

ПОЗИТРОНИЙ-ФОНОННЫЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ И АННИГИЛЯЦИОННОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ КВАНТОВ 2 γ -РАСПАДА ПОЗИТРОНИЯ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

И. В. Бондарев

Проблема поведения легких примесных частиц и квазичастичных возбуждений в конденсированных системах стала в последние годы предметом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований. Это связано с тем, что процессы локализации и диффузии частиц в конденсированной фазе носят *существенно квантовый* характер и широко распространены не только в физике конденсированного состояния, но и в квантовой химии и молекулярной биологии. В физике конденсированного состояния к таким процессам относится широкий круг явлений, связанных с безызлучательными переходами в твердом теле: безызлучательные процессы при взаимодействии свободных носителей с дефектами [1], диффузия и самозахват квазичастичных возбуждений (поляроны, конденсоны, экситоны) [2–4] и примесных частиц (позитрон, мюон, позитроний, мюоний, водород) [5–8], поляронные и биполяронные эффекты в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) [9, 10]. В основе всех перечисленных процессов лежат различные проявления взаимодействий частицы с квантами колебаний кристаллической решетки – фононами. Поэтому проблема поведения примесных частиц и квазичастичных возбуждений, по крайней мере в диэлектрических кристаллах, по сути дела сводится к изучению специфики взаимодействия частицы с различными фононными модами кристаллической решетки исследуемого образца.

В данной работе мы остановимся на некоторых аспектах позитроний-фононных взаимодействий в ионных кристаллах. Связанная кулоновским взаимодействием электрон-позитронная пара – атом позитрония (Ps) – является *легким* примесным атомом, в полной мере «ощущающим» на себе влияние решеточных колебаний. Причем, будучи электрически нейтральным, позитроний, в отличие от электрона, практически «не чувствует» индуцированных колебаниями дальнедействующих поляризационных полей и интенсивно взаимодействует лишь с меняющими его зонную энергию *короткодействующими* колебательными возмущениями периодического решеточного потенциала – с так называемыми деформационными потенциалами (акустическим либо оптическим, в зависимости от типа колебательной ветви). В этом заключается уникальное замечательное свойство атома Ps, позволяющее по его аннигиляционным характеристикам экспериментально изучать именно короткодействующие, *неполярные* фононные взаимодействия, играющие принципиально важную роль в проблемах электропроводности кристаллов и ВТСП [2–4, 9, 10].

1. Делокализованный и самозахваченный позитроний. Специфика спектров 2 γ -распада

Образование атома Ps в большинстве кристаллических диэлектриков является в настоящее время хорошо установленным экспериментальным фактом

[11]. В хорошо очищенных ионных кристаллах (концентрация дефектов не более 10^{15} деф./см³ [12]), а также в α -кварце (α -SiO₂) при пониженных (ниже нескольких десятков К) температурах Ps делокализован [13], т. е. находится в состоянии с волновой функцией блоховского типа. Образование блоховского Ps в этих кристаллах подтверждается наблюдением узких пиков (центральный пик и боковые сателлиты, разнесенные на расстояние, обратно пропорциональное периоду решетки) в угловом спектре аннигиляционного излучения квантов его 2γ -распада, представляющем распределение Ps по импульсам.

В отсутствие взаимодействия с колебаниями решетки импульсное распределение $\rho(\vec{p})$ позитрония (и соответственно угловой спектр его аннигиляционного 2γ -излучения) задается диагональным матричным элементом записанной в импульсном представлении матрицы плотности системы:

$$\rho(\vec{p}) \sim \sum_i n_i \left| \int d\vec{R} \phi_i(\vec{R}, 0) e^{-i\vec{p} \cdot \vec{R} / \hbar} \right|^2, \quad (1)$$

где $\phi_i(\vec{R}, \vec{r})$ – волновая функция Ps в системе его центра масс; n_i – ее статистический вес; \vec{r} и \vec{R} – радиус-векторы относительного движения и движения центра масс электрона и позитрона в атоме Ps соответственно. Для делокализованного позитрония в состоянии с энергией $E_{\vec{k}}$ и квазиимпульсом $\vec{k} = \vec{p} / \hbar$, имеющем бoльцмановский статистический вес $n_{\vec{k}} \sim \exp(E_{\vec{k}} / k_B T)$ и описываемом функцией Блоха [14]

$$\phi_{\vec{k}}(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} u_{\vec{k}}(\vec{R}, \vec{r}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{R}} = \frac{1}{V} \sum_{\vec{g}} A_{\vec{k}}(\vec{g}, \vec{r}) e^{i(\vec{k} + \vec{g}) \cdot \vec{R}} \quad (2)$$

($A_{\vec{k}}(\vec{g}, \vec{r})$ – коэффициенты разложения трансляционно-инвариантной функции $u_{\vec{k}}(\vec{R}, \vec{r})$ по векторам обратной решетки \vec{g} , V – объем кристалла), это выражение принимает вид

$$\rho(\vec{p}) \sim \sum_{\vec{k}} n_{\vec{k}} \left| \int d\vec{R} \phi_{\vec{k}}(\vec{R}, 0) e^{-i\vec{p} \cdot \vec{R} / \hbar} \right|^2. \quad (3)$$

Подставляя (2) в (3) и учитывая, что для термализованного Ps при низких температурах $n_{\vec{k}} \approx \delta_{\vec{k}, 0}$, получаем

$$\rho(\vec{p}) \sim \sum_{\vec{g}} |A_0(\vec{g}, 0)|^2 \delta_{\vec{g}, \vec{p} / \hbar}, \quad (4)$$

т. е. распределение блоховского позитрония по импульсам (и соответствующий угловой спектр аннигиляционного 2γ -излучения) представляет собой набор узких пиков при значениях \vec{p} , кратных векторам обратной решетки кристалла.

