

完美晶体中正电子体寿命计算的几种方法的分析与比较*

黄世娟¹⁾²⁾ 张文帅¹⁾²⁾ 刘建党¹⁾²⁾ 张杰³⁾ 李骏¹⁾²⁾ 叶邦角^{1)2)†}

1) (中国科学技术大学, 核探测器与核电子学国家重点实验室, 合肥 230026)

2) (中国科学技术大学近代物理系, 合肥 230026)

3) (中科院等离子体物理所, 合肥 230026)

(2014年5月20日收到; 2014年8月4日收到修改稿)

以正电子寿命为探测对象的正电子湮没寿命谱技术在研究半导体等材料的微缺陷方面得到了广泛的应用, 它对晶体的结构类型、缺陷种类以及温度等十分敏感, 因此, 理论上正电子寿命的快速精确计算与实验数据的结合分析显得尤为重要. 采用中性原子叠加模型、赝势方法和全势方法处理正电子局域势能, 有限差分方法自洽求解正电子波函数, 局域密度近似和广义梯度近似处理正电子电子关联势和增强因子, 以体心立方结构的 α -Fe、面心立方结构的Al和复式面心立方结构的Si三种单晶固体为例, 分别计算了它们的正电子体寿命, 计算值与相应的实验结果和其他计算结果均符合较好. 同时细致分析了这几种方法在电子密度网格点精度、正电子电子关联势和增强因子等方面对正电子体寿命计算的影响, 探讨了这几种方法在计算正电子体寿命方面各自的优缺点.

关键词: 正电子体寿命, 完美晶体, 正电子电子关联势, 增强因子

PACS: 78.70.Bj, 71.15.Mb, 71.15.-m

DOI: 10.7498/aps.63.217804

1 引言

由制作工艺、中子辐射或电子辐射等导致的晶体中的各种缺陷能够强烈地影响晶体的物理和化学特性, 因此, 晶体内缺陷的表征对提高晶体的性能具有指导意义. 近几十年来, 以低能正电子为探针的正电子湮没技术 (the positron annihilation technology, PAT) 已经成为表征晶体内缺陷的一种强有力的手段^[1-5], 它通过获取正电子与电子湮没产生的 γ 光子的时间、动量、能量等信息, 从微观上对固体内的电子结构进行无损探测分析, 相对于其他探测手段, 这是PAT所具有的最大优势^[6]. 正电子寿命谱技术作为PAT中的一种, 它以正电子寿命为探测对象, 对晶体的结构类型、缺陷种类以及温度等都是十分敏感的, 实验上得到正电子寿命

值, 再与理论计算得到的特定晶体结构和特定缺陷类型的正电子寿命值对比, 能够为材料微结构的分析提供强有力的证据^[7,8].

目前, 在二成分密度泛函理论^[9,10]的基础上发展起来的正电子寿命计算有很多种近似方法. 这些不同主要来自于: 1) 对正电子所处势场的不同近似处理方式, 也即正电子所处的晶体电子结构的不同近似处理, 比如中性原子叠加模型 (the superposed neutral atom model, SNA)^[11]、赝势模型 (the pseudo-potential model, PP)(如经验赝势^[12]、模守恒赝势^[13]、超软赝势^[14]、投影缀加波方法^[15,16] (the projector augmented wave method, PAW) 等) 和全势模型 (如线性MT轨道原子球近似方法^[17]、全势线性MT轨道方法^[18]、全势线性缀加平面波方法^[19,20] (the full potential linearized augmented plane wave method, FLAPW) 等等);

* 国家自然科学基金 (批准号: 11175171, 11105139) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: bjye@ustc.edu.cn

2) 正电子薛定谔方程的不同近似求解方式, 比如有有限差分方法 (the finite difference method, FDM)、平面波方法 (the plane wave method, PW) 等; 3) 正电子与电子的关联势以及增强因子的不同近似处理方式, 比如局域密度近似^[21] (the local density approximation, LDA)、广义梯度近似^[22] (the generalized gradient approximation, GGA)、权重密度近似^[23] 等等. 其中最重要的就是正电子局域势能和增强因子的处理. Puska^[11,24-26]、陈祥磊^[27-31] 等已经将中性原子叠加方法用在了正电子寿命和亲和势等的计算中, 虽然这个模型比较粗糙, 但是其计算所得到的正电子体寿命以及部分缺陷寿命与实验结果符合得非常好; 唐政^[32,33]、刘建党^[34,35]、张杰^[36-38] 等也将赝势平面波方法成功地应用在了正电子能带、寿命以及动量密度分布等其他正电子物理特性的计算中, 但是平面波基组的应用使得这种方法不能很好地处理变化比较尖锐的核芯电子的波函数, 也就不能很好地处理正电子与核芯电子的湮没情况. 2011 年, Drummond 等^[39] 用量子蒙特卡罗的方法研究均匀电子气中的正电子性质, 随后, Kuriplach^[40] 在 Drummond 等的数据库基础上提出了最新的 LDA 和 GGA 形式的增强因子, 但是张文帅等^[41] 通过计算分析发现这种新的增强因子形式并没有比传统的 LDA 和 GGA 增强因子更符合实验值. 在前面所述的正电子寿命的计算方法中, 都采用了一个统计近似^[42], 那就是认为每一个时刻, 晶体中都只存在惟一个正电子, 这在通常的实验室条件下均是满足的, 所以在本文的各种计算方法中仍然保留这个近似. 另外, 1986 年, Boronski 和 Nieminen 尝试解决密度泛函理论在正电子-电子图景中应用的两个困难^[10,43] (一是正电子进入固体后, 对固体内电子密度分布的影响; 二是正电子被开空间缺陷俘获后, 对周围电子密度分布的影响), 但是, 通过与传统方式^[12] 对比发现, 在计算完美晶体的正电子寿命方面, 两者的差别很小, 因此, 本文仍然采用传统方式中的独立粒子近似^[44], 也即认为体系中引入单个正电子后, 体系的平均电荷密度分布不发生改变, 被俘获的正电子只局域地影响周围电子密度分布, 而这一影响通过电子正电子增强因子体现. 本文以 α -Fe, Al 和 Si 这三种不同结构的单晶为例, 采用中性原子叠加模型、赝势模型和全势模型处理正电子局域势能, 有限差分方法自洽求解正电子波函数, 局域密度近似和广义梯度近似处理正电子电子交换关联势和增强因子, 分别计算了它们的正电子体寿命, 并

