

ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ**Изотопическая инженерия**

В.Г. Плеханов

*Краткий обзор основных приложений нового и чрезвычайно многообещающего направления современной технологии — изотопической инженерии. Оптическое волокно, оптоэлектроника, твердотельные перестраиваемые лазеры, нейтронное трансмутационное легирование, равно как и хранение информации наряду с фундаментальными исследованиями — далеко не полный перечень этих возможностей.*

PACS numbers: 42.70.Hj, 42.81.Qb, 61.72.Tt, 66.30.Hs

**Содержание**

1. Введение (1245).
2. Изотопическое ограничение света и фононов (1246).
3. Генерация света в изотопически смешанных средах (1247).
4. Изотопическое хранение информации (1249).
5. Нейтронное трансмутационное легирование (1249).
6. Диффузия в изотопических гетероструктурах (1250).
7. Изотопические структуры — объект фундаментальных исследований (1251).
8. Другие неиспользованные приложения изотопической инженерии (1251).

Список литературы (1252).

**1. Введение**

Общеизвестен факт, что большинство химических элементов имеют более чем один стабильный изотоп (см., например, [1]). Введенное Содди [2] почти век назад понятие изотопа согласно современным представлениям ядерной физики представляет атомное ядро одного и того же химического элемента с разным количеством нейtronов. Таким образом, изотопы одного и того же химического элемента различаются только массой ядра, а следовательно, частотой предельных оптических и нулевых колебаний, что в свою очередь вызывает довольно богатую перестройку энергетического спектра электронных возбуждений [3–5]. В первую очередь необходимо отметить давно известный факт — изменение величины энергии межзонных переходов  $E_g$  при изотопическом замещении. Если в Ge при изотопическом замещении величина  $E_g$  изменяется на  $\sim 1$  мэВ, то в алмазе и в кристаллах  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$  на 13 и 104 мэВ соответственно. Это довольно большие величины и они легко измеряются методами современной

экспериментальной физики. Необходимо добавить, что в случае кристаллов  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$  при изотопическом замещении нелинейно изменяется и величина энергии связи экситона на 20 % (с  $E_B = 40$  мэВ для чистого LiH до 50 мэВ для чистого LiD [5]). Количественное исследование концентрационной зависимости величины  $E_B$  позволяет получать принципиально новую информацию о константе экситон-фононного взаимодействия в случае фрелиховского механизма рассеяния свободных экситонов на LO фононах, трансляционной массе экситона, массе носителей тока и т.д. (см. подробнее [5]). Изотопические эффекты в динамике решетки довольно подробно рассмотрены в обзоре [6].

Говоря о динамике решетки, мы прежде всего имеем в виду влияние изотопического замещения на упругие, термические и колебательные свойства кристаллической решетки. Если изменение постоянной решетки составляет  $\Delta a/a \sim 10^{-3} - 10^{-4}$ , то изменение  $\delta c_{ik}$  упругих постоянных — уже несколько процентов. Очень заметные и общие эффекты наблюдаются при изотопическом замещении в фононном спектре, особенно в спектральном районе LO фононов. Сдвиг LO линий в алмазе лежит в пределах  $50 \text{ cm}^{-1}$ , тогда как в кристаллах  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$  он превосходит  $200 \text{ cm}^{-1}$ . Такой большой эффект в случае кристаллов  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$  связан прежде всего с сильным потенциалом рассеяния, который обусловлен большим изменением массы при изотопическом замещении.

Небольшие сдвиги линий и их уширения в спектре рассеянного света полупроводниковых кристаллов (Ge, C) удается количественно описать в модели когерентного потенциала (см. также [3]). Наличие локальных колебаний в спектре рассеянного света кристаллов  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ , равно как и двумодовый характер LO фононов при большой концентрации изотопов делает недостаточным применение линейного приближения метода когерентного потенциала при описании динамики решетки этих кристаллов. Попутно отметим также, что при изотопическом замещении теплопроводность в максимуме в обогащенном  $^{70}\text{Ge}$  (99,99 %)  $k_m = 10,5 \text{ кВт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ , т.е. на порядок выше, чем в натуральном Ge (аналогично и в C, Si). Несмотря на столь большие эффекты в различных характеристиках твердого тела при изотопическом заме-

**В.Г. Плеханов.** Институт вычислительной техники и информатики, 10416 Таллинн, ул. Эрика 7а, Эстония  
Тел. (10-372) 6-603-150  
E-mail: vgpglekhanov@hotmail.com

Статья поступила 14 февраля 2000 г.,  
после доработки 25 августа 2000 г.

щении, до настоящего времени сделано удивительно мало попыток использовать в прикладных целях структуры с упорядоченным (или неупорядоченным) распределением различных изотопов одного и того же химического элемента. Пожалуй, главное здесь исключение — это применение изотопической инженерии в трансмутационных превращениях, которые будут рассмотрены ниже (см. подробнее раздел 5).

Настоящая работа посвящена краткому обзору потенциальных и реальных приложений изотопической инженерии изоляторов и полупроводников — вопросу более чем актуальному с точки зрения прикладного аспекта фундаментальных исследований. Вторая, и не менее важная причина настоящего обзора — это привлечение исследователей, в том числе физиков-прикладников, к этой новой и чрезвычайно многообещающей области науки.

## 2. Изотопическое ограничение света и фонов

В качестве первого наиболее важного приложения изотопической технологии необходимо рассмотреть оптоэлектронику с изотопическими элементами и, в частности, оптическое волокно. Хорошо известно, что для типичного твердого тела различного изотопического состава постоянная решетки варьируется в пределах [6, 7]

$$\frac{\Delta a}{a} \sim 10^{-3} - 10^{-4}. \quad (1)$$

Например, современные прецизионные экспериментальные данные дают значения величины  $\Delta a/a = 1,5 \times 10^{-4}$  для кристаллов алмаза различного изотопического состава, тогда как для кристаллов  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$  эта величина для крайних значений  $x$  равна 0,0037 (см. подробнее [6]).