При учете взаимодействия блоховского Ps с короткодействующим потенциалом решеточных смещений (создаваемый фононами деформационный по-

тенциал – см., напр., работу [14]) *все* позитрониевые пики уширяются с ростом температуры. Такое уширение может быть описано в формализме температурных гриновских функций (см., напр., [15, 16]). Тогда температурная зависимость равновесного импульсного распределения взаимодействующего с фононным полем позитрония задается в виде

$$\rho(p, T) \sim \int_0^{\infty} d\omega e^{-\omega/k_B T} \frac{\Gamma_{\vec{k}}(\omega)}{(\omega - p^2/2M^*)^2 + \Gamma_{\vec{k}}^2(\omega)}. \quad (5)$$

Здесь экспоненциальный фактор задает статистику Больцмана, поскольку в реальных экспериментальных условиях в образце находится один атом Ps [17]. Неэкспоненциальный фактор есть записанная в явном виде функция квазичастичного спектрального распределения, где $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$ – мнимая часть массового оператора рассеивающегося на фононах позитрония [15]. Последняя в режиме *слабой* фононной связи (делокализованный Ps) обычно записывается в первом неисчисляющем (втором) порядке теории возмущений по Ps-фононному взаимодействию:

$$\Gamma_{\vec{k}}(\omega) = \pi \sum_{\vec{q}} |V_{\vec{q}}|^2 [(n_{\vec{q}} + 1) \delta(\omega - E_{\vec{k}+\vec{q}} - \hbar\omega_{\vec{q}}) + n_{\vec{q}} \delta(\omega - E_{\vec{k}+\vec{q}} + \hbar\omega_{\vec{q}})], \quad (6)$$

где $V_{\vec{q}}$ – матричный элемент взаимодействия; $E_{\vec{k}} = \hbar^2 \vec{k}^2 / 2M^*$ – энергия Ps с зонной массой M^* ; $n_{\vec{q}} = [\exp(\hbar\omega_{\vec{q}}/k_B T) - 1]^{-1}$ – фононная функция распределения; $\omega_{\vec{q}}$ – частота фонона с волновым вектором \vec{q} . При акустическом фононном рассеянии (длинноволновые продольные акустические фононы) выражение (6) дает:

$$\Gamma_{\vec{k}}^{(a)}(\omega) = \frac{E_d^2 M^{*3/2} k_B T}{\sqrt{2} \pi \hbar^3 u^2 \rho} \sqrt{\omega}, \quad (7)$$

где E_d – константа акустического деформационного потенциала Ps, u и ρ – соответственно скорость продольных звуковых колебаний и плотность кристалла [17].

С повышением температуры при $T \gtrsim T_D/4$, где T_D – дебаевская температура кристалла ($T_D \sim 100 - 300$ К для типичных ионных кристаллов [18]), в спектре 2γ -аннигиляции позитрония для большинства исследованных ионных кристаллов отмечалось исчезновение боковых и резкое уширение центрального пика [13]. Это свидетельствует о локализации атома Ps. Причем, поскольку эффект имеет место в области достаточно низких температур, объяснить его захватом позитрония термически созданными в образце дефектами не представляется возможным. Исчезновение боковых и резкое уширение центрального позитрониевых пиков хорошо объясняются *самозахватом* Ps – термически активированным переходом делокализованного Ps в метастабильное локализованное на узле кристаллической решетки (самозахваченное) состояние, образующееся вследствие взаимодействия Ps с короткодействующим деформационным потенциалом акустических решеточных смещений (продольные акустиче-

ские фононы) [19]. Для локализованного на узле \vec{m} позитрония в состоянии с ваннневской волновой функцией [14]

$$\chi(\vec{R} - \vec{m}, \vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{-i\vec{k} \cdot \vec{m}} \varphi_{\vec{k}}(\vec{R}, \vec{r}), \quad (8)$$

имеющего постоянный статистический вес $n_{\vec{m}} = 1/N$, где N – число элементарных ячеек в кристалле, импульсное распределение (1) принимает вид

$$\rho(\vec{p}) \sim \frac{1}{N} \sum_{\vec{m}} \left| \int d\vec{R} \chi(\vec{R} - \vec{m}, 0) e^{-i\vec{p} \cdot \vec{R}/\hbar} \right|^2. \quad (9)$$

Аппроксимируя локализованную функцию Ваннье $\chi(\vec{R} - \vec{m}, 0)$ гауссовым распределением $\exp(-|\vec{R} - \vec{m}|^2/a^2)$, где a – характерный размер области локализации, получаем

$$\rho(\vec{p}) \sim \frac{1}{N} \sum_{\vec{m}} \left| \int d\vec{R} e^{-|\vec{R} - \vec{m}|^2/a^2 - i\vec{p} \cdot \vec{R}/\hbar} \right|^2 \sim e^{-a^2 p^2/2\hbar^2}, \quad (10)$$

т. е. импульсное распределение (и соответствующий спектр 2γ -аннигиляции) samozaxваченного Ps представляет собой центральный пик с характерной шириной $\Delta p \sim \hbar/a$.

