

Об анизотропном магнитном тушении позитрониевых состояний в ориентированных кристаллах

© И.В. Бондарев

Научно-исследовательский институт ядерных проблем Белорусского государственного университета,
220050 Минск, Белоруссия

E-mail: bond@inp.minsk.by

(Поступила в Редакцию 7 июля 1998 г.)

Выполнен теоретический анализ явления анизотропии магнитного тушения позитрониевых состояний в ориентированных относительно направления внешнего магнитного поля некубических кристаллах. Показано, что начальная поляризация позитронов усиливает анизотропию магнитного тушения позитрония и понижает величину магнитного поля, в котором анизотропия максимальна. Получены численные оценки величины экспериментально наблюдаемого эффекта для квазипозитрония в монокристалле кристаллического кварца и позитрониевого комплекса в монокристалле нафталина.

Образование позитрония (Ps) — связанной системы электрона и позитрона — в большинстве кристаллических диэлектриков является в настоящее время хорошо установленным экспериментальным фактом [1]. Атом Ps в чистых или почти чистых монокристаллах неорганических диэлектриков обладает рядом новых свойств (за что получил название квазипозитроний [1]), резко отличающих его от сравнительно хорошо изученного Ps в вакууме. Например, эффективная масса квази-Ps зависит от типа кристалла и в 1.5-2 раза превышает удвоенную массу свободного электрона [2–4]. Сверхтонкое расщепление его спиновых уровней сохраняет свою сферическую симметрию, но несколько уменьшается по сравнению с вакуумным значением [1]. Поэтому атом Ps в неорганических диэлектриках наряду с квази-Ps называют еще "нормальным" Ps, в противоположность "аномальному" атому Ps, обнаруженному в кристаллических полимерах [5,6]. Принято считать [7], что аномальный Ps представляет собой своеобразный позитрониевый комплекс, где электрон и позитрон связаны сверхтонкой связью не только между собой, но и с окружающими их ядрами вещества. Сверхтонкое расщепление спиновых уровней аномального Ps является полностью анизотропным и описывается симметричным тензором второго ранга, продольная и поперечная компоненты которого сильно отличаются друг от друга [5–7].

Анизотропные сверхтонкие взаимодействия (СТВ) Ps в некубических кристаллах исследовались теоретически в [7–9]. В [9] было показано, что анизотропное сверхтонкое расщепление спиновых уровней свойственно не только позитрониевым комплексам в кристаллических полимерах, но также и квазипозитрониевым состояниям в некубических кристаллах неорганических диэлектриков, в частности в кристаллическом кварце. В последних анизотропия может быть обусловлена наличием у квази-Ps эффективного квадрупольного момента [10]. Эффективное квадрупольное взаимодействие ведет, во-первых, к анизотропному расщеплению сверхтонких энергетических уровней квази-Ps (анизотропная сверхтонкая связь электрона и позитрона) и, во-вторых, к анизотропии его магнитного тушения в кристалле. Величина анизотропии

в обоих случаях пропорциональна эффективной квадрупольной постоянной квази-Ps, а ее ориентационная зависимость определяется относительной ориентацией кристалла (оптическая ось c в кварце) и внешнего магнитного поля [9]. Отметим, что вывод об анизотропии магнитного тушения в равной степени правомерен как для квазипозитрониевых состояний в неорганических диэлектриках с некубической решеткой, так и для позитрониевых комплексов в кристаллических полимерах, поскольку основывается лишь на анизотропной сверхтонкой связи электрона и позитрона, имеющей место в обоих случаях. В данной работе явление анизотропии магнитного тушения позитрониевых состояний исследуется для случая ненулевой начальной поляризации позитронов источника. Такая ситуация легко экспериментально реализуема, поскольку позитроны, являющиеся продуктом β^+ -распада нейтронодефицитных ядер, всегда имеют начальную поляризацию вдоль направления движения $p \sim v/c$ [11], где v — скорость вылета позитронов из источника, c — скорость света в вакууме.

