

## ПОВЕРХНОСТНАЯ ДИФфуЗИЯ АДсорбированного МОЛЕКУЛЯРНОГО ВОДОРОДА ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

П.П.Луцишин, О.А.Панченко, С.В.Сологуб

Изучена температурная зависимость коэффициента поверхностной диффузии молекулярного водорода, адсорбированного на грани (110) вольфрама при низких температурах. Данные свидетельствуют в пользу туннельного механизма диффузии водорода.

Удачное сочетание малости масс молекул водорода, а также их относительно слабой связи с плотноупакованной гранью (110) монокристалла вольфрама, позволяет предполагать, что обнаруженная ранее поверхностная подвижность адсорбированного водорода при низких температурах обусловлена процессами квантовой диффузии<sup>1</sup>. Настоящая работа посвящена определению коэффициента поверхностной диффузии  $D$  водорода в зависимости от температуры образца, а также степени совершенства поверхности кристалла вольфрама.

Данные о подвижности получены в результате изучения кинетики структурных фазовых переходов в адсорбированных слоях. Исследования проводились методом статического скин-эффекта<sup>2,3</sup>. В основе метода лежит влияние адсорбции на характеристики поверхностного рассеяния электронов проводимости в металлах<sup>4,5</sup>.

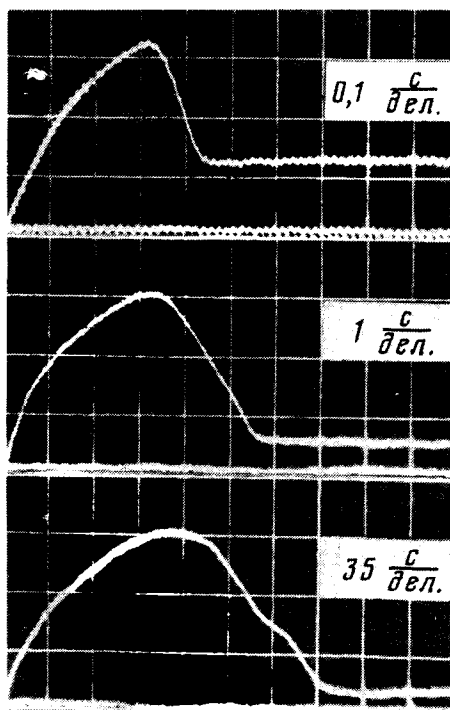


Рис. 1. Изменения магнитосопротивления тонкой пластины вольфрама в зависимости от времени экспозиции в атмосфере водорода. Нижней осциллограмме соответствует давление  $p \sim 10^{-6}$ , средней  $\sim 10^{-5}$  и верхней  $\sim 10^{-4}$  мм рт.ст.

Конструкция экспериментального вакуумного прибора, приготовление монокристаллических пластин вольфрама (грань (110), толщина  $\sim 0,1$  мм), а также технология их очистки описаны ранее<sup>5</sup>. Измерения проводились в условиях высокого вакуума ( $p \sim 10^{-10}$  мм рт.ст.) при температуре, близкой к температуре жидкого гелия. Сигнал, пропорциональный сопротив-

лению образца, подавался на вход дифференциального усилителя и записывался осциллографом С8-13. Температура пластины задавалась текущим через образец электрическим током и измерялась дифференциальной термопарой W-Re 5% — W-Re 20%. Постоянное магнитное поле ( $H \sim 10$  кЭ) ориентировалось в плоскости пластины и было перпендикулярно измерительному току.

На рис. 1 приведены записи изменения магнитосопротивления тонкой пластины вольфрама  $\Delta\rho(t)$  в зависимости от времени экспозиции в атмосфере водорода. Параметром кривых является давление водорода, температура образца равна 8,3 К. Серия осциллограмм имеет почти колоколообразный вид с выходом в насыщение в области, близкой к монослойному покрытию ( $\theta = 1$ ). Как было установлено ранее<sup>1</sup>, перегибу на кривой  $\Delta\rho(t)$ , приведенной в нижней части рисунка, соответствует структурный фазовый переход  $p(2 \times 2) \rightarrow p(2 \times 1)$ . Видно, что постепенное повышение скорости напыления водорода (средняя и верхняя кривые) приводит к стиранию особенности, связанной с образованием фазы  $p(2 \times 1)$  и увеличению высоты плато, характеризующей дефектность последней структуры  $p(1 \times 1)$ . При оценках будем предполагать, что  $D = \langle \Delta x \rangle^2 / \tau$ ,  $\Delta x \sim 3 \cdot 10^{-8}$  см и  $\tau = 0,1t_0$ , где  $t_0$  — минимальное время, необходимое для образования структуры  $p(2 \times 1)$ <sup>1,6</sup>. Результаты оценок, полученных при различных температурах, приведены на рис. 2. Как видно, аномальная температурная зависимость коэффициента диффузии  $D(T)$  указывает на механизм резонансного туннелирования молекул<sup>7,8</sup>.

