

Рентгеновские исследования эффектов интеркаляции кристаллов фуллерита C_{60} атомами Ne

И.В. Легченкова, А.И. Прохвятилов, Ю.Е. Стеценко,
М.А. Стржемечный, К.А. Яготинцев

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: legchenkova@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 26 апреля 2006 г., после переработки 24 мая 2006 г.

Рентгеновским методом исследован процесс интеркаляции атомами Ne поликристаллического фуллерита C_{60} при комнатной температуре и давлении газа 1 атм и температурной зависимости параметра решетки в интервале температур 30–293 К. Установлено, что заполнение октаэдрических пустот ГЦК решетки C_{60} неоном сопровождается заметным увеличением параметра и объема решетки. Эти изменения в зависимости от времени насыщения удовлетворительно описываются экспонентой. Определена временная константа интеркаляции τ , которая оказалась равной (179 ± 24) ч, что почти на два порядка больше величины τ , полученной при повышенном давлении. Предельное насыщение фуллерита неоном достигает почти $(48 \pm 3)\%$. Наличие примеси неона в решетке C_{60} практически не влияет на интенсивность рассеяния рентгеновских лучей, но вследствие неоднородности распределения примеси на первых этапах интеркалирования значительно изменяет ширину отражений. В результате проведенных энергетических расчетов определено, что наиболее вероятным путем миграции атомов Ne в кристаллах фуллерита при интеркаляции являются окта–тетра–октаэдрические пустоты. В области ориентационного фазового перехода обнаружен значительный гистерезис температурных зависимостей параметров решетки. Проведено обсуждение и сопоставление полученных результатов с имеющимися литературными данными.

Рентгенівським методом досліджено процес інтеркаляції атомами Ne полікристалічного фуллерита C_{60} при кімнатній температурі і тиску газу 1 атм і температурної залежності параметра ґратки в інтервалі температур 30–293 К. Встановлено, що заповнення октаедричних порожнин ГЦК ґратки C_{60} неоном супроводжується помітним збільшенням параметра і об'єму ґратки. Ці зміни в залежності від часу насичення задовільно описуються експонентою. Визначено тимчасову константу інтеркаляції τ , що виявилася рівною (179 ± 24) г, що майже на два порядки більше величини τ , яка отримана при підвищеному тиску. Граничне насичення фуллерита неоном досягає майже $(48 \pm 3)\%$. Наявність домішки неону в ґратках C_{60} практично не впливає на інтенсивність розсіювання рентгенівських променів, але унаслідок неоднорідності розподілу домішки на перших етапах інтеркаляції значно змінює ширину відображень. У результаті проведених енергетичних розрахунків показано, що найбільш ймовірним шляхом міграції атомів Ne у кристалах фуллерита при інтеркаляції є окта–тетра–октаедричні порожнини. В області орієнтаційного фазового переходу виявлено значний гистерезис температурних залежностей параметра ґратки. Проведено обговорення і зіставлення отриманих результатів з даними, які є в літературі.

PACS: 61.10.Nz, 81.05.Tr, **64.70.–p**

Ключевые слова: фуллерит C_{60} , интеркаляция, диффузия, параметр решетки, фазовый переход.

Введение

Практически уже в одной из первых работ [1] по изучению влияния давления на ориентационный фазовый переход в C_{60} было обнаружено значительное различие результатов, полученных в разных газообразных средах, передающих гидростатическое давление на образец. Тогда же было высказано правильное предположение, что необычность наблюдаемых различий в данных обусловлена тем, что проникающие в кубические ГЦК кристаллы C_{60} атомы и молекулы используемых газов по разному заполняют межмолекулярные октаэдрические и тетраэдрические пустоты. Это предположение авторов работы [1] подтверждено в серии работ [2–4], посвященных изучению процессов насыщения фуллерита C_{60} атомами инертных газов He, Ne, Ar при комнатной температуре и в широком интервале давлений. Впервые была подробно исследована кинетика диффузии атомов неона в кристаллы C_{60} [4]. С помощью структурных методов дифракции нейтронов были получены данные о зависимостях параметра решетки a от времени интеркалирования при разных давлениях газообразного неона вплоть до 6,2 кбар, т.е. как в разупорядоченной ГЦК, так и в упорядоченной ПК фазах. Основные характеристики зависимостей $a(t)$, полученные в работах [2–4], суммированы в таблице 1. В частности, было установлено [3], что выдержка во времени при постоянном давлении газа неона приводит к экспоненциальной зависимости параметра решетки фуллерита от времени:

$$a(t) = a_f + (a_0 - a_f) \exp(-t/\tau), \quad (1)$$

где a_0 и a_f — начальное и конечное (на участке насыщения) значения параметров решетки, τ — временная константа интеркалирования. Такое поведение решетки обусловлено довольно быстрым заполнением неона октаэдрических пустот, которое при 2,5 кбар и комнатной температуре уже достигает 96%. При этом параметр решетки C_{60} линейно возрастает с увеличением концентрации неона [3].

