

Распределение изотопов, образованных в сверхпроводнике $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и сегнетоэлектрике $\text{PbZr}_{0.54}\text{Ti}_{0.46}\text{O}_3$ облучением высокоэнергетичными заряженными частицами

© В.А. Дидик, В.В. Козловский*, Р.Ш. Малкович, Е.А. Скорятина

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

*Санкт-Петербургский государственный технический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Didik@shuvpop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 26 мая 1998 г.)

Исследованы профили концентрации трансмутационных радиоактивных изотопов, образованных в сверхпроводнике $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и сегнетоэлектрике $\text{PbZr}_{0.54}\text{Ti}_{0.46}\text{O}_3$ при облучении высокоэнергетичными протонами (с энергией 10 и 15 MeV), дейтонами (4 MeV), ядрами ^3He и ^4He (20 MeV). Обнаружены два типа профилей концентрации: монотонные и профили с максимумом. Показано, что тип профиля изотопа определяется характером энергетической зависимости сечения ядерной реакции, приводящей к образованию данного изотопа.

Трансмутационное превращение ядер широко используется для производства радиоактивных изотопов и для анализа остаточных примесей в твердых телах. В последнее время заметное внимание привлекает трансмутационное легирование твердых тел посредством облучения тепловыми нейтронами. В отличие от нейтронов, обладающих высокой проникающей способностью, заряженные частицы проникают в твердое тело на весьма небольшую глубину. Вследствие этого трансмутационные изотопы образуются лишь в локальной приповерхностной области, где и формируются профили изотопов.

Ранее нами исследовались профили трансмутационных изотопов, образованных в соединениях A^{III}B^V [1,2] и в халькопирите CuInSe_2 [3,4] облучением высокоэнергетичными заряженными частицами: протонами, дейтонами, ядрами ^3He и ^4He . Настоящая работа посвящена получению и анализу профилей трансмутационных изотопов, образованных при таком облучении в сверхпроводнике $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) и в сегнетоэлектрике $\text{PbZr}_{0.54}\text{Ti}_{0.46}\text{O}_3$ (PZT).

1. Методика эксперимента

Плоскопараллельные образцы площадью 0.1–1 см² и толщиной 1–2 мм прижимались к охлаждаемой водой латунной пластине и через диафрагму 1 см² подвергались облучению в циклотроне [5]. Сверхпроводник YBCO облучался протонами (с энергией 10 MeV), дейтонами (4 MeV), ядрами ^3He (20 MeV) и ^4He (20 MeV). Сегнетоэлектрик PZT облучался протонами (с энергией 15 MeV) и ядрами ^4He (20 MeV). Монохроматичность пучка была не хуже 5%. Поток частиц варьировался в пределах от $6 \cdot 10^{11}$ до $3 \cdot 10^{12}$ см⁻² · s⁻¹, а время облучения — от 15 мин до 4 ч. Доза облучения менялась при этом от 10^{15} до 10^{16} см⁻².

Профили трансмутационных радиоактивных изотопов определялись путем последовательного удаления тонких плоскопараллельных слоев и измерения их активности. Слои удалялись шлифованием; активность слоев анализировалась с помощью калиброванного гамма-спектрометра с Ge(Li)-детектором. Равномерность распределения изотопов по сечению образца контролировалась методом автордиографии.

