

Спектроскопия позитрония в нанопористых матрицах

© С.И. Покутний,¹ А.П. Горбик²

¹ Институт химии поверхности им. А.А. Чуйко НАН Украины, 03164 Киев, Украина
e-mail: Pokutnyi_Sergey@inbox.ru

² Общество с ограниченной ответственностью „Интровижн Ресерч энд Девелопмент“, 119234 Москва, Россия

(Поступило в Редакцию 29 ноября 2013 г.)

Теоретически исследованы энергетический спектр и энергия связи парапозитрония, локализованного в сферической нанопоре, находящейся в твердой матрице, и их зависимости от радиуса нанопоры. Предложен новый оптический метод определения размеров нанопор, основанный на сравнении экспериментальных спектров поглощения (излучения) позитрония в нанопорах с теоретическими зависимостями энергетических спектров позитрония от радиуса нанопор.

Введение

В настоящее время явление электрон-позитронной аннигиляции широко используется в физических исследованиях. В [1–4] описан эффект взаимодействия позитронов с дефектами в матрицах неорганической и органической природы. Установлено, что термализованные в объеме матрицы позитроны диффундируют в область дефектов (вакансий, вакансионных кластеров, нанопор, вакансиоподобных дефектов в аморфных матрицах, межслоевых промежутков в углеродных многослойных наноструктурах и т.д. [1–3]) и захватываются ими. Взаимодействие указанных позитронов с электронами приводит к аннигиляции с излучением квантов энергии. В таких наноструктурах каждый из указанных наноразмерных элементов имеет характерную для него специфическую структуру свободного объема, которая может быть исследована методами электрон-позитронной аннигиляции. Этот метод является неразрушающим и характеризуется высокой избирательностью и чувствительностью, способностью обнаружения нанопор на поверхности и в объеме наноматериалов [1–4]. Метод электрон-позитронной аннигиляции позволяет на новом уровне исследовать состояние и электронную структуру наноматериалов [1–4].

Методом аннигиляции позитронов обнаружено существование трехмерных вакансионных агломератов (нанопор сферической формы) с радиусами $a \approx 10$ nm (и больше вплоть до микронных), близких по размерам к кристаллитам металлов Al, Cu, Mo, Pd, Fe, Ni, а также минеральных (например, апатитоподобных) наноструктур [3,5–7]. Их линейные размеры a сопоставимы с дебройлевской длиной волны квазичастиц (электрона, позитрона и позитрония) или (и) с их боровскими радиусами. Последнее обстоятельство приводит к тому, что в таких наноструктурах явления пространственного размерного квантования квазичастиц играют существенную роль в оптических и электрооптических процессах [8–11].

Согласно представлений [7,12,13], позитроний захватывается нанопорой или возникает в ее объеме.

При этом он оказывается локализованным в нанопоре на протяжении времени своей жизни. Предполагается также, что диффундирует в поисках свободной нанопоры не позитроний, а позитрон. Встретив такую нанопору и взаимодействуя с трековым электроном, позитрон образует позитроний непосредственно в объеме нанопоры [12,13].

К настоящему времени позитрониевые состояния в нанопорах матриц изучены недостаточно как экспериментальными, так и теоретическими методами. Поэтому исследования, направленные на решения задач, связанных с взаимодействием позитрония, локализованного в нанопорах матриц, с электромагнитным излучением, являются актуальными как с научной, так и с практической точек зрения.

В настоящей работе развивается теория позитрония, локализованного в сферической нанопоре твердой матрицы. Теоретически исследуются энергетический спектр и энергия связи парапозитрония в нанопоре, а также их зависимости от радиуса a нанопоры. Рассматривается также вопрос, связанный с возможностью экспериментального наблюдения позитрония, локализованного в нанопоре. Предложен новый оптический метод определения размеров a нанопор в наноматериалах, основанный на сравнении экспериментальных спектров поглощения (излучения) позитрония в нанопорах с теоретическими зависимостями энергетических спектров позитрония от радиуса a нанопор.

