

ATENÇÃO

O ORIGINAL DESTE ÍTEM NÃO FORNECE CONDIÇÕES  
PARA OBTER UMA CÓPIA DIGITALIZADA COM  
MELHOR QUALIDADE



**CNEN/SP**

**ipen** Instituto de Pesquisas  
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA A UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

# **DOPAGEM DE SILÍCIO MONOCRISTALINO PELA TRANSMUTAÇÃO COM NÊUTRONS**

**JOSÉ RICARDO SEBASTIÃO**

**Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau  
de Mestre em Tecnologia Nuclear.**

**Orientador:  
Dr. Rajendra Narain Saxena**

**São Paulo  
1992**

**DOPAGEM DE SILÍCIO MONOCRISTALINO PELA TRANSMUTAÇÃO  
COM NÊUTRONS**

**JOSÉ RICARDO SEBASTIÃO**

Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau de  
Mestre em Tecnologia Nuclear.

**Orientador:** Dr. Rajendra Narain Saxena



**São Paulo  
1992**

# ÍNDICE

## INTRODUÇÃO

### CAPITULO I

#### Estrutura cristalina do Si e materiais semicondutores

I.1	Estrutura cristalina do Si.....	04
I.2	Estados de energia dos elétrons em um cristal.....	04
I.2.1	Condutores , isolantes e semicondutores .....	07
I.2.2	Propriedades básicas dos materiais semicondutores ...	08
I.2.3	Problemas na dopagem do Si pelo método convencional..	10
I.3	Mercado do Si .....	13
I.4	Crescimento de monocristais de Si.....	14

### CAPITULO II

#### Dopagem do Silício pela Transmutação com Nêutrons Técnica e Metodologia.

II.1	Introdução .....	17
II.2	Considerações gerais sobre reações nucleares no processo NTD.....	18
II.2.1	Reações nucleares induzidas pelos nêutrons.....	19
II.3	Relação entre dose de nêutrons e Resistividade.....	24
II.4	Danos causados pela irradiação e tratamento Térmico pós irradiação. ....	28

II.5	Medição da resistividade nas lâminas de Si.....	30
------	---	----

### CAPITULO III

#### Equipamentos Utilizados e Procedimentos

III.1	Introdução .....	33
III.2	Reator IEA-R1.....	34
III.3	Dispositivo de irradiação do Si .....	34
III.4	Arranjo experimental para monitoração da atividade residual de $P^{32}$ do cristal de Si.....	36
III.5	Detectores utilizados.....	37
III.5.1	Detector SPND .....	37
III.5.2	Detectores gama-Detectores de Cintilação.....	40
III.5.3	Detectores Geiger - Müller.....	41
III.6	Monitoração de Fluxo de nêutrons.....	41
III.7	Calibração do detector Geiger.....	43
III.8	Calibração do detector SPND.....	46

### CAPITULO IV

#### Resultados Experimentais

IV.1	Medida do fluxo de nêutrons.....	48
IV.2	Medida do fator "self-shielding" e razão de cádmio ...	51
IV.3	Determinação do perfil vertical do fluxo de nêutrons na posição de irradiação das amostras de Si.....	56
IV.4	Determinação da eficiência do detector Geiger-Müller e cálculos pelo método de Monte Carlo.....	58
IV.5	Calibração do detector SPND.....	62
IV.6	Irradiação de tarugos e lâminas de Si no Reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP.....	63
IV.7	Análise da Homogeneidade na Resistividade das Lâminas	

de Si Dopadas pela Técnica NTD..... 70

## CAPITULO V

**Discussão dos Resultados e Conclusão.**

..... 73

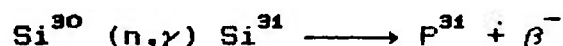
Aos meus filhos

## AGRADECIMENTOS

- Ao Dr. Rajendra Narain Saxena, pela oportunidade, orientação, incentivo e compreensão nos momentos difíceis no transcórre deste trabalho.
- À Agência Internacional de Energia Atômica ( IAEA ), pelo financiamento do projeto para o desenvolvimento do trabalho de irradiação de silício monocristalino no Reator IEA-R1 do IPEN.
- À Empresa Heliodinâmica, em especial ao Sr Valentino e Eng<sup>o</sup> Reinaldo, pelo fornecimento das amostras de monocristais de silício e tratamento térmico.
- Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pelo precioso apoio e sugestões, sem o qual grande parte deste trabalho não teria sido alcançado.
- À Dr<sup>a</sup> Marina Fallone Koskinas e a sua equipe do laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN, pelas medidas e preparação de amostras.
- Ao Sr Robert, do Laboratório de Microeletrônica da POLI, pelas sugestões e fornecimento de amostras de monocristais de Silício.
- Ao Dr. K. Heydorn, do Laboratório Nacional de Riso, Dinamarca, pela orientação na condução do desenvolvimento do trabalho de irradiação dos monocristais de Silício.
- A todos os Componentes da Divisão TFF.

## RESUMO

Transformação nuclear do silício em núcleos de fósforo após a reação de captura de um nêutron térmico



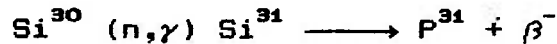
foi desenvolvido em uma técnica eficiente para dopagem dos monocristais de silício com fósforo. Devido a melhor homogeneidade e precisão de dopagem que resultam do processo "Nuclear Transmutation Doping - (NTD)", um material semiconductor com características muito superiores é obtido para aplicações em diversos dispositivos do que quando obtido com dopagem química convencional.

Um dispositivo especial foi projetado, construído e instalado junto ao núcleo do reator de pesquisa IEA-R1, de 2 MW, tipo piscina, para irradiação de monocristais de silício de até 4 polegadas de diâmetro. Medidas extensivas e cuidadosas de um perfil vertical de fluxo de nêutrons na posição de irradiação foram realizadas. A irradiação é controlada por dois detectores de prata tipo "self-powered" instalado junto ao dispositivo. A dose final de nêutrons é medida por monitores de cobalto irradiados junto com cristais de silício.

Os experimentos realizados mostram a possibilidade de irradiação de cristais de silício de até 40 cm de comprimento ( dois tarugos de 20 cm de comprimento cada um ) resultando numa uniformidade de dopagem melhor do que 10% (axial) e 2% (radial). Valores de resistividade finais da ordem de 32-35  $\Omega\text{cm}$  foram alcançados para cristais de silício de alta resistividade tipo float-zone (FZ) com irradiação durante um período de 28-30 horas (dose de nêutrons  $\sim 8-9,10^{17} \text{ n/cm}^2$ ). A produção comercial do silício NTD com uma capacidade modesta de aproximadamente 400 Kg por ano, parece viável dentro do presente esquema de operação do reator.

## ABSTRACT

Nuclear transformation of silicon into phosphorus nuclei following thermal neutron capture reaction



has been developed into a very efficient technique for doping monocrystalline silicon with phosphorus. Because of superior doping homogeneity (small spreading resistance) and doping accuracy (resistivity very close to the target value) which results from the neutron transmutation doping (NTD) process, a far better semiconductor material is obtained, for a number of device applications, than what can be obtained through conventional chemical doping.

A special irradiation rig has been designed, constructed and installed at the 2 MW pool type IEA-R1 research reactor for doping single crystals of silicon up to 4 inches in diameter. Very careful and extensive measurements of vertical neutron flux profile at the irradiation position have been carried out. The irradiation is controlled by two silver self-powered neutron detectors placed close to the crystal position. The final neutron dose is measured by cobalt monitors which are irradiated together with the silicon crystals.

Test experiments indicate the possibility of irradiating up to 40 cm long crystals (two pieces of 20 cm each) resulting in the doping uniformity better than 10 percent (axial) and 2 percent (radial). Target resistivity values of the order of 32-35  $\Omega\text{cm}$  have been reached for float zone (FZ) high resistivity silicon crystals irradiated through a period of approximately 28-30 hours (neutron dose  $\sim 8-9 \cdot 10^{17} \text{ n/cm}^2$ ). Commercial production of NTD silicon with the modest capacity of approximately 400 Kg per year seems possible considering the present operation schedule of the reactor.

## INTRODUÇÃO

A descoberta do elemento silício ( Si ) data por volta do século XIX nas décadas de 10, e 20. Este elemento não se encontra livre na natureza, mas sim principalmente na forma de óxidos e silicatos. O silício está presente no sol e estrelas e é um componente principal de uma série de meteoritos conhecidos como aerólitos [38]. O silício perfaz 25,7 % da crosta terrestre, em peso, e é o segundo elemento mais abundante, depois do oxigênio. Areia, quartzo, ametista, agata, pedra e opala são algumas das formas no qual o silício aparece como óxidos. Granito, asbestos, mica, etc, são exemplos de minerais silicatos. A tabela I ilustra o elemento Si com suas propriedades físicas mais relevantes.

São inúmeras as aplicações do Si. Na forma de areia e argila o silício é usado para fazer concreto e tijolo. O Si pode ser empregado como material refratário para trabalhos à altas temperaturas. Na forma de silicatos é utilizado na fabricação de esmaltes, cerâmicas, etc. Sílica, como areia, é um dos principais ingredientes do vidro, que é um dos materiais mais econômicos, com excelentes propriedades mecânicas, óticas, térmicas e elétricas. O Si é um componente importante na fabricação do aço; sendo que o carbeto de silício é um dos mais importantes abrasivos, utilizados em lasers para produzir luz coerente de 4500 Å [38].

Uma das grandes utilizações do Si da qual trata o presente trabalho, é o emprego do Si como material semicondutor. O emprego de dispositivos semicondutores iniciou-se nos EUA, quando em 1948 foram desenvolvidos os transistores.

Desde a década de 70 o uso do Si como material semicondutor tem crescido muito rapidamente, e atualmente, o consumo mundial é de mais de 6000 toneladas

tabela 1. Propriedades físicas mais relevantes do elemento Si.

---

Elemento	: Silício
Símbolo	: Si
Classificação periódica	: Grupo IV A
Numero atômico	: 14
Massa atômica	: 28.086
Isotópos naturais	: 28, 29 e 30
Abundância isotópica	: Si <sup>28</sup> ( 92.27% ) Si <sup>29</sup> ( 4.68% ) Si <sup>30</sup> ( 3.05% )
Densidade	: 2.33 g/ cm <sup>3</sup> ( 25 <sup>0</sup> C )
Ponto de fusão	: 1410 <sup>0</sup> C
Número de valência	: 4
Forma cristalina	: Cúbica face centrada, tipo diamante.

---

por ano. O silício é usado na maioria dos dispositivos elétricos e eletrônicos, desde circuitos integrados para computadores e microprocessadores e em tiristores de grande volume para alta voltagem [4].

Para ser usado nestes dispositivos, o silício precisa ser dopado com outro elemento. Os elementos mais usados são o boro que produz um semicondutor tipo-p e o fósforo que produz um semicondutor tipo N. O método tradicional de dopagem incorpora o elemento no estágio da fundição e formação do monocristal, mas produz um semicondutor com variações na resistividade ao longo do volume do cristal de até 30%. Entretanto, há cerca de 15 anos vem sendo utilizado um novo método de dopagem de silício tipo N baseado em um processo puramente nuclear que solucionou este problema. Esta nova técnica de dopagem é chamada de Dopagem por Transmutação com Neutrons (NTD), e produz semicondutores do tipo N com variações muito pequenas no valor da resistividade, mesmo para cristais com volumes grandes.

O objetivo do presente trabalho é desenvolver uma metodologia para produzir no Brasil o silício NTD, que é um material de características superiores, e vai possibilitar à indústria nacional eletro-eletrônica a produção de dispositivos de potência, tais como tiristores e diodos. Estes dispositivos tem um custo bem maior que os outros dispositivos comuns e sua produção no Brasil permitiria a substituição de uma parte das importações.

O desenvolvimento deste método visa, também, a implantação de um laboratório de controle de qualidade dos cristais de silício irradiados, para a verificação da atividade residual do cristal após a irradiação. Além disso, este laboratório deve ter condições de medir com precisão a dose de nêutrons recebida pelo cristal durante a irradiação, possuindo todos os equipamentos convencionalmente utilizados em espectroscopia gama.

O capítulo I do presente trabalho, apresenta uma discussão sobre a estrutura cristalina do Si e materiais semicondutores.

O capítulo II apresenta a metodologia da técnica NTD.

A descrição do método experimental encontra-se no capítulo III.

A parte experimental e resultados obtidos, encontra-se no capítulo IV.

Finalmente, no capítulo V encontra-se a Discussão dos Resultados e Conclusão.

## CAPITULO I

### ESTRUTURA CRISTALINA DO SILÍCIO E MATERIAIS SEMICONDUTORES

#### I.1 Estrutura Cristalina do Silício

Chamamos de substância cristalina, qualquer substância cujos átomos estão dispostos regularmente no espaço, ( fig.1.1.1 )

Na figura 1.1.2 ilustramos uma parte da estrutura cristalina do silício. Pode-se notar pela fig. 1.1.2 que os átomos B, C, D, e E formam um tetraedro regular, com o átomo A exatamente no centro. Assim, o átomo A está à mesma distância dos quatro átomos mais próximos B, C, D, e E. Estes átomos formam entre si uma ligação covalente, também chamada de ligação tetraédrica neste caso, possuindo uma profunda influência sobre as propriedades dos materiais semicondutores.

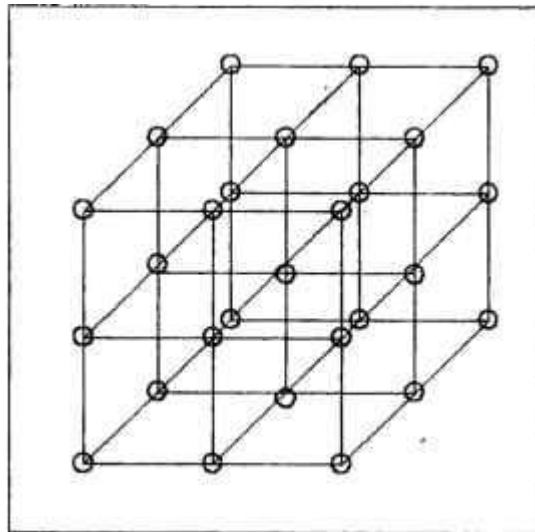
#### I.2 Estados de Energia dos Elétrons em um Cristal

Os estados de energia dos elétrons em um cristal, em sua forma geral, é extremamente complexo, pois os elétrons, além de serem atraídos pelos núcleos dos átomos que formam a rede cristalina, são repelidos pelos outros elétrons. Aplicando-se a mecânica quântica para este problema, a equação de schroedinger assume a forma,

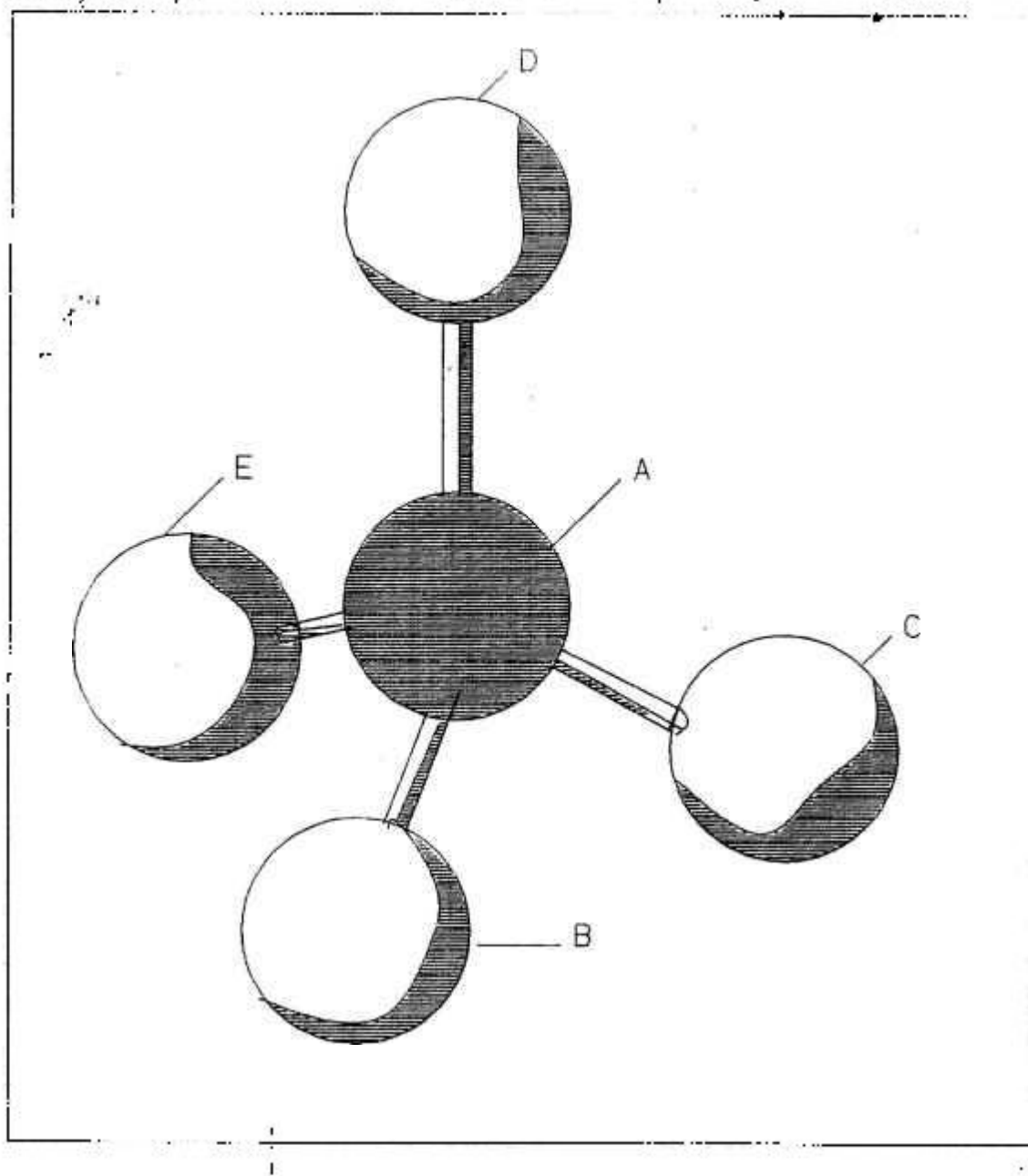
$$\sum_{i,j} \left\{ \frac{\hbar^2}{2m} \left[ \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} + \frac{\partial^2}{\partial y_i^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_i^2} \right] \psi + \left[ E - V(\vec{r}_{ij}) \right] \psi \right\} = 0 \text{ eq. 1}$$

Na eq. 1 os índices  $i$  e  $j$  são usados para distinguir as coordenadas dos diferentes elétrons e o somatório se estende a todos os elétrons do cristal.

A energia potencial  $V(\vec{r}_{ij})$  pode ser



ig.1.1.1. Estrutura de uma substancia cristalina



g.1.1.2. Desenho esquemático de uma ligação tetraédrica

decomposta em dois termos, um que só depende da posição do elétron  $i$ ,  $V_1(\vec{r}_i)$ , e que corresponde à energia potencial do elétron  $i$  no campo elétrico dos núcleos dos átomos do cristal, e um segundo termo,  $V_2(\vec{r}_{ij})$ , que corresponde à energia potencial do elétron  $i$  no campo elétrico de todos os outros elétrons e que portanto depende da posição de todos os elétrons do cristal.

Desprezando o termo  $V_2(\vec{r}_{ij})$  da energia potencial, a eq.1 assume a forma

$$\sum_i \left\{ \frac{\hbar^2}{2m} \left[ \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} + \frac{\partial^2}{\partial y_i^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_i^2} \right] \psi + \left[ E - V_1(\vec{r}_i) \right] \psi \right\} = 0 \quad \text{eq. 2}$$

A solução da equação 2 pode ser escrita sob a forma [28]:

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_n) = \psi(\vec{r}_1) \psi(\vec{r}_2) \dots \psi(\vec{r}_n) \quad \text{eq. 3}$$

O uso da equação 3 implica que a probabilidade de encontrar o elétron  $i$  no ponto  $r_i$ ,  $|\psi_i|^2$ , depende apenas de  $\vec{r}_i$ , isto é, da coordenada do elétron  $i$  em relação a uma origem arbitrária. Desta forma a equação de schroedinger se reduz a

$$\left\{ \frac{\hbar^2}{2m} \left[ \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \psi_k(\vec{r}) + \left[ E_k - V(\vec{r}) \right] \psi_k(\vec{r}) \right\} = 0 \quad \text{eq. 4}$$

Onde  $V(\vec{r})$  é o potencial no qual o elétron esta se movendo ( potencial dos núcleos dos átomos do cristal ) e o índice  $k$  serve para distinguir as diferentes soluções. A eq.4 se aplica a qualquer elétron do cristal, isto é, o somatório da equação 1 foi transformado em um sistema de  $n$  equações idênticas, quando desprezamos o termo  $V_2(\vec{r}_{ij})$ . Assim podemos estudar o movimento de cada elétron como se ele estivesse sozinho na rede cristalina.

Devido à regularidade da disposição dos núcleos em um cristal, o potencial  $V(\vec{r})$  é periódico no espaço. Essa periodicidade da rede cristalina impõe certas restrições à forma das soluções da eq.4, que são expressas pelo teorema de Bloch [28], [26] .

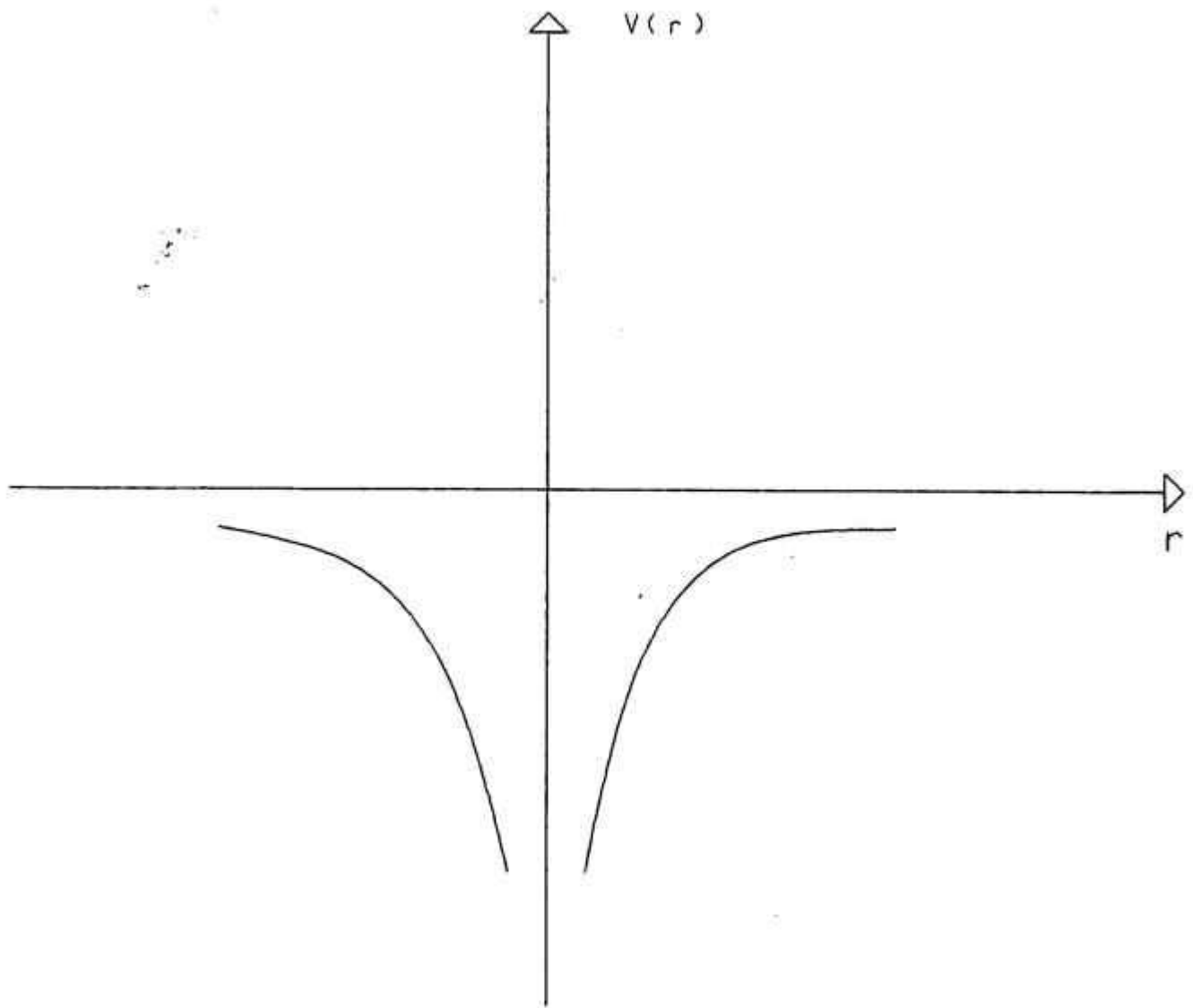
O potencial do elétron no campo de um átomo ionizado é dado por

$$V = -\frac{q^2}{r} \quad \text{eq.1.2.1}$$

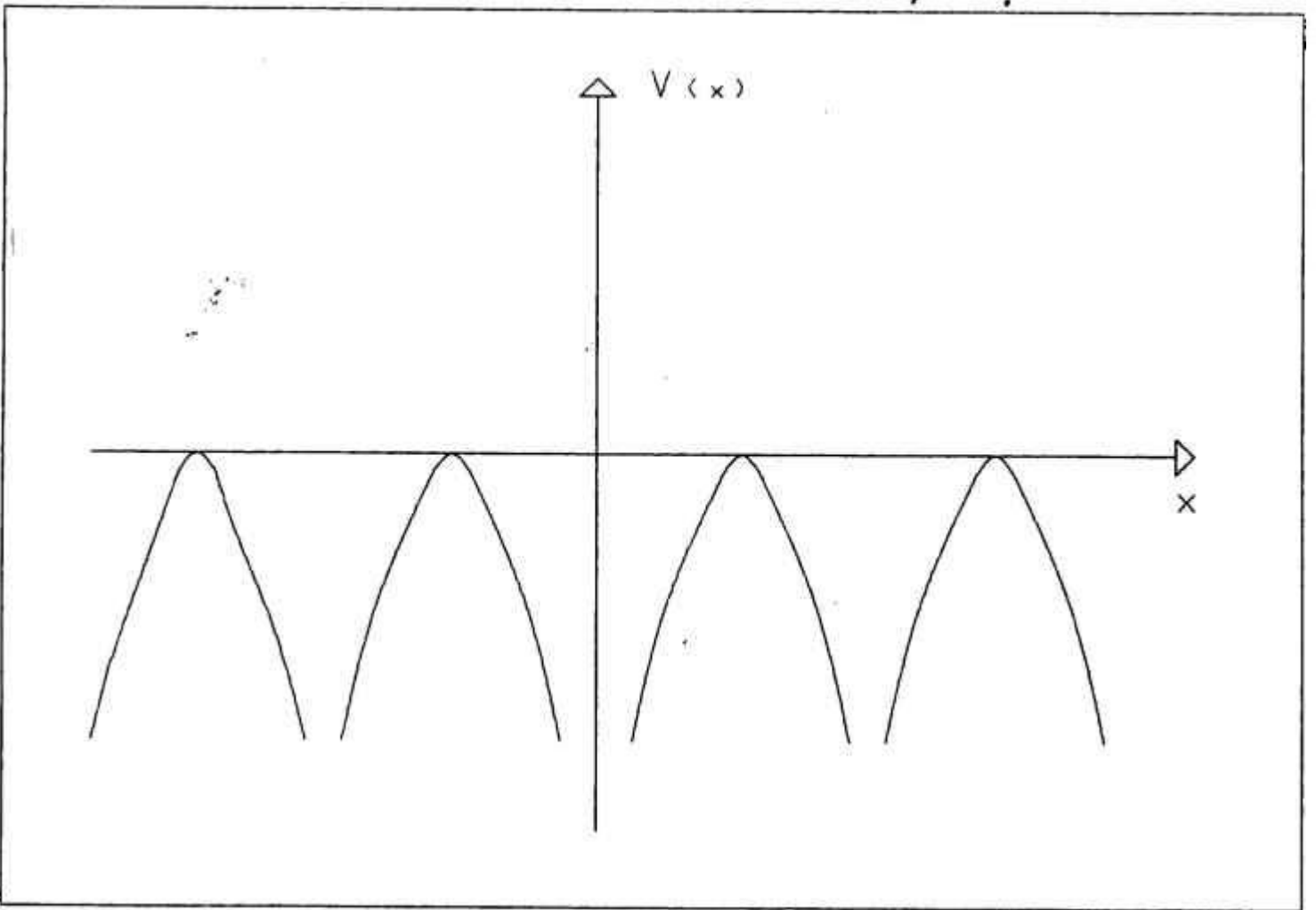
onde  $r$  é a distância entre o elétron e o núcleo do átomo ionizado. Este potencial está representado na fig.1.2.1

Considerando um "cristal unidimensional", isto é, o conjunto formado por uma linha de átomos ionizados e uma série de elétrons, o potencial de qualquer um desses elétrons no campo dos átomos ionizados está representado na figura 1.2.2. Como para um potencial deste tipo não existe uma solução analítica da equação de schroedinger, pode-se substituí-lo por um potencial que, em certas condições, se parece com o potencial do cristal, e para o qual a solução de schroedinger apresenta uma solução simples. Nesse modelo mostrado na figura 1.2.3 e sugerido por Kröning e Penney (1931), o potencial periódico consiste em um número infinito de barreiras de potencial de larguras  $b$ , com regiões de potencial zero de largura  $a$  entre as barreiras. A altura das barreiras é  $V_0$ .

A solução deste potencial periódico diz que o movimento dos elétrons em um cristal unidimensional só pode acontecer em determinadas faixas de energia chamadas de faixas permitidas de energia [28], [26]. Existem outras faixas chamadas de faixas proibidas de energia, aonde o movimento dos elétrons é muito atenuado e eles encontram grande dificuldade para se propagarem no cristal. Portanto um elétron em um cristal só pode se propagar se sua energia estiver dentro de uma das faixas permitidas.



.1.2.1. Energia potencial de um eletrón nas vizinhanças de um átomo ionizado



1.2.2. Energia potencial dos eletrons no interior de um cristal  
Unidimensional

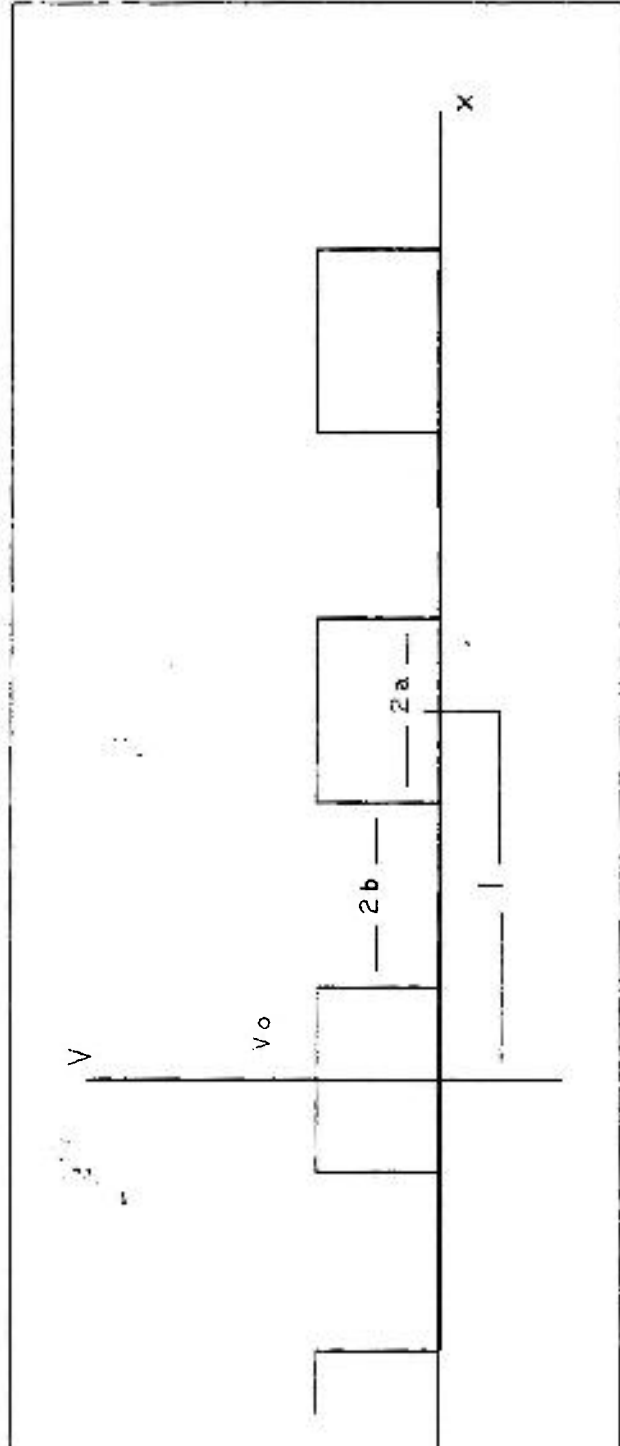


Fig. 1.2.3. Modelo de potencial sugerido por Kronig penney

### I.2.1. Condutores, Isolantes e Semicondutores

Em um cristal, os elétrons tendem a ocupar sempre os estados de menor energia. Assim as faixas permitidas mais baixas estão sempre cheias.