Далее, мы будем предполагать, что оптическое волокно изготовлено из одного химического элемента, но различного изотопического состава: остав выполнен из одного изотопа, а обкладка — из другого. Граница между оставом и обкладкой (выполненных из различных изотопов) образует изотопический интерфейс. Различие в значении показателя преломления на обеих сторонах изотопического интерфейса будет приводить к эффекту полного внутреннего отражения и, следовательно, может обеспечивать альтернативный путь, приводящий к ограничению света. Для количественной оценки рассмотрим границу между изотопически разным составом  $\text{SiO}_2$ , где материалы остава и обкладки имеют идентичный химический и структурный, но изотопически различный состав, т.е., например,  $^{28}\text{Si}^{16}\text{O}_2$  и  $^{30}\text{Si}^{18}\text{O}_2$  соответственно (рис. 1). В первом приближении можно положить, что показатель преломления пропорционален числу рассеивателей в единице объема. Далее, используя соотношения Клаузиса–Моссоти (см., например, [8]) для показателя преломления, можно получить следующее соотношение (действительное при  $\Delta n \ll n$ ):

$$\frac{\Delta n}{n} \approx 3c \frac{\Delta a}{a}, \quad (2)$$

где  $c$  — безразмерный подгоночный параметр порядка единицы (см. также [7]). Подставляя (1) в (2), мы будем

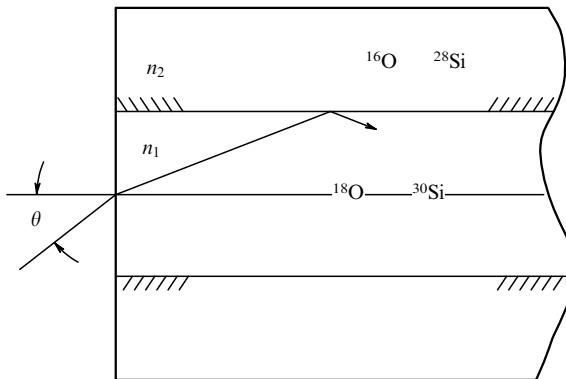


Рис. 1. Изотопическое волокно, в котором сердцевина и обкладка выполнены из чистого  $\text{SiO}_2$ , но различного изотопического состава [7].

иметь

$$\frac{\Delta n}{n} \sim 3 \times (10^{-3} - 10^{-4}). \quad (3)$$

Применяя далее закон преломления света Снеллиуса, мы получим следующее выражение для угла преломления при распространении света через преломляющую границу:

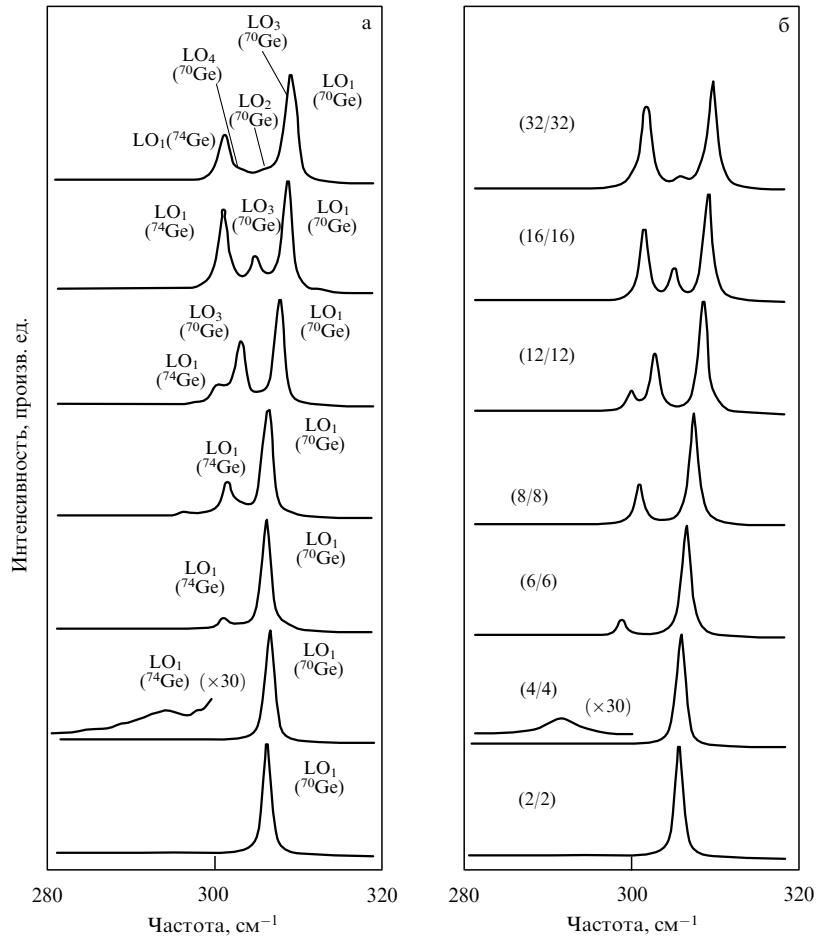
$$\Phi = \arcsin \left[ \frac{n_1}{n_2} (\sin \alpha) \right], \quad (4)$$

где  $\alpha$  — угол падения. (Для скользящего луча  $\alpha \approx 90^\circ$ . Это условие обеспечивает ограничение света в волокне.) Комбинирование соотношений (3) и (4) приводит к оценке значения угла  $\Phi$ :

$$\Phi \sim 0,2 - 4,5^\circ. \quad (5)$$

Следовательно, изотопическое волокно, в котором материал сердцевины и обкладки выполнен из разных изотопов одного и того же химического элемента, вполне обеспечивает необходимое для эффекта полного внутреннего отражения значение угла преломления  $\Phi$  [9]. Сравнение постоянных решетки (см., например, [6] и выше) показывает, что их различие порядка одной тысячной и, следовательно, будет приводить к незначительным внутренним напряжениям между сердцевиной и обкладкой. Отсюда следует важный вывод, что изотопическая среда является весьма перспективным материалом для оптоэлектроники (производство различных интегральных схем) и, в частности, для производства оптического волокна.

