Письма в ЖЭТФ, том 69, вып.3, стр.215 - 219 © 1999г. 10 февраля

О РОЛИ ПРОЦЕССОВ ПЕРЕБРОСА ПРИ РАССЕЯНИИ ДЕЛОКАЛИЗОВАННОГО ПОЗИТРОНИЯ НА АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНАХ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

И.В.Бондарев[1)]

НИИ ядерных проблем Белорусского государственного университета 220050 Минск, Беларусь

Поступила в редакцию 5 января 1999 г.

Проанализировано влияние процессов переброса при рассеянии делокализованных атомов позитрония на акустических фононах в ионных кристаллах. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, рассеяние с перебросом приводит к перенормировке константы деформационного потенциала позитрония. Именно такая перенормировка наблюдалась недавно в экспериментах по измерению импульсного распределения делокализованного позитрония в кристалле MgF_2.

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 щелочно-галоидных кристаллах (ЩГК), а также в кристаллическом 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 пика, свидетельствующее о локализации Ps [2]. Такой эффект термически активированной самолокализации позитрония наблюдался почти во всех ЩГК 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 работе [4]). При этом в MgF_2 наблюдается резкое уширение центрального и боковых позитрониевых пиков при температуре выше 200 K, объяснить которое нормальным рассеянием Ps на продольных акустических фононах не удается. Эффект выглядит так, как будто при температуре выше 200 K активизируется дополнительный механизм рассеяния, перенормирующий константу деформационного потенциала 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 хорошо объясняется его нормальным рассеянием на акустических фононах.

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

В данной работе рассмотрена роль процессов переброса при рассеянии блоховского Ps на акустических фононах в ионных кристаллах. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, рассеяние с перебросом приводит к перенормировке константы деформационного потенциала позитрония. Анализируется проявление этого эффекта для Ps в кристаллах MgF_2 и α-SiO_2.

Взаимодействие позитрония с акустическими фононами с учетом процессов переброса. Будем рассматривать взаимодействие блоховского Ps с акустическими фононами, основываясь на теории потенциала деформации Бардина – Шокли [6]. Взаимодействием Ps с полярными оптическими фононами в ЩГК пренебрегаем ввиду электронейтральности атома Ps [7]. Тогда полный гамильтониан (с учетом процессов переброса), описывающий взаимодействие Ps с продольными акустическими фононами, имеет вид [8]

$$H_{int} = \sum_{\mathbf{k},\mathbf{q},\mathbf{g}} V_a(\mathbf{q})\, a^+_{\mathbf{k}+\mathbf{q}+\mathbf{g}}\, a_{\mathbf{k}}\, (b_{\mathbf{q}} - b^+_{-\mathbf{q}})\,. \qquad (1)$$

Здесь $a^+_{\mathbf{k}}$ ($a_{\mathbf{k}}$) – операторы рождения (уничтожения) атома Ps с квазиимпульсом $\mathbf{k}$, $b^+_{\mathbf{q}}$ ($b_{\mathbf{q}}$) – операторы рождения (уничтожения) продольного акустического фонона с волновым вектором $\mathbf{q}$ и частотой $\omega(\mathbf{q})$, $\mathbf{g}$ – вектор обратной решетки кристалла, удовлетворяющий соотношению

$$\mathbf{k} + \mathbf{q} + \mathbf{g} = \mathbf{k}', \qquad (2)$$

где $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$ – векторы квазиимпульсов позитрония до и после рассеяния на фононе с волновым вектором $\mathbf{q}$, соответственно. Матричный элемент взаимодействия $V_a(\mathbf{q})$ имеет вид [4]

$$V_a(\mathbf{q}) = 2F_a(\mathbf{q})\, \langle 1S_{1/2}|\cos\Big(\frac{\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}{2}\Big)|1S_{1/2}\rangle = \frac{2F_a(\mathbf{q})}{(1+(q\,a_B/4)^2)^2}\,, \qquad (3)$$

где усреднение выполняется по основному $|1S_{1/2}\rangle$-состоянию относительного движения частиц в атоме Ps, $\mathbf{r}$ – радиус-вектор относительного движения, a_B – боровский радиус позитрония;

$$F_a(\mathbf{q}) = -iE_d\sqrt{\frac{\hbar}{2NM\omega(\mathbf{q})}}\,|\mathbf{q}|\,, \qquad (4)$$

где E_d – константа деформационного потенциала, N – число элементарных ячеек в кристалле, M – суммарная масса атомов элементарной ячейки.

