

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ КВАНТОВОЙ ДИФФУЗИИ АТОМОВ Н В ТВЕРДОМ Н₂ В ОБЛАСТИ 1,35 К ≤ T ≤ 4,2 К

*А.В.Ивлиев, А.Я.Катунин, И.И.Лукашевич,
В.В.Скляревский, В.В.Сураев, В.В.Филиппов,
Н.И.Филиппов, В.А.Шевцов*

Экспериментально определена температурная зависимость квантовой диффузии атомов водорода в твердом Н₂ в области 1,35 К ≤ T ≤ 4,2 К. Найдено, что коэффициент диффузии линейно зависит от температуры, что свидетельствует о наблюдении нового типа квантовой диффузии при наличии большого сбоя уровней.

Процесс рекомбинации атомов водорода в твердом Н₂ идет через две последовательные стадии: диффузионное сближение атомов и рекомбинация. Стадия диффузии гораздо медленнее стадии рекомбинации, поэтому температурная зависимость константы скорости рекомбинации $K(T)$ аналогична температурной зависимости коэффициента диффузии $D(T)$.

Зависимость $K(T)$ для атомов Н в Н₂ была впервые исследована в работе¹ методом ЭПР трехсантиметрового диапазона ($B \cong 0,3$ Тл). Было показано, что при $T \gtrsim 4,7$ К $K(T) \sim \exp(-E_a/T)$, где $E_a = 107 \pm 10$ К. Такую зависимость естественно связать с классической диффузией с энергией активации E_a . Было найдено, что при $T \lesssim 4,2$ К зависимость $K(T)$ имеет совершенно другой характер, которому отвечает очень слабое падение K с уменьшением T . Такая зависимость в области рассматриваемых (низких) температур может быть обусловлена только процессами квантовой диффузии. Однако важный для понимания природы явления закон температурного изменения K не был установлен.

В настоящей работе было предпринято количественное исследование зависимости $K(T)$ на установке того же типа, что и в работе ¹, но с использованием ЭПР спектрометра на длине волны 2 мм.

Эксперименты проводились в поле 5,1 Тл. В таком магнитном поле атомы Н имеют значительную степень поляризации по электронному спину (порядка 0,99 при $T \cong 1,35$ К), поэтому прежде всего было необходимо определить зависимость K от магнитного поля. Однако, оказалось, что скорость рекомбинации атомов Н в твердом Н₂ не зависит от поля для полей по крайней мере до 5,1 Тл и температур выше 1,35 К. Это позволяет при анализе результатов не учитывать влияние магнитного поля на характер диффузии и рекомбинации.

Постановка экспериментов была аналогична ¹ и вкратце сводится к следующему. Смесь атомов и молекул водорода, образованная в ВЧ разряде, конденсировалась на холодной подложке (сапфир при $T \sim 1,5$ К), находящейся внутри рабочего резонатора ЭПР спектрометра. После создания образца проводились измерения амплитуды сигнала ЭПР, $A(t)$, атомов Н в образце в зависимости от времени. При этом начальная концентрация атомов в образцах была примерно такая же, как в работе ¹ ($10^{-4} < N_{\text{H}}/N_{\text{H}_2} < 10^{-3}$) и в 3–4 раза больше, чем в работах ^{2,3}, благодаря улучшению конструкции диссоциатора и атомпровода. При всех температурах наблюдалась линейная зависимость $1/A$ от t , соответствующая закону рекомбинации второго порядка. С каждым образцом измерения проводились при нескольких температурах и измерялось отношение $K(T)/K(T_0)$. ($T_0 = 4,2$ К для области $1,35 \leq T \leq 4,2$ и $T_0 = 4,7$ К для $4,2 \leq T \leq 5,4$ К).

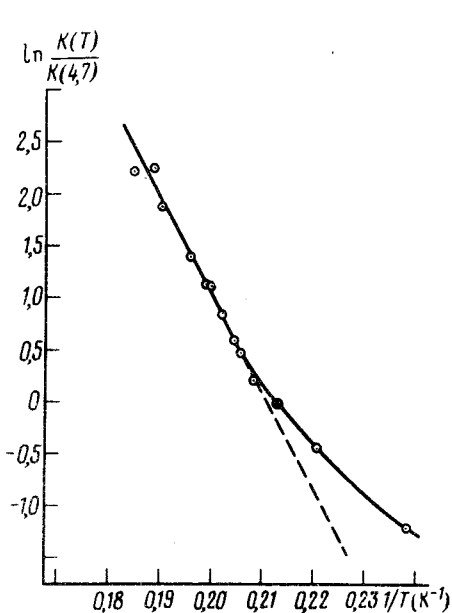


Рис.1. Зависимость $K(T)$ для атомов Н в твердом Н₂ при $4,2 \text{ К} \leq T \leq 5,4 \text{ К}$

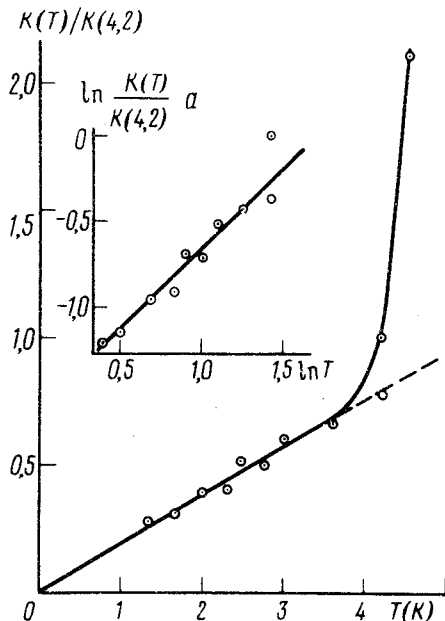


Рис.2. Зависимость $K(T)$ для атомов Н в твердом Н₂ при $1,35 \text{ К} \leq T \leq 4,2 \text{ К}$

