

УДК 539.21 : 539.189.2

© 1992

АННИГИЛЯЦИЯ ПОЗИТРОНОВ, СВЯЗАННЫХ С ОТРИЦАТЕЛЬНЫМИ ИОНАМИ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ СРЕДЕ

Е. П. Прокопьев

Расчеты в приближенных Пекара—Томасевич и Симпсона—Уиллса подтвердили экспериментальные наблюдения системы e^+H^- в диэлектрическом континууме кристалла MgO.

1. Постановка задачи

Эксперименты по аннигиляции позитронов в кристаллах MgO, содержащих ионы H^- [1], объясняются на основании модели связанных позитронов с ионами H^- (системы e^+H^- [2]). Поэтому представляется интерес расчеты e^+H^- в диэлектрической среде. Для этого можно использовать метод, разработанный Винецким и Мередовым [3] на основании теории Пекара [4] электронных состояний в ионных кристаллах. Гамильтониан системы два лишних электрона и позитрон вблизи кулоновского центра в ионном кристалле в континуальном приближении Пекара [4] имеет вид

$$\hat{H} = H_{\text{хол}}(q) + H_1(\mathbf{r}_1, q) + H_2(\mathbf{r}_2, q) + H_3(\mathbf{r}_3, q) + e^2/\varepsilon_0 |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| - \\ - e^2/\varepsilon_0 |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_3| - e^2/\varepsilon_0 |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_3| - Ze^2/\varepsilon r_1 - Ze^2/\varepsilon r_2 + Ze^2/\varepsilon r_3. \quad (1)$$

Здесь мы считаем, что в начале системы отсчета находится кулоновский центр с зарядом Ze (в случае e^+H^- $Z=1$); $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$ и \mathbf{r}_3 — радиус-векторы электронов (\mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2) и позитрона (\mathbf{r}_3) соответственно: $H_i = T_e^-(\mathbf{r}_i) + V_p(\mathbf{r}_i, q)$, $i=1, 2$ и $H_3 = T_e^+(\mathbf{r}_3) - V_p(\mathbf{r}_3, q)$, где T_e — оператор кинетической энергии, $V_p(\mathbf{r}_i, q)$ — потенциал взаимодействия фермиона с макроскопическим дипольным моментом, который создается в кристалле электрическим полем самого фермиона и включает в себя лишь инерционную часть поляризации, вклад которой пропорционален $c = 1/\varepsilon_0 - 1/\varepsilon - (\varepsilon_0 = n^2 - \text{квадрат преломления света, } \varepsilon - \text{диэлектрическая проницаемость кристалла})$. Оператор $H_{\text{хол}}(q)$ относится к гармоническим колебаниям атомов кристалла, описываемых вектором поляризации $\mathcal{P}(\mathbf{r})$, который разлагается в ряд по нормальным координатам q_x . В таком приближении $V_p(\mathbf{r}_i, q)$ имеет вид

$$V_p(\mathbf{r}_i, q) = \sum_x C_x q \chi_{-x}(\mathbf{r}_i), \quad (2)$$

где

$$C_x = -(e/|\mathbf{x}|)(4\pi c \hbar \omega_x)^{1/2}, \\ \chi_{-x}(\mathbf{r}) = (2/V)^{1/2} \sin(\mathbf{x}\mathbf{r}_i + \pi/4)$$

— базисная система функций, ω_x — частота нормальных колебаний, V — объем основной области кристалла. Шесть последних членов в (1) описывают кулоновские взаимодействия электронов и позитрона и их взаимодействие с кулоновским центром.

Как и в [4], уравнение Шредингера с оператором (1) решается в адиабатическом приближении, когда задача сводится к минимизации функционала J от волновой функции системы $\varphi(r_1, r_2, r_3)$

$$J[\psi] = T_e^-(1) + T_e^-(2) + T_e^+(3) + V_p + e^2 r_{12}^{-1} / \epsilon_0 - \\ - e^2 r_{13}^{-1} / \epsilon_0 - e^2 r_{23}^{-1} / \epsilon_0 - Ze^2 / \epsilon (r_1^{-1} + r_2^{-1} - r_3^{-1}). \quad (3)$$

Здесь

$$T_e = (\hbar^2 / 2m_{\pm}) \int (\nabla_i \psi)^2 d\tau_{1,2,3}, \quad (4)$$

m_{\pm} — эффективная масса электрона и позитрона,

$$V_p = -\frac{1}{2} \Sigma \hbar \omega_x (q_x^0)^2 = 2\pi c e^2 \Sigma (\chi_{-x}^2 / \kappa^2), \quad (5)$$

где при $m_+ = m_- = m_0$

$$V_p = -2ce^2 \int \psi^2(r_1, r_2, r_3) \psi^2(r'_1, r'_2, r'_3) |r_1 - r'_1|^{-1} d\tau_{1,2,3} d\tau'_{1,2,3}. \quad (6)$$

Теперь можем минимизировать функционал (3) по $\psi(r_1, r_2, r_3)$ и найти энергию и волновую функцию основного состояния системы двух электронов, позитрона и положительного заряженного центра в поляризующейся среде.