Se existir um número suficiente de elétrons no cristal para encher completamente um certo número de faixas permitidas, deixando as outras vazias, os elétrons do cristal quando submetidos a um campo elétrico, não podem se propagar, pois qualquer movimento aumentaria sua energia, colocando - os dentro da faixa proibida. Nesse caso dizemos que o cristal é um isolante.

Se, por outro lado, enchem apenas parcialmente uma das faixas permitidas, os elétrons podem mover - se com facilidade sob a ação de campos elétricos, passando para estados de energia ligeiramente maior. Nesse caso, o cristal pode ser um condutor, um semicondutor, ou um semimetal.

Em um condutor, as faixas permitidas parcialmente cheias possuem um grande número de elétrons. Em um semicondutor ou semimetal, as faixas parcialmente cheias possuem um pequeno número de elétrons ou estão quase completamente cheias; em ambos os casos a condução da corrente é menor que nos metais. A diferença entre um semicondutor e um semimetal é que na temperatura do zero absoluto um semicondutor se torna isolante, enquanto um semimetal continua a conduzir corrente.

### I.2.2. Propriedades Básicas dos Materiais Semi Condutores

A fig. 1.2.2.1 mostra as ligações covalentes dos átomos de silício, em uma representação bidimensional, através de segmentos de reta.

Como os elétrons de valência dos

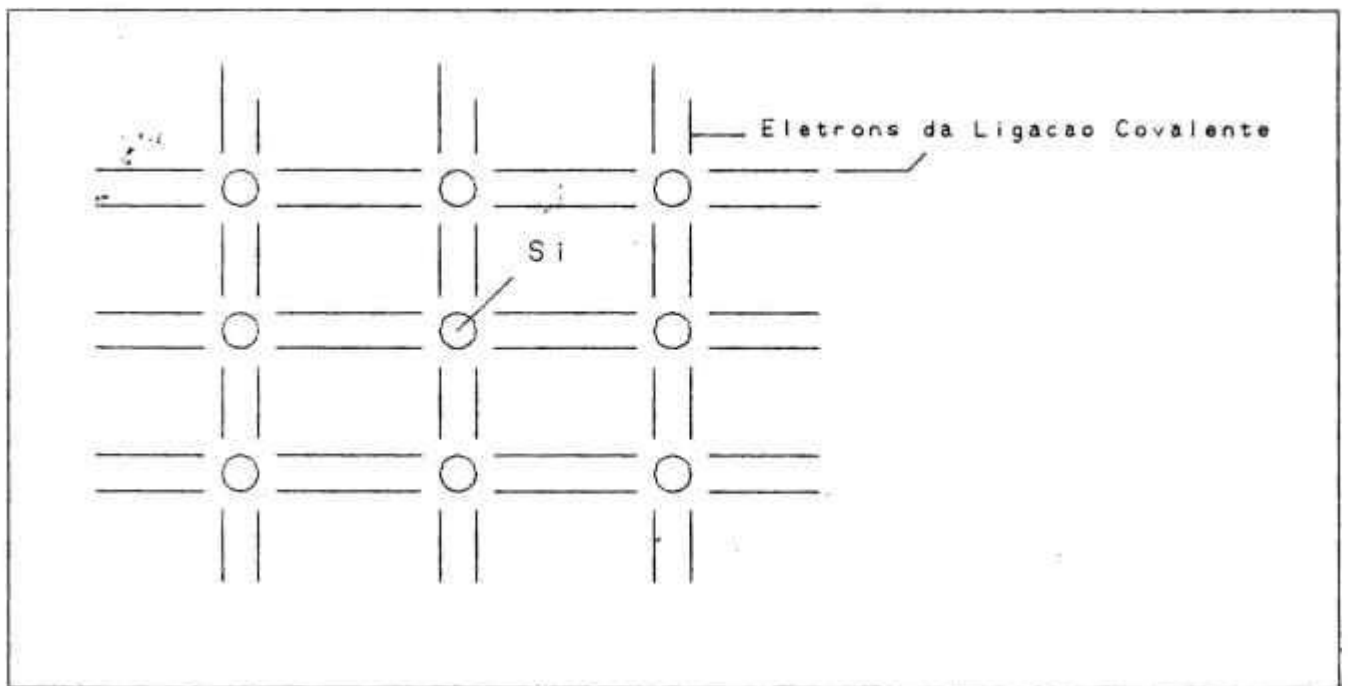
semicondutores formam pares covalentes, eles não são normalmente livres como no caso dos metais. Em temperaturas muito baixas, próximas do zero absoluto, em que as ligações covalentes se mantêm praticamente intactas, o cristal se comporta praticamente como um isolante. Entretanto à medida que a temperatura aumenta, algumas ligações covalentes se rompem, devido à agitação térmica. Em consequência, um dos elétrons ficou livre para vagar por todo o cristal, e ficou um "vazio" em uma das ligações covalentes do cristal. Este "vazio" é chamado de lacuna.

Quando uma ligação covalente está incompleta, isto é, quando existe um lacuna, o elétron do átomo vizinho pode deixar sua ligação covalente e vir preencher este "vazio". Com isto, entretanto, o elétron deixa um buraco em sua posição original, que por sua vez pode ser preenchido por outro elétron. Assim um lacuna pode "caminhar" por um cristal, na direção contrária à do movimento dos elétrons que procuram enche-lo.

Quando um semicondutor não contém impurezas em quantidades suficientes para alterar - lhe as propriedades, dizemos que se trata de um semicondutor intrínseco. Em um semicondutor intrínseco o número de elétrons é igual ao número de buracos. A adição de pequenas quantidades de outras substâncias a um semicondutor pode modificar consideravelmente as propriedades do material. Essas impurezas podem substituir os átomos da rede cristalina ( impurezas substitucionais ) ou ocupar posições entre os átomos da rede ( impurezas intersticiais ).

Na prática as propriedades dos semicondutores são controladas através da adição de certas impurezas em concentrações cuidadosamente medidas. As impurezas substitucionais mais usadas são certos elementos pentavalentes ( arsênio, fósforo, antimônio ) e trivalentes ( boro, alumínio, gálio, índio ).

Analisando o caso em que acrescentamos a um



g.1.2.2.1. Representacao bidimensional de um cristal de silicio

semicondutor puro, ( o silício ), uma pequena quantidade de uma impureza pentavalente ( por exemplo, o fósforo ); alguns átomos do fósforo ocupam o lugar dos átomos do silício no cristal, ficando elétrons livres para vagar pelo cristal.

Como os átomos das impurezas pentavalentes cedem elétrons ao cristal, essas impurezas são chamadas de impurezas doadoras ou impurezas tipo N ( a letra n é a inicial de *negativa*, referindo - se à carga do elétron ).

Os elétrons livres e lacunas de um semicondutor são chamados de *portadores*.

As propriedades elétricas dos semicondutores dependem fortemente do seu conteúdo de impurezas. A condutividade  $\sigma$  devido às impurezas em um semicondutor é dada pela expressão:

$$\sigma = q_e N \mu \quad \text{eq. (1.2.2.1)}$$

onde  $q_e$  é a carga do elétron, N é o número de impurezas ionizadas por unidade de volume e  $\mu$  é a mobilidade dos portadores de carga.

À temperatura ambiente, a maioria das impurezas se encontra ionizada, contribuindo para a condutividade e sua concentração não ultrapassa a  $5 \times 10^{19}$  átomos/cm<sup>3</sup>. Nestas condições a impureza ocupa um lugar substitucional na rede cristalina, ocupando a posição de um átomo de silício.

### 1.2.3. Problemas na Dopagem do Silício pelo Método Convencional.

Para modificar as características originais do silício, uma certa quantidade de impurezas é adicionada alterando a sua condutividade. Este processo é denominado de dopagem. Como já vimos anteriormente, é denominado semicondutor intrínseco.

Assim, para poder ser utilizado na confecção de dispositivos eletrônicos, o silício precisa ser convenientemente dopado, uma vez que o monocristal de silício intrínseco possui uma resistividade muito alta, maior do que  $200 \Omega\text{cm}$ , dependendo do processo de crescimento do monocristal, não sendo adequado para a passagem de corrente elétrica.

Se a impureza dopante acrescentada ao silício for da família III-A da tabela periódica, o semicondutor é designado como sendo do tipo P, pois sua condutividade será predominantemente devida ao excesso de buracos, que são portadores positivos de carga. Neste caso as lacunas ou buracos são chamados portadores majoritários e os elétrons da banda de condução, portadores minoritários. O dopante no caso é chamado de receptor.

Agora, se a impureza dopante pertencer à família V-A, o semicondutor resultante é designado como sendo do tipo N, e sua condutividade será devida ao excesso de elétrons que são portadores negativos de carga, sendo estes agora, os portadores majoritários e as lacunas, os portadores minoritários. A impureza dopante é chamada de doadora.

No método tradicional, a dopagem é feita por meio da incorporação de uma pequena quantidade do dopante (da ordem de ppba) no estágio de fundição e crescimento do monocristal ( métodos Czochralski ou Float zone ). Os elementos mais comumente adotados como dopantes para o silício são o Boro (que produz um semicondutor do tipo P) e o Fósforo (que produz um semicondutor do tipo N).

O Boro possui um coeficiente de segregação (que é um parâmetro que fornece a razão entre a concentração da impureza na fase sólida e na fase fundida) próximo de 0.8, o que faz com que ele apresente uma boa difusão ao longo do cristal de silício, produzindo uma dopagem uniforme.

Na dopagem do monocristal de Si com P,

obtemos uma resistividade maior próximo à borda do cristal do que no centro, já que o fósforo tende a se concentrar na fase líquida, devido ao seu baixo coeficiente de distribuição (aproximadamente 0.35). Este fato é muito negativo, pois, além de não haver outro elemento dopante tipo N com coeficiente de distribuição maior do que o do fósforo, os semicondutores do tipo N são os responsáveis pelos doadores de carga (elétrons). Como a mobilidade dos elétrons é muito maior do que a mobilidade dos buracos, o silício do tipo N é mais adequado para a construção de dispositivos de potência. Mas a grande variação na dopagem em diferentes pontos do silício tipo N limita os valores da voltagem e corrente aplicados a estes dispositivos, principalmente em dispositivos de grande volume, reduzindo muito o desempenho e a durabilidade destes.

Alguns procedimentos de crescimento de cristais foram desenvolvidos tentando compensar estas dificuldades. Bradshaw e Mlavsky [3] fizeram puxamentos de cristais de Si dopando-o com fósforo num processo de fusão a vácuo, aonde usou-se a razão de evaporação do fósforo durante a fusão, por compensação do aumento de concentração do fósforo, causado pela segregação.

Podemos encontrar ainda na literatura outros métodos e procedimentos de crescimento de cristais tentando solucionar este problema [3]. Contudo tais métodos necessitam de rigorosos controles simultâneos dos processos cinéticos, incluindo evaporação, segregação, e reações líquido - vapor.

O método mais prático e eficiente de dopar o cristal de Si com P é o método NTD, (dopagem por transmutação com nêutrons), baseado em um processo puramente nuclear. Esta técnica de dopagem produz semicondutores do tipo N com variações muito pequenas nos valores da resistividade do cristal dopado. As aplicações nas quais o silício NTD pode ser utilizado com vantagens em relação ao silício dopado pelo método convencional são :

- Na confecção de retificadores e tiristores de alta potência com grande volume para suportar altas voltagens. Para transmissão de energia elétrica para longas distâncias, os circuitos de retificação podem ser construídos com um número menor de tiristores feitos com Si NTD, de tal modo que o sistema se torne mais eficiente e barato.

-O silício NTD permite que de uma mesma lâmina ou lote de lâminas sejam construídos vários componentes idênticos com as mesmas características de resistividade. Tal fato tem feito que as aplicações do silício NTD na indústria automobilística, por exemplo, aumentem consideravelmente, pois no caso de defeitos é mais conveniente substituir uma placa eletrônica por outra com componentes idênticos.

-Microcomputadores, televisores, etc, vem usando cada vez mais componentes com resistividades idênticas feitos com silício NTD.

### I.3. Mercado do Silício

Em 1955 iniciou-se o uso de silício grau eletrônico em dispositivos semicondutores, tendo em vista suas propriedades adequadas, abundância e baixo custo, o que revolucionou o padrão de produção e consumo.

Com o rápido desenvolvimento da tecnologia dos circuitos integrados e, portanto da microeletrônica, e a rápida expansão do campo de aplicação dos mesmos a partir da década de 70, o uso do silício como material semicondutor tem crescido muito rapidamente. O silício monocristalino grau eletrônico é, portanto, utilizado na grande maioria dos dispositivos elétricos e eletrônicos, desde circuitos integrados para computadores e microprocessadores até

retificadores de grande volume para alta tensão.

A produção mundial de silício grau eletrônico policristalino localiza-se basicamente nos EUA, Japão e Europa, sendo da ordem de 12.000 toneladas em 1988. O aumento da capacidade de produção foi da ordem de 170% de 1983 a 1989 [24].

No Brasil ainda não existe produção de silício grau eletrônico policristalino. Apenas poucas empresas brasileiras atuam nas diversas etapas do processamento de lâminas de silício, que são usadas na confecção de dispositivos discretos (diodos, tiristores, células solares, etc.) e circuitos integrados.

Atualmente, a empresa Heliodinâmica de São Paulo é a única que importa cerca de 40 toneladas por ano de silício policristalino grau eletrônico para produzir monocristais de silício, que são cortados em lâminas. A maior parte destas lâminas é destinada para a produção de células solares pela própria empresa e o resto é vendido para a indústria de microeletrônica [9].

A maior parte do silício grau eletrônico consumido no Brasil está embutida em produtos finais que são importados, tais como, dispositivos discretos e circuitos integrados. Em 1988, o montante desta importação alcançou a cifra de US\$ 500 milhões [24].

#### I.4. Crescimento de Monocristais de Silício

Até poder ser usado na confecção de dispositivos semicondutores, o silício precisa passar por diversas etapas de processamento. A primeira delas é a obtenção do silício grau metalúrgico a partir do quartzo (grau de pureza da

ordem de 98 a 99%). A seguir, o silício grau eletrônico (grau de pureza da ordem de 99,999999999%) é obtido por meio da purificação da triclorosilana ( $\text{SiHCl}_3$ ). A figura 1.4.1 mostra, esquematicamente, as operações mais relevantes do processo de obtenção do silício de grau eletrônico. Inicialmente o silício de grau metalúrgico reage com cloreto de hidrogênio anidro em um reator de leito fluidizado para produzir uma mistura de clorosilanas. Essa mistura, essencialmente de triclorosilana (TCS) e tetracloreto de silício é condensada e destilada para remover impurezas e separar subprodutos. O silício de pureza eletrônica é obtido a partir da triclorosilana purificada em uma reação de redução, com hidrogênio, em um reator a uma temperatura entre  $1000^\circ$  e  $1100^\circ\text{C}$ . Na tabela 1.4.1 estão listados os limites máximos para os conteúdos de impurezas para o silício grau eletrônico.

TABELA 1.4.1 - Requisitos de pureza para o Silício GE

ELEMENTOS	TEOR (ppba)
Elementos do grupo III	< 0,3
Elementos do grupo V	< 1,5
Metais pesados	< 0,1
Carbono	< 300
Oxigênio	< 50
Outros elementos	< 0,001

A etapa seguinte consiste em se obter o monocristal de silício a partir do silício policristalino grau eletrônico em fornos apropriados. No caso do silício são usados dois métodos de crescimento do monocristal:

SILICIO GRAU

METALURGICO

Forno de reducao a arco



TRICLOROSILANA

(TCS)

Reator de leito fluidizado



PURIFICACAO DA

TRICLOROSILANA

Colunas de destilacao



DEPOSICAO DO SI-

LICIO GRAU ELE-

TRONICO

Reator tipo U  
deposicao a partir  
da fase de vapor

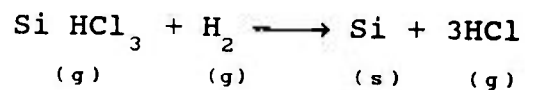


Fig.1.4.1. Principais etapas do processo de obtenção do Si grau eletrônico

método "Czochralski" ( Cz ) e método "Float Zone" ( Fz ).

No método Cz, pedaços de silício policristalino são colocados dentro de um cadinho de quartzo que é aquecido por um aquecedor resistivo de grafite de alta pureza. Todo este sistema é isolado e, uma vez alcançada a fusão do silício, mergulha-se uma pequena semente de monocristal de silício orientado na superfície do silício fundido. À medida que a semente vai sendo levantada, o silício fundido vai se cristalizando ao seu redor formando o monocristal. O diâmetro do monocristal pode ser ajustado pela velocidade de puxamento e controle da temperatura. Usualmente a semente e o cadinho giram em direções opostas, durante o crescimento, para homogenizar o campo de temperaturas na fase líquida. Durante todo o processo é mantida uma atmosfera de argônio na câmara de puxamento. A figura 1.4.2, mostra esquematicamente, um puxador tipo Czochralski.

No método "Float Zone", uma barra de silício policristalina suportada verticalmente é aquecida e fundida localmente, por zonas, por meio de uma bobina aquecedora de radio-frequência que se desloca lentamente ao longo da barra partindo da extremidade onde se encontra a semente. A movimentação desta bobina de RF estabelece a estrutura cristalina da semente ao mesmo tempo que purifica o silício. Movendo repetidas vezes a bobina pelo monocristal de silício, consegue-se atingir resistividades muito elevadas, da ordem de 10 k $\Omega$ cm. A figura 1.4.3, mostra o arranjo barra de Si - monocristal - semente, usado no processo FZ. A figura 1.4.4, esquematiza um equipamento para obtenção de silício monocristalino pelo processo FZ.

Os monocristais de silício crescidos pelo método CZ apresentam a desvantagem de incorporar oxigênio do óxido de silício presente no quartzo do cadinho e carbono do aquecedor resistivo, enquanto que os monocristais FZ não apresentam este problema pois não ficam em contato com nenhum outro material durante o crescimento. Outra vantagem

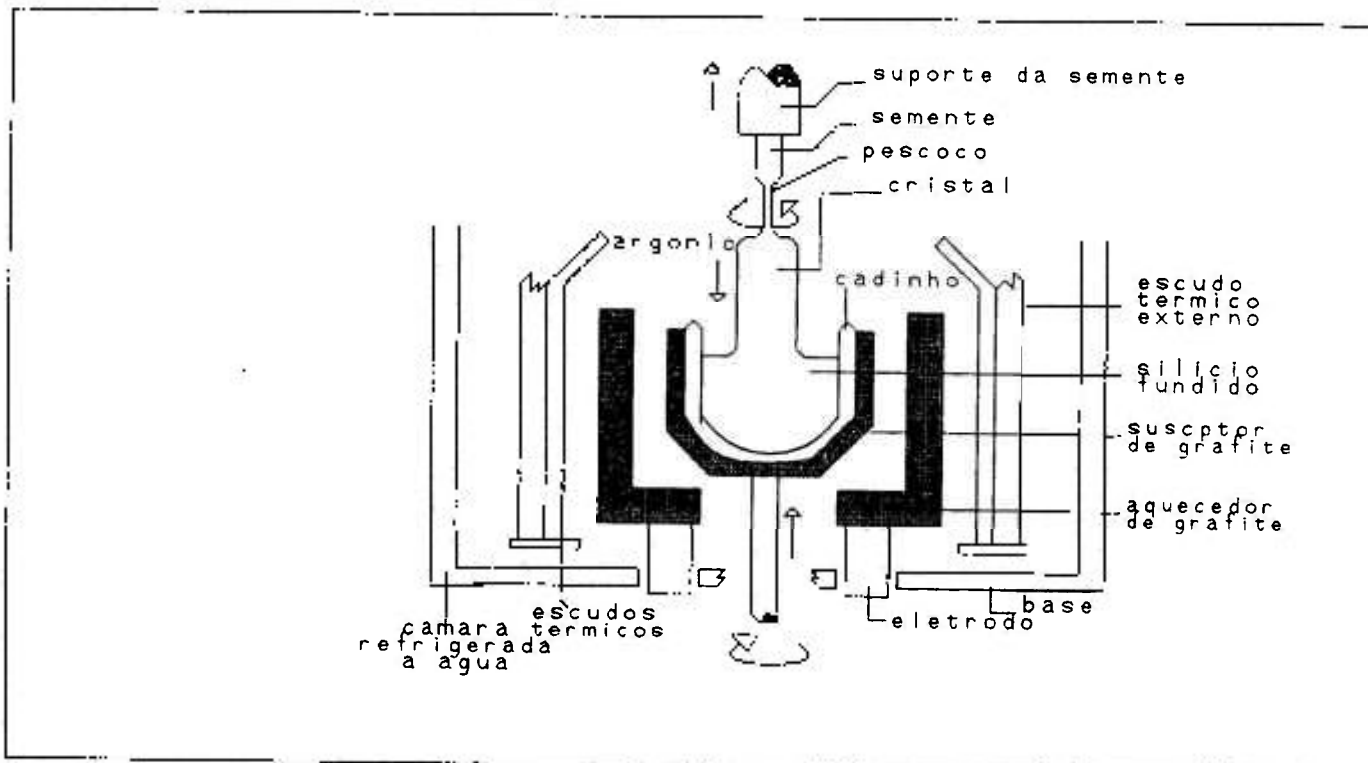


Fig. 1.4.2. Esquema de um puxador Czochralski.

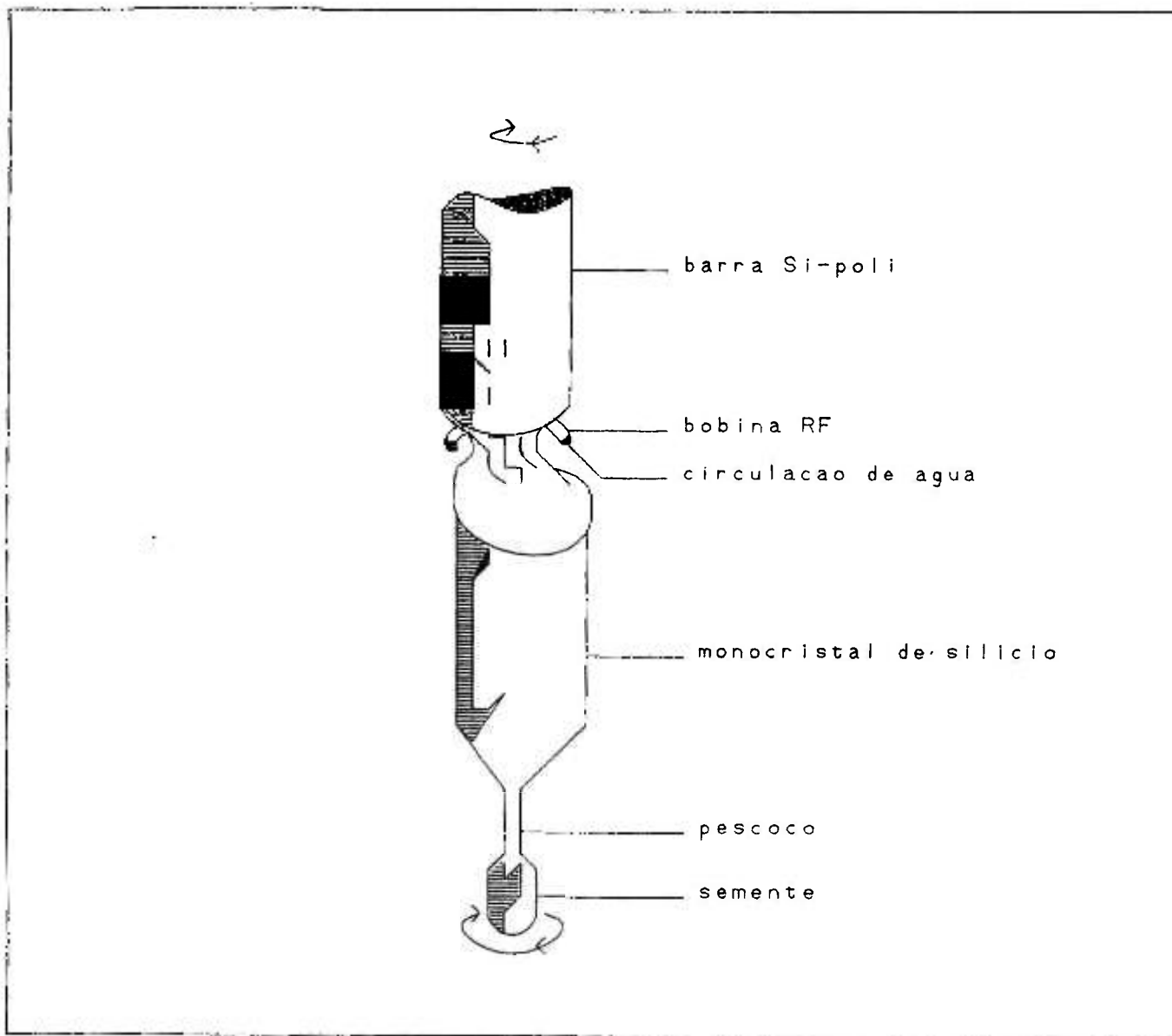


Fig.1.4.3. Desenho esquemático ilustrando uma barra de Si policristalino; o monocristal sendo formado e a semente, durante o processo Fz.

dos monocristais FZ é o fato de que durante o crescimento do monocristal, as impurezas presentes no silício migram para uma das extremidades, ali se concentrando. Após o crescimento podemos descartar esta extremidade obtendo um monocristal com pureza bastante elevada.

## CAPÍTULO II

### DOPAGEM DO SILÍCIO PELA TRANSMUTAÇÃO COM NÊUTRONS: TÉCNICA E METODOLOGIA.

#### II.1. Introdução

O método de dopagem do silício pela transmutação com nêutrons, método NTD, consiste basicamente na irradiação do cristal de silício com nêutrons térmicos (nêutrons de baixa energia, tipicamente da ordem de 0,025 eV) em um reator nuclear.

Em 1951 Lark-Horowitz [22], sugeriu, pela primeira vez, que o método NTD podia ser usado para controlar a dopagem em cristais de silício. Em 1961, Tanenbaum e Mills [37], fizeram a primeira experiência detalhada com o objetivo de produzir silício dopado homogêneo. Nos anos seguintes a técnica foi deixada de lado, principalmente devido ao custo de produção ser maior do que na técnica tradicional. Com o desenvolvimento do crescimento de monocristais de diâmetros maiores pelo método float zone, no início da década de 70, ficou evidente a necessidade de uma dopagem mais homogênea. Além disto, o aumento das exigências para um melhor desempenho dos dispositivos eletro-eletrônicos por um lado, e o aumento na demanda por produtos mais econômicos por outro lado, culminou na

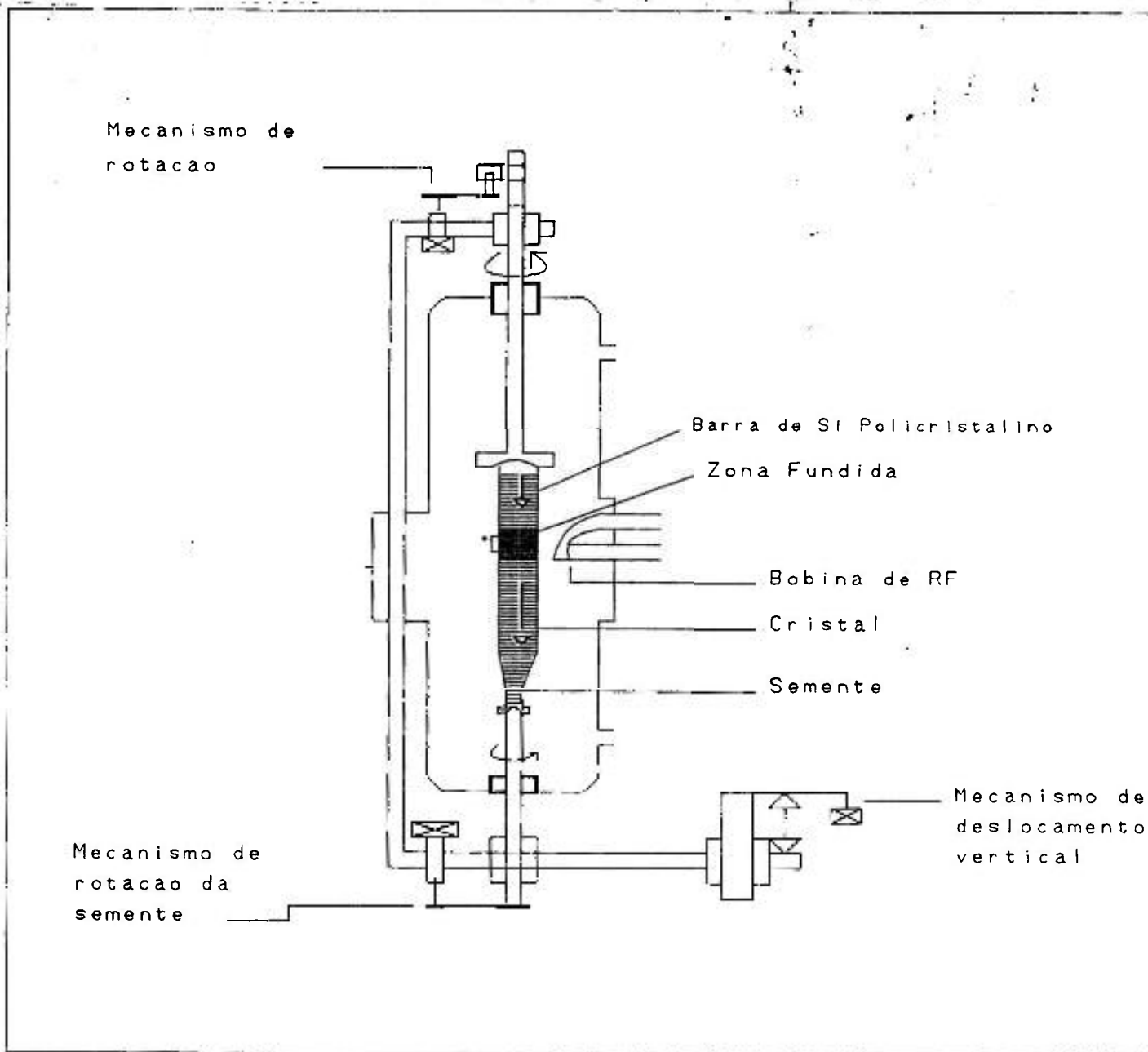
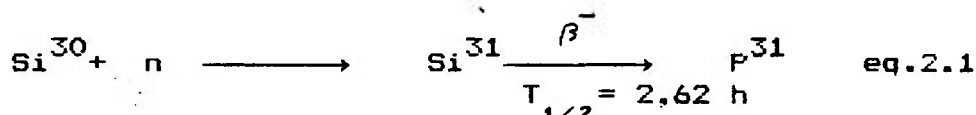


Fig. 1.4.4. Esquema de um forno para crescimento de monocristais pelo metodo Float Zone.

redescoberta da dopagem de silício pelo método NTD, a partir de 1973 [31],[19].

A partir do final da década de 70 surgiram artigos de revisão específicos, como a referência [13] e foram realizadas conferências específicas sobre o silício NTD, cujos anais [8], [12], e [18] além de informar os progressos conseguidos nas diversas instituições que se dedicam a estudar o silício NTD, contém artigos de revisão muito bons. Mais recentemente, foi publicado um trabalho que relata todos os aspectos da irradiação de silício em Harwell [7].