与实验结果和其他计算结果进行了比较, 其中, 用 PAW 势方法计算和分析这三种单晶的正电子体寿命在文献中尚属首例. 同时细致分析了这几种方法在电子密度网格点精度、正电子电子关联势和增强因子等方面对正电子体寿命的影响, 最后综合分析了这几种方法在计算正电子体寿命方面各自的优缺点.

2 理论基础

在密度泛函理论中, 用电子密度代替波函数来表征体系最基本的物理量, 电子密度和势场是惟一对应的. 在一定的外部势场中, 电子和正电子系统的总可以表示为电子密度 $n_-(\mathbf{r})$ 和正电子密度 $n_+(\mathbf{r})$ 的函数^[10]:

$$\begin{aligned} E[n_+, n_-] &= F[n_+] + F[n_-] + \int d\mathbf{r} V_{\text{ext}}(\mathbf{r}) \\ &\times [n_-(\mathbf{r}) - n_+(\mathbf{r})] - \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' \\ &\times \frac{n_-(\mathbf{r})n_+(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + E_c^{\text{e-p}}[n_+, n_-], \end{aligned} \quad (1)$$

其中, $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ 是外部势场, $E_c^{\text{e-p}}[n_+, n_-]$ 是正电子和电子的关联能, $F[n]$ 是电子或正电子的一维密度泛函:

$$\begin{aligned} F[n] &= T[n] + \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \\ &+ E_{xc}[n], \end{aligned} \quad (2)$$

其中, $T[n]$ 代表正电子或电子的动能部分, $E_{xc}[n]$ 表示正电子或电子各自的交换关联能部分. 上式在满足 Hohenberg-Kohm 定理^[45] 条件和能量最小原则下, 保持粒子数不变, 由能量泛函对密度函数变分可以得到一系列的关于电子和正电子的单粒子方程 (原子单位制), 即电子和正电子的广义 KS 方程^[46]:

$$\begin{aligned} &-\frac{1}{2}\nabla^2\varphi_i(\mathbf{r}) \\ &+ \left[\varphi(\mathbf{r}) + \mu_{xc}[n_-(\mathbf{r})] + \frac{\delta E_c^{\text{e-p}}[n_+, n_-]}{\delta n_-(\mathbf{r})} \right] \varphi_i(\mathbf{r}) \\ &= \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (3a)$$

$$\begin{aligned} &-\frac{1}{2}\nabla^2\varphi_i^+(\mathbf{r}) \\ &+ \left[-\varphi(\mathbf{r}) + \mu_{xc}[n_+(\mathbf{r})] + \frac{\delta E_c^{\text{e-p}}[n_+, n_-]}{\delta n_+(\mathbf{r})} \right] \varphi_i^+(\mathbf{r}) \\ &= \varepsilon_i^+ \varphi_i^+(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (3b)$$

其中, μ_{xc} 是电子或正电子的交换关联势, $\varepsilon_i, \varepsilon_i^+$ 分别代表电子和正电子各个能级的能量本征值, $\varphi_i(\mathbf{r})$ 和 $\varphi_i^+(\mathbf{r})$ 则是电子和正电子相应能级的本征波函数, $\varphi(\mathbf{r})$ 是库仑势,

$$\varphi(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' \frac{n_-(\mathbf{r}') - n_+(\mathbf{r}') - n_0(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (4)$$

$$n_-(\mathbf{r}) = \sum_{\varepsilon_i < \varepsilon_F} |\varphi_i(\mathbf{r})|^2, \\ n_+(\mathbf{r}) = \sum_i^{N_+} |\varphi_i^+(\mathbf{r})|^2, \quad (5)$$

$n_0(\mathbf{r})$ 代表的是提供正电荷背景势的离子实等的密度.

3 计算方法

由于单正电子近似和独立粒子近似的引入, (3a) 式中, 电子和正电子的关联项可以被忽略, (3b) 式中, 正电子-正电子的交换关联项可以被忽略掉, 这样, 电子和正电子的广义 KS 方程就简化成

$$-\frac{1}{2}\nabla^2\varphi_i(\mathbf{r}) + [\varphi(\mathbf{r}) + \mu_{xc}[n_-(\mathbf{r})]]\varphi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i\varphi_i(\mathbf{r}), \quad (6a)$$

$$-\frac{1}{2}\nabla^2\varphi_i^+(\mathbf{r}) + \left[-\varphi(\mathbf{r}) + \frac{\delta E_c^{e-p}[n_+, n_-]}{\delta n_+(\mathbf{r})}\right] \times \varphi_i^+(\mathbf{r}) = \varepsilon_i^+\varphi_i^+(\mathbf{r}), \quad (6b)$$