Энергетический спектр позитрония в нанопоре

Рассмотрим модель квазинульмерной наносистемы: нейтральную сферическую нанопору радиуса a , заполненную диэлектрической средой (с диэлектрической проницаемостью ϵ_2), окруженную диэлектрической матрицей (с диэлектрической проницаемостью ϵ_1). В объеме нанопоры двигались электрон e и позитрон p с эффективными массами m_e и m_p (причем $m_e = m_p = m_0$

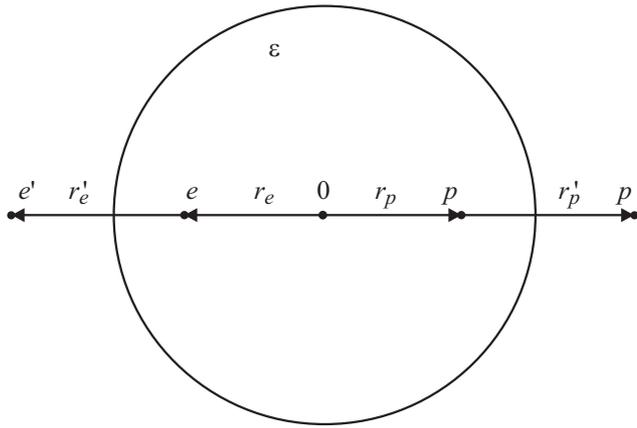


Рис. 1. Схематическое изображение позитрония в сферической нанопоре. Радиусы-векторы r_e и r_p определяют расстояние электрона e и позитрона p от центра (точки O) нанопоры с радиусом a . Заряды изображений $e' = -(a/r_e)e$ и $p' = -(a/r_p)p$ расположены на расстояниях $r'_e = -(a^2/r_e)$ и $r'_p = -(a^2/r_p)$ от центра нанопоры и представляют собой точечные заряды изображения электрона и позитрона соответственно.

(где m_0 — масса электрона в вакууме), r_e и r_p — расстояние электрона и позитрона от центра нанопоры, см. рис. 1). Характерными размерами задачи являются величины a , a_e , a_p , a_{ep} , где

$$a_e = a_p = \frac{\hbar^2 \varepsilon_2}{m_0 e^2}, \quad a_{ep} = \frac{2\hbar^2 \varepsilon_2}{m_0 e^2} \quad (1)$$

— боровские радиусы электрона, позитрона и позитрония соответственно, в диэлектрической среде с диэлектрической проницаемостью ε_2 (приведенная масса позитрония $\mu = (m_0/2)$). То обстоятельство, что радиус нанопоры значительно больше величины боровского радиуса позитрония a_{ep} , позволяет рассматривать движение электрона и позитрона в нанопоре в приближении эффективной массы [8–11].

Энергию поляризационного взаимодействия $U(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a)$ электрона и позитрона со сферической поверхностью раздела „нанопора–матрица“ можно представить в виде алгебраической суммы энергий взаимодействия позитрона и электрона со своими $V_{pp'}(r_p, a)$, $V_{ee'}(r_e, a)$ (энергия „самодействия“) и с „чужими“ $V_{pe'}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a)$, $V_{ep'}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a)$ изображениями соответственно [8,9] (рис. 1):

$$U(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a) = V_{pp'}(r_p, a) + V_{ee'}(r_e, a) + V_{ep'}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a) + V_{pe'}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_p, a). \quad (2)$$

Поскольку эффективные массы электрона m_e и позитрона m_p равны массе свободного электрона m_0 , то позитрону и электрону энергетически выгодно находиться на одной прямой, проходящей через центр нанопоры, и на одном и том же расстоянии $r_e = r_p = (\rho/2)$

(рис. 1). При этом энергии взаимодействия $V_{pp'}(r_p, a)$, $V_{ee'}(r_e, a)$, $V_{ep'}(r_e, r_p, a)$, $V_{pe'}(r_e, r_p, a)$ принимают вид

$$V_{pp'}(\rho, S) = -\frac{E_{ep}^0}{S} \frac{1}{(1 - \xi^2)} \beta, \quad (3)$$

$$V_{ee'}(\rho, S) = -\frac{E_{ep}^0}{S} \frac{1}{(1 - \xi^2)} \beta, \quad (4)$$

$$V_{ep'}(\rho, S) = V_{pe'}(\rho, S) = \frac{E_{ep}^0}{S} \frac{1}{(1 + \xi^2)} \beta, \quad (5)$$

$$\beta = \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{(\varepsilon_2 + \varepsilon_1)}, \quad (6)$$

