Письма в ЖЭТФ, том 72, вып.9, стр.673 - 678

О РОЛИ НЕПОЛЯРНОГО ОПТИЧЕСКОГО РАССЕЯНИЯ ДЛЯ ДЕЛОКАЛИЗОВАННОГО ПОЗИТРОНИЯ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

И.В.Бондарев[1)]

НИИ ядерных проблем Белорусского государственного университета
220050 Минск, Беларусь

Поступила в редакцию 5 октября 2000 г.

Исследована роль рассеяния на оптическом потенциале деформации для делокализованного атома позитрония в ионных кристаллах. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, такое рассеяние (если оно не запрещено правилами отбора) приводит к перенормировке константы акустического потенциала деформации позитрония. Именно такая перенормировка наблюдалась недавно в экспериментах по измерению импульсного распределения делокализованного позитрония в кристалле MgF_2. Аналогичный эффект предсказывается для позитрония в кристаллическом кварце при температуре выше 846 K – с переходом α-кварца в β-фазу.

PACS: 36.10.Dr, 71.38.+i, 71.60.+z, 78.70.Bj

Образование позитрония (Ps) – связанной системы электрона и позитрона – в большинстве кристаллических диэлектриков является в настоящее время хорошо установленным экспериментальным фактом [1]. В хорошо очищенных ионных кристаллах, а также в α-кварце (α-SiO_2), при пониженных температурах (ниже нескольких десятков K) атом Ps делокализован и находится в состоянии блоховского типа. Образование блоховского позитрония подтверждается экспериментальным наблюдением узких пиков (центральный пик и боковые сателлиты, разнесенные на расстояние, обратно пропорциональное периоду решетки) в импульсном распределении фотонов 2γ-распада при облучении кристаллов низкоэнергетичными позитронами. С повышением температуры в импульсном распределении распадных фотонов отмечается исчезновение боковых и резкое уширение центрального пиков, свидетельствующие о локализации Ps [2]. Такой эффект термически активированной самолокализации позитрония наблюдался во многих ионных кристаллах и был теоретически проанализирован в [3, 4]. Исключение, как показано в недавних экспериментах, составляют лишь кристаллы MgF_2 и α-SiO_2 [5]. В этих кристаллах атом Ps остается делокализованным вплоть до температур $T \sim 700$ K (теоретическое объяснение этому факту было дано в [4]). При этом в MgF_2 наблюдается резкое (аномальное) уширение центрального и боковых позитрониевых пиков при температуре выше 200 K, объяснить которое рассеянием Ps на акустическом потенциале деформации (продольные акустические фононы) не удается. Эффект выглядит так, как будто при температуре выше 200 K активизируется дополнительный механизм рассеяния, перенормирующий константу акустического потенциала деформации позитрония таким образом, что она в узком температурном диапазоне от 200 до 355 K возрастает более чем в два раза. Аналогичный эффект не наблюдался в α-SiO_2, где температурное уширение центрального и боковых позитрониевых пиков в области температур 80 – 700 K

[1)] e-mail: bond@inp.minsk.by

хорошо объясняется его рассеянием на длинноволновых продольных акустических фононах.

В формализме температурных гриновских функций (см., например, [6]) равновесное импульсное распределение взаимодействующего с фононным полем атома Ps может быть представлено в виде [5]

$$N(p) \sim \int_0^\infty d\omega \, e^{-\omega/k_B T} \frac{\Gamma(p,\omega)}{(\omega - p^2/2M^*)^2 + \Gamma^2(p,\omega)} \,. \tag{1}$$

Здесь экспоненциальный фактор задает статистику Больцмана, поскольку в реальных экспериментальных условиях в образце находится один атом Ps. Неэкспоненциальный фактор есть записанная в явном виде функция квазичастичного спектрального распределения, где $\Gamma(p,\omega)$ – мнимая часть массового оператора взаимодействующего с фононным полем позитрония [6]. Последняя в режиме слабой фононной связи (делокализованный Ps) обычно записывается в первом неисчезающем (втором) порядке теории возмущений по взаимодействию с фононами:

$$\Gamma(p,\omega) = \pi \sum_{\mathbf{q}} |V_{\mathbf{q}}|^2 \left[(n_{\mathbf{q}} + 1)\, \delta(\omega - E_{\mathbf{k+q}} - \hbar\omega_{\mathbf{q}}) + n_{\mathbf{q}}\, \delta(\omega - E_{\mathbf{k+q}} + \hbar\omega_{\mathbf{q}}) \right], \tag{2}$$

