

Прямое экспериментальное наблюдение атома позитрония в пористом кремнии методом позитронной аннигиляционной спектроскопии

С. А. Гаврилов, В. И. Графутин⁺, О. В. Илюхина⁺, Г. Г. Мясищева⁺, Е. П. Прокопьев¹⁾+, С. П. Тимошенко, Ю. В. Фунтиков⁺

Московский институт электронной техники (Технический университет), 124498 Зеленоград, Москва, Россия

⁺ФГУП ГНЦ РФ Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218, Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 ноября 2004 г.

После переработки 29 апреля 2005 г.

Анализ спектров углового распределения аннигиляционных фотонов позволил говорить о прямом экспериментальном наблюдении атома позитрония в пористом кремнии.

PACS: 71.60.+z

Проведенные ранее исследования аннигиляции позитронов в пористом кремнии [1–6] давали указания о возможности существования в нем атомов позитрония. Однако в этих работах не было дано прямого экспериментального доказательства образования атома позитрония в пористом кремнии. В данной работе приведены результаты прецизионных экспериментов по исследованию аннигиляции позитронов в пористом кремнии. Полученные экспериментальные данные позволили в аннигиляционных спектрах выделить компоненты, обусловленные аннигиляционным распадом парапозитрония.

В экспериментах использовался стандартный метод, основанный на измерении углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) [7–10]. Из закона сохранения энергии-импульса следует, что при 2γ -аннигиляции покоящейся позитрон-электронной пары оба γ -кванта разлетаются в противоположных направлениях (угол разлета равен 180°) с одинаковой энергией $m_0c^2 = 0.511$ МэВ γ -квантов. Если же импульс пары p отличен от нуля, то углы между направлениями разлета γ -квантов будут отличаться от 180° на величину θ (в лабораторной системе координат). Диапазон изменения угла θ очень мал (меньше 1°), поэтому углом разлета обычно называют не сам угол, а его отклонение от 180° . Распределение по углам θ называют угловым распределением аннигиляционных фотонов. Если импульс пары $p \ll m_0c$, то угол θ определяется соотношением

$$\theta = p_{\perp}/m_0c. \quad (1)$$

Таким образом, измерение скорости счета совпадений γ -квантов при 2γ -аннигиляции в зависимости от угла θ (отклонение угла разлета γ -квантов от 180°) позволяет определить импульс e^+e^- -пар (или электронов, если импульс позитрона мал по сравнению с импульсом электрона). Методика экспериментов подробно описана в работах [7–10].

Угловое разрешение современных установок достигает 0.3 мрад и менее (при хорошей статистике 10^4 – 10^5 импульсов на точку в максимуме кривой $f(\theta)$). Это позволяет получить детальную структуру корреляционных кривых (см., например, [7, 9]). Спектры угловой корреляции могут содержать узкую и широкую компоненты. Узкая компонента обычно обязана своим происхождением медленным атомам парапозитрония, а широкая – аннигиляции свободных позитронов или ортопозитрония на электронах среды. При аннигиляции полностью термализованных атомов парапозитрония при комнатной температуре отклонение угла двух аннигиляционных γ -квантов от 180° составляет всего $\theta \approx 0.5$ мрад, а для широкой компоненты $\theta \approx 10$ мрад. Экспериментальные спектры хорошо описываются суперпозицией нескольких гауссовских функций, а в случае металлов и элементарных полупроводников добавляется параболическая составляющая. Каждая гауссовская функция описывает определенный канал аннигиляции позитронов и характеризуется интенсивностью (вероятность аннигиляции) и дисперсией, однозначно связанной с энергией аннигилирующей пары.

В качестве объекта исследований были выбраны слои пористого кремния, различающиеся пористостью и химическим составом поверхности нанокристаллов. Монокристаллический кремний, легирован-

¹⁾e-mail: epprokopiev@mail.ru

ный бором, с удельным сопротивлением $0.03 \text{ Ом} \cdot \text{см}$ и ориентацией поверхности $\langle 111 \rangle$ использовали в качестве подложек. Формирование пористого кремния осуществляли анодным растворением в смеси $\text{HF}(48\%):\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ с соотношением компонентов смеси 2:1, 1:1, 1:3 для получения слоев с пористостью 45, 55, 70%, соответственно. Анодную обработку проводили при плотности тока $10 \text{ мА}/\text{см}^2$ при комнатной температуре. Толщина пористого слоя для всех образцов составляла 20 мкм . Часть образцов непосредственно после формирования была обработана в водном растворе $0.1 \text{ г}/\text{л}$ PdCl_2 . Такая обработка приводит к осаждению палладия на поверхности нанокристаллов в виде сплошной пленки толщиной в несколько монослоев [11].

