

空位、小空位团的三态模型与正电子比捕获率的温度依赖性

湛季强^{a)c)} 龙期威^{b)c)a)} 汪克林^{a)}

a) (中国科学技术大学基础物理中心, 合肥)

b) (中国科学院金属研究所, 沈阳)

c) (中国科学院国际材料物理中心, 沈阳)

摘 要

本文采用三态捕获模型分析空位、小空位团的正电子的捕获过程, 解释了比捕获率负温度依赖性的实验结果。

一、引 言

实验表明, 空位和小空位团的正电子湮没寿命谱只有单一的长寿命分量, 因而人们认为此时只有单一的正电子捕获态, 用两态模型就可以描述其捕获过程(见图1(a)). 两态捕获模型的理论结果倾向于认为捕获过程与温度无关^[1,2]. 这一结论在室温以上是正确的, 但当温度较低时就不同了. 最突出的例子是 Eiji Hashimoto 等人^[3]最近在低温区域对 Al 中的单空位作 Doppler 展宽测量中发现, 在温度低于 100K 时, 正电子比捕获率随温度升高而明显减小, 表现出较强的负温度依赖性. 他们指出, 这一现象难以用现有理论解释. Linderoth 等人^[4]和 Bentzon 等人^[5]也曾分别在含有大量单空位、双空位、三空位等空位型缺陷的中子辐照 Al 晶体和电子辐照 Mo 晶体中发现了类似的现象.

最近我们在理论上分析了 Al 中的空位、小空位团的正电子态^[6], 指出不仅存在长寿命的深捕获态——基态 g, 还可能存在寿命与自由态寿命 τ_f 相近的浅捕获态——第一激发态 e1, 并具体计算了浅能级对自由正电子的比捕获率, 计算表明, 这一比捕获率取值可以相当大, 且具有较强的温度依赖性. 文献 [6] 的结果很有意义, 因为它第一次明确显示了空位、小空位团的正电子捕获与温度有较强的关联, 但是这一结果还难以直接用于已有实验结果的解释, 因为 1) 它是对从自由态向浅捕获态而不是深捕获态跃迁而言的; 2) 浅捕获态的正电子寿命与 τ_f 难以区分, 因而其对正电子捕获过程的温度特性能否观察到还存在着疑问. 本文对空位、小空位团的三态捕获过程进行分析和数值估计, 结论是: 浅能级的正电子捕获特性可以明显观察到, 但它是通过对深能级正电子捕获过程的影响而表现出来的, 由此可以解释前面所提及的实验结果.

二、三态捕获过程

图 1 (b) 示意了空位、小空位团正电子捕获的三态模型,由于 g 态的束缚能较大,正电子从 g 态的逃逸被忽略(两态模型也是如此)。可以看到,在三态捕获过程中,正电子有两条到达 g 态的途径:从自由态 f 直接向 g 态跃迁,也可以先跃迁到 e1 态,然后以一定的几率最后跃迁至 g 态。由稳态方程^[1]:

$$\begin{aligned} (\lambda_f + \kappa' + \eta')n_f - \delta n_{e1} &= W; \\ -\kappa'n_f + (\lambda_f + \delta + \eta)n_{e1} &= 0; \\ \eta'n_f + \eta n_{e1} - \lambda_g n_g &= 0, \end{aligned} \quad (1)$$

可以求解出被捕获并湮没于 g 态的正电子几率 P_g :

$$P_g = \frac{\eta'(\lambda_f + \delta + \eta) + \eta\kappa'}{(\lambda_f + \kappa' + \eta')(\lambda_f + \eta) + \delta(\lambda_f + \eta')}, \quad (2)$$

这里 W 是单位时间内进入样品中的正电子数目, n_f 、 n_{e1} 和 n_g 分别代表正电子在 f 态、e1 态和 g 态上的稳定分布,其它各量分别是有关的捕获率,逃逸率和湮没率。

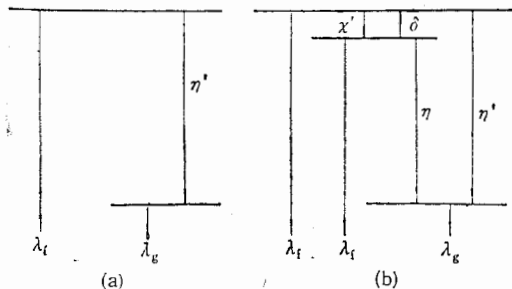


图 1 正电子在空位、小空位团捕获和湮没过程示意图
(a) 两态捕获模型; (b) 三态捕获模型。

e1 态的正电子寿命与 τ_f 相近(上面的模型已假设它们相等),这样的三态系统实际上只表现出两个明显不同的寿命成份,对正电子寿命谱只可能进行两分量分解。这种分解方法实质上是在 f 态和 g 态之间假想了一个过程,它等效于处在稳定状态的三态系统的 g 能级同时从两条不同路径对自由态正电子进行捕获的总体作用,可以用一总捕获率 κ 来表示它,再次运

