

ПОЗИТРОН В ДЕФЕКТНЫХ КРИСТАЛЛАХ

А. Д. Мокрушин, И. И. Бардышев

Известно, что дефекты играют важную роль в формировании свойств реального кристалла. Полезную информацию о микроскопических свойствах точечных дефектов кристаллической решетки может дать метод аннигиляции позитронов. Положительный заряд позитрона обуславливает возможность его захвата катионной вакансией с образованием так называемого *A*-центра (модель Брандта [1]). Взаимодействие позитрона с *F*-центром может приводить к образованию позитрониевоподобного связанного состояния в анионной вакансии.

Экспериментальные исследования времени жизни позитронов в дефектных ионных кристаллах показали наличие долгоживущих компонент $\tau_2 \sim 0,5$ нсек и $\tau_3 \sim 1$ нсек, соответствующих аннигиляции позитронов, захваченных катионными вакансиями и *F*-центрами [2 – 6]. При этом интенсивности I_2 и I_3 долгоживущих компонент определяются концентрациями соответствующих дефектов. Присутствие дефектов в кристалле вызывает также сужение кривых угловой корреляции аннигиляционных γ -квантов [7, 8].

Необходимо отметить, что в большинстве работ объектами исследования служили лишь щелочно-галогидные кристаллы, причем относительная концентрация катионных вакансий, косвенно оцениваемая по анни-

гиляционным характеристикам, не превышала 10^{-5} . Между тем для выяснения механизма захвата позитронов важно исследовать кристаллы с заранее известной концентрацией катионных вакансий, которая могла бы изменяться в широких пределах.

В настоящей работе исследовались кристаллы $Fe_{1-x}S$ стехиометрического ($x = 0$, образец 1) и нестехиометрического (образец 2) состава. Образцы готовились "керамическим" способом, описанным в работе [9]. Контроль образцов осуществлялся измерениями спектров ядерного γ -резонанса и диффракции рентгеновских лучей. Спектр ЯГР образца 1 показал простую структуру из шести компонент сверхтонкого расщепления, что указывает на стехиометрический состав образца [10]. Спектр образца 2 обнаружил сложную структуру, являющуюся наложением нескольких секступлетов, что свидетельствует о недостатке ионов железа в кристаллической решетке [10]. Анализ рентгеновских диффрактограмм позволил количественно определить концентрацию катионных вакансий в образце 2, которая оказалась равной $n_v = (2,5 \pm 0,2) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ ($Fe_{0,92}S$).

Время жизни позитронов измерялось по общепринятой методике на установке фирмы "Ortec" с конвертором "время-амплитуда" модели 437-А. Полуширина пика мгновенных совпадений от Co^{60} составляла $0,4 \cdot 10^{-9} \text{ сек}$, логарифмический наклон сторон пика не более $0,7 \cdot 10^{-9} \text{ сек}$. Из экспериментальных спектров вычитался вклад от аннигиляции позитронов в источнике [11]. Измерения времени жизни позитронов проводились при комнатной температуре; результаты даны в таблице.

Образец	$\tau_1, 10^{-9} \text{ сек}$	$\tau_2, 10^{-9} \text{ сек}$	$I_2, \%$	$n_v, \text{ см}^{-3}$	$k, 10^9 \text{ сек}^{-1}$
FeS	$0,22 \pm 0,01$	—	—	$\lesssim 10^{20}$	0
$Fe_{0,92}S$	$0,20 \pm 0,01$	$0,48 \pm 0,04$	12 ± 1	$(2,5 \pm 0,2) 10^{21}$	$0,35 \pm 0,05$

Согласно модели Бранда [4, 5] для скорости захвата позитронов катионными вакансиями имеем:

$$k = n_v \sigma v = I_2 \left(\frac{1}{\tau_1} - \frac{1}{\tau_2} \right), \quad (1)$$

где σ — сечение захвата, v — скорость свободного позитрона в кристалле ($\sim 10^7 \text{ см/сек}$).

Исходя из экспериментальных значений τ_1 , τ_2 , I_2 и n_v , получаем по (1) $\sigma \approx 10^{-20} \text{ см}^2$. Это значение на 5–6 порядков меньше аналогичного сечения в щелочно-галоидных кристаллах [4, 5].

Столь сильное изменение величины сечения позволяет сделать некоторые предположения о механизме захвата позитронов катионными вакансиями. Прежде всего, аналогично процессу захвата носителей тока ловушками в полупроводниках, захват позитронов катионными вакансиями следует рассматривать как безызлучательный переход, поскольку излучательные процессы имеют сечение $\sim 10^{21} \text{ см}^2$ [12]. Сущест-

вуют две основные модели безызлучательных переходов в твердом теле: многофононные переходы [12] и теории каскадного (однофононного) процесса Лэкса [13]. Для многофононного процесса сечение захвата резко уменьшается с увеличением глубины ловушки (энергией связи), что позволяет качественно объяснить различие сечений захвата позитронов в сульфидах железа и щелочно-галогидных кристаллах: в последних эффективный заряд катионной вакансии меньше и ловушки, вообще говоря, должны быть мелкими. Для выяснения механизма захвата позитронов принципиальное значение имели бы измерения температурной зависимости спектров времени жизни позитронов в сульфидах железа нестехиометрического состава. Можно ожидать, что с ростом температуры сечение захвата будет увеличиваться в случае многофононного процесса [12] и, напротив, уменьшаться в случае каскадного процесса [13]. Для излучательных процессов температурная зависимость вовсе отсутствует.

Благодарим В.И.Гольданского и Э.И.Рашбу за полезные обсуждения и Н.И.Безмена за измерение рентгеновских диффрактограмм.

Институт химической физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
25 августа 1972 г.

Литература

- [1] W.Brandt. Positron Annihilation. Academic Press, 1967, p. 178.
- [2] T.L.Williams, H. J. Ache. J. Chem. Phys., 51, 3536, 1969.
- [3] M.Bertolaccini, A.Dupasquier. Phys. Rev., B1, 2896, 1970.
- [4] W.Brandt, H.F.Waung, P.W.Levy. Phys. Rev. Lett., 26, 496, 1971.
- [5] C.S.Tumosa, J. B. Nicholas, H. J. Ache. J. Phys. Chem., 75, 2030, 1971.
- [6] A.Dupasquier. Lett. Nuovo Cim., 4, 13, 1970.
- [7] W.Brandt, G.Coussot, R.Paulin. Phys. Lett., 35A, 175, 1971.
- [8] D.Herlach, F.Heinrich. Phys. Lett., 31A, 47, 1970.
- [9] L.M.Levinson, D.Treves. J. Phys. Chem. Solids, 29, 2227, 1968.
- [10] S.Hafner, M.Kalvius. Zeitschrift für Kristallographie, 123, 443, 1966.
- [11] M.Bertolaccini, L.Zappa. Nuovo Cim., 52B, 487, 1967.
- [12] G.Rickayzen. Proc. Roy. Soc., A241, 480, 1957.
- [13] M.Lax. Phys. Rev., 119, 1502, 1960.