Другим не менее важным приложением изотопической инженерии являются изотопические сверхрешетки, идея создания которых была выдвинута Халлером еще в 1990 г. [4]. Главная причина исследования сверхрешеток лежит в их одномерном характере, который делает возможным локализацию фононов (электронов), несмотря на малую величину различия масс используемых изотопов. Например, тонкий слой изотопа  $^{70}\text{Ge}$ , помещенный в объем, изготовленный из изотопа  $^{74}\text{Ge}$ , всегда вызывает появление локальной колебательной моды, частота которой больше предельной частоты колебаний изотопа  $^{74}\text{Ge}$ . Первые экспериментальные исследования, посвященные изучению спектров комбинационного рас-



**Рис. 2.** Измеренный (а) и рассчитанный (б) спектр комбинационного рассеяния серии изотопических сверхрешеток  $^{70}\text{Ge}_n\text{-}^{74}\text{Ge}_n$ , показывающий различные ограниченные колебательные моды в слоях, выполненных из изотопов  $^{70}\text{Ge}$  и  $^{74}\text{Ge}$  [10].

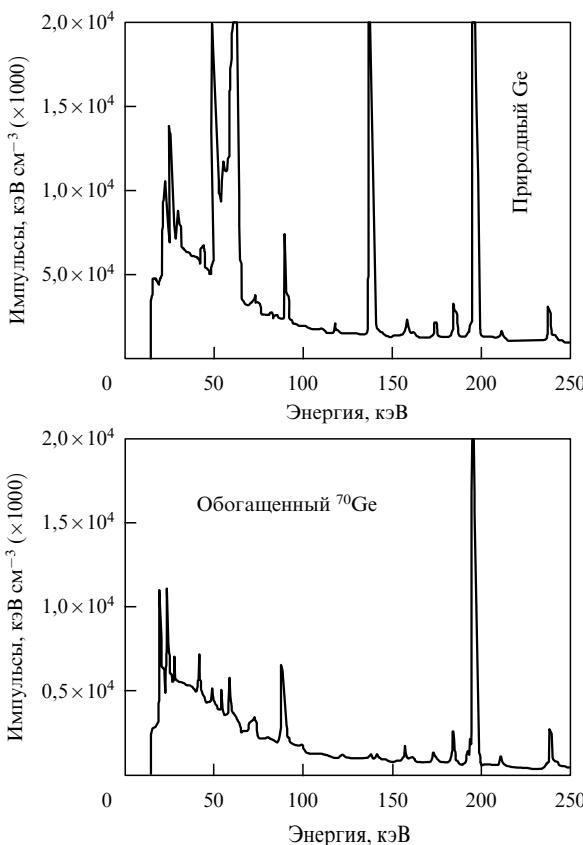
сения сверхрешеток германия с периодом  $2 \leq n \leq 32$ , были выполнены Спитцером и др. [10]. В этой же работе было проведено сравнение экспериментальных спектров комбинационного рассеяния света с теоретическими (рис. 2). Как видно, из этого сравнения было получено неплохое согласие. Отметим, что теоретическая модель включала в себя смешивание двух монослоев, образующих интерфейс. Число пиков, наблюдаемых в спектрах комбинационного рассеяния, соответствовало различным "ограниченным" модам, которые предпочтительно возникают в слоях из изотопов  $^{70}\text{Ge}$  или  $^{74}\text{Ge}$ . Полученные Спитцером и др. результаты продемонстрировали, что изотопические образцы сверхрешеток представляют прекрасную модельную систему для исследования ограничения оптических фононов в сверхрешетках, что уже отмечалось также в обзоре Халлера [4].

Попутно отметим еще одно очень важное приложение изотопически чистого полупроводникового кристалла германия. Хорошо известно, что именно этот материал служит детектором излучения с широкой областью чувствительности, покрывающей область от ИК до  $\gamma$ -излучения. Шум (так называемые "пички") и фон сигнала часто происходят от захвата ядрами кристаллообразующих частиц (нейтроны, протоны) космического излучения с последующим  $\beta$ -распадом. Совершенно ясно, что соответствующий отклик будет зависеть от числа нейтронов, другими словами, от типа ядра, т.е. от изотопического состава [11, 12]. Известно также,

что в случае германия эти процессы наиболее сильны для изотопа  $^{70}\text{Ge}$  [11]. В качестве примера на рис. 3 представлен в области 10–250 кэВ фон отклика детектора из натурального германия и изотопа  $^{70}\text{Ge}$  [12], т.е. то, что можно назвать "темновым сигналом". Ясно видно существенное снижение фона в случае детектора из изотопа  $^{70}\text{Ge}$  по сравнению с детектором из природного Ge. Именно применение детектора излучения из изотопически чистого германия существенно увеличивает его чувствительность (см. подробнее [11, 12]).