Теория термически-активированного samozaxвата составной частицы – атома Ps – в ионных кристаллах была развита в наших работах [19, 20], где не только были объяснены все экспериментально наблюдавшиеся особенности процесса, но и показано, что в кристаллах MgF_2 и $\alpha\text{-SiO}_2$ явление samozaxвата Ps должно отсутствовать. Детальное экспериментальное исследование последних было проведено в работах [17, 21]. В обоих кристаллах атом Ps оставался делокализованным вплоть до температур ~ 700 К. При этом в MgF_2 наблюдалось резкое (аномальное) уширение центрального и боковых позитрониевых пиков при температуре выше 200 К, объяснить которое акустическим фононным рассеянием Ps (формулы (5),(7)) не удавалось. Эффект выглядел так, как будто при температуре выше 200 К активизируется дополнительный механизм рассеяния, перенормирующий константу акустического деформационного потенциала позитрония таким образом, что она в узком температурном диапазоне от 200 до 355 К возрастает более чем в два раза. Аналогичный эффект не наблюдался в $\alpha\text{-SiO}_2$, где температурное уширение центрального и боковых позитрониевых пиков в области температур 80–700 К хорошо объяснялось формулами (5), (7) – рассеянием Ps на длинноволновых продольных акустических фононах. В работе [21] была предпринята попытка интерпретировать этот эффект как активизацию механизма рассеяния Ps с перебросом на *коротковолновых* акустических фононах. Однако такую интерпретацию вряд ли можно считать удовлетворительной, поскольку тогда неясна причина отсутствия аналогичного эффекта в $\alpha\text{-SiO}_2$.

Ниже развивается теория взаимодействия делокализованного Ps с неполярными оптическими (оптический деформационный потенциал) и коротковолно-

выми акустическими фононными модами в кристаллических решетках с различными типами локальной симметрии. Взаимодействием Ps с индуцированными решеточными смещениями (акустическими либо оптическими) поляризационными полями пренебрегается ввиду его электрической нейтральности [22]. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, рассеяние на оптическом потенциале деформации (если оно не запрещено правилами отбора) приводит к перенормировке константы акустического деформационного потенциала позитрония, тем самым объясняя наблюдавшийся в [17, 21] 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. Обосновывается непричастность рассеяния с перебросом на коротковолновых акустических фононах к эффекту аномального уширения импульсного распределения делокализованного позитрония.

2. Делокализованный позитроний в MgF_2 и $\alpha-SiO_2$.

Рассеяние на оптическом деформационном потенциале

Известно, что в кристаллах с двумя и более атомами в элементарной ячейке существенную роль может играть рассеяние на длинноволновых неполярных оптических (короткодействующих) решеточных колебаниях – на оптическом деформационном потенциале [23–25]. 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, где отсутствует его термически-активированный самозахват, в частности в MgF_2 и $\alpha-SiO_2$, 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 [24]. 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 (q – модуль волнового вектора фонона, a – постоянная кристаллической решетки), чем с оптическими [23]. Поэтому неполярное оптическое рассеяние может начать проявляться уже при не слишком высоких ($> \sim 100$ К) температурах.

Гамильтониан взаимодействия позитрония с оптическими фононами при неполярном оптическом рассеянии (оптический деформационный потенциал) может быть представлен в виде [25]

$$H_{int}^{(o)} = \sqrt{\frac{M}{M}} \vec{D}_o \cdot \vec{u}_o \approx \sum_{\vec{k}, \vec{q}} V_{\vec{q}}^{(o)} a_{\vec{k}+\vec{q}}^+ a_{\vec{k}}^- (b_{\vec{q}o} - b_{-\vec{q}o}^+), \quad (11)$$

где \vec{D}_o – векторная константа оптического потенциала деформации; \vec{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., напр., [26]). Здесь $a_{\vec{k}}^+$ ($a_{\vec{k}}$) и $b_{\vec{q}o}^+$ ($b_{\vec{q}o}$) – операторы рождения (уничтожения) соответственно атома Ps с квазиимпульсом \vec{k} и длинноволнового оптического фонона постоянной частоты ω_o с волновым вектором \vec{q} ,

$$V_{\vec{q}}^{(o)} = -i D_o \sqrt{\frac{\hbar}{2MN\omega_o}}, \quad (12)$$

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

Подставляя матричный элемент (12) в формулу (6), после несложных вычислений получаем обусловленный неполярным оптическим рассеянием вклад в мнимую часть массового оператора Ps в виде

$$\Gamma_{\vec{k}}^{(o)}(\omega) = \frac{D_o^2 M^{*3/2} \sqrt{\omega}}{2\sqrt{2} \pi \hbar^2 \rho \omega_o} \left[(n(\omega_o) + 1) \mathcal{G}\left(1 - \frac{\hbar\omega_o}{\omega}\right) \sqrt{1 - \frac{\hbar\omega_o}{\omega}} + n(\omega_o) \sqrt{1 + \frac{\hbar\omega_o}{\omega}} \right], \quad (13)$$