где β — параметр наносистемы, переменная $\xi = (\rho/2a)$. Энергия кулоновского взаимодействия между электроном и позитроном $V_{ep}(\rho)$ описывается такой формулой:

$$V_{ep}(\rho) = -\frac{e^2}{\rho \varepsilon_2}. \quad (7)$$

Здесь и далее энергии измеряются в единицах

$$E_{ep}^0 = Ry_{ep} = \frac{m_0 e^4}{4\hbar^2} \varepsilon_2 \quad (8)$$

(где E_{ep}^0 — энергия связи позитрония в нанопоре) и используется безразмерная величина радиуса нанопоры $S = (a/a_{ep})$. Потенциальная энергия электрона и позитрона, движущихся в нанопоре радиуса S ,

$$U_{ep}(\rho, S) = U(\rho, S) + V_{ep}(\rho) \quad (9)$$

обладает максимумом в точке $r_e^0 = r_p^0 = r_0 = 0.48a$ и равняется

$$U_{ep}^{\max}(\rho = \rho_0) = -3.057(E_{ep}^0/S). \quad (10)$$

В изучаемой модели квазинульмерной наносистемы (рис. 1) в рамках вышеизложенных приближений, а также в приближении эффективной массы и в системе центра масс гамильтониан позитрония (парапозитрония, состоящего из $1s$ -электрона и $1s$ -позитрона с антипараллельными спинами), движущегося в объеме нанопоры, принимает вид

$$H(\rho, a) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d}{d\rho} \right) + V_{ep}(\rho) + V_{ep'}(\rho, a) + V_{pe'}(\rho, a) + V_{ee'}(\rho, a) + V_{pp'}(\rho, a) + V_e(\rho, a) + V_p(\rho, a), \quad (11)$$

где первый член является оператором кинетической энергии позитрония, а потенциалы

$$V_e(\rho, a), V_p(\rho, a) = \begin{cases} 0, & \rho \leq 2a, \\ \infty, & \rho > 2a \end{cases} \quad (12)$$

описывают движение квазичастиц в объеме нанопоры с помощью модели бесконечно глубокой потенциальной ямы.

В гамильтониане позитрония (11) содержатся энергии взаимодействия позитрона и электрона со своими (3), (4) и с чужими (5) изображениями. Выражения, которые описывают энергии взаимодействия (3)–(5), получены в [4–6] в рамках макроскопической электростатики. Поэтому возможность использования энергий взаимодействия (3)–(6) в гамильтониане (11) может быть оправдана, если изучаемые нанопоры имеют макроскопические размеры [8–11]

$$a \geq 2 \text{ nm.}$$

Для определения энергетического спектра позитрония $W(S)$ в нанопоре радиуса S необходимо решить уравнение Шредингера, которое в системе центра масс и в приближении эффективной массы принимает вид

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d\Psi(\rho, S)}{d\rho} \right) + H(\rho, S)\Psi(\rho, S) = W(S)\Psi(\rho, S). \quad (13)$$

В уравнении (13) гамильтониан $H(\rho, S)$ определяется формулами (11) и (3)–(7), (12). Радиальная волновая функция позитрония $\Psi(\rho, S)$ описывает относительное движение электрона и позитрона в нанопоре радиуса S .

Энергия связи позитрония $E_{ep}(S)$, движущегося в нанопоре радиуса S , является решением радиального уравнения Шредингера (13) с гамильтонианом $H(\rho, S)$, содержащем в себе в отличие от гамильтониана (11) только члены

$$H(\rho, S) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d}{d\rho} \right) + V_{ep}(\rho) + V_{ep'}(\rho, S) + V_{pe'}(\rho, S). \quad (14)$$

Исследуем энергетический спектр и энергию связи парапозитрония в нанопоре радиусом S методом Вентцеля–Крамерса–Бриллюэна (ВКБ) для произвольных значений главного квантового числа n . Для того чтобы получить из условия квантования предельный переход к точному кулоновскому спектру парапозитрония

$$W_n = -\frac{E_p^0}{n^2} \quad (15)$$

в области его применимости, необходимо для нахождения фазы в квазиклассической волновой функции использовать точное решение уравнения Шредингера (13) с гамильтонианом (11) при $\rho \rightarrow 0$. Потенциальная энергия электронно-позитронной пары $U_{ep}(\rho, S)$ (9) при этом принимает кулоновский вид (7). В результате получим правило квантования

$$S^{1/2} \int_{\xi_2}^{\xi_1} d\xi \left[-|\tilde{W}_n(S)|S + \left(\frac{1}{\xi} + \frac{2}{1-\xi^2} - \frac{2}{1+\xi^2} \right) \right]^{1/2} = \pi n, \quad (16)$$