### 3. Генерация света в изотопически смешанных средах

В последние десятилетия "прикладное поле" изотопически смешанных сред на основе гидрида лития существенно расширилось. Кроме традиционного использования этого материала в ядерной отрасли [13, 14], в последнее время появились и другие весьма перспективные приложения. Прежде всего это относится к широко обсуждаемой в литературе [15–17] возможности получения на основе гидрида лития при довольно низком давлении перехода диэлектрик–металл с зоной металлической проводимости, генетически связанной с водородом (см. также [19, 20]). Совершенно уникальное приложение LiH (LiD) получил в инициировании термоядерной реакции. Среда на основе гидрида лития рассматривается как перспективная среда в качестве

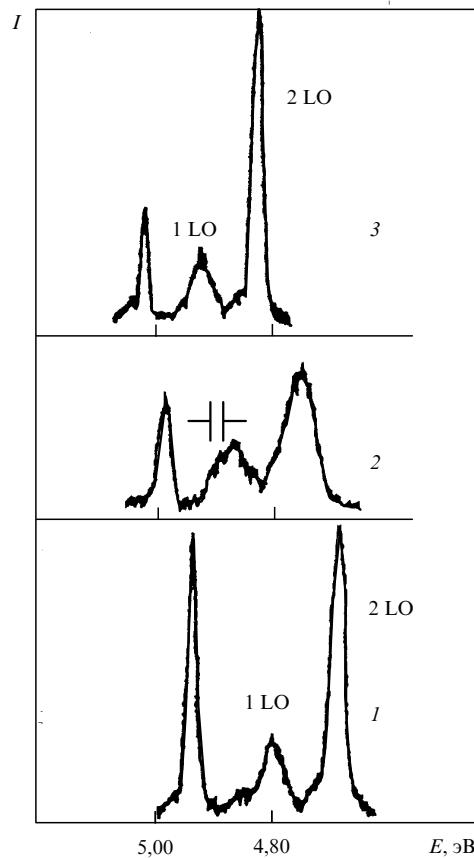


**Рис. 3.** Спектральное распределение фона отклика для детектора из натурального германия и обогащенного изотопом  $^{70}\text{Ge}$ , согласно [12].

мишени для инициирования лазерным излучением термоядерной реакции [18].

Еще одно приложение, на котором мы остановимся более подробно, связано с возможностью использования изотопически смешанной среды (например,  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ ,  $^{12}\text{C}_x^{13}\text{C}_{1-x}$ ) в качестве генератора когерентного излучения в УФ части спектра [21, 22]. Для достижения этой цели предполагается использовать непрямые электронные переходы с участием, например, продольных оптическихphonонов. Возможность использования непрямых электронных переходов с участием phonонов для получения когерентного излучения в полупроводниках впервые отмечена Басовым с сотрудниками [23]. Стимулированное излучение на линиях излучения LO phonонных повторений в CdS при двухфотонном возбуждении впервые было получено Кулевским и Прохоровым [24] (см. также [25]).

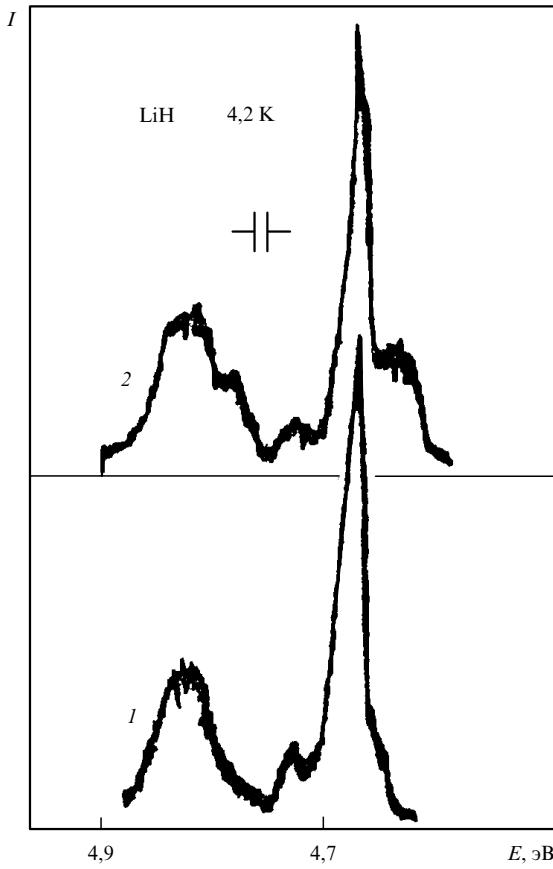
При учете рельефа потенциала смешанных кристаллов нельзя исключать полностью и возможность получения стимулированного излучения на бесфононной линии экситонной люминесценции [26]. Наблюдение линий излучения LO phonонных повторений в широкощелевых диэлектриках [5, 21] позволило поставить вопрос о возможности получения стимулированного излучения в УФ части спектра с механизмом генерации на собственных электронных переходах, где твердотельных лазеров практически нет. Именно большое значение квантового выхода собственной (например, экситонной) люминесценции чистых кристаллов ( $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ ,  $^{12}\text{C}_x^{13}\text{C}_{1-x}$ ) обеспечивает высокое значение энергосъема на единицу



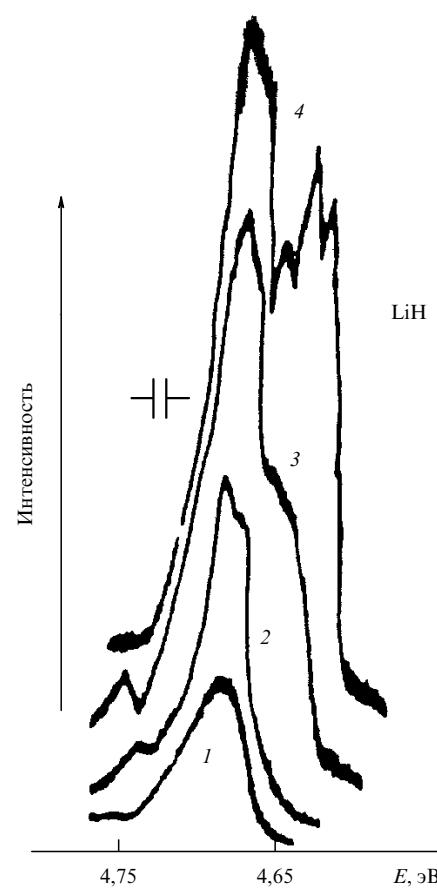
**Рис. 4.** Спектры фотолюминесценции свободных экситонов при 4,2 К: 1 —  $\text{LiH}$ ; 2 —  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ ; 3 —  $\text{LiD}$  [5].

