



放射性束在固体物理和材料科学中的应用* ■

朱智勇 金运范

(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

摘 要 回顾了放射性核素在固体物理和材料科学中的应用, 并对高能放射性束流的应用前景作了展望.

关键词 放射性核素 放射性束流 固体物理 材料科学

分类号 O483

1 引言

核物理实验技术的进步总是对固体物理和材料科学的发展起着重要的推动作用, 例如, 反应堆中子用于材料的掺杂和结构分析, 电子存储环用于同步辐射光源. 近年来, 设计用于核物理实验的重离子加速器装置已成功地用于凝聚态物质的辐照研究工作, 由此揭示出诸如像潜径迹、各向异性生长等现象. 可以预见, 随着放射性束流装置的相继建成和投入运行, 它将对包括固体物理和材料科学在内的非核物理学科领域产生重要的影响. 本文针对固体物理和材料科学的研究工作, 对放射性核素的应用作了回顾, 结合兰州放射性束流装置的建立, 对高能放射性束流在相关领域里的应用前景作了展望.

2 放射性核素的成功应用和现存问题

放射性核素在固体物理和材料科学中的应用始于 20 年代末期, 当时人们第一次用放射性示踪方法研究了原子在固体材料中的扩散. 放射性核素在固体物理研究中真正富有成果的应用则是在 60 年代以后, 即在核素分离器的建成和各种超精细相互作用技术(如扰动角关联、穆斯堡尔谱学等)相继用于固体

物理研究之后. 由于超精细相互作用技术能够在原子水平上给出有关缺陷和杂质原子以及它们之间相互作用的信息, 因而逐渐发展成为这一领域常用的实验手段. 使用放射性核素开展的典型工作有扩散实验、用超精细相互作用技术研究材料的微观结构、辐射沟道测量以及通过核素嬗变进行材料掺杂等, 此外还有利用它进行深能级瞬变谱的测量、电容电压测量以及光致荧光分析等工作. 长期的实践证明, 放射性核素的应用极大地促进了固体物理和材料科学的研究工作.

2.1 扩散研究

放射性核素在固体物理研究中最原始最直接的应用就是作为示踪原子进行扩散测量. 通常是将放射性核素通过沉淀、蒸镀等方法沉积在样品的表面或低能注入到样品的近表面区域里, 经过一定的热处理后, 对样品进行切片或溅射减薄, 并测量各切片或不同厚度减薄后样品的放射性活度, 由此获知放射性原子在经相应热处理后的分布情况, 进而求得其扩散系数. 这种实验方法已多次用于金属和半导体材料的扩散研究. 近来, 人们还成功地利用 ^{205}Fr 的 α 发射特性^[1], 在将 ^{205}Fr (能量 60 keV)注入钾样品的同时(射

■ 收稿日期: 1998 - 07 - 15.

* 中国科学院“九五”重点项目基金(项目号 KJ952-S1-423)资助.

程约 60 nm), 通过测量 α 离子能谱而获得钫原子在钾中的深度分布数据, 从而大大简化了实验过程. 图 1 为 ^{205}Fr 的 α 能谱及钫在钾中的扩散系数与温度的关系. 由图可见, 钫在钾中的扩散要比钾在钾中的扩散大 10 倍左右, 这与理论预言基本相符, 表明大尺寸的杂质原子易于通过吸引空位而快速扩散.

相应的变化, 从而导致超精细相互作用参数发生变化, 例如, 使穆斯堡尔谱的峰产生位移和分裂、使 γ - γ 角关联受到扰动等. 因此, 通过对超精细相互作用参数的测量, 可以在原子尺度获知有关缺陷结构、动力学过程及其电子组态等方面的信息. 由于超精细相互作用技术依赖于具有特殊衰变性质的放射性核素, 因而它的发展和运用极大地促进了放射性核素在固体物理和材料科学中的应用.