где $\xi_{1,2}$ — точки поворота, значение энергии $|\tilde{W}_n(S)| = |W_n(S)/E_{ep}^0|$. Оставляя в разложении потенциальной

энергии электрон-позитронной пары $U_{ep}(\xi, S)$ (9) (по параметру $\xi^2 \ll 1$) только энергию кулоновского взаимодействия между электроном и позитроном (член $\sim \xi^{-1}$), с помощью правила квантования (16) получим формулу (15). Выражение (15) описывает предельный переход энергетического спектра $W_n(S)$ парапозитрония к точному кулоновскому спектру (15) в нанопоре большого радиуса S .

По аналогии с формулой (16), используя потенциальную энергию электронно-позитронной пары, входящую в гамильтониан (14), для нахождения энергии связи $E_{ep}^{(n)}(S)$ парапозитрония получим правило квантования в таком виде:

$$S^{1/2} \int_{\xi_1}^{\xi_2} d\xi \left[-|\tilde{E}_{ep}^{(n)}(S)|S + \left(\frac{1}{\xi} - \frac{2}{1+\xi^2} \right) \right]^{1/2} = \pi n, \quad (17)$$

где $\xi_{1,2}$ — точки поворота, значение энергии $|\tilde{E}_{ep}^{(n)}(S)| = |E_{ep}^{(n)}(S)/E_{ep}^0|$. Оставляя в разложении подынтегральной функции в (17) (по параметру $\xi^2 \ll 1$) только кулоновский член ($\sim \xi^{-1}$), получим предельный переход энергии связи парапозитрония к точному кулоновскому спектру парапозитрония (15) в нанопоре большого радиуса S .

Для произвольного радиуса S нанопоры значения полной энергии $W_n(S)$, а также энергии связи $E_{ep}^{(n)}(S)$ парапозитрония могут быть найдены лишь численно из формул (16) и (17) (интегралы в (16) и (17) могут быть выражены через табулированные эллиптические интегралы [10]). На рис. 2 и 3 приведены зависимости $W_n(S)$ и $E_{ep}^{(n)}(S)$ от радиуса S нанопоры, иллюстрирующие полученные здесь численные результаты.

Зависимость $E_{ep}(S)$ можно проанализировать для тех позитрониевых состояний, размер локализации которых значительно меньше радиуса нанопоры S . В этом случае в потенциальной энергии гамильтониана $H(\rho, S)$ (14) основную роль играют значения

$$\xi^2 = \left(\frac{\rho}{2a} \right)^2 \ll 1. \quad (18)$$

Поэтому, оставляя в разложении потенциальной энергии ведущие члены, получим следующее выражение для гамильтониана позитрония $H(\rho, S)$ (14):

$$H(\rho, S) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d}{d\rho} \right) - \frac{e^2}{\rho} + \frac{2}{S} E_{ep}^0 - \frac{2}{S} \xi^2 E_{ep}^0. \quad (19)$$

Основной вклад в энергию связи позитрония дает энергия кулоновского взаимодействия электрона с позитроном $V_{ep}(\rho)$ (7) (второй член в (19)). Два оставшиеся члена в гамильтониане (19), которые описывают энергию взаимодействия электрона и позитрона с чужими изображениями (5), учитываются в первом порядке теории возмущений и дают добавку к кулоновскому спектру

$$E_{ep}^{(n)}(S) = -\left[\frac{1}{n^2} - \frac{2}{S} + \frac{n^2(5n^2+1)}{4S^3} \right] E_{ep}^0. \quad (20)$$

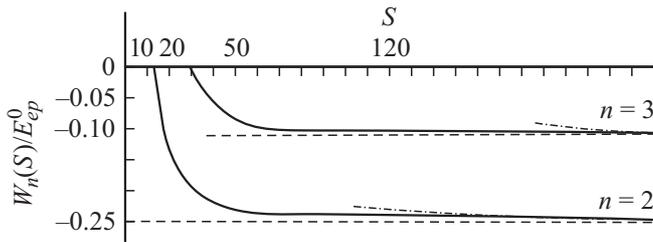


Рис. 2. Полная энергия $W_n(S)$ электронно-позитронной пары как функция радиуса нанопоры S (где $S = (a/a_{ep})$, a_{ep} — боровский радиус позитрония в вакууме). Сплошные линии — $W_n(S)$ в приближении ВКБ, штрихпунктир — $W_n(S)$ (24) в первом порядке теории возмущений. Значение энергии связи позитрония $E_{ep}^0 = 1.70$ eV в диэлектрической среде, которая содержится в нанопоре, изображено штриховой линией.