(здесь $V_{\mathbf{q}}$ – матричный элемент взаимодействия, $E_{\mathbf{k}} = \hbar^2 \mathbf{k}^2/2M^*$ – энергия Ps с зонной массой M^* и квазиимпульсом $\mathbf{k} = \mathbf{p}/\hbar$, $n_{\mathbf{q}} = \{\exp(\hbar\omega_{\mathbf{q}}/k_B T) - 1\}^{-1}$ – фононная функция распределения, $\omega_{\mathbf{q}}$ – частота фонона с волновым вектором $\mathbf{q}$), что при учете только рассеяния на акустическом потенциале деформации дает [5]

$$\Gamma(p,\omega) \equiv \Gamma^{(a)}(p,\omega) = \frac{E_d^2\, k_B T M^{*\,3/2}}{\sqrt{2}\,\pi\,\hbar^3 u^2 \rho} \sqrt{\omega}\,, \tag{3}$$

где E_d – константа акустического потенциала деформации позитрония, u и ρ – соответственно скорость продольных звуковых колебаний и плотность кристалла.

Выражение (1) с учетом (3) хорошо описывает температурное уширение импульсного распределения Ps в α-кварце в области температур 80 – 700 К и не объясняет его в MgF_2 при температуре выше 200 К. В последнем случае наблюдается более резкое температурное уширение импульсного распределения, объяснить которое можно лишь, постулировав температурный рост (перенормировку) константы E_d в диапазоне 200 – 355 К с 7.6 эВ ниже 200 К до 16 эВ выше 355 К [5].

В данной работе анализируется роль рассеяния на оптическом потенциале деформации (неполярное оптическое рассеяние) для делокализованного атома Ps в ионных кристаллах. Взаимодействием Ps с индуцированными решеточными смещениями (акустическими либо оптическими) поляризационными полями пренебрегается ввиду его электрической нейтральности [7]. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, неполярное оптическое рассеяние (если оно не запрещено правилами отбора) приводит к перенормировке константы акустического потенциала деформации, тем самым объясняя наблюдавшийся в [5] эффект аномального уширения импульсного распределения Ps в MgF_2. Аналогичный эффект предсказывается для Ps в кристаллическом кварце при температуре выше 846 К – с переходом α-кварца в β-фазу.

Рассеяние на оптическом потенциале деформации и его роль для делокализованного Ps в ионных кристаллах. Известно, что в кристаллах с двумя и более атомами в элементарной ячейке существенную роль может играть рассеяние на длинноволновых неполярных оптических (короткодействующих) колебаниях – на оптическом потенциале деформации [8–10]. При этом в отличие от длинноволновых акустических колебаний, когда энергия взаимодействующей частицы пропорциональна производной решеточного смещения, оптическое смещение непосредственно влияет на энергию частицы в зоне. Рассеяние на оптическом потенциале деформации может оказаться существенным для делокализованного Ps в тех кристаллах, в которых отсутствует его термически активированная самолокализация, в частности, в кристаллах MgF_2 и α-SiO_2, при повышенных температурах, когда возбуждено достаточное число оптических фононов, а соответствующая константа связи – константа оптического потенциала деформации – отлична от нуля благодаря правилам отбора, диктуемым характером локальной симметрии в заданной точке зоны Бриллюэна кристалла [9, 10]. Действительно, хотя число акустических фононов много больше, чем оптических, тем не менее, квадрат матричного элемента взаимодействия с ними в $1/qa\,(\gg 1)$ раз меньше (здесь q – модуль волнового вектора фонона, a – постоянная кристаллической решетки), чем с оптическими [8]. Поэтому неполярное оптическое рассеяние может начать проявляться уже при не слишком высоких ($>\sim 100$ K) температурах.