где $n(\omega_o) = [\exp(\hbar\omega_o/k_B T) - 1]^{-1}$ – бозе-эйнштейновская функция распределения оптических фононов; $\mathcal{G}(x)$ – единичная функция Хевисайда. При этом полная (учитывающая рассеяния на акустическом и оптическом потенциалах деформации) мнимая часть массового оператора позитрония принимает с учетом (7), (13) вид

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

где

$$\tilde{E}_d(\omega) = \left\{ E_d^2 + \frac{\hbar u^2 D_o^2}{2k_B T \omega_o} \left[(n(\omega_o) + 1) \mathcal{G}\left(1 - \frac{\hbar\omega_o}{\omega}\right) \sqrt{1 - \frac{\hbar\omega_o}{\omega}} + n(\omega_o) \sqrt{1 + \frac{\hbar\omega_o}{\omega}} \right] \right\}^{1/2} \quad (15)$$

имеет смысл «эффективной константы» деформационного потенциала. Формула (5) с учетом (14), (15) описывает температурную зависимость импульсного распределения делокализованного Ps, рассеивающегося на акустическом и оптическом потенциалах деформации. Далее, ввиду того, что в интеграл (5) основной вклад вносят значения $\omega \sim k_B T$, зависимость $\tilde{E}_d(\omega)$ в (15) может быть приближенно заменена зависимостью $\tilde{E}_d(T)$, так что для «эффективной константы» деформационного потенциала имеем

$$\tilde{E}_d(T) = \left\{ E_d^2 + \frac{\hbar u^2 D_o^2}{2 k_B T \omega_o} \left[(n(\omega_o) + 1) \mathcal{G} \left(1 - \frac{\hbar \omega_o}{k_B T} \right) \sqrt{1 - \frac{\hbar \omega_o}{k_B T}} + n(\omega_o) \sqrt{1 + \frac{\hbar \omega_o}{k_B T}} \right] \right\}^{1/2} \quad (16)$$

Легко видеть, что в пределе низких температур $T \ll \hbar \omega_o / k_B$, когда не возбуждаются оптические фононы, выражение (16) стремится к значению E_d – константе акустического деформационного потенциала Ps. В противоположном случае, $T \gg \hbar \omega_o / k_B$, имеем $\tilde{E}_d = \sqrt{E_d^2 + (u D_o / \omega_o)^2}$ – не зависящую от температуры эффективную константу позитроний-фононного взаимодействия. Таким образом, с ростом температуры неполярное оптическое рассеяние перенормирует константу акустического деформационного потенциала Ps. Именно такая ситуация, как уже говорилось выше, экспериментально наблюдалась для делокализованного Ps в кристалле MgF_2 . Поэтому наблюдавшийся эффект аномального уширения позитрониевых пиков может быть объяснен неполярным оптическим рассеянием позитрония. Этот вывод подтверждается и вытекающими из сравнения с экспериментом разумными оценками для константы оптического деформационного потенциала D_o . Подставляя экспериментально измеренные значения 7,6 эВ (ниже 200 К) и 16 эВ (выше 355 К) [17] соответственно вместо E_d и \tilde{E}_d в высокотемпературный предел формулы (16), получаем для MgF_2 оценку $D_o / \omega_o \sim 2 \times 10^{-5}$ эВ·с/см (для скорости звука использовалось усредненное по кристаллографическим направлениям значение $u \approx 7 \times 10^5$ см/с [27]). Если далее принять, что $\omega_o \sim 5 \times 10^{13}$ 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 [28]), то для константы оптического деформационного потенциала атома Ps в MgF_2 получаем разумную оценку $D_o \sim 1 \times 10^9$ эВ/см. Для сравнения укажем, что характерные значения констант оптического потенциала деформации электронов и дырок в полупроводниках составляют $\sim 5 \times 10^8$ эВ/см [25]. В частности, например, для электронов в германии $D_o = 7 \times 10^8$ эВ/см [29].

Тот факт, что неполярное оптическое рассеяние позитрония наблюдается в кристалле MgF_2 и не наблюдается в кристалле $\alpha\text{-SiO}_2$, может быть объяснен занулением константы оптического потенциала деформации D_o в центре (Г-долина) зоны Бриллюэна $\alpha\text{-SiO}_2$ в силу невыполнения правил отбора, диктуемых локальной симметрией обратной решетки в этой точке \vec{k} -пространства. Известно, например, что для кубических решеток рассеяние нулевого порядка на оптическом потенциале деформации разрешено для вырожденных и запрещено для невырожденных Г-долин [24, 25]. 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 [23, 24]. Для невырожденных Γ -долин в кубических кристаллах этот матричный элемент преобразуется по единичному представлению точечной группы кристалла, тогда как оптические фононные ветви трехкратно вырождены, т. е. соответствующие им нормальные решеточные колебания преобразуются по одному из трехмерных представлений. В такой ситуации взаимодействие (11) не является инвариантом относительно преобразований точечной группы и потому тождественно обращается в нуль (или, другими словами, $D_o \equiv 0$). Поэтому рассеяние на оптическом деформационном потенциале отсутствует в невырожденных и имеет место в трехкратно вырожденных Γ -долинах кубических кристаллов. Если же точечная группа кристалла имеет симметрию ниже кубической (некубические кристаллы), то трехмерное представление, по которому преобразуются оптические колебания в Γ -долине, является приводимым. Если среди неприводимых представлений, содержащихся в нем, окажется представление размерности, равной кратности вырождения Γ -долины, то оптические моды, преобразующиеся по этому представлению, будут входить во взаимодействие (11), 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.

