

金属的正电子双多普勒展宽谱研究^{*}

孔伟¹⁾ 郝传英 叶邦角 翁惠民 周先意 韩荣典

(中国科学技术大学近代物理系 合肥 230026)

摘要 研制了一套数字化的正电子湮没双多普勒展宽谱测量系统,用它测量了 10 个样品的双多普勒展宽谱,得到了一些有意义的结果.这些结果展示了一些金属单质材料的双多普勒展宽谱随着电子结构变化而发生的变化.本文简略介绍了双多普勒展宽谱仪,实验数据处理,以及这些金属单质材料的数据和分析结果.

关键词 正电子湮没 双多普勒展宽 金属

1 引言

正电子湮没谱学(PAS)是研究物质材料缺陷和微结构变化的重要技术^[1,2].目前常用的实验方法有正电子寿命谱,多普勒展宽谱,角关联测量以及综合以上方法的多参数关联测量.正电子湮没双多普勒展宽测量(2D-DBAR, 2-Detector Doppler Broadening of Annihilation Radiation)由 K. G. Lynn 等人提出^[3],经过 20 年的发展逐渐成为一种现实可行的实验技术^[4,5],重新引起人们注意,并且用来研究正电子湮没中心附近的化学环境,进一步作为分析材料中缺陷形成机制的重要工具^[6].

正电子进入材料以后,绝大多数要经过慢化,热化过程,达到热运动能量后与电子湮没,参与湮没的正、负电子对的总动量近似等于电子的动量.湮没产物通常是两个光子.如果参与湮没的电子动量为零,两个湮没光子能量都应该为 0.511MeV,并且动量方向相反.忽略正电子所带动量,如果与正电子湮没的电子,在平行于湮没光子出射方向上动量分量为 p_L ,根据能动量守恒定律,湮没光子的能量分别近似为 $0.511\text{MeV} + \frac{1}{2}p_Lc$ 和 $0.511\text{MeV} - \frac{1}{2}p_Lc$,其中 c 为光速.这两个光子能量差近似为 p_Lc ,能量和近似

为 $2 \times 0.511\text{MeV}$.

多普勒展宽能谱测量就是测量其中一个湮没光子的能量,这样通过分析湮没峰展宽可以了解参与湮没的电子动量分布情况.如果加一个探测器测量另一个湮没光子产生的符合信号,可以得到经过符合后的单个探测器能谱,这样做可以提高峰谷比.而双多普勒展宽测量是同时测量两个湮没光子的能量.

若湮没光子经过康普顿散射,一般不能满足能量和为 $2 \times 0.511\text{MeV}$ 的条件.这样同时测量两个湮没光子的能量并根据两个湮没光子的能量和来选择,可以有效地减少康普顿散射的影响,得到较高的峰谷比.另外,由于两个光子的能量总和基本不变,同时测量两个光子能量来计算湮没光子的能量差将使系统的相对能量分辨提高 $\sqrt{2}$ 倍.

对双多普勒展宽测量的两维能谱分析,可以得到电子动量分布造成的多普勒展宽,进一步得到湮没中心处电子动量的分布.由于这种测量相对于普通的多普勒展宽测量有峰谷比高、能量分辨好的特点^[3],双多普勒展宽谱仪系统可以测量出动量较高的芯电子造成的多普勒展宽效应,而测量这些芯电子的动量分布可以得到湮没中心处化学环境的信息.

2004-04-09 收稿,2004-06-17 收修改稿

^{*} 中国科学院知识创新工程重大项目,国家自然科学基金(10175061),中国科学技术大学 985 重点科研项目资助

1) E-mail: kongw@ustc.edu

2 实验

2.1 实验装置

实验室研制的双多普勒谱仪,系统框图如图 1 所示.