Гамильтониан взаимодействия позитрония с оптическими фононами при неполярном оптическом рассеянии (оптический потенциал деформации) может быть представлен в виде [10]

$$H_{int}^{(o)} = \sqrt{\frac{\bar{M}}{M}}\ \mathbf{D}_o\cdot\mathbf{u}_o \simeq \sum_{\mathbf{k},\mathbf{q}} V_{\mathbf{q}}^{(o)} a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{+} a_{\mathbf{k}} \left(b_{\mathbf{q}\,o} - b_{-\mathbf{q}\,o}^{+}\right), \tag{4}$$

где $\mathbf{D}_o$ – векторная константа оптического потенциала деформации, $\mathbf{u}_o$ – оптическое решеточное смещение, $\bar{M}$ и M – соответственно приведенная масса пары и полная масса всех атомов элементарной ячейки. Правая часть равенства есть гамильтониан взаимодействия, записанный во вторично квантованном виде в изотропном приближении и в пренебрежении процессами переброса и вкладом от атомного формфактора Ps (см., например, [11]). Здесь $a_{\mathbf{k}}^{+}$ ($a_{\mathbf{k}}$) и $b_{\mathbf{q}\,o}^{+}$ ($b_{\mathbf{q}\,o}$) – операторы рождения и уничтожения, соответственно, атома Ps с квазиимпульсом $\mathbf{k}$ и длинноволнового оптического фонона постоянной частоты ω_o с волновым вектором $\mathbf{q}$,

$$V_{\mathbf{q}}^{(o)} = -iD_o\sqrt{\frac{\hbar}{2\,MN\omega_o}}, \tag{5}$$

где $D_o = |\mathbf{D}_o|$, N – число элементарных ячеек в кристалле.

Подставляя матричный элемент (5) в формулу (2), после несложных вычислений получаем обусловленный неполярным оптическим рассеянием вклад в мнимую часть массового оператора Ps в виде

$$\Gamma^{(o)}(p,\omega) = \frac{D_o^2\,M^{*\,3/2}\sqrt{\omega}}{2\sqrt{2}\,\pi\,\hbar^2\rho\,\omega_o}\left[(n(\omega_o)+1)\,\theta(1-\frac{\hbar\omega_o}{\omega})\sqrt{1-\frac{\hbar\omega_o}{\omega}} + n(\omega_o)\sqrt{1+\frac{\hbar\omega_o}{\omega}}\,\right], \tag{6}$$

где $n(\omega_o) = \{\exp(\hbar\omega_o/k_BT)-1\}^{-1}$ – бозе-эйнштейновская функция распределения оптических фононов, $\theta(x)$ – единичная функция Хевисайда. При этом полная (учитывающая рассеяния на акустическом и оптическом потенциалах деформации) мнимая часть массового оператора позитрония принимает с учетом (3),(6) вид

$$\Gamma(p,\omega) = \Gamma^{(a)}(p,\omega) + \Gamma^{(o)}(p,\omega) = \frac{\widetilde{E}_d^2(\omega)\, M^{*\,3/2}\, k_B T}{\sqrt{2}\,\pi\,\hbar^3 u^2 \rho}\sqrt{\omega}\,, \tag{7}$$

где

$$\widetilde{E}_d(\omega) = \left\{E_d^2 + \frac{\hbar u^2 D_o^2}{2\,k_B T\,\omega_o}\left[(n(\omega_o)+1)\,\theta(1-\frac{\hbar\omega_o}{\omega})\sqrt{1-\frac{\hbar\omega_o}{\omega}} + n(\omega_o)\sqrt{1+\frac{\hbar\omega_o}{\omega}}\,\right]\right\}^{1/2} \tag{8}$$

– “эффективная константа” деформационного потенциала. Формула (1) с учетом (7), (8) описывает температурную зависимость импульсного распределения делокализованного Ps, рассеивающегося на акустическом и оптическом потенциалах деформации. Далее, ввиду того, что в интеграл (1) основной вклад дают значения $\omega \sim k_B T$, зависимость $\widetilde{E}_d(\omega)$ в (8) может быть приближенно заменена зависимостью $\widetilde{E}_d(T)$, так что для “эффективной константы” деформационного потенциала имеем:

$$\widetilde{E}_d(T) \approx \left\{E_d^2 + \frac{\hbar u^2 D_o^2}{2\,k_B T\,\omega_o}\left[(n(\omega_o)+1)\,\theta(1-\frac{\hbar\omega_o}{k_B T})\sqrt{1-\frac{\hbar\omega_o}{k_B T}} + n(\omega_o)\sqrt{1+\frac{\hbar\omega_o}{k_B T}}\,\right]\right\}^{1/2}. \tag{9}$$