2. Полученные результаты и их обсуждение

В сверхпроводнике YBCO исследовались профили радиоактивных изотопов ^{65}Zn , ^{89}Zr , ^{64}Cu , ^{90}Nb , ^{66}Ga , ^{92m}Nb , ^{139}Ce , ^{141}Ce , образованных по реакциям [6] $^{65}\text{Cu}(p, n)^{65}\text{Zn}$, $^{89}\text{Y}(p, n)^{89}\text{Zr}$, $^{63}\text{Cu}(d, p)^{64}\text{Cu}$, $^{89}\text{Y}(^3\text{He}, 2n)^{90}\text{Nb}$, $^{63}\text{Cu}(^4\text{He}, n)^{66}\text{Ga}$, $^{89}\text{Y}(^4\text{He}, n)^{92m}\text{Nb}$, $^{136}\text{Ba}(^4\text{He}, n)^{139}\text{Ce}$, $^{138}\text{Ba}(^4\text{He}, n)^{141}\text{Ce}$. Как видно из рис. 1, $a-d$, концентрация достигает для разных изотопов значений $10^{13} - 10^{14}$ см⁻³ при облучении протонами, дейтонами и ядрами ^4He и немного превышает 10^{12} см⁻³ при облучении ядрами ^3He (величина концентрации отнесена к моменту окончания облучения). Глубина профиля составляет при этом величину 60–170 мкм. Наибольшая глубина профиля при облучении ядрами ^4He наблюдается для изотопа ^{66}Ga , а наименьшая — для ^{139}Ce . Все профили монотонно спадают от поверхности, за исключением профиля изотопа ^{92m}Nb , имеющего пологий максимум. Отметим, что облучение протонами проводилось при наклонном падении пучка (угол наклона к поверхности образца составлял 18°).

В сегнетоэлектрике PZT исследовались профили радиоактивных изотопов ^{48}V , ^{90}Nb , ^{92m}Nb , ^{206}Bi , ^{51}Cr , ^{93m}Mo , ^{99}Mo , образованных по реакциям [6] $^{48}\text{Ti}(p, n)^{48}\text{V}$, $^{90}\text{Zr}(p, n)^{90}\text{Nb}$, $^{92}\text{Zr}(p, n)^{92m}\text{Nb}$, $^{206}\text{Pb}(p, n)^{206}\text{Bi}$, $^{48}\text{Ti}(^4\text{He}, n)^{51}\text{Cr}$, $^{90}\text{Zr}(^4\text{He}, n)^{93m}\text{Mo}$,