Нами был проведен анализ полученных в этих исследованиях временных зависимостей параметра решетки при интеркалировании C_{60} неона. Несмотря на то, что в настоящее время твердые растворы внедрения C_{60} -Ne среди подобных систем наиболее изучены, остается еще ряд невыясненных вопросов. В частности, не исследовано влияние интеркалирования неона на ориентационный фазовый переход и процесс стеклования в C_{60} , не изучены гистерезисные явления в области фазового превращения I рода, нет данных о кинетике интеркалирования при нормальном и низких давлениях. Правда, в работе [3] отмечается, что интеркалиро-

вание при комнатной температуре и нормальном давлении приводит к заполнению 21% октаэдрических пустот и незначительному увеличению параметра решетки до значения $a_f = 14,16043 \text{ \AA}$. Однако не приведены зависимости $a(t)$ при обычном давлении и не указано характеристическое время интеркаляции.

В этой связи основными задачами данной работы было, во-первых, исследование с помощью рентгеноструктурных методов процесса интеркалирования C_{60} неона при обычных условиях и определение влияния концентрации Ne на структурные характеристики матрицы C_{60} ; во-вторых, получение данных по температурным зависимостям параметра решетки предельно насыщенных в обычных условиях кристаллитов C_{60} как в режиме охлаждения, так и при последующем нагреве твердого раствора.

Техника эксперимента

Интеркалирование фуллерита C_{60} неона проведено при комнатной температуре и давлении газа неона 1 бар. Времена интеркаляции достигали 3000 ч. Насыщение производилось непосредственно в вакуумно-уплотненной камере рентгеновского криостата, что позволяло периодически производить съемки дифрактограмм и определять изменение структурных характеристик (интенсивности, полуширины линий Δ и угловые положения отражений) от времени выдержки при одной и той же юстировке образца. Это практически исключало влияние на результаты случайных ошибок. После окончательного насыщения образцов неона, что определялось выходом зависимости $a(t)$ на постоянное значение, нами исследовались температурные зависимости параметра решетки C_{60} . Эксперименты проведены в режимах охлаждения и нагрева образцов в интервале температур 30–293 К. Точность измерения и стабилизации в каждой температурной точке была не хуже 0,1 К. Исследования поведения решеточного параметра C_{60} при насыщении неона и при изменении температуры выполнены в следующей последовательности. При комнатной температуре производилась запись полной рентгенограммы исходного и предельно насыщенного фуллерита в широком интервале углов рентгеновских отражений, что позволяло определить соответствующие реперные значения параметров решетки a_0 и a_f . Затем отслеживалось изменение этих параметров от времени насыщения и температуры по угловому смещению одиночных наиболее интенсивных отражений. Погрешность в определении параметра решетки составляла 0,02%, интегральной интенсивности 2%, полуширины линий отражений 3%.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены две дифрактограммы, полученные до и после насыщения порошка фуллерита неона. Видно, что, в отличие от интеркалирования C_{60} атомами Xe [5], заполнение атомами Ne октаэдрических пустот в C_{60} не оказывает заметного влияния на дифракционную картину. В пределах погрешности определения сохраняется исходное распределение интенсивности рефлексов и происходит только незначительное их смещение к малым углам, что свидетельствует о некотором увеличении объема кубической ячейки. На рис. 2 и 3 продемонстрировано изменение соответственно интенсивности и полуширины линий отдельных наиболее интенсивных рентгеновских отражений в процессе интеркалирования. Из данных, приведенных на рис. 2, следует, что интенсивности отражений, кроме начальной точки, полученной без газа Ne в камере образца, во всем остальном интервале практически не изменяются во времени в пределах точности наших измерений.