用稳态方程可求得 P_g 与 κ 之间的关系:

$$P_g = \frac{\kappa}{\lambda_f + \kappa}. \quad (3)$$

由(2)和(3)式可得 κ 与三态系统各参数的关联:

$$\begin{aligned} \kappa &= \frac{\eta'(\lambda_f + \delta + \eta) + \eta\kappa'}{\lambda_f + \delta + \eta + \kappa'} \\ &= \eta' \left(1 + \frac{\eta - \eta'}{\lambda_f + \delta + \eta + \kappa'} \kappa' \right). \end{aligned} \quad (4)$$

若 $\kappa' = 0$, 即不存在浅能级 e1, 则上式给出

$$\kappa = \eta', \quad (5)$$

这正好对应图 1 (a) 所示的两态系统情况。可见,用三态过程和两态过程描述空位、小空位团都只给出一个长寿命分量,但两者给出的深能级对正电子的捕获率有着明显的差异,

这一差异由下式决定:

$$\Delta = \frac{\frac{\eta - \eta'}{\eta'} \kappa'}{\lambda_f + \delta + \eta + \kappa'}, \quad (6)$$

Δ 与 1 之比值越大, 差异就会越加明显.

三、总比捕获率及其温度依赖性

为了对 Δ 进行数值估计并与实验结果比较, 必须对捕获过程和有关各量作进一步分析. 设样品中有 N 个原子、 n 个空位 ($N \gg n$), 则平均看来, 自由正电子分布在空位处的几率为 $C_v = \frac{n}{N}$ (即空位浓度). 在空位处的正电子并不一定以束缚能的形式湮没, 还要看有多大的几率 (即比捕获率) 被空位捕获而使其束缚于空位. 所以, 进入样品中的正电子被空位捕获为束缚态的几率可以写成 C_v 与比捕获率的乘积. 对于已经处于空位束缚态的正电子则只存在简单的能级间的跃迁而与空位浓度无关. 小空位团的情况与空位相似, 可以作同样的讨论, 这样则有:

$$\begin{aligned} \eta' &= C_v \nu' & \eta &\approx \nu'; \\ \kappa' &= C_v \beta & \kappa &= C_v \nu, \end{aligned} \quad (7)$$

这里的 ν' 是 f 态直接向 g 态跃迁的比捕获率, 文献[1]给出了计算结果, 它与温度无关; β 是 f 态向 $e1$ 态跃迁的比捕获率, 文献[6]给出了我们的计算; ν 则是三态过程中的深捕获态同时从两条不同路径捕获正电子的总比捕获率. 上式中的约等于号的意思是: 由于 $e1$ 态的弱局域, 正电子的 $e1 \rightarrow g$ 跃迁速率与 $f \rightarrow g$ 跃迁速率近似相等. 把(7)式代入(4)式可以得到:

$$\nu = \nu'(1 + \Delta), \quad (8)$$

其中

$$\Delta \approx \frac{\beta}{\lambda_f + \delta + \nu' + C_v \beta}. \quad (9)$$

对于 Al 中的空位、小空位团, $\lambda_f \approx 10^{10} \text{s}^{-1} \ll \nu'$ ($\nu' \approx 10^{15} \text{s}^{-1}$ [1,2]), 且其浓度一般大于 10^{-5} 就使得正电子湮没效应出现饱和. 这样, 根据文献[6]所计算出的 β 大小, 可进一步对(9)式化简:

$$\Delta \approx \frac{\beta}{\nu' + \delta} = \frac{1}{\frac{\nu'}{\beta} + \frac{\delta}{\beta}}. \quad (10)$$

对于逃逸率 δ 的估计, 这里采用 Manninen 等人的理论公式[7]:

$$\frac{\delta}{\beta} = Q \left(\frac{m^* K_B T}{2\pi \hbar^2} \right) e^{-E_b'/K_B T}, \quad (11)$$

其中 Q 为晶体初基原胞的体积, E_b' 为浅能态的束缚能. 把上式代入(10)式, 可以看到,

由于 $\frac{\delta}{\beta}$ 是温度的单调上升函数且在 $T = 0\text{K}$ 时为零, Δ (因而 ν) 的温度依赖性与 β 是一致的。

β 的取值及其温度特性取决于正电子在缺陷处的局域尺寸 a 和浅能态束缚能 $E_b^{[6]}$ 。这里取三组不同的 a 和 E_b , 按文献[6]的方法计算 β 并代入式(10), 得到了 Δ 的取值及其与温度的依赖关系。之所以取这三组 a 和 E_b , 是基于下面的三点认识: 1) 当 $E_b < E_D$ (E_D 为晶体德拜能量, 对于 Al, $E_D \approx 0.037\text{eV}$) 时, 捕获机制主要是声子激发, 此时捕获过程有明显的温度效应; 2) 正电子局域尺寸大于缺陷的几何尺寸 (Al 单空位半径 $\approx 1.6 \text{ \AA}$);