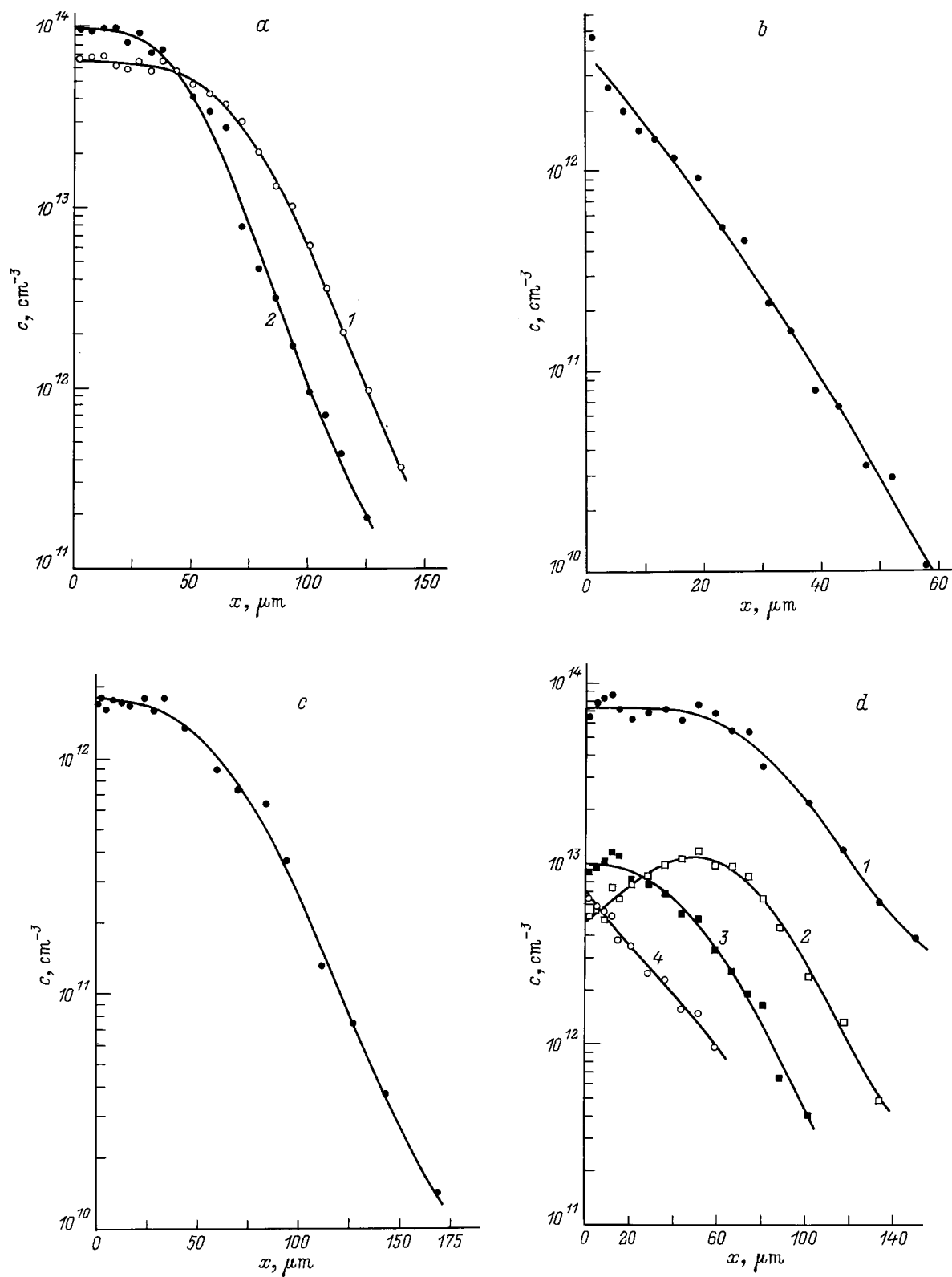


Рис. 1. Профили радиоактивных трансмутационных изотопов, созданных облучением $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ протонами (а), дейтонами (б), ядрами ^3He (с) и ^4He (д). а) 1 — ^{65}Zn , 2 — ^{89}Zr ; б) ^{64}Cu ; с) ^{90}Nb ; д) 1 — ^{66}Ga , 2 — ^{92m}Nb , 3 — ^{141}Ce , 4 — ^{139}Ce .