2.3 嬗变掺杂

用离子注入对半导体材料进行掺杂是广泛应用于实验研究和半导体工业的常规手段. 使用放射性核素也可以实现对材料的掺杂, 只要其衰变后的产物正是所需的掺杂原子. 这种方式的掺杂不仅对在原子水平上研究掺杂原子的性质提供了便利, 其技术本身也有优于常规注入技术的特点, 例如, 可以通过跟踪放射性核素嬗变期间材料宏观性能所发生的变化, 找出掺杂原子和材料宏观性能之间的内在联系^[3]. 除此之外, 人们还发现^[4], 将 $^{119}\text{In}^+$ 和 $^{119}\text{Sb}^+$ 注入 III-V 族化合物半导体时, In 倾向于占据第 III 族元素晶格位置, 而 Sb 倾向于占据第 V 族元素晶格位置, 这样它们的衰变产物 ^{119}Sn 就有选择地固定在不同的晶格位置上, 而 ^{119}Sn 又是一种穆斯堡尔核素, 因而有助于进行掺杂后的研究. 预计, 这一技术的推广和发展将会对基础研究和应用技术产生巨大的影响.

2.4 深能级瞬态谱(DLTS)测量

DLTS 技术在研究半导体缺陷, 特别是在与杂质原子有关的缺陷研究方面是一项非常灵敏的技术^[5], 利用它可以方便快速地确定出深杂质能级的位置和相应杂质的浓度. 但这一技术也有其自身无法克服的缺点, 即不能识别产生深能级的杂质原子, 因而通常它只有和其它技术(如 PAC、MS)联合使用才能获得比较完整的信息. 近来人们发现, 这个缺憾可通过使用放射性核素得到弥补. 例如在研究 Au 和 Pt 在硅中产生的深能级

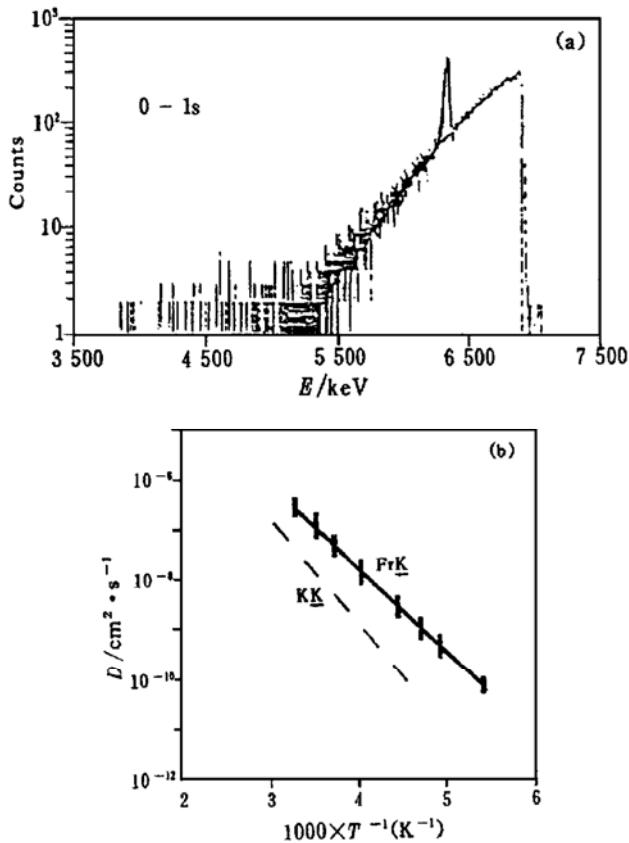


图 1 (a) 将 ^{205}Fr 注入 K 中 1 s 期间获得的 α 能谱; (b) Fr 在 K 中的扩散系数和 K 在 K 中的扩散系数比较^[1]

2.2 超精细相互作用技术

超精细相互作用技术^[2]是利用物质中存在的超精细场进行核物理研究的实验技术, 其中典型的有穆斯堡尔谱(MS)、扰动角关联(PAC)、核磁共振(NMR)以及核取向(NO)等测量技术. 自 60 年代以来, 这些技术的应用逐渐扩展到固体物理和材料科学领域, 并取得了一系列重要的成果.

利用超精细相互作用技术进行材料微观结构研究的基本原理是, 当放射性探针核附近存在缺陷时, 其所在位置的电磁场会发生

时,有人曾通过在硅中注入放射性核素 ^{195}Hg 后监测 DLTS 谱随时间的变化^[6],清楚地区分了与不同缺陷能级有关的杂质原子。

2.5 辐射沟道技术^[7]

在 60 年代中期发现沟道效应之后,用于研究杂质原子占位和缺陷位置的离子束沟道测量和辐射沟道测量也就相继展开.图 2 对离子束沟道技术和辐射沟道技术的测量原理

作了比较.由图可见,离子束沟道技术测量的是入射离子与靶原子或杂质原子的反应产物沿不同出射方向的产额分布,而辐射沟道技术则是利用镶嵌在靶材料中的放射性核素发射带电离子的特性,通过测量沿不同晶轴或晶面带电离子的出射情况来确定杂质原子(如放射性核素本身)或缺陷的位置和结构.与离子束沟道技术相比,辐射沟道技术具有以下特殊优势^[7].

