

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

947 / 2-80

3/3-80

P15 - 12904

А.Андреефф, В.С.Евсеев, А.Минкова,
Х.-Г.Ортлепп, В.С.Роганов, В.Н.Рыбаков,
Б.М.Сабилов, В.Д.Фромм

ИССЛЕДОВАНИЕ
ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ СТРУКТУРЫ
МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРОВ
В КРЕМНИИ И ОКИСЛАХ ВАНАДИЯ

1979

P15 - 12904

А.Андреефф, В.С.Евсеев, А.Минкова,
Х.-Г.Ортлепп, В.С.Роганов, В.Н.Рыбаков,
Б.М.Сабиров, В.Д.Фромм

**ИССЛЕДОВАНИЕ
ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ СТРУКТУРЫ
МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРОВ
В КРЕМНИИ И ОКИСЛАХ ВАНАДИЯ**

Андреефф А. и др.

P15 - 12904

Исследование температурной зависимости структуры мю-мезорентгеновских спектров в кремнии и окислах ванадия

С целью исследования влияния макроскопических свойств вещества на процесс атомного захвата отрицательных мюонов измерены спектры мю-мезорентгеновского излучения из кремния при температурах 77°K и 295°K , $\text{VO}_2/295^\circ\text{K}$ и 355°K и $\text{V}_2\text{O}_3/77^\circ\text{K}$ и 295°K с помощью Ge(Li) спектрометра 55 см^3 в режиме он-лайн. В результате показано, что ни изменение проводимости во всех трех мишенях, ни перестройка кристаллической структуры окислов ванадия при фазовых переходах не вызывают изменений в структуре мезорентгеновских спектров. Полученные результаты обсуждаются с привлечением понятия "временная яма".

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Andreeff A. et al.

P15 - 12904

Investigation of Temperature Dependence of Muonic X-Ray Spectra Structure in Silicon and Vanadium Oxides

To study the influence of matter macroscopic properties on the negative muon atomic capture the muonic X-ray spectra have been measured from silicon at 77°K and 295°K , from VO_2 at 295°K and 355°K , and from V_2O_3 at 77°K and 295°K using a Ge(Li) spectrometer 55 см^3 in volume and "on-line" technique. It is shown that neither changes of a conductivity in all targets, nor a rebuilding of both vanadium oxides crystal structure at phase transition does not cause any alteration in muonic X-ray spectrum. The obtained results are discussed in terms of a "time pit".

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

Структура мезорентгеновских спектров в зависимости от особенностей химической связи исследуемого атома изучалась в последние годы во многих работах ^{/1-7/}, авторы которых обнаружили ряд закономерностей этого явления и предложили новые подходы к его интерпретации. Однако значительно меньше проведено исследований зависимости структуры X_{μ} от физических свойств и состояния вещества ^{/8,9/}. Такие работы необходимы и для выявления физических параметров, определяющих в конечном счете химические эффекты в структуре X_{μ} , и для поисков новых физических факторов, влияющих на эту структуру.

Целью настоящей работы были поиски влияния температуры на структуру X_{μ} в кремнии и окислах ванадия для проверки и развития представлений, предложенных ранее в работе ^{/7/}, где рассмотрена новая гипотеза для объяснения химических эффектов в структуре X_{μ} .

Согласно этой гипотезе, ближайшее окружение мезоатома может влиять на интенсивность линий вблизи границы K-, L-серий в тот момент, когда мюон находится на уровне, характеризуемом минимальной шириной. Мюон, опускаясь с верхних уровней, задерживается на нем вследствие того, что вероятность Оже-переходов с этого уровня уже мала, а вероятность радиационных переходов - еще мала ^{/''временная яма''/}.

В зависимости от того, какое количество электронов может черпать из окружающей среды мезоатом для прохождения Оже-части каскада, радиационная часть каскада начнется с разных уровней, что приведет к изменению интенсивности линий вблизи верхней границы серий.

На основе этой гипотезы объяснены ^{/7/} многие закономерности, выявленные при экспериментальном изучении химических эффектов в X_{μ} .

В настоящей работе изучались два вопроса:

1. Влияют ли электроны проводимости кремния на структуру X_{μ} ? Меняя температуру мишени, можно в широких пределах /в 10 раз/ изменять плотность электронов проводимости.

