

# 闪锌矿结构晶体的正电子体寿命计算\*

张 杰<sup>†</sup> 陈祥磊 郝颖萍 叶邦角 杜淮江

(中国科学技术大学近代物理系核固体物理实验室, 合肥 230026)

(2009 年 10 月 8 日收到; 2009 年 12 月 11 日收到修改稿)

在局域密度近似理论(LDA)和广义梯度近似理论(GGA)的基础上,用中性原子叠加的方法(ATSUP),理论上对亚铜的卤化物(CuF 除外,因为它不是闪锌矿结构)及某些硼化物进行计算,计算结果与实验符合得很好;其次,计算了其他具有闪锌矿结构的众多晶体的正电子体寿命,得到的结果与其他文献计算的结果符合得较好,文中以 CuCl 晶体为例,给出了正电子在其中的势能分布,概率密度分布与湮没率分布;最后,这些系统性的正电子体寿命结果被拟合成晶格常数的函数,拟合结果与其他一些文献的结果做了比较.

**关键词:** 正电子体寿命, 闪锌矿结构

**PACC:** 7870B, 6150E

## 1. 引 言

通过正电子湮灭寿命谱(PALS),可以获得材料微观结构的很多信息,通过测量得到的正电子寿命的大小和浓度,可以反映材料的缺陷类型和缺陷浓度,从而为我们确定材料的组成和缺陷提供重要的参考信息<sup>[1,2]</sup>. 正电子理论计算是正电子研究的主要领域之一,确定结构或者缺陷类型的基础上的正电子计算结果与实验测量值的对比,可以为实验结果提供清晰而准确的物理图像,从而有力的支持和解释正电子实验测量数据<sup>[3,4]</sup>.

本文在局域密度近似(local density approximation, LDA)和广义梯度近似(general gradient approximation, GGA)基础上用 ATSUP 方法,计算了具有闪锌矿结构的众多晶体的正电子湮没行为,并对这些正电子的系统性的体寿命结果进行拟合与分析.

## 2. 计算方法

在正电子理论计算的 ATSUP 方法中<sup>[5-8]</sup>,正电子在材料中的势能看作正电子的库仑势能和关联势能之和,求得正电子势能后代入 Schrödinger 方程

中迭代求得正电子波函数  $\phi(r)$  后,得到正电子密度分布  $n_+(r)$ , 然后代入正电子湮没率公式中求得正电子的湮没率和寿命. 正电子波函数  $\phi(r)$  是通过数值求得,收敛判据为,正电子能量本征值的误差是  $10^{-6}H$  ( $H$  为能量单位,  $1H = 27.2114 \text{ eV}$ ). 对正电子湮没表达式处理方法的不同,就形成不同理论,目前主要有两种近似方法,就是所谓的 LDA 方法<sup>[5,7]</sup>与 GGA 方法<sup>[9]</sup>.

这里,我们有必要指出:第一,在 LDA 框架中计算正电子寿命,没有必要将总的电子密度分成核心电子与价电子来处理<sup>[1,2,10]</sup>,本文也没有区分核心电子与价电子;第二,有人指出,在 GGA 框架中使用的电子密度,最好是使用固体能带方法中自洽得到的计算结果<sup>[9]</sup>,ATSUP 方法使用的电子密度不是通过自洽计算得到的,但 GGA 计算结果与实验和其他文献计算的结果符合得很好.

## 3. 闪锌矿型晶体结构

闪锌矿型晶体一般是 AB 型化合物,其点阵型式是 A 离子形成面心立方点阵, B 离子也形成面心立方点阵. 平行交错的方式比较复杂,是一个面心立方格子的结点位于另一个面心立方格子的体对角线的 1/4 处. 如图 1 所示. 属立方晶系,配位数为 4:4,即每个 B 离子周围与 4 个相反电荷的 A 联成

\* 国家自然科学基金(批准号:10675114,10675115,10835006)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: zjszm@mail.ustc.edu.cn

四面体, 同样每个  $A$  离子也与周围的 4 个  $B$  离子联成四面体. 对于金刚石结构的晶体, 只是  $A$  与  $B$  是同种元素, 所以本文将金刚石结构归为闪锌矿型结构来研究.

属闪锌矿型结构类型的晶体有: 亚铜的卤化物, 硼、铝、镓和铟的磷化物, 砷化物和锑化物, 以及碳化硅, 单质碳和单质硅等.