1. Магнитное тушение позитрония в веществе при ненулевой поляризации позитронов источника

Как известно [12], внешнее магнитное поле приводит к частичному снятию вырождения триплетного основного 1^3S_1 -уровня атома Ps: состояния с проекцией полного спина $m = \pm 1$ остаются вырожденными, а энергия состояния с $m = 0$ квадратично по полю возрастает. При этом энергия невырожденного синглетного 1^1S_0 -уровня убывает квадратично по полю. Расщепление триплетного уровня в магнитном поле сопровождается магнитным тушением орто-Ps. Суть явления состоит в том, что магнитное поле смешивает короткоживущее синглетное с долгоживущим ($m = 0$) триплетным состоянием. В результате время жизни смешанного триплетно-синглетного (орто-подобного) Ps уменьшается, т. е. орто-Ps "тушится" магнитным полем, а время жизни смешанного синглетно-триплетного (пара-подобного) Ps соот-

ветственно увеличивается с ростом поля. Экспериментально магнитное тушение Ps проявляется в относительном уменьшении вероятности 3γ -аннигиляции, усилении узкой компоненты в кривых угловой корреляции аннигиляционных γ -квантов (ACAR — Angular Correlation of Annihilation Radiation) и подавлении долгоживущей компоненты временного спектра аннигиляции позитронов [12,13].

Фракции орто-подобного (F_3^0) и пара-подобного (F_1^0) позитрония, образованных поляризованными позитронами во внешнем магнитном поле \mathbf{B} , равны [14]

$$F_3^0(p, B) = \frac{1}{8(1+y^2)} \times \left[(1+y)^2(1-p) + (1-y)^2(1+p) \right], \quad (1)$$

$$F_1^0(p, B) = \frac{1}{8(1+y^2)} \times \left[(1-y)^2(1-p) + (1+y)^2(1+p) \right]. \quad (2)$$

Здесь $y = x/(\sqrt{1+x^2} + 1)$, $x = 4\mu B/\hbar\omega$, μ — магнетон Бора, $\hbar\omega$ — энергия сверхтонкого расщепления Ps в веществе, p — проекция вектора поляризации позитронов на направление внешнего магнитного поля в момент образования Ps. Если далее P_1^0 , P_3^0 , P_3^1 — вероятности обнаружить атом Ps соответственно в синглетном, ($m=0$) и ($m=\pm 1$) триплетном состояниях, то система кинетических уравнений, описывающая изменение населенностей этих состояний с течением времени, имеет вид

$$\frac{dP_1^0}{dt} = -\Lambda'_s P_1^0, \quad \frac{dP_3^0}{dt} = -\Lambda'_t P_3^0, \quad \frac{dP_3^1}{dt} = -\Lambda_t P_3^1, \quad (3)$$

где $\Lambda'_{s,t} = \lambda'_{s,t} + \lambda_p$, $\Lambda_t = \lambda_t + \lambda_p$, λ_p — скорость pickoff-аннигиляции Ps в веществе, $\lambda'_{s,t} = (\lambda_{s,t} + y^2 \lambda_{t,s})/(1+y^2)$ — смешанные магнитным полем скорости аннигиляции пара-подобного (λ'_s) и орто-подобного (λ'_t) Ps [12], $\lambda_{s,t}$ — скорости аннигиляции синглетного и триплетного Ps в веществе в отсутствие внешнего магнитного поля. Начальные условия при $t=0$: $P_1^0(0) = PF_1^0$, $P_3^0(0) = PF_3^0$, $P_3^1(0) = P/2$. Решение системы (3) имеет вид

$$P_1^0(t) = PF_1^0 e^{-\Lambda'_s t},$$

$$P_3^0(t) = PF_3^0 e^{-\Lambda'_t t}, \quad P_3^1(t) = \frac{P}{2} e^{-\Lambda_t t}. \quad (4)$$

Тогда, определяя вероятность 3γ -аннигиляции Ps ($P_{3\gamma}$), интенсивность узкой компоненты ACAR (I_N) и фактор магнитного подавления долгоживущей компоненты временного спектра (R) посредством выражений [13],

$$P_{3\gamma} = \lambda_t \int_0^\infty \left[y^2 P_1^0(t) + (1-y^2) P_3^0(t) + P_3^1(t) \right] dt, \quad (5)$$

$$I_N(p, B) = \lambda_s \int_0^\infty \left[(1-y^2) P_1^0(t) + y^2 P_3^0(t) \right] dt, \quad (6)$$

$$R(p, B) = \left(\int_{t_1}^\infty f(t) dt \right)_B / \left(\int_{t_1}^\infty f(t) dt \right)_{B=0}, \quad (7)$$