(6a) 式就是通常的固体中电子结构的第一性原理计算, 这一步的计算, 目前有比较成熟的软件可以利用, 比如 Pwscf, Siesta, VASP, Wien2k 等等, (6b) 式中波函数的求解是关键 (本文中物理量在无特殊说明情况下均采用原子单位制). 本文分别用 Puska 和 Nieminen 创建的非自洽的中性原子叠加方法以及自洽的 PAW 势方法和 FPLAPW 方法处理电子结构和正电子的静电势能; 对于正负电子关联势, 在 LDA 框架下, 采用 Boronski 和 Nieminen 在 1986 年拟合出来的参数形式^[10], 在 GGA 框架下, 采用 Barbiellini 和 Puska 等在 LDA 的基础上提出的关联势^[22], 用有限差分方法求解正电子波函数, 其中, 能量迭代误差小于 10^{-6} a.u.. 正电子和电子的密度得到之后, 就可以计算正电子的寿命, 它是正电子湮没率的倒数. 理论上, 当正电子和电子相对速度在非相对论范围内时, 正电子湮没率具有如下的形式:

$$\lambda = \pi r_0^2 c \int d\mathbf{r} \cdot n_p(\mathbf{r}) \cdot n_e(\mathbf{r}) \cdot \gamma(n_e(\mathbf{r})), \\ \tau = 1/\lambda, \quad (7)$$

其中, r_0 为电子的经典半径, c 为光速, $\gamma(n_e(\mathbf{r}))$ 为正电子的湮没增强因子, 在 LDA 框架下, 一般采用 Boronski 和 Nieminen 提出的基于自由电子气模型得到的增强因子经验插值公式^[10], 对于半导体, 由于存在带隙, 电子对正电子屏蔽不完全, 1989 年 Puska 对局域密度增强因子进行了修正, 使之适用于金属、半导体和绝缘体, 其形式分别如下^[26]:

$$\gamma_{\text{LDA}} = 1 + 1.23r_s + 0.8295r_s^{3/2} - 1.26r_s^2 + 0.3286r_s^{5/2} + \frac{1}{6}r_s^3, \quad (8a)$$

$$\gamma_{\text{LDA}} = 1 + 1.23r_s + 0.8295r_s^{3/2} - 1.26r_s^2 + 0.3286r_s^{5/2} + \frac{1}{6}\left(1 - \frac{1}{\varepsilon_\infty}\right)r_s^3, \quad (8b)$$

$$\gamma_{\text{LDA}} = 1 + A + B\Omega \frac{\varepsilon_\infty - 1}{\varepsilon_\infty + 2}, \\ (A = 0.684, B = 0.0240a_0^3), \quad (8c)$$

(8) 式中, ε_∞ 是半导体或绝缘体的高频介电常数, Ω 为单胞体积, a_0 为玻尔半径. 相应地, GGA 增强因子具有如下的形式^[22]:

$$\gamma_{\text{GGA}} = 1 + \left(1.23r_s - 0.0742r_s^2 + \frac{1}{6}r_s^3\right) \times \exp(-\alpha \cdot \varepsilon). \quad (9)$$

4 计算结果与分析

体心立方结构的 α -Fe、面心立方结构的 Al 和复式面心立方结构的 Si 所对应的晶体结构分别如图 1 (b), (c), (d) 所示, 它们的晶体特征参数如表 1 所示. 表 2 所示的是它们的正电子体寿命的实验值^[47] 以及高频介电常数.

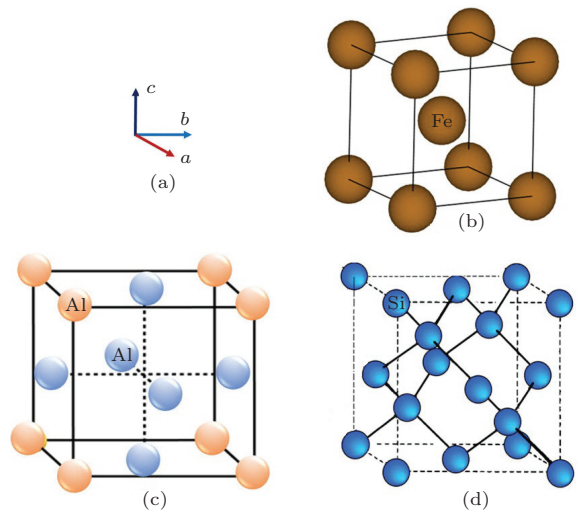


图 1 晶体结构图 (a) 坐标轴; (b) α -Fe; (c) Al; (d) Si

表1 晶体结构特征参数

材料	晶格结构	空间群	晶格常数/nm	核外全电子	价电子
α -Fe	体心立方	$Im\bar{3}m$	$a = b = c = 0.287$	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^6 4s^2$	$3d^6 4s^2$
Al	面心立方	$Fm\bar{3}m$	$a = b = c = 0.405$	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^1$	$3s^2 3p^1$
Si	复式面心	$Fd\bar{3}m$	$a = b = c = 0.543$	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^2$	$3s^2 3p^2$

表2 正电子体寿命及高频介电常数

材料	体寿命实验值/ps	高频介电常数
α -Fe	111	∞
Al	165	∞
Si	219	11.9

4.1 电子密度网格点精度对正电子寿命的影响

在中性原子叠加模型下, 单个原子的电子密度和库仑势能通过 Multiwfn 小程序 [48] 处理 Gaussian 软件 [49] 得到的波函数获得. 对于 α -Fe, Al 和

Si 分别用 855, 666 和 280 个原子来模拟单晶, 选用中心区域的单胞为研究对象, 在不同的网格点精度下, 采用 LDA 和 GGA 处理正电子电子关联势和增强因子, 分别得到这三种晶体的正电子体寿命, 如表 3 所示, 表中第二行数字代表的是晶胞 $\langle 100 \rangle$ 方向网格点数, 表 4 和表 5 与此类比 (由于这三种晶体都是立方结构, 所以 $\langle 010 \rangle$ 和 $\langle 001 \rangle$ 方向网格点数与 $\langle 100 \rangle$ 方向的相同). 从表中可以看到, 当选取合适的单原子计算精度和计算区域, 正电子体寿命在网格点为 $80 \times 80 \times 80$ 左右就可以达到 1 ps 左右的收敛精度, 且 LDA 框架下这三种晶体的正电子体寿命均与实验值符合非常好.