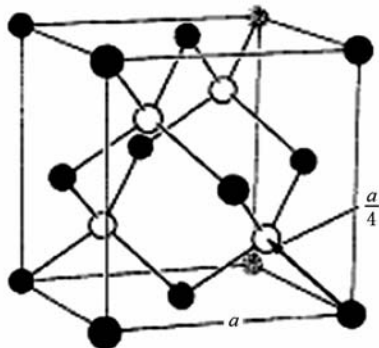


图 1 闪锌矿型晶体晶胞结构

一些计算所需的参数如表 1 所示,  $a_0$  是晶格常数,  $\epsilon_\infty$  是高频介电常数.

表 1 晶体的晶格常数和介电常数

晶体	$a_0 / \text{\AA}$	$\epsilon_\infty$	晶体	$a_0 / \text{\AA}$	$\epsilon_\infty$
C	3.567 <sup>[11]</sup>	5.66 <sup>[11]</sup>	CdTe	6.488 <sup>[11]</sup>	7.2 <sup>[11]</sup>
Si	5.43 <sup>[11]</sup>	12.0 <sup>[11]</sup>	HgTe	6.468 <sup>[11]</sup>	14.0 <sup>[11]</sup>
SiC	4.345 <sup>[11]</sup>	6.6 <sup>[11]</sup>	BP	4.55 <sup>[11]</sup>	8.2 <sup>[11]</sup>
InSb	6.488 <sup>[11]</sup>	15.7 <sup>[11]</sup>	BAs	4.784 <sup>[14]</sup>	
GaAs	5.657 <sup>[11]</sup>	10.9 <sup>[11]</sup>	BSb	5.252 <sup>[14]</sup>	
InP	5.869 <sup>[11]</sup>	9.6 <sup>[11]</sup>	CuCl	5.41 <sup>[14]</sup>	
GaN	4.482 <sup>[11]</sup>	5.4 <sup>[11]</sup>	CuBr	5.69 <sup>[15]</sup>	
AlP	5.45 <sup>[11]</sup>	7.6 <sup>[11]</sup>	CuI	6.05 <sup>[16]</sup>	

## 4. 计算结果

本文只以 CuCl 为例, 画出在 GGA 框架下计算得到的正电子所受的势能分布、正电子概率密度分布、正电子与湮没率分布, 计算结果分别如图 2, 图 3, 图 4 所示, 所画的原子平面为 (100) 面.

从图 2 与图 3 可以看出, 正电子在原子位置处, 所受势能最大, 远离原子时, 势能减小, 而且势能下降很快, 正电子在原子位置附近出现的概率很小, 在原子间隙处, 正电子出现的概率最大; 从图 4 可以