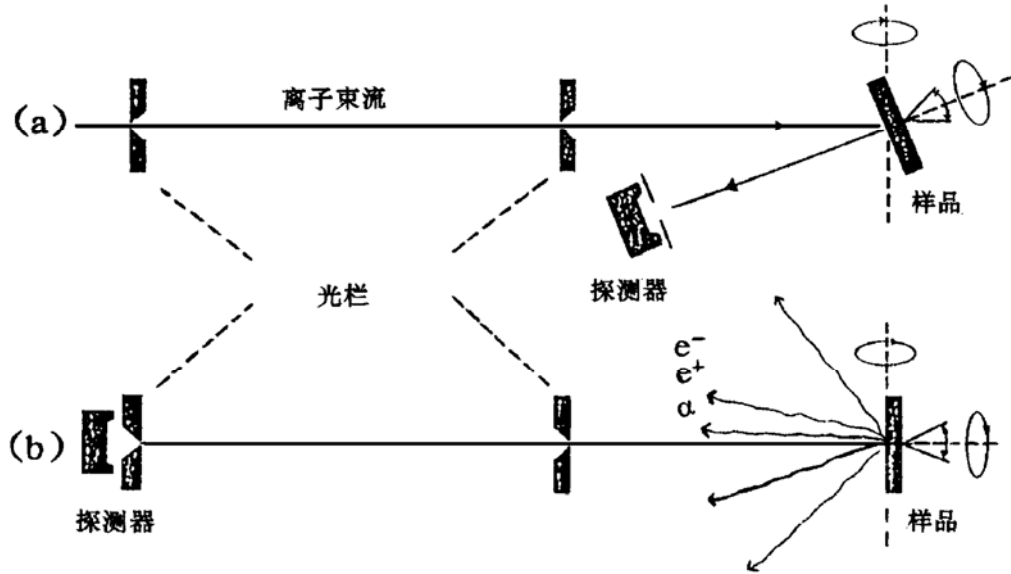


图 2 离子束沟道和辐射沟道技术测量原理示意图^[7]

(a)离子束沟道技术测量入射离子与晶态靶原子的反应产物沿不同方向的出射分布,(b)辐射沟道技术测量晶态靶中放射性杂质原子发射的带电粒子沿不同方向的出射分布。

(1) 所需放射性探针原子的注入剂量低于 10^{13} cm^{-2} , 远低于离子沟道技术, 从而用于辐射沟道实验的探针原子的浓度也比较低, 一般为 10^{17} cm^{-3} . 此外, 辐射沟道实验中不需要额外的分析束流, 因而在沟道分析中对材料的辐照损伤很低, 这一点在研究半导体中的缺陷时至关重要。

(2) 辐射沟道技术可以和超精细相互作用技术在相同或类似的实验条件下同时使用, 可以获得比较全面的信息. 例如, ^{111}In 的子核 ^{111}Cd 的级联 γ 跃迁可用于扰动角关联测量, 而相应的内转换电子则可用于辐射沟道测量^[8]. 这样, 扰动角关联(或穆斯堡尔谱学)技术能够通过测量探针原子附近与缺陷有关的电场梯度和局域磁场来鉴别和标定缺

陷, 且扰动角关联技术还能确定特定探针原子和缺陷复合体的对称性和晶格取向. 同时, 辐射沟道技术又能提供有关探针原子晶格位置的补充信息。

(3) 辐射沟道技术对靶材料和探针原子没有特殊要求, 而由离子束沟道背散射技术研究杂质原子的晶格占位时, 却只限于杂质原子比基体原子重的系统。

(4) 辐射沟道技术为研究化合物半导体中杂质原子的晶格占位创造了条件, 如图 3 所示. 在 GaP 化合物中, 当放射性核素处于 P 的晶格位置时, 其发射的电子沿 $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 100 \rangle$ 方向的分布将不同于当其处于 Ga 的晶格位置, 由此可知放射性杂质原子的具体占位情况。