表3 SNA-FDM 方法计算的三种晶体的正电子体寿命/ps

体寿命	α -Fe			Al			Si		
	80	100	160	80	100	160	80	100	160
LDA	103	103	103	167	167	167	215	215	215
GGA	117	117	116	158	158	160	204	204	204

表4 PPPW-FDM 方法计算的三种晶体的正电子体寿命/ps

体寿命	α -Fe			Al			Si		
	48	80	100	56	80	100	80	100	160
LDA	104	102	101	185	183	182	231	230	228
GGA	109	107	106	163	162	161	230	229	227

表5 FPLAPW-FDM 方法计算的三种晶体的正电子体寿命/ps

体寿命	α -Fe			Al			Si		
	50	100	120	50	100	120	50	100	120
LDA	102	101	101	165	165	165	215	214	214
GGA	109	109	109	154	154	154	217	217	217

赝势平面波模型下, 利用 VASP5.2 [50,51] 软件, 选取 PAW 势 [52], 用 PBE-GGA [53] 处理电子间的交换关联势, 经过细致的收敛测试, 分别计算了

α -Fe, Al 和 Si 在不同网格点下的周期性单胞电子密度和库仑势能, 然后分别在 LDA 和 GGA 框架下计算它们各自的正电子体寿命, 其结果如表 4 所示.

从表4中可以看出,随着网格点间距逐渐减小,相应的正电子体寿命值也在减小, α -Fe和Al的GGA框架下的正电子寿命值与实验值非常接近,但是LDA和GGA框架下的Si的正电子体寿命值与实验值有一定差距.图2是(100)方向上两个原子间的电子密度分布,由于PAW方法构造势和波函数的原理所致,在原子中心处附近有可能出现负的电荷密度,如图2(c),(d)所示,这种情况出现在了金属Al和半导体Si中,负电荷密度的存在要求我们在下一步的计算中强制密度取正,从而在计算中引入误差.虽然从一方面来说,网格点间距取得越小,精度误差越小,但是对于用这种方法计算的核芯区有负电荷存在的材料,这种引入误差有可能

变大.因此,为了计算结果的可靠性,PAW势模型下正电子寿命的计算需要合理地选择网格点数.

全势方法下,晶体内的电子密度和库仑势能分布的计算利用的是WIEN2k-11软件[54],选用PBE-GGA处理电子间的交换关联势,第一步静态自洽计算的收敛标准是0.0001e,然后非自洽计算 α -Fe,Al和Si在不同网格点下的周期性原胞电子密度和库仑势能,再分别计算在LDA和GGA框架下它们各自的正电子体寿命,结果如表5所示.从表中可以明显看到,当网格点取为 $100 \times 100 \times 100$ 时,这三种晶体的正电子寿命都已经很好的收敛,且与实验值相比一致性偏小,对于Al,全势方法的结果与中性原子叠加模型的计算结果近似.