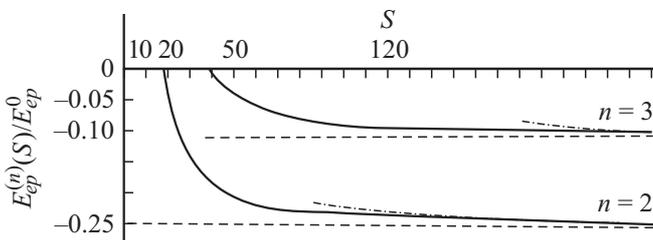


Рис. 3. Энергия связи $E_{ep}^{(n)}(S)$ электронно-позитронной пары как функция радиуса нанопоры S (где $S = (a/a_{ep})$). Сплошные линии — $E_{ep}^{(n)}(S)$ в приближении ВКБ, штрих-пунктир — $E_{ep}^{(n)}(S)$ (20) в первом порядке теории возмущений. Значение энергии связи позитрония $E_{ep}^0 = 1.70$ eV в диэлектрической среде, которая содержится в нанопоре, изображено штриховой линией.

Критерием применимости существования изучаемых здесь позитрониевых состояний, согласно (18), является условие [11]

$$\frac{n^2(5n^2 + 1)}{8S^2} \ll 1, \quad (21)$$

которое вместе с требованиями на применимость первого порядка теории возмущений [11] сводится к такому условию:

$$(2n^2/S) \ll 1. \quad (22)$$

Оставляя в разложении потенциальной энергии гамильтониана $H(\rho, a)$ (11) (по параметру $\xi^2 \ll 1$) только ведущие члены, получим выражение для гамильтониана позитрония в нанопоре большого радиуса S (22) в таком виде

$$H(\rho, S) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d}{d\rho} \right) - \frac{e^2}{\rho} - \frac{4}{S} \xi^2 E_{ep}^0. \quad (23)$$

В отличие от гамильтониана позитрония (19) в гамильтониане (23) отсутствует зависимость вида S^{-1} , которая компенсируется вкладом энергий взаимодействия электрона и позитрона с чужими (5) и своими (3), (4) изображениями.

Решение уравнения Шредингера (13) с гамильтонианом (23) дает спектр полной энергии позитрония, движущегося в нанопоре большого радиуса S (22), в таком виде:

$$W_n(S) = - \left[\frac{1}{n^2} + \frac{n^2(5n^2 + 1)}{2S^3} \right] E_{ep}^0. \quad (24)$$

Основной вклад в спектр полной энергии позитрония $W_n(S)$ (24) вносит энергия кулоновского взаимодействия электрона и позитрона (7) (первый член в (24)) и только в качестве поправки выступает второй член в (24), обусловленный энергиями взаимодействия электрона и позитрона с чужими (5) и своими (3), (4) изображениями. Выражение (24) получено с использованием первого порядка теории возмущений. При этом условие применимости первого порядка теории возмущений сводится к неравенству (22).

Найденные выражения, описывающие спектр полной энергии позитрония $W_n(S)$ (24) и энергию связи позитрония $E_{ep}^{(n)}$ (20), применимы только для нижайших позитрониевых состояний (n), для которых выполняется неравенство

$$|E_{ep}^{(n)}(S)|, |W_n(S)| \ll \Delta V, \quad (25)$$

где $\Delta V \approx 4.5$ eV — энергия электронного сродства на границе „нанопора–матрица“ [12]. Следует отметить, что полная энергия позитрония $W_n(S)$ (24) в нанопоре радиуса S отсчитывается от вакуумного уровня.