O método está baseado nos fenômenos nucleares de captura de um nêutron por um determinado elemento químico e consequente transmutação do elemento resultante em outro por meio da emissão de uma partícula beta. Assim, o isótopo  $\text{Si}^{30}$  que está presente numa abundância de 3,05% no silício natural, captura um nêutron térmico e forma o isótopo radioativo  $\text{Si}^{31}$ . Este, por sua vez, emite uma partícula beta e se transmuta no isótopo estável  $\text{P}^{31}$ , substituindo, portanto, átomos de silício por átomos de fósforo ao longo de todo o cristal. A reação básica do processo pode ser esquematizada por:



Portanto, irradiando-se o cristal com nêutrons de uma forma homogênea, pode-se produzir um semiconductor tipo N com dopagem bem homogênea.

## II.2. Considerações Gerais sobre Reações Nucleares no Processo NTD.

Os nêutrons são comumente classificados em função da energia, da seguinte maneira:

- nêutrons térmicos: as mais importantes fontes de nêutrons térmicos são os reatores nucleares, nos

quais esses nêutrons são aqueles que, após perder energia durante o processo de moderação, atingem o equilíbrio térmico com os núcleos do meio. Apresentam uma distribuição de velocidades próxima a uma maxwelliana abrangendo um intervalo de energia de  $10^{-4}$  eV a 1 eV.

-nêutrons intermediários: são os nêutrons que ainda se encontram no processo de moderação; estão nessa categoria os nêutrons com energias compreendidas no intervalo de 1 eV até 100 keV.

-nêutrons rápidos: são os nêutrons recém produzidos na fissão e que ainda não iniciaram o processo de moderação. São considerados nêutrons rápidos aqueles com energias entre 100 keV a 10 MeV.

#### II.2.1. Reações Nucleares Induzidas pelos Nêutrons.

Existem outras possíveis reações nucleares, na técnica NTD, que ocorrem paralelamente à reação nuclear da eq. 2.1, quando uma amostra de cristal de Si está exposta a um fluxo de nêutrons.

Algumas destas outras reações podem produzir produtos indesejáveis e conseqüentemente colocar em xeque todo o propósito do experimento, que é a dopagem do Si com fósforo.

Na tabela 2.1 estão apresentados as possíveis reações entre nêutrons e os isótopos de Si estáveis;  $\text{Si}^{28}$  (abundância natural 92.27%),  $\text{Si}^{29}$  (abundância natural 4.68%),  $\text{Si}^{30}$  (abundância natural 3,05%). Reações com  $\text{P}^{31}$  também são consideradas. Na tabela 2.2 e tabela 2.2.1, mostramos suas respectivas secções de choque,  $\sigma$ , e a meia vida para decaimento,  $\tau$ .

Nota-se pela tab.2.1 que as reações II.2, II.3, II.7 e II.8, apenas alteram as razões isotópicas. A reação II.4 é a reação responsável pela dopagem do silício.

As reações II.5, II.9 e II.17, levam-nos à aniquilação do doador  $P^{31}$ , e a reação II.5 em particular, à criação de  $S^{32}$ .

Tabela 2.1. Possíveis reações nucleares entre nêutrons e os isótopos de Si e P.

Reações ( n, $\gamma$ ):	
$\text{Si}^{28} ( n, \gamma ) \text{Si}^{29}$	( II.2 )
$\text{Si}^{29} ( n, \gamma ) \text{Si}^{30}$	( II.3 )
$\text{Si}^{30} ( n, \gamma ) \text{Si}^{31} + \beta^-$	( II.4 )
$\text{P}^{31} ( n, \gamma ) \text{P}^{32} + \beta^-$	( II.5 )
Reações ( n, 2n ):	
$\text{Si}^{28} ( n, 2n ) \text{Si}^{27} + \beta^-$	( II.6 )
$\text{Si}^{29} ( n, 2n ) \text{Si}^{28}$	( II.7 )
$\text{Si}^{30} ( n, 2n ) \text{Si}^{29}$	( II.8 )
$\text{P}^{31} ( n, 2n ) \text{P}^{30} + \beta^+$	( II.9 )
Reações ( n, p ):	
$\text{Si}^{28} ( n, p ) \text{Al}^{28} + \beta^-$	( II.10 )
$\text{Si}^{29} ( n, p ) \text{Al}^{29} + \beta^-$	( II.11 )
$\text{Si}^{30} ( n, p ) \text{Al}^{30} + \beta^-$	( II.12 )
$\text{P}^{31} ( n, p ) \text{Si}^{31} + \beta^-$	( II.13 )
Reações ( n, $\alpha$ ):	
$\text{Si}^{28} ( n, \alpha ) \text{Mg}^{25}$	( II.14 )
$\text{Si}^{29} ( n, \alpha ) \text{Mg}^{26}$	( II.15 )
$\text{Si}^{30} ( n, \alpha ) \text{Mg}^{27} + \beta^-$	( II.16 )
$\text{P}^{31} ( n, \alpha ) \text{Al}^{28} + \beta^-$	( II.17 )

Tabela 2.2. Dados nucleares dos isótopos de Si, P e O<sub>2</sub>. [19], [29]

	reação ( n, γ )			reação ( n, 2n )		
	σ* (barns)		T <sub>1/2</sub>	σ (barns)	T <sub>1/2</sub>	E (meV)
Si <sup>28</sup>	0,08 ± 0,03		—	—	4,92s	17,4
Si <sup>29</sup>	0,28 ± 0,09		—	—	—	8,7
Si <sup>30</sup>	0,11 ± 0,01		2,62h	—	—	10,6
P <sup>32</sup>	0,20 ± 0,02		14,3d	—	2,55s	12,6
O <sup>16</sup>	—		—	—	126s	17,3
O <sup>17</sup>	—		—	—	—	4,2
O <sup>18</sup>	0,00021		29s	—	—	8,0

\* A secção de choque listada para a reação ( n, γ ) • para nêutrons térmicos.

Tabela 2.2.1. Dados nucleares dos isótopos de Si, P e O<sub>2</sub>. [19], [29]

	reação ( n, p )			reação ( n, α )		
	σ (barns)	T <sub>1/2</sub>	E (Mev)	σ (barns)	T <sub>1/2</sub>	E (Mev)
Si <sup>28</sup>	0,004	2,3m	4,0	—	—	2,7
Si <sup>29</sup>	0,10	6,6m	3,3	—	—	0,04
Si <sup>30</sup>	—	—	—	0,00017	9,45m	4,2
P <sup>32</sup>	0,77	2,62h	0,97	0,15	2,27m	0,91
O <sup>16</sup>	0,05	7,38s	10,2	—	—	2,2
O <sup>17</sup>	—	4,14s	8,1	0,25 ± 0,15	5500a	térmica
O <sup>18</sup>	—	—	—	—	2,3s	—

Pela tabela 2.2, vemos que a secção de choque para a reação II.5 é cerca de duas vezes maior que a da reação II.4.

Porém

$$\frac{[S^{32}]}{[P^{31}]} \approx \frac{[P^{31}]}{[Si^{30}]} \quad \text{eq. ( 2.2 )}$$

Onde os colchetes, [ ], significam concentração.

Logo, para uma irradiação com nêutrons, suficiente para transmutar  $10^{17}$  átomos de  $Si^{30}$  em átomos de  $P^{31}$ , a quantidade de  $P^{31}$  destruída é equivalente a  $5.9 \cdot 10^{12}$ . Isto é obviamente insignificante. A quantidade de  $P^{31}$  destruída é equivalente à quantidade de  $S^{32}$  produzida, e esta concentração, por sua vez, não afeta as propriedades elétricas em níveis de resistividade e tempo de vida usuais dos dispositivos semicondutores.

O efeito mais problemático da reação II.5 é a geração da atividade no monocristal de Si durante um período de tempo relativamente longo, com a emissão de partículas  $\beta^-$  pelos núcleos dos átomos de  $P^{32}$  que possui uma meia vida de 14.22 dias. A atividade total, naturalmente, será proporcional ao volume do Si, e o manuseio de grandes quantidades necessita de considerações especiais.

As reações  $(n, \gamma)$  da tabela 2.1 só podem ocorrer com nêutrons térmicos. As reações com nêutrons de maior energia, são as reações,  $(n, 2n)$ ,  $(n, p)$  e  $(n, \alpha)$ .

As reações II.6 e II.16, seriam problemáticas se ocorressem numa média comparável à da reação II.4 que produz  $P^{31}$ , pois, isto poderia resultar em compensação e contribuir para a produção de Si tipo - p ao invés do Si tipo - N. Porém, os resultados obtidos no presente trabalho,

não indicam nenhum indício de Si tipo-p nas amostras irradiadas.

As reações II.10, II.11, II.12 e também II.13 não produzem qualquer tipo de alteração.

Quanto às reações II.14 e II.15, se existissem, seria necessário uma análise mais profunda sobre sua concentração e possíveis implicações, uma vez que as propriedades elétricas do Mg são desconhecidas, o que foge ao caráter do presente trabalho. Contudo, não existe nada documentado na literatura com respeito a implicações do elemento Mg devido ao método NTD.

Para o silício crescido pelo método Cz é importante considerar o efeito do  $O_2$  dissolvido no Si. Estas considerações não são importantes para o Si crescido pelo método float-zone.

As reações que devem ser consideradas para o Si crescido pelo método Cz estão apresentadas na tab.2.3.

Tabela 2.3. Possíveis reações nucleares entre nêutrons e os isótopos de  $O_2$

reações (n,γ)		
$O^{16}(n,\gamma)O^{17}$		(II.18)
$O^{17}(n,\gamma)O^{18}$		(II.19)
$O^{18}(n,\gamma)O^{19}$	$+ F^{19} + \beta^-$	(II.20)
reações (n,p)		
$O^{16}(n,p)N^{16}$	$+ O^{16} + \beta^-$	(II.21)
$O^{17}(n,p)N^{17}$	$+ O^{17} + \beta^-$	(II.22)
$O^{18}(n,p)N^{18}$	$+ O^{18} + \beta^-$	(II.23)
reações (n,α)		
$O^{16}(n,\alpha)C^{13}$		(II.24)
$O^{17}(n,\alpha)C^{14}$	$+ N^{14} + \beta^-$	(II.25)
$O^{18}(n,\alpha)C^{15}$	$+ N^{15} + \beta^-$	(II.26)
reações (n,2n)		
$O^{16}(n,2n)O^{15}$	$+ N^{15} + \beta^+$	(II.27)
$O^{17}(n,2n)O^{16}$		(II.28)
$O^{18}(n,2n)O^{17}$		(II.29)

As reações II.18, II.19, II.28, e II.29 somente alteram a razão isotópica do oxigênio. As reações II.21, II.22, e provavelmente II.23 não produzem mudanças. As reações II.24, II.26, e II.27 provavelmente necessitarão de nêutrons com energias acima de 5 Mev, não sendo portanto relevantes suas considerações no caso do reator IEAR-1.

A reação II.25 pode ocorrer com nêutrons térmicos. Como a meia vida do  $C^{14}$  é bem longa, o efeito principal desta reação é a produção de carbono. A reação II.20 também ocorre com nêutrons térmicos mas possui uma seção de choque extremamente pequena. Entretanto, desde que a concentração de oxigênio não exceda  $10^{18}$  át/cc, e como as abundâncias  $O^{17}$  e  $O^{18}$  são 0,04% e 0,20%, respectivamente, poderemos esperar que a fração de fluor produzido pela reação III.20 seja cerca de  $10^{-9}$  da fração de fósforos produzidos, e a fração de  $C^{14}$  produzido pela reação II.25 seja  $10^{-7}$  da fração de fósforos produzidos. Estas quantidades de impurezas são completamente desprezíveis. Portanto, cristais de Si contendo cerca de  $10^{18}$  átomos de oxigênio por  $cm^3$  podem ser irradiados com segurança.

Pode-se concluir a partir desta discussão, que as reações nucleares paralelas que podem ocorrer quando um tarugo de silício é irradiado com nêutrons num reator nuclear, não prejudicam o processo principal que é a dopagem do silício com fósforo. Entretanto deve ser enfatizado, que outros efeitos como por exemplo os danos na estrutura cristalina do silício, produzidos em consequência da irradiação, não são totalmente desprezíveis e podem até ser um fator decisivo para o sucesso do processo NTD. Estes efeitos serão discutidos posteriormente, no sub-ítem II.4.

### II.3. Relação Entre Dose De Nêutrons e Resistividade

É possível estabelecer uma relação empírica entre a resistividade final que se deseja obter e a dose de nêutrons necessária, que leva em conta os parâmetros

nucleares do reator envolvidos no processo de irradiação.

De acordo com a equação 1.2.2.1, se um semicondutor tem uma densidade de  $n$  elétrons de condução e  $p$  lacunas por unidade de volume, sua condutividade pode ser expressa por:

$$\sigma = q_e (\mu_e n + \mu_l p) \quad (\Omega \cdot \text{cm})^{-1} \quad \text{eq. (2.3.1)}$$

Onde:

$q_e$  é a carga do elétron =  $1,6 \times 10^{-19}$  Coulomb

$\mu_e$  é a mobilidade dos elétrons de condução expressa em  $\text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ .

$\mu_l$  é a mobilidade das lacunas.

As mobilidades relacionam a velocidade de arrasto dos portadores de carga com a intensidade do campo elétrico aplicado. Ambas são constantes que podem ser determinadas experimentalmente e são da ordem de  $1396 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$  para o Si e à temperatura ambiente [27].

No caso específico do silício NTD que é um material semicondutor do tipo N, tem-se que  $n \gg p$ , de tal forma que a eq. (3.1) se reduz a:

$$\sigma = q_e \mu_e n \quad \text{eq. (2.3.2)}$$

A resistividade é o inverso da condutividade, assim tem-se:

$$\rho = 1/C \mu_e q_e \quad \text{eq. (2.3.3)}$$

onde a densidade de elétrons  $n$  foi substituída pela concentração de  $P^{31}$ ,  $C$  (átomos/ $\text{cm}^3$ ), uma vez que cada átomo de fósforo fornece um elétron de condução para a rede.

A concentração final de fósforo será igual à concentração inicial presente no material antes da

irradiação mais a concentração introduzida pela irradiação pelo processo NTD:

$$C_f = C_i + C_{NTD} \quad \text{eq.(2.3.4)}$$

Por outro lado, a concentração de átomos de fósforo introduzidos pela irradiação com nêutrons é dada pela fração de átomos de  $\text{Si}^{30}$  por unidade de volume que capturam um nêutron térmico durante todo o período de irradiação  $t$ :

$$C_{NTD} = N_o \sigma_c \phi t \quad \text{eq.(2.3.5)}$$

onde  $N_o$  é a densidade numérica de átomos de  $\text{Si}^{30}$  presente na amostra e pode ser facilmente calculada considerando que a densidade do Si é  $2.33 \text{ g/cm}^3$ , sua fração isotópica é de 3.05% e a massa atômica é de 28.086. Assim,  $N_o = 1.544 \times 10^{21} \text{ átomos/cm}^3$ . Tem-se ainda, na equação (2.3.5) que  $\sigma_c$  é a secção de choque de captura de nêutrons térmicos e  $\phi$  é o fluxo de nêutrons que incide sobre o cristal.

Combinando-se as equações (2.3.3), (2.3.4) e (2.3.5), obtem-se:

$$\phi \cdot t = \frac{1}{N_o \sigma_c \mu_o q_o} \left[ \frac{1}{\rho_f} - \frac{1}{\rho_i} \right] \quad \text{eq.(2.3.6)}$$

Como o fator fora das chaves na relação acima é aproximadamente uma constante, pode-se finalmente estabelecer uma relação entre a dose de nêutrons e a resistividade do material após a irradiação:

$$\phi \cdot t = k \left[ \frac{1}{\rho_f} - \frac{1}{\rho_i} \right] \quad \text{eq.(2.3.7)}$$

onde a constante  $k = 1/(N_o \sigma_c \mu_o q_o)$  pode ser calculada uma vez conhecidos  $\mu_o$  e  $\sigma_c$ .

O valor de  $\sigma_c$  situa-se entre 0.11 e 0.13 barns segundo relata a referência [12]. O valor exato é característico de cada reator e depende se o espectro de nêutrons é bastante termalizado, ou se exhibe uma proporção significativa de nêutrons rápidos ou em processo de termalização. Portanto, o valor de  $\sigma_c$  deve ser determinado experimentalmente na posição em que são feitas as irradiações.

Esta determinação pode ser feita por meio da técnica de ativação por nêutrons, irradiando-se pequenas amostras de silício na posição de irradiação e após dissolver a amostra, mede-se a atividade  $\beta$  absoluta em um contador do tipo  $4\pi$ .

Outra forma de se determinar o valor de  $\sigma_c$  é por meio da equação (2.3.6). Tendo-se o valor da resistividade inicial, após terem sido realizadas um número significativo de irradiações e medidas as resistividades finais, pode-se fazer um tratamento estatístico dos dados para se determinar um valor médio de  $\sigma_c$  [7].

Para se usar a equação (2.3.7), que estabelece a relação dose de nêutrons x resistividade final, deve-se ter uma medida precisa da dose total de nêutrons  $\phi.t$ . Para tanto é necessária uma monitoração constante do fluxo de nêutrons na posição de irradiação. O monitor deve, portanto, ser de dimensões reduzidas, uma vez que o espaço disponível na posição de irradiação, em geral, é muito limitado. O monitor mais usado é do tipo SPND, "self-powered neutron detector", devido às vantagens de ter um baixo custo, tamanho reduzido e necessitar de uma eletrônica bastante simples. No entanto, o monitor do tipo SPND permite apenas medidas relativas do fluxo de nêutrons, sendo ideais para controlar o tempo de irradiação do cristal, necessitando portanto de uma calibração adequada.

Para se ter um controle de qualidade mais eficiente, a dose de nêutrons recebida pelo cristal durante

a irradiação deve ser medida com precisão. Um método ideal para este tipo de medida é o da técnica de ativação, usando fios de cobalto. Os fios de cobalto são irradiados junto com os cristais, assim, após a irradiação mede-se a atividade dos fios e determina-se a dose de nêutrons  $\phi.t$ .

#### II.4 Danos Causados pela Irradiação e Tratamento Térmico pós Irradiação.

Após a irradiação, o cristal de silício apresenta-se com vários danos em sua estrutura cristalina. Reações de espalhamento por nêutrons rápidos provocam o deslocamento dos átomos de silício das posições que eles ocupariam numa rede cristalina perfeita e, no caso de uma alta transferência de energia, ocorre a formação de grupos de átomos altamente desordenados. A este efeito, acrescenta-se sempre o deslocamento dos átomos devido ao recuo quando da captura de nêutrons térmicos. Portanto, a dopagem por transmutação sempre irá introduzir defeitos de modo significativo no cristal de silício. Estes defeitos funcionam como armadilhas, aprisionando os elétrons. Ou seja, a deterioração da estrutura do cristal resulta em uma variação significativa das suas propriedades elétricas.

Não há ainda um consenso de qual é o procedimento mais adequado para o tratamento térmico. A discrepância entre os procedimentos considerados como ideais pelos diversos autores deve ter sua origem nas diferenças de qualidade dos cristais antes da dopagem e nas diferenças de condições de irradiação.

Está estabelecido que temperaturas baixas não são convenientes [36]. O tratamento térmico realizado abaixo de 550 °C pode introduzir uma concentração significativa de átomos de oxigênio que são "doadores". Outro fato é que temperaturas menores do que aproximadamente 650 °C não são suficientes para remover os defeitos introduzidos na rede

pela irradiação. Temperaturas mais altas, acima de 800 °C, devem ser utilizadas com extremas precauções quanto às impurezas, pois acima desta temperatura, os elementos metálicos se difundem com muita facilidade no silício.

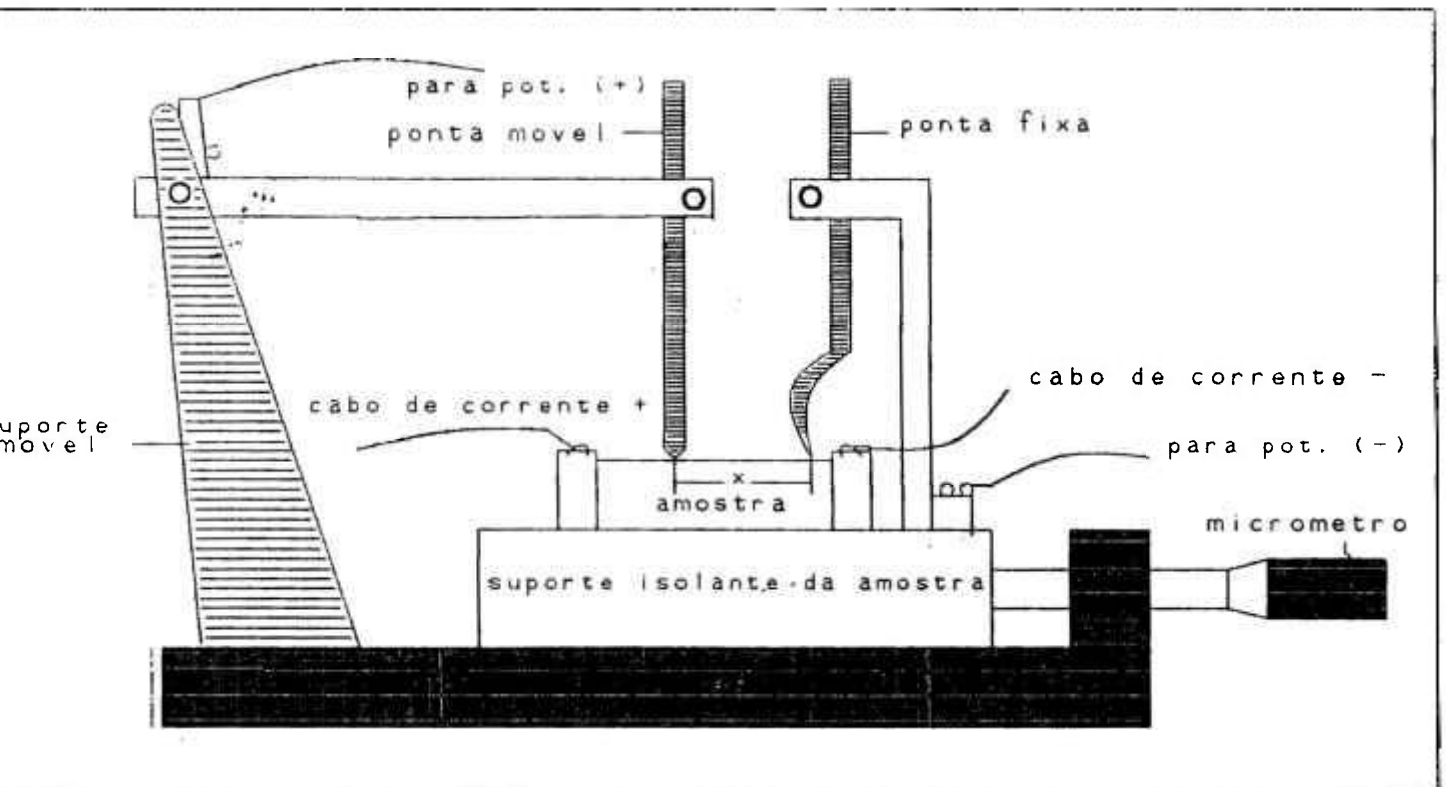
Um parâmetro muito importante para se estabelecer o tratamento térmico mais adequado é a razão de cádmio. Quanto mais baixa é esta razão, maior deve ser a temperatura, pois um número maior de nêutrons rápidos irá provocar mais defeitos.

## II.5. Medição da Resistividade nas lâminas de Si

Após o tratamento térmico as lâminas de Si irradiadas submetem-se à medida de resistividade. A medida de resistividade é a mais fundamental das medidas de rotina que comumente são feitas em cristais semicondutores. Basicamente estas medidas são feitas, fazendo-se passar uma corrente de valor bem conhecido através da amostra e medindo-se uma queda de voltagem entre dois pontos separados, a uma distância conhecida.

Existem dois métodos de se medir a resistividade de materiais semicondutores. Um método muito preciso é aplicar um potencial transversal na amostra, realizando uma série de medidas potenciométricas da queda de voltagem entre uma ponta de contato fixa e uma móvel. A ponta de contato móvel permite pequenos movimentos ao longo da amostra, normalmente de 0.5 mm ou 1.0 mm. Um desenho esquemático é ilustrado na figura 2.5.1.

Como podemos observar pela fig. 2.5.1, se a distância entre as pontas de contato for aumentada de  $x$  a  $x + \Delta x$ , a variação da resistência  $\Delta R$  da parte da amostra que situa-se entre  $x$  e  $x + \Delta x$  é somada à resistência  $R$  da parte entre 0 e  $x$ . Então, se a corrente fluindo sobre a amostra é  $I_0$  e se a mudança de potencial  $\Delta V$  é verificada no potencial entre a ponta fixa e a móvel acompanhando a mudança  $\Delta x$ , pela definição de resistividade:



g.2.5.1. Desenho esquematico de um aparelho de medir resistividade de amostras de Si pelo metodo do potencial transversal

$$\Delta R = \frac{\Delta V}{I_0} = \frac{\rho \Delta x}{A} \quad \text{eq. (2.5.1)}$$

Onde A é a secção transversal da amostra. Resolvendo para  $\rho$ , vemos que

$$\rho = \frac{A \Delta V}{I_0 \Delta x} \quad \text{eq. (2.5.2)}$$

Representa a resistividade do material entre  $x$  e  $x + \Delta x$ .

Fazendo uma série de medidas levando em conta a mudança do potencial  $\Delta V$  em função do espaçamento  $\Delta x$ , é possível chegar em uma determinação experimental da resistividade como função da distância ao longo da amostra. Um gráfico representando estas medidas de resistividade é denominado perfil de resistividade da amostra.

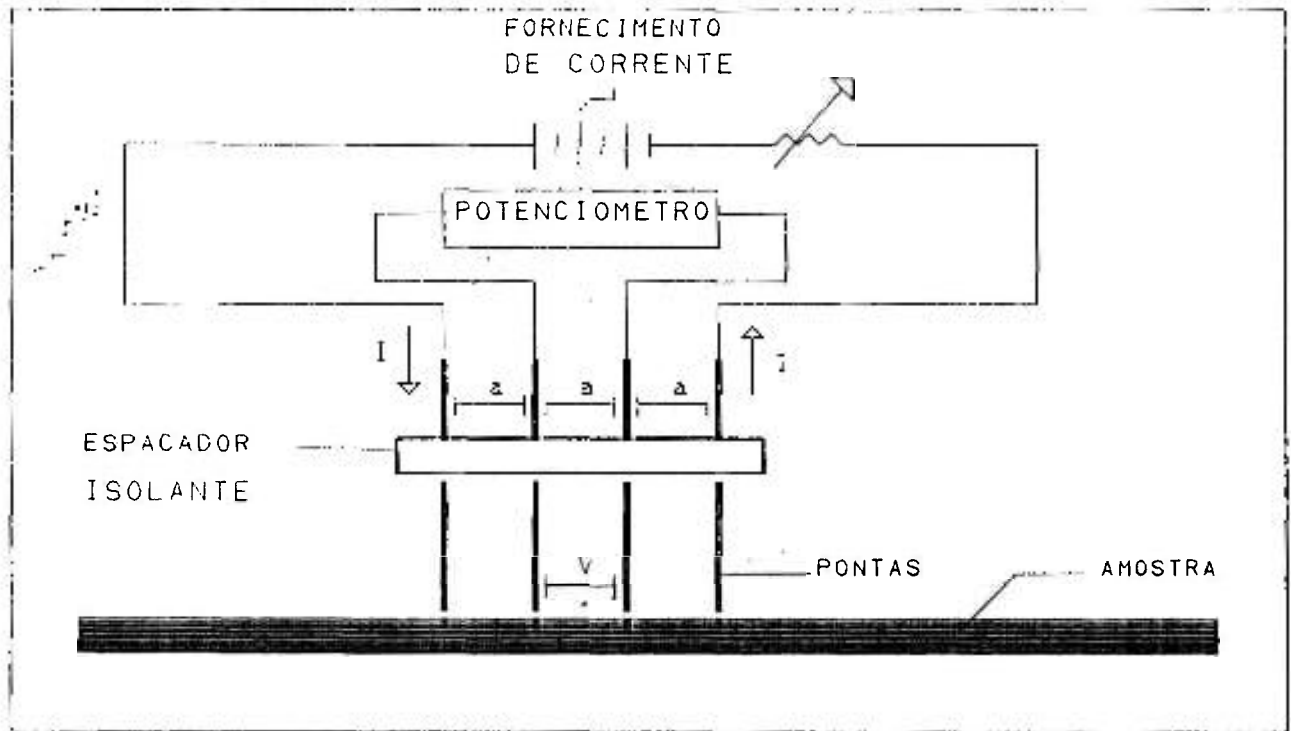
O outro método é o usado no presente trabalho chamado de método 4 pontas. Este método é mais prático, porém menos preciso que o anterior e é usado para controle de especificações de materiais em dispositivos de processos de fabricação. Nesse método, 4 pontas equidistantes tocam a superfície da amostra, conforme ilustrado na fig.2.5.2. As duas pontas externas são usadas para fazer passar uma corrente contínua pela amostra, e o par interno de pontas é usado para medir uma queda de voltagem por um potenciômetro.

Usando os métodos padrão da teoria de corrente contínua e eletrostática, pode-se achar a distribuição de potencial resultante e desta solução mostrar que a diferença de potencial entre as duas pontas internas deve ser dada por

$$V = \frac{I}{2 \pi \sigma a} \quad \text{eq. (2.5.3)}$$

Onde,

I = corrente contínua



g.2.5.2. Desenho esquemático de um aparelho medidor de resistividade pelo método 4 pontas

a = espaçamento entre as pontas adjacentes  
 $\sigma$  = condutividade elétrica.

Como

$$\rho = \frac{1}{\sigma} \quad \text{eq. (2.5.4)}$$

Podemos obter uma outra equação sob a forma

$$\rho = \frac{2 \pi a V}{I} \quad \text{eq. (2.5.5)}$$

Em nosso trabalho, utilizamos para a realização das medidas de resistividade de amostras, um medidor de resistividade pelo método 4 pontas marca Veeco, modelo FP 5000.

## CAPITULO III.

### EQUIPAMENTOS UTILIZADOS E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

#### III.1. Introdução

Para se utilizar a técnica NTD em monocristais de Si, exige-se um fluxo de nêutrons da ordem de  $10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s. Com um fluxo de nêutrons menor, alonga-se muito o tempo de irradiação dos monocristais de Si.

A temperatura na posição de irradiação deve ser a mais baixa possível, de preferência menor do que 180°C, para se evitar defeitos na estrutura do cristal. Qualquer amostra irradiada num reator está sujeita ao aquecimento provocado pelas reações nucleares que ocorrem em seu interior e devido às radiações que chegam na amostra. Estas reações liberam energia provocando o aquecimento da amostra. O efeito da temperatura pode ser minimizado, colocando-se o cristal de silício em contacto direto com a água, que geralmente é o próprio refrigerante do reator, ou ainda, por meio de um fluxo de gás através do canal de irradiação.

Procurou-se, portanto, uma posição para irradiação dos monocristais de Si no reator IEA-R1, prática e compatível com as condições de irradiação exigidas. Uma vez escolhida a posição adequada para a irradiação dos monocristais de Si no reator, foi inicialmente construído um dispositivo para irradiá-los. Este dispositivo permite irradiar tarugos de Si de até 2,5" de diâmetro. Posteriormente, já com as bases do projeto bem definidas, iniciou-se a confecção de outro dispositivo de irradiação para tarugos de Si de até 4" de diâmetro, e a implantação de um laboratório para controle da atividade do Si irradiado..

### III.2. Reator IEA-R1

O reator IEA-R1 do IPEN é um reator de pesquisas tipo piscina. Tem como moderador e refrigerante a água leve; como refletor, blocos de grafite revestidos de alumínio e como blindagem radiológica água e concreto com barita que chega a atingir 2 metros de espessura na parede lateral da piscina. O fluxo de nêutrons é controlado por três barras de segurança e uma de controle. A refrigeração é realizada através de uma circulação forçada de cima para baixo com água leve, com vazão normal de  $600 \text{ m}^3/\text{h}$ , sendo a temperatura de entrada do refrigerante no núcleo do reator em torno de  $30^\circ \text{C}$  e de saída  $33^\circ \text{C}$ , para a operação de 2 MW. Opera desde 1958 com uma potência de 2 MW, embora sua capacidade construtiva permita até 5 MW. A figura 3.2.1 ilustra a vista geral do reator IEA-R1.

