

О ВЛИЯНИИ СПЕКТРА РЕАКТОННЫХ НЕЙТРОНОВ НА КИНЕТИКУ НЕЙТРОННОГО ЛЕГИРОВАНИЯ И ВЫХОД ТРАНСМУТАЦИОННЫХ ПРИМЕСЕЙ В ГЕРМАНИИ

А. Г. Забродский, М. В. Алексеев

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021, Санкт-Петербург, Россия

(Получена 24 августа 1993 г. Принята к печати 6 сентября 1993 г.)

Исследовано влияние спектра реакторных нейтронов на кинетику нейтронного легирования и выход трансмутационных примесей в германии путем использования фильтров разной поглощающей способности, а также сравнения облучений в каналах реактора с разным отношением потоков тепловых нейтронов к быстрым. Используется предложенный нами ранее метод линеаризации кинетики. Впервые анализируются данные упрощенной ее регистрации из измерений проводимости.

1. Как известно, соотношение между трансмутационными примесями в нейтронно-легируемых материалах не зависит от флюенса нейтронов, т. е. от уровня легирования. Это свойство используется для получения в исследовательских целях «K»-серий образцов с разными уровнями легирования, но со строго фиксированной компенсацией. В простейшем случае одной или однотипных трансмутационных примесей, например в кремнии, получаются «K = 0»-серии. Нетривиальный пример представляет собой германий с тремя «легирующими» изотопами ^{70}Ge , ^{74}Ge и ^{76}Ge дающими в результате (n, γ)-реакций радиационного захвата нейтронов и последующего распада возникающих радиоактивных изотопов в основном мелкие акцепторные примеси ^{71}Ga , а также мелкие и глубокие донорные примеси ^{75}As и ^{77}Se .

По причине недостаточной точности ядерно-физических данных по изотопам германия (см. по этому поводу в [1]) исследования нейтронно-легируемого германия (НЛГ) поставили задачу прямого экспериментального определения его степени компенсации или в более общем виде соотношения между трансмутационными примесями. Прецизионное решение этой задачи было дано А. Г. Забродским в [1, 2] на основе исследования кинетики нейтронного легирования германия, характеризующейся изначальным введением донорных состояний и постепенной их компенсацией, начиная с мелких доноров ^{75}As и кончая глубокими двухзарядными донорами ^{77}Se с последующей $n \rightarrow p$ -конверсией типа проводимости.¹ В нашей работе [5] точность и надежность метода А. Г. Забродского были еще более повышены с помощью линеаризации долговременной кинетики нейтронного легирования, определяемой самой медленной из реакций распада — реакцией электронного захвата $^{71}\text{Ge} \rightarrow ^{71}\text{Ga}$ в безразмерном временном масштабе τ

$$\tau = 1 - \exp(-\lambda t), \quad (1)$$

¹ В конечном счете это позволило уточнить ядерно-физические постоянные легирующих изотопов [1-3].

где $\lambda = \ln 2/T_{71\text{Ge}}$, $T_{71\text{Ge}} = 11.36 \pm 0.04$ суток [5] — период полураспада изотопа ^{71}Ge , время t отсчитывается от момента облучения.

Исследования [5] линеаризованных кинетик нейтронного легирования германия в комбинации с известным в нейтронной физике методом «кадмиевой разности» (см., например, [6]) показали, что минимальное значение степени компенсации НЛГ с природным изотопным составом, достигаемое в пределе тепловых нейтронов,² составляет³

$$K_{th} = 0.302 \pm 0.002. \quad (2)$$

Его следует сравнивать с менее точным значением

$$K_{th} = 0.30 \pm \begin{matrix} 0.07, \\ 0.06 \end{matrix}$$

даваемым современными ядерно-физическими данными [7].