Спектры поглощения света на позитрониевых состояниях в нанопорах

Проведем качественные оценки величин энергии связи $E_{ep}^{(n)}(S)$ и полной энергии $W_n(S)$ парапозитрония, движущегося в нанопоре (с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_2 = 2$) радиуса S твердых матриц (с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_1 = 4$). Выполнение условий (22), (25) приводит к тому, что в объеме нанопоры будет существовать только конечное число парапозитрониевых состояний (n), начиная с состояний $n \geq 2$. Для простоты, не уменьшая общности, изучим здесь только позитрониевые состояния $n = 2$ и 3. Развита нами теория (выполняются условия (22), (25)) дает возможность проанализировать позитрониевые состояния ($n = 2$ и 3) в нанопорах, начиная с радиусов $a \geq 2$ nm.

Полная энергия позитрония $|W_n(a)|$, полученная с помощью метода ВКБ в нанопоре радиуса a , а также в рамках первого порядка теории возмущений (24) в нанопоре большого радиуса a (22), с ростом радиуса a для состояний позитрония ($n = 2$ и 3) увеличивается (рис. 2). При этом значения полной энергии позитрония $W_n(a)$ (24) в нанопоре, начиная с радиуса $a \geq 11$ nm (или $S \geq 104$) (для состояний с $n = 2$), а также в нанопоре, начиная с радиуса $a \geq 20.4$ nm (или $S \geq 192$)

(для состояний с $n = 3$), незначительно (в пределах, не превышающих 10%) отличаются от полной энергии, полученной методом ВКБ (рис. 2). Начиная со значений радиусов нанопор $\bar{a}_2 \approx 555$ nm (или $\bar{S}_2 \approx 524$) (для состояния с $n = 2$) и $\bar{a}_3 \approx 763$ nm (или $\bar{S}_3 \approx 720$) (для состояния с $n = 3$), полная энергия парапозитрония асимптотически стремится к значениям (15), характеризующим позитрониевые состояния в вакууме (рис. 2). Значения полной энергии парапозитрония $W_n(a)$ относятся к инфракрасной (состояния с $n = 2$ и 3) области спектра.

Из рис. 3, на котором приведена зависимость энергии связи парапозитрония $E_{ep}^{(n)}(S)$ от радиуса a нанопоры, полученная методом ВКБ, следует, что связанные состояния электрон-позитронной пары возникают в нанопоре, начиная со значения радиуса нанопоры $a \geq a_c^{(2)} \approx 1.81$ nm (или $S \geq S_c^{(2)} \approx 17.1$) (для состояний с $n = 2$) и для состояний с $n = 3$ в нанопоре, начиная со значения радиуса нанопоры $a \geq a_c^{(3)} \approx 4.1$ nm (или $S \geq S_c^{(3)} \approx 38.2$). При этом состояния электронно-позитронной пары, начиная с радиуса нанопоры $a \geq a_c^{(2)}$ (для состояний с $n = 2$) и начиная с радиуса нанопоры $a \geq a_c^{(3)}$ (для состояний с $n = 3$), находятся в области отрицательных энергий, что соответствует связанному состоянию электрона и позитрона. В этом случае энергия кулоновского взаимодействия $V_{ep}(\rho)$ (7) между электроном и позитроном, а также энергия поляризационного взаимодействия $U(\rho, a)$ (2)–(5) электрона и позитрона со сферической поверхностью раздела „нанопора–матрица“ превышают энергию размерного квантования электрона и позитрона в нанопоре.

Энергия связи позитрония $E_{ep}^{(n)}(a)$ (20) в нанопоре большого радиуса a (22), полученная с помощью первого порядка теории возмущений, начиная с нанопоры радиусом $a \geq 8.9$ nm (или $S \geq 84$) (для состояний с $n = 2$) и начиная с нанопоры радиусом $a \geq 19.1$ nm (или $S \geq 180$) (для состояний с $n = 3$), принимает значения, которые незначительно (в пределах, не превышающих 11%) отличаются от энергии связи, найденной методом ВКБ (рис. 3). С ростом радиуса a нанопоры наблюдается увеличение энергии связи $|E_{ep}^{(n)}(a)|$ парапозитрония (рис. 3). Начиная со значений радиусов нанопоры $\bar{a}_2 \approx 50.9$ nm (или $\bar{S}_2 \approx 480$) (для состояний с $n = 2$) и $\bar{a}_3 \approx 73.1$ nm (или $\bar{S}_3 \approx 690$) (для состояний с $n = 3$), энергия связи парапозитрония асимптотически стремится к значениям (15), характеризующим позитрониевые состояния в нанопоре (рис. 3). Значения энергии связи $E_{ep}^{(n)}(a)$ парапозитрония лежат в инфракрасной ($n = 2$ и $n = 3$) областях спектра.

