

SmFeAsO 材料的正电子寿命研究*

郝颖萍 陈祥磊 成 斌 孔 伟 许红霞 杜淮江 叶邦角†

(中国科学技术大学近代物理系, 合肥 230036)

(2009 年 3 月 8 日收到; 2009 年 8 月 28 日收到修改稿)

首次用正电子湮灭寿命谱仪(PALS)测量 SmFeAsO 多晶样品常温下的寿命谱, 得到两个寿命成分 151.6 ps 和 290.3 ps, 根据捕获模型得到正电子在 SmFeAsO 中湮灭的体寿命为 187.0 ps, 与理论计算(广义梯度近似)得到的 SmFeAsO 单晶中的正电子体寿命 173 ps 符合较好. 基于中性原子叠加模型-有限差分方法(SNA-FD)的理论计算得到正电子与单晶 SmFeAsO 中各个原子价电子的总湮灭率是其与各个原子核心内层电子总湮灭率的 10.6 倍, 正电子与 Fe, As, Sm, O 原子的电子湮灭的概率之比是 1:1.3:1.2:1.

关键词: 高温超导, 正电子寿命

PACC: 7470V, 7870B

1. 引 言

自从在铜氧化物中发现了高转变温度的超导体以后, 新的高温超导的研发引起了人们极大的兴趣. 最近, SmFeAsO_{1-x}F_x 以其 43 K 的高转变点打破了 Bardeen-Cooper-Schrieffer 的理论预言^[1,2], 为研究超导的微观机理提供了一种新型的材料.

SmFeAsO 具有 ZrCuSiAs 型结构, 样品采用传统的固相反应合成, 以高纯的 SmAs, Fe₂O₃, Fe 为原料, 按 3:1:1 的比例混合并经过彻底的研磨后, 用 Ta 膜包裹, 密封于真空石英管内, 最后在 1160 °C 烧结 40 h, 得到 SmFeAsO 样品.

正电子寿命谱(PALS)因其对固体材料内部的缺陷、电子结构以及相变都非常敏感, 在固体材料研究中发挥着越来越重要的作用. 正电子是电子的反粒子, 射入到介质中的正电子经热化、扩散一段时间后, 最终与周围的电子发生湮灭, 正电子在介质中分布密度的变化可以直观地反映介质中的电子分布. 计算或测量不同材料的正电子的寿命谱, 可以得到不同材料的电子密度分布、空间结构及其缺陷分布等信息^[3-6].

在正电子理论计算中, 中性原子叠加模型和有限差分方法(SNA-FD)具有模型简单、方法成熟、计

算速度相对较快、计算结果与实验值符合得好等优点, 在许多材料(特别是金属和半导体)的正电子理论研究中被广泛采用^[7-9]. 通过 SmFeAsO 材料的正电子理论和实验研究, 可以更好地理解 SmFeAsO 材料内部的电子结构和能带性质, 有助于进一步研究铁基高温超导材料, 探寻高温超导的机理及规律.

本文采用理论和实验相结合的方法, 采用中性原子叠加模型和有限差分方法计算了 SmFeAsO 单晶中的正电子分布及湮灭信息; 然后测量了 SmFeAsO 多晶样品的正电子寿命值; 在理论计算的基础上对实验结果进行了合理分析.

2. 理论计算

分别在局域密度近似(LDA)^[10]和广义梯度近似(GGA)^[11]的基础上, 用 SNA-FD 方法计算了 SmFeAsO 单晶中的正电子寿命, 计算中把 686 个 Fe 原子, 686 个 As 原子, 686 个 Sm 原子和 686 个 O 原子按照 SmFeAsO 单晶结构构成的团簇模拟单晶 SmFeAsO, 计算中选取一个单胞作为计算区域, 以 0.006 nm 为间隔将计算区域分为 66 × 66 × 142 个三维网格点.