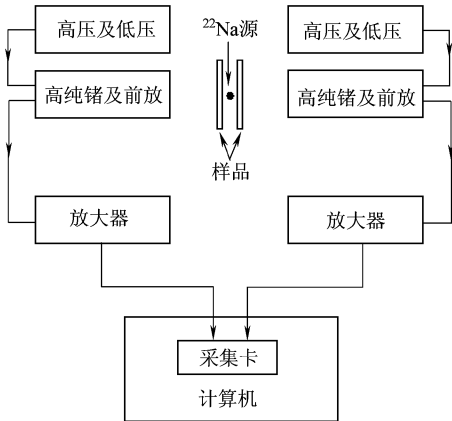


图 1 双多普勒测量系统框图

使用两片样品和一个 $0.02\text{mCi } ^{22}\text{Na}$ 放射源组成样品-源-样品三明治结构,在同一条轴线上距离源约 20—30cm 面对面布置两个高纯锗探测器,分别是 ORTEC GEM20P4 和 EG&G ORTEC GEM-10175. 两个放大器 ORTEC 572A 和 ORTEC 572 将两路前放输出信号放大成型以后分别送入计算机上的数据采集卡 AD-Link9812 作模数变换.放大器输出的两路脉冲信号将分别以 20M/s 的采样率转换成数字信号.计算机将处理这些数字脉冲信号并且分别拟合出两路信号的幅度和它们相对时间关系.对于信号幅度的拟合,对比多种算法,采用了 3 次多项式拟合,速度和效果都可以令人满意,对于定时,采用了恒比定时的算法.对于满足甄别条件的信号,计算机将以事件列表的形式记录在硬盘上,分别记录每个事件中两个放大器输出的幅度,两个符合事件之间的时间差,提供给离线处理程序进一步分析.由于长时间测量无法避免系统的电子学漂移,采用列表形式的记录有利于跟踪和修正漂移.以两个探测器得到的能量为坐标,以计数为纵坐标,将会得到一个二维谱.图 2 给出了测量的单晶硅(100)的双多普勒展宽谱.

用新研制的系统测量得到的差谱,峰谷比达到了 10^5 .通过符合选择的单探测器多普勒展宽能谱测量一般有 10^3 的峰谷比,一般的多普勒展宽测量则有 10^2 的峰谷比(图3中为了方便比较,双多普勒数据的

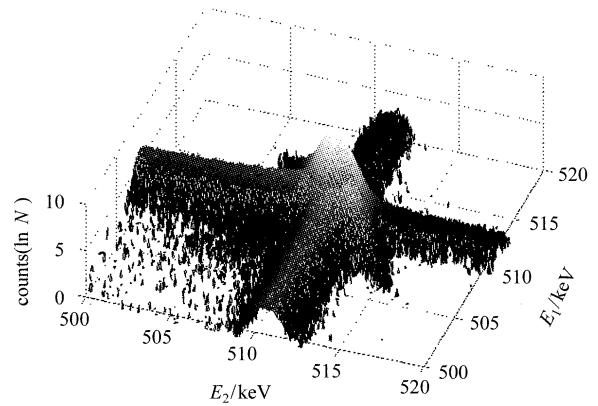


图 2 Si(100) 双多普勒展宽谱

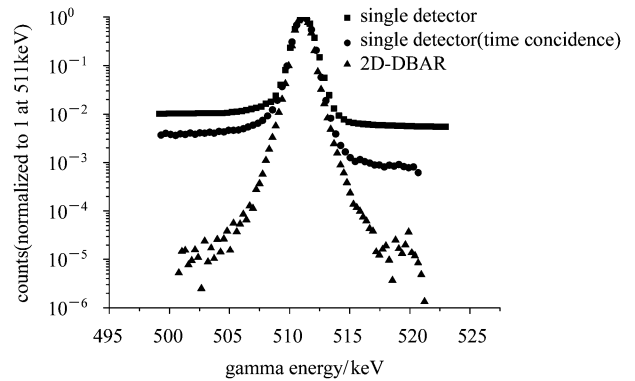


图 3 多普勒展宽不同测量方法的峰谷比之比较

横坐标选取了 $(E_1 - E_2)/2 + m_0 c^2$, E_1 和 E_2 为两个探测器测量到的能量, m_0 为电子静止质量).

另一方面,本系统使用了软符合技术,符合、甄别由软件完成.系统的时间分辨如图 4 所示.可以看到在放大器成形时间为 6000ns 时,系统时间分辨仍可以达到 150ns 以下.软符合时,符合门宽可以选择在 100ns 左右.实验中两个通道计数率均小于 3000cps,采用 100ns 符合门宽,偶然符合计数率小于

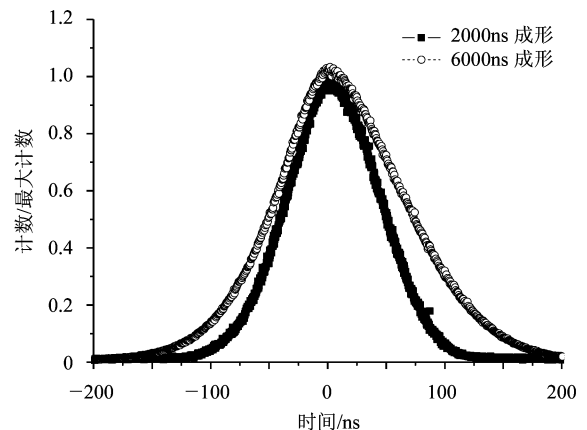


图 4 时间分辨曲线(^{60}Co 源)

2cps, 占总符合计数率 200cps 的 1%, 能够满足测量的要求. 与此同时, 仪器插件的数量相对于传统方法设计的系统减少.