O caroço do reator é constituído de 27 elementos combustíveis circundados por elementos refletores. As dimensões da parte ativa do núcleo do reator são de  $60 \times 40 \times 38 \text{ cm}^3$ . Os elementos combustíveis são constituídos de placas de alumínio com óxido de urânio no interior, formando um "sanduíche". Alguns elementos combustíveis possuem urânio enriquecido a 93% e outros a 20%, pois os elementos combustíveis estão sendo trocados por outros com baixo enriquecimento. A figura 3.2.2 ilustra esquematicamente o núcleo do reator, olhando-se de cima, com uma legenda sobre sua composição.

### III.3. Dispositivo de Irradiação do Silício

O desenho do dispositivo de irradiação de tarugos de Si de 2,5" de diâmetro, está ilustrado na figura 3.3.1. Pode-se observar, que este dispositivo é constituído de um tubo guia de Al (de 3" de diâmetro), instalado numa

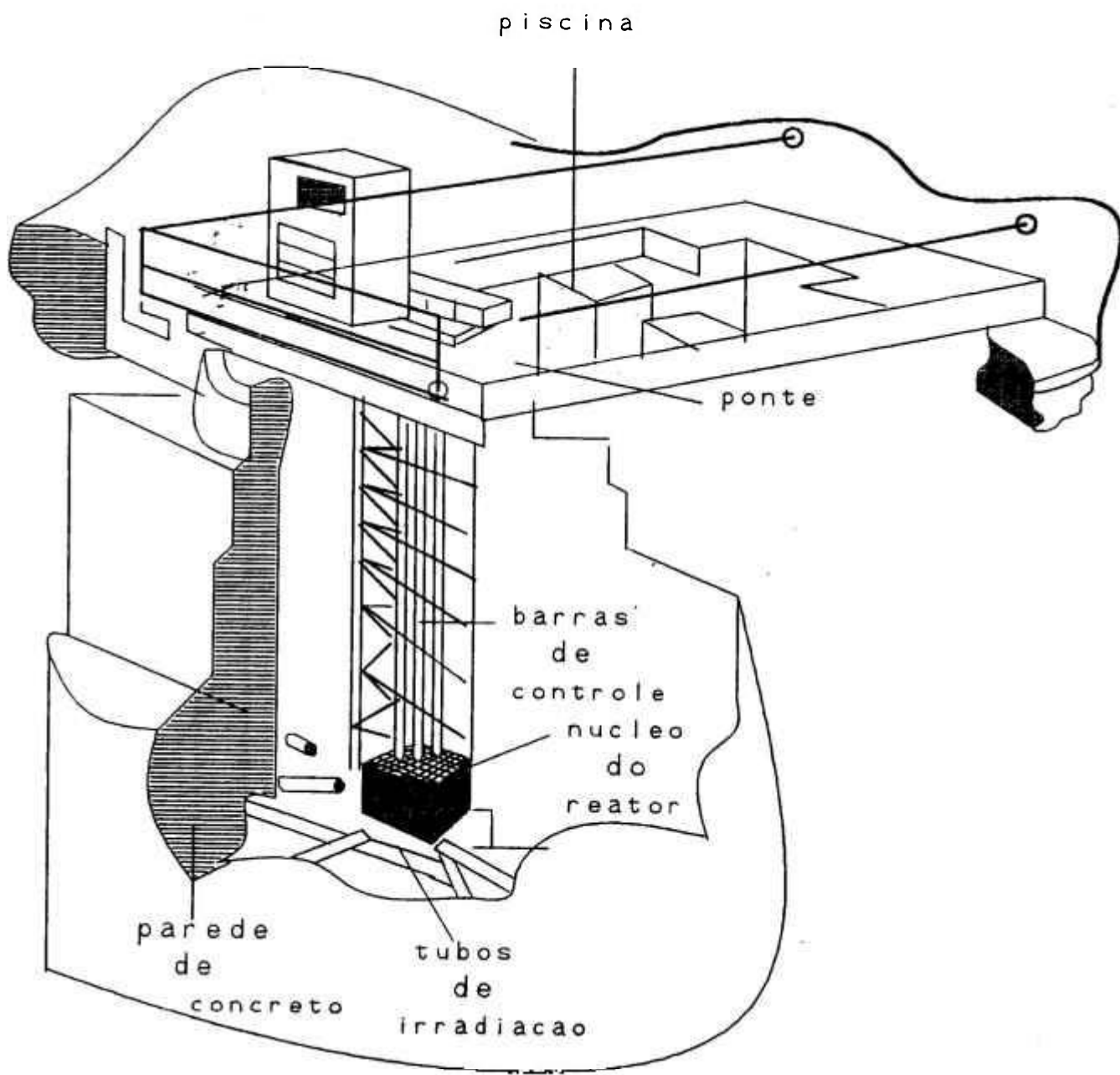


Fig. 3.2.1. Visão geral do reator IFA-D1

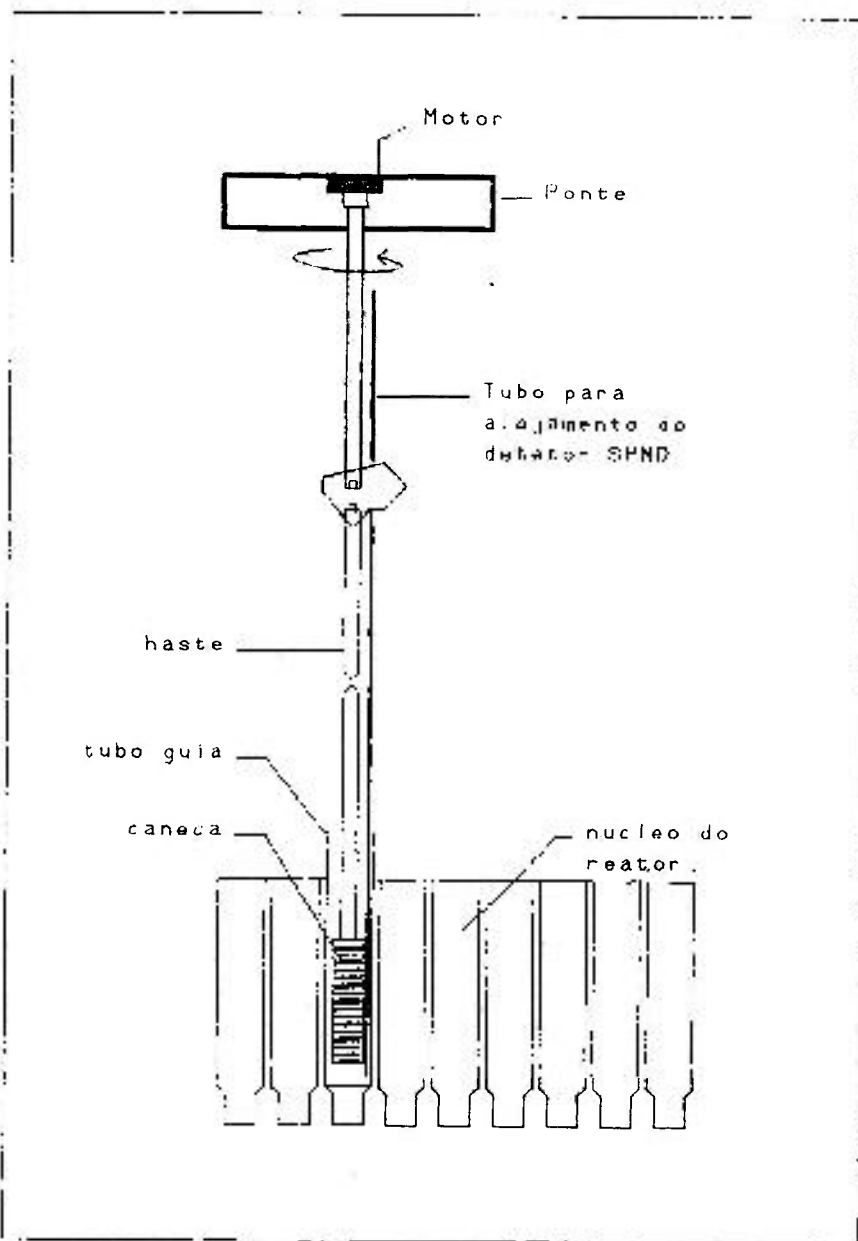


Fig.3.3.1. Desenho esquemático do dispositivo de 2,5 polegadas

posição vertical no caroço do reator, e fixado através de um plug de Al, ocupando a posição 42 da placa matriz. A figura 3.2.2 ilustra o posicionamento deste dispositivo no caroço do reator. Dentro deste tubo guia é introduzido um recipiente de alumínio, dentro do qual é colocado o tarugo de silício. Este recipiente é suspenso por uma haste de alumínio fixado em sua tampa. A haste é presa na ponte do reator e conectada a um motor que faz todo o conjunto girar a uma velocidade de 2 rpm.

Um tubo de Al de 7 mm de diâmetro soldado na face lateral do tubo guia, destina-se ao alojamento do detector SPND ( Self Powered Neutron Detector )

O desenho do dispositivo para irradiação de tarugos de Si de 2,5", 3" e 4" de diâmetro, esta ilustrado na figura 3.3.3. Este dispositivo é instalado verticalmente junto ao caroço do reator. Veja a figura 3.3.3a.

Pode-se notar pela fig.3.3.3, que este dispositivo é constituído de um tubo guia quadrado, e de dois plugs confeccionados de Al. As dimensões deste tubo são de 6" de lado por 1,5 m de comprimento. Dois lados deste tubo guia quadrado, (a) e (b), ocupam posições de elementos refletores e portanto são confeccionados de grafite e revestidos de alumínio externamente, tendo cada lado uma espessura de 28 mm. Os outros dois lados do quadrado, (c) e (d), são constituídos de chapas de Al de 1/8". Dentro deste tubo guia é introduzido um recipiente de Al de 110 mm de diâmetro (e), onde é colocado o tarugo de Si alojado dentro de uma caneca de alumínio. Um adaptador (f) para tarugos de Si com diâmetros de 2,5" ou 3" é usado para manter o tarugo de Si numa posição vertical dentro deste recipiente. Para a sustentação e apoio do recipiente de Al, existe um pino de Al (g) em sua parte inferior, encaixando-se sobre uma bucha (h), de dimensões 69.85 x 22 mm, confeccionada de aço inox, fixada na base do tubo guia . Este recipiente é suspenso por uma haste de Al (i) fixada em sua tampa (j) através de um pino trava (k). A haste é presa na ponte do reator e

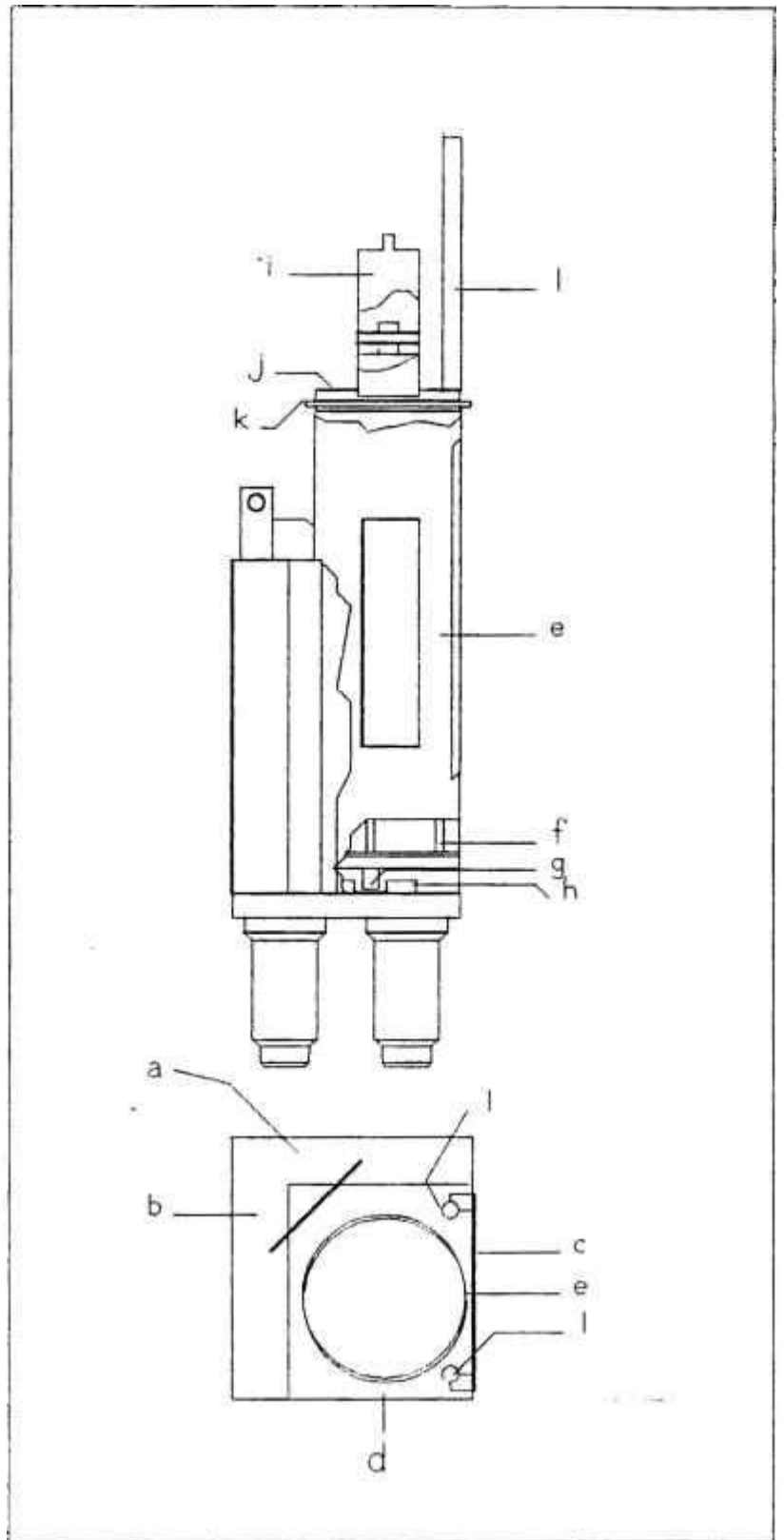


Fig.3.3.3. Desenho esquemático do dispositivo 2.5", 3" e 4".

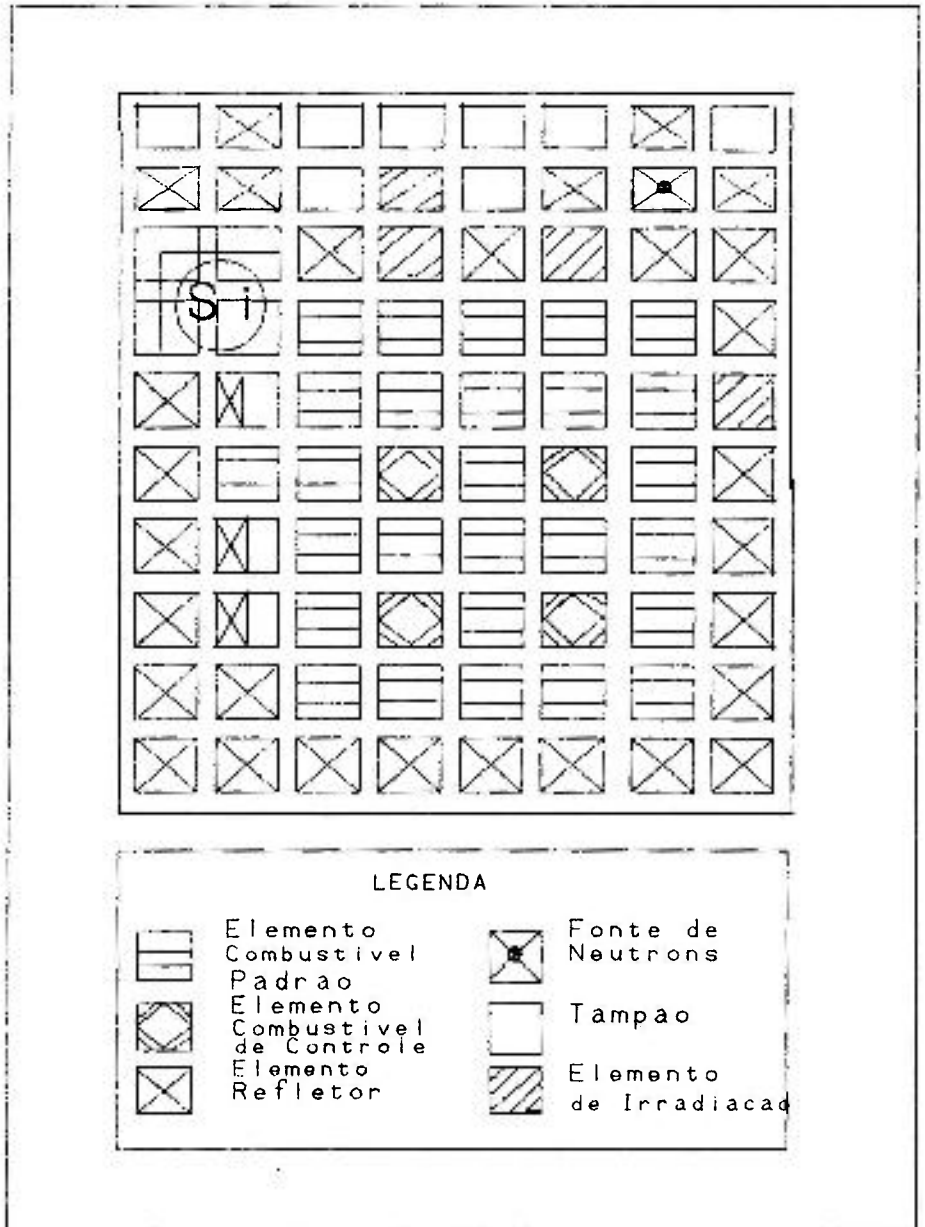


Fig.3.3.3a. Posicao do dispositivo de 2.5", 3" e 4" no caroco do reator IEA-R1

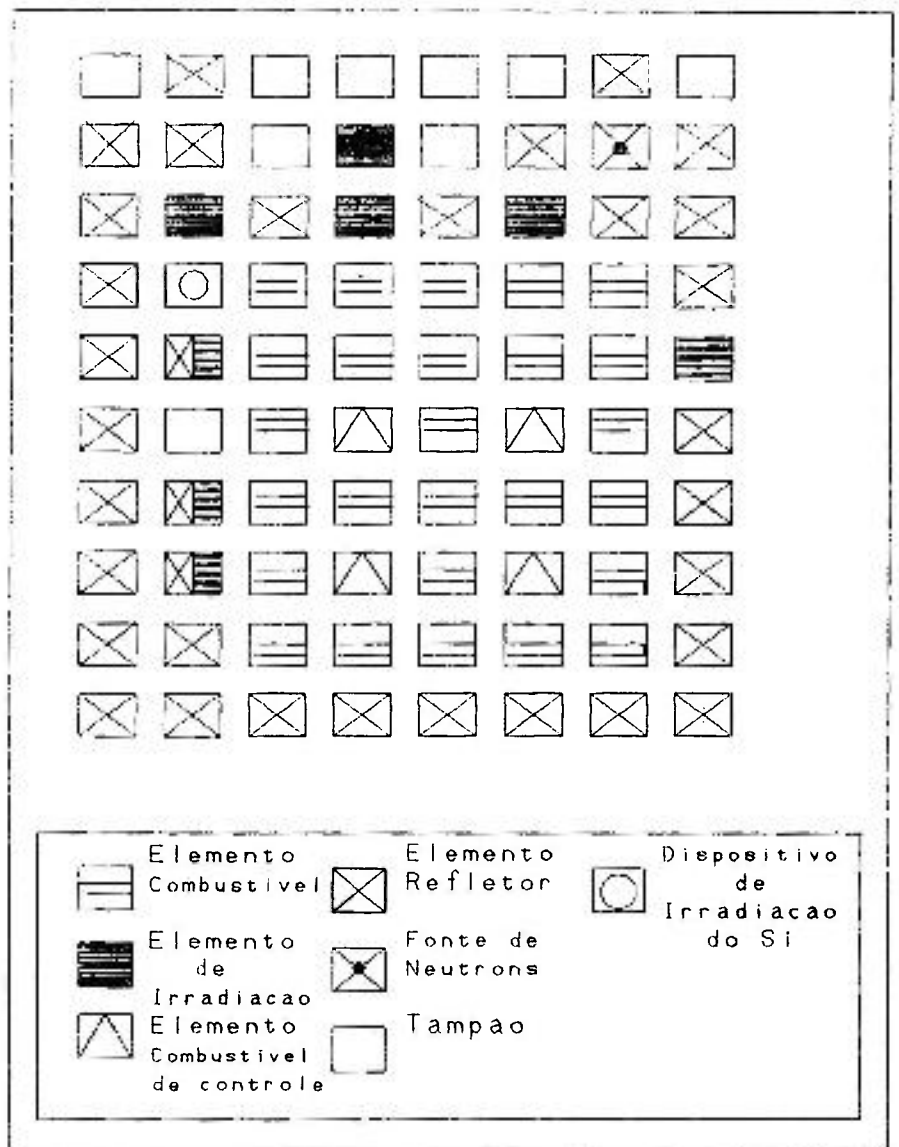


Fig.3.2.2. Vista de cima do nucleo do reator IEA-R1

conectada a um motor que faz todo o conjunto girar a uma velocidade de 2 rpm.

Dois tubos de Al (1) de 12 mm de diâmetro, soldados cada um nas faces laterais (c) do tubo quadrado, destinam-se ao alojamento dos detetores SPND.

A figura 3.3.4 ilustra esquematicamente o desenho do dispositivo de 2,5, 3 e 4 polegadas no reator IEA-R1, apresentando-o numa visão geral mediante um corte vertical. Nesta figura há a presença de um espaçador, que consiste de um tubo de alumínio, usado para controlar o posicionamento do tarugo de Si dentro de uma determinada região de fluxo de nêutrons.

#### III.4. Arranjo Experimental para Monitoração da Atividade Residual do $P^{32}$ do Cristal de Silício.

No presente trabalho foi instalado um laboratório composto de um sistema capaz de medir a atividade residual do cristal de silício após a irradiação. O objetivo é verificar quando o cristal terá um valor de atividade abaixo do valor máximo estabelecido pelas normas de proteção radiológica para o cristal ser considerado como isento de regulamentações. Este sistema consiste de um detetor geiger e eletrônica associada cujas características e procedimentos de calibração, estão descritos no sub-ítem III.5.3 e III.8 respectivamente.

Foi elaborado um arranjo para auxiliar a monitoração da atividade residual de  $^{32}P$  nos tarugos de Si. Este arranjo permite um mapeamento preciso em toda a superfície do tarugo de Si monitorado. O esquema deste arranjo é mostrado na figura 3.4.1.

O arranjo é constituído de dois eixos cilíndricos (a), encaixados à uma base de sustentação com dimensões 40 x 15 cm de lado (b).

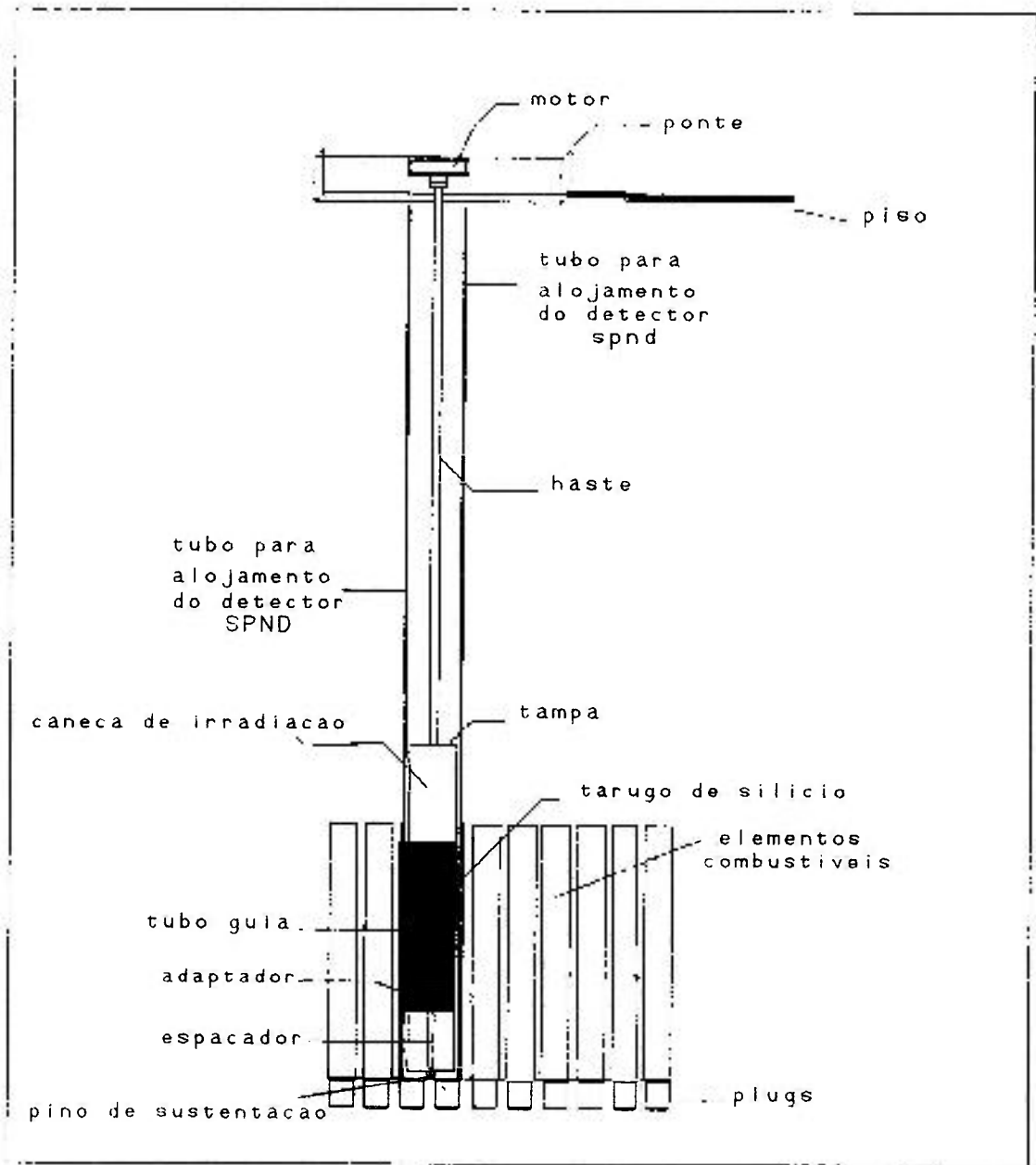


Fig.3.3.4. Visão geral mediante um corte vertical do dispositivo de 2.5, e 4 polegadas no reator IEA-R1

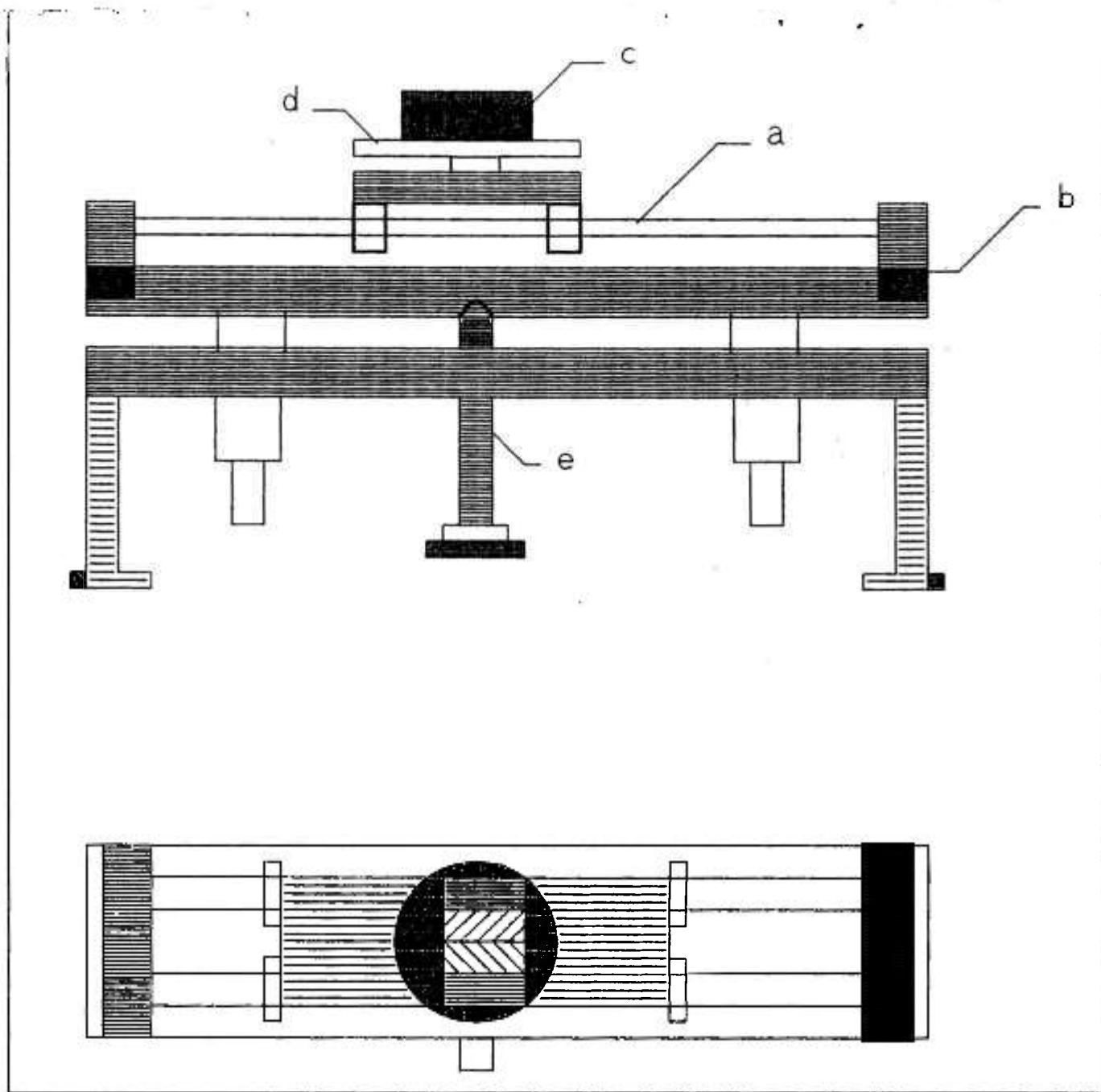


Fig. 3.4.1. Desenho esquemático do arranjo auxiliar para monitorar a atividade residual do  $P^{32}$ .

Um prisma (c) destinado ao apoio de tarugos de silício dispostos em posição horizontal, fixa-se sobre um prato circular (d) que permite movimentos de rotação nos eixos x e y. Este prato por sua vez, fixa-se sobre uma base móvel e pode deslizar por entre os dois eixos cilíndricos (a), permitindo movimentos na direção x.

À base de sustentação (b) está acoplado, na parte central, um fuso (e) que permite movimentos no eixo z.

O arranjo permite movimentos na direção dos eixos x, y e z em relação a um detetor geiger Müeller, que se encontra em uma posição fixa para a monitoração da atividade. O material do qual é confeccionado o arranjo é todo de aço.

### III.5 Detectores Utilizados

#### III.5.1. Detector SPND (Self Powered Neutron Detector)

A idéia inicial e a descrição do projeto do detector SPND foi estabelecido pelo russo M.G. Mitelman em 1961, e os primeiros estudos visando o uso de detectores self-powered encontrados na literatura datam de 1964 [16]. Estes detectores podem ser projetados para serem relativamente sensíveis a nêutrons e raios gama.

Os detectores self-powered são particularmente úteis para medidas contínuas de distribuição de fluxo no núcleo de reatores por períodos que variam de meses a anos. Em reatores de potência estes detectores podem ser usados para mapeamentos de fluxo e controle da variação de potência. Se houver necessidade de informações do fluxo médio sobre a extensão de um volume ou comprimento, os detectores self-powered podem ser fabricados sob a forma de longos cabos flexíveis.

