УДК 539.124.6

## АНИЗОТРОПИЯ УГЛОВОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АННИГИЛЯЦИОННЫХ ФОТОНОВ В α-Li IO,

# А. Г. ЗАХАРЯНЦ, А. Г. МАЛОЯН, А. Л. ТЕР-МИНАСЯН

Институт физических исследований АН АрмССР

(Поступила в редакцию 15 ноября 1984 г.)

Описан автоматический спектрометр для изучения углового распределения аннигиляционных фотонов, работающий в широком температурном интервале. Получены кривые для монокристалла  $\alpha$ -Li IO<sub>3</sub> при различных его ориентациях, а также для поликристаллического образца. Обнаружен эффекг анизотропии — зависимости полуширины кривых от кристаллографической ориентации образцов. Полученные результаты объясняются анизотропией волновой функции валентных электронов комплекса  $IO_3^-$ .

Исследование углового распределения квантов двухфотонной аннигиляции позитронов в кристаллах дает полезную информацию об импульсном распределении валентных электронов. Эти измерения проводят на спектрометрах, выделяющих пару аннигиляционных квантов, возникающих при попадании позитронов в исследуемые образцы.

Спектрометр углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ), работающий в ИФИ АН АрмССР, описан в [1]. Однако в последнее время он подвергся существенной модернизации, и поэтому нам представляется целесообразным кратко остановиться на внесенных изменениях, а затем привести результаты измерений анизотропии спектров УРАФ, полученных от монокристаллов йодата лития.

### 1. Спектрометр УРАФ.

Спектрометр УРАФ измеряет число совпадений в единицу времени как функцию малого угла вокруг направления 180°. В качестве детекторов гамма-излучения в модернизированном варианте применяются блоки БЛ-6931-20, что позволило увеличить светосилу прибора в 14 раз, а разрешающую способность довести до 0,8 и 0,55 мрад в зависимости от высоты приемных коллимационных щелей.

Коренной перестройке подверглась система источник-образец, что дало возможность проводить измерения как в области высоких (до 1000° C) температур, так и температур жидкого азота. Высокотемпературный или низкотемпературный режимы работы осуществляются путем установки в донной части системы источник-образец нагревательной печи или сосуда Дьюара. Предусмотрено автоматическое поддержание стабильности температуры с точностью  $\pm 0,2^{\circ}$ . С высокой точностью регулируется как расстояние источник-образец, так и в целом их положение относительно оси, проходящей через центры коллимационных щелей детекторов. Поскольку образец и источник позитронов находятся в замкнутом объеме, в целях подавления фона случайных и паразитных совпадений возникла необходимость установки дополнительных коллиматоров вблизи системы источникобразец.

Самое существенное улучшение работы спектрометра УРАФ достигнуто за счет полной автоматизации процесса измерений. Обычно измерения спектров УРАФ требуют длительной экспозиции из-за малого счета по каналам дискриминации. Кроме того, важна воспроизводимость результатов измерений при многократном повторении суммирующихся серий. Автоматизация позволяет существенно уменьшить сроки измерений, так как они становятся круглосуточными.

Система автоматики осуществляет перевод точки измерения, т. е. изменение положения подвижного детектора, запись информации с пересчетного прибора Ф-5007, сброс на нуль и его последующий пуск. Блок-схема системы автоматики показана на рис. 1. Транскриптор Ф-5033 по оконча-



Рис. 1. Блок-схема системы автоматики.

нии времени измерений на каждом из дискретных значений углов, опре-деляющих положение подвижного детектора относительно направления: 180°, формирует электрический импульс. Этот импульс подается на «стоп» пересчетного устройства Ф-5007 и на базу транзистора Т<sub>1</sub>, работа:ощего в ключевом режиме. На управляющий электрод тиристора T<sub>2</sub> через ключ. подается положительный перепад напряжения, вследствие чего последний. отпираясь, замыкает цепь обмотки реле Р. Конденсатор С. предназначен для устранения паразитных явлений, связанных с переходным процессом в обмотке реле Р. Это реле, срабатывая, замыкает нормально замкнутые. контакты К, и К. В результате замыкания контакта К, включается цепь питания моторов М, которые, вращая зубчатый диск, переводят точку измерения. На диске закреплены небольшие постоянные магниты, которые, проходя мимо геркона Г, при вращении диска размыкают его контакты. В начале движения диска магниты уходят от геркона и контакты его размыкаются, что приводит к приравниванию потенциалов на двух электродах тиристора Т и тиристор запирается. Однако цепь обмотки реле Р, остается замкнутой через контакты геркона Г. При движении диска следующий магнит подходит к геркону, размыкая его контакты и тем самым разрывая цепь питания реле  $P_1$ . Контакты  $K_1$  размыкаются, останавливая моторы, а контакты  $K_2$  и  $K_3$  замыкаются, давая сигналы «сброс» и «старт» пересчетному прибору.