Все это позволяет предсказать новый интересный эффект для делокализованного Ps в кристаллическом кварце. Известно, что при температуре выше 846 К кристаллический кварц испытывает фазовый переход из α - в β -фазу [30]. 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 [24], и потому имеет те же групповые представления для Γ -долины зоны Бриллюэна и, соответственно, те же правила отбора для рассеяния на оптическом потенциале деформации. Согласно [24], точечная группа C_{6v} (и изоморфная ей группа D_6) допускает невырожденные и двукратно вырожденные Γ -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 Γ -долины, всегда найдется оптическая мода, преобразующаяся по представлению размерности, равной значению этой кратности. Эта мода будет входить во взаимодействие (11), давая ненулевой вклад в рассеяние частиц на оптическом потенциале деформации в Γ -долинах кристаллов точечных групп C_{6v} и D_6 . Отсюда следует, что неполярное оптическое рассеяние Ps, отсутствовавшее в кристалле α -SiO₂, должно

проявиться с переходом α -кварца в β -фазу – выше 846 К, и эффект аномального уширения импульсного распределения, аналогичный наблюдавшемуся в MgF_2 , должен наблюдаться для позитрония в кристалле $\alpha\text{-SiO}_2$.

3. Замечание о коротковолновом акустическом рассеянии позитрония

Аналогичный рассмотренному в предыдущем пункте эффект перенормировки константы акустического потенциала деформации может быть получен и при учете взаимодействия Ps с коротковолновыми (большие \vec{q}) акустическими фононами – за счет процессов переброса. Такие процессы для делокализованного позитрония в ионных кристаллах рассматривались в нашей работе [26].

В задачах электропроводности, когда речь идет о *реальном* электрон-фононном рассеянии, процессами переброса обычно пренебрегают [14]. Дело в том, что характерные значения квазиимпульса термализованного электрона задаются оценкой $k/(g/2) \sim 10^{-2} \sqrt{T}$ (\vec{g} – вектор обратной решетки кристалла), т. е. квазиимпульс мал по сравнению со своим предельным значением $g/2$ вплоть до температур порядка нескольких тысяч К, а волновые векторы участвующих в *реальном* рассеянии фононов, исходя из законов сохранения энергии и импульса, ограничиваются соотношением $q \sim k$ и тоже малы. Поэтому в задачах электропроводности электрон-фононные процессы переброса при не очень высоких температурах не проявляются. Для позитрония ситуация несколько иная. Как видно из формулы (5), в импульсное распределение делокализованного Ps дают вклад *все* – как реальные, так и *виртуальные* – процессы позитроний-фононного рассеяния. При виртуальном рассеянии условие $q \sim k$ отсутствует, и потому возможно рассеяние с малыми \vec{k} на фононах с *большими* ($\sim \vec{g}/2$) волновыми векторами \vec{q} (коротковолновые фононы). Тогда сумма $\vec{k} + \vec{q}$ превышает граничное значение и выходит за пределы 1-й зоны Бриллюэна, и необходимо добавить к ней ненулевой вектор обратной решетки \vec{g} , чтобы квазиимпульс \vec{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 нашей работе [26] показано, что взаимодействие делокализованного Ps с коротковолновыми акустическими фононами при рассеянии с перебросом (umklapp acoustic scattering) может быть описано гамильтонианом

$$H_{int}^{(ua)} \approx \sum_{\vec{k}, \vec{q}} V_{\vec{q}}^{(ua)} a_{\vec{k}+\vec{q}}^+ a_{\vec{k}} (b_{\vec{q}a} - b_{-\vec{q}a}^+), \quad (17)$$

где матричный элемент взаимодействия

$$V_{\vec{q}}^{(ua)} = -i E_d^{(1)} \sqrt{\frac{\hbar}{2MN\omega_1}}; \quad (18)$$

$E_d^{(1)} = E_d \vec{q} \nu$ – аналог константы деформационного потенциала для рассеяния с

перебросом; \bar{q} ($\sim g/2$) – приближенное среднее значение модуля волнового вектора участвующих в рассеянии с перебросом фононов; ν – число ближайших соседей в обратном пространстве. Характерная фононная частота ω_1 определяется законом дисперсии акустических фононов при граничном значении фононного волнового вектора ($\omega_1 = 2u/a < \sim \omega_D$, где ω_D – дебаевская частота кристалла).