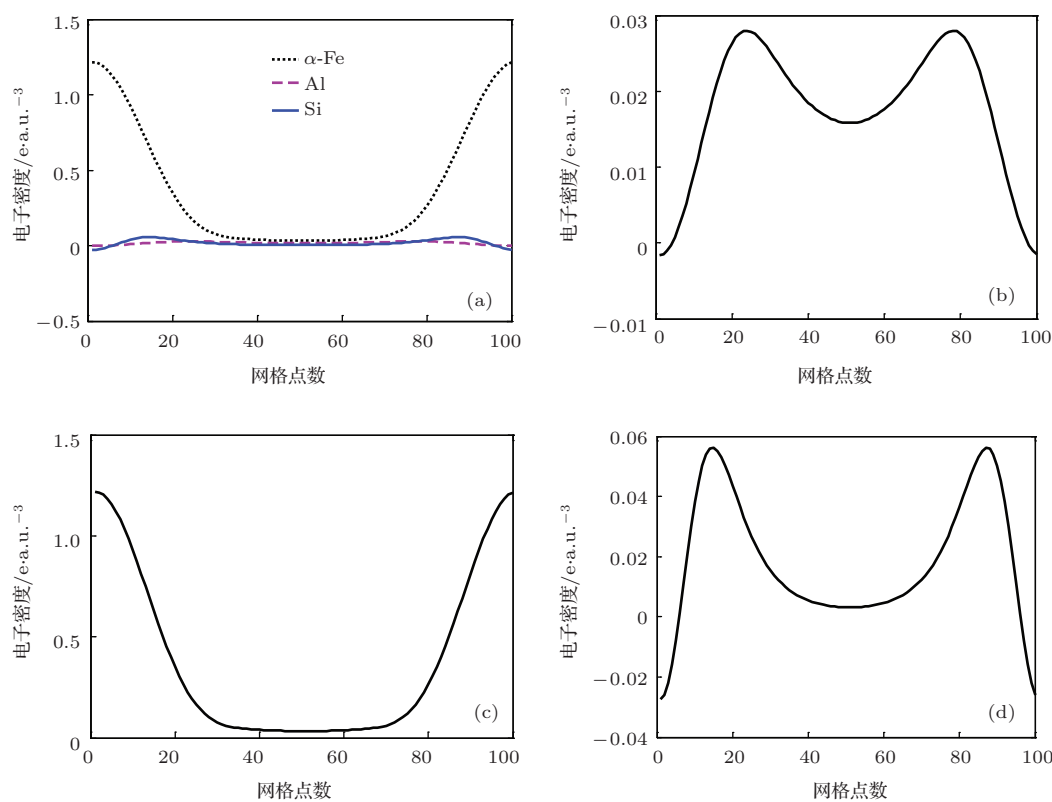


图2 (网刊彩色) (100)方向上PAW-PBE方法计算的两个原子间的电子密度分布 (a)总体图; (b) α -Fe; (c) Al; (d) Si

4.2 正电子电子关联势对正电子体寿命的影响

表6所示的是有无正电子电子关联势时各种方法计算出来的三种材料的正电子体寿命.从表中数据分析出,在这几种计算方法下,正电子电子关联势对这三种材料的正电子体寿命影响均较小,一种情况是因为正电子电子关联势相比于正电子的局域势能是非常小的,可以忽略不计,基本上不影

响正电子波函数的分布,如图3(a),(b)所示的单晶 α -Fe中,另一种情况是因为正电子电子关联势在整个区间近似为一个常数,只引起正电子能量本征值的平移,对正电子波函数影响较小,如图3(c),(d)所示的单晶Si中.正电子电子关联势的引入会导致正电子向核芯靠拢,且在半导体Si中这种影响相对较强,如图3(b),(d)所示,因此关联势对半导体Si的正电子寿命的影响大于金属 α -Fe和Al的.

表6 有无关势下计算的三种晶体的正电子体寿命/ps

体寿命	α -Fe		Al		Si	
	LDA	GGA	LDA	GGA	LDA	GGA
Vc_SNA	103	116	167	160	215	204
NVc_SNA	105	116	168	157	220	207
Vc_PPPW	101	106	182	161	228	227
NVc_PPPW	104	107	183	162	238	236
Vc_FPLAPW	101	109	165	154	214	217
NVc_FPLAPW	103	109	166	154	223	226

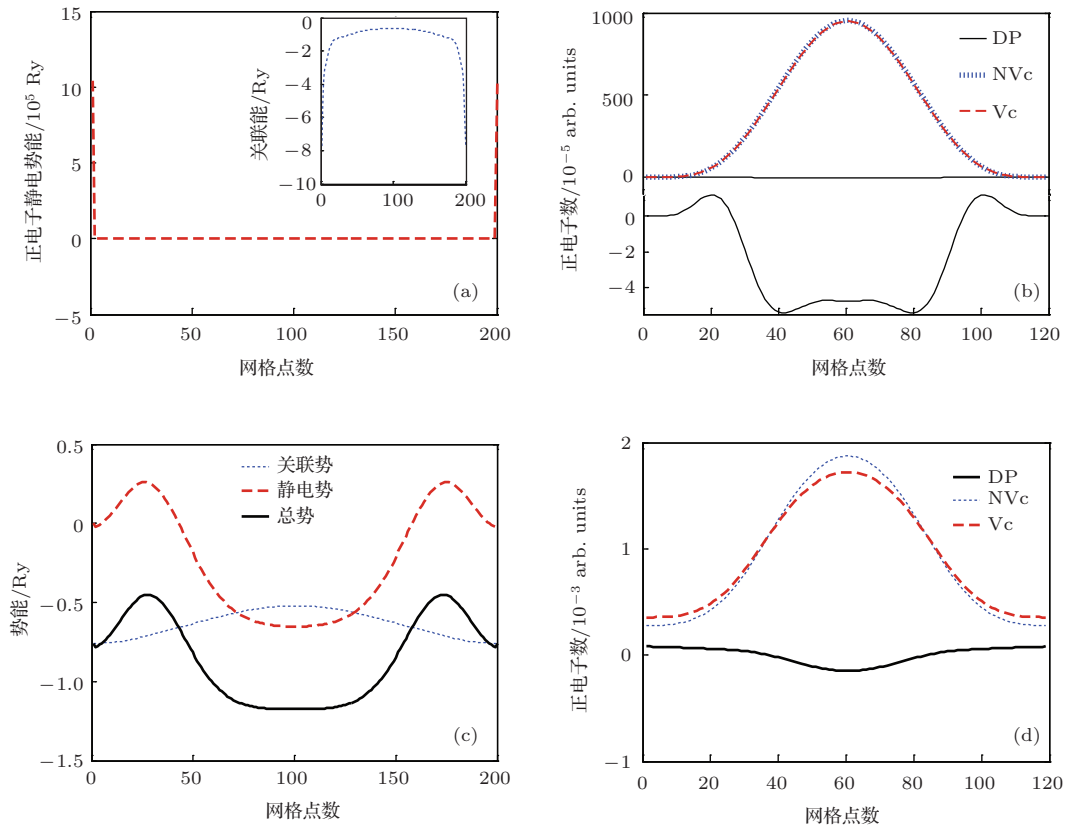


图3 (网刊彩色) (100)方向上两个原子间的势能和正电子密度分布图 (a) FP-GGA方法计算的单晶 α -Fe中两个原子间的正电子静电势、右上角是正电子电子关联势; (b)FP-GGA方法计算的单晶 α -Fe中两个原子间有关联势时的正电子数(Vc)分布图和没有关联势时的正电子数(NVc)分布图以及前者与后者的差(DP = Vc - NVc),下方是DP的放大图; (c) FP-LDA方法计算的单晶Si中两个原子间的正电子静电势、正电子电子关联势和总势分布图; (d) FP-LDA方法计算的单晶Si中两个原子间有关联势时的正电子数(Vc)分布图和没有关联势时的正电子数(NVc)分布图以及前者与后者的差(DP = Vc - NVc)

虽然,在单晶固体的体寿命计算中,关联势的引入对其影响较小,但可以推断在正电子缺陷寿命计算中,由于电子密度的局域变化明显,关联势的作用将不可忽略,这项工作将在之后展开.