Взаимодействие (1) состоит из двух частей. Член с $g = 0$ отвечает процессам нормального рассеяния на продольных акустических фононах с законом дисперсии, обычно аппроксимируемым линейной зависимостью $\omega(\mathbf{q}) = uq$, где u – средняя скорость продольных звуковых колебаний в кристалле (см., например, [8]). Член с $\mathbf{g} \neq 0$ описывает процессы рассеяния с перебросом (Umklapp processes). Число ненулевых векторов $\mathbf{g}$, по которым производится суммирование, ограничено условием (2), поскольку квазиимпульсы $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$ принадлежат 1-й зоне Бриллюэна кристалла. Фактически, ненулевые $\mathbf{g}$ – это векторы, соединяющие центр 1-й зоны Бриллюэна с центрами ближайших окружающих зон в обратном пространстве. Оценка характерного значения квазиимпульса термализованного позитрония задается соотношением $k/(g/2) \sim 10^{-2}\sqrt{T}$, то есть квазиимпульс мал по сравнению со своим предельным значением $g/2$ вплоть до температур порядка нескольких тысяч K. Это означает, что процессы рассеяния с перебросом должны быть в основном обусловлены рассеянием атома Ps на фононах с большими ($\sim g/2$) волновыми векторами. Тогда сумма $\mathbf{k}+\mathbf{q}$ в (2) превышает граничное значение, и необходимо добавить к ней ненулевой вектор обратной решетки $\mathbf{g}$, чтобы квазиимпульс $\mathbf{k}'$ после рассеяния опять оказался в 1-й зоне Бриллюэна. Это и означает, что произошло рассеяние с перебросом, физически соответствующее рассеянию на большие ($\sim\pi$) углы.

В первом приближении волновые векторы фононов переброса могут, очевидно, быть аппроксимированы константой $\bar{q} \sim g/2$. Их частоты могут быть оценены (в приближении простой кубической решетки с периодом a) из закона дисперсии длинноволновых решеточных вибраций [8]:

$$\omega(\mathbf{q}) = \frac{2u}{a}\left|\sin\!\left(\frac{\mathbf{q}\cdot\mathbf{a}}{2}\right)\right|, \tag{5}$$

что для $\bar{q} = g/2 = \pi/a$ дает константу $\omega_1 = 2u/a$, соответствующую характерной температуре

$$T_1 = \hbar\omega_1/k_B < T_D \tag{6}$$

(здесь k_B – постоянная Больцмана, T_D – дебаевская температура кристалла), выше которой вклад от рассеяния с перебросом в полное рассеяние позитрония на акустических фононах становится существенным. Тогда матричный элемент $V_a^{(u)}(\mathbf{q})$ отвечающей Umklapp-процессам части взаимодействия (1) можно приближенно считать константой, равной $V_a^{(u)}(\bar{q})$. Соответствующий гамильтониан $H_{int}^{(u)}$, описывающий процессы рассеяния с перебросом, принимает тогда с учетом (1) – (5) вид

$$H_{int}^{(u)} \simeq V_a^{(u)} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{q}} a^{+}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}+\mathbf{g}}\, a_{\mathbf{k}}\, (b_{\mathbf{q}} - b^{+}_{-\mathbf{q}})\,, \tag{7}$$

где $V_a^{(u)} = -2\,iE_d^{(1)}\sqrt{\hbar/2MN\omega_1}$, $E_d^{(1)} = E_d\,\bar{q}\,\nu$ – аналог константы деформационного потенциала для рассеяния с перебросом, ν – число ближайших соседей в обратном пространстве и пренебрегается незначительным вкладом от относительного движения частиц в составе атома Ps (см. (3)).