经过测试, 目前的算法在此系统所使用的计算机上计算(计算机主频为 1.6GHz), 分析 1 个脉冲信号, 耗时 $8\mu\text{s}$ 以内. 而另一方面, 由于数据采集卡每通道采样率为 20MHz, 不能做到连续采集, 高计数率条件下会有一定的数据丢失. 在单探测器能谱测量实验中, 当每秒钟探测器探测到的粒子数多于 7000 时, 系统死时间占测量时间比例达到 2/3.

2.2 数据处理

首先使用 ^{137}Cs 的 0.662MeV 全能峰和 0.511 MeV 的正电子湮没峰对两个探测器作能量刻度, 这一标定过程在每次测量开始和结束的时候都会作. 对于每个样品的测量数据, 使用离线处理程序将事件的顺序列表重建成一维谱和两维谱. 分成多个等时的数据段, 分别检查湮没峰的漂移情况和峰宽变化情况, 视情况舍弃漂移较大和系统能量分辨变坏的数据段, 对齐数据段并求出总的两维谱. 实际操作中, 在两维谱上减除本底, 尝试了 4 种减本底的方法, 平均本底, 两维高斯与斜坡组合, 两维高斯与台阶组合, 逐道本底减除法, 第 4 种方法是将两维谱分为多个窄长的条形区域, 每个区域内分别用一维谱减本底的方法减除本底. 由于峰谷比非常大, 最后结果又使用商谱, 4 种方法得到的结果非常接近. 目前使用的是高斯函数和台阶函数组合的本底. 然后以符合事件在两个探测器探测到的能量和为横坐标, 这一能量上的计数为纵坐标, 作和谱. 以和谱的半高宽 σ 为参考(σ 基本取决于两个探测器的分辨能力, 与多普勒展宽基本无关), 在两维谱上保留两个光子能量和与 $2 \times 0.511\text{MeV}$ 差别小于 σ 的事件, 即要求

$$|E_1 + E_2 - 2 \times 0.511\text{MeV}| < \sigma,$$

E_1 和 E_2 分别是一个事件在两个探测器上测到的能量, σ 为和谱半高宽(这样做的目的是为了减少康普顿散射, 电荷收集不全等对最后结果的影响). 以这些剩下的符合事件中两个光子的能量差为横坐标, 对应能量的计数为纵坐标, 可以作出差谱. 再对差谱作数据修正, 包括源修正等. 对不同样品与标准样品的差谱做面积归一化、对齐, 样品谱各道计数分别除以标准样品谱对应道计数可以得到商谱. 商谱反映的数据受实验条件的影响较小, 各种样品的数据中的系统偏差在商谱中有一定程度的抵消, 能够比较

真实地反映样品湮没中心处电子动量分布的情况, 目前被广泛采用.

2.3 样品

本文中提及的十种样品全部从 Alfa-Aesar 购买. 利用电火花线切割制作成 $10\text{mm} \times 10\text{mm}$ 方块, 纯度和厚度见表 1.

表 1 样品特性

样品	纯度	厚度/mm
Al	99.99%	1.0
Fe	99.99%	0.5
Co	99.85%	1.0
Ni	99.50%	0.787
Cu	99.99%	1.0
Zn	100.00%	1.0
Zr	99.20%	1.0
Nb	99.80%	1.0
Mo	99.95%	1.0
Ag	99.90%	1.0

每个样品测量的时间为 24h 左右, 有效符合事件每个样品为 5×10^6 左右.

3 结果与讨论

图 5 为几种金属样品的双多普勒展宽谱与铝的商谱, m_0 为电子静止质量.

为了更清楚地比较实验的结果, 根据样品在周期表中的位置, 把样品分为两类, 第四周期的 Fe, Co, Ni, Cu, Zn 和第五周期的 Zr, Nb, Mo, Ag.

在图 5(a)中, 可以看出, 从 Fe 到 Cu, 随原子序数的增加, 商谱的峰值逐渐增加, 峰位逐渐向高动量部分移动, 峰的宽度也依次增加. 从原子结构来看, 这几种元素的内层电子结构相同, 区别就在于 3d 电子数量不同, 分别有 6, 7, 8, 10 个, 另外 Cu 的 4s 电子只有 1 个. Alatalo 等人理论计算的结果表明^[7], 4s 电子的分布主要在低动量区域 ($p_L < 15 \times 10^{-3} m_0 c$), 对 $15 \times 10^{-3} m_0 c - 35 \times 10^{-3} m_0 c$ 区域, 主要起作用的是 3d 电子, 从图上可以得到很好的反映. 其他人做的理论计算也有基本相同的结果. 与 Cu 相比, Zn 元素的峰值有所下降, 但是峰位和峰宽度相近, 这是因为与 Cu 相比, Zn 元素的 3d 电子相同, 多了一个 4s 电子, 对内层电子有一定的屏蔽作用.

