

## ДВИЖЕНИЕ ОТРИЦАТЕЛЬНЫХ ЗАРЯДОВ И ВАКАНСИИ В ПАРАВОДОРОДЕ

А.А.Левченко, Л.П.Межов-Деглин, И.Е.Штинов

*Институт физики твердого тела АН СССР  
142432, Черноголовка Московской обл.*

Поступила в редакцию 18 июля 1991 г.

Коэффициент диффузии отрицательных зарядов  $D_-$  в кристаллах ГПУ  $p\text{-H}_2$  в интервале температур 13,6–5,8 К монотонно убывает. При  $T > 10$  К величина  $D_-$  близка к коэффициенту самодиффузии  $D_0$  в области термоактивированного движения молекул, причем характерные энергии активации зарядов  $\Delta_-$  и молекул  $\Delta_0$  почти вдвое выше известной энергии образования вакансий  $E_v$ . Ниже 8 К величина  $\Delta_-$  практически совпадает с  $E_v$ . Это подтверждает предположение <sup>1</sup> о том, что движение отрицательных зарядов в  $p\text{-H}_2$  контролируется вакансионным механизмом, и предположение теории <sup>3</sup>, о том, что с понижением температуры механизм диффузии вакансий изменяется от классического термоактивированного к квантовому туннелированию.

В твердом параводороде, как показали наши эксперименты <sup>1</sup>, при температурах выше 10 К коэффициент диффузии отрицательных зарядов  $D_-$  близок к коэффициенту диффузии ортомолекул  $D_0$  <sup>2</sup>. При этом характерные энергии активации зарядов  $\Delta_-$  и молекул  $\Delta_0$  примерно вдвое выше известной из литературы <sup>3</sup> энергии образования вакансий  $E_v$ , т.е. в обоих случаях основную роль играет классический вакансионный механизм термоактивированной диффузии: для обмена местами между молекулой и оказавшейся в соседнем узле кристаллической решетки вакансией необходимо преодолеть потенциальный барьер высотой  $E_b$ , величина которого сравнима с энергией образования вакансий.

Ниже 10 К в некоторых из исследованных в <sup>1</sup> образцов температурная зависимость  $D_-(T)$  в координатах  $\log D_- = f(1/T)$  отклонялась от прямой  $D_- \sim \exp(-\Delta/T)$ . Это могло быть связано либо с изменением свойств вакансий, либо со сменой преобладающего механизма диффузии зарядов. Однако исследовать поведение  $D_-(T)$  в широком интервале температур ниже 10 К ранее не удавалось из-за экспоненциального возрастания времени прихода фронта заряженных частиц на коллектор с понижением температуры и сильного захвата движущихся зарядов дефектами в объеме образца.

Усовершенствование методики экспериментов <sup>1</sup> позволило расширить диапазон измерений времени пролета до  $4 \cdot 10^4$  с. Для уменьшения влияния захваченного объемного заряда на время прихода фронта заряженных частиц, движущихся от источника зарядов к коллектору, перед каждым измерением при  $T < 10$  К проводился высокотемпературный отжиг образца при заземленных электродах. Это позволило нам изучить зависимость  $D_-(T)$  в широком интервале температур от тройной точки до 5,8 К. Отметим, что диапазон измерений коэффициента диффузии положительных зарядов  $D_+$  был ограничен 9 К, так как в кристаллах  $p\text{H}_2$  величина  $D_+$  существенно меньше  $D_-$ .

Температурная зависимость коэффициента диффузии отрицательных зарядов в одном из лучших образцов (образец 91 выращен при давлении 1,5 атм из жидкого параводорода) показана на рисунке. Погрешность измерений  $D_-(T)$  не превышает размеров точек. Следует отметить, что от образца к образцу

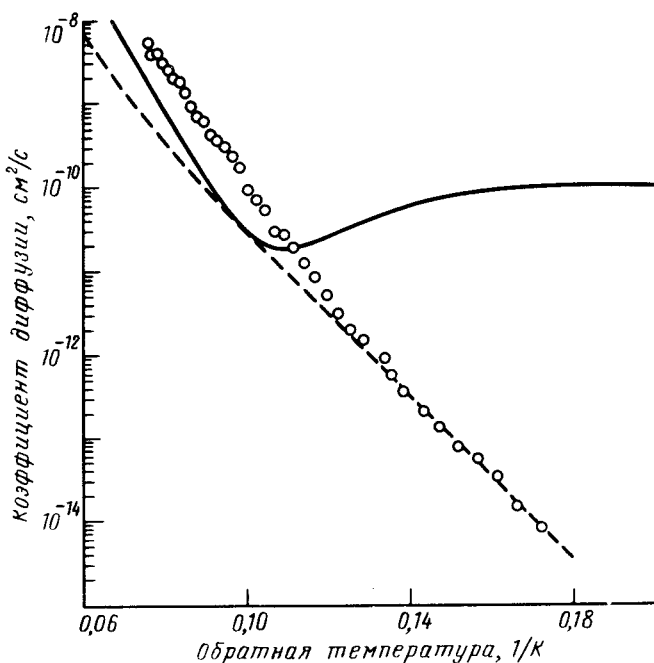


Рис. 1. Зависимость коэффициента диффузии дефектов от обратной температуры. Отрицательные заряды - кружки (образец 91). Пунктирная кривая - теоретическая зависимость коэффициента диффузии молекул, взаимодействующих с вакансиями<sup>3</sup>. Сплошная кривая - экспериментальная зависимость коэффициента диффузии молекул HD в  $p\text{-H}_2$ , построенная по данным<sup>5</sup>