4.3 增强因子对正电子寿命的影响

从表6中可以看到,对于 α -Fe,在相同的增强因子框架下,赝势方法计算得到的正电子体寿命

与全势方法计算值相同或偏小,这与理论模型预言的结果是不一致的. α -Fe是3d过渡金属,其价电子中含有d电子,且d电子所占的比重比全势大,而局域密度近似模型本身过度估算了d电子的湮没率^[22],从而导致正电子的湮没率比实际值偏大,相应地正电子寿命就可能比全势方法的偏小.对于金属Al和半导体Si,赝势方法计算得到的体寿命均比全势方法的大,这与理论预言的结果是一致的.

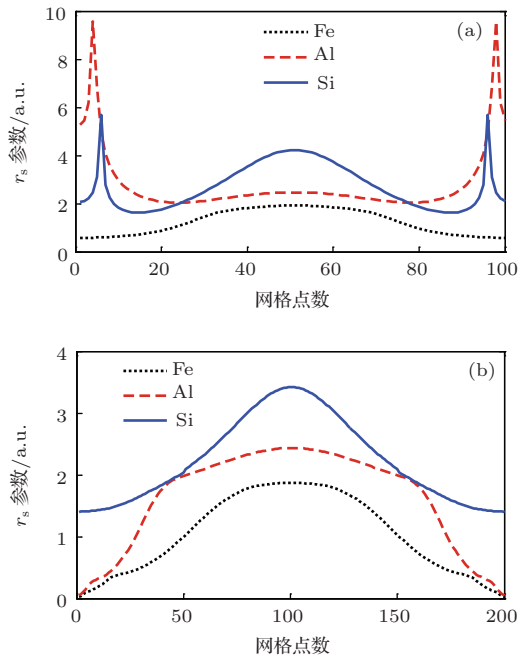


图4 (网刊彩色) 三种晶体(100)方向上两个原子间的 r_s 参数分布图 (a) PPPW方法; (b) FPLAPW方法

对于金属Al, PPPW-FDM方法在局域密度近似下计算得到的正电子寿命与实验值和其他方法计算得到的寿命值均相差较大. 在LDA框架下, 低密度处($r_s \geq 5$)的增强因子不可靠^[22], 而PAW势方法计算得到金属Al的 r_s 参数分布图4(a)则显示在靠近核芯处存在 $r_s \geq 6$ 的低密度区, 因此这可能

是PPPW-FDM方法在局域密度近似下计算金属Al的正电子寿命有较大误差的原因.

4.4 几种自洽与非自洽方法计算正电子寿命的对比

表7所示的是几种方法计算的三种晶体的正电子体寿命与其他理论计算值以及实验值. 从表中可以看到, 虽然中性原子叠加模型粗糙, 赝势方法相比于全势方法没有考虑价电子与正电子的湮没, 但是本文这几种方法的计算结果与其他理论计算结果和实验值均符合较好. 在这几种计算方法中, 就计算效率来讲, 中性原子叠加方法最快, PAW势其次, 全势方法相对最慢, 因此, 对于原子个数超过200的大体系, 采用中性原子叠加方法比较合适, 对于原子个数在100个左右的体系, 可以采取合适的赝势计算正电子寿命, 全势方法则局限于较小的体系; 就适用性来讲, 在本文的LDA框架下的计算需要知道材料的介电常数, 如果这个物理量未知, 则无法计算, GGA框架下的计算结果普遍与实验结果更接近; 就计算合理性来讲, 中性原子叠加方法存在固有缺陷, 无法克服长距发散的问题, 而相对于其他方法, PAW势方法中负电荷密度的存在以及只考虑价电子使得 r_s 相对偏大等都对正电子体寿命计算有不利影响.

表7 几种方法计算的三种晶体的正电子体寿命与其他理论计算值和实验值/ps

体寿命/ps	α -Fe		Al		Si	
	LDA	GGA	LDA	GGA	LDA	GGA
Exp	111		165		219	
SNA* ^[55]	102	112	168	160	218	207
LMTO* ^[55]	101	110	165	153	222	211
Vc_SNA	103	116	167	160	215	204
Vc_PPPW	101	106	182	161	228	227
Vc_FPLAPW	101	109	165	154	214	217

5 结 论

采用中性原子叠加模型、赝势模型和全势模型处理正电子局域势能, 有限差分方法自洽求解正电子波函数, 局域密度近似和广义梯度近似处理正电子电子关联势和增强因子, 分别计算了体心立方结构的 α -Fe、面心立方结构的Al和复式面心立方

结构的Si三种单晶固体的正电子体寿命, 计算值与相应的实验结果和其他计算结果均符合较好, 其中, 用PAW势方法计算和分析这三种元素晶体的正电子体寿命在文献中尚属首例. 赝势方法中由于PAW势构造原理的限制, 导致“负电荷密度”的存在, 从而影响正电子寿命的计算. 在完美晶体中, 不管是全势方法、赝势方法还是中性原子叠加方法, 正电子电子关联势均近似为一个常数或相比于正