As principais vantagens do detector SPND são:

- baixo custo
- simplicidade de operação e instrumentação de leitura.
- exatidão e confiabilidade
- pequeno "burnup" e vida longa
- continua capacidade de operação em ambientes de alto fluxo, e altas temperaturas
- reprodutibilidade de características de saída de detecção.
- pequenas dimensões, que diversificam o seu uso, podendo ser manuseado em lugares de difícil acesso.

Na fig.3.5.1, é ilustrado um desenho esquemático de um detector SPND. Como pode-se notar, este detector é formado por dois eletrodos em geometria coaxial separados por um isolante. No caso de um detector SPND sensível a nêutrons térmicos, o eletrodo central ou emissor, é formado por um elemento com elevada secção de choque para captura de nêutrons térmicos, ficando radioativo e decaindo pela emissão de partículas  $\beta^-$ . O eletrodo externo ou coletor configura o envelope externo ou carcaça do detector. O isolante é formado por  $Al_2O_3$  ou  $MgO$ .

O princípio de operação do detector SPND consiste em medir a intensidade de corrente elétrica gerada devido a um fluxo incidente de nêutrons ou raios gama no material emissor. Existem dois mecanismos primários onde esta radiação incidente no material emissor é convertida em corrente elétrica. No primeiro caso a captura de nêutrons pelo emissor produz um núcleo produto radioativo que decai pela emissão de partículas  $\beta^-$ . Detectores SPND que operam neste princípio de funcionamento são classificados como detectores com tempo de resposta lenta ou atrasada, isto porque o tempo de resposta de um detector SPND para fornecer informações sobre o fluxo de nêutrons incidente no emissor, depende da meia vida do núcleo radioativo formado. No segundo caso a captura de nêutrons pelo emissor produz radiação gama de captura que são parcialmente absorvidas no

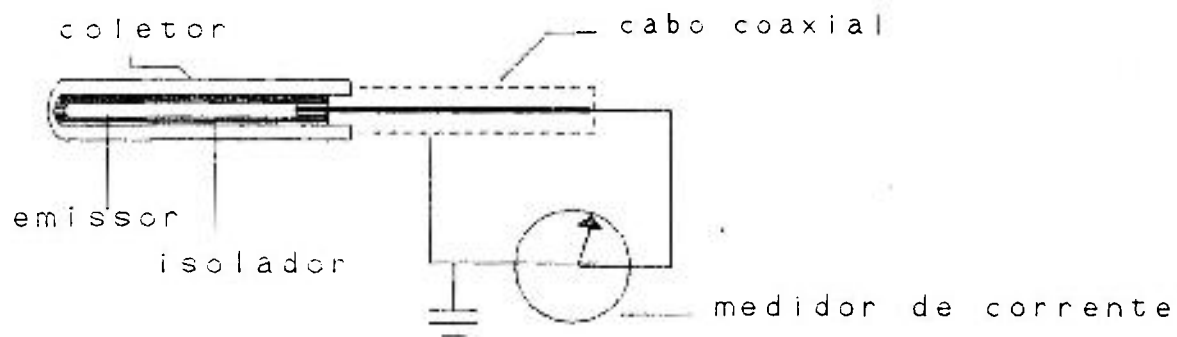


Fig.3.5.1. Desenho esquemático de um detector SPND

próprio emissor produzindo efeitos compton e fotoelétrico. Os detectores SPND que possuem emissor com estas características são classificados como de resposta rápida ou pronta.

Em ambos os tipos de detectores, uma parte dos elétrons emitidos pelo emissor possuem energia suficiente para atravessar o isolante e ser recolhida no coletor. Dessa forma a intensidade da corrente elétrica medida entre o coletor e o emissor será proporcional a intensidade do fluxo de nêutrons no detector.

Os tipos de materiais emissores mais comuns para detectores SPND com sensibilidade a nêutrons são: Prata ( Ag ) e Ródio ( Rh ) como detectores de resposta atrasada; e Cobalto ( Co ), Háfnio ( Hf ) e Platina ( Pt ), como detectores de resposta pronta.

Na escolha do tipo do detector SPND adequado para um determinado experimento, se de resposta pronta ou não, deve-se considerar se o fluxo de nêutrons incidentes no emissor é contínuo durante o tempo, ou sofre interrupções. Isto porque, por exemplo, num detector de resposta pronta, como o detector SPND com emissor de cobalto, que possui uma meia vida de 5.272 anos, haverá uma contínua emissão de corrente elétrica pelo material emissor, mesmo com uma interrupção de horas no fluxo de nêutrons incidentes, gerando, neste caso, uma errônea informação sobre o fluxo de nêutrons incidente durante um certo período de tempo. Por outro lado, num detector SPND com emissor de curta meia vida, como por exemplo o ródio, que possui meia vida de 42 s, o fornecimento da informação sobre a interrupção de fluxo seria dada com um atraso 42 s; daí a definição, detector de resposta lenta ou atrasada.

Durante a instalação de um detector SPND, no local onde se deseja um monitoramento de fluxo, deve-se assegurar sempre a existência de no mínimo 1/8" de água ou massa equivalente, entre o detector SPND ou cabo e qualquer

massa de Alumínio situada nas vizinhanças do local. Os núcleos dos átomos de alumínio ativos emitem partículas  $\beta^-$  de 2.87 Mev que podem penetrar o detector ou cabo interferindo na corrente elétrica que teve origem no emissor.

No presente trabalho, foram utilizados dois detectores SPND de emissor de Platina, com as seguintes características gerais:

- Diâmetro externo : 2mm
- Comprimento sensível: 100 mm
- Diâmetro do emissor: 1 mm
- Comprimento do cabo: 12 m

Estes detectores foram fabricados no IPEN.

### III.5.2. Detectores Gama - Detectores de Cintilação

O detector de cintilação empregado no presente trabalho é um cristal inorgânico NaI (Tl), um dos mais utilizados para detecção de radiação gama . Este tipo de detector apresenta um rendimento de luz excelente, maior do que qualquer outro material cintilador conhecido [25], [33] e. É considerado como material padrão para espectroscopia gama. O cristal é frágil e higroscópico, devendo ser encapsulado, não podendo ser exposto ao ambiente.

O detector gama utilizado é um cintilador de iodeto de sódio ativado com tálio tipo 12S12/3, de janela fina, com 76.2 mm de diâmetro.

### III.5.3. Detectores Geiger - Muller

O detector Geiger - Müller é um detector que emprega câmara de gás. O princípio de funcionamento de um detector a gás, em geral, consiste de um cilindro condutor cheio de gás, ou uma mistura de gases, a uma pressão

relativamente baixa e um fio coaxial bem isolado das paredes do cilindro entre os quais se aplica uma diferença de potencial. Quando uma radiação ionizante passa através do detector, ela ioniza o gás, gerando pares de íons que são coletados dando origem a uma carga  $Q$  em eletrodos [20], [25] e [30].

Em um detector Geiger - Müller a carga coletada independe da ionização que a inicia ( ionização primária ), sendo caracterizado por um processo de avalanche de pares de íons, iniciado por uma radiação incidente no detector [25], [30]. Dado a independência da carga coletada com a ionização primária, não se pode medir a energia das partículas, nem é possível discriminarem-se tipos diferentes de radiações através da sensibilidade do circuito eletrônico do detector Geiger - Müller. O detector geiger utilizado é um detector com preenchimento a gás NeA ( halog. ), tipo 18506, aplicação  $\beta$ ,  $\gamma$ .

### III.6. Monitoração de Fluxo de Nêutrons

Para a medida de fluxo de nêutrons no reator utilizou-se fios de cobalto como monitores. A seguinte reação é utilizada para produção do núcleo radioativo  $\text{Co}^{60}$ :



A porcentagem isotópica do  $\text{Co}^{59}$  é 100% [25] e a meia vida dos produtos formados para o  $\text{Co}^{60m}$  ( meta estável ) é igual a 10,5 minutos, e, para o  $\text{Co}^{60}$ , igual a 5,272 anos. A secção de choque total  $\sigma_0$  para reação  $(n, \gamma)$  é de  $37,2 \pm 0,6$  barns [35].

No processo de ativação do Cobalto ocorre a formação do  $\text{Co}^{60m}$ , nuclídeo metaestável, sendo necessário esperar o seu decaimento para  $\text{Co}^{60}$ , antes de efetuar a medida de atividade. A meia vida do  $\text{Co}^{60m}$  é da ordem de 10,5

minutos; portanto, é suficiente uma espera de algumas horas após a irradiação. A medida da atividade específica de um fio de cobalto após irradiação por um tempo determinado, fornece o valor de fluxo de nêutrons.

Como descrito no capítulo II, subítem II.3, o melhor método para medir o fluxo de nêutrons durante a irradiação de amostras de Si é pela técnica de ativação, usando fios de Cobalto. Para se medir a atividade dos fios de  $\text{Co}^{60}$ , usou-se no presente trabalho um sistema de espectrometria gama.

O sistema de espectrometria gama NaI(Tl) utilizado, emprega o arranjo eletrônico visto na figura 3.6.1. Esse sistema é constituído pelo detector NaI(Tl) 3" x 3" acoplado a um pré amplificador, uma fonte de alta tensão, um amplificador, um analisador monocanal, um contador e uma impressora.

Os pulsos provenientes do detector de cintilação, após sua amplificação, são selecionados nos intervalos de energia de interesse através de um analisador de altura de pulsos monocanal. A fig. 3.6.2 ilustra o espectro de energia do  $\text{Co}^{60}$ , onde há uma região sombreada que significa a área correspondente aos intervalos de energia de interesse selecionados. Os pulsos selecionados são enviados para o scaler onde são registradas as contagens.

A curva de calibração é determinada a partir de medidas de atividade conhecida de um conjunto de fontes de  $\text{Co}^{60}$ . Estas fontes foram padronizadas num sistema de câmara de ionização de poço  $4\pi\text{-}\gamma$ , no laboratório de metrologia nuclear do IPEN-CNEN/SP.

Foram utilizados 5 fontes padrões de  $\text{Co}^{60}$  com diferentes atividades. As atividades são próximas às atividades dos fios de cobalto que serão irradiados no reator IEA-R1, junto com tarugos de silício. Foram

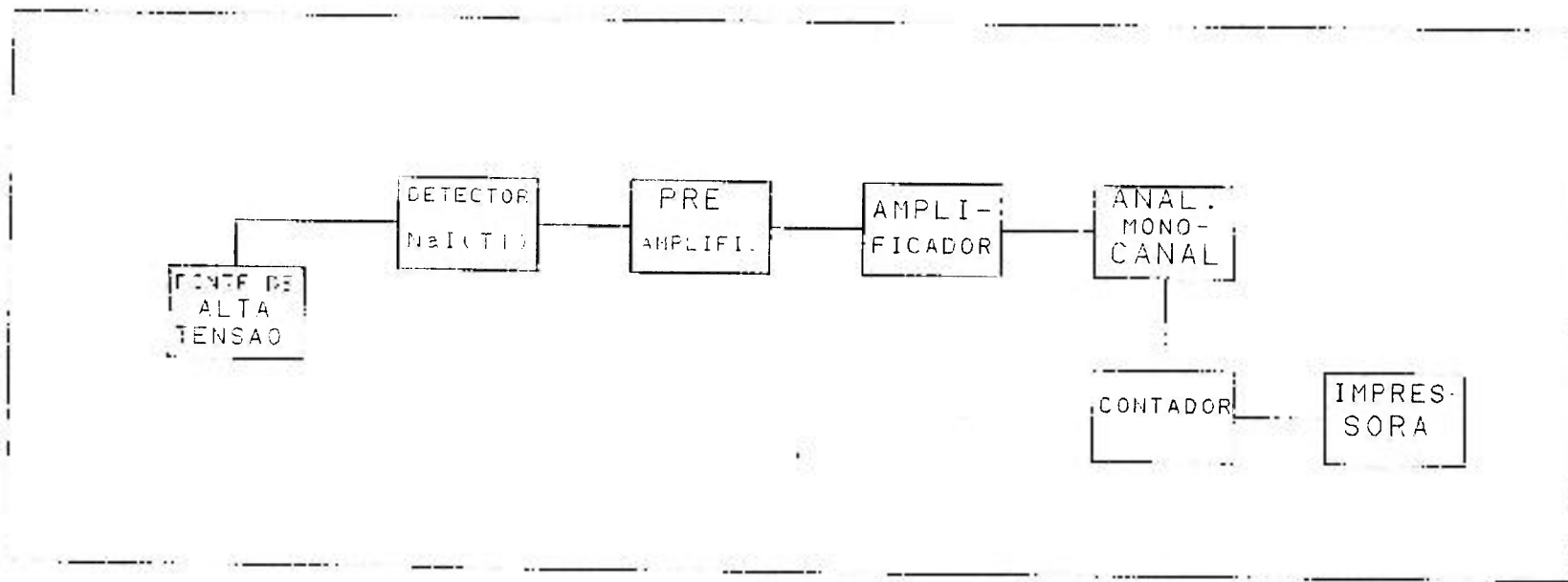
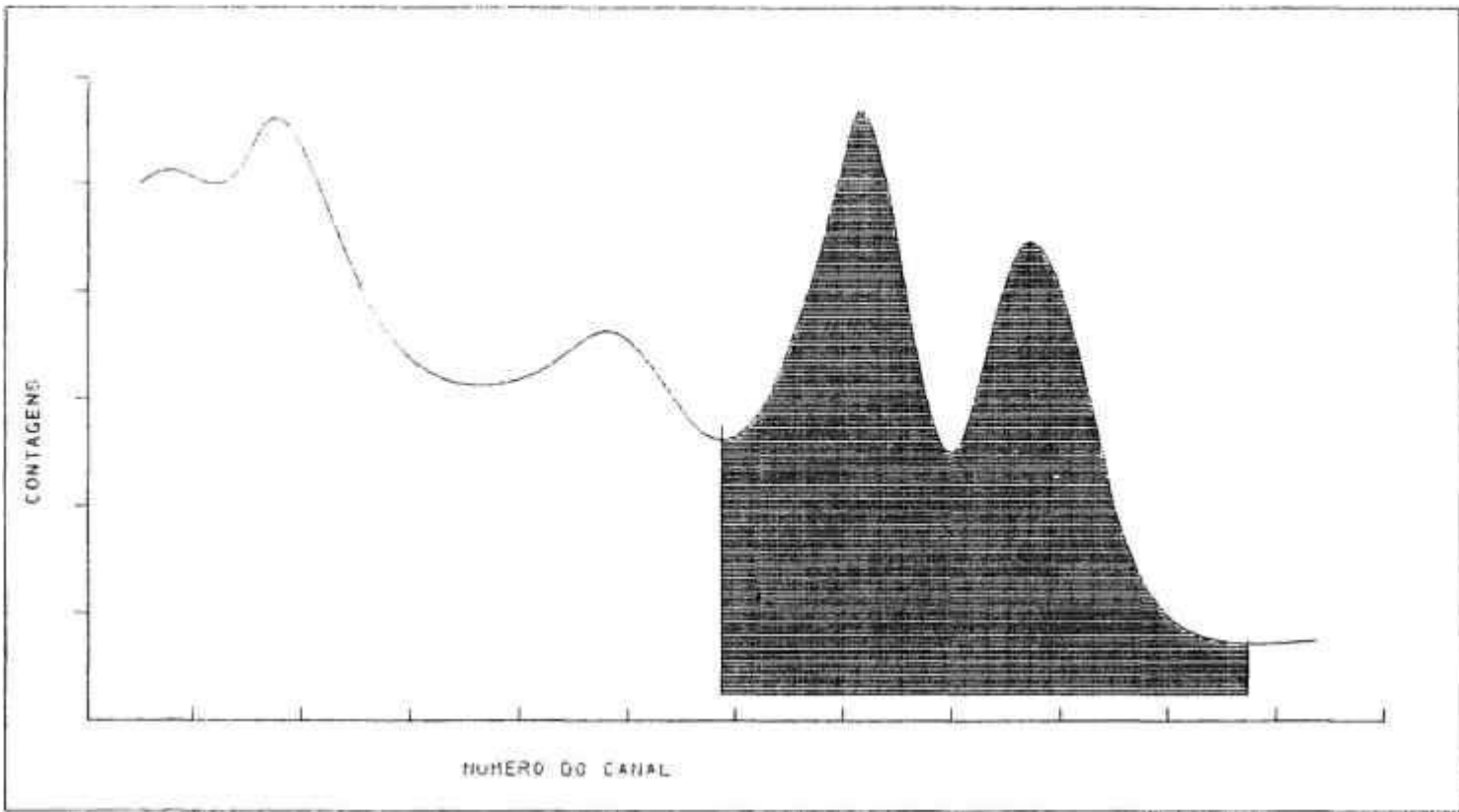


Fig.3.6.1. Diagrama de bloco do arranjo eletrônico do sistema NaI(Tl)



g.3.6.2. Espectro de energia do Co-60 em um detector NaI(Tl)

Tabela 3.6.1. Atividade das fontes padrões de  $\text{Co}^{60}$

N <sup>o</sup> do fio	tempo de Irrad. (h)	Atividade (MBq)/g
01	10	566 ± 14
02	20	1042 ± 25
03	25	1187 ± 31
04	30	1314 ± 33
05	40	1547 ± 39

utilizados como monitores, fios de cobalto de 0.504 mm de diâmetro por 2 mm de comprimento. A tabela 3.6.1 mostra as atividades dos fios de cobalto utilizados como padrões.

### III.7. Calibração do Detector Geiger

Como mencionado no capítulo II, a reação do núcleo  $P^{31}$  com nêutrons térmicos, geram  $P^{32}$ , que por sua vez decaem por emissão de partículas  $\beta^-$ , deixando o monocristal de Si radioativo. A meia vida do  $P^{32}$  é relativamente longa; 14,22 dias, o que leva a um tempo de espera de pelo menos duas semanas para o manuseio do monocristal após a irradiação. A medida desta atividade residual do  $P^{32}$  presente nos monocristais após a irradiação é essencial sob o ponto de vista de proteção radiológica, para a liberação do monocristal para fins comerciais.

Como o  $P^{32}$  é um núcleo radioativo, emissor puro de radiação  $\beta^-$  com energia máxima  $E_{\beta} = 1.7$  Mev e meia vida 14.22 dias [29], a determinação da atividade específica do  $P^{32}$  num cristal de silício maciço é um pouco complexo, devido à absorção das partículas  $\beta^-$  no meio do silício e envolve cálculos elaborados para estimar os efeitos desta absorção. No presente trabalho, foi realizado uma simulação experimental para calibração do detector que mede a atividade beta do  $P^{32}$ . Foi utilizado para medir a atividade residual dos monocristais de Si irradiados, um detector geiger. Um procedimento prático para a calibração do detector geiger, observando a mesma geometria dos monocristais, seria a construção de um recipiente com as mesmas dimensões do monocristal, cheio de uma solução com atividade conhecida de  $P^{32}$  diluída. Deste modo, pode-se monitorar este recipiente e calibrar o detector geiger.

Foi preparado como fonte de atividade conhecida para a calibração do detector geiger, uma solução de  $P^{32}$ . A composição desta solução constituiu-se de 98 mg de

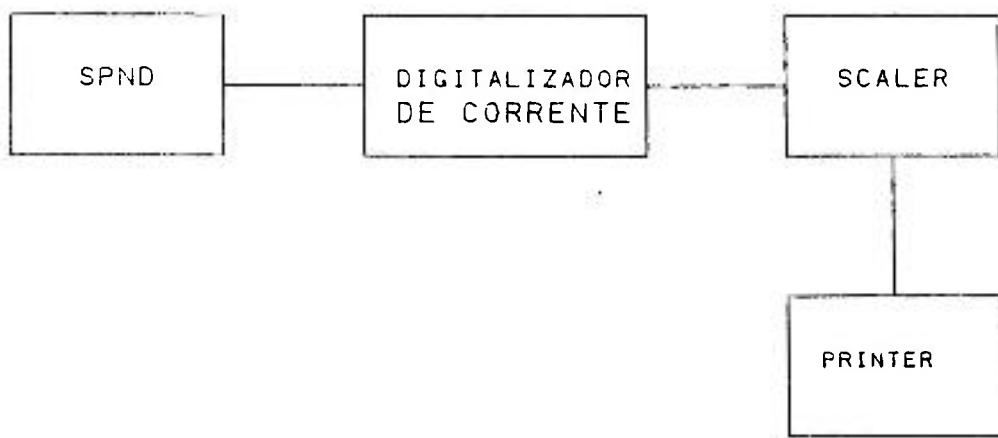
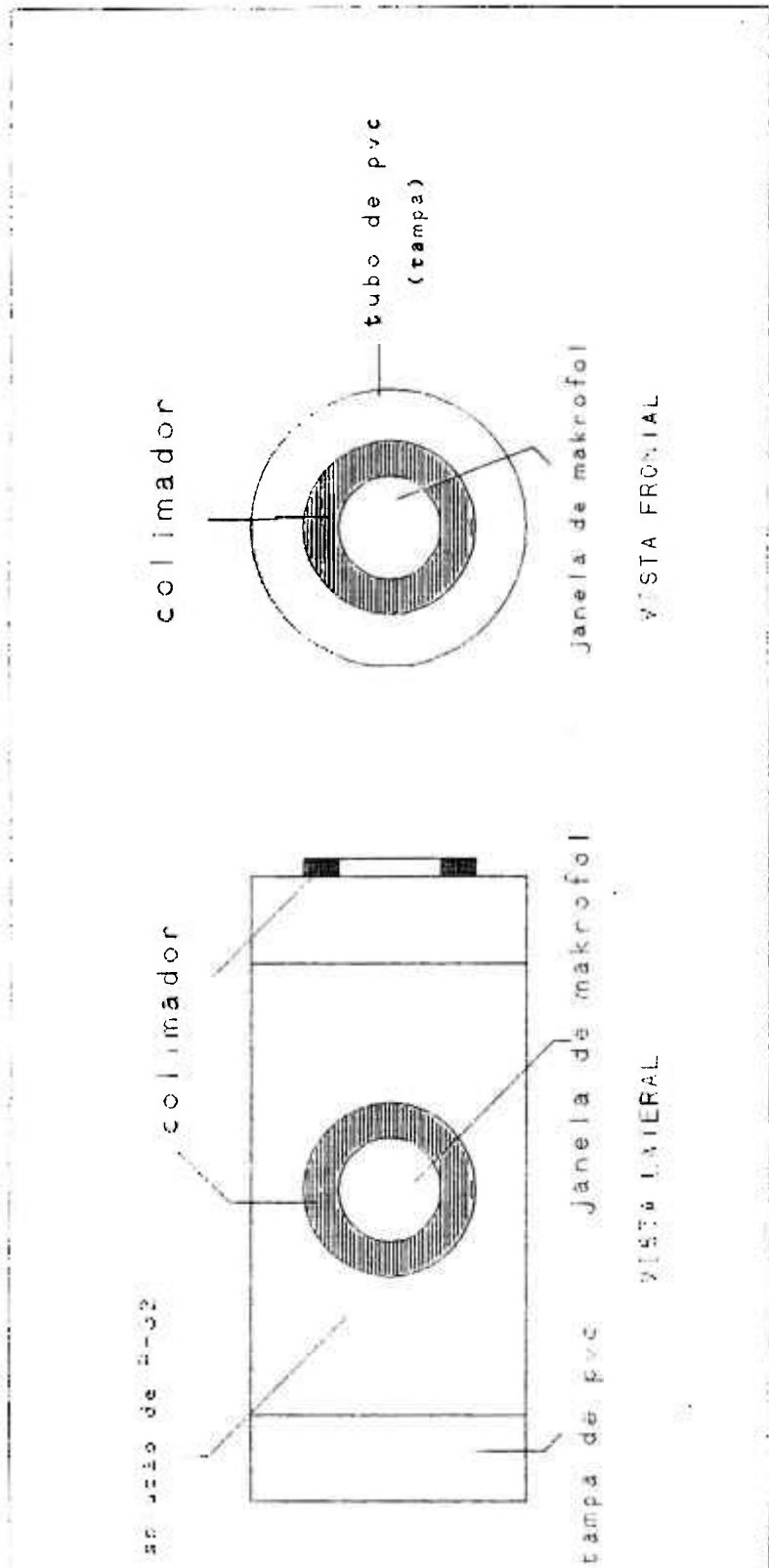


Fig.3.8.1. Diagrama de bloco do sistema eletrônico empregado para o detector SPND



3.7.1. Arranjo experimental do tubo de PVC para a calibracao do detector

Geiger

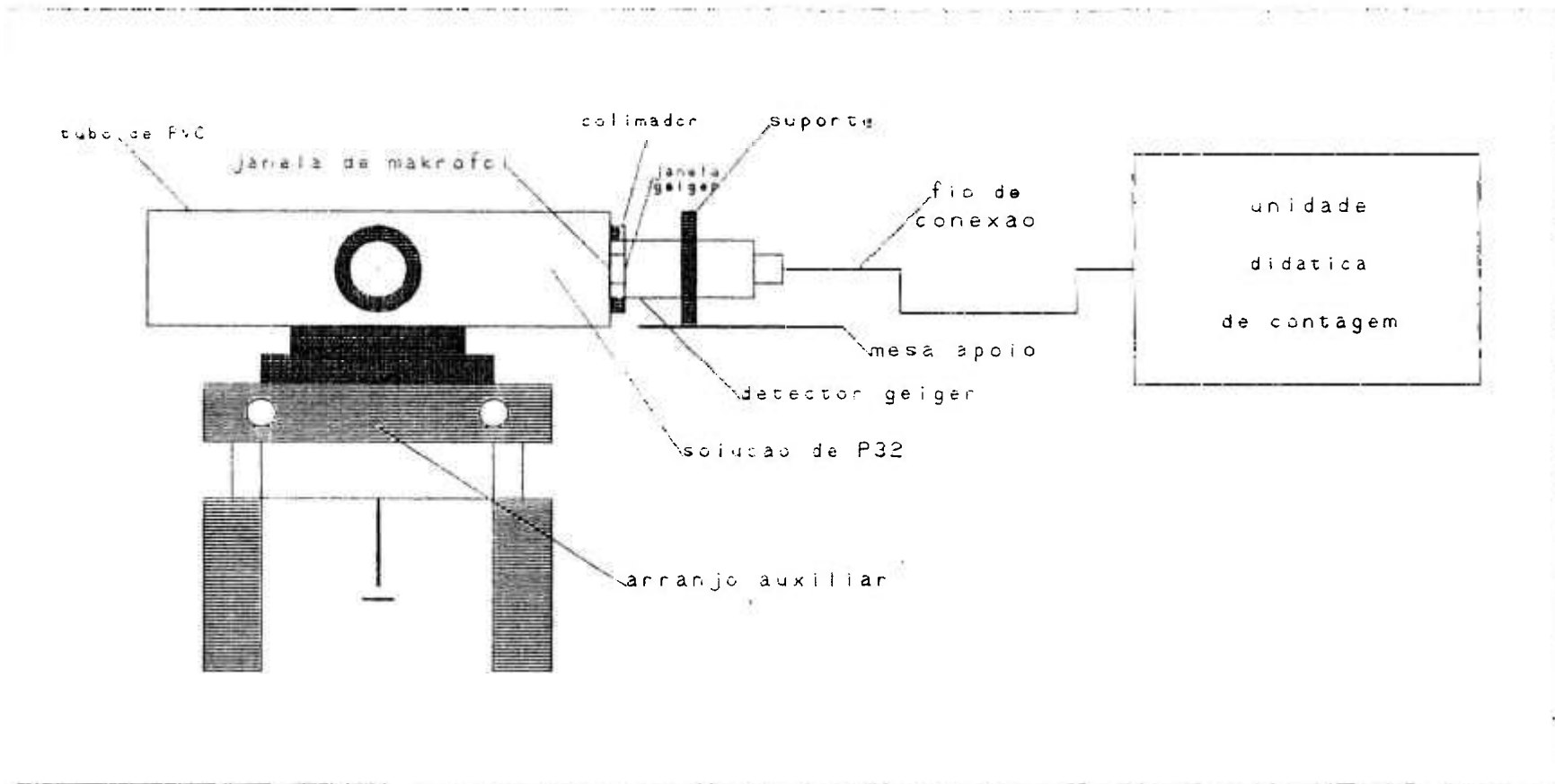


Fig. 3.7.2. Desenho esquematico do experimento para a calibracao do detetor Geiger

ácido fosfórico por litro d'água.

As fontes foram preparadas em sala especial para pesagens, seguindo as normas prescritas pelo BIPM [33] no laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN. Uma alíquota da solução de  $P^{32}$  foi colocada sobre suporte especial constituído por uma arandela de aço, sobre a qual é colocada uma película de VVNS ( acetato de cloreto de polivinila ). Para cobrir essa película com uma superfície condutora, os suportes sofrem um processo de metalização à vácuo, com deposição de ouro, antes da preparação das fontes. Para obter a atividade absoluta de emissores beta-puros , a fonte assim preparada foi medida pelo método  $4\pi-\beta$  [10], [39]. A atividade medida desta solução foi de  $6.89 \pm 0.34$  KBq/g.

Um tubo de PVC de 3" de diâmetro por 250 mm de comprimento, com janelas de makrofol KG de  $8 \mu$  de espessura por 31 mm de diâmetro, foi totalmente preenchido com esta solução de  $P^{32}$ . Sobre as janelas de makrofol fixou-se um colimador de lucite de 12 mm de espessura por 25 mm de diâmetro interno e 35 mm de diâmetro externo, conforme figura 3.7.1

O tubo de PVC assim preparado é deitado, apoiado, sobre o prisma do arranjo auxiliar, permitindo que o tubo geiger penetre exatamente pelo diâmetro interno do colimador até tocar a superfície do makrofol, conforme fig.3.7.2. As contagens são então registradas em uma unidade didática de contagem PI 752.

### III.8. Calibração do detector SPND

O sistema eletrônico empregado para o detector SPND está ilustrado sob forma de diagrama de bloco na figura 3.8.1. O detector SPND utilizado é um detector com emissor de platina.

A corrente elétrica proveniente do detector SPND é processada em um digitalizador de corrente e após,

enviada para um contador e, em seguida as contagens são impressas em uma impressora.

Estes detectores são usados para medir a dose de nêutrons de uma forma relativa. Após a calibração, os detectores SPND podem ser usados para controle de dose de nêutrons recebida pelo cristal de silício durante irradiação, que é um parâmetro importante para controle preciso da resistividade final do Si. Para a calibração desses detectores, foram usadas as medidas do fluxo de nêutrons térmicos obtidas a partir dos monitores de cobalto.

## CAPITULO IV

### RESULTADOS EXPERIMENTAIS

A uniformidade na resistividade do cristal de silício após a irradiação é fortemente dependente do comportamento do fluxo de nêutrons ao longo de toda a extensão da amostra. Deve - se portanto minimizar quaisquer efeitos de não uniformidade do fluxo, absorção de nêutrons no cristal, depressão local de fluxo, etc.

Variações espaciais e temporais de fluxo estão relacionadas principalmente a fatores geométricos do reator e ao seu ciclo de funcionamento. Deve - se considerar que, embora tais efeitos estejam presentes em qualquer tipo de reator, em reatores tipo piscina, as distorções do fluxo térmico ao longo de um determinado eixo são, em geral maiores que em outros tipos de reatores, como aqueles moderados a água pesada ( $D_2O$ ) e grafite. Isto se deve principalmente à pequena altura do caroço do reator, menor taxa de produção de nêutrons e às propriedades dos nêutrons na água comum.

As características elétricas dos semicondutores são altamente dependentes da perfeição da rede cristalina, sendo portanto, recomendável que a geração de defeitos seja a mínima possível. A razão entre o fluxo de nêutrons térmicos e nêutrons acima desta energia ( nêutrons epitérmicos e rápidos ), constitui um parâmetro fundamental no que diz respeito à geração de defeitos.

Pode-se afirmar que as condições de irradiação exigem um fluxo de nêutrons térmicos entre  $10^{12}$  e  $10^{13}$  nêutrons por  $cm^2$  por segundo, a razão entre o fluxo de nêutrons térmicos e o fluxo de nêutrons rápidos entre 3 e 100 e a variação do fluxo de nêutrons ao longo do eixo vertical deve ser menor do que 10% [15].