计算出的(001)(Fe, As, Sm, O)原子平面上的正电子波函数分布如图 1 所示. 正电子主要分布在

* 国家自然科学基金(批准号:10675114)和国家自然科学基金重点项目(批准号:10835006)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail:bjye@ustc.edu.cn

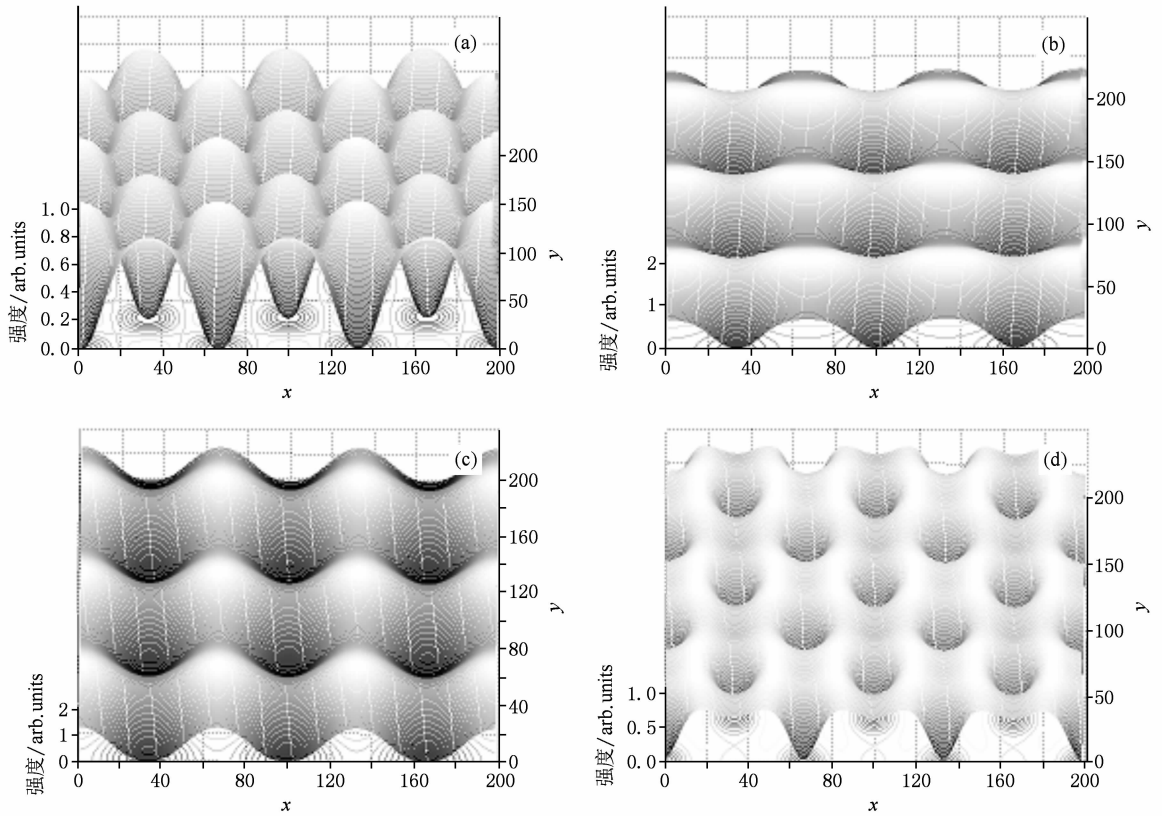


图1 (001) (Fe, As, Sm, O) 原子平面上的正电子波函数分布 (a) (001) Fe 原子平面, (b) (001) As 原子平面, (c) (001) Sm 原子平面, (d) (001) O 原子平面

原子之间的区域,越靠近原子,正电子出现的概率越小.

计算出的(001) (Fe, As, Sm, O) 原子平面上的正电子湮灭率密度分布如图2所示.从图2中可以看出,正电子的湮灭率密度分布在原子中间的区域有一个均匀的较高分布,这主要是价电子与正电子湮灭的概率;在原子位置附近有一个较高的湮灭率密度分布,这主要是各种原子的核心内层电子与正电子湮灭的贡献.

将计算得到的自由态正电子在SmFeAsO中的波函数分布和湮灭率密度分布在(001)平面上积分,得到自由态正电子波函数和湮灭率在<001>方向上的一维分布,如图3所示.