В отличие от интенсивности, полуширина линий отражения изменяется заметно, хотя и слабо (рис. 3). Для всех линий характерно небольшое (до 6%) уширение в начальный период интеркалирования (до 100 ч) и последующее постепенное их сужение до значений, ощутимо меньших начальной величины (рис. 3). Такое поведение полуширины линий отражения характерно также для других систем [5,7,8] и обусловлено неоднородностью распределения интеркалянта по глубине кристаллитов C_{60} на первом этапе насыщения, которое сменяется гомогенизацией распределения по мере насыщения

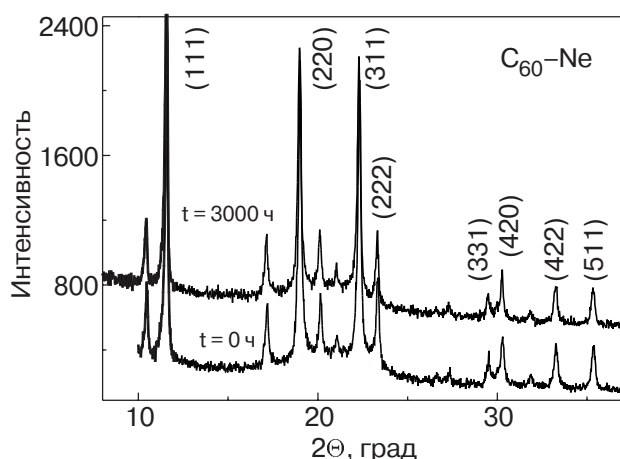


Рис. 1. Рентгенограммы поликристаллического фуллерита C_{60} , полученные до и после насыщения неона при комнатной температуре и давлении 1 атм. Съемка рентгенограмм проведена в K_{α} -излучении железного анода с $\lambda = 1,93728 \text{ \AA}$, фильтр для погашения β -линий не использовался.

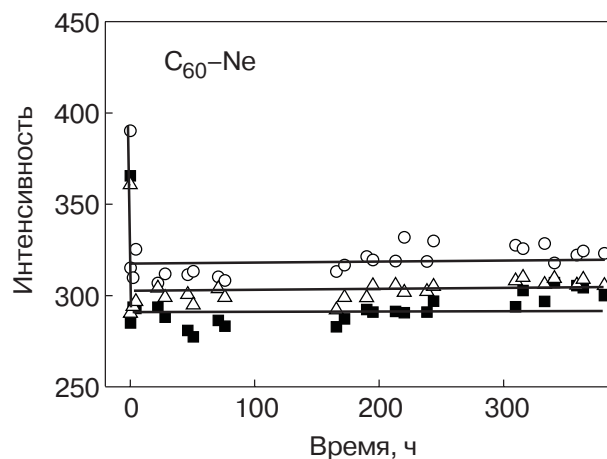


Рис. 2. Изменение интенсивности наиболее сильных линий рентгеновских отражений (111) (■), (220) (○) и (311) (△) в процессе интеркалирования фуллерита C_{60} атомами Ne при $T = 293 \text{ K}$ и давлении 1 атм.

кристаллитов и в дальнейшем, возможно, даже очисткой кристаллитов от части некоторых наиболее подвижных структурных дефектов, например дислокаций. О последнем свидетельствует то, что конечные значения Δ оказываются меньше, чем в исходном состоянии. Аналогичный эффект проявляется и при интеркалировании гелием, но в менее выраженном виде [7]. Необходимо отметить, что качественно подобная зависимость полуширины линий отражения от времени была получена при насыщении фуллерита неона под высоким давлением (см. рис. 1 в [4]). Естественно, при давлении в несколько килобар максимум уширения линий достигается за более короткое время (примерно, за 6–7 ч) и его величина значительно (почти на порядок) больше, чем при нормальном давлении. Это может означать, что при насыщении в условиях высоких давлений интеркалянта в кристаллитах C_{60} создается значительно

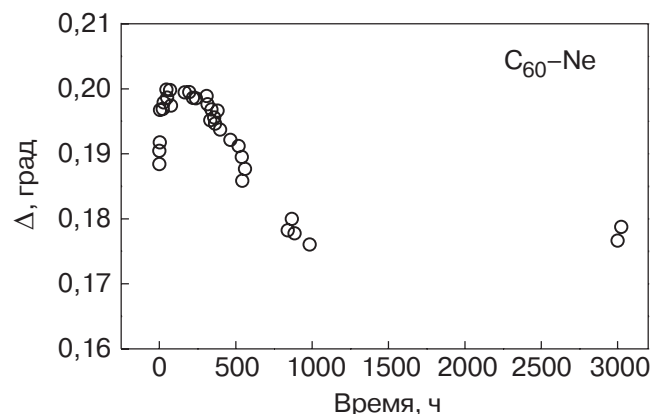


Рис. 3. Изменение полуширины линий рентгеновского отражения (311) в период интеркалирования фуллерита C_{60} атомами Ne при комнатной температуре и давлении 1 атм.