Спектры УРАФ образцов пористого кремния (см. рис.1–3 и таблицу) хорошо аппроксимируются па-

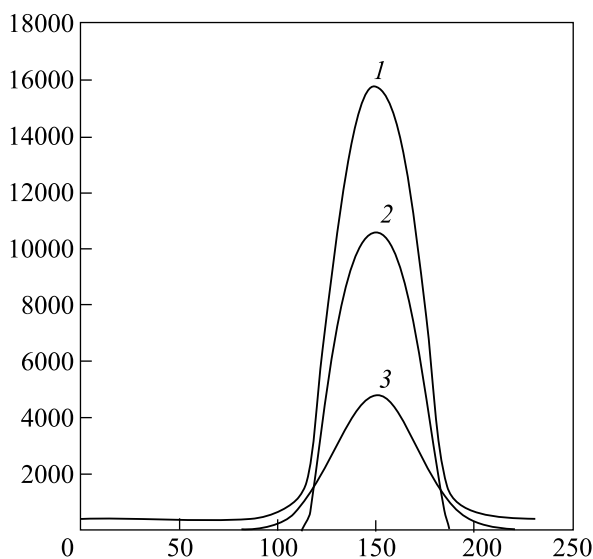


Рис.1. Угловые распределения аннигиляционных фотонов в монокристаллических образцах кремния: Si-монокристаллический, зеркальный, p -тип, ориентация $\langle 111 \rangle$, КДБ – 10, $h = 340 \text{ мкм}$: 1 – экспериментальный спектр УРАФ, включающий фон и сумму параболической и гауссовской компонент, 2, 3 – параболическая и гауссовская компоненты спектра, соответственно. По оси абсцисс отложены каналы анализатора (цена канала 0.2 мрад), по оси ординат – число событий

раболой (I_p) и двумя гауссианами (I_{g1}, I_{g2}) (рис.2). В бездефектных же кристаллах кремния эти спектры (рис.1) представляются суперпозицией параболы и гауссианы. Аннигиляция позитронов, характеризующая параболической компонентой, может быть объяснена аннигиляцией позитронов в валентной зоне кремния [9]. В свою очередь широкая гауссовская компонента I_{g2} обусловлена аннигиляци-

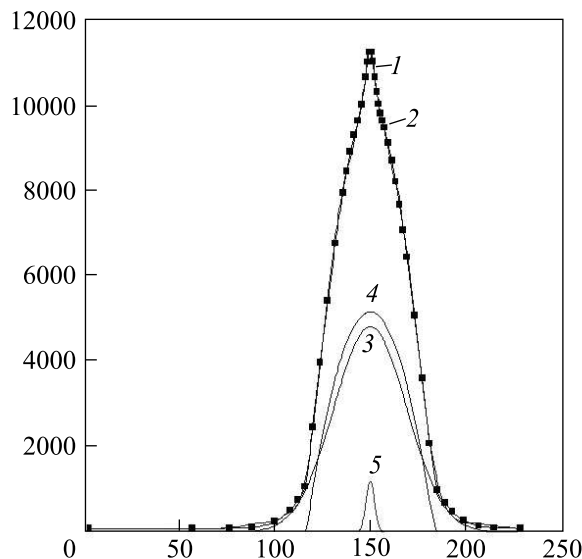


Рис.2. Угловые распределения аннигиляционных фотонов в пористых образцах кремния: Si – пористый; $\langle 111 \rangle$; КДБ – 0.03; $h = 360-370 \text{ мкм}$; $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 2:1$; пористость $45\% \pm 3\%$; (2 гаусса + парабола) (см. таблицу); 1 – суммарный спектр (сумма спектров 3, 4, 5), 2 – экспериментальные точки, 3 – первая гауссовская составляющая спектра, 4 – параболическая составляющая спектра, 5 – вторая гауссовская составляющая спектра, точки – эксперимент. По оси абсцисс отложены каналы анализатора (цена канала 0.2 мрад), по оси ординат – число событий

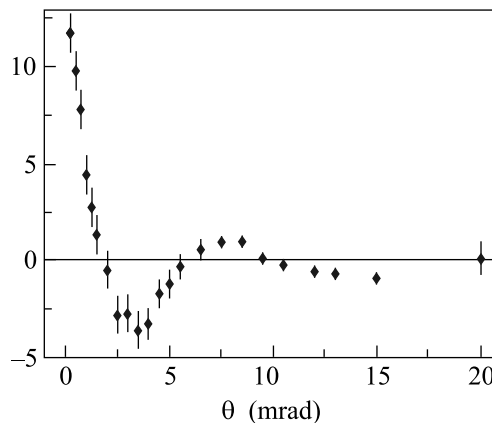


Рис.3. Разностные кривые нормированных на единицу угловых распределений аннигиляционных фотонов в пористых и монокристаллических образцах кремния. Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ – 0.03, $h = 360 \div 370 \text{ мкм}$, $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 2:1$, $J = 20 \text{ мА}/\text{см}^2$. По оси абсцисс отложены углы разлета аннигиляционных фотонов, по оси ординат – число событий

ей позитронов и позитрония по различным каналам в объеме кристалла, объеме и на поверхности пор, а узкая гауссовская компонента I_{g1} – анниги-