объема генерирующего материала. В качестве примера на рис. 4 приведен спектр экситонной люминесценции при низкой температуре чистых ( $\text{LiH}$  и  $\text{LiD}$ ) и смешанных ( $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ ) кристаллов. Общим для всех трех спектров является наблюдение бесфононной линии излучения свободных экситонов и ее 1LO и 2LO фононных повторений. Рост плотности возбуждающего света вызывает возгорание излучения на длинноволновом крыле линий излучения 1LO и 2LO повторений (рис. 5) со скоростью, большей для линии 1LO повторения [21]. Более детально зависимость интенсивности люминесценции и формы линии 2LO повторения от плотности возбуждения показана на рис. 6.

Представленные результаты свидетельствуют, что с ростом плотности возбуждения вначале наблюдается небольшое сужение с последующим возгоранием тонкой, возможно, модовой структуры, многократно наблюдавшейся ранее в полупроводниковых кристаллах [25]. Такая нелинейная и, по-видимому, пороговая зависимость интенсивности люминесценции от плотности возбуждения с наблюдавшейся тонкой структурой свидетельствует о наблюдении стимулированного излучения в этих кристаллах. А поскольку при вариации концентрации изотопов (Н или D) частота наблюданного излучения "движется" вслед за этим изменением концентрации изотопов, то легко получить таким образом перестройку наблюданного излучения в области 4,5–5,1 эВ (см. подробнее [27]) на кристаллах  $\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ , тогда как на кристаллах  $^{12}\text{C}_x^{13}\text{C}_{1-x}$  величина спектральной перестройки составляет  $\sim 15$  мэВ.



**Рис. 5.** Спектр люминесценции свободных экситонов кристаллов LiH в области линий излучения 1LO и 2LO фоновых повторений при 4,2 К при низкой (1) и высокой (2) плотности возбуждения фотонов с энергией 4,99 эВ. Масштаб различных кривых различен [27].



**Рис. 6.** Зависимость формы линии 2LO повторения от плотности возбуждения [27]: 1 —  $0,05I_0$ ; 2 —  $0,09I_0$ ; 3 —  $0,40I_0$ ; 4 —  $I_0$ .

#### 4. Изотопическое хранение информации

С каждым годом все более и более информационные аспекты физических процессов становятся предметом фундаментальных исследований. Многие из них основаны на идеальных мысленных экспериментах с одной частицей. Это может быть частица идеального газа, броуновская частица и т.д. Разумеется, не меньший интерес представляют с этой точки зрения конденсированные среды (см., например, [28–30] и ссылки там). Практическая сторона дела до настоящего времени была связана с насущной необходимостью создания научных основ нанотехнологии, позволяющей, в частности, получать функциональные элементы микроэлектроники нанометрового диапазона. С принципиальной точки зрения исследование информационного аспекта механизма формирования неравновесных структур представляет собой логически неизбежное звено дальнейшего развития физики конденсированных сред.

Рассматриваемые современные кластеры (единица хранения информации), как правило, содержат ограниченное (и довольно большое) число атомов  $M \leq 10^4$ . Действительно, используя традиционные методы физики и химии, нельзя получить точную копию макроскопической ( $M \leq 10^4$ ) системы. Так, стекла одного и того же состава, синтезированные в абсолютно идентичных режимах нагревания и неравновесного охлаждения расплава, имеют практически одинаковые макроскопи-

ческие свойства, но не есть точные копии друг друга (см. также [30]). В этой связи необходимо заметить, что дальнейшая миниатюризация электронных схем лежит на пути изотопической инженерии. Именно на этом пути предел информационной емкости уже не определяется размером довольно-таки макроскопического кластера [30], а может быть доведен до атомарного размера. В этом случае предел информационной емкости будет определяться плотностью кристаллообразующих частиц (изотопов).

Действительно, хранение информации может быть осуществлено в виде нуля или единицы, которым может соответствовать отдельный изотоп, помещенный в объем (тонкую пленку) кристаллической структуры. Такая техника записи и хранения информации может привести к ее очень высокой плотности ( $\sim 10^{20}$  бит  $\text{cm}^{-3}$ ), сравнимой с плотностью структурообразующих частиц в 1  $\text{cm}^3$ . Например, в отличие от двухизотопной системы ( $^{12}\text{C}$ ;  $^{13}\text{C}$ ) использование трехизотопной системы ( $^{28}\text{Si}$ ;  $^{29}\text{Si}$ ;  $^{30}\text{Si}$ ) может естественно прямо привести к трехцветному изображению, поскольку хорошо известно, что видимый цвет можно легко получить, комбинируя подходящим образом три цвета, но не два (см. также [6, 7, 31]).

#### 5. Нейтронное трансмутационное легирование

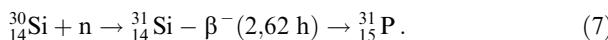
Метод нейтронного трансмутационного легирования (НТЛ) полупроводников основан на ядерных превраще-

ниях изотопов полупроводниковых (и не только) материалов при захвате ими медленных (тепловых) нейтронов [32, 33]. Для проведения НТЛ образцы полупроводниковых кристаллов облучают потоком нейтронов в ядерных реакторах. При захвате нейтрона данный изотоп переходит в другой изотоп с массовым числом на один номер больше:

$$\Phi \sigma_1 C({}_Z^A N) = C({}^{A+1}_Z N), \quad (6)$$

где  $\Phi$  (см<sup>-2</sup>) — интегральный поток (доза) тепловых нейтронов,  $\sigma_1$  (см<sup>2</sup>) — сечение захвата теплового нейтрона данным изотопом,  $C({}_Z^A N)$ ,  $C({}^{A+1}_Z N)$  — концентрации исходного и конечного продуктов реакции соответственно,  $Z$  — заряд ядра,  $A$  — массовое число. Если полученный изотоп  ${}^{A+1}_Z N$  является стабильным, то такая реакция не приводит к легированию.