большая неоднородность распределения интеркалянта, чем в обычных условиях.

Результаты наших исследований изменения параметра кубической решетки C_{60} в процессе интеркаляции представлены на рис. 4, а в табл. 1 приведены основные характеристики этой зависимости в сравнении с данными исследований при высоких давлениях [2–4]. Учитывая, что τ зависит не только от давления и температуры, но и от размера кристаллитов, мы понимаем некоторую условность сравнения данных в табл. 1 без какого-либо взаимного приведения. Это объясняется в значительной мере тем, что в указанных работах значения характерных размеров не приведены. Можно лишь отметить, что с учетом огромной разницы в давлениях, значения τ , полученные нами, в целом не противостоят полученным в других работах. На рис. 4 видно, что в обычных условиях интеркаляции время выхода на насыщение зависимости $a(t)$ существенно (в десятки раз) возрастает по сравнению с наблюдаемым при высоких P .

Таблица 1. Характеристики изменения параметра решетки фуллерита C_{60} в процессе интеркалирования атомами Ne при комнатной температуре и различных давлениях.

Давление, P , кбар	Начальный параметр решетки a_0 , Å	Величина изменения параметра Δa , Å	Время выхода параметра a на насыщение τ , ч	Ссылка
0,001	14,16043	0,0053	—	[3]
2,10	14,081	0,01	6	[3]
2,75	14,016	0,049	24	[2]
3,80	13,932	0,017	16	[4]
4,10	13,914	0,014	15	[4]
5,40	13,912	0,012	15	[4]
6,20	13,910	0,011	15	[4]
0,001	14,159	0,008	179	Наши результаты

В то же время полученная нами деформация решетки $\Delta a = a_f - a_0$ при предельном насыщении неоном хотя и несколько ниже, но сравнима с наблюдаемой авторами [2–4] при нормальном и повышенных давлениях (см. табл. 1 и рис. 1, 2 в работе [4]).

Полученное нами предельное значение параметра решетки (рис. 4) позволило оценить концентрацию Ne в C_{60} . При этом мы воспользовались линейной

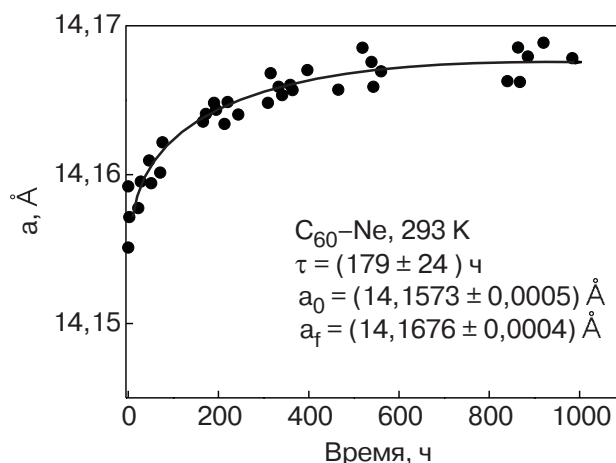


Рис. 4. Изменение во времени параметра решетки a фуллерита C_{60} при его интеркалировании атомами Ne при комнатной температуре и давлении газа 1 атм.

зависимостью параметра решетки фуллерита от заполненности атомами неона октаэдрических пустот, приведенной в [3]. Как следует из рис. 5, полученное нами среднее значение параметра решетки $a = 14,167(6)$ Å предельно насыщенного фуллерита соответствует концентрации неона в твердом растворе $(48 \pm 3)\%$, что почти вдвое больше приведенного в работе [3] для близких условий (температура, давление) интеркаляции. В первую очередь это может быть связано с отличием размеров кристаллитов в образцах, исследуемых в обсуждаемых работах. Мы также полагаем, что расхождение может быть связано и с другими различиями как в исходных образцах поликристаллического фуллерита (плотность структурных дефектов, чистота матрицы и др.), так и в чистоте используемого газообразного неона. Процесс интеркаляции к таким разли-