Параметры исследуемых образцов пористого кремния, особенности их получения и характеристики спектров УРАФ

| № | Характеристика образца | $I_{g1} = S_{g1}/S_{sum}$ | $I_{g2} = S_{g2}/S_{sum}$ | $I_p = S_p/S_{sum}$ | Примечание |
|------|---|---------------------------|---------------------------|---------------------|-----------------------------------|
| PR86 | Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ-0,03 $h = 20$ мкм, HF:C ₂ H ₅ OH = 2:1, $J = 20$ мА/см ² | 0.015 ± 0.003 | 0.493 ± 0.052 | 0.492 ± 0.044 | Пористость ~ $45\% \pm 3\%$ |
| PR16 | Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ-0,03 $h = 20$ мкм, HF:C ₂ H ₅ OH = 1:1, $J = 10$ мА/см ² , $t = 2400$ с | 0.004 ± 0.001 | 0.504 ± 0.036 | 0.492 ± 0.031 | |
| PR17 | Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ-0,03 $h = 20$ мкм, HF: C ₂ H ₅ OH = 1:1 $J = 10$ мА/см ² , $t = 2400$ с | 0.006 ± 0.003 | 0.492 ± 0.045 | 0.502 ± 0.038 | +10 мин в PdCl |
| PR18 | Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ-0,03 $h = 20$ мкм, HF: C ₂ H ₅ OH = 1:3 $J = 10$ мА/см ² | | 0.325 ± 0.030 | 0.675 ± 0.036 | |
| PR19 | Si-пористый, $\langle 111 \rangle$, КДБ-0,03 $h = 20$ мкм, HF: C ₂ H ₅ OH = 1:3 $J = 10$ мА/см ² | | 0.316 ± 0.031 | 0.684 ± 0.038 | +10 мин в PdCl |

Примечание: Толщина пластин кремния ≈ 360 – 370 мкм, h – толщина пористого слоя кремния, $\langle 111 \rangle$ – их кристаллографическая ориентация, КДБ – 0,03 – марка пластин кремния, легированных бором с удельным сопротивлением $0.03 \text{ Ом} \cdot \text{см}$, $I_g = S_g/S_{sum}$ – интенсивность гауссовской компоненты, а $I_p = S_p/S_{sum}$ – интенсивность параболической компоненты в спектрах УРАФ (S_{sum} – суммарная площадь экспериментального спектра УРАФ, а S_g и S_p – соответственно площади гауссовской и параболической компонент в этом спектре). J – плотность тока.

ляционным распадом парапозитрония в объеме пор. Полуширина этой компоненты составляет величину порядка 0.5 мрад, что соответствует кинетической энергии аннигилирующей позитрон-электронной пары (0.079 ± 0.012) эВ, а ее интенсивность порядка 1.5% . Таким образом, общий выход позитрония в пористом кремнии достигает величины 6% . Аналогичные выводы получаются и из анализа разностных кривых, нормированных на единицу угловых распределений аннигиляционных фотонов в пористых и монокристаллических образцах кремния (рис.3). Эти данные служат прямым экспериментальным доказательством существования медленного квазитермализованного парапозитрония в порах.

Полученные результаты позволяют надеяться, что дальнейшие исследования позволят связать параметры аннигиляционных спектров с размерами пор и их топологией. Авторы благодарят Ю. В. Копаева за полезные обсуждения и ряд замечаний.

1. R. M. de la Cruz and R. Pareja, in: *Positron Annihilation*, Eds. L. Dorikens-Vanpraet, M. Dorikens, D. Segers, Singapore: World Scientific, 1989, p. 702.

2. R. Suzuki, T. Mikado, H. Ohgaki et. al., *Phys. Rev.* **B49**, 17484 (1994).
3. В. П. Шантарович, И. Б. Кевдина, Ю. А. Новиков и др., *Физика твердого тела* **38**, 2686 (1996).
4. Y. Itoh, H. Murakami, and A. Kinoshita, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2789 (1993).
5. Y. Itoh, H. Murakami, and A. Kinoshita, *Hyperfine Interactions.* **84**, 121 (1994).
6. A. P. Knights, G. Kowalski, A. S. Saleh et al., *Appl. Phys.* **78**, 4411 (1995).
7. В. И. Графутин, Е. П. Прокопьев, *Успехи физических наук* **172**, 67 (2002).
8. К. П. Арефьев, С. А. Воробьев, Е. П. Прокопьев, *Позитроника в радиационном материаловедении ионных структур и полупроводников*, М.: Энергоатомиздат, 1983.
9. Е. П. Прокопьев, С. П. Тимошенко, В. И. Графутин и др., *Позитроника ионных кристаллов, полупроводников и металлов*, М.: Ред.-изд. отдел МИЭТ, 1999 (см. также <http://www.prokopep.narod.ru>).
10. В. И. Графутин, Е. П. Прокопьев, С. П. Тимошенко и др., *Химическая физика* **23** № 5, 22 (2004).
11. A. N. Parbukov, V. I. Beklemyshev, V. M. Gontar et al., *Materials Science and Engineering: C15*, Issues 1–2, 121 (20 August 2001).