Температурная зависимость $K(T)$ ($T \geq 4,2$ К) в координатах $\ln \frac{K(T)}{K(T_0)} / T$ представле-

на на рис.1. Скорость реакции при $T \geq 4,75$ К практически полностью определяется классическим процессом диффузии, поскольку экспериментальная зависимость хорошо описывается выражением $K(T) = K_0 \exp(-E_a/T)$, где энергия активации $E_a = 103 \pm 5$ К, что подтверждает результаты работы ¹.

Температурная зависимость $K(T)$ для области $1,35 \text{ К} \leq T \leq 4,2 \text{ К}$ изображена на рис. 2. На рис. 2, а результаты представлены в координатах $\ln [K(T)/K(4,2)]$, $\ln(T/1\text{К})$ для опре-

деления закона температурной зависимости; отсюда получено, что $K(T) \sim T^{0,98 \pm 0,05}$. На рис.2 те же экспериментальные точки нанесены в линейном масштабе. При $T = 4,2$ К приведено так же значение константы, которое получается при вычитании из экспериментального значения вклада, соответствующего классическому процессу. Это значение ложится на продолжение линейного закона, имеющего место при $T < 4$ К в область $T \cong 4,2$ К, что является подтверждением аддитивности процессов надбарьерной (классической) и подбарьерной (квантовой) диффузии

Обсуждение результатов. В температурном интервале $T \gtrsim 4,75$ К скорость реакции рекомбинации определяется классической диффузией с $E_a = 103 \pm 5$ К. При $1,35$ К $\leq T \leq 4$ К закон $K(T) \sim T^{0,98 \pm 0,05}$ указывает на то, что процессы рекомбинации определяются квантовой диффузией атомарного водорода, причем температурная зависимость коэффициента диффузии очень близка к линейной. Этот результат находится в согласии с выводами теории квантовой диффузии в нерегулярных системах, развитой в работах Ю.Кагана и др. (см. ^{4,5}). Как показано в этих работах, сбой энергетических уровней частиц в эквивалентных ямах в кристаллической матрице приводит к локализации диффундирующих частиц. Диффузия их становится возможной лишь за счет взаимодействия с фононами. При этом возрастание температуры способствует делокализации частиц и коэффициент диффузии растет. Для рекомбинации атомы водорода должны сблизиться на атомные расстояния, что заставляет частицу проходить через зону большого сбоя. В области большого сбоя, как следствие, решающую роль начинают играть однофононные процессы, что обуславливает линейную зависимость от температуры коэффициента диффузии ^{4,5}. Не исключено, что большой сбой уровней может быть связан с большим количеством дефектов в образцах.

Полученные результаты согласуются с развитыми Ю.Каганом и др. представлениями о квантовой диффузии в нерегулярных системах. Линейная зависимость от температуры коэффициента диффузии является доказательством наблюдения нового типа квантовой диффузии при наличии большого сбоя уровней.

Несколько слов о независимости скорости рекомбинации от магнитного поля. Из наших экспериментальных данных (время полураспада концентрации в образцах порядка 10^4 с при концентрации порядка $10^{-4} \div 10^{-3}$) нетрудно оценить время жизни атома в одном положении в матрице, оно порядка 1 – 10 с. Как показано в работах ^{2,3}, время релаксации электронного спина атома водорода при $T \cong 1,3$ К в поле $B \cong 5$ Тл, $\tau_p \sim 10^2$ с, а время деполяризации спина поэтому $\tau_{II} = \tau_p \exp\left(\frac{2\mu B}{T}\right) \sim 1$ с. Таким образом, когда атом находится в каком либо

положении в матрице, его спин может изменять направление, и, если рядом находится другой атом водорода, то они рекомбинируют, т.е. устраняется влияние магнитного поля на скорость реакции. Экспоненциальная зависимость τ_{II} от отношения B/T позволяет надеяться, что при увеличении этого фактора вдвое может наблюдаться влияние магнитного поля на скорость реакции.

В заключение авторы хотели бы выразить искреннюю признательность Н.А.Черноплекову и В.А.Соменкову за постоянную поддержку и внимание к работе, Ю.Кагану и Л.А.Максимову за плодотворные дискуссии при обсуждении результатов.

Литература

1. Катунин А.Я., Лукашевич И.И. и др. Письма в ЖЭТФ, 1981, 34, 375.
2. Катунин А.Я., Лукашевич И.И. и др. Препринт ИАЭ-3569/11, 1982.
3. Katunin A. Ya., Lukashovich I. I. et al Phys. Lett.A, 1982, 87A, 483.
4. Kagan Yu. Defects in Insulating Crystals Proceed of Intern. Conf., Riga, May, 1981, Springer Verlag, Berlin – Heidelberg, New-York.
5. Каган Ю., Максимов Л.А., Прокофьев Н.В. Письма в ЖЭТФ, 1982, 36, 204.

Поступила в редакцию
28 октября 1982 г.