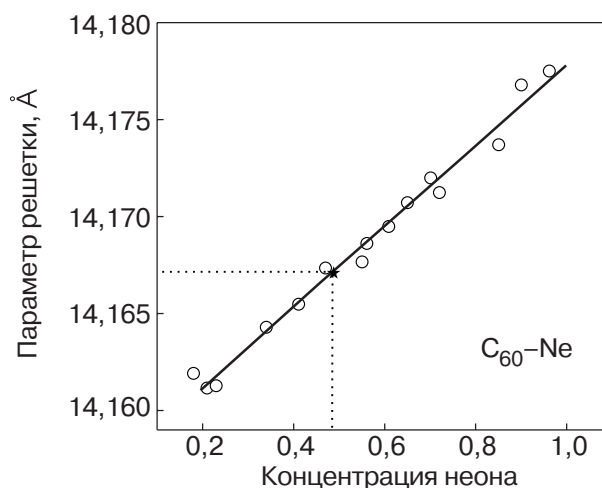


Рис. 5. Изменение параметра решетки a фуллерита C_{60} по мере заполнения атомами неона октаэдрических пустот: \circ — данные работы [3]; \star — данные настоящей работы.

чиям должен быть особенно чувствительным при малых давлениях.

Как следует из проведенного в работе [5] анализа, из всех инертных элементов неон оказывает минимальное влияние на параметр решетки C_{60} . Примесное расширение решетки в растворах C_{60} -Ne во всем концентрационном интервале даже меньше, чем в растворах с He [7,8], в которых при предельном насыщении 96% увеличение параметра решетки Δa достигает величины $0,017 \text{ \AA}$.

Энергетика, термодинамика и кинетика интеркалирования C_{60} неоном при комнатной температуре могут быть рассмотрены в рамках приближения [7], в котором молекулы фуллерена считаются свободно и хаотически вращающимися, и поэтому их можно аппроксимировать сферами с равномерно распределенными атомами углерода. После соответствующего интегрирования энергия взаимодействия атома неона с молекулой C_{60} в этом приближении имеет вид

$$U(R) = \frac{12\varepsilon\sigma^{12}}{Rr_0} \left[\frac{1}{(R-r_0)^{10}} - \frac{1}{(R+r_0)^{10}} \right] - \frac{30\varepsilon\sigma^6}{Rr_0} \left[\frac{1}{(R-r_0)^4} - \frac{1}{(R+r_0)^4} \right], \quad (2)$$

где $\varepsilon = 16,2 \text{ К}$ и $\sigma = 2,74 \text{ \AA}$, параметры Леннард-Джонса для взаимодействия атома C с атомом Ne взяты из данных по рассеянию атомных пучков неона на поверхности графита [9], R — расстояние между атомом неона и центром молекулы C_{60} ; r_0 — радиус молекулы C_{60} .

Профиль потенциальной энергии взаимодействия Ne- C_{60} показан на рис. 6. Энергия связи оказы-

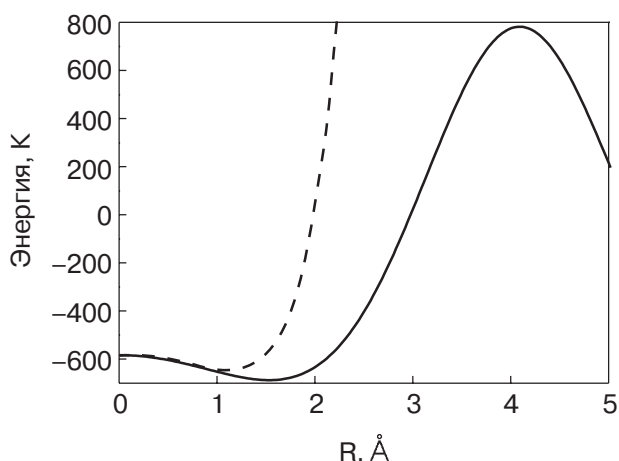


Рис. 6. Энергия взаимодействия атома неона как функция его положения в октаэдрической полости: штриховая линия соответствует изменению энергии в направлении цепочек окта-октаэдрических пустот, а сплошная линия — в направлении цепочек окта-тетраэдрических пустот.