Легко видеть, что в пределе низких температур, $T \ll \hbar\omega_o/k_B$, когда не возбуждаются оптические фононы, выражение (9) стремится к значению E_d – константе акустического потенциала деформации Ps. В противоположном случае, $T \gg \hbar\omega_o/k_B$, имеем $\widetilde{E}_d = \sqrt{E_d^2 + (uD_o/\omega_o)^2}$ – не зависящую от температуры эффективную константу позитроний-фононного взаимодействия. Таким образом, с ростом температуры неполярное оптическое рассеяние перенормирует константу акустического потенциала деформации Ps. Именно такая ситуация, как уже говорилось выше, экспериментально наблюдалась для делокализованного Ps в кристалле MgF_2. Поэтому наблюдавшийся эффект может быть объяснен неполярным оптическим рассеянием позитрония. Этот вывод подтверждается и получающимися из сравнения с экспериментом разумными оценками для константы оптического потенциала деформации D_o. Подставляя экспериментально измеренные значения 7.6 эВ (ниже 200 K) и 16 эВ (выше 355 K) [5], соответственно, вместо E_d и $\widetilde{E}_d$ в высокотемпературный предел формулы (9), получаем для MgF_2 оценку $D_o/\omega_o \sim 2\cdot 10^{-5}$ эВ · с/см (для скорости звука использовалось усредненное по кристаллографическим направлениям значение $u \approx 7\cdot 10^5$ см/с [12]). Если далее принять, что $\omega_o \sim 5\cdot 10^{13}$ $с^{-1}$ – значение средней частоты акустического фонона с волновым вектором, соответствующим границе зоны Бриллюэна кристалла MgF_2 (оценивалось из соотношения $\omega_o \sim u\,\pi/(2a/3 + c/3)$, где $a = 4.64$ Å и $c = 3.06$ Å – решеточные константы MgF_2 [13]), то для константы оптического потенциала деформации атома Ps в MgF_2 получаем разумную оценку $D_o \sim 1 \cdot 10^9$ эВ/см. Для сравнения укажем, что характерные значения констант оптического потенциала деформации электронов и дырок в полупроводниках составляют $\sim 5 \cdot 10^8$ эВ/см [10]. В частности, например, для электронов в германии $D_o = 7 \cdot 10^8$ эВ/см [14].

Тот факт, что неполярное оптическое рассеяние позитрония наблюдается в кристалле MgF_2 и не наблюдается в кристалле α-SiO_2, может быть объяснен обращением в нуль константы оптического потенциала деформации D_o в центре (Г-долина) зоны Бриллюэна α-SiO_2 в силу невыполнения правил отбора, диктуемых локальной симметрией обратной решетки в этой точке **k**-пространства. Известно, например, что для кубических решеток рассеяние нулевого порядка на оптическом потенциале деформации разрешено для вырожденных и запрещено для невырожденных Г-долин [9, 10]. Это несложно понять из общих теоретико-групповых соображений. Константа D_o определяется матричным элементом оператора возмущения, каковым в данном случае является изменение решеточного потенциала за счет оптических вибраций, взятом на блоховских волновых функциях частицы в кристалле в окрестности минимума ее зоны [8, 9]. Для невырожденных Г-долин в кубических кристаллах этот матричный элемент преобразуется по единичному представлению точечной группы кристалла, тогда как оптические фононные ветви трехкратно вырождены, то есть соответствующие им нормальные решеточные колебания преобразуются по одному из трехмерных представлений. В такой ситуации взаимодействие (4) не является инвариантом относительно преобразований точечной группы и потому тождественно обращается в нуль (или, другими словами, $D_o \equiv 0$). Поэтому рассеяние на оптическом потенциале деформации отсутствует в невырожденных и имеет место в трехкратно вырожденных Г-долинах кубических кристаллов. Если же точечная группа кристалла имеет симметрию ниже кубической (некубические кристаллы), то трехмерное представление, по которому преобразуются оптические колебания в Г-долине, является приводимым. Если среди неприводимых представлений, содержащихся в нем, окажется представление размерности, равной кратности вырождения Г-долины, то оптические моды, преобразующиеся по этому представлению, будут входить во взаимодействие (4), обеспечивая его инвариантность относительно преобразований точечной группы кристалла. Для таких оптических мод $D_o \neq 0$, и эти моды будут вызывать неполярное оптическое рассеяние частицы.