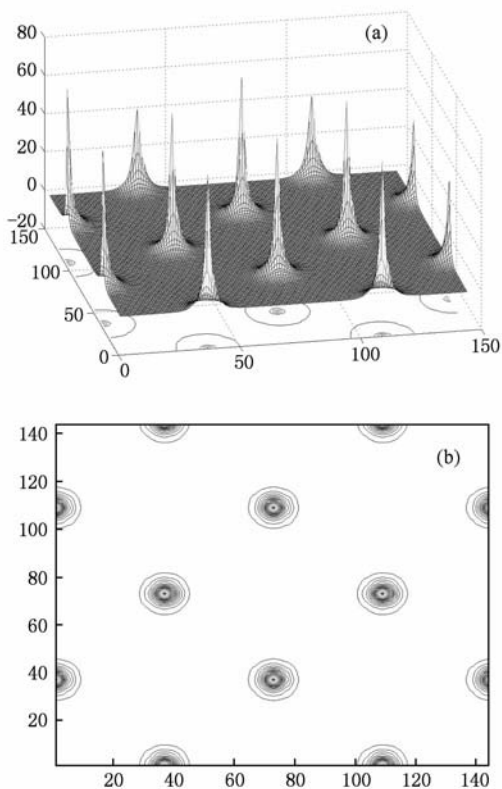


图 2 (100) 原子平面上, 正电子所受势能分布 (a) 3D 图; (b) 等高图

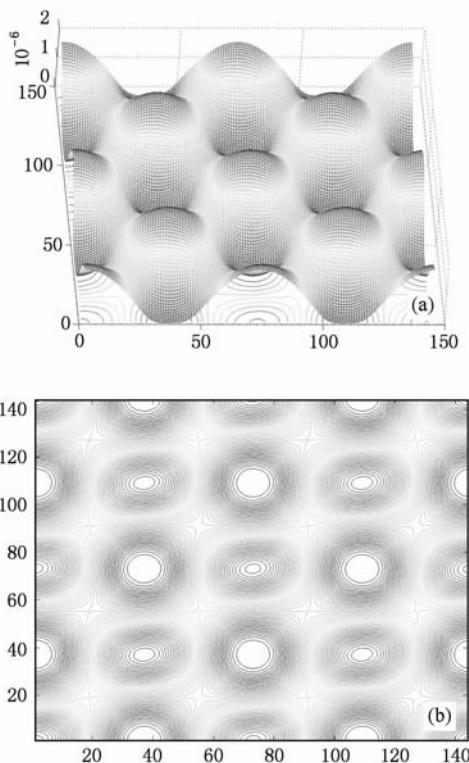


图 3 (100) 原子平面上, 正电子概率密度分布 (a) 3D 图; (b) 等高图

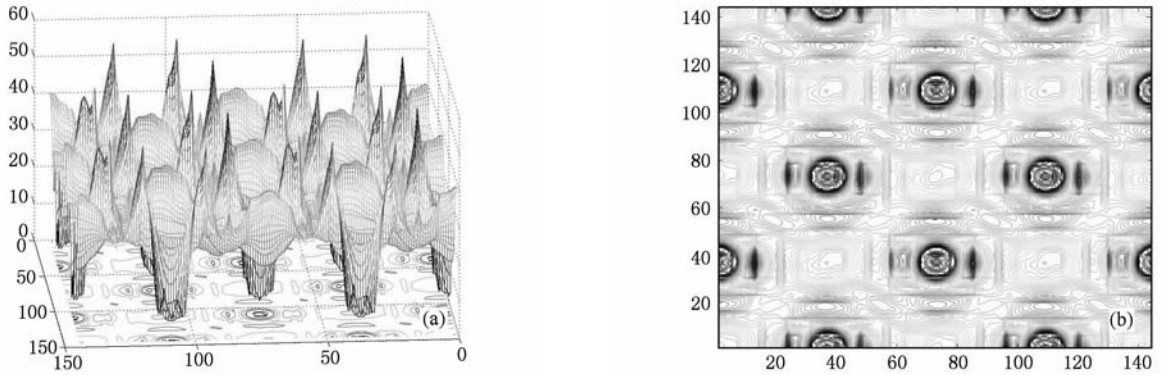


图4 (100)原子平面上,正电子湮没率分布 (a)3D图;(b)等高图

看出,在原子位置处,正电子湮没率最小,虽然正电子在原子间隙处出现的概率最大,但湮没率却不是最大,而是离原子不很远处湮没率最大,这很容易理解,因为正电子湮没率不仅与正电子密度有关,而且与电子密度有关,在原子间隙处,电子密度最

小,所以间隙处尽管正电子出现概率最大,但湮没率却不是最大。

基于 LDA 和 GGA 的 ATSUP 方法计算的正电子体寿命与文献实验测量值和理论值比较,如表 2 所示。

表 2 各闪锌矿型晶体正电子体寿命计算值

晶体	LDA 计算值/ps	GGA 计算值/ps	文献理论值/ps	文献实验值/ps
C	93	94	93 <sup>[7]</sup> , 94 <sup>[24]</sup>	107 <sup>[7]</sup>
Si	217	206	214 <sup>[24]</sup> , 211 <sup>[23]</sup>	218 <sup>[22]</sup> , 216 <sup>[23]</sup>
SiC	133	131	134 <sup>[9]</sup> , 137 <sup>[24]</sup>	157 <sup>[21]</sup>
InSb	258	269	278 <sup>[11]</sup> , 280 <sup>[11]</sup>	258 <sup>[21]</sup> , 280 <sup>[11]</sup>
GaAs	213	221	231 <sup>[10]</sup> , 214 <sup>[23]</sup>	231 <sup>[10]</sup> , 230 <sup>[11]</sup>
InP	230	237	237 <sup>[11]</sup> , 225 <sup>[23]</sup>	242 <sup>[20]</sup> , 244 <sup>[23]</sup>
GaN	140	153	141 <sup>[11]</sup>	180 <sup>[11]</sup>
AlP	223	211	226 <sup>[10]</sup> , 228 <sup>[11]</sup>	
CdTe	272	289	286 <sup>[18]</sup> , 256 <sup>[23]</sup>	285 <sup>[18]</sup> , 289 <sup>[11]</sup>
HgTe	255	279	285 <sup>[9]</sup> , 257 <sup>[18]</sup>	274 <sup>[18]</sup>
BP	154	149	151 <sup>[11]</sup> , 149 <sup>[11]</sup>	
BA <sub>s</sub>		164		
BS <sub>b</sub>		188		
CuCl		250		247 <sup>[19]</sup>
CuBr		264		274 <sup>[19]</sup>
CuI		273		285 <sup>[19]</sup>