вается достаточно большой, около 581 К . К этому следует добавить, что энергия связи в тетраэдрической полости оказывается еще больше и равна 736 К . Однако из этого не следует, что атому неона выгоднее находиться в тетраэдрической пустоте, поскольку при расчете энергий не были учтены два важных обстоятельства: во-первых, наличие интенсивных тепловых колебаний и, во-вторых, упругая энергия деформации решетки, вызванной интеркалированием. Оба эти фактора для тетраэдрического заполнения играют значительно более важную роль, чем для октаэдрического. Так, для интеркалирования гелием, для которого хорошо известны избыточные объемы элементарной ячейки на единицу примеси [7], энергии связи атома He в октаэдрических (О) и тетраэдрических (Т) полостях сравнимы, но положительная упругая энергия составляет около 15% для О-полости и около 50% для Т-полости, что делает нахождение допанта в последней энергетически значительно менее выгодным. Такая же ситуация должна иметь место и для неона как интеркалянта. Поскольку надежных экспериментальных данных для избыточного объема примеси неона в Т-полости нет, соответствующий детальный расчет невозможен. Дополнительное повышение энергии в результате интенсивных тепловых колебаний (которые зависят только от температуры) молекул фуллерена должно также сильнее проявиться для тетраэдрических пустот в силу ее меньших размеров. С учетом всего указанного выше можно сделать вывод, что проникновение атомов неона в Т-полости существенно затруднено. В результате при комнатной температуре, когда мгновенное отклонение соответствующей молекулы фуллерита от центра Т-пустоты оказывается достаточно большим, переход атомов между октаэдрическими полостями через тетраэдрические полости происходит так, что атомы не доходят до центра Т-полости, а как бы двигаясь по ее периферии, переходят в соседнюю О-полость.

Температурные зависимости параметра решетки предельно насыщенного неоном фуллерита приведены на рис. 7. Из сравнения с чистым фуллеритом C_{60} [5] видно, что наличие в решетке фуллерита атомов Ne как примеси внедрения почти не повлияло на температуру ориентационного фазового перехода при охлаждении образцов. Однако при этом заметно уменьшился скачок параметра решетки на ориентационном переходе и интенсивность его изменения (тепловое расширение), особенно при низких температурах. Вследствие значительного уменьшения коэффициента теплового расширения (КТР) при температурах ниже 200 К параметр решетки интеркалированного неоном фуллерита становится

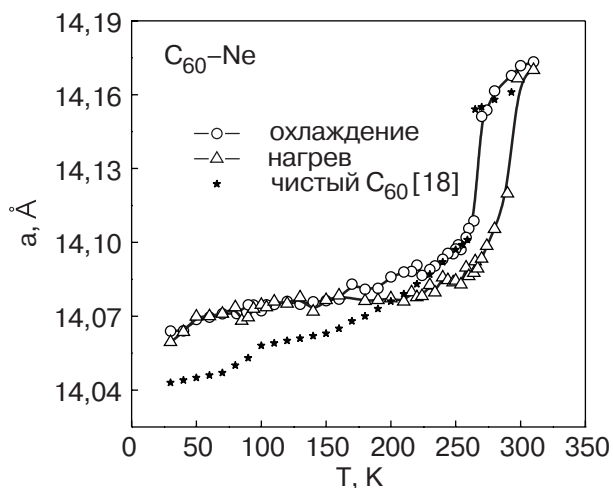


Рис. 7. Температурные зависимости параметра решетки Ne_xC_{60} , полученные при охлаждении и нагреве образцов.

заметно выше, чем a чистого C_{60} . Кроме того, на температурных зависимостях параметра решетки явно не проявляется характерная для чистого C_{60} особенность в области 100 К, соответствующая формированию ориентационного стекла. Намечающийся при 50 К излом на зависимости $a(T)$, возможно, соответствует началу формирования ориентационного стекла в этой системе, сдвинутому в область низких температур (см. рис. 7). Сильное влияние неона на тепловое расширение матрицы C_{60} при низких температурах подтверждается dilatометрическими исследованиями КТР раствора $\text{C}_{60}\text{-Ne}$ в интервале 2–12 К [6,10]. Обнаружено [6] сильное понижение коэффициента линейного теплового расширения раствора $\text{C}_{60}\text{-Ne}$. При этом практически не наблюдалось обнаруженное ранее в чистом фуллерите при гелиевой температуре отрицательное расширение кристаллов. Отрицательное тепловое расширение в чистом фуллерите наблюдается в области температур существования ориентационного стекла [11,12] и объясняется туннельными переходами в ориентационной подсистеме. Отсутствие отрицательного расширения в растворах $\text{C}_{60}\text{-Ne}$ может означать, что в силу большой расторможенности вращательного движения молекул ориентационное стекло не формируется в них вплоть до самых низких температур, при этом отсутствует также процесс вращательного туннелирования. Однако в соответствии с развиваемыми в последнее время представлениями о полиморфизме в ориентационном стекле фуллерита [13,14] возможно и иное объяснение температурного поведения КТР раствора $\text{C}_{60}\text{-Ne}$ [6] при предельно низких температурах. В режиме охлаждения происходит «замораживание» высокотемпературной фазы стекла, обнаруженное при измерении теплового расширения растворов. В такой

переохлажденной фазе затруднено вращательное туннелирование и, как следствие, отсутствует отрицательное расширение. О реальности такого «замораживания» свидетельствуют данные работ [14,15], в которых при определенных условиях экспериментов при гелиевых температурах зафиксирован переход к равновесной фазе стекла с отрицательным расширением.