Перенормировка константы деформационного потенциала. В полной аналогии с гамильтонианом (1) массовый оператор Ps, взаимодействующего с полем продольных акустических фононов, также состоит из двух частей:

$$\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) = \Sigma_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega) + \Sigma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega)\,, \tag{8}$$

отвечающих нормальным ($\Sigma_{\mathbf{k}}^{(n)}$) и Umklapp ($\Sigma_{\mathbf{k}}^{(u)}$) процессам. Вклад от рассеяния с перебросом во втором порядке теории возмущений по взаимодействию (7) имеет вид

$$\Sigma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) = \Delta_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) - i\,\Gamma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) =$$
$$= |V_a^{(u)}|^2 \sum_{\mathbf{q}} \left\{ \frac{n(\omega_1)+1}{\omega - E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}+\mathbf{g}} - \hbar\omega_1 + i\delta} + \frac{n(\omega_1)}{\omega - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}+\mathbf{g}} + \hbar\omega_1 + i\delta} \right\}, \tag{9}$$

где $E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}+\mathbf{g}} = E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} = \hbar^2(\mathbf{k}+\mathbf{q})^2/2M^*$ – зонная энергия Ps, M^* – его зонная масса, $n(\omega_1) = \{\exp(\hbar\omega_1/k_BT) - 1\}^{-1}$ – бозе-эйнштейновская функция распределения фононов переброса. Для мнимой части выражения (9), определяющей затухание квазичастичного позитрониевого состояния из-за рассеяния с перебросом, имеем

$$\Gamma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) = \pi |V_a^{(u)}|^2 \sum_{\mathbf{q}} \left\{ (n(\omega_1)+1)\,\delta(\omega - E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - \hbar\omega_1) + n(\omega_1)\,\delta(\omega - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + \hbar\omega_1) \right\}. \quad (10)$$

Из (10) при условии $\omega > \hbar\omega_1 \gg \hbar^2 k^2/2M^*$ получаем

$$\Gamma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) \simeq \frac{E_d^{(1)\,2}(2M^*)^{3/2}\, n(\omega_1)}{\pi\, \hbar^2 \rho\, \omega_1} \sqrt{\omega}, \quad (11)$$

где ρ – плотность кристалла. Тогда мнимая часть полного массового оператора (8) равна

$$\Gamma_{\mathbf{k}}(\omega) = \Gamma_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega) + \Gamma_{\mathbf{k}}^{(u)}(\omega) = \frac{(2M^*)^{3/2} k_B T}{\pi\, \hbar^3 \rho\, u^2} \left\{ E_d^2 + \frac{\hbar u^2 E_d^{(1)\,2} n(\omega_1)}{\omega_1\, k_B T} \right\} \sqrt{\omega}, \quad (12)$$

где

$$\Gamma_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega) = \frac{E_d^2 (2M^*)^{3/2} k_B T}{\pi\, \hbar^3 \rho\, u^2} \sqrt{\omega} \quad (13)$$

– мнимая часть массового оператора $\Sigma_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega)$ (см. (8)), описывающего процессы нормального рассеяния (см., например, [5], где необходимо выполнить замену $E_d \to 2E_d$ в соответствии с нашим определением матричного элемента взаимодействия (3), (4)). Выражение (11) может быть переписано в виде

$$\Gamma_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega) = \frac{\tilde{E}_d^2 (2M^*)^{3/2} k_B T}{\pi\, \hbar^3 \rho\, u^2} \sqrt{\omega}, \quad (14)$$

где

$$\tilde{E}_d = \sqrt{E_d^2 + \frac{\hbar u^2 E_d^{(1)\,2} n(\omega_1)}{\omega_1 k_B T}} \simeq \begin{cases} E_d\,, & \text{если } T < T_1 \\ \sqrt{E_d^2 + (u E_d^{(1)}/\omega_1)^2}\,, & \text{если } T > T_1 \end{cases}, \quad (15)$$

откуда следует, что процессы рассеяния с перебросом при температурах, выше которых они становятся существенными, приводят к перенормировке константы деформационного потенциала E_d позитрония.