Сравнивая взаимодействия (17) и (11), замечаем, что они отличаются друг от друга лишь переобозначением констант ($E_d^{(1)} \leftrightarrow D_o$, $\omega_1 \leftrightarrow \omega_o$). Поэтому рассеяние с перебросом на *коротковолновых* акустических фононах, точно так же, как и неполярное рассеяние на *длинноволновых* оптических фононах, дает в полную мнимую часть (14) массового оператора Ps вклад $\Gamma_{\vec{k}}^{(ua)}(\omega)$, полностью совпадающий по виду с (13) с заменой $D_o \rightarrow E_d^{(1)}$, $\omega_o \rightarrow \omega_1$, так что уже с учетом коротковолнового акустического рассеяния имеем

$$\Gamma_{\vec{k}}(\omega) = \Gamma_{\vec{k}}^{(a)}(\omega) + \Gamma_{\vec{k}}^{(o)}(\omega) + \Gamma_{\vec{k}}^{(ua)}(\omega) = \frac{\tilde{E}_d^2(\omega) M^{*3/2} k_B T}{\sqrt{2} \pi \hbar^3 u^2 \rho} \sqrt{\omega} .$$

Здесь член $\Gamma_{\vec{k}}^{(ua)}(\omega)$ в полной аналогии с $\Gamma_{\vec{k}}^{(o)}(\omega)$ (и в дополнение к нему) вносит вклад в перенормировку константы акустического деформационного потенциала Ps, т. е. в $\tilde{E}_d(\omega)$. Однако, в отличие от неполярного оптического рассеяния, вклад в $\tilde{E}_d(\omega)$ от рассеяния на коротковолновых акустических фононах при всех реальных температурах $T < 1000$ К (когда малы квазиимпульсы \vec{k}) будет иметь место при очень больших значениях ω . Это видно из следующей вытекающей из (6) цепочки оценок:

$$\omega = E_{\vec{k}+\vec{q}} \pm \hbar\omega_1 \sim \frac{\hbar^2 \bar{q}^2}{2M^*} \pm \hbar\omega_1 \sim \frac{\hbar^2 q_D^2}{2M^*} \pm \hbar\omega_D \sim \frac{\hbar\omega_D}{\gamma} \pm \hbar\omega_D \sim \frac{\hbar\omega_D}{\gamma}, \quad (19)$$

где $\gamma = \hbar\omega_D / (\hbar^2 q_D^2 / 2M^*)$ – так называемый параметр неадиабатичности ($q_D = \omega_D / u$ – дебаевский фононный волновой вектор) [19]; $\gamma \sim 0,01$ для типичных ионных кристаллов. Тогда при всех реальных температурах ниже 1000 К подынтегральная бoльцмановская экспонента в импульсном распределении (5)

$$e^{-\omega/k_B T} \Big|_{\omega \sim \omega_D/\gamma} \sim e^{-100 T_D / T} \sim 0 \quad (20)$$

и потому полностью подавляет вклад коротковолнового акустического рассеяния в экспериментально регистрируемое импульсное распределение делокализованного позитрония.

В работе было рассмотрено влияние позитроний-фононных взаимодействий на характер угловых спектров аннигиляционного излучения квантов 2γ -распада позитрония в ионных кристаллах и кристаллическом кварце, а также развита

теория взаимодействия делокализованного Ps с неполярными оптическими и коротковолновыми акустическими фоннными модами. Показано, что при температурах, выше которых оно становится существенным, неполярное оптическое рассеяние (если оно не запрещено правилами отбора) приводит к перенормировке константы акустического деформационного потенциала, увеличивая ее и тем самым резко уширяя импульсное распределение позитрония. Проведенный для решеток MgF_2 , $\alpha\text{-SiO}_2$ и $\beta\text{-SiO}_2$ теоретико-групповой анализ симметричных свойств гамильтониана взаимодействия Ps с оптическим деформационным потенциалом показал, что неполярное оптическое рассеяние в центре зоны Бриллюэна разрешено для MgF_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ и запрещено для $\alpha\text{-SiO}_2$. Это хорошо объясняет наблюдавшиеся в экспериментальных работах [17, 21] аномальное уширение импульсного распределения Ps в MgF_2 при температуре выше 200 К и отсутствие аналогичного эффекта в $\alpha\text{-SiO}_2$ и дает основания к теоретическому предсказанию аналогичного наблюдавшемуся в MgF_2 эффекта для кристалла $\beta\text{-SiO}_2$, в который переходит кристаллический кварц в результате фазового перехода второго рода $\alpha\text{-SiO}_2 \rightarrow \beta\text{-SiO}_2$ при температуре выше 846 К. Обоснована непричастность коротковолнового акустического рассеяния к эффекту аномального уширения импульсного распределения делокализованного Ps.