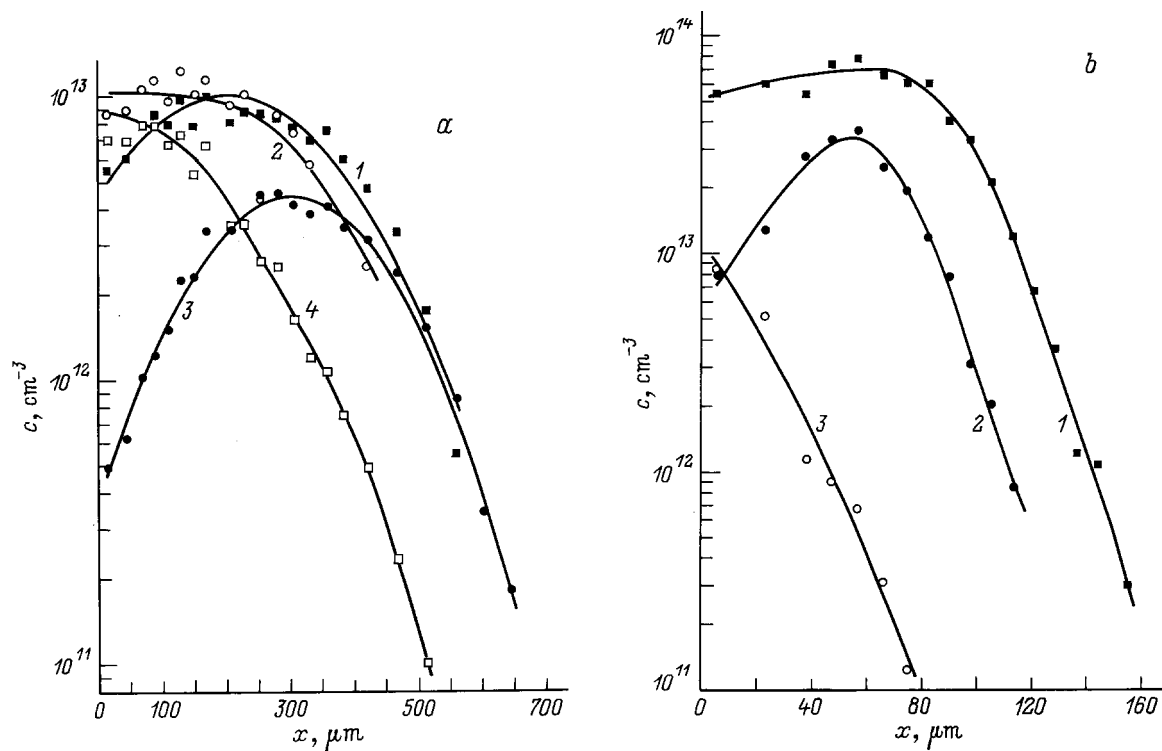


Рис. 2. Профили радиоактивных трансмутационных изотопов, созданных облучением $PbZr_{0.54}Ti_{0.46}O_3$ протонами (а) и ядрами 4He (b). а) 1 — ^{48}V , 2 — ^{90}Nb , 3 — ^{92m}Nb , 4 — ^{206}Bi ; б) 1 — ^{51}Cr , 2 — ^{99}Mo , 3 — ^{93m}Mo .

$^{96}Zr(^4He, n)^{99}Mo$. Для разных изотопов концентрация достигает значений $4 \cdot 10^{12} - 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ при облучении протонами и $10^{13} - 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ при облучении ядрами 4He (рис. 2, а, б). Глубина профилей составляет $70 - 150 \text{ }\mu\text{m}$ при облучении ядрами 4He и $420 - 650 \text{ }\mu\text{m}$ при облучении протонами. Профили изотопов ^{90}Nb , ^{206}Bi и ^{93m}Mo являются монотонными кривыми, тогда как профили изотопов ^{48}V , ^{92m}Nb , ^{51}Cr и ^{99}Mo имеют максимум. Облучение PZT протонами проводилось при непрерывном изменении угла падения пучка.

Как следует из полученных данных, при указанных выше условиях эксперимента наблюдаются два типа профилей концентрации: монотонные профили и профили с максимумом. Профили с максимумом наблюдаются для ряда изотопов, образующихся при облучении ядрами 4He по реакции $(^4He, n)$: ^{92m}Nb , ^{99}Mo , ^{51}Cr , а также при облучении протонами по реакции (p, n) : ^{92m}Nb и ^{48}V .

Для интерпретации особенностей профилей изотопов воспользуемся соотношением, связывающим концентрацию трансмутационного радиоактивного изотопа $c(x)$ с параметрами материала и облучения [2,7]:

$$c(x) = N\Phi\sigma(x)\lambda^{-1}(1 - \exp(-\lambda t)), \quad (1)$$

где N — концентрация стабильного изотопа материала, Φ — поток частиц, σ — сечение ядерной реакции, λ — постоянная распада радиоактивного изотопа, t — длительность облучения, x — координата (расстояние от поверхности образца). Концентрация $c(x)$ соответствует моменту окончания облучения.