从图3中可以看出正电子在Fe原子平面和As原子平面之间的区域分布和湮灭都很少,而在其他

原子平面之间分布和湮灭较多.将正电子与各个原子的湮灭分解,得到正电子与不同原子的电子发生的湮灭在<001>方向上的一维分布,如图4所示.

通过LDA, GGA分别计算SmFeAsO单晶结果如表1所示. LDA计算得到的单晶SmFeAsO中自由态正电子寿命 τ_1 为160 ps,其中正电子与总价电子的湮灭率 λ_1 是5.484/ns,正电子与总核心电子的湮灭率 λ_2 是0.518/ns.正电子与各个原子价电子的总湮灭率是其与各个原子核心内层电子总湮灭率的10.6倍.其中正电子与Fe, As, Sm, O原子的电子湮灭的概率之比是1:1.3:1.2:1.以同样的流程,我们用GGA计算得到的单晶SmFeAsO中自由态正电子寿命173 ps,正电子与电子的总湮灭率是5.781/ns,其中正电子与Fe, As, Sm, O原子的电子湮灭的概率之比同样是1:1.3:1.2:1.

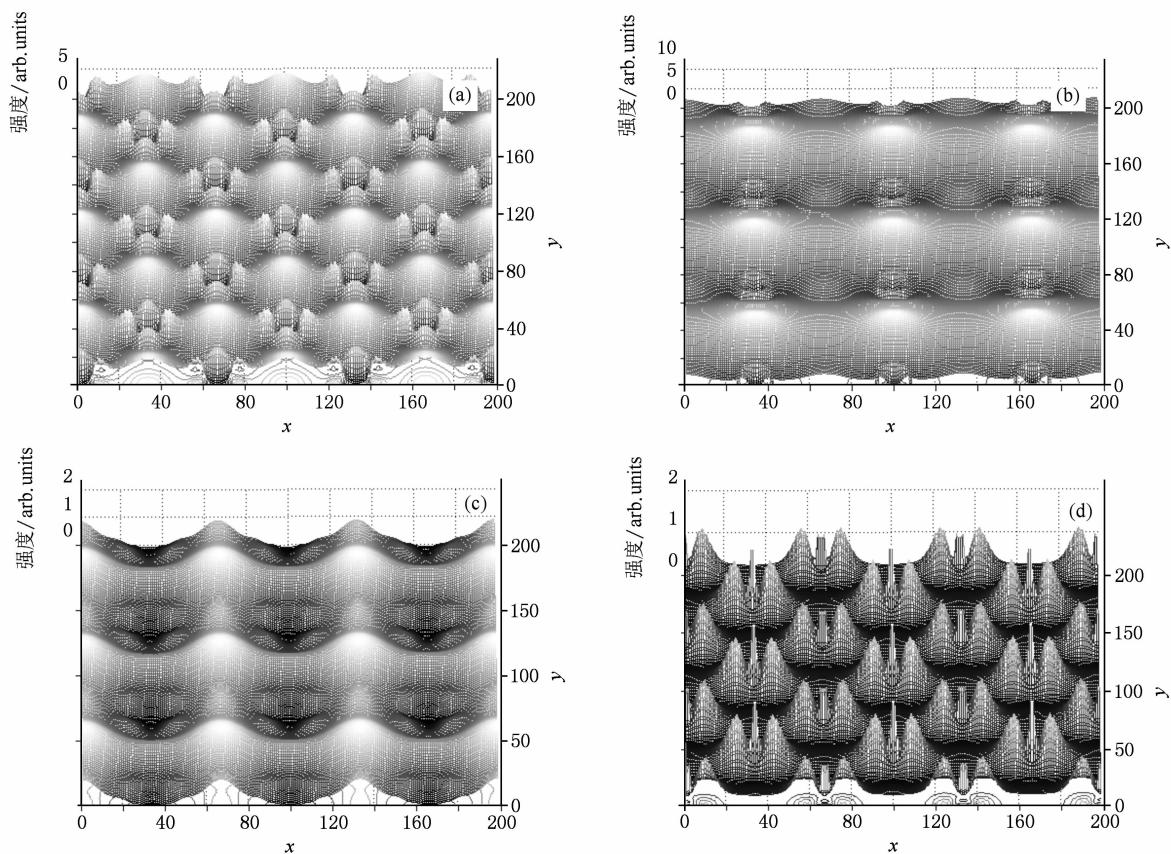


图2 (001) (Fe, As, Sm, O) 原子平面上的正电子湮灭率密度分布 (a) (001) Fe 原子平面, (b) (001) As 原子平面, (c) (001) Sm 原子平面, (d) (001) O 原子平面