где $f(t) = -d(P_1^0(t) + P_3^0(t) + P_3^1(t))/dt$, а t_1 подбирается на эксперименте порядка времени жизни долгоживущей позитрониевой компоненты ($1/\Lambda_t$); для относительного изменения вероятности 3γ -аннигиляции Ps ($w_{3\gamma}$), относительно усиления интенсивности узкой компоненты ACAR (\mathcal{E}) и фактора магнитного подавления долгоживущей компоненты временного спектра (R) получаем

$$w_{3\gamma}(p, B) = \frac{P_{3\gamma}(p, B)}{P_{3\gamma}(0, 0)} = \frac{1}{3} \left(2 + \frac{1-2py}{1+Q} \right), \quad (8)$$

$$\mathcal{E}(p, B) = \frac{I_N(p, B) - I_N(0, 0)}{I_N(0, 0)} = \frac{Q + 2py}{1+Q}, \quad (9)$$

$$R(p, B) = \frac{1}{3} \left(2 + (1-2py)e^{-Q} \right), \quad (10)$$

где $Q = y^2 \lambda_s / \Lambda_t$ — параметр магнитного тушения Ps в веществе [13]. При выводе выражений (8)–(10) использовались стандартные приближения, всегда как правило имеющие место в эксперименте: $\lambda_t \ll \lambda_s$, $\lambda_p \ll \lambda_s$, $t_1 \approx 1/\Lambda_t$, $y^2 \ll 1$. Причем последнее приближение справедливо в достаточно широком диапазоне внешних магнитных полей, поскольку даже в поле 20 kG в вакууме $y^2 \approx 0.043$.

2. Анизотропное усиление узкой компоненты ACAR в кристаллическом кварце

Для квазипозитрония в некубическом кристалле параметр магнитного тушения Q в (8)–(10) должен быть заменен на [9]

$$Q(\vartheta, \varphi) = y^2(\vartheta, \varphi) \frac{\lambda_s}{\Lambda_t}, \quad (11)$$

где $y^2(\vartheta, \varphi) = y^2(1 + d\phi(\vartheta, \varphi)/2\omega\sqrt{1+x^2})$, $\phi(\vartheta, \varphi) = 3 \times \cos^2 \vartheta - 1 + \eta \sin^2 \vartheta \cos 2\varphi$, $d = Q_{Ps} \varphi_{zz}$ — эффективная квадрупольная постоянная квази-Ps в кристалле (Q_{Ps} — эффективный квадрупольный момент Ps, φ_{zz} — zz -компонента тензора градиентов электрических полей (ГЭП) в его центре масс), $\eta = (\varphi_{xx} - \varphi_{yy})/\varphi_{zz}$ — параметр асимметрии тензора ГЭП, ϑ и φ — полярный и азимутальный углы, характеризующие ориентацию вектора \mathbf{B} в системе главных осей тензора ГЭП. Легко видеть, что процесс магнитного тушения Ps становится тогда анизотропным, т.е. зависящим от направления внешнего магнитного поля относительно системы главных осей тензора ГЭП в кристалле.

Поскольку квазипозитроний в кристаллическом кварце делокализован [2,3,15], естественно считать, что в этом случае $\eta = 0$ и тензор ГЭП аксиально симметричен с главной осью Z , направленной коллинеарно оптической оси c монокристалла. Тогда зависимость от азимутального угла в (11) исчезает, и анизотропия магнитного тушения характеризуется лишь относительной ориентацией монокристалла (точнее его оптической оси c) и внешнего магнитного поля. Из (8)–(10) видно, что анизотропию предпочтительнее регистрировать в экспериментах по измерению ACAR: в этом случае величина экспериментально наблюдаемого эффекта, определяющаяся в достаточно слабом поле разностью параметров магнитного тушения при различных ориентациях поля относительно оси c , оказывается по крайней мере в 3 раза выше, чем в экспериментах по измерению относительной вероятности 3γ -аннигиляции и спектра времени жизни позитронов. Поэтому далее осановимся на анализе ACAR экспериментов.