#### IV.1. Medida do Fluxo de Neutrons.

Como descrito no capítulo II, a dopagem do monocristal de Si depende da dose de nêutrons recebida pelo monocristal. Usou-se no presente trabalho, o método de ativação de fios de cobalto para o controle absoluto da dose de nêutrons incidente sobre cada amostra de Si irradiada. Cada fio de cobalto teve uma numeração em comum com a respectiva amostra de Si irradiada. A determinação do fluxo térmico utilizando os fios de cobalto, foi efetuada por meio das medidas de atividade induzida, utilizando a seguinte expressão:

$$\phi_t = \frac{A_s (1 - R^{-1}) e^{-\lambda t_o}}{G_t N \sigma_o \sqrt{\pi T_o / (4 T)} (1 - e^{-\lambda t_i})} \quad \text{eq. 4.1}$$

Onde

$\phi_t$  = Fluxo de nêutrons térmicos

$A_s$  = Atividade específica do fio de  $\text{Co}^{60}$   
sem cádmio

R = Razão de Cádmio

$\lambda$  = Constante de decaimento do  $\text{Co}^{60}$   
( $\lambda = 4.2 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ ) [29].

$t_o$  = Tempo de espera

$t_i$  = Tempo de irradiação

$G_t$  = Fator de correção de fluxo  
("self-shielding").

N = Número de átomos de cobalto por grama. ( $N = 1.02 \times 10^{22}$  át/g).

$\sigma_o$  = secção de choque total para reação  
(n, $\gamma$ ) do cobalto ( $\sigma_o = 37.2$   
barns) [35].

$T_o$  = Temperatura do meio moderador

(  $T_o = 20^{\circ}\text{C}$  )

$T$  = Temperatura na posição de irradiação.

Os parâmetros  $G_t$ ,  $T$  e  $R$  foram determinados experimentalmente. Abaixo, estão relacionados os fatores com uma apresentação de informações específicas sobre cada um deles:

$G_t$  : fator "self-shielding"; seu valor foi de  $0.858 \pm 0.02$ . Sua determinação experimental encontra-se descrita no sub-ítem IV.2.

$T$  : temperatura na posição de irradiação. Esta temperatura foi determinada por meio de termo pares . O valor medido foi:  $T = 30^{\circ}\text{C}$ .

$R$  : razão de cádmio. O valor experimental determinado para a razão de cádmio utilizando fios de cobalto foi de 29,3. A determinação experimental da razão de cádmio  $R$  encontra-se descrita no sub-ítem IV.2.

Os erros nos valores da determinação de fluxo foram calculados por propagação de erros em cada um dos fatores utilizados na expressão 4.1. Esses erros são apresentados a seguir:

-Erro causado pela incerteza na determinação da atividade. Para esse cálculo foram considerados os seguintes erros parciais:

$E_{at}$  : erro estatístico, calculado pegando-se uma média aritmética do valor das contagens da fonte de  $\text{Co.}^{60}$  Uma mesma fonte foi contada dez vezes pelo sistema  $\text{NaI(Tl)}$ . Este erro foi da ordem de 0.2% .

$E_{ap}$  : erro na atividade das fontes padrões de  $\text{Co.}^{60}$  As fontes foram padronizadas no laboratório de

Metrologia Nuclear (NPA) do IPEN/CNEN-SP.  $E_{ap} = 2.5\%$  .

$E_{ti}$  : erro causado pela incerteza do tempo de irradiação. Essa incerteza provém da cronometragem durante a operação, para colocar e retirar o monocristal da posição de irradiação junto ao caroço do reator. Este erro foi estimado em 0.1% .

$E_{tp}$  : erro no tempo de rampa do reator. O tempo de rampa do reator, é o período compreendido durante o tempo de início de operação do reator ao tempo em que fica crítico; com sua potência máxima. Este erro foi calculado para um período de irradiação de 8 h em nossas amostras, e o valor do erro obtido que ocasionará uma incerteza na determinação do fluxo é da ordem de 0.1% .

$E_{T_{1/2}}$  : erro causado pela incerteza na meia vida. Este erro foi calculado por meio dos erros encontrados na literatura para  $T_{1/2}$  . Este erro foi da ordem de 0.1% .

$E_{\sigma_0}$  : erro causado pela incerteza nos valores da secção de choque  $\sigma_0$ ; este erro é obtido do valor tabelado na literatura [35], sendo da ordem de 1.6% .

$E_m$  : erro causado pela incerteza na determinação da massa do fio. Este erro é dado pelo erro da balança utilizada ( Mettler M5 SA ) que é de 15  $\mu\text{g}$ .

$E_{G_t}$  : erro causado pela incerteza nos valores obtidos experimentalmente de  $G_t$ , que é da ordem de 2.5% .

As atividades dos fios de cobalto irradiados são determinados através da curva de calibração do sistema NaI (Tl), dado pelo gráfico das contagens coletadas pelo detector em função das respectivas atividades conhecidas de fontes padrões. Na fig. 4.1.1 é mostrado a curva de calibração do sistema NaI(Tl).

CONEXÃO PORTA - PORTA 1 INICIAVAB/SP - IPEM

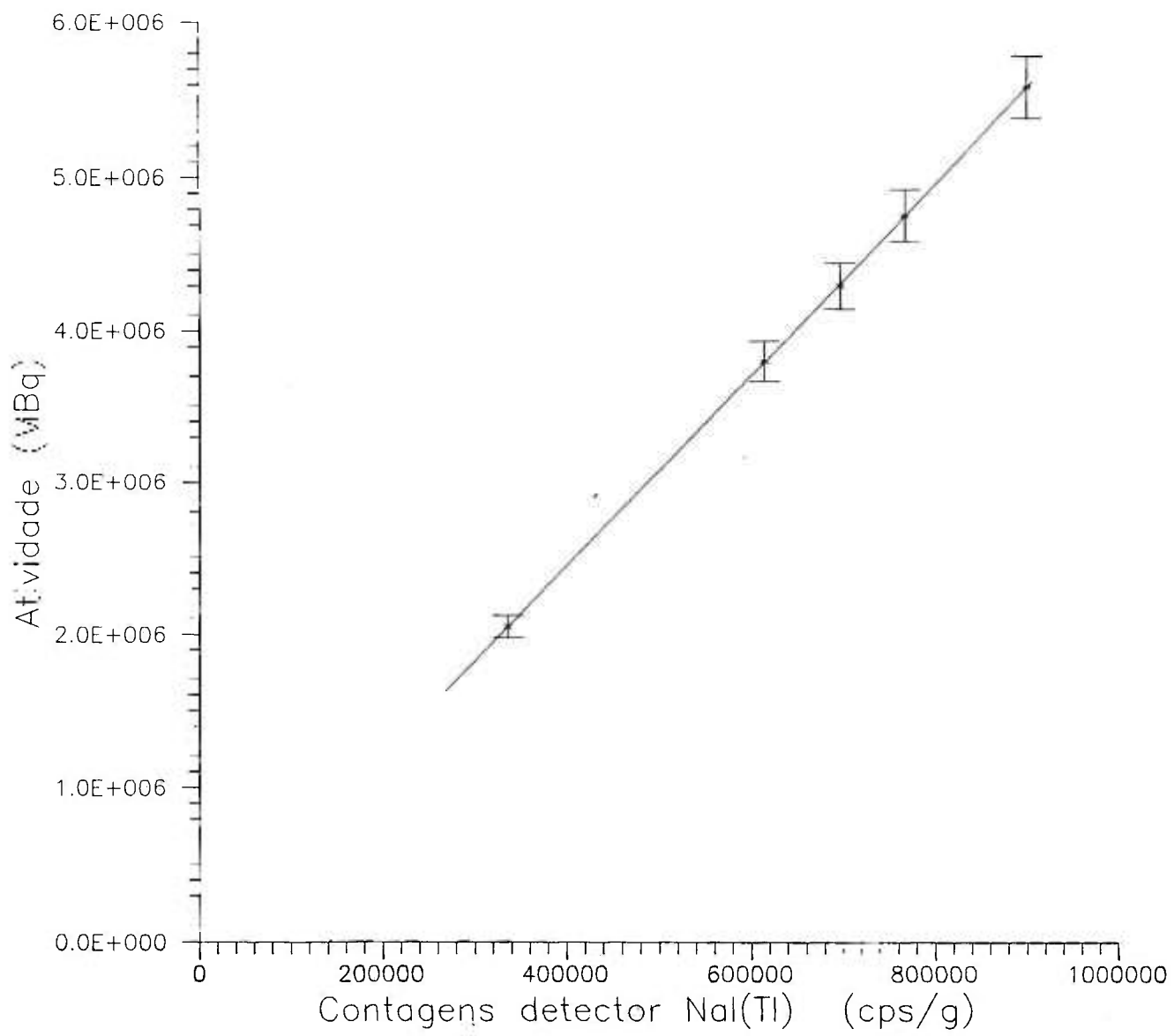


Fig.4.1.1. Curva de calibracao do sistema NaI(Tl)

#### IV.2. Medida do Fator "Self-Shielding" e Razão de Cádmiio.

Neste sub-ítem é descrito o método experimental utilizado para determinação de um dos fatores de correção de fluxo; o efeito sombra, ("Self-shielding"). Este efeito é ocasionado no próprio fio de Cobalto, devido a sua espessura. É denominado sombra pois os átomos das camadas mais externas absorvem uma fração dos nêutrons incidentes, ficando as camadas mais internas expostas a um fluxo mais baixo, uma vez que já foi absorvida pelas camadas externas [1], [2] e [34]. A fig.(4.2.1) ilustra o comportamento do fluxo de nêutrons na presença do fio.

A experiência para determinação do fator "Self-Shielding" foi realizada com dois fios de cobalto. O fio n<sup>o</sup> 1 foi dissolvido em ácido nítrico, (volume mais ou menos 1 ml), diluído para 5 ml; 50  $\mu$ l desta solução foram depositados em um papel de filtro Whatmann, e selado em um tubo de sílica.

O fio de Cobalto n<sup>o</sup> 2, selado em um outro tubo de sílica e a solução pipetada, foram juntos irradiados sob um fluxo de nêutrons no reator durante 6 h. Em seguida o fio n<sup>o</sup> 2 foi dissolvido em ácido nítrico e completado no volume de 5ml; 50  $\mu$ l desta solução foi pipetado, depositado num papel de filtro Whatmann e selado em um tubo de sílica.

Os dois tubos de sílica contendo as soluções, foram medidos através de um detector Ge(Li) no laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN/CNEN-SP. Os resultados são mostrados na tabela 4.2.1. O fator "self-shielding",  $G_t$ , é a razão entre as atividades específicas das duas soluções, e como pode-se observar é de  $0,86 \pm 0,02$ .

Para a determinação da razão de cádmio, irradiou-se juntos dois fios de cobalto, um envolto em cádmio e outro sem cádmio. O cádmio é um material que apresenta uma seção de choque de absorção com o valor da ordem de 2500 b na energia térmica, com uma ressonância

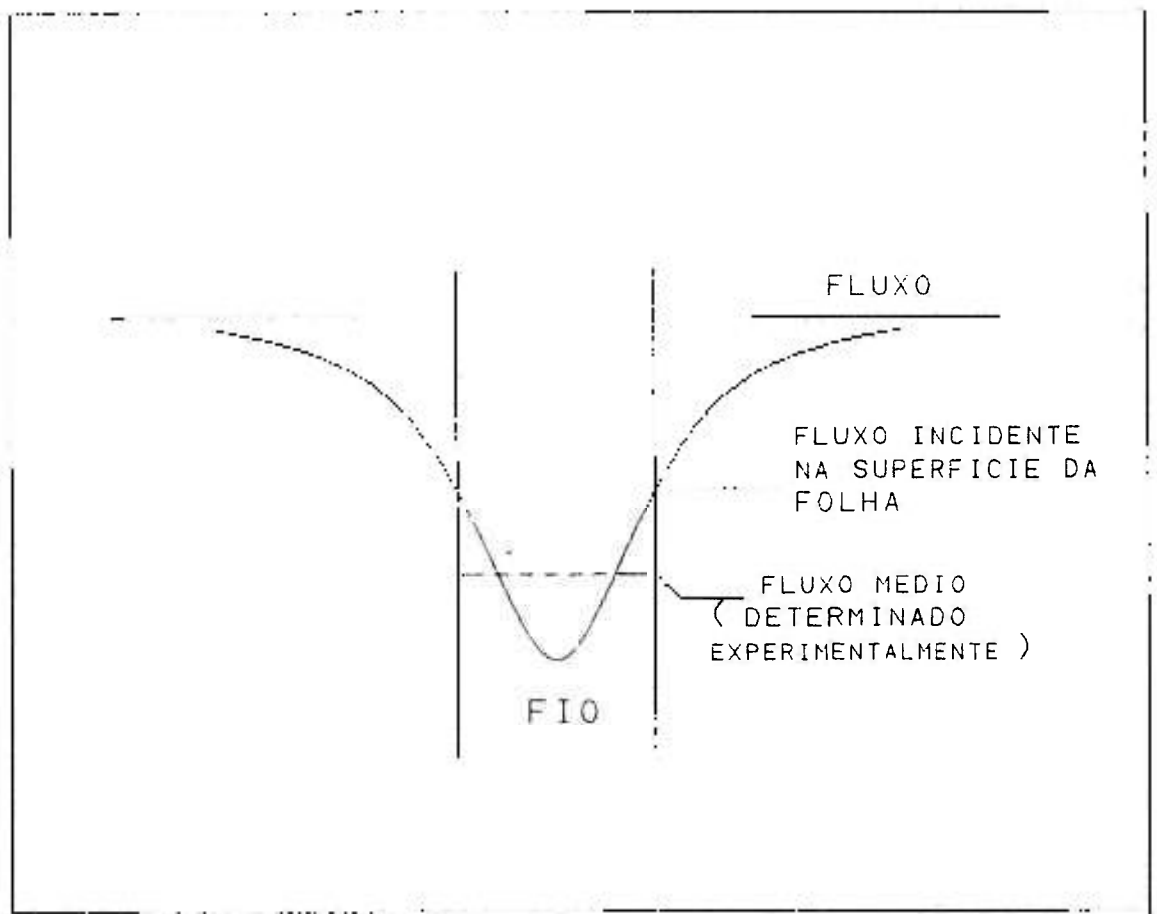


Fig. 4.2.1. Comportamento do fluxo de nêutrons na presença do fio de cobalto

próxima em 0,178 eV. Acima dessa energia a secção de choque é bastante baixa, caindo para 70 b. Deste modo o cádmio atua como um filtro de nêutrons, absorvendo os nêutrons de energia abaixo de uma certa energia de corte  $E_{cd}$  e deixando passar nêutrons acima dessa energia. A energia  $E_{cd}$  se localiza próximo à energia do pico da ressonância e varia ligeiramente com a espessura de cádmio a ser utilizada.

Por cálculos teóricos pode-se determinar uma energia de corte efetiva que esta em torno 0,5 eV, para uma espessura de cádmio de 0,5 mm. A razão entre a atividade do fio sem cádmio e a atividade da fio com cádmio dará a razão de cádmio definida por:

$$R = \frac{A_s}{A_c} \quad \text{eq. ( 4.2.1 )}$$

Onde:

$A_s$  = atividade específica do fio de cobalto sem cádmio.

$A_c$  = atividade específica do fio de cobalto com cádmio.

Tabela 4.2.1. Resultados do experimento self-shielding.

n <sup>o</sup> fio	diâmetro ( mm )	massa ( mg )	atividade ( Mbq/g )
1	1	4,714 $\pm$ 0.019	3,649 $\pm$ 0.055
2	1	4,238 $\pm$ 0.017	3,132 $\pm$ 0.047

A tabela 4.2.2. mostra os resultados do experimento para a determinação da razão de cádmio R na posição de irradiação dos cristais de Silício.

Com o valor da atividade específica do fio de cobalto envolto com cádmio  $A_c$ , determinou-se o fluxo de nêutrons epitérmicos na posição de irradiação através da expressão:

$$\phi_{ep} = \frac{A_c e^{-\lambda t_e} \ln(E_2/E_1)}{G_{ep} N I (1 - e^{-\lambda t_i})} \quad \text{eq. (4.2.2)}$$

Onde:

$A_c$  = atividade específica do fio de cobalto envolto com cádmio (espessura 0,5 mm).

$\lambda$  = constante de decaimento do  $\text{Co}^{60}$  ( $\lambda = 4,2 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ ).

$t_e$  = tempo de espera.

$E_2$  = máxima energia adotada para os nêutrons epitérmicos.  $E_2 = 1 \text{ MeV}$ .

$E_1$  = mínima energia adotada para os nêutrons epitérmicos.  $E_1 = E_{cd} = 0.55 \text{ eV}$ .

$G_t$  = fator self-shielding ( $G_t = 0.858 \pm 0.02$ )

$N$  = número de átomos por grama de cobalto. ( $N = 1,02 \cdot 10^{22} \text{ át/g}$ ).

$I$  = integral de ressonância ( $I = 74,15 \pm 2,27 \text{ barns}$ ).

$t_i$  = tempo de irradiação.

O valor do fluxo de nêutrons epitérmicos na posição de irradiação foi de  $(3,0 \pm 0.11) \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ . Usando o valor da atividade específica do fio de cobalto sem cádmio, e utilizando a expressão 4.1, calculou-se o fluxo de

Tabela 4.2.2. Resultados do experimento para a determinação da razão de cádmio R na posição de irradiação dos cristais de Si.

filo de Co esp. (0.5mm)	massa (g)	t. irr. (h)	atividade (Mbq/g)	razão de cádm. R
com cádmio	0,00545	7,45	$(1,4 \pm 0,02) \cdot 10^7$	$29,3 \pm 0,6$
sem cádmio	0,00555	7,45	$(4,1 \pm 0,06) \cdot 10^8$	

nêutrons térmicos na posição de irradiação, onde obteve-se o valor de  $( 1,20 \pm 0,04 ) \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s . Desta maneira pode-se calcular a razão entre o fluxo de nêutrons térmicos e epitérmicos na posição de irradiação. O valor desta razão foi de 4,1 . Como descrito anteriormente, esta razão é um parâmetro importante no que diz respeito à geração de defeitos na estrutura cristalina do silício. O valor determinado de 4,1 para esta razão é um valor considerado dentro de uma faixa aceitável para uma posterior recuperação da estrutura cristalina do silício através do tratamento térmico.

#### IV.3. Determinação do Perfil Vertical do Fluxo de Neutrons Termicos na Posição de irradiação das amostras de Si.

As variações do fluxo térmico ao longo de uma dada linha vertical são uma função da altura do núcleo do reator. Assim, o fluxo de nêutrons diminui à medida em que se caminha em direção às extremidades do caroço.

Foi elaborada uma medida do perfil vertical do fluxo de nêutrons na posição de irradiação, utilizando um tarugo de Al de 2,5" por 48 cm de comprimento dentro do dispositivo de 2,5". Foi utilizado um tarugo de alumínio devido às suas características físicas parecidas com as do silício, como densidade e secção de choque nuclear. Foram feitos furos de 4 em 4 cm ao longo do comprimento do tarugo. Estes furos de aproximadamente 5 mm de diâmetro partem da superfície até o centro do tarugo, e servem para posicionar fios de cobalto; um na superfície e outro no eixo central do tarugo. Deste modo, podemos simular o que ocorre em um tarugo de Si, determinando o perfil do fluxo ao longo da superfície e ao longo do eixo do tarugo, bem como verificar qual é a sua variação de fluxo entre a superfície e centro. A fig.4.3.1. ilustra um desenho esquemático deste arranjo.

Os resultados obtidos encontram-se na

Tabela 4.3.1. Resultados obtidos para o perfil de fluxo de nêutrons térmicos na posição de irradiação do dispositivo de 2.5", utilizando um tarugo de Al.

Pos. vertical Eixo (cm)	Fluxo (n.cm <sup>-2</sup> . s <sup>-1</sup> ) x 10 <sup>13</sup>	
	Centro do tarugo	Superfície do tarugo
- 24	0.742 ± 0.03	0.749 ± 0.03
- 20	0.798 ± 0.04	0.822 ± 0.04
- 16	0.885 ± 0.04	0.904 ± 0.04
- 12	0.956 ± 0.04	0.987 ± 0.04
- 8	1.017 ± 0.04	1.032 ± 0.05
- 4	1.045 ± 0.05	1.074 ± 0.05
- 0	1.057 ± 0.05	1.085 ± 0.05
4	1.034 ± 0.05	1.062 ± 0.05
8	1.013 ± 0.05	1.031 ± 0.05
12	0.935 ± 0.05	0.955 ± 0.04
16	0.846 ± 0.04	0.854 ± 0.04
20	0.749 ± 0.04	0.771 ± 0.03
24	0.644 ± 0.03	0.617 ± 0.03

fig.4.3.2, e tabela 4.3.1, onde os pontos, na fig. 4.3.2, representam o fluxo na superfície e os círculos representam o fluxo no centro. Nota-se um perfil bastante simétrico em torno do ponto de máximo, que é da ordem de  $1.10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s. Em torno da parte central do dispositivo, existe uma região de cerca de 25 cm, onde a variação do fluxo é menor do que 10%. Como já visto no capítulo II, a dopagem no monocristal de Si é uma função do fluxo de nêutrons. Esta variação de fluxo apresentada em torno da região de 25 cm, induziria numa mesma variação axial de resistividade num tarugo de Si de 25 cm que fosse irradiado nesta posição, sendo que esta variação é aceitável comercialmente. A diferença entre o valor do fluxo na superfície e no centro do tarugo é inferior a 5%, que é também um valor aceitável comercialmente.

Pode-se entretanto, devido à simetria apresentada neste perfil de fluxo da fig.4.3.2, irradiar dois tarugos de Si de 20 cm cada, um acima e outro abaixo da posição zero, de forma que quando receberem metade da dose de nêutrons estabelecida, sejam trocados entre si. O perfil de fluxo de nêutrons incidentes axialmente no corpo dos tarugos de Si, neste caso, é uniformizado. Este foi o procedimento adotado pelo o reator IEA-R1. A fig.4.3.3. ilustra este tipo de procedimento.

Na referência [18], encontram-se vários locais em outros países onde se utilizam de outros meios para deixar o perfil do fluxo de nêutrons incidentes mais uniforme nos tarugos de Si. Uma forma consiste em envolver o monocristal de Si durante a irradiação com um material conveniente ( usualmente aço ou níquel ), de tal modo que a espessura deste material seja proporcional à intensidade do fluxo de nêutrons. Assim, na região onde o fluxo é maior, a espessura do material é maior. A fig. 4.3.4. ilustra este tipo de procedimento adotado pelo reator DR 2 localizado na Dinamarca. Outro meio de se obter o mesmo resultado é submeter o monocristal a movimentos periódicos na direção vertical, de tal modo que o cristal receba, em média, o

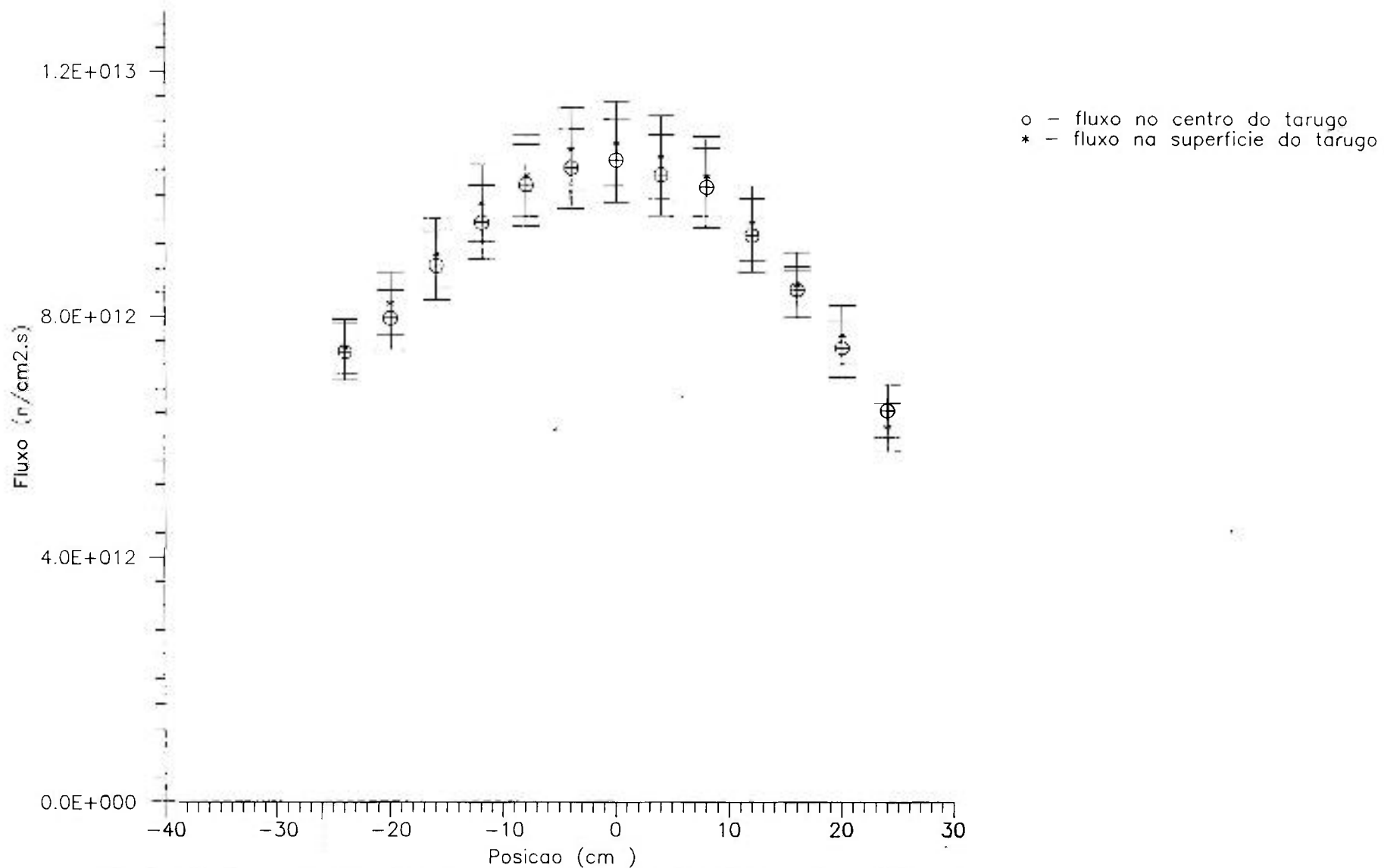


Fig.4.3.2. Perfil vertical do fluxo de neutrons termicos na superficie e centro de um tarugo de Al na posicao de irradiacao do dispositivo para irradiar tarugos de Si de 2.5 polegadas.

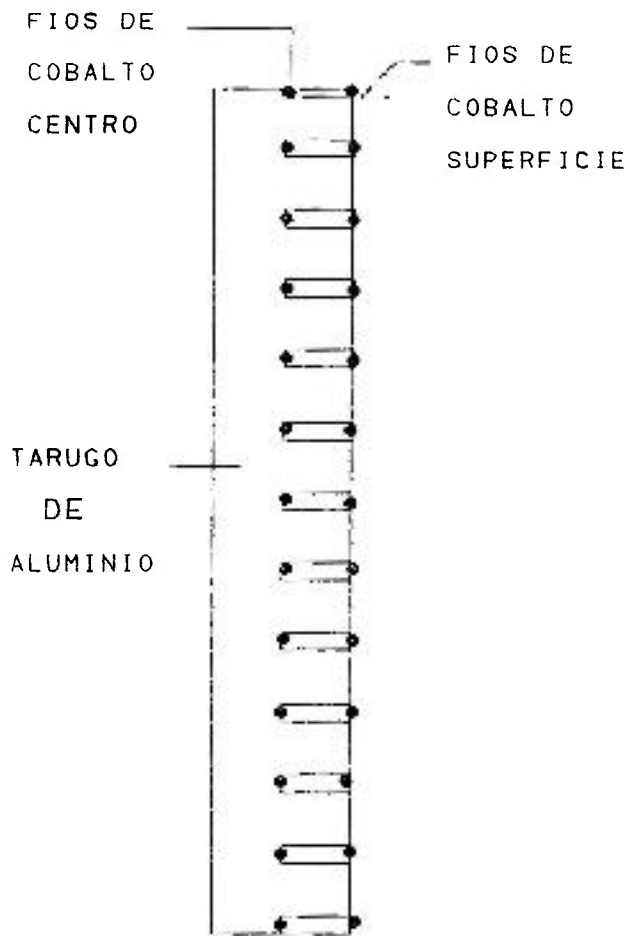


Fig. 4.3.1. Desenho esquemático do arranjo para determinação do perfil vertical do fluxo de neutrons

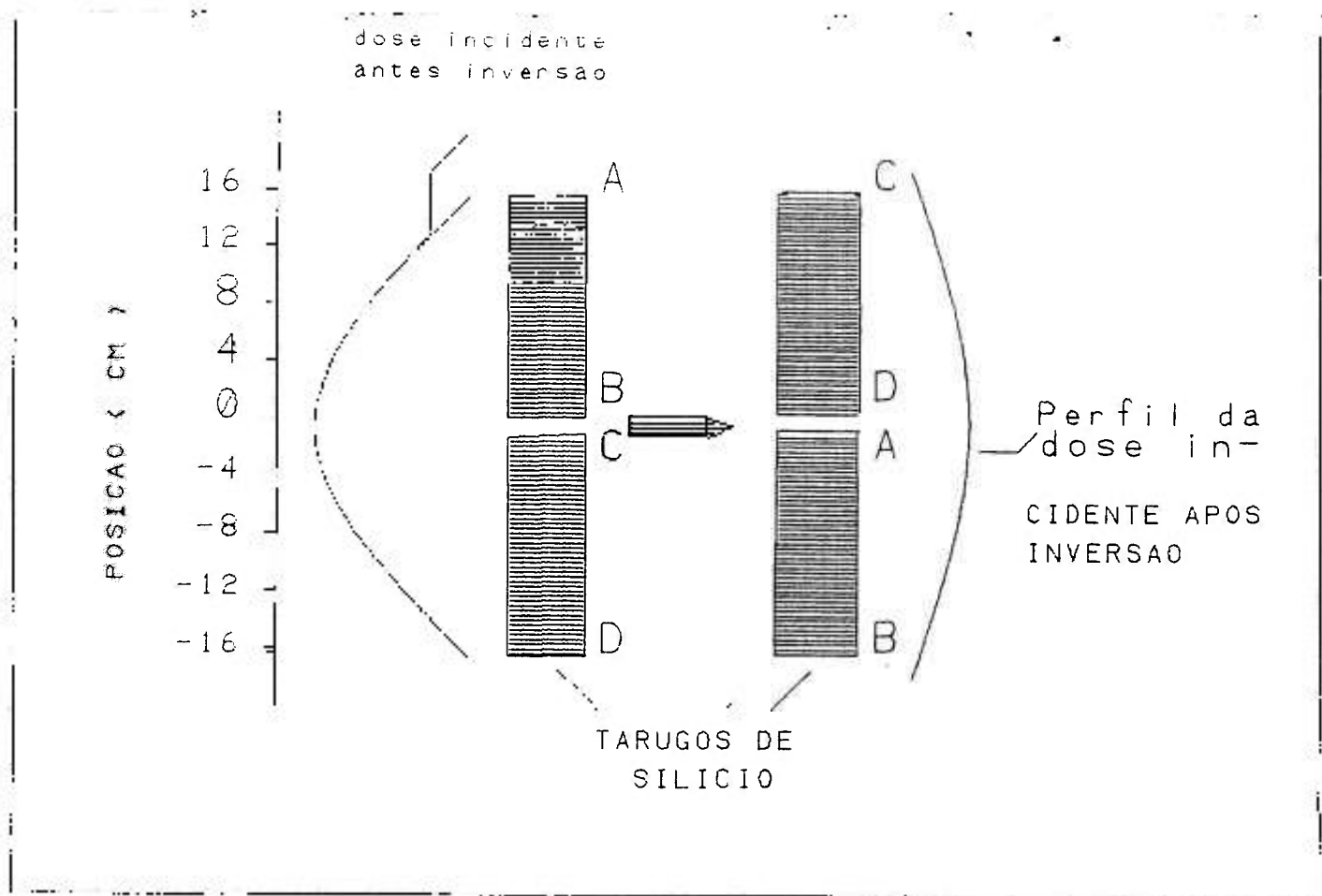


Fig.4.3.3. Metodo para homogeneizacao do perfil vertical da dose de neutrons incidentes sobre tarugos de Si no reator IEA-R1

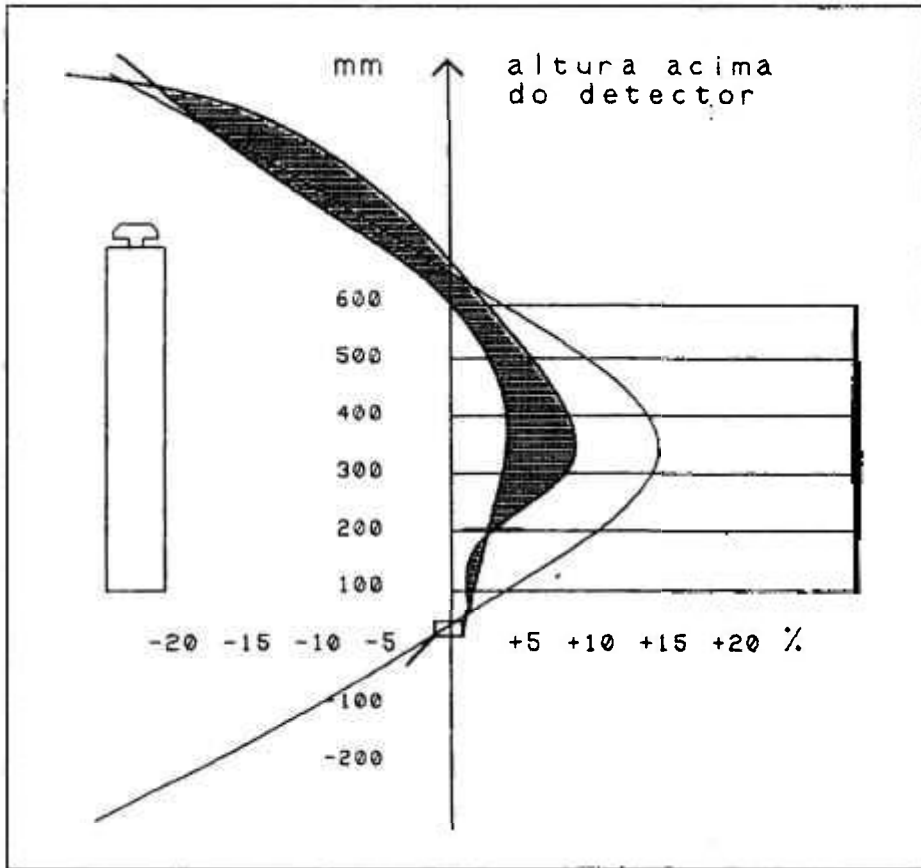


Fig.4.3.4. Variacao axial da densidade de fluxo de neutrons antes e depois da instalacao de absorvedores de aco no reator DR da Dinamarca. (ref. 15)

mesmo fluxo de nêutrons.