2. Волновые функции и энергии

Упростим задачу (1)–(6). Как установлено в [1], система e^+H^- расположена в окрестности анионной вакансии. Предполагая, что протон расположен в междоузлии, можем вначале определить волновые функции и энергию иона H^- , используя известный метод Пекара и Томасевич [4] расчета F' -центров в щелочно-галогидных кристаллах (ЩГК) с зарядом $Z = 1$. В этом случае функционал (3) записывается в виде

$$J_{F'}[\psi] = \frac{\hbar^2}{m_-} \int |\nabla \psi|^2 d\tau - \frac{c'}{4\pi} \int D^2[\psi, r] d\tau - \frac{2Ze^2}{\epsilon} \int \frac{|\psi|^2}{r} d\tau, \quad (7)$$

где, согласно Пекару [4],

$$\mathcal{P}(r) = \frac{c}{2\pi} D[\psi, r],$$

$$D[\psi, r_1] = -e \int |\psi(r)|^2 \frac{(r - r_1)}{|r - r_1|^3} d\tau, \quad (8)$$

$$c' = 1/\epsilon_0 - 2/\epsilon. \quad (9)$$

Функционал (7) минимизируется посредством варьирования ψ . Согласно Пекару и Томасевич [4], волновая функция иона H^- в междоузлии есть

$$\psi_{F'} = A(1 + \alpha_{F'} r) e^{-\alpha_{F'} r}, \quad (10)$$

$$A = \frac{\alpha_{F'}^{3/2}}{(7\pi)^{1/2}}, \quad \alpha_{F'} = \frac{m_- e^2}{2\hbar^2} \left(c' + \frac{3Z}{\epsilon} \right). \quad (11)$$

Энергия основного состояния иона H^- в диэлектрическом континууме дается выражением

$$J_{F'}[\psi_{F'}] = -\frac{m_- e^4}{\hbar^2} \left(\frac{Z}{\epsilon} + \frac{c'}{\epsilon} \right)^2, \quad (12)$$

а энергия тепловой диссоциации H^- в диэлектрической среде равна ($Z = 1$)

$$W_{F'} = \frac{m_- e^4}{2\hbar^2 \epsilon} \left[\frac{2}{9} \frac{1}{\epsilon_0} - \frac{1}{3\epsilon} \right] - \frac{3}{2} \hbar \omega. \quad (13)$$

Из этого выражения следует, что энергия тепловой диссоциации H^- составляет величину порядка 0.1 эВ и эта система динамически стабильна в диэлектрической среде.

Волновую функцию ψ_+ позитрона в системе e^+H^- и его энергию связи W_+ с ионом H^- в диэлектрическом континууме можем определить по методу Симпсона—Уиллса [5]

$$\psi_+ = B e^{-\beta r},$$

$$B = \beta^{3/2} / \sqrt{\pi},$$

$$\beta = \frac{m_+^*}{16} \left(\frac{5}{\epsilon_0} + \frac{11}{\epsilon} \right), \quad (14)$$

$$W_+ = 0.053 m_+^* \left(\frac{5}{\epsilon_0} + \frac{11}{\epsilon} \right) \left(\frac{15}{\epsilon_0} + \frac{1}{\epsilon} \right), \quad \text{эВ.} \quad (15)$$

Энергия связи позитрона с ионом H^- в диэлектрической среде, оцененная по формуле (15), составляет величину порядка >1 эВ в ЩГК, а в MgO — порядка 0.75 эВ.

3. Время жизни позитрона относительно двухквантовой аннигиляции и угловое распределение аннигиляционных фотонов (УРАФ)

Время жизни позитрона в системе e^+H^- в диэлектрическом континууме ЩГК и окислов может быть рассчитано по формуле (см., например, [2])

$$\tau = 5 \cdot 10^{-10} \frac{\rho_0}{\bar{\rho}}, \quad \text{с}, \quad (16)$$

где $\rho_0 = 1/8\pi = 0.04$ — электронная плотность в нуле в атоме позитрония в ат. ед.; $\bar{\rho}$ — среднее значение электронной плотности по положению позитрона в H^-

$$\bar{\rho} = 2 \int \psi_{F'}^2(r) \psi_+^2(r) dr. \quad (17)$$

Подставляя (10) и (14) в (17), получаем

$$\bar{\rho} = 8\pi A^2 B^2 \left[\frac{1}{4(\alpha_{F'} + \beta)^3} + \frac{3\alpha_{F'}}{4(\alpha_{F'} + \beta)^4} + \frac{3\alpha_{F'}^2}{4(\alpha_{F'} + \beta)^5} \right]. \quad (18)$$

Кривые УРАФ для системы $e^+\text{H}^-$ в диэлектрическом континууме определяются формулой [2]

$$P(k_z) = \int_{k_z}^{\infty} S^2 k dk / \int_0^{\infty} S^2 k dk, \quad (19)$$

где

$$S = \frac{4\pi}{k} \int_0^{\infty} \psi_{F'} \psi_+ \frac{\sin kr}{r} r^2 dr. \quad (20)$$