3) 物理上必然有: 束缚能越大, 局域尺寸越小, 反之, 则局域尺寸越大。图2直接给出了总比捕获率 ν 的计算结果。结果表明, 在 $T < 100\text{K}$ 时, Δ 大于 1 因而 ν 远偏离 ν' , 使得 ν 表现出较强的温度依赖性; 而当 $T > 100\text{K}$ 时, Δ 变小因而 ν 的温度依赖性逐步减弱, 随着温度的提高 Δ 趋于零而 ν 渐近于 ν' 。 ν 表现出了较强的负温度依赖性。

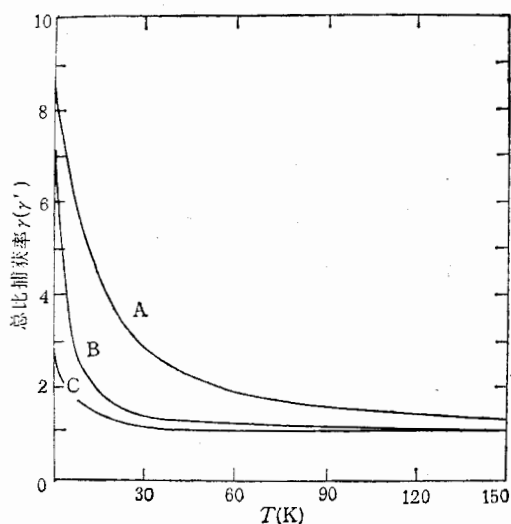


图2 对于几组 E_b 和 a 的不同取值, Al 中的空位、小空位团的深能级对自由态正电子的总比捕获率 ν 与温度 T 的依赖特性曲线

A) $E_b = 0.027\text{eV}$, $a = 4.0 \text{ \AA}$;

B) $E_b = 0.007\text{eV}$, $a = 16.0 \text{ \AA}$;

C) $E_b = 0.012\text{eV}$, $a = 10.0 \text{ \AA}$

实验结果的比捕获率随温度的变化趋势给出了解释。

ν 的温度依赖性与 β 一致。对于其它一些 a 和 E_b 的取值, β 可能具有非负温度依赖性^[6], 但由于 a 和 E_b 的取值在物理上的限制, 此时 β 所决定的 $\nu-T$ 曲线的峰值点在较低温度区, 甚至接近于 $T = 0\text{K}$, 这时实验测量温度若不是非常低, $\nu-T$ 曲线所表现的也还是负温度依赖性, 这与实验结果仍然是一致的。

要指出的是, 有关捕获率的理论研究目前还很不成熟, 有时甚至还难于做到在量级上与实验符合^[6], 本文的三态模型定性解释了比捕获率的负温度依赖性的实验结果, 但是问题的最后解决还有待进一步的研究。

作者之一(谌季强)在本文的完成过程中与 P. Hautojärvi 教授进行过有益的讨论, 在此向他表示深深的谢意。

四、讨 论

从 ν 的定义看, 它就是实验上所观察到的比捕获率。图2中的曲线显示 ν 具有较强的负温度依赖性, 这说明浅能级的引入对描述空位、小空位团的正电子捕获过程是恰当的, 它保证寿命谱结构不变, 又使得深能级对正电子的捕获过程有着较强的温度关联, 从而对已有

{ 1
[2
[3
[4
[5
[6
[7
[8

T

b
c

参 考 文 献

- [1] R. M. Nieminen and J. Laakkonen, *Appl. Phys.*, 20(1979), 181.
[2] M. J. Stott and M. Manninen, *J. Phys. F: Met. Phys.*, 17(1987), 2235.
[3] Eiji Hashimoto, Takeshi Shirashi and Takao Kino, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 54 (1985), 3622.
[4] S. Linderoth, M. D. Bentzon, H. E. Hansen and K. Petersen, *Positron Annihilation*, ed. P. C. Jain, R. M. Singru and K. P. Gopinathan, (World Scientific Publ. Co. Singapore, 1985), 494.
[5] M. D. Bentzon, S. Linderoth and K. Petersen, (as above), 485.
[6] 谌季强、龙期威、汪克林, *物理学报*, 38(1989), 1360.
[7] M. Manninen and R. M. Nieminen, *Appl. Phys.*, A26(1981), 93.
[8] R. M. Nieminen, M. Doyama, K. P. Gopinathan, C. W. Lung (龙期威), K. Petersen, H. E. Schaefer, (as reference [4]), 437.

THREE STATE MODEL OF VACANCIES AND SMALL VACANCY CLUSTERS AND TEMPERATURE DEPENDENCE OF SPECIFIC TRAPPING RATE

CHEN JIQIANG^{a)c)} LONG QIWEI^{b)c)a)} WANG KELIN^{a)}

a)(Centre for Fundamental Physics, University of Science and Technology of China, Hefei)

b)(Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang)

c) (International Centre for Materials Physics, Academia Sinica, Shenyang)

ABSTRACT

The trapping process of positrons into vacancies and small vacancy clusters is described by a Three State Model. The experimental results of negative temperature dependence of specific trapping rate are explained theoretically.