наклоны кривых  $D_-(T)$  могут отличаться<sup>1</sup>. Одна из причин этого очевидна - анизотропия свойств ГПУ кристаллов. Дополнительная анизотропия в случае движения заряженного дефекта может быть обусловлена различиями в симметрии заряда и окружающей его кристаллической решетки<sup>4</sup>. В недостаточно совершенных образцах измеряемое в эксперименте время пролета может возрастать из-за накопления захваченных зарядов в объеме, что скажется в занижении значений  $D_-$  по сравнению с совершенным образцом. Поэтому в данной статье мы ограничиваемся обсуждением зависимости  $D_-(T)$  в лучшем из образцов с наибольшей подвижностью отрицательных зарядов при низких температурах.

Сплошная кривая - температурная зависимость коэффициента диффузии  $D_i(T)$  примесных молекул HD в образцах параводорода, рассчитанная нами по приведенной в работе<sup>5</sup> кривой, описывающей время продольной релаксации молекул HD. Видно, что выше 10 К величины  $D_-$  и  $D_i$  близки. Ниже 10 К температурные зависимости  $D_-(T)$  и  $D_i(T)$  коренным образом различаются. Как указано в<sup>5</sup> отклонение  $D_i$  с понижением температуры от активационной зависимости может быть объяснено сменой механизма диффузии молекул HD: переходом от классической термоактивированной диффузии (обмену местами между молекулами и вакансиями) к квантовой подбарьерной диффузии молекул HD в кристалле.

Пунктирная кривая изображает предсказываемую теорией<sup>3</sup> зависимость коэффициента самодиффузии от  $1/T$ , рассчитанную в предположении, что перемещение молекул контролируется вакансиями, с учетом вкладов как классической термоактивированной диффузии так и процессов квантового туннелирования вакансий. Видно, что ниже 8 К эта кривая практически нала-

гается на экспериментальную зависимость  $D_-(T)$ .

Естественно предположить поэтому, что во всем интервале температур 13,6 - 5,8 К движение зарядов контролируется их взаимодействием с вакансиями, т.е. зависимость  $D_-(T)$  может быть описана выражением типа  $D_- = D_c \exp[-(E_v + E_b)/T] + D_q \exp[-E_v/T]$ , которое использовалось в работах <sup>3</sup> и <sup>5</sup> для описания вакансионной диффузии молекул в твердом водороде. Найденные расчетом значения параметров приведены в таблице. Здесь же показаны взятые из работ <sup>3,5</sup> значения энергии активации молекул в области термоактивированной диффузии и энергии рождения вакансии  $E_v$ , а также значения предэкспоненциальных множителей  $D_c$  и  $D_q$ , соответствующих классическому термоактивированному движению и квантовому туннелированию вакансий.

ссылка	$D_c$ $10^{-3} \text{см}^2/\text{с}$	$E_v + E_b$ К	$D_q$ $10^{-8} \text{см}^2/\text{с}$	$E_v$ К
данная работа	1,8	$168 \pm 5$	23	$100 \pm 5$
<sup>3</sup>	0,6	197	200	112
<sup>5</sup>	4,9	$198 \pm 6$	9,8	$91 \pm 6$

Как видно из таблицы, значения параметров, описывающих температурную зависимость  $D_-(T)$ , согласуются с теоретическим расчетом <sup>3</sup> и данными ЯМР <sup>5</sup>

Таким образом сравнение результатов измерений коэффициента диффузии отрицательных зарядов с результатами ЯМР измерений <sup>2,5</sup> и теоретическими расчетами свойств вакансий в водороде <sup>3</sup> подтверждает наше предположение о вакансионном механизме движения зарядов в кристаллах  $p\text{-H}_2$  и предположение теории о том, что при низких температурах (по нашим данным ниже 8 К) основной механизм диффузии вакансий - подбарьерное квантовое туннелирование.

Авторы благодарны Голову А.И. за полезные дискуссии и Хлопинскому В.Н. за помощь в подготовке экспериментов.

1. Левченко А.А., Межов-Деглин Л.П. ЖЭТФ, 1990, 98, 349.
2. Свойства конденсированных фаз водорода и кислорода, Справочник, Наукова Думка, Киев, 1984.
3. Ebner C., Sung C.C. Phys. Rev., 1972, B5, 2625.
4. Андреев А.Ф., Савищев А.Д. ЖЭТФ, 1989, 96, 1109.
5. Zhou D., Rall M., Brison J.P., Sullivan N.S. Phys. Rev. B, 1990, 42, 1929.