Estes dois métodos possuem a desvantagem de provocar uma diminuição considerável no fluxo de nêutrons, aumentando conseqüentemente o tempo de irradiação para a obtenção de uma determinada resistividade.

#### IV. 4. Determinação da Eficiência do Detector Geiger-Müller e Cálculos pelo Método de Monte Carlo.

A atividade de uma solução de  $P^{32}$  foi medida pelo detector geiger. As características desta solução e geometria utilizada para a sua monitoração já foram descritas no capítulo III.

O resultado obtido pela medida com o detector geiger, da solução de  $P^{32}$ , foi de  $138.9 \pm 0.7$  cps. O erro desta medida foi calculado com base em 10 medidas registradas pelo detector geiger na mesma geometria. Através deste resultado calculou-se um valor para a eficiência do detector geiger de  $2.079 \times 10^{-2} \pm 0.05 \times 10^{-2}$  cps.g/Bq. O erro desta medida foi obtido propagando-se os erros na atividade padrão da solução de  $P^{32}$  e o erro nas contagens medida pelo detector Geiger.

Na prática, contudo, o detector geiger irá monitorar como fonte emissora beta-puro, um monocristal de Si, e não uma solução com atividade conhecida de  $P^{32}$ . Portanto, torna-se necessário empregar um fator de correção adequado, se houver, para este valor de eficiência encontrado. Foi criado com este propósito, um programa que calcula a eficiência do detector geiger através do método Monte Carlo [5], para se verificar qual seria o fator de correção adequado no valor de eficiência encontrado ao se monitorar um tarugo de Si.

Devido à atenuação das partículas  $\beta^-$  no meio

em que ela percorre, ao se monitor um corpo de grande espessura como um tarugo de Si, as contagens coletadas pelo detector não representam a atividade total deste corpo. Foi elaborado portanto, um programa usando o método de Monte Carlo que determina a eficiência do detector geiger levando em conta a atenuação das partículas  $\beta^-$  no meio percorrido por ela, e nas mesmas condições de geometria experimental descrita no capítulo III. O princípio de funcionamento do método Monte Carlo é simular exatamente todas as condições experimentais através de um programa de computador. A tabela 4.4.1 mostra o valor da eficiência do detector geiger calculada pelo método de Monte Carlo, simulando como fonte emissora beta-puro, um tarugo de Si de 3" de diâmetro, e, o valor da eficiência com a solução de  $P^{32}$  dentro de um tubo de PVC com janelas de makrofol utilizado experimentalmente.

Comparando-se os valores das eficiências obtidas através dos métodos experimental e teórico, utilizando a água como meio de propagação para as partículas  $\beta^-$ , tem-se um erro entre os dois valores de 2.4% . O erro total no cálculo da eficiência pelo método de Monte Carlo foi de 4.2% . A diferença no valor das eficiências nos diferentes meios de propagação da partícula  $\beta^-$  ( água e Si ), encontradas teoricamente, foi de 3.1% . Conclui-se portanto, mediante estes resultados obtidos, que não será necessário empregar nenhum fator de correção na eficiência do detector geiger, quando na sua monitoração sobre tarugos de Si.

Tabela.4.4.1. Valores da eficiência do detector geiger calculados pelo método Monte Carlo.

Eficiência (cps g/Bq)	Meio Utilizado
$2,029.10^{-2} \pm 0.043 \times 10^{-2}$	água
$2,094.10^{-2} \pm 0.075 \times 10^{-2}$	Si

Após ter-se estabelecido a eficiência do detector geiger, é necessário conhecer qual é o seu limite de detecção. Definimos arbitrariamente como limite de detecção, o valor das contagens de radiação de fundo registradas pelo detector geiger igual a 3 vezes o seu erro total,  $3\sigma_b$ . Deste modo, em um valor de contagens inferior a  $3\sigma_b$  não podemos afirmar se existe fonte.

Para o monitoramento de um tarugo de Si irradiado, foi estabelecido um tempo de contagem de 10 minutos. Este tempo foi estimado de modo a se manter um compromisso entre a praticidade e a segurança, uma vez que este trabalho é voltado à uma produção do Si NTD no reator IEAR-1.

O número de contagens da radiação de fundo ( $N_b$ ) registradas pelo detector Geiger no laboratório onde serão feitas as medidas é da ordem de  $600 \pm 24,5$  contagens em 10 minutos. Para se considerar que existe fonte no tarugo, deve-se ter:

$$NF - N_b > 3\sigma_b \quad \text{eq. (4.4.1)}$$

Onde :

$NF$  = contagens durante 10 minutos do tarugo de Si irradiado.

$N_b$  = contagens durante 10 minutos da radiação de fundo do laboratório.

$3\sigma_b$  = limite de detecção do detector geiger.

O limite de detecção,  $3\sigma_b$ , do detector Geiger, como podemos verificar pelo valor descrito acima da radiação de fundo,  $N_b$ , corresponde a 73.5 contagens em 10 minutos. Segundo as normas internacionais de proteção Radiológica, para um tarugo de Si ser considerado como

isento de normas de segurança radiológica, o limite máximo permissível de atividade é de  $2 \cdot 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$ , ou  $7,4 \text{ Bq/g}$ . [6].

A eficiência do detector geiger obtida experimentalmente, conforme descrito no sub-ítem IV.4, é de  $2,079 \cdot 10^{-2} \text{ cps.g/Bq}$ . Portanto, dividindo-se o valor do limite de isenção pela eficiência do detector geiger, obtem-se  $0,15 \text{ cps}$ . Ou seja, o resultado obtido para o limite de isenção, em nosso geiger, é de aproximadamente  $92,3$  contagens em 10 minutos.

Portanto, se  $N_f - N_b > 92,3$  contagens em 10 minutos, o tarugo de Si não estará dentro do limite de isenção.

#### IV.5. Calibração do detector SPND

Como já foi dito, o detector SPND fornece uma resposta que é proporcional a dose de nêutrons recebida. Conseqüentemente, é necessário uma calibração do mesmo contra uma medida direta da dose de nêutrons para que este detector possa ser utilizado como medidor. Os detectores SPND usados neste trabalho foram calibrados com monitores de cobalto. Um total de 12 fios de cobalto metálico foram irradiados com nêutrons para esta calibração.

A tabela 4.5.1 mostra o tempo em que cada monitor foi irradiado e as contagens registradas pelo digitalizador de corrente do detector SPND. A atividade dos fios de cobalto foi determinada pelo procedimento já descrito anteriormente. A partir deste dado foi possível calcular a dose de nêutrons ( $\phi.t$ ) recebida. A fig.4.5.1 mostra a relação entre a dose de nêutrons e contagens registradas pelo digitalizador de corrente do detector SPND.



Tabela 4.5.1. Tempo de irradiação de cada monitor de cobalto e contagens detector SPND.

n <sup>o</sup> fio	tempo de irradiação ( h )	contagens integradas
1	8	3.911.738 ± 1977
2	10	4.792.822 ± 2189
3	12	5.762.837 ± 2401
4	14	6.647.444 ± 2578
5	16	7.465.612 ± 2732
6	17.15	8.005.180 ± 2829
7	19.20	8.831.401 ± 2972
8	21.20	9.736.090 ± 3120
9	24.20	10.646.944 ± 3241
10	26.20	11.578.141 ± 3403
11	28.20	12.505.460 ± 3536
12	30.20	13.463.203 ± 3669

Como se espera uma resposta linear do detector SPND em função da dose, os dados foram ajustados com uma função linear pelo método dos mínimos quadrados.

#### IV.6 Irradiação de Tarugos e lâminas de Silício no Reator IEA-R1 do IPEN.

Preliminarmente foram irradiados dois tarugos de Si. As especificações desses tarugos de Si, bem como o tempo de irradiação e resistividade alcançada, ( estas resistividades foram medidas pela empresa Heliodinâmica ) são apresentados na tabela 4.6.1.

Nestas primeiras irradiações não houve controle do fluxo de nêutrons incidentes na amostra, devido ao caráter preliminar deste experimento.

Para estabelecimento de parâmetros de irradiação, como por exemplo, dose de nêutrons recebida e resistividade final, foram utilizados no presente trabalho lâminas de silício com dimensões: diâmetro 2.5" ou 3", e espessura de 10 mm.

O procedimento consistiu em irradiar cada lâmina junto com um monitor de cobalto. Um fio de cobalto e lâmina de silício foram embrulhados totalmente em folha de alumínio. As lâminas e monitores assim preparadas foram colocadas dentro do dispositivo de irradiação, umas sobre as outras. Um espaçador de alumínio ( em forma de tubo ) foi

usado para ajustar a posição do conjunto de lâminas em relação ao perfil vertical do fluxo na posição de irradiação. Desta forma, a posição do conjunto foi ajustada para que o centro do conjunto coincida com máximo do perfil do fluxo. Após a irradiação por tempos pré-determinados as lâminas foram retiradas sucessivamente de cima para baixo, uma de cada vez. Um total de 24 lâminas foram irradiadas, sendo o processo de irradiação destas lâminas dividido em três etapas. Na primeira etapa foram irradiados um conjunto de 12 lâminas ( 1<sup>o</sup> lote ), na segunda etapa um conjunto de 8 lâminas ( 2<sup>o</sup> lote ) e na terceira etapa um conjunto de 4 lâminas ( 3<sup>o</sup> lote ). A tabela 4.6.2 mostra os tempos de irradiação de cada lâmina.

A atividade dos monitores de cobalto foi medida pelo detector de NaI(Tl) utilizando-se o procedimento já descrito anteriormente. A partir deste dado foi calculado a dose de nêutrons recebida por cada lâmina de silício durante irradiação. Os resultados estão na tabela 4.6.2.

Como já foi mencionado, devido aos danos causados na estrutura cristalina do silício durante o processo de irradiação no reator, não é possível medir a resistividade do mesmo antes de recuperar sua estrutura normal. O processo de recuperação é feito pelo tratamento térmico.

O tratamento térmico das lâminas de Si irradiadas, foi feito em um forno elétrico cujo desenho esquemático esta ilustrado na figura 4.6.1. Este forno só permite o cozimento de lâminas de Si com no máximo 1 cm de espessura. As lâminas são colocadas sob uma esteira que possui uma velocidade constante de  $8,3 \cdot 10^{-3}$  m/s. Estas lâminas penetram o interior do forno e percorrem toda a extensão de seu comprimento. Durante o seu trajeto pelo interior do forno, à uma distância de 4m em relação ao

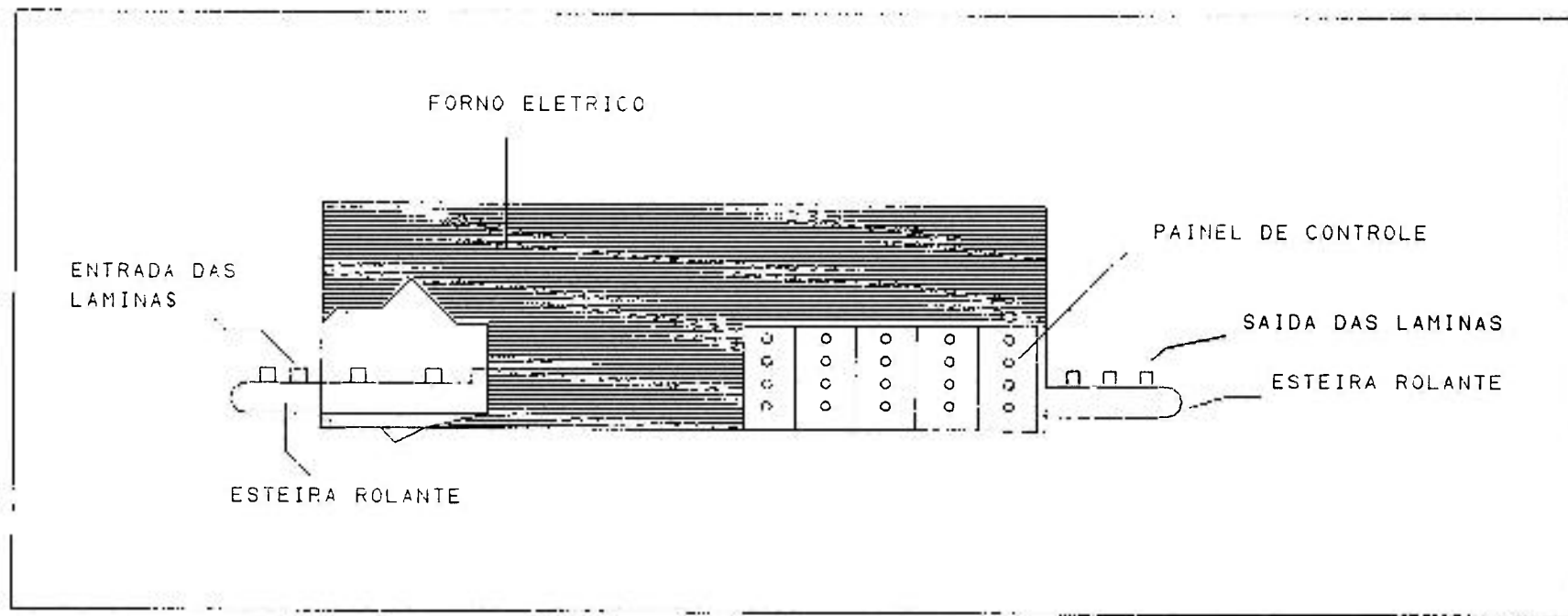
tabela 4.6.1. Resultados de tarugos de Si irradiados no reator IEA-R1.

tipo	dimensões	tempo de irrad. (h)	resist. ( $\Omega$ cm)
Cz	2,5" x 20 cm	22,45	38.0 $\pm$ 0.3
Cz	2,5" x 25 cm	29,17	27.9 $\pm$ 0.2

Tabela 4.6.2. Resultados obtidos para a resistividade das lâminas de Si irradiadas no reator IEA-R1.

lâmina	t.irr. (h)	Resistividade ( $\Omega\text{cm}$ ) <sup>*</sup>		fluência ( $n/\text{cm}^2$ ) $\times 10^{17}$
		centro ( $\Omega\text{ cm}$ )	borda ( $\Omega\text{ cm}$ )	
1 <sup>o</sup> lote				
01	8	98,1 $\pm$ 0,7	101,8 $\pm$ 1,6	4,0 $\pm$ 0,1
02	10	82,0 $\pm$ 0,6	83,0 $\pm$ 0,1	4,6 $\pm$ 0,2
03	12	63,2 $\pm$ 0,1	64,9 $\pm$ 0,4	5,4 $\pm$ 0,2
04	14	49,9 $\pm$ 0,1	48,9 $\pm$ 0,6	6,1 $\pm$ 0,2
05	16	44,9 $\pm$ 0,1	47,7 $\pm$ 0,6	6,8 $\pm$ 0,2
06	17,2	43,2 $\pm$ 0,2	42,9 $\pm$ 0,6	7,2 $\pm$ 0,3
07	19,2	41,9 $\pm$ 0,2	42,3 $\pm$ 0,5	7,9 $\pm$ 0,3
08	21,2	36,9 $\pm$ 0,3	37,2 $\pm$ 0,2	8,6 $\pm$ 0,3
09	24,2	32,1 $\pm$ 0,1	32,7 $\pm$ 0,4	9,4 $\pm$ 0,3
10	26,2	28,6 $\pm$ 0,1	29,8 $\pm$ 0,2	11,0 $\pm$ 0,4
11	28,2	25,1 $\pm$ 0,1	25,5 $\pm$ 0,4	12,0 $\pm$ 0,4
12	30,2	25,3 $\pm$ 0,1	25,9 $\pm$ 0,2	12,3 $\pm$ 0,4
2 <sup>o</sup> lote				
13	7,08	185,2 <sup>+</sup> - 0,4	186,5 <sup>+</sup> - 2,0	2,8 <sup>+</sup> - 0,1
14	14,3	112,4 <sup>+</sup> - 0,7	114,1 <sup>+</sup> - 2,1	3,8 <sup>+</sup> - 0,1
15	14,36	74,1 $\pm$ 0,3	75,5 $\pm$ 0,6	5,6 $\pm$ 0,2
16	19,12	62,5 $\pm$ 0,6	63,0 $\pm$ 0,5	6,1 $\pm$ 0,2
17	21,40	44,2 $\pm$ 0,1	45,1 $\pm$ 0,3	8,3 $\pm$ 0,3
18	36,57	39,5 $\pm$ 0,2	40,0 $\pm$ 0,2	8,6 $\pm$ 0,3
19	29,07	31,6 $\pm$ 0,1	32,0 $\pm$ 0,4	10,6 $\pm$ 0,4
20	36,02	24,9 $\pm$ 0,1	25,4 $\pm$ 0,4	13,0 $\pm$ 0,5
3 <sup>o</sup> lote				
21	7,2	100 $\pm$ 0,2	103 $\pm$ 0,6	2,4 $\pm$ 0,1
22	16,23	41,7 $\pm$ 0,1	42,0 $\pm$ 0,6	6,0 $\pm$ 0,2
23	22,75	38,5 $\pm$ 0,1	39,9 $\pm$ 0,1	6,7 $\pm$ 0,2
24	31,18	30,3 $\pm$ 0,4	31,1 $\pm$ 0,1	9,0 $\pm$ 0,3

\* Resistividade medida pelo método 4 pontas.



ig.4.6.1. Desenho esquematico do forno eletrico da empresa heliodinamica

início, elas chegam a uma temperatura máxima de 700°C. Esta região quente esta sob uma atmosfera de gás argônio e hidrogênio, ( 75% de Ar e 25% de H<sub>2</sub> ). Em seguida as lâminas sofrem um súbito resfriamento com nitrogênio, terminando o percurso em fase de equilíbrio térmico com o meio ambiente. As dimensões do forno são: 10 x 1,70 x 0.5 m<sup>3</sup>. O tempo gasto pelas lâminas em todo o percurso pelo interior do forno é de 20 minutos. Este forno elétrico é o forno utilizado pela empresa Heliodinâmica.

As lâminas de Si após serem irradiadas e submetidas ao tratamento térmico, tiveram suas resistividades medidas pelo método 4 pontas.

Os resultados de medida de resistividades para as lâminas irradiadas no reator IEA-R1, são mostrados na tabela 4.6.2. Os erros referentes ao centro das lâminas, foram obtidos calculando-se o desvio padrão de 10 medidas de resistividade na zona central da lâmina. Os erros das medidas na borda, foram obtidos mediante o cálculo do desvio padrão, nas medidas de 4 quadrantes diferentes da superfície da lâmina de Si.

A relação entre a dose de nêutrons e resistividade final das lâminas de silício é mostrado nas figuras 4.6.2a, 4.6.2b e 4.6.2c. Foi plotado nestas figuras a dose de nêutrons ( ou fluência )  $\phi.t$  contra o inverso da resistividade final média para cada lâmina. Estas figuras representam respectivamente a curva de calibração entre a dose de nêutrons e resistividade para os 3 lotes de lâminas de silício irradiados no reator IEA-R1. Cada lote de lâminas tem procedência de diferentes tarugos, todos crescidos pelo método Cz. Os dados experimentais foram ajustados pela relação:

$$\phi.t = K \left[ \frac{1}{\rho_f} - \frac{1}{\rho_i} \right]$$

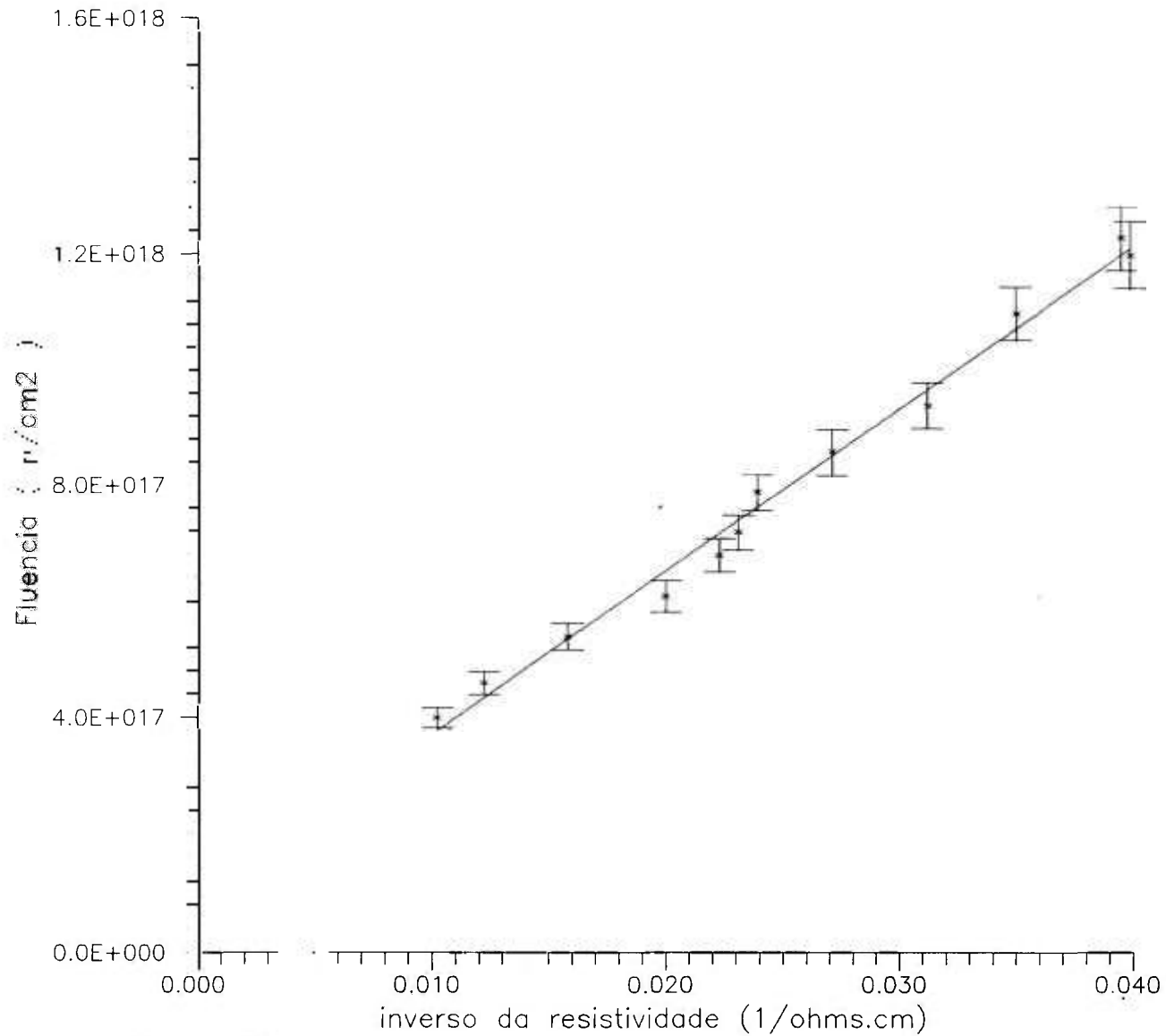


Fig.4.6.2a. Curva de calibracao entre a dose de neutrons e o inverso da resistividade media de amostras de Si irradiadas.

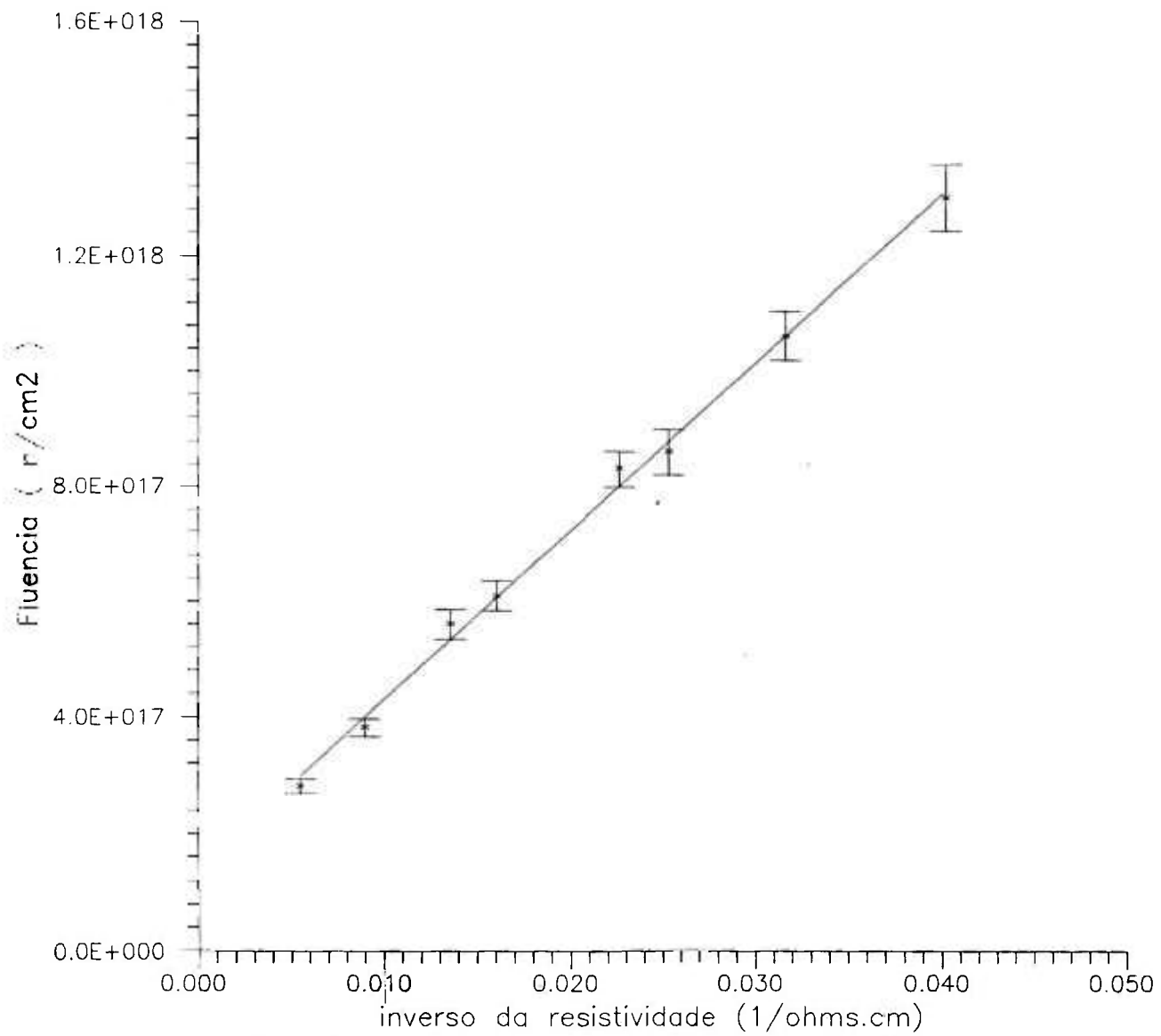


Fig.4.6.2b. Curva de calibracao entre a dose de neutrons e o inverso da resistividade media de amostras de Si irradiadas.

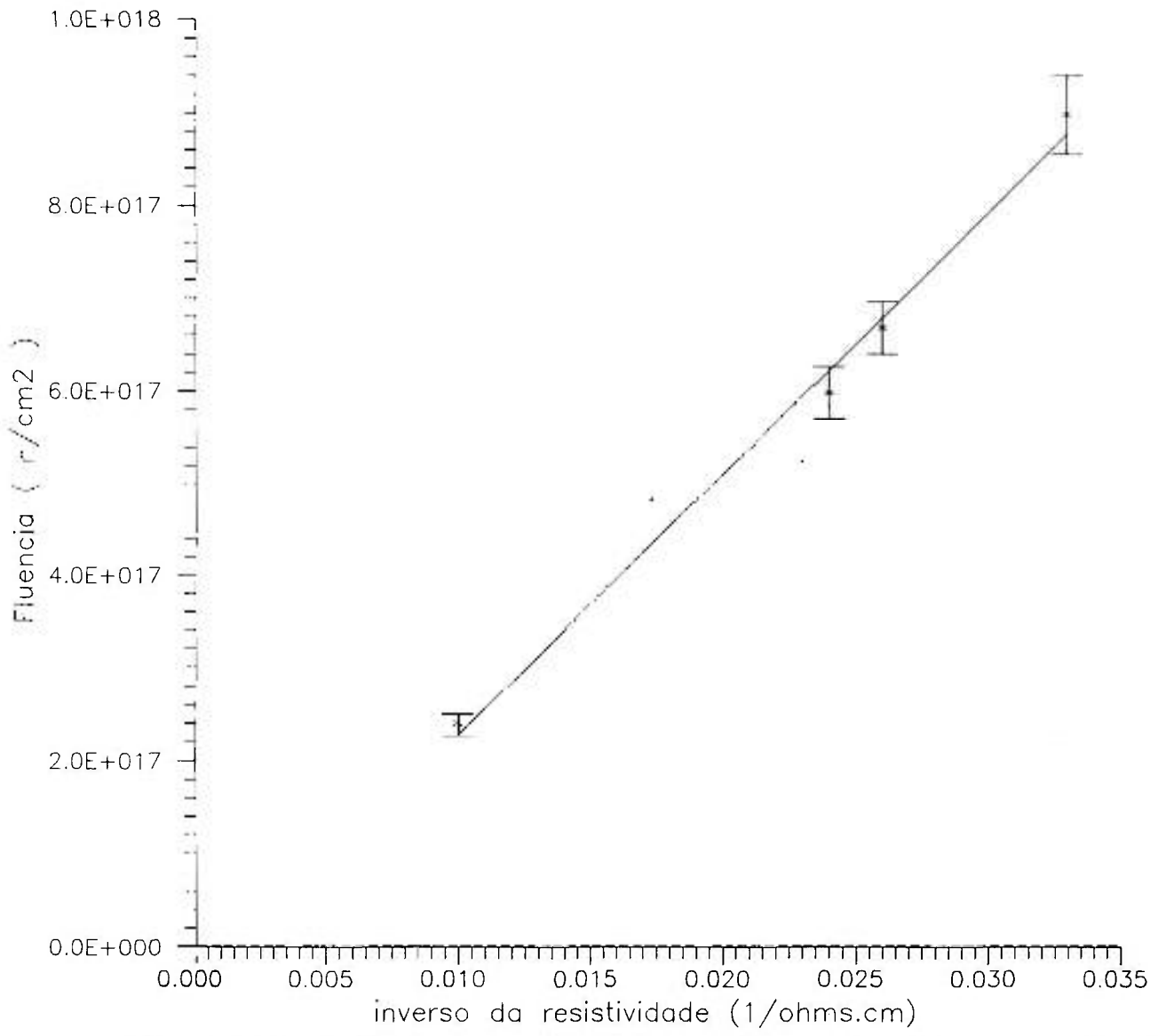


Fig.4.6.2c. Curva de calibracao entre a dose de neutrons e o inverso da resistividade media de amostras de Si irradiadas.

$$\text{Onde } K = \frac{1}{N_0 \sigma_c \mu_e q_e}$$

Através do método dos mínimos quadrados o ajuste forneceu os seguintes valores.

