	M3 irradiada
Espesor ( $10^{15}$ at/cm <sup>2</sup> )	565 ± 15	415 ± 15	430 ± 20	380 ± 10	490 ± 40	377 ± 10
Zr	21 ± 1	25 ± 1	37 ± 2	31 ± 1	23 ± 2	27 ± 1
Ce	-----	-----	-----	-----	-----	-----
O	79 ± 2	74 ± 2	63 ± 2	68 ± 2	76 ± 2	72 ± 2
Hf	0,16 ± 0,03	0,15 ± 0,02	0,26 ± 0,02	0,22 ± 0,02	0,17 ± 0,05	0,15 ± 0,02
I	-----	0,33 ± 0,03	-----	0,29 ± 0,02	-----	0,3 ± 0,1
Observaciones	-----	-----	-----	-----	-----	(1)

(1): Se observa yodo implantado en el silicio a una profundidad del orden de  $20 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>.

<b>CNEA</b>	Composición de muestras de óxidos de circonio y cerio.	INT-INN_03AIT-007 Página: 6 de 6
-------------	--	-------------------------------------

Tabla 3: Resultados obtenidos con RBS para muestras M4, M5 y M6. Se presentan las concentraciones atómicas porcentuales.

Muestra	M4 no irradiada	M4 irradiada	M5 no irradiada	M5 irradiada	M6 no irradiada	M6 Irradiada
Espesor ( $10^{15}$ at/cm <sup>2</sup> )	520 ± 15	380 ± 10	600 ± 20	480 ± 15	460 ± 30	350 ± 10
Zr	16 ± 1	19 ± 1	16 ± 1	21 ± 1	16 ± 1	22 ± 2
Ce	4,2 ± 0,2	4,7 ± 0,2	5,8 ± 0,3	8,8 ± 0,3	4,1 ± 0,3	6,0 ± 0,5
O	80 ± 2	75 ± 2	78 ± 2	69 ± 2	78 ± 2	70 ± 2
Hf	0,15 ± 0,02	0,14 ± 0,02	0,17 ± 0,02	0,20 ± 0,02	0,21 ± 0,02	0,25 ± 0,02
I	-----	0,5 ± 0,1	-----	0,7 ± 0,1	-----	1,5 ± 0,6
S	-----	-----	-----	-----	1,7 ± 0,3%	1,7 ± 0,3%

Respecto de los resultados obtenidos de la medición de rayos x con PIXE, debemos señalar que normalmente esta técnica se aplica utilizando un haz de protones con intensidad de corriente menor a la utilizada en estas mediciones. Debido a esto debemos ser cautos al discutir resultados cuantitativos. Todos los elementos identificados con RBS son observados también por PIXE, sin embargo PIXE muestra claramente la presencia de carbono en las muestras. El análisis de los resultados permite estimar que la concentración de carbono es muy variable entre las muestras, desde un 3% hasta un 18%. Esto no se incluye en las tablas 2 y 3, donde las concentraciones están normalizadas a 100%.

Debe notarse que para el tipo de muestras analizadas, la técnica RBS tiene baja sensibilidad a la detección de carbono, cuyo pico estaría ubicado sobre el talón producido por el sustrato de silicio. A su vez el carbono tiene una sección eficaz de retrodispersión comparativamente baja con respecto a los elementos más pesados. Por tal motivo, un ajuste o determinación de concentraciones de C en las muestras no pudo realizarse. En el ajuste realizado de los espectros RBS, la subestimación de la concentración de carbono en la muestra produce una sobreestimación de la concentración de oxígeno. Sin embargo las simulaciones que se realizaron con el programa SIMNRA muestran que para obtener una concentración de oxígeno como la correspondiente a los óxidos ZrO<sub>2</sub> y CeO<sub>2</sub>, la concentración de carbono es mucho mayor a la estimada.

#### 4. REFERENCIAS

- [1] SIMNRA v6.06, Autor: Dr. Matej Mayer, Instituto Max-Planck Graching, Alemania, <http://home.mpcdf.mpg.de/~mam/>
- [2] GUPIXWIN v.2.1 rev. 360. Copyright (C) 2005. Universidad de Guelph (Canada).

#### 5. INFORMACIÓN DE CONTACTO

Guillermo Zampieri, [zamp@cab.cnea.gov.ar](mailto:zamp@cab.cnea.gov.ar)

#### 6. ANEXOS

No aplicable.