从上表可以看出,这里的理论计算与文献中的理论计算值与实验值符合较好,同时,从 GGA 计算出的结果可以看出,即使没有使用自洽的电子密度计算,得到的结果也是合理的。

Puska 与其他一些研究者发现对于某些半导体,正电子寿命与晶胞体积有很好的线性关系<sup>[11]</sup>。后来, Siethoff 拟合了一条曲线,并且获得了如下表

达式<sup>[12]</sup>:

$$\tau_B = C a_0^{3/2}, \quad (1)$$

这里  $C = 543.8 \text{ ps/nm}^{1.5}$ 。Siethoff 指出, Pareja 拟合的表达式  $\tau_B = c + d a_0$  ( $c = -86.5 \text{ ps}$ ,  $d = 565 \text{ ps/nm}$ )<sup>[13]</sup>并不与(1)式矛盾,这是因为存在一个抛物线定律,即在远离原点的一段范围内,抛物线可以近似为线性。Siethoff 同时也指出,在那些具有金刚

石结构,或闪锌矿结构,或纤锌矿结构的半导体中,正电子体寿命与晶格参数有紧密的联系.

本文也将计算得到的正电子体寿命进行拟合(CuCl, CuBr, CuI 除外),拟合图形如图 5 所示. 图中圆形点和三角形点分别是 LDA 与 GGA 框架下计算的正电子体寿命. 纵坐标为体寿命,单位是 ps,横坐标是晶格常数,单位是 Å.

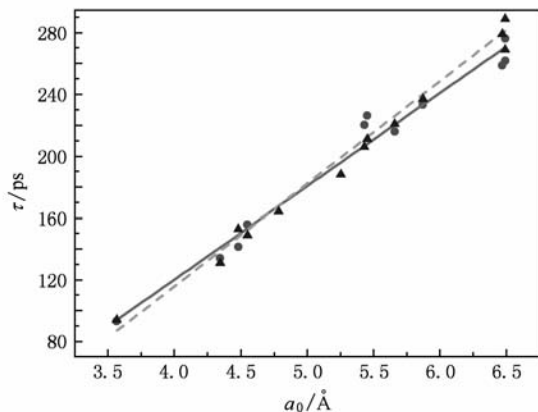


图 5 正电子体寿命关于晶格常数的拟合曲线,圆点“●”及实线,是 LDA 框架下的拟合结果;三角形点“▲”及虚线,是 GGA 框架下的拟合结果

LDA 框架下,即图 5 中拟合得到的实线的表达式为

$$\tau = (-117.123 \pm 16.661) + (59.128 \pm 3.070) \cdot a_0, \quad (2)$$

GGA 框架下,即图 5 中拟合得到的虚线的表达式为

$$\tau = (-145.014 \pm 10.769) + (65.032 \pm 2.006) \cdot a_0, \quad (3)$$

同时采用文献[12]中的拟合方法,在 LDA, GGA 框架下,拟合的曲线分别为

$$\tau = (-17.233 \pm 13.163) + (17.286 \pm 1.020) \cdot a_0^{3/2}, \quad (4)$$

$$\tau = (-35.296 \pm 6.603) + (19.057 \pm 0.521) \cdot a_0^{3/2}. \quad (5)$$

上面的四个式子中,晶格常数  $a_0$  的单位是 Å,正电子体寿命的单位是 ps. 在线性拟合与非线性拟合方式中,文献中给出的拟合系数分别为 565 ps/nm, 543.8 ps/nm<sup>1.5</sup>, 这里在 LDA 框架中,线性与非线性拟合系数分别为 (591.28 ± 30.70) ps/nm, (546.631 ± 32.255) ps/nm<sup>1.5</sup>, 可见,这一点与文献符合得很好,但拟合得到的常数系数都偏小,这说明这里 LDA 计算结果与文献中的计算值整体偏小.