Подставляя (10) и (14) в (20), получаем из (19) выражение для кривых УРАФ

$$P(k_z) = (\alpha_{F'} + \beta)^6 / [\alpha_{F'} + \beta)^2 + k_z^2]^3. \quad (21)$$

Заметим, что выражение (21) получено с учетом в (19) наиболее значимого первого члена. Из выражения (21) легко определяется полуширина Γ кривых УРАФ

$$\Gamma \approx 3.7 (\alpha_{F'} + \beta), \quad \text{мрад}. \quad (22)$$

4. Обсуждение результатов

В таблице приведены рассчитанные по формулам (16), (22) значения времени жизни позитрона и полуширин кривых УРАФ для системы $e^+\text{H}^-$ в ряде ШГК и окислах Al_2O_3 и MgO .

Времена жизни и полуширины кривых УРАФ в ряде ШГК и окислов

Кристалл	τ , нс	Γ , мрад	Кристалл	τ , нс	Γ , мрад
NaCl	2.2	4.0	Al_2O_3	21*	2.31*
NaBr	6.67	3.81		1.33**	5.44**
NaI	8.0	3.71	MgO	62.5*	1.74*
KCl	6.67	3.33		1.39**	5.30**
KBr	7.4	3.20	$e^+\text{H}^-$	0.478 [7]	
KI	9.5	3.05		4.5 [2]	

Примечание. * Значения m_{\pm} в MgO и Al_2O_3 приняты равными m_0 . ** Значения m_{\pm} в MgO и Al_2O_3 определены из соотношения $e^0/m_{\pm} \sim 2.5$ [6].

Из этой таблицы следует, что времена жизни позитрона, связанного с ионом H^- в диэлектрическом континууме ЩГК и окислов, рассчитанные в приближениях Пекара—Томасевич и Симпсона—Уиллса, составляют величины порядка 1 нс, в то время как экспериментальное значение времени жизни позитрона в системе $e^+\text{H}^-$ в кристалле MgO равно 0.57 нс ($\Gamma = 3.2$ [2]). Как видим, расхождение расчетных и экспериментальных времен жизни довольно значительное. Это обусловлено, по нашему мнению, в первую очередь неучетом электронно-позитронной корреляции в использованных приближениях расчета $e^+\text{H}^-$ в диэлектрической среде. Действительно, расчеты Лебеды и Шрадера [7] времен жизни позитрона в свободной системе $e^+\text{H}^-$ с учетом электронно-позитронной корреляции и конфигурационного взаимодействия дают $\tau = 0.478$ нс. Расчеты же в одноэлектронном приближении Хартри—Фока без учета корреляционных эффектов дали $\tau = 4.5$ нс [2]. Величина τ Лебеды и Шрадера близка экспериментальному значению $\tau = 0.57$ нс для системы $e^+\text{H}^-$ в кристалле MgO . Другой причиной расхождения расчетных и экспериментальных значений τ является неучет процесса «pick-off» аннигиляции связанного позитрона на электронах атомов, окружающих систему $e^+\text{H}^-$ в кристалле. Это время жизни позитрона в дираковском приближении составляет величину порядка 1 нс. С учетом процесса «pick-off» аннигиляции расчетные и экспериментальные значения τ близки друг другу в кристалле MgO . Расчетные и экспериментальные значения полуширин кривых УРАФ удовлетворительно согласуются между собой, что подтверждает полученные результаты для системы $e^+\text{H}^-$ в вакууме [2]: совпадение расчетных значений Γ для LiH очень хорошее, в то время как расхождение расчетных и экспериментальных значений τ велико. К сожалению, отсутствуют экспериментальные значения Γ для системы $e^+\text{H}^-$ в кристалле MgO . Таким образом, проведенные расчеты системы $e^+\text{H}^-$ в диэлектрической среде ЩГК и кристаллов MgO и Al_2O_3 подтверждают экспериментальные данные о существовании $e^+\text{H}^-$ в MgO [1]. В заключение отметим, что полученные результаты применимы для расчета аннигиляционных характеристик позитронов, связанных с пекаровскими F' -центрами в ЩГК.

Список литературы

- [1] Pareja R. et al. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. N 10A. P. 6220—6226.
- [2] Гольданский В. И., Иванова А. В., Прокопьев Е. П. // Сб. «Ядерная химия». М.: Наука, 1965. С. 249—267.
- [3] Винецкий В. Л., Мередов О. // УФЖ. 1989. Т. 34. № 8. С. 1224—1228.
- [4] Пекар С. И. Избранные труды. Киев: Наукова думка, 1988. С. 45—139.
- [5] Simpson J. H., Wills H. H. // Proc. Roy. Soc. 1949. V. A197. N 1. P. 269—281.
- [6] Мотт Н., Герни Р. Электронные процессы в ионных кристаллах. М.: Гостехиздат, 1950.
- [7] Lebeda C., Schrader D. // Phys. Rev. 1969. V. 178. N 1. P. 24—30.

Научно-исследовательский институт
материаловедения
им. А. Ю. Малюгина

Поступило в Редакцию
13 ноября 1991 г.