В результате этих операций дается начало очередной точке измерений, а информация с пересчетного прибора Ф-5007 посредством транскриптора и печатающей машинки ЭУМ-23Д записывается на бумажную ленту. Таким образом спектрометр отрабатывает всю последовательность измеряемых точек сверху вниз с заданным на Ф-5033 временем экспозиции.

Система автоматики позволяет многократно повторять весь измеряемый спектр путем блокировки контактов геркона  $\Gamma$  и тиристора, связанного со специальным реле, которое меняет направление движения моторов. Это позволяет безостановочно переводить подвижный рельс из самого нижнего положения в верхнее исходное положение и автоматически начать новую серию измерений. В зависимости от числа магнитов на зубчатом диске можно получать любые значения шага измерений.

Многосуточные измерения показали, что система автоматики работает стабильно и надежно, полностью обеспечивая воспроизводимость измерений. Это обстоятельство вместе с высокой разрешающей способностью спектрометра позволяет изучать детали структуры спектров УРАФ исследуемых образцов.

2. Ориентационные измерения спектров УРАФ монокристаллов α-Li IO<sub>3</sub>.

В последние годы появились работы по исследованию зависимости аннигиляционных характеристик от кристаллографической ориентации кристаллов. В частности, в ряде работ было показано, что кривые УРАФ в ионных кристаллах [2—5] и в полупроводниках [6] проявляют небольшую, но четкую анизотропию, зависящую от ориентации кристалла по отношению к оси, выделенной геометрией спектрометра. Оказалось, что в ионных кристаллах типа NaCl импульсное распределение вдоль направления [110] шире, чем в направлении [100], в то время как направление [111] занимает промежуточное положение. Было показано [7], что этот эффект не связан с анизотропией позитронной волновой функции, поскольку последняя более сжата вдоль [100], чем вдоль [110], что должно было бы обусловить зависимость полуширин кривых УРАФ от ориентации кристалла, противоположную экспериментальным результатам. Герлах и Гейнрих [3] предположили, что наблюдаемый эффект необходимо приписать анизотропии волновых функций внешних электронов анионов.

Мы исследовали зависимость полуширии кривых УРАФ от ориентации в монокристаллах  $\alpha$ -LiIO<sub>3</sub>. Образцы в виде плоско-параллельных пластии с размерами 15×15×2 мм<sup>3</sup> с содержанием неконтролируемых примесей не более 0.01% вырезались в различных плоскостях относительно оси роста кристалла. Измерения спектров УРАФ проводились при комнатной температуре. В околовершинных точках набиралось до 20 000 событий. Все измерения проводились при разрешающей способности спектрометра УРАФ 0,55 мрад, шаг измерений составлял 0,6 мрад, а диапазон измеряемых углов — ± 16,2 мрад. Для образца, вырезанного в плоскости, перпендикулярной к оси роста монокристалла, полуширина кривой УРАФ оказалась равной  $11,40\pm0,6$ мрад. Два других образца были вырезаны в плоскостях, параллельных оси роста: один из них — в плоскости, параллельной одной из боковых граней, другой — в перпендикулярной плоскости. Полуширины кривых УРАФ для этих образцов в пределах погрешности измерений не отличались друг от друга и составляли 10,90±0,06 мрад. Для поликристаллического образца (спрессованный в таблетку порошок) полуширина кривой УРАФ оказалась равной 11,10±0,06 мрад. Все кривые имели близкую форму, но различались по полуширине. Вид спектра УРАФ для образца, вырезанного перпендикулярно к оси роста кристалла, после вычитания фона и введения поправки на положение подвижного детектора приведен на рис. 2.

Рыс. 2. Экспериментальный спектр УРАФ в *cz-Li IO*<sub>3</sub>: по оси ординат число совпадений в единицу времени N; но оси абсцисс — вертикальные углы  $\theta$ .



Ориентационные измерения спектров УРАФ в  $\alpha$ -Li IO, показали, что кривые шире для среза, перпендикулярного к оси роста монокристалла, а кривая для поликристаллического образца, как и ожидалось, имеет промежуточное значение полуширины. Наблюдаемое различие полуширин кривых УРАФ, на наш взгляд, должно быть обусловлено аннигиляцией на группе электронов комплекса  $IC_3^-$ , имеющих анизотропную волновую функцию, вытянутую вдоль оси роста кристалла.

Как известно [8], в ионных кристаллах типа щелочно-галоидных, термализованные позитроны аннигилируют, как правило, с внешними электронами анионов. В монокристаллах  $\alpha$ -Li IO, имеются квазимолекулярные комплексы  $IO_3^-$  и разумно допустить, что позитроны аннигилируют с внешними электронами этого комплекса. Нами выполнен расчет структуры электронных состояний комплекса. Нами выполнен расчет структуры в виде линейной комбинации атомных орбиталей МО ЛКАО. Этим методом в приближении Маликена—Вольсберга—Гельмгольца [9] мы рассчитали энергетические уровни валентных электронов комплекса  $IO_3^-$ , приняв за основу вклады атомных орбиталей 2*s*- и 2*p*-электронов кислорода и 5*s*- и 5*p*-электронов йода.