电子静电势可忽略不计,对正电子体寿命的影响较小,它吸引正电子向核芯区靠拢,且这种影响在半导体Si中远远大于金属 α -Fe和Al的。Al和Si的全势方法的计算结果均比相应的赝势方法的计算结果偏小,这与理论模型是完全一致的。局域密度近似模型过度估算d电子的淹没率,导致 α -Fe PAW势方法的计算结果比全势方法的结果偏小可能存在。另外,局域密度近似下的增强因子在 $r_s \geq 5$ 的低密度区不可靠使得PAW势方法下的金属Al的正电子体寿命与实验值和其他计算值有较大的误差。总的来说,正电子体寿命的有效合理计算需要综合考虑电子密度,正电子电子关联势和增强因子等,尤其是增强因子。

参考文献

- [1] Zhang L J, Wang L H, Liu J D, Li Q, Cheng B, Zhang J, An Ran, Zhao M L, Ye B J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 237805 (in Chinese) [张丽娟, 王力海, 刘建党, 李强, 成斌, 张杰, 安然, 赵明磊, 叶邦角 2012 物理学报 **61** 237805]
- [2] Zhang Y H, Li Y L, Gu Y, Chao Y S 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 167502 (in Chinese) [张艳辉, 李彦龙, 谷月, 晁月盛 2012 物理学报 **61** 167502]
- [3] Zhang M L, Yang R X, Li Z X, Cao X Z, Wang B Y, Wang X H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 117103 (in Chinese) [张明兰, 杨瑞霞, 李卓昕, 曹兴忠, 王宝义, 王晓晖 2013 物理学报 **62** 117103]
- [4] Liu J D, Cheng B, Zhang J, Zhang L J, Weng H M, Ye B J 2011 *Chin. Phys. B* **20** 108105
- [5] Gong J, Gong Z L, Yan X L, Gao S, Zhang Z L, Wang B 2012 *Chin. Phys. B* **21** 107803
- [6] Yu W Z 2003 *Positron Physics and its Application* (Beijing: Science Press) p2 (in Chinese) [郁伟中 2003 正电子物理及其应用(北京: 科学出版社) 第2页]
- [7] Xiao C, Qin X M, Zhang J, An R, Xu J, Li K, Cao B X, Yang J L, Ye B J, Xie Y 2012 *J. Am. Chem. Soc.* **134** 18460
- [8] Guan M L, Xiao C, Zhang J, Fan S J, An R, Cheng Q M, Xie J F, Zhou M, Ye B J, Xie Y 2013 *J. Am. Chem. Soc.* **135** 10411
- [9] Nieminen R M, Boronski E, Lantto L J 1985 *Phys. Rev. B* **32** 1377
- [10] Boronski E, Nieminen R M 1986 *Phys. Rev. B* **34** 3820
- [11] Puska M J, Nieminen R M 1983 *J. Phys. F: Met. Phys.* **13** 333
- [12] Fong C Y, Marvin. L. Cohen 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24** 306
- [13] Hamann D R, Schluter M, Chiang C 1979 *Phys. Rev. Lett.* **43** 1494
- [14] David Vanderbilt 1990 *Phys. Rev. B* **41** 7892
- [15] Blochl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [16] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [17] Anderson O K 1975 *Phys. Rev. B* **12** 3060
- [18] Weyrich K H 1988 *Phys. Rev. B* **37** 10269
- [19] Wimmer E, Krakauer H, Weinert M, Freeman A J 1981 *Phys. Rev. B* **24** 864
- [20] Jansen H J F, Freeman A J 1984 *Phys. Rev. B* **30** 561
- [21] Daniuk S, Sob M, Rubaszek A 1991 *Phys. Rev. B* **43** 2580
- [22] Barbiellini B, Puska M J, Torsti T, Nieminen R M 1995 *Phys. Rev. B* **51** 7341
- [23] Rubaszek A, Szotek Z, Temmerman W M 1998 *Phys. Rev. B* **58** 11285
- [24] Puska M J, Corbel C, Nieminen R M 1990 *Phys. Rev. B* **41** 9980
- [25] Puska M J, Nieminen R M 1994 *Rev. Mod. Phys.* **66** 841
- [26] Puska M J, Lanki P, Nieminen R M 1989 *J. Phys.: Condens. Matter* **1** 6081
- [27] Chen X L, Xi C Y, Ye B J, Weng H M 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6695 (in Chinese) [陈祥磊, 郝传英, 叶邦角, 翁惠民 2007 物理学报 **56** 6695]
- [28] 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]
- [29] Chen X L, Guo W F, Du H J, Weng H M, Ye B J 2009 *Matter. Sci. Forum* **607** 146
- [30] Chen X L, Kong W, Du H J, Ye B J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7627 (in Chinese) [陈祥磊, 孔伟, 杜淮江, 叶邦角 2009 物理学报 **58** 7627]
- [31] Chen X L 2009 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: the University of Science and Technology of China) (in Chinese) [陈祥磊 2009 博士学位论文(合肥: 中国科学 17 与技术大学)]
- [32] Tang Z, Hasegawa M, Nagai Y, Saito M, Kawazoe Y 2002 *Phys. Rev. B* **65** 045108
- [33] Tang Z, Hasegawa M, Nagai Y, Saito M 2002 *Phys. Rev. B* **65** 195108
- [34] Liu J D 2010 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: the University of Science and Technology of China) (in Chinese) [刘建党 2010 博士学位论文(合肥: 中国科学与技术大学)]
- [35] Liu J D, Zhang J, Zhang L J, Hao Y P, Guo W F, Cheng B, Ye B J 2011 *Chin. Phys. B* **20** 57802
- [36] Zhang J 2013 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: the University of Science and Technology of China) (in Chinese) [张杰 2010 博士学位论文(合肥: 中国科学与技术大学)]
- [37] Zhang J, Liu J D, Chen X L, Ye B J 2010 *Chin. Phys. B* **19** 117802
- [38] Zhang J, Chen X L, Ye B J 2010 *Chin. Phys. B* **19** 77806
- [39] Drummond N D, Lopez Rios P, Needs R J, Pickard C J 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 207402
- [40] Kuriplach J, Barbiellini B 2014 *Phys. Rev. B* **89** 155111
- [41] Zhang W S, Liu J D, Zhang J, Huang S J, Li J, Ye B J 2014 *JJAP Conference Proceedings of the 2nd Japan-China Joint Workshop on Positron Science Tsukuba, Japan, December 20-23, 2013* (会议文集)
- [42] David M. Schrader 1970 *Phys. Rev. A* **1** 1070
- [43] Puska M J, Ari P. Seitsonen, Nieminen R M 1995 *Phys. Rev. B* **52** 10947
- [44] Siegel R W 1980 *Ann. Rev. Mater. Sci.* **10** 393
- [45] Hohenberg P, Kohn W 1964 *Phys. Rev. B* **136** 864
- [46] Kohn W, Sham L J 1965 *Phys. Rev. A* **140** 1133