На практике спектр реакторных нейтронов не ограничивается лишь тепловой компонентой, в результате чего значение компенсации оказывается выше, чем K_{th} . Обусловлено это сильным резонансным поглощением эпитепловых нейтронов изотопом ^{76}Ge и возрастанием выхода доноров ^{77}Se относительно основных акцепторных примесей [2, 4, 5, 8]. Однако в силу малости «селенового» вклада в величину K_{th} при хорошем замедлении реакторных нейтронов величина компенсации не сильно превосходит значение (2). Так, согласно [4, 5], при облучении в канале В-15 реактора ВВР-М с отношением потоков тепловых нейтронов к быстрым (с энергией ~ 1 МэВ), равным $30 \div 50$, это увеличение не превышает 3% от (2).

При исключении тепловых нейтронов и низкоэнергетичной части эпитепловых путем их поглощения достаточно толстыми кадмиевыми фильтрами⁴ наблюдается примерно двукратное сужение области существования p -ветви во времени, соответствующее увеличению компенсации примерно вдвое по сравнению со значением K_{th} [2, 4, 5].⁵ Причем происходит это за счет увеличения относительного выхода примеси ^{77}Se , ибо область существования n -ветви, определяющая выход примеси ^{75}As , при этом практически не меняется.

В настоящей работе мы приводим данные о влиянии спектра реакторных нейтронов на кинетику нейтронного легирования и выход трансмутационных примесей в германии, полученные с использованием фильтров разной поглощающей способности, а также сравнением облучений в каналах реактора с разным отношением потоков тепловых нейтронов к быстрым.

2. Облучения проводились в канале В-1 реактора ВВР-М с отношением потоков тепловых и быстрых нейтронов $8 \div 10$. Было поставлено 3 опыта. В первом параллельно облучались 3 образца исходно чистого Ge: образец 1 — без фильтра, образцы 2, 4 — с фильтрами, с толщинами $d = 0.17$ и 0.9 мм. Во втором опыте (образец 3) использовался Cd-фильтр с $d = 0.5$ мм. Найденные по рис. 8 из [5] значения граничных энергий пропускания фильтров E_c составляли 0.42, 0.55 и 0.65 эВ для образцов 2, 3 и 4 соответственно. В третьем опыте мы применили комбинированный индиево-кадмиевый фильтр ($d_{\text{In}} = 2.7$ мм, $d_{\text{Cd}} = 0.5$ мм), с помощью которого рассчитывали увеличить значение E_c для $d_{\text{Cd}} = 0.5$ мм за счет мощного резонанса поглощения нейтронов индием в

² За верхнюю границу их энергий принимают величину 0.2 эВ [6].

³ Близкие результаты, но с меньшей точностью были получены в [2] и [4] (в первом случае метод «кадмиевой разности» не применялся, но использовались очень хорошо замедленные реакторные нейтроны).

⁴ Кадмиевые фильтры поглощают нейтроны с энергиями E , меньшими некоторых граничных значений E_c , возрастающих с толщиной фильтра (см. рис. 8 в [5]).

⁵ Качественно аналогичный результат был получен в [8] другим способом.

области энергий порядка 1 эВ (см., например, [6]). По поводу исходного материала и технологии отжига сопутствующих радиационных дефектов см. в [5].

При температуре 77.4 К, когда мелкие примеси в Ge полностью ионизованы, из измерений эффекта Холла в области умеренных полей 3÷6 кЭ определялись кинетики концентрации основных носителей заряда: электронов — на n -ветви и дырок — на p -ветви. При анализе данных с целью определения соотношения между трансмутационными примесями кинетики нейтронного легирования линеаризовались в масштабе τ (1).

Основная информация извлекалась из исследования p -ветвей, для которых линеаризованная холловская концентрация дырок имеет вид [5]

$$p^0(\tau) = N_{71\text{Ga}}^0 \tau - (N_{75\text{As}} + 2N_{77\text{Se}})/r_p = \alpha_p \tau - \beta_p, \quad (3)$$

где r_p — величина холл-фактора, надстрочный индекс «0» соответствует холловским концентрациям для $r_p = 1$, коэффициент «2» соответствует максимальному двухзарядовому состоянию Se в Ge.⁶

Коэффициенты α_p и β_p определялись из процедуры подгонки опытных данных к (3) на ЭВМ. С помощью их находилось характеристическое время τ_3 [5]

$$\tau_3 \equiv K = \beta_p / \alpha_p, \quad (4)$$

даваемое отсечкой прямой (3) на оси абсцисс.