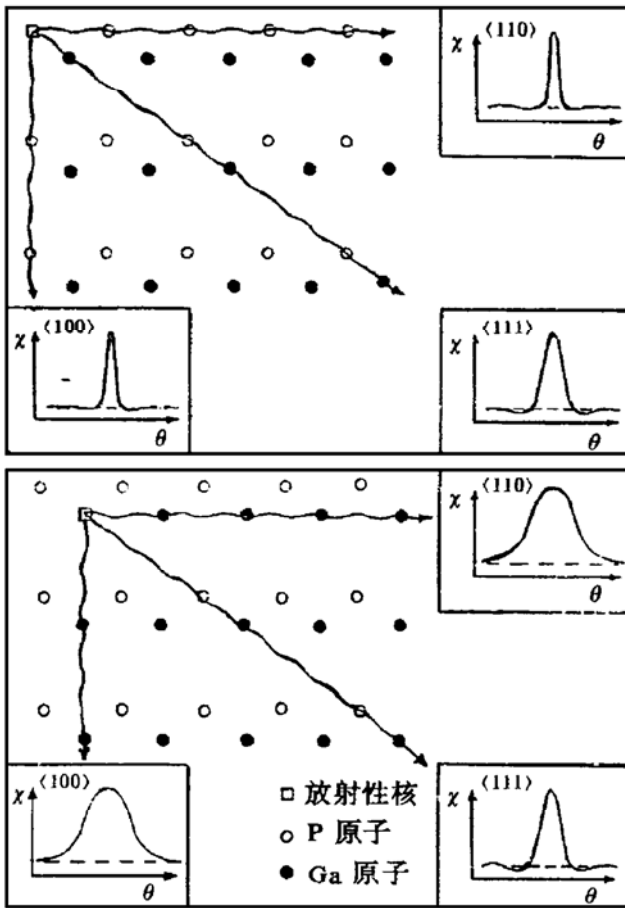


图 3 GaP 中放射性核素在不同晶格位置时沿不同方向的辐射沟道示意图^[7]

从上面的回顾可以看到，放射性核素在固体物理和材料科学研究中发挥着重要的作用，且在某些方面独具特色，但放射性核素的实际应用远没有像人们预料的那样广泛。例如，和离子束沟道技术相比，同时起步于 60 年代中期的辐射沟道技术，虽然具有许多优于离子束沟道技术的特点，却远没有像离子束沟道技术那样得到广泛的应用。究其原因，主要是因为缺乏所需的放射性核素，这实际上是制约放射性核素应用的主要因素。长期的实践证明，放射性核素的成功应用取决于两点，一是能否获得所需的放射性核素，二是是否有合适的样品制备技术。利用加速器在线生产放射性核素可以很好地满足第一个要求，而样品的制备则可以通过高能放射性束流的在线注入来实现。高能量的放射性束流既可以由高能重离子碰撞直接产生，也可由对低能放射性核素的后加速系统来完成，兰州放射性束流装置就是一种通过弹核

碎裂方式在线生产高能放射性束流的实验装置^[9]。

3 高能放射性束流的特点和应用前景

高能放射性束流的产生和在线注入的实现，为放射性核素在固体物理和材料科学中的应用创造了极为有利的条件。总地说来，高能放射性束具有以下特点。

(1) 使用高能放射性束流可以对样品进行有选择的深度注入。由于深部注入的放射性核素远离表面缺陷和空间电荷区，因而可以用来研究对费米能级很敏感的一些现象，例如由对运动杂质原子和缺陷的捕获而产生的钝化现象。深度注入也使得不相溶系统中的扩散研究成为可能。例如，在研究 Fr 在 K 中的扩散时人们发现^[1]，在²⁰⁵Fr 的 α 能谱上有一额外的峰出现。通过分析认为，此峰为²⁰⁵Fr 的子核²⁰¹At 所发射的 α 所致，且由其位置可断定²⁰¹At 主要分布在样品的表面，这一现象是和母核²⁰⁵Fr 的分布相抵触。究其原因，发现是 At 在 K 中的固溶度很低，因而倾向于向样品表面迁移。由此可见，只有借助于高能放射性束的深度注入才有可能研究用低能注入实验无法研究的不相溶系统中的扩散问题。此外，还可以同时使用不同的实验技术来研究高能注入产生的“大块”样品，从而能够比较和“校刻”不同的实验技术。除此之外，通过选取合适的能量进行注入，还可研究一些用其它技术难以研究的样品，如薄膜和层状材料。