Наибольший интерес представляет реакция, когда полученный изотоп является нестабильным. Тогда после определенного времени полураспада  $\tau_1$  он превращается в ядро нового элемента: на номер больше  ${}^{A+1}_{Z+1} N$  в случае  $\beta$ -распада или на номер меньше  ${}^{A+1}_{Z-1} N$  в случае электронного захвата [33]. В качестве примера запишем уравнение реакции, приводящей к появлению в кремнии донорной примеси фосфора [32]:



Интерес к НТЛ обусловлен двумя основными преимуществами перед обычными металлургическими методами введения примесей [4]. Это, во-первых, высокая точность легирования, поскольку концентрация введенных примесей при постоянном нейтронном потоке облучения пропорциональна времени облучения, которое может быть проконтролировано с высокой степенью точности. Во-вторых, это высокая однородность распределения примесей, что определяется случайным распределением изотопов, малыми сечениями захвата нейтронов  $\sigma_1$  и равномерностью потока. Учитывая, что  $\sigma_1 \sim 10^{-23} - 10^{-24}$  см<sup>2</sup>, видно, что при максимальных потоках тепловых нейтронов в современных ядерных реакторах и разумных временах облучения концентрация введенных примесей фосфора в кремнии составит несколько единиц на 10<sup>15</sup> см<sup>-3</sup>, что, однако, оказывается вполне достаточным для целого ряда важных практических применений, особенно для производства высоковольтных диодов и тиристоров [32].

Что касается Ge, то благодаря большим значениям  $\sigma_1$  и содержанию активных для НТЛ изотопов  ${}^{70}_{32}\text{Ge}$ ,  ${}^{74}_{32}\text{Ge}$ ,  ${}^{76}_{32}\text{Ge}$  его удается пролегировать вплоть до перехода к металлической проводимости ( $\sim 3 \times 10^{17}$  см<sup>-3</sup>), что позволяет, с одной стороны, исследовать в НТЛ-Ge фундаментальные проблемы в примесной зоне (см. также [34]) и переходы металл–изолятор [35], а с другой, предложить ряд применений в качестве низкотемпературных термометров сопротивления (термисторов) и детекторов излучения [4]. Заметим также, что эти приборы используются в нейтринной физике и задаче по обнаружению "скрытой массы" Вселенной [36]. Стоит добавить также, что основной особенностью процесса НТЛ в Ge является то, что в него вводятся как акцепторы (основная примесь), так и доноры (неосновная, компенсирующая примесь). Большая перспектива у работ, связанных с созданием многослойных структур, осно-

ванных на чередовании изотопов  ${}^{70}\text{Ge}$  и  ${}^{74}\text{Ge}$  в гетеропереходах  $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  или трех изотопов  ${}^{70}\text{Ge}$ ,  ${}^{72}\text{Ge}$  и  ${}^{74}\text{Ge}$  в чисто германиевой структуре с последующим проведением НТЛ. Такая структура приведет к созданию  $p-i-n$ -сверхрешеток, при этом основной особенностью является то, что в этом методе разделены процессы роста сверхрешетки и ее легирования. В обычных эпитаксиальных методах эти процессы совмещены, что приводит к взаимному негативному влиянию: размытию границы перехода из-за "всплыивания" примесей в процессе роста слоя и росту числа дефектов в растущем слое из-за влияния находящихся в нем примесей. В изотопном методе слои выращиваются без примесей и должны иметь совершенную структуру (см. раздел 2), поскольку изотопы Ge являются идентичными в химическом отношении. Последующее легирование методом НТЛ и отжиг дефектов будут проводиться при сравнительно низкой температуре, что не приводит к размытию границы перехода и ухудшению структуры слоев (см. также [6]).

Метод нейтронной трансмутации является, по-видимому, самым простым при получении однородного распределения нейтральной примеси по объему полупроводникового кристалла [37]. Кроме указанного приложения необходимо отметить, что изотопическое замещение открывает новые возможности в решении фундаментальных задач физики твердого тела: речь идет об исследовании рассеяния носителей нейтральной примесью [38], задачи актуальной, как показал Ансельм уже более полувека назад [39]. В то же самое время заметим, что одним из механизмов, обуславливающих дублетный характер поляритонного излучения (в том числе в изотопически смешанных кристаллах [5]), является, согласно [40], рассеяние поляритонов нейтральной примесью (донором).

## 6. Диффузия в изотопических гетероструктурах

Тепловые колебания атомов в твердых телах сводятся в основном к колебаниям с малой амплитудой, которые они совершают около средних положений равновесия. Однако кинетическая энергия атомов вследствие их взаимодействия с соседними атомами не остается постоянной. Даже в том случае, когда средняя кинетическая энергия атомов мала, согласно максвелловскому закону распределения скоростей в кристалле всегда найдется некоторое число атомов, кинетическая энергия которых достаточно велика. Такой атом может сорваться со своего равновесного положения и, преодолев потенциальный барьер, созданный окружающими его атомами, перейти в некоторое новое свободное положение равновесия. При этом атом теряет избыточную энергию, отдавая ее атомам кристаллической решетки. Через некоторое время атом снова может набрать достаточную энергию, чтобы вырваться из нового окружения и перейти в соседнее. Именно такие перемещения атомов, обусловленные тепловым движением, и составляют основу диффузионных процессов в твердом теле. Атомная диффузия наиболее проста и ее законы к настоящему времени достаточно полно изучены. Особенно простой случай атомной диффузии — это самодиффузия, т.е. перемещение атомов кристаллообразующих частиц в своей же кристаллической решетке. Это

случайное блуждание — диффузия частиц — достаточно хорошо описывается первым законом Фика [41]

$$J = -D \frac{dN}{dx}, \quad (8)$$

где  $J$  — поток диффундирующих частиц,  $dN/dx$  — градиент концентрации,  $D$  — коэффициент диффузии, который во многих (но не во всех!) случаях описывается в рамках модели с тепловым барьером  $E$ :

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right). \quad (9)$$

Здесь  $D_0$  — константа. Диффузия примеси в полупроводниковых материалах играет ключевую роль в производстве электронных приборов.