Из коротких по τ конечных участков n -ветвей находилось время τ_1^* компенсации мелких состояний ^{75}As . Из него определялось характеристическое время

$$\tau_1 = N_{75\text{As}} / N_{71\text{Ga}} \quad (5)$$

с учетом поправки на не прошедшую до конца реакцию распада $^{77}\text{As} \rightarrow ^{77}\text{Se}$ [5].

Отношение концентраций трансмутационных примесей селена и галлия определялось из (4) и (5)

$$N_{77\text{Se}} / N_{71\text{Ga}} = (\tau_3 - \tau_1) / 2. \quad (6)$$

В данной работе мы также используем количественные данные по исследованию кинетик p -ветвей, получаемые из измерений омической проводимости при 77.4 К.⁷

Согласно [5], наблюдается линейная по τ зависимость холловской подвижности

$$\mu(\tau) = \mu(\beta_\mu - \alpha_\mu \tau), \quad (7)$$

где $\mu \equiv \mu(1)$ — стационарное значение подвижности по завершении распада.

Учитывая (3) и (7), можем записать для кинетики проводимости

⁶ Об уровнях Se в Ge см. в [9] и в нашей последующей работе.

⁷ Для коротких по τ участков n -ветвей, анализируемых лишь с целью определения времени τ_1^* , не имеет значения, измеряется ли «зануление» холловской концентрации электронов или электронной проводимости, что использовалось нами в [5].

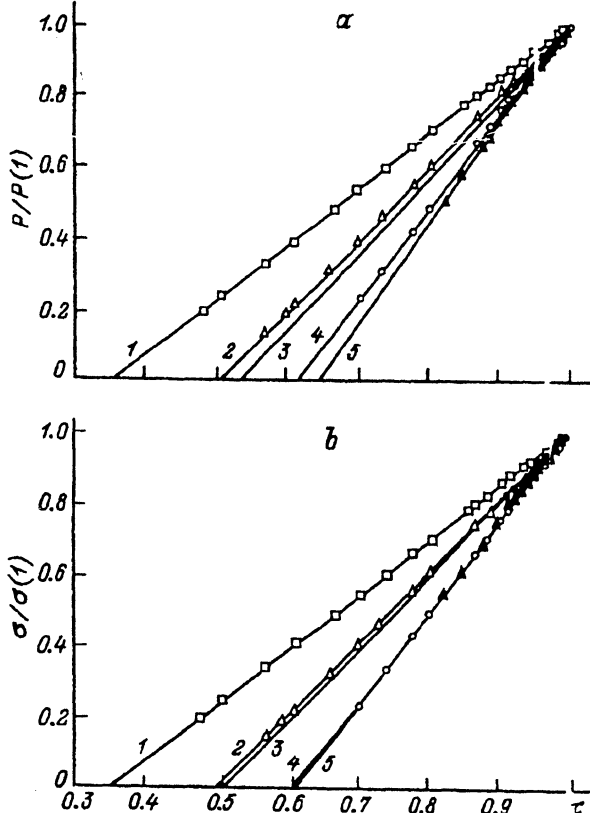


Рис. 1. Линеаризованные кинетики нейтронного легирования германия в канале В-1 реактора ВВР-М: *a* — для холловской концентрации основных носителей заряда; *b* — для проводимости при $T = 77.4$ К. Номера кривых соответствуют номерам образцов в таблице.

$$\sigma(\tau) = |e|p^0r_{p\mu}(\tau) = |e|r_{p\mu}(\alpha_p\tau - \beta_p)(\beta_\mu - \alpha_\mu\tau) = |e|r_{p\mu}(\alpha\tau^2 + b\tau + c), \quad (8)$$

где $a = -\alpha_p\alpha_\mu$, $b = \alpha_p\beta_\mu + \alpha_\mu\beta_p$, $c = -\beta_p/\beta_\mu$.