(2) 通过加速器在线产生的大量短寿命放射性核素为固体物理和材料科学的研究创造了新的条件。由于衰变数反比于放射性核素的寿命，因而用短寿命放射性核素进行研究时，所需的放射性核素的剂量就可以很低，这就大大降低了探针原子的浓度(最低可到 10^{10} cm^{-3})和对样品的辐照损伤，这一特点对研究那些对辐照非常灵敏的材料，如半导体、聚合物以及生物材料等，极为有利。同样，在介质中产生孤立的杂质原子本身也达到了理论工作者的要求。此外，通过变能注入还

可以产生所需的注入分布,由此可使探针原子的浓度由通常的 $10^{17} \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 降低到 $10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 的水平.

可以预见,高能放射性束流的这些特点将极大地促进放射性核素在固体物理和材料科学中的应用以及相关技术的发展.目前,在半导体加工技术中,用高能离子注入在选定区域里有意产生缺陷来稳定半导体性能的技术^[10,11]已成为人们关注的一个焦点,这种所谓的“缺陷工程”能否成功,取决于人们对相应缺陷及其动力学过程认识的程度,预计高能放射性束流结合已有的核物理技术将在这一领域大显身手.当然,放射性束流的应用并不只局限于半导体物理,随着离子束材料改性技术的广泛应用,改性材料已涉及许多新的材料(如光敏材料),在这些材料中杂

质和缺陷的稳定性问题代表着当今基础研究和 applications 的前沿,它将是高能放射性束流充分发挥作用的新的天地.

4 结束语

放射性核素在固体物理和材料科学中的成功应用取决于是否有合适的放射性核素以及是否有相应的样品制备技术.利用加速器可以生产多种类的放射性核素,而通过放射性束流的在线注入,可以制备所需的样品.可以预见,随着兰州放射性束流装置的正式投入运行和不断完善以及国际上高能放射性束流装置的相继建成,放射性核素在固体物理和材料科学中的应用及其有关的技术将会得到前所未有的发展.

参 考 文 献

- 1 Haas H, ISOLDE Collaboration. Condensed Matter Physics with Radioactive Ion Beams. Nucl Instr and Meth, 1996, B107: 349~359
- 2 Recknagel E, Wichert Th. Defects in Metals Studied by Implanted Radioactive Atoms. Nucl Instr and Meth, 1981, 182/183: 439~455
- 3 Gwilliam R, Sealy B J, Vianden R. The Electrical and Radioactive Assessment of the Transmutation Doping of GaAs following Implantation by In¹¹¹. Nucl Instr and Meth, 1992, B63: 106~108
- 4 Lang D V. Deep-level Transient Spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors, J Appl Phys, 1974, 45(7): 3 023~3 032
- 5 Weyer G, Peterson J, Damgaard S *et al.* Site-selective Doping of Compound Semiconductors by Ion Implantation of Radioactive Nuclei. Phys Rev Lett, 1980, 44 (3): 155~157
- 6 Petersen J, Nielsen J. Identification of Band-gap States by DLTS on Radioactive Probes: The case of Au and Pt. Appl Phys Lett, 1990, 56(12): 1 122~1 124
- 7 Hofsaess H, Lindner G. Emission Channeling and Blocking. Phys Rep, 1991, 201(3): 121~183
- 8 Lindner G, Bendel K, Deicher M *et al.* Defects in InCu Simultaneously Observed by Channeling and PAC. Nucl Instr and Meth, 1982, 194: 193~197
- 9 罗亦孝. 兰州重离子加速器冷却储存环. 现代物理知识, 1998, 10(2): 14~24
- 10 Moffat S. Ion Implantation from the Past and into Future. Nucl Instr and Meth, 1995, B96: 1~6
- 11 Jones K S, Robinson H G, Listebarger J *et al.* Studies of Point Defect/dislocation Loop Interaction Processes. Nucl Instr and Meth, 1995, B96: 196~201

Applications of Radioactive Beam in Solid State Physics and Material Science

Zhu Zhiyong Jin Yunfan

(Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000)

Abstract The application of radioactive isotopes to solid state physics (下转第 130 页)

(上接第 103 页)

and material science is reviewed and the perspectives with high energy radioactive ion beams are discussed.

Key words radioactive isotope radioactive ion beam solid state physics material science

Classifying number O483