Из (9) с учетом (11) видно, что анизотропия магнитного тушения квази-Ps в кристаллическом кварце должна проявляться в наличии отличной от нуля разности $\mathcal{E}(\vartheta = 0, p, B) - \mathcal{E}(\vartheta = \pi/2, p, B)$. Для оценки этой разности необходимо знать три параметра, характеризующих взаимодействие квази-Ps с веществом [9] $\alpha = \lambda_{s,t}/\lambda_{s,t}^0 = \omega/\omega_0$ (здесь $\lambda_{s,t}^0$ и ω_0 — вакуумные значения скоростей распада пара- и орто-Ps в отсутствие внешнего магнитного поля и сверхтонкого расщепления основного уровня Ps соответственно), λ_p и d/ω_0 . Указанные параметры были определены подгонкой экспериментальных данных работы [15] по формулам (9) и (11) для случая $p = 0.5$, $\vartheta = 0$, экспериментально реализованного в этой работе. Результаты подгонки: $\alpha = 0.84$, $\lambda_p^{-1} = 1.16 \cdot 10^{-9}$ s, $d/\omega_0 = 0.03$. Отметим, что полученное значение α находится в удовлетворительном согласии с $\alpha = 0.71$, оцененном в [2] (см., однако, [16]); значение λ_p^{-1} согласуется с $\lambda_p^{-1} = 1.13 \cdot 10^{-9}$ s, найденном в [15]. Определенные таким образом параметры α , λ_p и d/ω_0 использовались далее для оценки

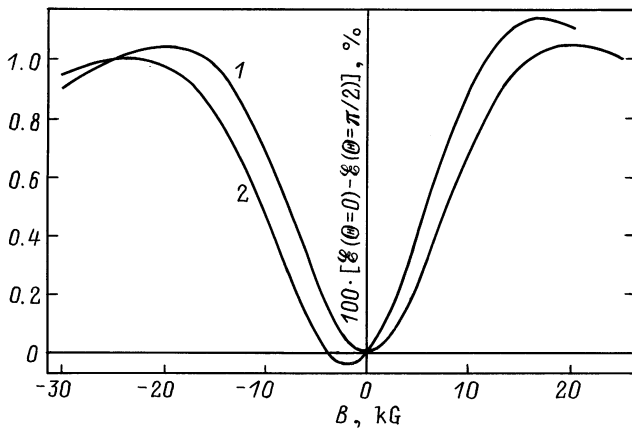


Рис. 1. Анизотропия магнитного тушения квазипозитрония в кристаллическом кварце как функция внешнего магнитного поля при нулевой (1) и ненулевой (2) поляризации позитронов ($p = 0.5$).

анизотропии магнитного тушения квази-Ps в кристаллическом кварце. Полученные зависимости разностей $\mathcal{E}(\vartheta = 0, p, B) - \mathcal{E}(\vartheta = \pi/2, p, B)$ приведены на рис. 1 для случаев неполяризованных и поляризованных с $p = 0.5$ позитронов.

3. Анизотропное усиление узкой компоненты ACAR в монокристалле нафталина

Для позитрониевого комплекса в кристаллических полимерах параметр магнитного тушения в (8)–(10) имеет вид (11), где, однако, константы квадрупольной связи d и η должны быть в более общем виде заменены параметрами матрицы СТВ A_{ik} (точнее, ее анизотропной части D_{il} : $A_{ik} = \omega\delta_{ik} + D_{ik}$, где D_{ik} — симметричный тензор второго ранга с нулевым следом) в соответствии с соотношениями [17]

$$d = \frac{1}{3}(2D_{zz} - D_{xx} - D_{yy}), \quad \eta = \frac{3(D_{xx} - D_{yy})}{2D_{zz} - D_{xx} - D_{yy}}. \quad (12)$$

Соответственно функция $y^2(\vartheta, \varphi)$ в (11) принимает вид

$$y^2(\vartheta, \varphi) = y^2 \left(1 + \frac{2}{\omega\sqrt{1+x^2}} \times \left(\frac{D}{3}(3\cos^2\vartheta - 1) + E\sin^2\vartheta\cos 2\varphi \right) \right), \quad (13)$$

где $D = -3(D_{xx} + D_{yy})/2$ и $E = (D_{xx} - D_{yy})/2$ — две независимые константы СТВ в системе главных осей тензора D_{ik} [18].