Таким образом, кинетика проводимости представляет собой квадратичную форму от τ . Соответствующие численные коэффициенты a , b и c находились из процедуры подгонки опытных данных к выражению (8) на ЭВМ. После этого определялись корни уравнения

$$\alpha\tau^2 + b\tau + c = 0. \quad (9)$$

Один из корней соответствует значению $\tau > 1$ и не имеет физического смысла, ибо $\tau \leq 1$. Другой же дает искомое значение $K = \beta_p/\alpha_p$.

3. Измеренные кинетики p -ветвей для холловской концентрации и проводимости представлены на рис. 1, *a*, *b*. Видно монотонное сокращение области p -ветви по мере увеличения поглощающей способности фильтров.

Полученные данные по концентрациям основных примесей ^{71}Ga , степени компенсации и отношениям концентраций трансмутационных примесей ^{77}Se и ^{71}Ga приведены в таблице. Как видно, значения компенсации, найденные по измерениям холловской концентрации K_p и проводимости K_σ , весьма близки. Последние в случае коротких по τ p -ветвей несколько менее точны. Поэтому

Образец	d , мм	N_{Ga}^0 , см ⁻³	K_p	K_0	$N^{77}Se/N^{71}Ga$
1	0	$(7.320 \pm 0.013) \cdot 10^{13}$	0.353 ± 0.003	0.349	0.029 ± 0.003
2	0.17	$(8.269 \pm 0.027) \cdot 10^{12}$	0.504 ± 0.004	0.500	0.098 ± 0.014
3	0.5	$(2.192 \pm 0.026) \cdot 10^{15}$	0.532 ± 0.004	0.507	≈ 0.116
4	0.9	$(4.451 \pm 0.031) \cdot 10^{12}$	0.614 ± 0.005	0.606	0.161 ± 0.006
5	0.5 (Cd) + 2.7 (In)	$(1.402 \pm 0.047) \cdot 10^{15}$	0.642 ± 0.002	0.614	≈ 0.171

при вычислении относительного выхода селена по выражению (6) использовались значения K_p . Однако кинетика проводимости несравненно проще в измерении, чем кинетика эффекта Холла, что делает такой способ во многих случаях более предпочтительным.

На рис. 2 показано поведение степени компенсации и относительного выхода трансмутационных примесей ^{77}Se в зависимости от толщины Cd-фильтра для канала В-1 реактора ВВР-М. Видно, что перекрываемый диапазон относительного изменения степени компенсации достигает примерно двух раз, а диапазон изменения отношения $N^{77}Se/N^{71}Ga$ — более чем пяти раз. При этом наибольшая скорость изменения обоих указанных параметров лежит в области достаточно тонких фильтров.

На рис. 3 показана зависимость степени компенсации и относительного выхода примесей ^{77}Se в виде функции от жесткости спектра нейтронов, в качестве меры которой взято отношение потоков быстрых нейтронов к тепловым Φ_f/Φ_{th} . Использовались данные по каналу В-1 реактора ВВР-М с величиной $\Phi_f/\Phi_{th} = 0.1 \div 0.125$, а также наши данные из [5] по каналу В-15 реактора ВВР-М с $\Phi_f/\Phi_{th} = 0.020 \div 0.033$ и для предела тепловых нейтронов. Заметим, что интервал изменения отношения Φ_f/Φ_{th} (рис. 3) перекрывает весь используемый на практике для целей нейтронного легирования диапазон. Как видно, изменение компенсации материала при этом не превышает 20% от предельного для тепловых нейтронов значения. В то же время изменение относительного выхода трансмутационной примеси ^{77}Se достигает трех раз.