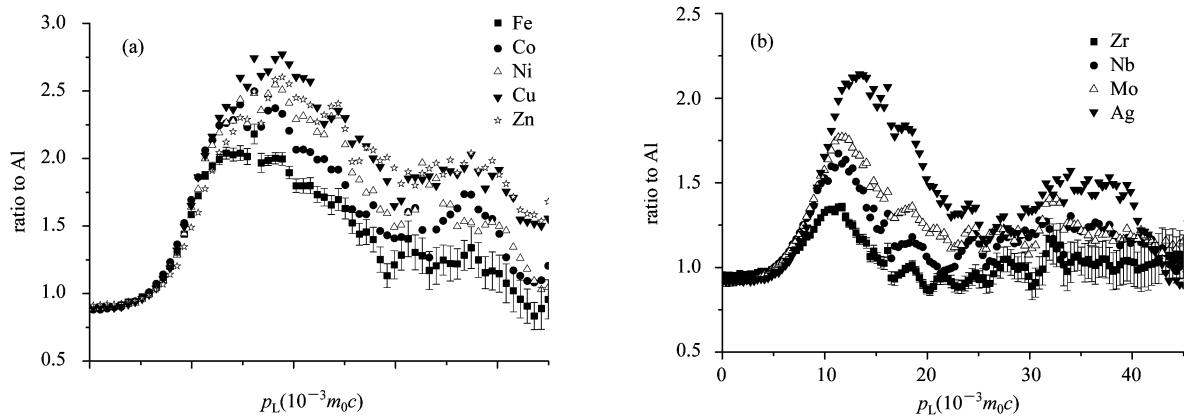


图 5 样品双多普勒展宽谱与铝的商谱

图 5(b)的结果与图 5(a)类似,因为 $4d$ 电子的数量差别更大,不同元素之间的商谱的差别也更加明显.

需要指出的是,与理论值相比,得到的商谱的峰高度明显偏低,这可能与我们的样品没有经过退火有关,R.S.Brusa 的测量结果表明^[8],经过充分的退火处理,商谱的峰高度可以明显的增加,但是峰的形状和峰位都不会变化.

从测量的数据和理论结果比较以及仪器性能参数来看,在仪器设计中使用的数字化技术使仪器的成本降低,易于维护.而这些金属样品的数据变化的规律符合理论预期,这些结果将为以后的元素鉴别工作提供有力的保证.

从测量的数据和理论结果比较以及仪器性能参数来看,在仪器设计中使用的数字化技术使仪器的成本降低,易于维护.而这些金属样品的数据变化的规律符合理论预期,这些结果将为以后的元素鉴别工作提供有力的保证.

参考文献 (References)

- Schultz P J, Lynn K G. *Rev. Mod. Phys.*, 1988, **60**: 701—779
- Puska M J, Nieminen R M. *Rev. Mod. Phys.*, 1994, **66**: 841—897
- Lynn K G et al. *J. Phys. Rev. Lett.*, 1977, **38**: 241—244
- Alatalo M et al. *Phys. Rev.*, 1995, **B51**: 4176—4185
- Sakuo Matsui. *Journal of the Physical Society of Japan*, 1992, **61**: 187—198
- XU Jun et al. *Phys. Rev.*, 2001, **B64**: 113404-01—113404-04
- Alatalo M, Barbiellini B. *Phys. Rev.*, 1996, **B54**: 2397—2409
- Brusa R S, Deng W, Karwasz G P. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 2002, **B194**: 519—531

Two-Detector Doppler Broadening of Annihilation Radiation in Metals*

KONG Wei¹⁾ XI Chuan-Ying YE Bang-Jiao WENG Hui-Min
ZHOU Xian-Yi HAN Rong-Dian

(University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract Recently, a new digitalized 2-Detector Doppler Broadening Spectrometer is developed. 10 pure metal samples are studied with this system. The results show the relationship between 2-D Doppler broadening spectra and electronic structure of these elements. This article introduces the spectrometer, data analysis, the Doppler broadening of 10 pure metal samples, and the discussion about these results.

Key words positron annihilation, 2-detector Doppler broadening, metal

Received 9 April 2004, Revised 17 June 2004

* Supported by Knowledge Innovation Project of The Chinese Academy of Sciences. National Natural Sciences Foundation of China(10175061), Project 985 of USTC

1) E-mail: kongw@ustc.edu