Литература

1. Стоунхэм А. М. Теория дефектов в твердых телах. М., 1978.
2. Excitonic processes in solids / Eds. M. Ueta, H. Kanzaki, K. Kobayashi et. al. Berlin, 1986.
3. Song K. S. and Williams R. T. Self-trapped excitons. Berlin, 1993.
4. Ioselevich A. S. and Rashba E. I. // Quantum tunneling in condensed media / Eds. Yu. Kagan and A.J. Leggett. Amsterdam, 1992. P. 347–425.
5. McMullen T. // Positron annihilation/ Eds. P.C. Jain, R.M. Singry, and K.P. Gopinathan. Singapore, 1985. P. 657–668.
6. Exotic atoms'79. Fundamental interactions and structure of matter / Eds. K. Crowe, J. Duclos, G. Fiorentini and G. Torelli. New York, 1980. P. 209–398.
7. Fujiwara K. // Positron annihilation / Eds. P. G. Coleman, S. C. Sharma and L. M. Diana. Amsterdam, 1982. P. 615–624.
8. Kagan Yu., Prokofev N. V. // Quantum tunneling in condensed media / Eds. Yu. Kagan and A. J. Leggett. Amsterdam, 1992. P. 37–143.
9. Alexandrov A. S., Mott N. F. High temperature superconductors and other superfluids. Bristol, 1994.
10. Polarons and bipolarons in high- T_c superconductors and related materials / Eds. E. K. H. Salje, A. S. Alexandrov and W. Y. Liang. Cambridge, 1995.
11. Dupasquier A. // Positron Solid-State Physics / Eds. W. Brandt and A. Dupasquier. Amsterdam, 1983. P. 510–564.
12. Арефьев К. П., Боев О. В., Воробьев С. А., Кузнецов П. В. // ФТТ. 1984. Т. 26, № 6. С. 1678–1684.
13. Kasai J., Hyodo T., and Fujiwara K. // J. Phys. Soc. Jpn. 1988. Vol. 57, № 5. P. 329–341.
14. Ансельм А. И. Введение в теорию полупроводников. М., 1978.

15. *Mahan G. D.* Many-particle physics. New York, 1981.
16. *Абрикосов А. А., Горьков Л. П., Дзялошинский И. Е.* Методы квантовой теории поля в статистической физике. М., 1962.
17. *Nagai Y., Kakimoto M., Ikari H. and Hyodo T.* // *Mat. Sci. Forum.* 1997. Vol. 255–257. P. 596–598.
18. *Ботаки А. А., Воробьев А. А., Ульянов В.Л.* Радиационная физика ионных кристаллов. М., 1980.
19. *Bondarev I. V.* // *Phys. Rev.* 1998. Vol. B58, № 18. P. 12011–12019.
20. *Bondarev I. V. and Hyodo T.* // *Phys. Rev.* 1998. Vol. B57, № 18. P. 11341–11348.
21. *Nagai Y., Kakimoto M., Hyodo T. et al.* // *Phys. Rev.* 2000. Vol. B62, № 9. P. 5531–5535.
22. *Боев О. В., Арефьев К. П.* // *Изв. вузов. Физика.* 1982. Т. 25, № 2. С. 118–119.
23. *Бир Г. Л., Пикус Г. Е.* // *ФТТ.* 1960. Т. 2, № 9. С. 2287–2300. [*Sov. Phys. Solid State.* 1961. Vol. 2, № 3. P. 2039–2042].
24. *Бир Г. Л., Пикус Г. Е.* Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках. М., 1972. [*Bir G. L. and Pikus G. E. Symmetry and deformation effects in semiconductors.* New York, 1975].
25. *Ридли Б.* Квантовые процессы в полупроводниках. М., 1986 [*Ridley B. K. Quantum processes in semiconductors.* Oxford, 1982].
26. *Бондарев И. В.* // *Письма в ЖЭТФ.* 1999. Т. 69, № 3. С. 215–219. [*JETP Lett.* 1999. Vol. 69, № 3. P. 231–235].
27. *Aleksandrov K. S., Shabanova L. A., Zinenko V. I.* // *Phys. Stat. Sol.* 1969. Vol. 33. P. K1–K3.
28. *Справочник химика / Под ред. Б. П. Никольского.* Л., 1971.
29. *Neuberger M.* Handbook of Electronic Materials. New York, 1971.
30. *Акустические кристаллы / Под ред. М. П. Шаскольской.* М., 1982.

POSITRONIUM-PHONON INTERACTIONS AND ANNIHILATION RADIATION OF POSITRONIUM 2γ -DECAY QUANTA IN IONIC CRYSTALS

I. V. Bondarev

The paper considers positronium-phonon interactions in ionic crystals and crystalline quartz. The scope of problems outlined covers positronium-phonon-interaction effect on angular spectra of annihilation radiation of positronium 2γ -decay quanta (section 1), the theory of optic deformation-potential scattering (section 2) and analysis of the role of short-wavelength acoustic scattering for delocalized Bloch-type positronium (section 3).