Полагая, что поток частиц не меняется с координатой, $\Phi = \text{const}$, а также принимая во внимание, что $N = \text{const}$, нетрудно видеть, что поведение профиля изотопа определяется характером изменения сечения ядерной реакции с координатой, т. е. поведением функции $\sigma(x)$: $c(x) \propto \sigma(x)$. Сечение ядерной реакции является косвенной функцией координаты: непосредственным образом оно зависит от локальной энергии частиц, $\sigma = \sigma(E)$, а она в свою очередь изменяется с координатой, $E = E(x)$. Таким образом, имеет место зависимость $\sigma = \sigma(E(x))$. Энергия частиц E монотонно уменьшается с глубиной, тогда как зависимость $\sigma(E)$ может носить более сложный характер. В частности, для реакций $(^4He, n)$ зависимость $\sigma(E)$ изображается кривой с максимумом [8]. В этом случае характер функции $c(x)$ будет определяться соотношением между величиной E_m — положением максимума кривой $\sigma(E)$ — и E_0 — начальной энергией ядер 4He . Если $E_0 < E_m$, то с уменьшением энергии частиц, т. е. с глубиной, сечение реакции будет монотонно уменьшаться ($d\sigma/dE > 0$); следовательно, будет монотонно уменьшаться и концентрация трансмутационного изотопа $c(x)$. Напротив, если $E_0 > E_m$, то по мере уменьшения энергии частиц сечение реакции вначале будет увеличиваться ($d\sigma/dE < 0$), а после того как локальная энергия частиц уменьшится до величины E_m , станет монотонно уменьшаться. Таким же будет и поведение концентрации трансмутационного изотопа $c(x)$: концентрация от поверхности образца будет увеличиваться с глубиной, на некоторой глубине достигнет максимума, после чего

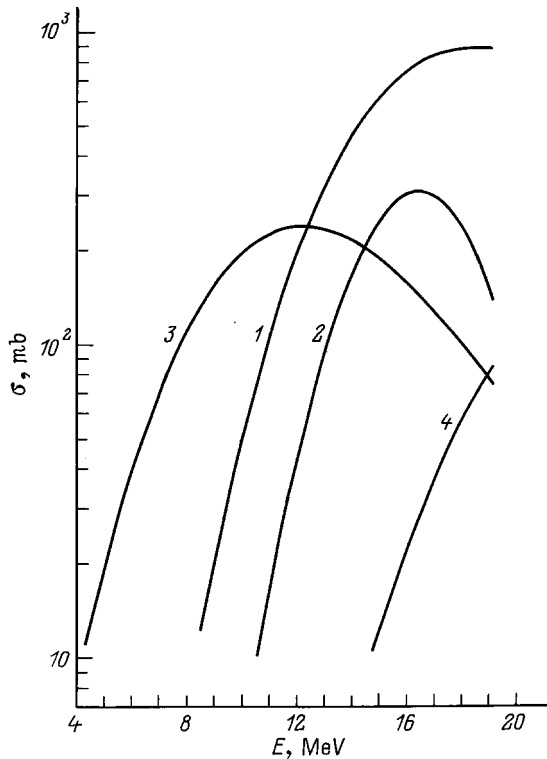


Рис. 3. Энергетическая зависимость сечения ядерных реакций. 1 — $^{63}\text{Cu}(^4\text{He}, n)^{66}\text{Ga}$, 2 — $^{89}\text{Y}(^4\text{He}, n)^{92m}\text{Nb}$, 3 — $^{96}\text{Zr}(^4\text{He}, n)^{99}\text{Mo}$, 4 — $^{90}\text{Zr}(^4\text{He}, n)^{93m}\text{Mo}$.