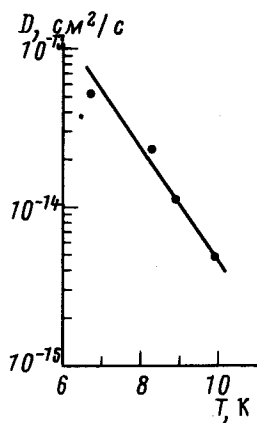


Рис. 2. Температурная зависимость коэффициента поверхностной диффузии водорода

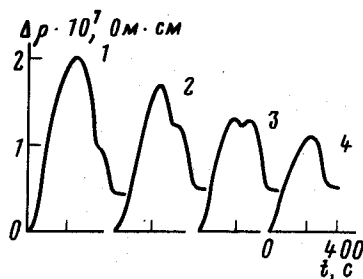


Рис. 3. Зависимости  $\Delta\rho(t)$  для различных концентраций поверхностных дефектов. Кривой 1 соответствует максимально чистой поверхности кристалла. Кривые 2, 3, 4 получены после предварительного напыления 0,03; 0,12; 0,30 монослоя кислорода

Согласно<sup>8</sup>, вблизи статических дефектов, неизбежно присутствующих на поверхности, могут нарушаться условия резонансного туннелирования, в результате, при больших концентрациях дефектов, возникает полная локализация частиц. Данные, свидетельствующие в пользу подобного механизма, приведены на рис. 3. Дефектность поверхности достигалась в результате напыления небольших порций кислорода. Первой кривой  $\Delta\rho(t)$  соответствует максимально чистая для нашей технологии поверхность; для последующих записей  $\Delta\rho(t)$  — концентрация примеси возрастала: 2 — 0,03; 3 — 0,12; 4 — 0,30  $\theta = 1$  в монослой кислорода). Давление водорода при записи было  $p \sim 10^{-6}$  мм рт. ст., температура кристалла  $T = 8,3$  К. Видно, что кривые 1 и 2 уже существенно различаются, несмотря на то, что среднее расстояние между атомами кислорода составляет  $\sim 15$  Å. Для среднего расстояния в  $\sim 7$  Å (кривая 3) достигается почти полная локализация, которая препятствует развитию "зеркальной" в смысле отражения электронов фазы  $p(2 \times 1)$ . Дальнейшее увеличение примеси приводит к образованию бесструктурной пленки водорода в области субмонослойных покрытий, сохраняющей, однако, структуру  $p(1 \times 1)$  при  $\theta \rightarrow 1$ .

В заключение отметим, что дальнейшее подробное изучение температурной и изотопической зависимости  $D$  позволит, по-видимому, окончательно решить вопрос о природе диффузии молекулярного водорода.

♥ Мы благодарны Р.Ш.Насырову за предоставление образцов чистого вольфрама.

#### Литература

1. Луцишин П.П., Панченко О.А., Сологуб С.В. Письма в ЖЭТФ, 1985, 41, 31.
2. Песчанский В.Г., Азбель М.Я. ЖЭТФ, 1968, 55, 1980.
3. Луцишин П.П., Панченко О.А., Харламов А.А. ЖЭТФ, 1873, 64, 2148.
4. Андреев А.Ф. УФН, 1971, 105, 113.
5. Луцишин П.П., Находкин Т.Н., Панченко О.А., Птушинский Ю.Г. ЖЭТФ, 1982, 82, 1306.
6. Doyen G., Ertl G. J. Chem. Phys., 1975, 62, 2957.
7. Андреев А.Ф. УФН, 1976, 118, 251.
8. Каган Ю., Максимов Л.А. ЖЭТФ, 1984, 87, 348.

Институт физики  
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию  
17 июля 1985 г.