Под объемным позитронием в нанопоре подразумевается позитроний, параметры которого (приведенная масса, борковский радиус, энергия связи) в нанопоре не отличаются от параметров позитрония в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ_2 . Объемный парапозитроний возникает в состоянии ($n = 2$) только в нанопоре, начиная с радиуса $a \geq \bar{a}_2 \approx 50.9$ nm, и в

Частоты переходов $\hbar\omega_n^{n'}(a)$ (27) между энергетическими уровнями ($n' = 3$) и ($n = 2$) как функции радиуса нанопоры a . Частоты переходов $\hbar\omega_n^{n'}(a)$, выраженные в единицах E_{ep}^0 (8) (а также в eV); радиусы нанопор a , выраженные в nm (а также в безразмерных единицах $S = (a/a_{ep})$ (где a_{ep} — борковский радиус позитрония в вакууме))

$a, \text{ nm}$ (S)	$\frac{(W_3(a) - W_2(a))}{E_{ep}^0}, \text{ eV}$
4.5 (21.3)	0.16 (0.273)
5.0 (23.6)	0.15 (0.255)
6.0 (28.3)	0.146 (0.25)
7.0 (33)	0.143 (0.244)
8.0 (37.8)	0.142 (0.242)
9.0 (42.5)	0.141 (0.24)
10.0 (47.2)	0.14 (0.238)
11.0 (52.0)	0.139 (0.235)

состоянии ($n = 3$) только в нанопоре, начиная с радиуса $a \geq \bar{a}_3 \approx 73.1$ nm (рис. 2 и 3).

Для существования позитрониевых состояний ($n = 2$) и ($n = 3$) в нанопоре радиуса a при температурах $T \ll T_1$ необходимо выполнение условия

$$k_B T \ll k_B T_1 \equiv |E_{ep}^{(n)}(a)| \quad (26)$$

(где k_B — постоянная Больцмана), которое выполняется вплоть до температур плавления матрицы.

Исследования парапозитрониевых состояний ($n = 2$) и ($n = 3$) в нанопорах радиусами a (22), находящихся в твердых матрицах, возможны в процессах поглощения (излучения) на переходах с частотами

$$\hbar\omega_n^{n'}(a) = \Delta W_n^{n'}(a) = |W_{n'}(a) - W_n(a)|, \quad (27)$$

расположенными в инфракрасной области спектра (см. таблицу). В формуле (27) значения полной энергии $W_n(a)$ (где $n = 2$ и $n' = 3$) получены методом ВКБ (рис. 2). В нанопорах с радиусами $a \geq a_c^{(3)}$ в поглощение (излучение) будут давать вклад состояния с ($n = 2$) и ($n = 3$). Поэтому спектроскопически можно контролировать возникновение нанопор (т.е. зарождение новой фазы), начиная с размеров $a \geq a_c^{(3)} \approx 4.1$ nm в твердых матрицах. С ростом радиуса a нанопоры от $a = 4.5$ nm ($S = 425$) до $a = 11.0$ nm ($S = 103.8$) частоты переходов (27) между парапозитрониевыми состояниями

($n = 3$) и ($n = 2$) монотонно уменьшаются от 0.273 до 0.235 eV (см. таблицу).

Энергетический интервал между уровнями парапозитрония, которые участвуют в процессах поглощения (излучения), должен быть порядка нескольких $k_B T$. При этом должно выполняться неравенство

$$k_B T \ll k_B T_2 \equiv \Delta W_n^{n'}(a), \quad (28)$$

где значения полной энергии $W_n(a)$ ($n = 2$ и $n' = 3$) получены методом ВКБ (рис. 3). Условие (28) при этом выполняется вплоть до температур плавления матрицы.

При качественной оценке значений энергии связи $E_{ep}^{(n)}(a)$ и полной энергии $W_n(a)$ парапозитрония при температурах, определяемых условиями (26) и (28), пренебрегали вкладом, которые вносит в эти величины взаимодействие позитрония, движущегося в нанопоре, с квазичастицами (фононами) твердой матрицы.