Сказанное позволяет предсказать новый интересный эффект для делокализованного Ps в кристаллическом кварце. Известно, что при температуре выше 846 K кристаллический кварц испытывает фазовый переход из α- в β-фазу [15]. При этом симметрия его решетки повышается с D_3 до D_6. Точечная группа D_6 изоморфна группе C_{6v} кристаллов со структурой вюрцита, деформационные свойства которых с точки зрения теории симметрии детально исследовались в монографии [9], и потому имеет те же групповые представления для Г-долины зоны Бриллюэна и, соответственно, те же правила отбора для рассеяния на оптическом потенциале деформации. Согласно [9], точечная группа C_{6v} (и изоморфная ей группа D_6) допускают невырожденные и двукратно вырожденные Г-долины зон Бриллюэна соответствующих кристаллов, в то время как допустимые размерности представлений, по которым преобразуются оптические фононные моды в центре зоны Бриллюэна, могут быть одномерными и двумерными. Поэтому, какова бы ни была кратность вырождения Г-долины, всегда найдется оптическая мода, преобразующаяся по представлению размерности, равной значению этой кратности. Эта мода будет входить во взаимодействие (4), давая ненулевой вклад в рассеяние частиц на оптическом потенциале деформации в Г-долинах кристаллов точечных групп C_{6v} и D_6. Отсюда следует, что неполярное оптическое рассеяние Ps, отсутствовавшее в кристалле α-SiO_2, должно проявиться с переходом α-кварца в β-фазу – выше 846 K, и эффект аномального уширения импульсного распределения, аналогичный наблюдавшемуся в MgF_2, должен наблюдаться для Ps в кристалле β-SiO_2.

Автор признателен Л.В.Келдышу, Л.И.Комарову, В.Н.Кушниру и И.Д.Феранчуку за полезные обсуждения.

---

1. A.Dupasquier, in: *Positron Solid-State Physics*, Eds W.Brandt and A.Dupasquier, Amsterdam, North-Holland, 1983, p. 510.
2. J.Kasai, T.Hyodo, and K.Fujiwara, J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 329 (1988).
3. I.V.Bondarev and T.Hyodo, Phys. Rev. **B57**, 11341 (1998).
4. I.V.Bondarev, Phys. Rev. **B58**, 12011 (1998).
5. Y.Nagai, M.Kakimoto, H.Ikari, and T.Hyodo, Mat. Sci. Forum **255-257**, 596 (1997).
6. G.D.Mahan, *Many-particle physics*, New York, Plenum Press, 1981.
7. О.В.Боев, К.П.Арефьев, Изв. вузов, Физика **25**, 118 (1982).
8. Г.Л.Бир, Г.Е.Пикус, ФТТ **2**, 2287 (1982).
9. Г.Л.Бир, Г.Е.Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972.
10. Б.Ридли, *Квантовые процессы в полупроводниках*, М.: Мир, 1986 (B.K.Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors*, Oxford, Clarendon Press, 1982).
11. И.В.Бондарев, Письма в ЖЭТФ **69**, 215 (1999).
12. K.S.Aleksandrov, L.A.Shabanova, and V.I.Zinenko, Phys. Stat. Sol. **33**, K1 (1969).
13. *Справочник химика*, под ред. Б.П.Никольского, Л.: Химия, 1971.
14. M.Neuberger, *Handbook of Electronic Materials*, New York, Plenum Press, 1971.
15. *Акустические кристаллы*, под ред. М.П.Шаскольской, М.: Наука, 1982.