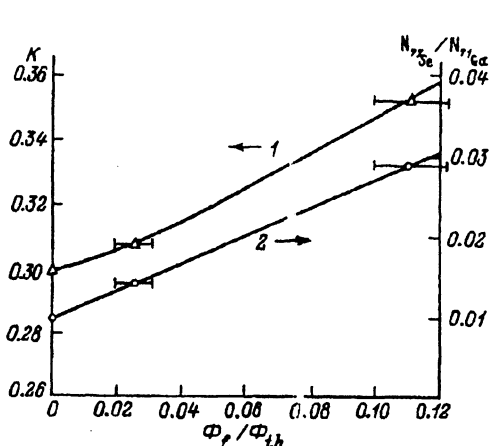
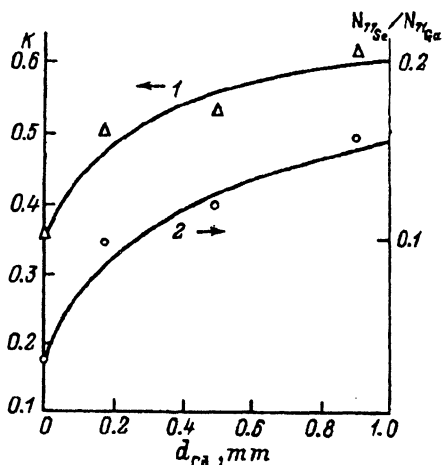


Рис. 2. Влияние толщины Cd-фильтра на степень компенсации (1) и относительный выход трансмутационной примеси ^{77}Se (2) при облучении в канале В-1 реактора ВВР-М.

Рис. 3. Влияние отношения потоков быстрых нейтронов Φ_f и тепловых Φ_{th} на степень компенсации (1) и относительный выход трансмутационных примесей ^{77}Se (2).

Обратим внимание на то, что данные, приведенные на рис. 3, *b*, в отличие от данных, приведенных на рис. 3, *a*, не связаны с определенным каналом. На рис. 3, *b* используется универсальное отношение Φ_f/Φ_{th} , поэтому он может служить для оценок как степени компенсации НЛГ, так и относительного выхода трансмутационных примесей ^{77}Se по величине Φ_f/Φ_{th} . Приведенные на рис. 3, *a*, *b* и в таблице данные позволяют получать «*K*»-серии НЛГ с заданными значениями компенсации в диапазоне от K_{th} до $2 K_{th}$.

Авторы благодарны В. А. Евсееву за содействие в нейтронном облучении, а также участникам семинара лаборатории неравновесных процессов в полупроводниках ФТИ им. А. Ф. Иоффе РАН за обсуждение результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] А. Г. Забродский. Письма ЖЭТФ, 33, 258 (1981).
- [2] А. Г. Забродский. В кн.: Физика атомного ядра и элементарных частиц. Материалы конф. по ядерно-физическим исследованиям. 219, Ч. 3. Харьков (1983).
- [3] Ю. А. Осипьян, В. М. Прокопенко, В. И. Тальянский. ЖЭТФ, 87, 269 (1984).
- [4] М. В. Алексеенко, А. Г. Андреев, А. Г. Забродский. Письма ЖТФ, 13, 1295 (1987).
- [5] А. Г. Забродский, М. В. Алексеенко. ФТП, 27, 2045 (1993).
- [6] К. Бекурц, К. Виртц. Нейтронная физика. Пер. с англ. под ред. Л. А. Микаэляна и В. И. Лебедева. М. (1968).
- [7] S. F. Mughabhab, M. Divadeeman, N. E. Holden. Neutron cross sections. BNL-325. 32—1 N. Y. (1981).
- [8] А. Г. Беда, Ф. М. Воробкало, В. В. Вайнберг и др. ФТП, 22, 2065 (1988).
- [9] H. G. Grimmeiss, L. Montelius, K. Larsson. Phys. Rev. B, 37, 6916 (1988).

Редактор Т. Н. Полянская