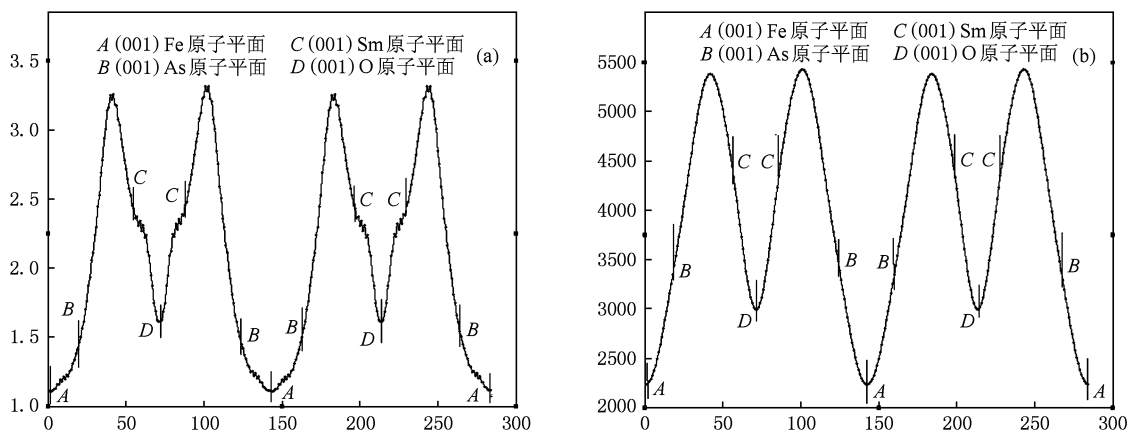


图3 自由态正电子 $\langle 001 \rangle$ 方向上的一维波函数分布和一维湮灭率分布 (a) 波函数, (b) 湮灭率

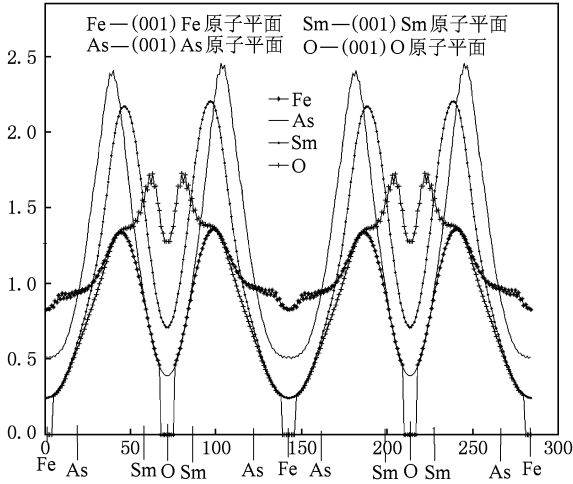


图4 自由态正电子在<001>方向上分别与 Fe, As, Sm, O 原子的电子发生湮灭的湮灭率—维分布

表1 LDA, GGA 分别计算 SmFeAsO 单晶结果

	LDA	GGA
τ_1/ps	160	173
λ_1/ns	5.484	5.781
λ_2/ns	0.518	
湮没率比	1:1.3:1.2:1	1:1.3:1.2:1

3. 实验测量

首先,我们对 SmFeAsO 多晶样品的成相、晶粒形貌进行了表征.图5是 SmFeAsO 多晶样品的扫描电子显微镜图(SEM),从图中可以看出样品晶粒大小在 1—5 μm ,远大于正电子在样品中的扩散长度约 2000 \AA ,因此正电子主要在晶粒中湮灭.图6是 SmFeAsO 多晶样品的 X 射线衍射图(XRD),曲线中所有的衍射峰都可以用四方的 ZrCuSiAs 结构很好的指标,且没有可观测的杂相存在.样品的更多信息可见文献[12].