## 5. 结 论

基于 LDA 和 GGA 的 ATSUP 方法,在理论上,计算出了亚铜卤化物的正电子体寿命,计算结果与文献中的实验值符合得很好;其次,计算了其他具有闪锌矿结构的众多晶体的自由正电子寿命值,计算结果与文献中理论值和实验值符合较好,并且以 CuCl 为例,画出了正电子所受的势能分布图、正电子的概率密度分布图,及湮没率分布图,从图中看出,虽然正电子在原子间隙处出现的概率密度最大,但其湮没率并不最大,这是因为,原子间隙处的电子密度很小;最后,对这些系统性的计算结果进行拟合,拟合结果与文献给出的结果基本符合,但拟合得到的常数系数与文献中的结果相比偏小.

[1] Hakkinen H, Makinen S, Manninen M 1990 *Phys. Rev. B* **41** 12441  
 [2] Sterne P A, Kaiser J H 1991 *Phys. Rev. B* **43** 13892  
 [3] 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]  
 [4] 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]  
 [5] Puska M J, Nieminen R M 1994 *Rev. Mod. Phys.* **66** 3  
 [6] Puska M J, Nieminen R M 1983 *J. Phys. F: Met. Phys.* **13** 333

[7] Campillo Robles J M, Ogando E, Plazaola F 2007 *J. Phys. Condens. Matter* **19** 176222  
 [8] Nieminen R M, Boronski E, Lantto L J 1985 *Phys. Rev. B* **32** 1377  
 [9] Barbiellini B, Puska M J, Korhonen T, Harju A, Torsti T, Nieminen R M 1996 *Phys. Rev. B* **53** 16201  
 [10] Puska M J 1991 *J. Phys. Condens. Matter* **3** 3455  
 [11] Puska M J, Makinen S, Manninen M, Nieminen R M 1989 *Phys. Rev. B* **39** 7666  
 [12] Siethoff H 1998 *Phys. stat. sol. (b)* **205** R3  
 [13] Pareja R, De LA Cruz R M 1993 *Phys. stat. sol. (b)* **178** K23  
 [14] Zaoui A, El Haj Hassan F 2001 *J. Phys. Condens. Matter* **13** 253

- [15] Press M R, Ellis D E 1988 *Phys. Rev. B* **38** 3102  
 [16] Aourag H, Guittom A 2009 *Phys. stat. sol. (b)* **246**  
 [17] Alatalo M, Kauppinen H, Saarinen K, Puska M J, Makinen J, Hautajarvi P, Nieminen R M 1995 *Phys. Rev. B* **51** 4176  
 [18] Plazaola F, Seitsonen A P, Puska M J 1994 *J. Phys. Condens. Matter* **6** 8809  
 [19] Cova S, Dupasquier A, Manfredi M 1967 *IL Nuovo Cimento* *XLVII* B 263  
 [20] Dlubek G, Brummer O 1986 *Ann. Phys. (Leipzig)* **7** 178  
 [21] Dannefaer S 1982 *J. Phys. C* **15** 599  
 [22] Fuhs W, Holzhauer V, Mantl S, Richter F W, Sturm R 1978 *Phys. Status. solidi B* **89** 69  
 [23] Takenaka H, Singh D J 2008 *Phys. Rev. B* **77** 155132  
 [24] Panda B K, Brauer G, Skorupa W 2000 *Phys. Rev. B* **61** 15

## Calculation of positron bulk lifetime of sphalerite crystalloid \*

Zhang Jie<sup>†</sup> Chen Xiang-Lei Hao Ying-Ping Ye Bang-Jiao Du Huai-Jiang

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

(Received 8 October 2009; revised manuscript received 11 December 2009)

### Abstract

Here, we calculated theoretically the positron bulk lifetime of cuprous halide (except CuI, which has not the blende structure) and some borides with the method of atomic superposition approximation (ATSUP) on the basis of the theory of local density approximation (LDA) and general gradient approximation (GGA), the calculated results are in good agreement with the experiment. On the other hand, the positron lifetime of many other compounds which have blende structure are calculated, and the results agree with the results published in literature. Here we take the CuCl as an example, the pictures of the electron potential energy distribution, probability density of positron and positron annihilation rate are given. Finally the systematic results were fitted with curve as a function of lattice constants, and the fitted results are compared with the outcomes of other articles.

**Keywords:** positron bulk lifetime, sphalerite crystalloid

**PACC:** 7870B, 6150E

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10675114, 10675115, 10835006).

<sup>†</sup> E-mail: zjszm@mail.ustc.edu.cn