- [47] Campillo-Robles J M, Ogando E, Plazaola F 2012 *Solid State Sciences* **14** 982
- [48] Lu T, Chen F W 2012 *J. Comp. Chem* **33** 580
- [49] Frisch M J, Trucks G W, Schlegel H B, Scuseria G E, Robb M A, Cheeseman J R, Scalmani G, Barone V, Mennucci B, Petersson G A, Nakatsuji H, Caricato M, Li X, Hratchian H P, Izmaylov A F, Bloino J, Zheng G, Sonnenberg J L, Hada M, Ehara M, Toyota K, Fukuda R, Hasegawa J, Ishida M, Nakajima T, Honda Y, Kitao O, Nakai H, Vreven T, Montgomery J A, Peralta Jr, J E, Ogliaro F, Bearpark M, Heyd J J, Brothers E, Kudin K N, Staroverov V N, Kobayashi R, Normand J, Raghavachari K, Rendell A, Burant J C, Iyengar S S, Tomasi J, Cossi M, Rega N, Millam J M, Klene M, Knox J E, Cross J B, Bakken V, Adamo C, Jaramillo J, Gomperts R, Stratmann R E, Yazyev O, Austin A J, Cammi R, Pomelli C, Ochterski J W, Martin R L, Morokuma K, Zakrzewski V G, Voth G A, Salvador P, Dannenberg J J, Dapprich S, Daniels A D, Farkas Ö, Foresman J B, Ortiz J V, Cioslowski J, Fox D J, Gaussian, Inc., Wallingford CT 2009
- [50] Kresse G, Hafner J 1993 *Phys. Rev. B* **47** R558
- [51] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [52] Blochl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [53] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [54] Blaha P, Schwarz K, Sorantin P, Trickey S B 1990 *Comput. Phys. Commun.* **59** 399
- [55] Campillo-Robles J M, Ogando E, Plazaola F 2007 *J. Phys.: Condens. Matter* **19** 176222

Analysis and comparison of several methods for calculation of positron bulk lifetime in perfect crystals*

Huang Shi-Juan¹⁾²⁾ Zhang Wen-Shuai¹⁾²⁾ Liu Jian-Dang¹⁾²⁾ Zhang Jie³⁾
Li Jun¹⁾²⁾ Ye Bang-Jiao¹⁾²⁾†

1) (*State Key Laboratory of Particle Detection and Electronics(IHEP &USTC), University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

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

3) (*Institute of Plasma Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

(Received 20 May 2014; revised manuscript received 4 August 2014)

Abstract

Positron annihilation lifetime spectroscopy, which takes positron lifetime as a detected object, has been widely applied to the study on micro-defects of semiconductors and other materials, and is very sensitive to the type of crystal structure, defect types, and temperature, and so on. Therefore, the analysis of fast and accurate calculation of positron lifetime theoretically combined with the experimental data is particularly necessary. In this paper, the superposed neutral atom model, the pseudo-potential model, and the full-potential model are used to deal with the positron local potential. While the positron wave function is solved self-consistently by the finite difference method, the positron-electron correlation potential and its enhancement factor are handled within the frame work of the local density approximation and the generalized gradient approximation. We have respectively calculated the positron bulk lifetime of three kinds of single crystal solid: the alpha iron of a body-centered cubic structure, the aluminum of a face-centered cubic structure, and the silicon of a double face-centered cubic structure. Calculation results agree well with the published experimental data. At the same time, the impact on positron bulk lifetime due to electron density grid point accuracy, positron-electron correlation potential and enhancement factor is analyzed carefully. Finally, we discuss the advantages and disadvantages of the three methods for calculating the positron bulk lifetime. In summary, an effective and reasonable calculation for the positron bulk lifetime should take into account the electron density, positron-electron correlation potential, and enhancement factor, etc. especially the enhancement factor.

Keywords: positron bulk lifetime, perfect crystals, positron-electron correlation potential, enhancement factor

PACS: 78.70.Bj, 71.15.Mb, 71.15.-m

DOI: [10.7498/aps.63.217804](https://doi.org/10.7498/aps.63.217804)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11175171, 11105139).

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