Как уже указывалось выше, эффект перенормировки константы деформационного потенциала E_d делокализованного Ps экспериментально наблюдался в кристалле MgF_2 в области температур 200-355 K и не наблюдался в α-SiO_2 [5]. Именно, в кристалле MgF_2 был зарегистрирован плавный рост E_d от значения 7.6/2 эВ при $T < 200$ K до 16/2 эВ при $T > 355$ K (приведенные значения уменьшены по сравнению с [5] в два раза в соответствии с обозначениями, принятыми в данной работе, см. также пояснения к формуле (13)). С точки зрения предложенной выше модели результаты эксперимента в MgF_2 легко объяснимы. Действительно, в MgF_2 температура T_1, оцененная из (6), составляет ~ 230 K (для получения оценки в формулу (6) вместо a подставлялось значение наибольшей из констант ($c = 3.06$ Å, $a = 4.64$ Å [9]) тетрагональной решетки MgF_2. Для скорости звука использовались экспериментальные данные работы [10], усредненные по кристаллографическим направлениям, так что $u \approx 7.1 \cdot 10^5$ см/с). Это означает, что в области температур $T >\sim 200$ K активизируется процесс рассеяния с перебросом. При этом, согласно (15), эффективная константа деформационного потенциала позитрония плавно возрастает от E_d до $\sqrt{E_d^2 + (uE_d^{(1)}/\omega_1)^2}$. Значение отношения $E_d^{(1)}/\omega_1$ может быть оценено из сопоставления с экспериментальными данными для температур выше 355 K. Это дает $E_d^{(1)}/\omega_1 \approx 1 \cdot 10^{-5}$ эВ·с/см. Если, далее, в соответствии с (5) принять для ω_1 оценку $\omega_1 \approx 3 \cdot 10^{13}$ с$^{-1}$, то для $E_d^{(1)}$ получаем разумное значение $E_d^{(1)} \approx 3 \cdot 10^8$ эВ /см. Аналогичные по порядку величины оценки получаются, например, для констант связи, характеризующих междолинное рассеяние электронов на фононах в полупроводниках (см., например, [11]).

Тот факт, что перенормировка константы деформационного потенциала не наблюдалась для позитрония в α-SiO_2, связан, по-видимому, с недостаточной точностью ее определения в этом кристалле. В кварце температура T_1, согласно (6), составляет ~ 170 K (для оценки использовались данные из [12]. Вместо a в формулу (6) подставлялось значение наибольшей из констант тригональной решетки α-SiO_2), то есть рассеяние с перебросом должно было бы "перенормировать" константу E_d позитрония, начиная с еще более низких температур, чем в MgF_2. Однако точность определения E_d в кварце составляет, согласно [5], 1.4 эВ ($E_d = 3.6 \pm 0.7$ эВ в обозначениях [5]), что почти на порядок величины хуже, чем в MgF_2. Таким образом, рост E_d из-за рассеяния с перебросом в 1.5–2 раза (как это имеет место в MgF_2) вполне мог бы маскироваться недостаточной точностью определения E_d из экспериментальных данных. В этой связи было бы чрезвычайно интересно повторить эксперименты на α-SiO_2 с улучшенной точностью.

Автор признателен Л.И.Комарову, С.А.Кутеню и Т.Хиодо[2)] за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки республики Беларусь (грант #19971274) и Фонда фундаментальных исследований НАН республики Беларусь (грант #M97-054).

1. T.Hyodo, in: *Positron Annihilation*, Eds. P.C.Jain, R.M.Singru, and K.P.Gopinathan, World Scientific, 1985, p. 643.
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); ФТТ **38**, 2038 (1996).
5. Y.Nagai, M.Kakimoto, H.Ikari, and T.Hyodo, Mat. Sci. Forum **255-257**, 596 (1997).
6. J.Bardeen and W.Shockly, Phys. Rev. **80**, 72 (1950).
7. О.В.Боев, К.П.Арефьев, Изв. вузов., Физика **25**, 118 (1982).
8. А.С.Давыдов, *Теория твердого тела*, М.: Наука, 1976.
9. *Справочник химика*, под ред. Б. П. Никольского, Л.: Химия, 1971.
10. K.S.Aleksandrov, L.A.Shabanova, and V.I.Zinenko, Phys. Stat. Sol. **33**, K1 (1969).
11. Б.Ридли, *Квантовые процессы в полупроводниках*, М.: Мир, 1986 (B.K.Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors*, Oxford, Clarendon Press, 1982).
12. *Акустические кристаллы*, под ред. М.П.Шаскольской, М.: Наука, 1982.

[2)] Professors: L.I.Komarov, S.A.Kuten, T.Hyodo.