Positronium (Ps), the bound state of an electron and a positron, has been found to be formed in a delocalized Bloch-type state in ionic crystals with low enough concentration of defects at sufficiently low temperatures (typically below a few tens K) [11, 13]. The formation of Bloch-type Ps in these crystals is confirmed by observing very narrow peaks (the central peak and satellite peaks appearing at the momentum corresponding to the reciprocal lattice vectors of the sample crystal) in the momentum distribution of the photons (the angular spectrum of annihilation radiation) resulting from the 2γ -decay of Ps upon irradiating the crystals by low-energy positrons. As temperature increases, it is observed that the central Ps peak becomes drastically wider and the satellite peaks disappear, indicating the localization of Ps [13]. Such an effect of thermally activated *self-trapping* of Ps was observed in many ionic crystals and was analyzed theoretically in our works [19, 20]. The only exceptions presently known are the crystals of MgF_2 and $\alpha\text{-SiO}_2$ (α -phase of crystalline quartz). As is shown in recent ex-

periments [17, 21], the Ps atom in these crystals remains delocalized up to temperatures ~ 700 K (this experimental fact was first explained theoretically in Ref. [19]). The central and satellite Ps peaks in MgF_2 are observed to be drastically broadened at temperatures higher than 200 K. This anomalous broadening was failed to be explained in terms of Ps scattering on long-wavelength longitudinal acoustic phonons (acoustic deformation-potential; see Eqs. (5), (7) where $\rho(p, T)$ and $\Gamma_{\vec{k}}^{(a)}(\omega)$ are, respectively, the momentum distribution and imaginary self-energy of Ps with quasi-momentum $\vec{k} = \vec{p} / \hbar$ scattered by long-wavelength acoustic phonons, E_d is the acoustic deformation-potential constant, M^* the Ps band mass, u the sound velocity, ρ the density of the crystal). An effect appeared as if there were an additional scattering mechanism activated at temperatures higher than 200 K which renormalized the acoustic deformation-potential constant E_d of Ps so that it increased by a factor of approximately two in the narrow temperature range from 200 to 355 K. A similar effect was not observed in $\alpha\text{-SiO}_2$ where the temperature broadening of the central and satellite peaks of the Ps momentum distribution was satisfactorily explained by means of long-wavelength acoustic-phonon scattering of Ps, i. e. in terms of Eqs. (5), (7), throughout the entire temperature range $\sim 80\text{--}700$ K. In Ref. [21] an attempt was made to interpret high-temperature MgF_2 data as the activation of *short-wavelength* acoustic-phonon scattering via umklapp processes. Such a mechanism was first discussed in our work [26]. However, if the umklapp effect is the case, then there arises and remains open the question why this scattering mechanism was not observed in $\alpha\text{-SiO}_2$.

The present paper suggests the model of optic deformation-potential (*nonpolar* optic) scattering for theoretical explanation of the MgF_2 and $\alpha\text{-SiO}_2$ experimental data reported in Refs. [17, 21]. This type of scattering is known to be of importance in crystals with two and more atoms per unit cell [23–25]. We start with the secondly quantized interaction Hamiltonian Eqs. (11), (12) (D_o is the optic deformation-potential constant, ω_o the frequency of optic phonons, N and M are the number of unit cells in the crystal and the total mass of atoms in the unit cell, respectively) and calculate $\Gamma_{\vec{k}}^{(o)}(\omega)$, the nonpolar optic contribution to Ps imaginary self-energy, from Eq.(6). The result is given by Eq. (13) ($n(\omega_o)$ and $\mathcal{G}(x)$ are the optic phonon distribution function and step function, respectively) and the total imaginary self-energy accounting for both types of Ps deformation-potential scattering, acoustic and optic ones, is represented by Eqs. (14), (15) with $\tilde{E}_d(\omega)$ being the «effective» deformation-potential constant. In view of the fact that only $\omega \sim k_B T$ mainly contribute to the Ps momentum distribution (5), the ω -dependence of $\tilde{E}_d(\omega)$ can be approximately changed by T -dependence, yielding $\tilde{E}_d(T)$ given by Eq. (16). The latter one gives E_d and $\tilde{E}_d = \sqrt{E_d^2 + (uD_o/\omega_o)^2}$ in the low- and high-temperature limit, respectively, thereby explaining the increase of E_d -constant with temperature and respective anomalous broadening of the Ps momentum distribution in MgF_2 .

We have analyzed symmetry properties of the Hamiltonian Eq. (11), (12) for the Brillouin zone centre (Γ -valley) of MgF_2 (point group D_{4h}) and $\alpha\text{-SiO}_2$ (point group D_3) crystals. The interaction Hamiltonian in the Γ -valley must be an invariant with respect to transformations of the point group of a crystal [24]. This turned out to be true for the Γ -valley of MgF_2 and did not for $\alpha\text{-SiO}_2$, explaining why anomalous broadening of Ps momentum distri-

bution is not observed in the latter (nonpolar optic scattering is forbidden). However, crystalline quartz is known to undergo the second-order transition from α - to β -phase above 846 K, increasing its symmetry from D_3 to D_6 [30] and thereby making optic deformation-potential scattering allowable. Therefore, although absent in α -SiO₂, optic deformation-potential scattering of Ps must manifest itself in β -SiO₂ crystal.

As for short-wavelength acoustic scattering, it contributes to Ps imaginary self-energy [26]. However, according to Eq. (6), (19), the absorption or emission of the short-wavelength acoustic phonon by Ps yields its intermediate-state energy ω in Eq. (5) of the order of $\hbar\omega_D/\gamma$, where ω_D is the Debye frequency of the crystal, $\gamma \sim 0.01$ the non-adiabaticity parameter [19]. Then, the exponential factor in Eq. (5) is estimated by Eq. (20) to be practically zero for temperatures below a few thousands K, thereby completely ruling out the effect of short-wavelength acoustic scattering from the Ps momentum distribution.