用 PALS 测量了样品的正电子寿命谱,此探测手段在研究 YBCuO 等高温超导体取得非常好的成果^[13,14].本实验使用谱仪分辨 210 ps,实验所用放射源为 10 μCi 的 ²²Na,源滴于样品上,两个样品夹着放射源以“三明治”结构置于两个塑料闪烁体探头之间,测量的结果用程序 lifetime 解谱,解谱后得到两个寿命成分,如表2所示.

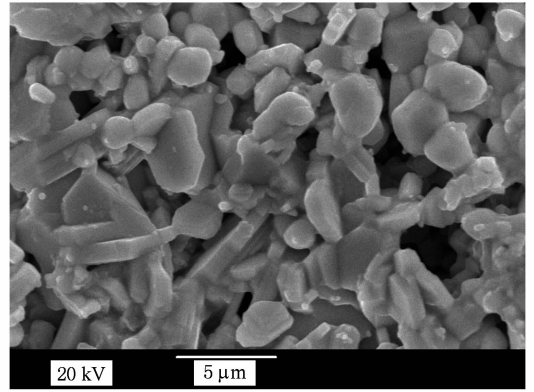


图5 SmFeAsO 多晶样品 SEM 图

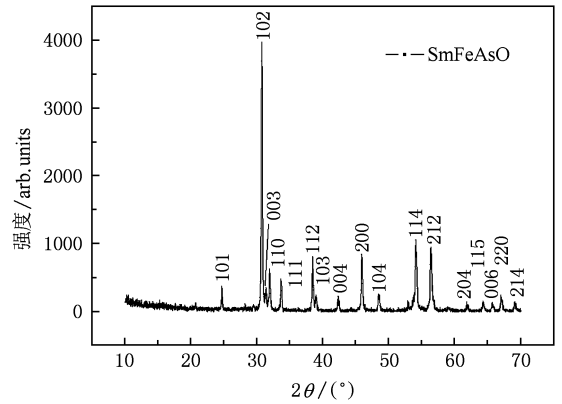


图6 SmFeAsO 多晶样品的 XRD 图

表2 SmFeAsO 样品中正电子寿命及强度

物理量/单位	数值
τ_1/ps	151.6(2.2)
$I_1/\%$	60.8(1.6)
τ_2/ps	290.3(7.3)
$I_2/\%$	38.8(1.6)

表2中 τ_1 和 I_1 分别代表正电子在 SmFeAsO 多晶样品中湮没短寿命成分和强度, τ_2 和 I_2 分别代表长寿命成分的寿命和强度.根据正电子捕获模型,有

$$\tau_{\text{bulk}}^{-1} = \tau_{\text{bulk}}^{-1} + (\tau_{\text{bulk}}^{-1} - \tau_{\text{trap}}^{-1}) \frac{I_2}{I_1}, \quad (1)$$

$$\tau_2 = \tau_{\text{trap}}, \quad (2)$$

$$\tau_{\text{bulk}}^{-1} = I_1 \tau_1^{-1} + I_2 \tau_2^{-1}, \quad (3)$$

将表1结果代入上式,可计算出正电子在 SmFeAsO 多晶样品中湮灭的体寿命为 187.0 ps,与理论计算中 GGA 得到的 SmFeAsO 单晶中的正电子寿命值 173 ps 在误差范围内符合较好,应该是自由态正电

子在 SmFeAsO 单晶颗粒中湮灭的体寿命,其强度所占比例较大,说明样品的结晶度较高. 290.3 ps 的长寿命成分可能是正电子在原子缺陷或者在多晶中不同晶向的晶粒之间晶界中的湮灭,具体缺陷还需进一步实验研究.

4. 结 论

测量了常温下 SmFeAsO 多晶样品的正电子寿命谱实验,得到两个寿命成分 151.6 ps 和 290.3 ps.