В связи с обсуждаемым вопросом о влиянии примеси неона на термодинамические свойства фуллерита несомненный интерес представляют данные работ [16,17], в которых исследованы температурные зависимости диэлектрической постоянной и проводимости твердых растворов C_{60} с He , Ne , Ar и O_2 . При этом для растворов $\text{C}_{60}\text{-Ne}_{0,62}$ не установлено изменения температуры ориентационного перехода T_c относительно ее значения для чистого фуллерита. Возможное ее понижение находится в пределах погрешности и не превышает 2 К [17]. По данным [16,17], растворение столь большого количества неона (62%) в решетке C_{60} весьма незначительно понижает вращательный барьер. Если в чистом фуллерите он равен (290 ± 10) мэВ, то в растворах составляет (282 ± 30) мэВ [17]. При этом практически не изменяется температура стеклования T_g . Как видим, эти данные не противоречат нашим результатам и подтверждают существование ориентационного стекла в исследованных растворах с характеристиками, мало отличающимися от стекла в чистом C_{60} .

Наличие примеси неона приводит к значительному увеличению температурного гистерезиса решеточного параметра в области фазового перехода. Зависимости $a(T)$ в области ориентационного перехода, полученные в режимах охлаждения и нагрева образцов, существенно сдвинуты друг относительно друга по температуре (рис. 7). Ширина гистерезисной петли достигает 20 К. Примерно на это же значение уменьшается температура фазового перехода, определяемая по точкам перегиба кривых $a(T)$ при измерениях в режимах нагрева и охлаждения. В чистом фуллерите величина размытия фазового перехода не превышает 3 К [18].

Выводы

1. Впервые изучены временные характеристики интеркаляции фуллерита C_{60} атомами неона при нормальном давлении и комнатной температуре. Установлено экспоненциальное увеличение параметра решетки со временем интеркаляции с временной константой $\tau = (179 \pm 24)$ ч, что, естественно, значительно больше величины, установленной для насыщения при высоких давлениях [3,4].

2. Показано, что насыщение неоном октаэдрических полостей поликристаллов C₆₀ при нормальном давлении и комнатной температуре может достигать (48 ± 3)%, а эффект увеличения параметра и объема решетки невелик ($\Delta a = 0,009 \text{ \AA}$) и значительно меньше, чем при интеркаляции атомами Ne [7,8].

3. Рассчитаны энергетические барьеры для перемещения атомов Ne из октаэдрической пустоты и показано, что с учетом упругой энергии деформации предпочтительным является движение атомов вдоль цепочек окта-тетра-октаэдрических пустот.

4. Впервые получены температурные зависимости параметра решетки раствора C₆₀-Ne. Установлено существенное понижение температур ориентационного фазового перехода и стеклования под действием примеси. Наличие в решетке фуллерита атомов неона приводит к появлению значительного гистерезиса температуры фазового перехода при нагреве и охлаждении твердых растворов.