Из формул (9), (11) и (13) легко видеть, что абсолютное значение разности $\mathcal{E}(\vartheta = 0, \varphi, p, B) - \mathcal{E}(\vartheta = \pi/2, \varphi, p, B)$ максимально при $\varphi = \pi/2$ для D и E одного знака и при $\varphi = 0$, если D и E имеют разные знаки. Известно, например, что электрон-электронное СТВ в триплетной разновидности нафталина характеризуется значениями $D = 3007$ МГц и $E = -411$ МГц [18]. Эти же значения могут быть использованы и для оценки величины анизотропии магнитного тушения аномального орто-Ps в монокристалле обычного нафталина, поскольку константы анизотропного СТВ определяются главным образом величиной взаимодействующих магнитных моментов и расстоянием между ними. Тогда получаем, что анизотропия магнитного тушения позитрониевого комплекса в монокристалле нафталина наиболее сильно должна проявляться в наличии отличной от нуля разности $\mathcal{E}(\vartheta = 0, \varphi = 0, p, B) - \mathcal{E}(\vartheta = \pi/2, \varphi = 0, p, B)$. Для оценки этой разности по формулам (9), (11) и (13) использовались приведенные выше электрон-электронные константы СТВ для триплетного нафталина, а также константы $\alpha = \lambda_{s,t}/\lambda_{s,t}^0 = 0.25$ и $\alpha' = \omega/\omega_0 = 0.13$ [6] (см., однако, [19]), учитывающие изменение скоростей распада и сверхтонкого расщепления аномального Ps по

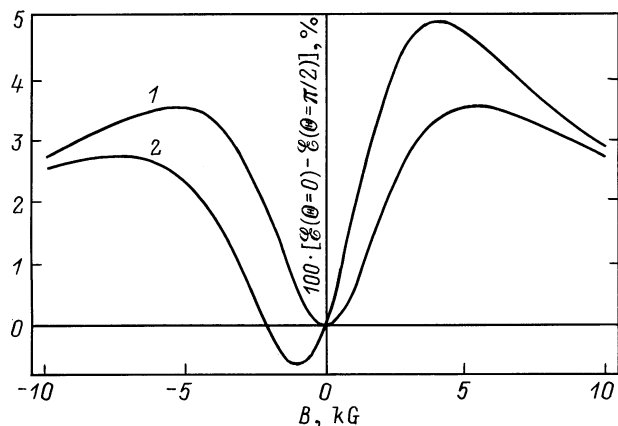


Рис. 2. Анизотропия магнитного тушения позитрониевого комплекса в монокристалле нафталина как функция внешнего магнитного поля при нулевой (1) и ненулевой (2) поляризации позитронов ($p = 0.5$, $\varphi = 0$).

сравнению с вакуумом. Полученные зависимости разностей $\mathcal{E}(\vartheta = 0, \varphi = 0, p, B) - \mathcal{E}(\vartheta = \pi/2, \varphi = 0, p, B)$ приведены на рис. 2 для случаев неполяризованных и поляризованных с $p = 0.5$ позитронов.

Как видно из рис. 1 и 2, анизотропия магнитного тушения позитрониевых состояний в ориентированных относительно направления внешнего магнитного поля кристаллах является немонотонной функцией магнитного поля. При нулевой степени поляризации позитронов это четная по полю функция, стремящаяся к нулю при малых и больших B . При отличной от нуля поляризации позитронов анизотропия магнитного тушения перестает быть четной функцией магнитного поля, более быстро возрастая с ростом поля, когда позитроны поляризованы вдоль направления поля (правая полуплоскость на рисунках), и более медленно и с изменением знака при поляризации позитронов, направленной противоположно направлению поля (левая полуплоскость). При этом максимум анизотропии в правой полуплоскости (поляризация вдоль поля) повышается, а величина поля, при котором он достигается, уменьшается. Последнее свойство следует учитывать при постановке экспериментов: эксперименты с поляризованными позитронами позволяют эффективно увеличить максимальную анизотропию, одновременно понизив (что немаловажно с точки зрения экспериментальной реализации) величину магнитного поля, в котором она достигается. Так, например, в кристаллическом кварце (рис. 1) при $p = 0$ максимальное значение анизотропии составляет 1.0% в поле 19.8 kG, а при $p = 0.5$ оно возрастает до 1.1% в поле 17.0 kG. В нафталине (рис. 2) максимум анизотропии при $p = 0$ составляет 3.5% в поле 5.2 kG, а при $p = 0.5$ он возрастает до 4.9% в поле 4.0 kG.