Не вдаваясь в детали расчета, приведем основные результаты. Были определены уровни энергии 16 состояний для ионов  $IO_3^-$  и соответствующие им волновые функции. Основное состояние  $IO_3^-$  получается при размещении 26 валентных электронов на 13 самых нижних уровнях, которые. можно отнести к трем группам, достаточно отдаленным друг от друга по энергии: первая состоит из трех нижних уровней со средней энергией  $E_1 \simeq$ 

143

 $\simeq$ — 35 вВ; вторая, наиболее многочисленная, состоит из девяти близлежащих уровней с энергией  $E_z \simeq$ — 16,4 вВ; в третьей группе имеется один уровень с энергией  $E_z \simeq$ — 9,66 вВ.

Электроны, расположенные на уровне  $E_1$ , могут быть ответственны за наблюдаемую анизотропию кривых УРАФ в  $\alpha$ -LiIO<sub>2</sub>. Действительно, электроны этой группы имеют наименьшую кинетическую энергию и, следовательно, большую вероятность аннигиляции. В соответствующую молекулярную орбиталь дают подавляющий вклад 5s- и 5p-атомные орбитали йода с вероятностью соответственно 60 и 40% нахождения электронов на них. Именно электронные состояния 5p, имеющие гантелевидную, вытянутую вдоль оси роста кристалла форму, на наш взгляд, главным образом и ответственны за наблюдаемый эффект анизотропии кривых УРАФ в  $\alpha$ -LiIO<sub>3</sub>, составляющий 4,5%.

Авторы признательны А. К. Петросяну за помощь при выполнении расчета структуры электронных состояний комплекса IO<sub>3</sub>.

#### **ЛИТЕРАТУРА**

- 1. Еганян И. Л. и др. Изв. АН АрмССР, Физика, 11, 66 (1976).
- 2. Rozenfeld B., Swiatkowski W., Weselowski J. Acta Phys. Pol., 29, 429 (1966).
- 3. Herlach D., Hainrich F. Helv. Phys. Acta., 42, 601 (1969).
- 4. Arefev K. P., Vorobev S. A. Kristall und Technik, 7, 841 (1972).
- 5. Ramasamy P., Nagarajan T. Physica, C+B81, 305 (1976).
- 6. Арсфьев К. П. н др. Изв. вузов, Физика, 7, 153 (1978).
- 7. Nieminen R. J. Phys., C8, 2077 (1975).
- Ed. Hautojarot P. Positrons in Solids. Topics in Current Physics, 12, Springer-Verlag, Heidelberg, 1978.
- 9. Wolfsberg M., Helmholz L. J. J. Chem. Phys., 20, 837 (1952).

## ԱՆԻՀԻԼՅԱՑԻՈՆ ՖՈՏՈՆՆԵՐԻ ԱՆԿՅՈՒՆԱՅԻՆ ԲԱՇԽՎԱԾՈՒԹՅԱՆ ԱՆԻԶՈՏՐՈՊԻԱՆ a-LilO,-ում

U. 9. QUPUPBULS, U. 2. VULASUL, U. L. SEP-VELUBUL

նկարագրված է ջերմաստիճանային լայն տիրույթում աշխատող անիքիլյացիոն ֆոտոններիանկյունային բաշխվածության ուսումնասիրման ավտոմատ սպեկտրոմետրը a-LtIO3 միաթյու-րեղի տարրեր օրիննտացիաների և բազմաթյուրեղային նմուշի քամար ստացված են կորեր։ Նկատվել է անկղոտրոպության էֆեկտ՝ կորերի կիսալայնության կախվածությունը նմուշի թյուբեղագիտական առանցջներից։ Ստացված արդյունջները բացատրված են 103 կոմպլերսի վալենտային էլեկտրոնների ֆունկցիաների անկպոտրոպիայով։

## THE ANISOTROPY OF ANGULAR DISTRIBUTION ON ANNIHILATION PHOTONS IN a-LiIO,

#### A. G. ZAKHARYANTS, A. G. MALOYAN, A. L. TER-MINASYAN

An automatic spectrometer for measuring the angular distribution of annihilation photons in wide temperature range is described. The curves were plotted for different orientations of  $\alpha$ -LiIO<sub>3</sub> single crystals as well as for a polycrystalline sample. The anisotropy effect, the dependence of the half maximum of curves on the crystal orientation, was found. The obtained results are explained as due to the anisotropy of the wave function of valence electrons of the  $IO_3^-$  complex.