В последнее десятилетие значительный успех в понимании микромеханизмов процесса диффузии принесло изучение изотопических гетероструктур. Первые результаты по самодиффузии Ga в изотопических сверхрешетках GaAs были получены в работе [42]. Для решения этой задачи была выращена сверхрешетка толщиной  $\sim 1000$  Å из слоев чистого  $^{69}\text{GaAs}$  и  $^{71}\text{GaAs}$ , поскольку As не имеет изотопов. Концентрационные профили различных изотопов измерялись с помощью метода ионной масс-спектрометрии. Аналогичные эксперименты затем были повторены в целом ряде работ (см. [4, 43] и ссылки там). В качестве примера на рис. 7 приведены профили  $C(x)$   $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$  в изотопических слоях GaP, отожженных при  $1111^\circ\text{C}$  в течение 231 мин. На этом же рисунке представлены результаты расчета  $C(x)$  для  $^{69}\text{Ga}$  (точки) и  $^{71}\text{Ga}$  (непрерывная линия). Как видно, согласие разумное. Отсюда следует, что самодиффузия изотопов достаточно хорошо описывается уравнением Фика. Последнее свидетельствует о том, что процесс самодиффузии изотопов галлия сопровождается движением одного простого собственного дефекта. Найденные значения энталпии и энтропии процесса диффузии имеют разумные значения ( $\sim 4,5$  эВ и 4 кВ соответственно [44]).

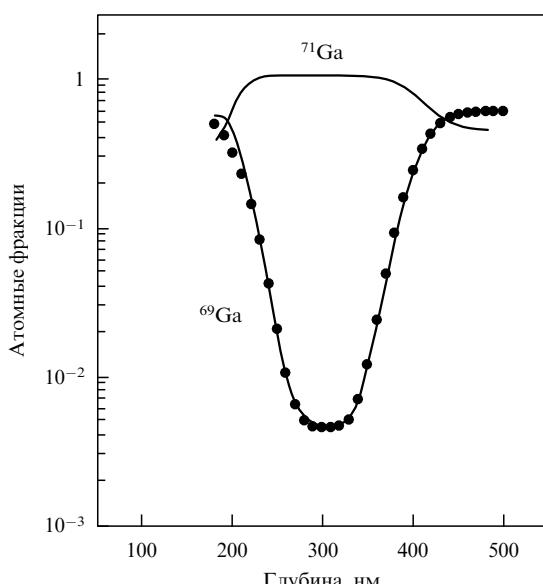


Рис. 7. Концентрационные профили изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$  в GaP [44]. (См. текст.)

В заключение этого раздела необходимо отметить, что исследование процесса диффузии в изотопических гетероструктурах имеют целый ряд преимуществ перед обычными методами:

- 1) отсутствие влияния поверхности;
- 2) сильно различающиеся значения  $C(x)$  между главными и не главными изотопами;
- 3) использование НТЛ в исследовании таких гетероструктур позволяет одновременно изучать процессы само- и просто диффузии.

Названные отличия, несомненно, создают прекрасные перспективы использования изотопической инженерии в исследовании процессов диффузии.

## 7. Изотопические структуры — объект фундаментальных исследований

Изотопическое замещение позволило создать объекты исследования, которые раньше (кроме системы LiH – LiD) были просто недоступны. Использование таких объектов позволило исследовать не только изотопические эффекты в динамике решетки (упругие, тепловые и колебательные свойства [3, 4, 6]), но и влияние их на электронные состояния (перенормировка величины энергии межзонных переходов  $E_g$ , энергии связи экситонов  $E_B$  и величины продольно-поперечного расщепления  $\Delta_{LT}$  [5]).

Кроме того, хорошо известно, что температура кипения обычной и тяжелой ( $\text{D}_2\text{O}$ ) воды различаются на несколько градусов. Для более тяжелых элементов, чем водород, различие в температуре плавления (или кипения)  $\Delta T$  гораздо меньше, но все же наблюдаемо с помощью современных методов. Поэтому удивительно, однако, что в литературе практически отсутствуют данные об измерении этой величины (см. также [7]).

Еще одним заметным фактом является сильная зависимость температуры фазового перехода ( $\sim 200$  К) от изотопов Ва и Ti в  $\text{BaTiO}_3$  [45]. Причины такой селективной аномалии до сих пор не установлены.

## 8. Другие неиспользованные приложения изотопической инженерии

Далее только кратко будут перечислены дополнительные возможности изотопической инженерии:

Использование различий в температурной зависимости теплопроводности между изотопически чистыми и изотопически смешанными веществами с целью исследования явлений фокусировки фононов, прецизионной термометрии и т.д. (см. подробнее [3, 4, 6]).

Использование изотопически смешанных пленок Ni для нейтронных интерференционных фильтров, уже использованных в работе [46].

Изотопически смешанные световые диоды, лазеры и другая оптоэлектроника.

Акусто-электронные приспособления и приборы, учитывающие, что скорость звука  $\sim M^{-1/2}$  и, следовательно, зависит от изотопов.