Для позитрониевого комплекса в нафталине анизотропия магнитного тушения оказывается значительно выше, чем для квази-Ps в кристаллическом кварце. Это легко объяснимо, поскольку делокализованный Ps в кварце "чувствует" на себе некое усредненное кристаллическое

поле, которое, вследствие усреднения по всему кристаллу, оказывается слабее нежели кристаллическое поле, действующее на хорошо локализованный аномальный Ps в нафталине. Соответственно волновая функция позитрониевого состояния в нафталине искажается кристаллическим полем значительно сильнее, чем в кварце, тем самым обуславливая более сильную анизотропию его магнитного тушения. Оцененная в данной работе небольшая степень анизотропии магнитного тушения квази-Ps в кристаллическом кварце ($\sim 1\%$) не согласуется с результатами экспериментов [11] (до 30%). Несогласие, по нашему мнению, вызвано тем, что в [11] из "полной" наблюдавшейся анизотропии не был отделен эффект анизотропии электронной плотности кристалла, что привело к завышенным оценкам для анизотропии магнитного тушения Ps в кварце.

Автор признателен С.А. Кутеню, Т. Хиодо, А.П. Миллсу и Э. Родунеру за полезные обсуждения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Республики Беларусь (грант № 19971274) и Фонда фундаментальных исследований НАН Республики Беларусь (грант № Ф97-055).

Список литературы

- [1] A. Dupasquier. In: Positron Solid State Physics / Ed. by W. Brandt and A. Dupasquier. Academic Press, N. Y. (1983). P. 510.
- [2] C.H. Hodges, B.T. McKee, W. Triftshauser, A.T. Stewart. Can. J. Phys. **50**, 103 (1972).
- [3] Y. Nagai, M. Kakimoto, H. Ikari, T. Hyodo. Mat. Sci. Forum **255–257**, 596 (1997).
- [4] J. Kasai, T. Hyodo, K. Fujiwara. J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 1, 329 (1988).
- [5] A. Bisi, G. Consolati, G. Gambarini, L. Zappa. Nuovo Cimento **D6**, 3, 183 (1985).
- [6] A. Bisi, G. Consolati, L. Zappa. Hyp. Int. **36**, 29 (1987).
- [7] M. Schwager, E. Roduner. Chem. Phys. Lett. **182**, 5, 445 (1991).
- [8] А.З. Варисов. Опт. и спектр. **53**, 2, 278 (1982).
- [9] И.В. Бондарев, С.А. Кутен. Acta Phys. Pol. **A88**, 1, 83 (1995).
- [10] V.G. Baryshevskii. Phys. Stat. Sol. **B124**, 619 (1984).
- [11] A. Seeger. Mat. Sci. Forum **255–257**, 1 (1997).
- [12] В.И. Гольданский. Физическая химия позитрона и позитрония. Наука, М. (1969). 153 с.
- [13] А.З. Варисов, Ф.М. Набиуллина. Опт. и спектр. **46**, 3, 449 (1979).
- [14] A. Bisi, A. Fiorentini, E. Gatti, L. Zappa. Phys. Rev. **128**, 6, 2195 (1962).
- [15] A. Greenberger, A.P. Mills, A. Thompson, S. Berko. Phys. Lett. **A32**, 2, 72 (1970).
- [16] A. Bisi, G. Consolati, F. Quasso, L. Zappa. Nuovo Cimento **D10**, 9, 1069 (1988).
- [17] V.G. Baryshevskii, S.A. Kuten, V.I. Rapoport. Phys. Lett. **A88**, 6, 289 (1982).
- [18] Дж. Вертц, Дж. Болтон. Теория и практические приложения метода ЭПР. Мир, М. (1975). 548 с. [J.E. Wertz, J.R. Bolton. Electron spin resonance. McGraw-Hill, N. Y. (1972)].
- [19] W. Gorniak, T. Goworek. Chem. Phys. Lett. **177**, 1, 23 (1991).