2. Влияют ли на структуру X_{μ} фазовые переходы в окислах ванадия VO_2 и V_2O_3 ? В указанных окислах при некоторой критической температуре T_K происходит фазовый переход первого рода, причем при $T < T_K$ окислы ведут себя как полупроводники, а при $T > T_K$ - как металлы^{/10-15/}. При переходе через критическую точку электропроводность меняется в 10^2 раз для VO_2 и в 10^6 раз для V_2O_3 . При фазовом переходе происходит также изменение кристаллической решетки: VO_2 при $T_K \geq 345^\circ K$ переходит из состояния решетки с моноклинной структурой в состояние с объемно-центрированной решеткой, а V_2O_3 при $T_K \geq 150^\circ K$ переходит от симметри ромбоэдра в моноклинную форму.

Измерения проводились на чистом мюонном пучке синхротрона Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. Расположение аппаратуры было таким же как в работе^{/16/}. Мезорентгеновское излучение регистрировалось $Ge(Li)$ -детектором объемом 55 см^3 с энергетическим разрешением $2,5 \text{ кэВ}$ на линии ^{60}Co $/E_{\gamma} = 1332,5 \text{ кэВ}/$. Все мишени имели площадь $8 \times 8 \text{ см}^2$ и толщину /по пучку и по направлению на детектор/ такую, чтобы поправки на поглощение X_{μ} в каждой мишени не превышали $1 \div 2\%$.

Измерения проводились в режиме он-лайн^{/16/} на ЭВМ HP-2116C с помощью программы STORE^{/17/}. Площади полученных в эксперименте пиков в спектрах X_{μ} определялись с помощью программы SAMPO^{/18/} на ЭВМ CDC-6500 методом фитирования экспериментальных пиков к гауссовскому распределению /с учетом экспоненциальных "хвостов" на краях линии/. Результаты экспериментов удобно представлять в виде отношения R площадей пиков, соответствующих одним и тем же переходам при двух температурах. В этом случае нет необходимости учитывать ошибку эффективности детектора.

Мишень из кремния в виде порошка была помещена в пенопластовую коробку; измерения проводились при температурах $77^\circ K$ и $295^\circ K$. Используемая в качестве мишени трехокись ванадия была промышленного изготовления, а двуокись ванадия была приготовлена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ в результате спекания смеси V_2O_3 и V_2O_5 при температуре $1020-1070^\circ K$ в эвакуированной кварцевой ампуле в течение $40-50$ часов^{/19/}. Проведенный рентгено-структурный анализ подтвердил образование соединения VO_2 . Вес мишеней VO_2 и V_2O_3 составлял соответственно 210 и 240 г. Измерения мезорентгеновских спектров излучения из VO_2 производились при температурах $295^\circ K$ и $355^\circ K$, а из V_2O_3 - при $77^\circ K$ и $295^\circ K$.

На рисунке показаны результаты экспериментов - отношение R относительных интенсивностей $I_{отн.}$ линий мю-мезорент-

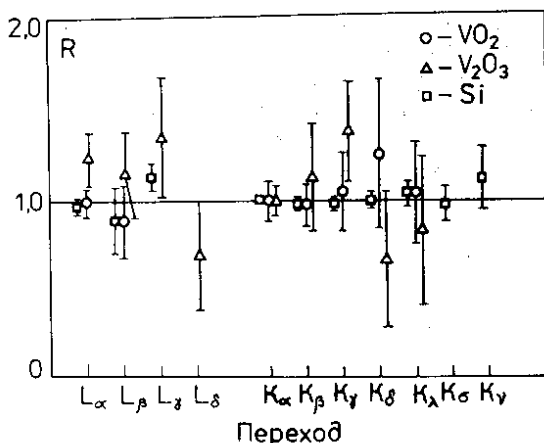
геновских спектров /K- и L-серии/ при двух температурах:

$$\text{для кремния } R = \frac{I_{295^\circ\text{K}}}{I_{177^\circ\text{K}}}$$

для ванадия в окислах VO_2 и V_2O_3

$$R = \frac{I(T > T_K)}{I(T < T_K)}$$

Видно, что в пределах экспериментальных погрешностей во всех трех мишенях не обнаружена температурная зависимость структуры



K- и L-серий мю-мезорентгеновского излучения. Эти результаты находятся в качественном согласии с основными положениями гипотезы, учитывающей конкуренцию Оже- и радиационных переходов вблизи "временной ямы" /7/.