Использование изотопической границы для мёссбауэрской фильтрации синхротронного излучения, поскольку это позволяет избавиться от фона, обусловленного взаимодействием синхротронного излучения с электронами вещества (подробнее см. [47]).

Перечисленные в данном обзоре, а также другие приложения, которые в настоящее время даже трудно представить, делают изотопическую инженерию одной из самых перспективных и многообещающих технологий.

## Список литературы

1. Firestone R B, Shirley V S (Eds) *Table of Isotopes* Vol. 1, 2 8th ed. (New York: Wiley, 1996)
2. Soddy F *Ann. Rep. Chem.* **285** (1910)
3. Cardona M, in *Festkörperprobleme* (Adv. in Solid State Physics) (Braunschweig: F. Vieweg, 1994) p. 35
4. Haller E E *J. Appl. Phys.* **77** 2857 (1995)
5. Плеханов В Г УФН **167** 577 (1997)
6. Plekhanov V G *Semicond. and Semimet.* **68** (2000)
7. Berezin A A *J. Phys. Chem. Solids* **50** 5 (1989)
8. Волькенштейн М В *Молекулярная оптика* (М.-Л.: Гостехиздат, 1951)
9. Тидекен Р *Волоконная оптика и ее применение* (М.: Мир, 1975)
10. Spitzer J et al. *Phys. Rev. Lett.* **72** 1565 (1994)
11. Gerhels N *Nucl. Instrum. Methods A* **292** 505 (1990)
12. Barthelmy S D, in *Compton Gamma-Ray Observatory* (AIP Conf. Proc., 280, Eds M Friedlander, N Gerhels, D J Macomb) (New York: AIP, 1993) p. 1166
13. Montgomery C D *Nucl. Eng. Design* **25** 309 (1973)
14. Abragam A, Goldman M *Rep. Prog. Phys.* **41** 395 (1978)
15. Гинзбург В Л УФН **167** 429 (1997); **170** 619 (2000)
16. Gilman J *Phys. Rev. Lett.* **26** 546 (1971)
17. Hama J, Kawakami N *Phys. Lett. A* **126** 348 (1988)
18. Carstens D H W, Farmen E H, Fries R J J. *Nucl. Matter* **57** 1 (1975)
19. Плеханов В Г *Опм. и спектр.* **69** 822 (1990)
20. Weir S T, Mitchell A C, Nellis W J *Phys. Rev. Lett.* **76** 1860 (1996)
21. Plekhanov V G, Altukhov V I, in *Proc. Int. Conf. Lasers'82, VA USA* (McClean: STS Press, 1983) p. 292
22. Takiyama K et al. *Solid State Commun.* **99** 793 (1996)
23. Басов Н Г, Крохин О Н, Попов Ю М ЖЭТФ **39** 1496 (1960)
24. Kulewsky L A, Prokhorov A M *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-2** 584 (1966)
25. Klingshirn C, Haug H *Phys. Rep.* **70** 315 (1981)
26. Liu K C, Liboff R J. *Appl. Phys.* **54** 5633 (1983)
27. Plekhanov V G, in *Proc. Int. Conf.: Adv. Solid State Lasers, Salt Lake City, SOQUE, 1990*
28. Кадомцев Б Б, Кадомцев М Б УФН **166** 651 (1996)
29. Кадомцев Б Б *Динамика и информация* (М.: Редакция журн. "УФН", 1997)
30. Бальмаков М Д УФН **169** 1273 (1999)
31. Berezin A A, Ibrahim A M *Mater. Chem. Phys.* **19** 407 (1988)
32. Schnoller M S *IEEE Trans. Electron Devices* **ED-21** 313 (1974)
33. *Нейтронное трансмутационное легирование полупроводников* (Новости физики твердого тела, Вып. 11) (Под ред. Дж Миза) (М.: Мир, 1979)
34. Шкловский Б И, Эфрос А Л *Электронные свойства легированных полупроводников* (М.: Наука, 1979)
35. Mott N F *Metal–Insulator Transition* 2nd ed. (London: Taylor and Francis, 1990)
36. *Low Temperature Detectors for Neutrino and Dark Matter* (Eds N E Both, G L Salmon) (Oxford, 1991)
37. Kuriyama K, Sakai K, Okada M *Phys. Rev. B* **53** 987 (1996)
38. Erginsoy C *Phys. Rev.* **79** 1013 (1950)
39. Ансельм А И *Введение в теорию полупроводников* 2-е изд. (М.: Наука, 1978)
40. Koteles E, Lee J, Salerno J P J. *Luminescence* **34** 63 (1985)
41. Frank W et al., in *Diffusion in Crystalline Solids* (Eds G E Murch, A S Nowick) (Orlando, Fla.: Academic Press, 1984)
42. Tan T Y et al. *J. Appl. Phys.* **72** 5206 (1992)
43. Bracht H et al. *Appl. Phys. Lett.* **74** 49 (1999)
44. Lei Wang et al. *Appl. Phys. Lett.* **70** 1831 (1997)
45. Hidaka T, Oka K *Phys. Rev. B* **55** 1221 (1997)
46. Антонов А В, Галанов Н В, Исаков А И ЖТФ **31** 942 (1986)
47. Беляков В А, Семёнов С В ЖЭТФ **117** 329 (2000)

## Isotope engineering

V.G. Plekhanov

*Institue for Computer Engineering and Science,  
ul. Erika 7a, 10416 Tallinn, Estonia  
Tel. (10-372) 6-603 150  
E-mail: vgplekhanov@hotmail.com*

Major applications of the novel and most promising technology of isotope engineering are reviewed which, along with basic research, also include — by no means exhaustively — optical fibers, optoelectronics, retunable solid-state lasers, neutron transmutation, and information storage.

PACS numbers: 42.70.Hj, 42.81.Qb, 61.72.Tt, 66.30.Hs

Bibliography — 47 references

Received 14 February 2000, revised 25 August 2000