1. G.A. Samara, L.V. Hansen, R.A. Assink, B. Morosin, J.E. Schirber, and D. Loy, *Phys. Rev.* **B47**, 4756 (1993).
2. J.E. Schirber, G.H. Kwei, J.D. Jorgensen, R.L. Hitterman, and B. Morosin, *Phys. Rev.* **B51**, 12014 (1995).
3. B. Morosin, J.D. Jorgensen, S. Short, G.H. Kwei, and J.E. Schirber, *Phys. Rev.* **B53**, 1675 (1996).
4. B. Morosin, Z. Hu, J.D. Jorgensen, S. Short, J.E. Schirber, and G.H. Kwei, *Phys. Rev.* **B59**, 6051 (1999).
5. A.I. Prokhvatilov, N.N. Galtsov, I.V. Legchenkova, M.A. Strzhemechny, D. Cassidy, G.E. Gadd, S. Moricca, B. Sundqvist, and N.A. Aksenova, *Fiz. Nizk. Temp.* **31**, 585 (2005).
6. A.N. Aleksandrovskii, V.G. Gavrilko, V.B. Esel'son, V.G. Manzhelii, B. Sundqvist, B.G. Udovidchenko, and V.P. Maletskiy, *Fiz. Nizk. Temp.* **27**, 1401 (2001).
7. K.A. Yagotintsev, M.A. Strzhemechny, Yu.E. Stetsenko, I.V. Legchenkova, and A.I. Prokhvatilov, *Physica* **B381**, 224 (2006).
8. Ю.Е. Стеценко, И.В. Легченкова, Л.А. Яготинцев, А.И. Прохвятилов, М.А. Стржемечный, *ФНТ* **29**, 597 (2003).
9. G. Vidali and M.W. Cole, *Phys. Rev.* **B29**, 6736 (1984).
10. A.N. Aleksandrovskii, V.G. Gavrilko, V.B. Esel'son, V.G. Manzhelii, B. Sundqvist, B.G. Udovidchenko, and V.P. Maletskiy, *Fiz. Nizk. Temp.* **27**, 333 (2001).
11. A.N. Aleksandrovskii, A.S. Bakai, A.V. Dolbin, V.B. Esel'son, G.E. Gadd, V.G. Gavrilko, V.G. Manzhelii, S. Moricca, B. Sundqvist, and B.G. Udovidchenko, *Fiz. Nizk. Temp.* **29**, 432 (2003).
12. A.N. Aleksandrovskii, V.B. Esel'son, V.G. Manzhelii, A.V. Soldatov, B. Sundqvist, and B.G. Udovidchenko, *Fiz. Nizk. Temp.* **23**, 1256 (1997); A.N. Aleksand-

rovskii, V.B. Esel'son, V.G. Manzhelii, A.V. Soldatov, B. Sundqvist, and B.G. Udovidchenko, *Fiz. Nizk. Temp.* **26**, 100 (2000).

13. A.N. Aleksandrovskii, A.S. Bakai, A.V. Dolbin, V.B. Esel'son, G.E. Gadd, V.G. Gavrilko, V.G. Manzhelii, S. Moricca, B. Sundqvist, and B.G. Udovidchenko, *Fiz. Nizk. Temp.* **29**, 432, (2003).
14. A.N. Aleksandrovskii, A.S. Bakai, D. Cassidy, A.V. Dolbin, V.B. Esel'son, G.E. Gadd, V.G. Gavrilko, V.G. Manzhelii, S. Moricca, and B. Sundqvist, *Fiz. Nizk. Temp.* **31**, 565, (2005).
15. V.G. Manzhelii, A.V. Dolbin, V.B. Esel'son, V.G. Gavrilko, G.E. Gadd, S. Moricca, D. Cassidy, and B. Sundqvist, *Fiz. Nizk. Temp.* **32**, 913 (2006).
16. M. Gu and T.B. Tang, *J. Appl. Phys.* **93**, 2486 (2003).
17. T.B. Tang and M. Gu, *Phys. Solid State (Russia)* **44**, 607 (2002).
18. S.V. Lubenets, V.D. Natsik, L.S. Fomenko, A.P. Isakina, A.I. Prokhvatilov, M.A. Strzhemechny, N.A. Aksenova, and R.S. Ruoff, *Fiz. Nizk. Temp.* **23**, 251 (1997).

X-ray diffraction study into the effects of intercalation of fullerite C₆₀ crystals with Ne atoms

I.V. Legchenkova, A.I. Prokhvatilov,
Yu.E. Stetsenko, M.A. Strzhemechny,
and K.A. Yagotintsev

The powder x-ray diffraction method was used to study the process of saturation by Ne atoms of C₆₀ at room temperature and a Ne gas pressure of 1 bar. We also studied the temperature dependence of the lattice parameter of the saturated sample. We have found that the filling of octahedral voids of the fcc lattice of C₆₀ by neon results in an observable increase of the lattice parameter. This increase as a function of the saturation time is consistently described by an exponential law with the characteristic time constant $\tau = (179 \pm 24) \text{ h}$, which is almost two orders of magnitude longer than at elevated pressures. The ultimate occupancy of the voids by neon reaches the value (48 ± 3)%. The neon impurity virtually does not affect the reflection intensities but during the initial stage of intercalation considerably increases the width of reflections. We show that the most likely migration pathway of neon atoms in crystalline fullerite C₆₀ is from octahedral to octahedral via tetrahedral voids. A considerable hysteresis stretching from to 270 K has been observed in the temperature dependence of the lattice parameter.

Keywords: fullerite C₆₀, intercalation, diffusion, lattice parameter, phase transition.