Электроны проводимости в кремнии не могут влиять на скорость прохождения области "временной ямы", поскольку время пребывания мюона на этом уровне, по-видимому, существенно меньше времени релаксации в металлах: $\tau_{\text{рел.}} \approx 10^{-13} - 10^{-14} \text{с}$ /20/ / $\tau_{\text{рел.}}$ определяет скорость попадания электрона проводимости в область положительно заряженного иона/.

То обстоятельство, что в окислах ванадия ни перестройка кристаллической структуры, ни изменение электропроводности /за счет увеличения подвижности электронов проводимости /^{10-15/ не приводят к заметному изменению структуры X_μ , также может быть понято согласно гипотезе, сформулированной в /7/: интенсивность переходов на видимой границе K-, L-... серий должна изменяться лишь при изменении расстояния между исследуемым атомом и его ближайшими соседями по химической связи /чем меньше расстояние, тем больше вероятность Оже-переходов за счет электронов соседних атомов, быстро перемещающихся /^{21/ к атому, захватившему мюон, тем меньше интенсивность линий на видимой границе K-, L-... серий/.}}

Рентгено-структурный анализ показывает, что, например, в VO_2 при переходе через T_K расстояние $d_{\text{V-V}}$ уменьшается на 7,5% /от 2,87 Å до 2,65 Å/, а расстояние $d_{\text{V-O}}$ - на 5,5%. Изменения в $d_{\text{V-V}}$ и $d_{\text{V-O}}$ для V_2O_3 еще меньше /^{10-15/ . Ранее в опытах с легкими элементами /6/ нами для ряда соединений углерода была обнаружена корреляция между}

структурой X_{μ} в углероде и расстоянием d_{C-C} ; из данных этой работы можно определить, что уменьшение расстояния d_{C-C} на 1% приводит к уменьшению интенсивности линии, соответствующей переходу $6p \rightarrow 1s$, примерно на 3%, а для более тяжелых атомов /фосфора, серы/ не более, чем на 1%^{1/6}. Следовательно, согласно механизму "временной ямы"^{1/7}, можно ожидать для перехода $6p \rightarrow 1s$ в ванадии не более 1/5-7% изменения интенсивности при фазовом переходе в VO_2 и V_2O_3 . Полученные нами экспериментальные данные /см. рисунок/ не противоречат такой оценке.

Авторы выражают благодарность А.Н.Иващенко за помощь в проведении рентгеноструктурного анализа полученных образцов VO_2 и В.А.Гошеву за помощь в подготовке и проведении эксперимента.

ЛИТЕРАТУРА

1. Condo G.T. Phys.Rev.Lett., 1974, 33, p.126.
2. Mausner L.F. et al. LBL-5544, 1976.
3. Knight T.D. et al. Phys.Rev., 1976, A13, p.43.
4. Kunselman R. et al. Phys.Rev.Lett., 1976, 36, p.446.
5. Vogel P. et al. Nucl.Phys., 1975, A254, p.445.
6. Андерт К. и др. ОИЯИ, P15-10661, Дубна, 1977.
7. Евсеев В.С. и др. ОИЯИ, P15-10662, Дубна, 1977.
8. Dubler T. et al. Мезоны в веществе. ОИЯИ, Д1,2,14-10908, Дубна, 1977, с.146.
9. Евсеев В.С. и др. Мезоны в веществе. ОИЯИ, Д1,2,14-10908, Дубна, 1977, с.162.
10. Morin F.J. Phys.Rev.Lett., 1956, 3, p.34.
11. Anderson G. Acta Chem.Scand., 1956, 10, p.623.
12. Westman S. Acta Chem. Scand., 1961, 15, p.217.
13. Мирлин Д.Н. Физика твердого тела. 1968, 10, с.3697.
14. Feinleib J., Paul W. Phys.Rev., 1967, 155, p.841.
15. Adler D. et al. Phys.Rev., 1967, 155, p.851.
16. Андерт К. и др. ОИЯИ, P15-10373, Дубна, 1977.
17. Гонусек М., Фромм В.Д. ОИЯИ, 10-10007, Дубна, 1976.
18. Routti J.T. UCRL-19452, 1969.
19. Брауэр Д. Руководство по препаративной неорганической химии. ИИЛ, М., 1956.
20. Уэрт Ч., Томсон Р. Физика твердого тела. ИИЛ, М., 1966.
21. Труды симпозиума "Элементарные процессы в химии высоких энергий". "Наука", М., 1965, с.194; Молин Ю.П. и др. Кинетика и катализ, 1961, 2, с.192.

Рукопись поступила в издательский отдел
5 ноября 1979 года.