其计算得到的体寿命与正电子在 SmFeAsO 单晶中湮灭行为的理论计算(GGA)得到的自由态正电子寿命符合较好,SmFeAsO 单晶中正电子与各个原子价电子的总湮灭率是其与各个原子核心内层电子总湮灭率的 10.6 倍,正电子与 Fe, As, Sm, O 原子的电子的湮灭率之比是 1:1.3:1.2:1. 同时也表明正电子理论计算可以进一步指导实验研究.

感谢中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室的陈仙辉教授和刘荣华博士为此次实验提供样品和有价值的建议.

-
- [1] McMillan W L 1968 *Phys. Rev.* **167** 331
- [2] Chen X H, Wu T, Wu G, Liu R H, Chen H, Fang D F 2008 *Nature* **453** 761
- [3] Plazaola F, de Diegot N 1994 *J. Phys. D: Condens. Matter* **6** 447
- [4] Falub C V, Mijnaerends P E, Eijt S W H, van Huis M A, van Veen A, Schut H 2002 *Phys. Rev. B* **66** 075426
- [5] Chen X L, Kong W, Weng H M, Ye B J 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3271 (in Chinese) [陈祥磊、孔 伟、翁惠民、叶邦角 2008 物理学报 **57** 3271]
- [6] Chen X L, Xi C Y, Ye B J, Weng H M 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6695 (in Chinese) [陈祥磊、郗传英、叶邦角、翁惠民 2007 物理学报 **56** 6695]
- [7] Jensen K O 1989 *J. Phys. D: Condens. Matter* **1** 10595
- [8] Puska M J, Nieminen R M 1983 *J. Phys. F: Met. Phys.* **13** 333
- [9] Plazaola F, Seitsonen A P, Puska M J 1994 *J. Phys. D: Condens. Matter* **6** 8809
- [10] Boronski E, Nieminen R M 1986 *Phys. Rev. B* **34** 3820
- [11] Barbiellini B, Puska M J, Korhonen T, Harju A, Torsti T, Nieminen R M 1996 *Phys. Rev. B* **53** 16201
- [12] Liu R H, Wu G, Wu T, Fang D F, Chen H, Li S Y, Xie Y L, Wang X F, Yang R L, Ding L, He C, Feng D L, Chen X H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 087001
- [13] Liu L H, Dong C, Deng D M, Chen Z P, Zhang J C 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 769 (in Chinese) [刘丽华、董 成、邓冬梅、陈镇平、张金仓 2001 物理学报 **50** 769]
- [14] Chen Z P, Zhang J C, Cao G X, Cao S X 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2150 (in Chinese) [陈镇平、张金仓、曹桂新、曹世勋 2002 物理学报 **51** 2150]

Positron annihilation lifetime study of SmFeAsO superconductor^{*}

Hao Ying-Ping Chen Xiang-Lei Cheng Bin Kong Wei Xu Hong-Xia Du Huai-Jiang Ye Bang-Jiao[†]

(*Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

(Received 8 March 2009; revised manuscript received 28 August 2009)

Abstract

Positron annihilation lifetime spectroscopy (PALS) measurements of SmFeAsO polycrystalline sample were first carried out at 298 K. Two lifetime components of 151.6 ps and 290.3 ps were obtained. According to two-state capture model, the free annihilation lifetime in polycrystalline SmFeAsO is 187.0 ps, which agrees well with the calculated value (in general gradient approximation) of 173 ps in SmFeAsO single crystal. Superposed-neutral-atom model and the finite-difference method (SNA-FD) were used to calculate the positron annihilation information in single-crystal SmFeAsO. The results show that the ratio of annihilation rate with valence electrons to annihilation rate with core electrons is 10.6, while the ratio of annihilation rate with electrons from Fe, As, Sm, and O atoms are 1:1.3:1.2:1.

Keywords: high-temperature superconductors, positron lifetime

PACC: 7470V, 7870B

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10675114) and the Key Program of National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10835006).

† Corresponding author. E-mail: bje@ustc.edu.cn