будет уменьшаться. Для реакций $(^4\text{He}, n)$ максимум, по данным [8], обычно располагается при энергиях, превышающих порог реакции E_{th} приблизительно на одну и ту же величину ΔE : $E_m = E_{\text{th}} + \Delta E$, где $\Delta E \simeq 11 \text{ MeV}$. Следовательно, для изотопов, образующихся по реакции $(^4\text{He}, n)$ с небольшим порогом E_{th} , будет выполняться неравенство $E_0 > E_m$, и профили таких изотопов должны быть кривыми с максимумом. Напротив, для изотопов с большим порогом E_{th} будет выполняться неравенство $E_0 < E_m$, и профили таких изотопов должны быть монотонными кривыми. Действительно, в наших экспериментах профили изотопов с малой величиной порога реакции — ^{92}Nb ($E_{\text{th}} = 7.2 \text{ MeV}$, $E_m = 18.2 \text{ MeV}$), ^{99}Mo ($E_{\text{th}} = 5.1 \text{ MeV}$, $E_m = 16.1 \text{ MeV}$), ^{51}Cr ($E_{\text{th}} = 2.9 \text{ MeV}$, $E_m = 13.9 \text{ MeV}$) — имеют максимум (для $E_0 = 20 \text{ MeV}$) (рис. 1, *d* и 2, *b*), тогда как профили остальных изотопов носят монотонный характер. Соображения, аналогичные приведенным выше, могут быть, по-видимому, использованы и для интерпретации поведения профилей изотопов, образующихся в результате других ядерных реакций.

Что касается глубины профилей концентрации, то она коррелирует с пробегом частиц и возрастает по мере уменьшения порога ядерной реакции. Действительно, как видно из рис. 1, *d*, наибольшая глубина профиля наблюдается для изотопа ^{66}Ga , которому соответствует наименьшая величина порога ($E_{\text{th}} = 6.9 \text{ MeV}$), а наименьшая — для изотопа ^{139}Ce ($E_{\text{th}} = 7.9 \text{ MeV}$).

Профили трансмутационных изотопов были использованы нами для определения энергетической зависимости сечения ядерных реакций $\sigma(E)$, приводящих к образованию данных изотопов. Процедура определения зависимости $\sigma(E)$ состояла в следующем [9]. Вначале из соотношения (1) по экспериментально найденной зависимости $c(x)$ определялась функция $\sigma(x)$, а затем с использованием зависимости $E(x)$ определялась искомая зависимость $\sigma(E)$. Зависимость $E(x)$ рассчитывалась нами по данным для тормозной способности элементов [10] с учетом принципа аддитивности. Полученные результаты иллюстрируются на примере нескольких реакций на рис. 3.

Список литературы

- [1] В.А. Дидик, В.В. Козловский, Р.Ш. Малкович, Е.А. Скорятина, Б.А. Шустров. Письма в ЖТФ **15**, 12, 19 (1989).
- [2] В.А. Дидик, В.В. Козловский, Р.Ш. Малкович, Е.А. Скорятина. ФТП **27**, 2, 265 (1993); **29**, 11, 2078 (1995).
- [3] В.А. Дидик, В.В. Козловский, Р.Ш. Малкович, Е.А. Скорятина. Письма в ЖТФ **20**, 16, 59 (1994).
- [4] K. Gartsman, L. Chernyak, V. Lyahovitskaya, D. Cahen, V. Didik, V. Kozlovsky, R. Malkovich, E. Skoryatina, V. Usacheva. J. Appl. Phys. **82**, 9, 4282 (1997).
- [5] Б.Н. Забродин, Л.Ф. Захаренков, В.В. Козловский. Вopr. атом. науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение, **3**(57), 87 (1991).
- [6] G. Maples, G. Goth, J. Cerny. Nucl. Data. **A2**, 429 (1967).
- [7] К. Вандекастеле. Активационный анализ с использованием заряженных частиц. Мир, М. (1991). 208 с.
- [8] H. Münzel, J. Lange. In: Uses of cyclotrons in chemistry, metallurgy and biology / Ed. C.B. Amphlett. Butterworths, London (1969). P. 373.
- [9] В.А. Дидик, В.В. Козловский, Р.Ш. Малкович, Е.А. Скорятина. Атом. энергия **77**, 1, 81 (1994).
- [10] О.Ф. Немец, Ю.Ф. Гофман. Справочник по ядерной физике. Наук. думка, Киев (1975).