Заключение

Показано, что выражения, полученные методом ВКБ, а также с помощью первого порядка теории возмущений, описывающие энергию связи электрон-позитронной пары $E_{ep}^{(n)}(a)$ и полную энергию парапозитрония $W_n(a)$ как функции радиуса a нанопоры, определяются перенормировкой энергии кулоновского взаимодействия электрона с позитроном (7), а также перенормировкой энергий взаимодействия электрона и позитрона с чужими (5) и своими (3), (4) изображениями, возникающими на сферической поверхности раздела (нанопора-матрица) (рис. 1), связанной с чисто пространственным ограничением области квантования объемом нанопоры.

Установлено, что связанные состояния электрон-позитронной пары возникают в нанопоре, начиная со значения радиуса нанопоры $a \geq a_c^{(2)} \approx 1.81$ nm (для состояний с $n = 2$) и $a \geq a_c^{(3)} \approx 4.1$ nm (для состояний с $n = 3$). С ростом радиуса a нанопоры так, что $a > \tilde{a}_2 \approx 50.9$ nm (для состояний с $n = 2$) и $a > \tilde{a}_3 \approx 73.1$ nm (для состояний с $n = 3$), связанные состояния электронно-позитронной пары переходят в состояния объемного парапозитрония.

Обнаруженные особенности парапозитрониевых состояний, связанные с зависимостью их энергии связи $E_{ep}^{(n)}(a)$ и полной энергии $W_n(a)$ от размеров a нанопор, могут представлять интерес для разработки нового метода оптического контроля пористой структуры наноматериалов. Новый метод определения размеров a нанопор основывается на сравнении экспериментальных спектров поглощения (излучения) позитрония в нанопорах с теоретическими зависимостями энергетических спектров позитрония (16), (24), (27) от радиуса a нанопор. С помощью предложенного метода можно определить значения радиусов нанопор $a_c^{(2)}$ (для состояний с $n = 2$) и $a_c^{(3)}$ (для состояний с $n = 3$), начиная с которых в нанопорах размером $a \geq a_c^{(2)}$ и $a \geq a_c^{(3)}$ возникают связанные состояния электрон-позитронной пары, а также

оценить концентрацию N пор (составляющую величину порядка a^{-3}), а значит, и оценить пористость (степень дисперсности) матрицы. Особый интерес разработка такого оптического метода может представлять для контроля возникновения дефектов (например, нанопор) или зародышей новой фазы при электромагнитных, радиационных или тепловых воздействиях на многокомпонентные наноструктуры [1–4, 12, 13], а также влияния экстремальных условий на свойства материалов (взрывной синтез кристаллов, гидроразрыв пласта и т. д.).

Список литературы

- [1] Графутин В.И., Прокопьев Е.П. // УФН. 2002. Т. 172. Вып. 1. С. 67–88.
- [2] Шантарович В.П., Ямпольский Ю.П., Сивергин Ю.М. // Хим. физика. 2003. Т. 22. Вып. 2. С. 87–93.
- [3] Нищенко М.М., Лихторович С.П., Герасимов А.Ю. // Металлофиз. новейшие технол. 2002. Т. 24. Вып. 10. С. 1321–1328.
- [4] Гольданский В.И. Физическая химия позитрона и позитрония. М.: Наука, 1968. 173 с.
- [5] Нищенко М.М., Лихторович С.П. // Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии. 2003. Т. 1. Вып. 1. С. 193–211.
- [6] Shaefer H.E. // Nanostruct. Mater. 1995. Vol. 6. P. 518–524.
- [7] Shantarovich V.P., Goldanskii V.I. // Hyperfine Interact. 1998. Vol. 116. P. 67–74.
- [8] Shpak A.P., Pokutnyi S.I. // Progr. Phys. Metal. 2005. Vol. 6. P. 105–144.
- [9] Pokutnyi S.I. // Phys. Express. 2011. Vol. 1. P. 158–164; Phys. Express. 2012. Vol. 2. P. 20–28.
- [10] Shpak A.P., Pokutnyi S.I. // Metal. Phys. Advanc. Technol. 2007. Vol. 29. P. 225–244.
- [11] Shpak A.P., Pokutnyi S.I., Uvarov V.N., Pokutnyi M.S. // Metal. Phys. Advanc. Technol. 2008. Vol. 30. P. 459–502.
- [12] Dauwe C., Consolati G. // Phys. Lett. A. 1998. Vol. 238. P. 379–384.
- [13] Hirade T., Maurer F., Eldrupe M. // Radiat. Phys. Chem. 2000. Vol. 58. P. 405–411.