1<sup>o</sup> lote:

$$K = ( 2,81 \cdot 10^{19} \pm 4,78 \cdot 10^{17} ) \text{ n } \Omega/\text{cm} \quad \text{eq. (4.6.1)}$$

$$\rho_i = ( 305 \pm 15 ) \Omega \text{ cm} \quad \text{eq. (4.6.2)}$$

2<sup>o</sup> lote:

$$k = ( 2,92 \cdot 10^{19} \pm 5,38 \cdot 10^{17} ) \text{ n } \Omega/\text{cm} \quad \text{eq. (4.6.3)}$$

$$\rho_i = ( 217 \pm 11 ) \Omega \cdot \text{cm} \quad \text{eq. (4.6.4)}$$

3<sup>o</sup> lote:

$$k = ( 2,83 \cdot 10^{19} \pm 4,2 \cdot 10^{17} ) \text{ n } \Omega/\text{cm} \quad \text{eq. (4.6.5)}$$

$$\rho_i = ( 515 \pm 21 ) \Omega \cdot \text{cm} \quad \text{eq. (4.6.6)}$$

O valor médio experimental de k, portanto, é de  $( 2,85 \cdot 10^{19} \pm 8,3 \cdot 10^{17} ) \text{ n } \Omega/\text{cm}$ .

É relevante salientar neste momento a conveniência da determinação experimental do valor de K, que por sua vez poderia ter sido calculado teoricamente a partir dos parâmetros  $N_0$ ,  $\sigma_c$ ,  $\mu_e$ , e  $q_e$ , onde as constantes  $N_0$  e  $q_e$  são bem conhecidas e os parâmetros como secção de choque  $\sigma_c$  e mobilidade do elétron  $\mu_e$  encontram-se tabelados em diversas literaturas. A dificuldade existe por causa da incerteza nos valores da secção de choque  $\sigma_c$  encontrados na

literatura, onde se relata que este valor depende do espectro de nêutrons que é diferente em cada tipo de reator. Da mesma forma os valores de  $\mu_0$  devem ser medidos para cada cristal e depende dos tipos e quantidades de impurezas presente no cristal original.

Por outro lado o conhecimento preciso de K é de importância fundamental para o processo de dopagem, porque determina a precisão com que a dopagem resultará num valor pré-estabelecido ("target value"). Isto afirma a necessidade de medidas precisas de fluência de nêutrons durante a irradiação de silício.

O valor da secção de choque  $\sigma_c$  determinado a partir do valor experimental de K foi de  $(0,103 \pm 0,002)$  barns e esta em bom acordo com o valor das referências [6], [8], [15] e [18]. Os valores das constantes e do parâmetro  $\mu_0$  usados para o cálculo da secção de choque  $\sigma_c$  foram:  $\mu_0 = 1396 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ ,  $q_0 = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ coulomb}$  e  $N_0 = 1,54 \cdot 10^{21} \text{ át/cm}^3$ .

#### IV.7 Análise da Homogeneidade na Resistividade das Lâminas de Si Dopadas pela Técnica NTD.

Como já descrito anteriormente, no capítulo II, para fazer uma dopagem tipo N em monocristais de Si usando o elemento fósforo sem utilizar a técnica NTD, tem-se o problema do seu coeficiente de distribuição que não é adequado para nenhum método prático de crescimento de monocristais, gerando uma dopagem não uniforme ao longo do volume do monocristal. A técnica NTD solucionou este problema ao conseguir uma dopagem mais uniforme nos monocristais de Si, independentemente do método escolhido para o seu crescimento, se Czochralski ou Float Zone, transpondo o problema do coeficiente de distribuição do fósforo, uma vez que a dopagem é feita através de um método puramente nuclear, não dependendo da natureza deste

coeficiente.

Uma comparação de homogeneidade na resistividade das lâminas entre os dois métodos, convencional e NTD, é ilustrado nas figuras 4.7.1 e 4.7.2. Foi feito um mapeamento milimétrico de medidas de resistividades na superfície de duas lâminas de Si; onde numa delas a dopagem foi feita pelo método convencional na empresa Heliodinâmica e noutra pela técnica NTD no reator IEA-R1. O mapeamento foi feito medindo-se a resistividade milimetricamente ao longo de 4 diâmetros orientados a  $0^{\circ}$ ,  $45^{\circ}$ ,  $90^{\circ}$  e  $135^{\circ}$  respectivamente, na superfície das lâminas, com um aparelho medidor de resistividade pelo método 4 pontas. Pode-se notar uma variação de resistividade ao longo da superfície da lâmina onde usou-se o método NTD, ( fig.4.7.1 ), de apenas 3%, enquanto que na variação de resistividade ao longo da superfície da lâmina onde usou-se o método convencional, ( fig. 4.7.2 ), temos pontos com valores de resistividades que possuem uma variação de até 10% . Tem-se portanto, uma melhor qualidade de dopagem no método NTD.

No presente trabalho tinha-se à disposição, somente aparelhos para medir as resistividades de lâminas de Si pelo método 4 pontas. Uma análise mais rigorosa na comparação entre estes dois gráficos apresentados, implicaria em medir a resistividade micrometricamente, utilizando o método do potencial transversal descrito no capítulo II, uma vez que este método é mais preciso que o método 4 pontas. O método 4 pontas fornece apenas um valor médio da resistividade ao longo do diâmetro da lâmina. Contudo, esta comparação do perfil de resistividade entre os dois métodos, é muito conhecida na literatura e já foi exaustivamente analisado, como pode-se observar nas referências [6], [19] e [37].

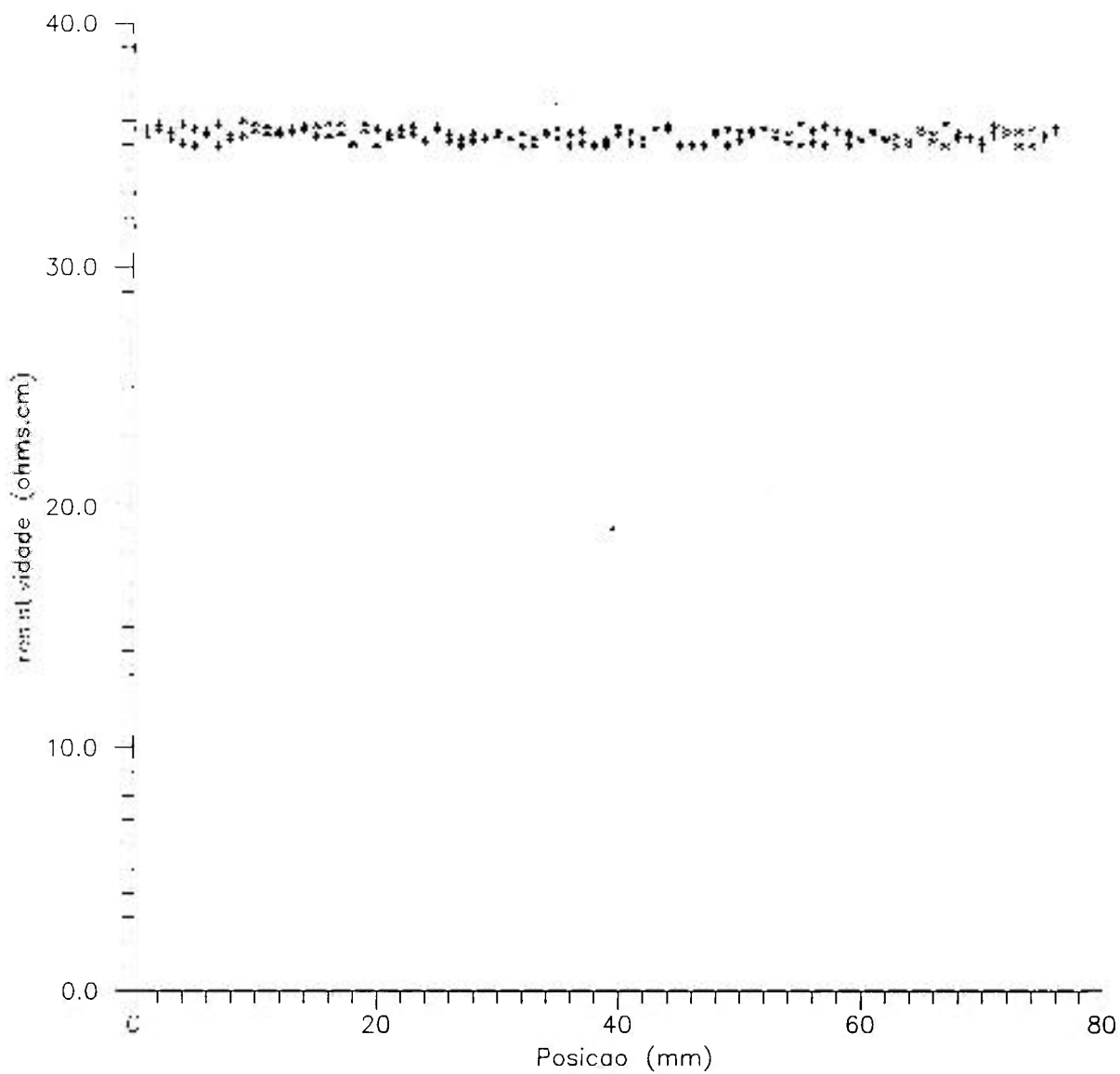


Fig.4.7.1. Medidas de resistividades ao longo do diametro de uma lamina de 3 pol. Esta lamina ( tipo Fz ) foi irradiada no reator IEA-R1, (Tecnica NTD)

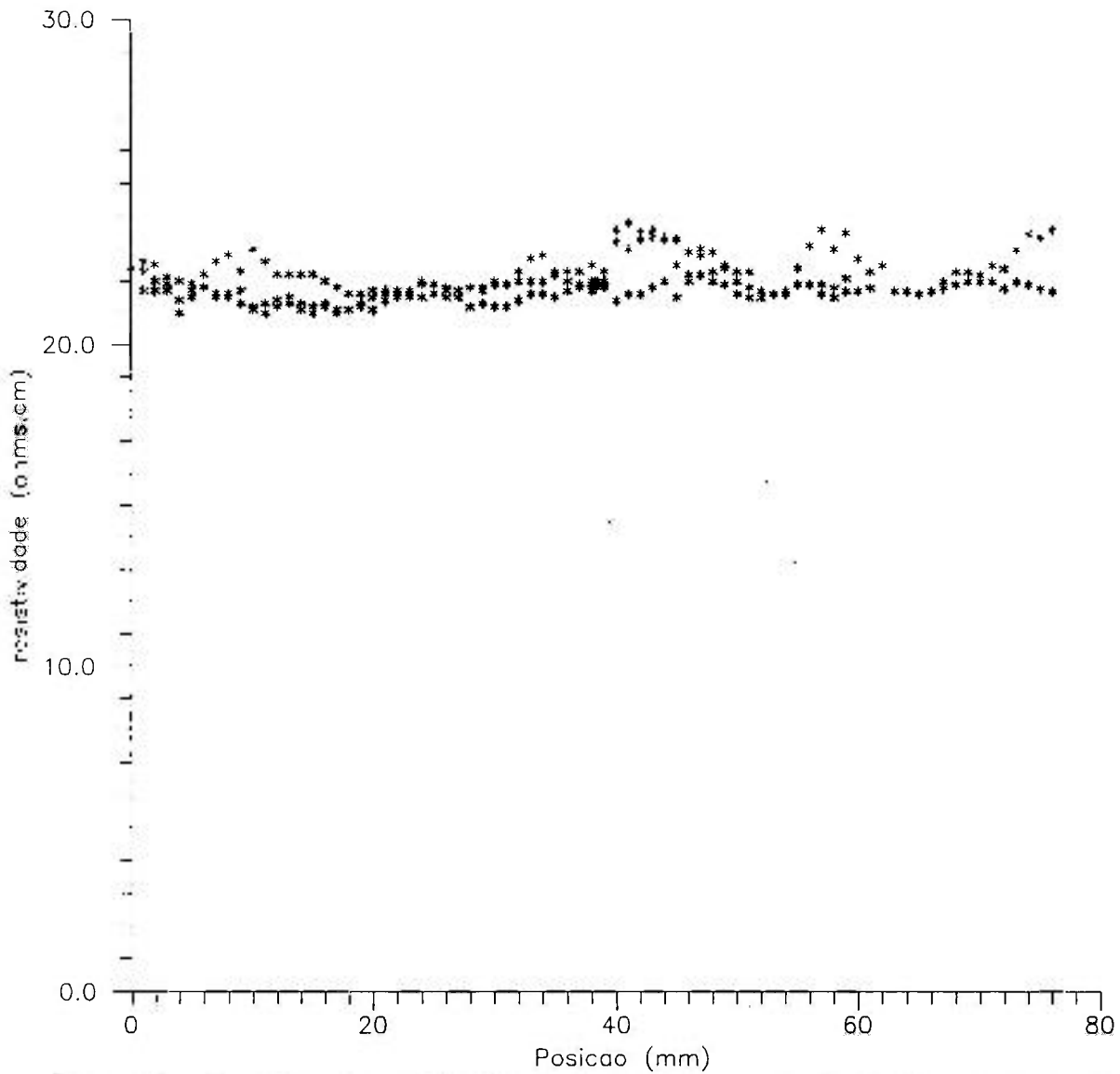


Fig.4.7.2. Medidas de resistividades ao longo do diametro de uma lamina de 3 pol. Esta lamina foi dopada pelo metodo convencional na empresa he-liodinamica durante o crescimento do monocristal pelo metodo Cz.

## CAPITULO V

### DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÃO.

Como já foi mencionado anteriormente, a dopagem do silício monocristalino com fósforo realizada pelo método convencional ( químico ), resulta em um material semiconductor com variações de resistividade relativamente grande, devido a segregação do fósforo, concentrando-o mais no centro durante o crescimento do monocristal.

Estas variações de resistividade são prejudiciais para o bom desempenho dos dispositivos de potência de grande volume quando construídos com este material como substrato. Para solucionar estas dificuldades e produzir silício monocristalino dopado com fósforo ( semiconductor tipo -N ) com características bem superiores, foi desenvolvida uma metodologia no presente trabalho onde a dopagem do silício com fósforo é feita através de um processo nuclear chamado "Neutron Transmutation Doping" (NTD). A grande vantagem desta técnica sobre o método convencional de dopagem esta na obtenção de distribuição muito uniforme do dopante ( fósforo ) em todo o volume do cristal, que resulta em um perfil bem uniforme de resistividades axiais e radiais .

Além disso, a técnica NTD permite alta precisão na dopagem final ( valor de resistividade final muito perto do valor desejado ) devido ao controle rigoroso da dose de nêutrons recebido pelo cristal durante a irradiação do mesmo no reator nuclear.

Como parte do presente trabalho, foi projetado, construído e instalado no reator de pesquisa IEA-R1, um dispositivo especial para irradiação de monocristais de silício. Foram realizadas medidas extensivas e cuidadosas para determinação de perfil do fluxo de

nêutrons na posição de irradiação. Foi utilizada a técnica de ativação com monitores de fio de cobalto para esta medida. A medida de atividade dos monitores foi realizada pelo método de espectrometria gama. Os resultados mostram um perfil do fluxo de nêutrons bastante simétrico em torno de posição central do dispositivo onde o fluxo máximo é da ordem  $10^{13} \text{ n / cm}^2 \cdot \text{s}$ , ( fig .4.3.2 ). Pode ser visto também que é possível irradiar um tarugo de silício com comprimento máximo de 25 cm com variação axial de dose de nêutrons menor que 10% . Contudo, na prática é possível diminuir ainda mais este gradiente axial, e o método que esta sendo utilizado em nosso laboratório consiste em irradiar dois tarugos de 20cm, um de cada lado do máximo do perfil do fluxo e inverter as posições, como mostra a fig. 4.3.3, quando receberem metade da dose necessária. O controle de dose de nêutrons é feito através de dois detectores SPND instalados junto ao dispositivo de irradiação. Estes detectores SPND foram calibrados com monitores de cobalto.

Os resultados obtidos com a irradiação das lâminas de silício (Si - Cz ) mostram que os valores de resistividade final, da ordem de 32  $\Omega\text{cm}$ , podem ser alcançados com irradiação durante um período de aproximadamente 24 horas ( dose média de nêutrons;  $9.0 \times 10^{17} \text{ n / cm}^2$  ). Os resultados ainda mostram que o gradiente radial de resistividade para lâminas de 3" de diâmetro é menor de 3%

Como foi mencionado anteriormente, uma reação nuclear secundária ocorre quando o núcleo  $\text{P}^{31}$  produzido no silício continua sendo irradiado :  $\text{P}^{31} + \text{n} \longrightarrow \text{P}^{32} \xrightarrow{\beta} \text{S}^{32}$ . A meia vida do  $\text{P}^{32}$  é de 14.6 d. Como esta reação secundária produz um rádio isótopo com meia vida maior, surgem implicações em relação ao nível de radiação do silício, embora este nível seja muito pequeno. Normas internacionais de proteção radiológica, estabelecem um limite do nível de radiação menor que  $2 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$  como isento de radioatividade. Para as medidas de atividade residual dos cristais de silício após irradiação, foi

construído um sistema com detector Geiger, cuja eficiência foi determinada com uma solução de  $P^{32}$  com geometria similar ao do cristal. Este sistema possui suficiente sensibilidade para detectar um nível de radioatividade menor que o limite máximo permissível pelas normas de proteção radiológica.

O projeto "Dopagem do Silício Monocristalino com Fósforo pela Transmutação com Nêutrons" utilizando o reator de pesquisa IEA -R1 do IPEN - CNEN / SP iniciou -se no final do ano de 1987 através de uma colaboração entre o grupo do IPEN e o laboratório de micro eletrônica da escola politécnica ( LME ) da USP . O laboratório LME forneceu as primeiras lâminas de silício - Cz que foram irradiadas num "beam - hole" tangencial do reator. Após a irradiação por um período de aproximadamente 150 horas nesta posição, foi observado uma redução na resistividade final para 58  $\Omega\text{cm}$ , sendo seu valor inicial igual 162  $\Omega\text{cm}$ . Entretanto, já foi concluído de imediato que a densidade de fluxo de nêutrons de aproximadamente  $6 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>.s na posição de irradiação neste "beam - hole " era muito pequeno para qualquer aplicação prática.

No primeiro semestre de 1989 um dispositivo vertical foi construído e instalado ocupando lugar de um refletor de grafite na placa matriz do reator, permitindo irradiação de tarugos de silício de 2.5" de diâmetro . Durante este tempo já tinha sido estabelecido contacto com uma empresa local ( Heliodinâmica S/A ) produtora de silício monocristalino - CZ. O IPEN firmou um convênio de cooperação técnica com esta empresa, onde ela concordou em fornecer os tarugos de silício para ensaios de irradiação. A partir deste momento iniciaram - se medidas extensivas para determinação do perfil de fluxo de nêutrons na posição de irradiação. Uma série de ensaios foram realizados com tarugos e lâminas de silício - CZ para estabelecer a relação precisa entre a dose de nêutrons recebida e resistividade final do silício. O tratamento térmico após irradiação do silício e medidas de resistividade final foram realizados no

início deste trabalho, no LME ou na empresa Heliodinâmica S/A. Entretanto, durante este período nosso laboratório conseguiu através de um projeto de assistência técnica da Agência Internacional de Energia Atômica "Silicon Doping by neutron transmutation" ( Projeto - BRA/41038 ), um medidor de resistividade tipo 4 - pontas. Desde então as medidas passaram a ser realizadas no IPEN .

Com os resultados do presente trabalho, foi demonstrado claramente a viabilidade do método de dopagem do silício monocristalino pela irradiação com nêutrons no reator IEA - R1.

Logo foi iniciado um projeto para construção de um dispositivo para irradiação de tarugos de silício com diâmetro de até 4". Este dispositivo foi instalado no reator em meados de 1990 ( fig 3.3.3 ) Mais uma vez um trabalho extensivo para medidas de perfil de fluxo de nêutrons, foi realizado para determinar as melhores condições de irradiação neste dispositivo .

Os resultados mostraram novamente como já foi mencionado, que podemos irradiar dois cristais de 20 cm de comprimento invertendo as posições na metade da irradiação. Desta forma conseguiremos uma variação axial de dose menor de 10% para ambos os cristais ( 40 cm no total ).

Foi alocado um espaço separado para um laboratório para medidas de radioatividade . Uma câmara de ionização ( gás pressurizado ) e um medidor digital de corrente, são utilizados para medidas de radioatividade dos monitores de cobalto ( este método é mais conveniente e simples para trabalho de rotina em lugar de espectroscopia gama com detector de NaI(Tl) que foi utilizado no presente trabalho ). A atividade residual dos tarugos irradiados é determinado pelo detector G.M calibrado. O laboratório possui espaço separado para manuseio dos monocristais de silício antes e depois da irradiação, como por exemplo: encapsulamento em canecas de alumínio, limpeza da superfície

do tarugo após irradiação, preparação de monitores de cobalto etc.

No início de 1991 o laboratório recebeu proposta de uma empresa japonesa produtora de monocristais de silício - FZ, mostrando interessè em utilizar nosso serviço de irradiação de silício. Esta empresa nos ofereceu remessa de alguns lotes de tarugos de silício ( 4" , 3" e 2.5" de diâmetro para ensaios. Os ensaios de irradiação comerciais se iniciaram em maio daquele ano. Após irradiação os tarugos são devolvidos à empresa que faz tratamento térmico e realiza medidas de resistividade final dos tarugos. Isto tem nos dado uma excelente oportunidade para estabelecer com precisão nossos parâmetros de irradiação, como por exemplo, relação dose x resistividade, uniformidade na dopagem, precisão na dopagem etc .

Já foram irradiadas mais de uma dezena de cristais até o momento, e podemos dizer que os resultados foram inteiramente satisfatórios.

Considerando irradiação de cristais de silício com apenas 4" de diâmetro em nosso dispositivo, e considerando que um par de cristais com 20 cm de comprimento cada um, leva no máximo 32 horas de irradiação ( 04 dias de operação do reator ), podemos chegar a conclusão que dentro do presente esquema de operação do reator ( 08 h por dia / 05 dias por semana ) nossa capacidade de irradiação do silício será da ordem de 300 - 400 kg/ano ( este valor será menor se considerarmos irradiação de tarugos com 3" ou 2.5" de diâmetro ). Esta capacidade é muito pequena para atrair seriamente a atenção de qualquer grande produtor Internacional de silício FZ. É imperativo que devemos aumentar nossa capacidade de irradiação ( como um exemplo, esta empresa japonesa nos solicita um serviço de irradiação praticamente 10 a 15 vezes maior que nossa capacidade anual ) . Em tese, teriam duas formas possíveis para aumentar a capacidade produtiva: a) instalar no reator mais dispositivos ( "rigs " ) de irradiação, b) aumentar o tempo

de operação do reator. Acreditamos que as duas possibilidades merecem uma análise mais séria. Entretanto as dificuldades na obtenção de novos elementos combustíveis para o reator, também devem ser levadas em consideração. Em conclusão, podemos afirmar que o presente trabalho realizado como parte desta dissertação, mostra viabilidade da dopagem do silício monocristalino com fósforo pelo método NTD . Hoje nós temos uma capacidade instalada de produção de silício NTD da ordem de 300 - 400 kg / ano com qualidade do produto final compatível com o exigido no mercado internacional. As possibilidades de comercialização deste serviço devem ser exploradas no âmbito nacional, sensibilizando, por exemplo, a empresa Heliodinamica S/A a iniciar uma modesta produção de Si FZ, ou, no âmbito internacional.

## Referências Bibliográficas

- [1] BAUMANN, N.P. & Stroud, M.B. Self-Shielding of Detector Foils in Reactor Fluxes. Nucleonics, 23(8):98-100, Aug.1965.
- [2] BENSCH, F. flux Depression and the Absolute Measurement of the Thermal Neutron Flux Density. Atomkernenergie, 25:257-64, 1975.
- [3] BRADSHAW S.E.; Mlavsky A.I. J. Electronics, 2, 134 (1956)
- [4] CARRARD, G.. AEC Processes Silicon for Electrical Industry. AEC Nucl. News, (24): 1-2. 1986.
- [5] CASHWELL, E.D. & EVERETT, C.J. A Practical Manual on the Monte Carlo Method for Random Walk Problems. New York, Pergamon Press, 1959.
- [6] CRICK N. W. Silicon Irradiation in Harwel. Atom, 336:2-5, 1987.
- [7] CRICK, N.W. the Optimization of Nuclear Parameters Used for Silicon Irradiation in the Harweel Research Reactors. In: Guldberg, J. ed. Neutron Transmutation Doped Silicon. New York, N.Y., Plenum, 1981. p.211-22.
- [8] CROSSMAN, L.D. Preparation of Silicon. In: American Institute of Engineers. Proceedings of the 67th annual meeting of the Institute of Chemical Engineers held in Washington, December 1974. Washington, D.C., 1974.
- [9] EMPRESA Produz Silício Nacional. Meios & Métodos, 10(56): 9, 1988
- [10] GANDY, A. Preparation et Etallonnage des Sources Radioactives de References. Vienna, Agence Internationale de L'Energie Atomique, 1961 (Monograph n<sup>o</sup> 14).

- [11] GULDBERG, J., ed. Neutron Transmutation Doped Silicon. New York, N.Y., Plenum, 1981. cap. 2, p. 34-182.
- [12] GULDBERG, J. Neutron-Transmutation-Doped Silicon: Proceedings of the 3rd International Conference... Held in Copenhagen, Denmark, 27-29 August, 1980. New York, Plenum Press, 1981.
- [13] HAAS, E. & Schnoeller, M. Silicon Doping by Nuclear Transmutation. J. Eletron. Mater. , 5: 57-68, 1976.
- [14] HERZER, H. NEUTRON Transmutation Doping. In: Huff, H.R. & Stirl, E., eds. Semiconductor Silicon 1977. Princeton, Philadelphia, the Electrochemical Soc., 1977. p. 106-115.
- [15] HEYDORN, K.; ANDRESEN, k. Neutron Transmutation Doping of Silicon at Rizo National Laboratory: In: International Atomic Energy Agency. Silicon Transmutation Doping and Practices: Proceedings of a Consultants meeting... Held in Otwock-Swierk, Poland, 20-22 November 1985. Vienna, 1988 (IAEA-Tecdoc 456).
- [16] HILBORN J.W. Self Powered Neutron Detectors for Reactor Fluxo Monitoring. Nucleonics, 22(2):69-74. 1964.
- [17] HUFF, H.R. & STIRL, E., eds. Semiconductor Silicon 1977. Princepton, Philadelphia, the Electrochemical Soc., 1977. cap. 2, p. 106-150.
- [18] INTERNATIONAL Atomic Energy Agency. Silicon Transmutation Doping and Practices: Proceedings of a Consultants meeting... Held in Otwock-Swierk, Poland, 20-22 November 1985. Vienna, 1988 (IAEA-Tecdoc 456). oc 456).
- [19] JANUS, H.M. & MALMROS, O. Application of Thermal Neutron Irradiation for Large Scale Production of Homogeneous Phosphorus Doping of Float Zone Silicon. IEEE Trans. Nucl. Eletron. Devices, 23(8):797-802, 1976.

- [20] KNOLL, G.F. Radiation Detection and Measurement. New York, John Wiley & Sons, 1979.
- [21] LARABEE, R. D. Neutron Transmutation Doping of Semiconductor Materials: Proceedings of the 4th International Conference... Held in Gaithersburg, Maryland, USA., 1-3 June, 1982. New York, Plenum. 1984.
- [22] LARK-HOROVITZ, K. Nucleon-Bombarded Semiconductors. In: University Reading. Semi-conducting Materials: Proceedings of the International Conference on...Held in London, 1951. Butterworth, London, 1951 p.47-69.
- [23] LEGRAND, J.; PEROLAT, J. P.; Lagoutine, F.; Le Gallic, Y. Table des Radionucléides. Saclay, Centre D'Etudes Nucleaires, 1974. 1974.
- [24] LEMOS, C. Quartzo e Silício das Lascas à alta tecnologia. Brasil Mineral 5(57):52-53, 1988.
- [25] MAFRA, OLGA Y. Técnicas e Medidas Nucleares, 1973.
- [26] MCKELVEY, J.P. Solid-State and Semiconductor Physics. p.378-380, 1980. New York, HARPER & ROW, 1966.
- [27] MEESE, J.M.; COWAN, D.L. Chandrasekhar, M. A Review of Transmutation Doping in Silicon. IEEE Trans. Nucl. Science, 26:4858-67, 1979.
- [28] MELLO, H.A. & BIASI, R.S. Introdução à Física dos Semicondutores, 1975.
- [29] Nuclear Data Sheets. 20(3), Mar. 1977.
- [30] PRICE, W.J. Nuclear Radiation Detection. New York, N.Y., Mc Graw-Hill, 1958.
- [31] SCHNOELLER, M. BREAKDOWN Behavior of Rectifiers and Thyristors made from Striation-free Silicon. IEE Trans.

Electron. Devices., 21(5):313-314, 1974.

- [32] Sèvres, Procedures for Accurately Diluting and Dispensing Solutions. Sèvres. 1975. ( Monographie BIPM-1).
- [33] SIEGBAHN, K. Alpha, Beta and Gamma Ray Spectroscopy. Amsterdam, North Holland, 1965, Vol 1.
- [34] SOLA, A. Flux Perturbation by Detector Foils. Nucleonics. 18(3):78-81, Mar. 1960.
- [35] STEHN, J.R.; GOLDBERG, M.D.; MAGURNO, B.A. Neutron Cross Sections: VOL 1: Z=1 TO 20. 2 ed. New York, N.Y., Brookhaven National Lab., 1964. (BNL-325, Supl.2)
- [36] STETTER, G.; COUFAL, H. ; LUESCHER, E.. EPR Study of the Annealing Behavior of Neutron-Transmutation-Doped Silicon. Phys. Status Solidi A., 49(1): K17-K20, 1978, 1978
- [37] TANENBAUM M.; MILLS A. D. Preparation of Uniform Resistivity N-Type Silicon by Nuclear Transmutation. J. Electrochem Soc. 108(2):171, 1961.
- [38] WEAST, R. C., ed. CRC hand book of Chemistry and Physics. 70.ed. Boca Raton, FL, CRC Press, 1990. B-34.
- [39] WILLIAMS, A. & CAMPION, P.J. Measurement of the  $\gamma$ -Sensitivity of a  $4\pi\beta$  - Counter. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes. New York, 14 p.533-40. 1963.

BIBLIOTECA  
IPEN

De : IMD

Para : Sr. RAJENDRA NARAIN SAXENA

São Paulo, 01/12/1994

Prezada(s) Usuari(a),

Solicitamos a colaboração de V. Sa. no sentido de devolver, em caráter de urgência, a(s) obra(s) abaixo relacionada(s), até o dia 19/12/1994, para fins de inventário.

A liberação dos empréstimos será a partir de 02/01/1995.

Data empréstimo	Tombo	Título
12/05/1994	M20056	Dopagem de silício monocristalino pela transmutação com neutrons

Atenciosamente,

  
Mary P. Z. Aguiar