

正电子湮没多普勒谱中的 $3\gamma/2\gamma$ 分析*

周春兰 张天保 马创新 章志明 曹兴忠 王宝义 魏龙¹⁾

(中国科学院高能物理研究所核分析室 北京 100049)

摘要 在慢正电子束研究表面的实验中,一般仍使用高纯Ge γ 谱仪测量正电子湮没多普勒展宽能谱,对能谱的分析采用线形参数 S, W ,这些参数提供的信息有限.例如,当电子与正电子在材料中形成电子偶素时,简单的线形参数非但不能表征它们,反而因它们的存在使得分析变得复杂.本工作在对多普勒展宽能谱进行数据处理的过程中,引入正态电子偶素自衰变强度 $I_{3\gamma}$ 参数,建立了从能谱中获得 $I_{3\gamma}$ 参数值的方法.以标准样品为基准,选用Ag盖帽的气凝硅胶进行 $I_{3\gamma}$ 参数计算,工作表明新参数对研究介孔材料及纳米薄膜能提供更丰富的信息.

关键词 慢正电子束流 孔隙 电子偶素 介孔材料 薄膜

1 引言

用慢正电子束流研究材料表面的实验中,一般仍使用高纯Ge γ 谱仪测量正电子湮没多普勒线形参数 S, W 分析方法,以研究样品中的缺陷情况.在70年代,Canter et al.^[1], Mills^[2]和Lynn^[3]用低能正电子入射到金属和半导体表面,测量正态电子偶素o-Ps的湮没光子,提出在表面或在表面附近有电子偶素Ps(包括正态电子偶素o-Ps,和仲态电子偶素p-Ps)生成. Lynn^[4]测量了电子偶素成分与正电子能量在不同温度下的关系,在此实验过程中,Ps热发射到真空环境中,因此 γ 光子探测几何较难掌握.本实验工作是从多普勒能谱中,得到o-Ps的 3γ 湮没强度 $I_{3\gamma}$ 和 2γ 的湮没强度 $I_{2\gamma}$ 比值随着入射正电子能量的变化关系,结合多普勒线形参数 S ,从而对材料的表面、界面及体内缺陷提供更为丰富的信息.

o-Ps形成时,其湮没 3γ 能谱从0—511keV连续分布,与p-Ps和正电子自由湮没511keV峰的 2γ 谱不同.发生 3γ 和 2γ 湮没的谱强度分别称为 $I_{3\gamma}$ 和 $I_{2\gamma}$,它们指的是湮没事例数,而不是指 γ 射线的数目.由于认为正电子与电子主要发生 3γ 和 2γ 湮没,因此 $I_{3\gamma}$ 和 $I_{2\gamma}$ 满足以下关系: $I_{3\gamma} + I_{2\gamma} = 100\%$.

在实际测量工作中,得到的多普勒展宽能谱(如图1所示)是由几种 γ 光子的能谱叠加而成,一是p-Ps和正电子发生自由湮没引起的511keV γ 光峰,另外包含湮没产生的 γ 光子发生康普顿散射形成的连续能谱,以及正态电子偶素o-Ps发生 3γ 湮没发射的能量从0—511keV连续分布的 γ 光子能谱,这3种能谱叠加在一起,从而使得直接得到 $I_{3\gamma}$ 参数变得困难.为了减少511keV光峰和其康普顿散射连续能谱的影响,选取能谱中400—500keV部分来分析 $I_{3\gamma}$ 参数,以对多普勒谱 S 参数分析进行补充.

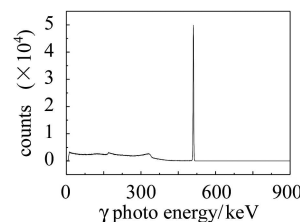


图1 多普勒展宽能谱示意图

由实验探测得到的 3γ 湮没计数是与发生 3γ 湮没强度成正比关系的,同样对于 2γ 湮没强度来说,也是这种情况,它们满足以下关系式

$$\frac{I_{3\gamma}}{I_{2\gamma}} = \eta \frac{C_{3\gamma}}{C_{2\gamma}}, \quad (1)$$

其中 $I_{3\gamma}$: 3γ 湮没强度, $I_{2\gamma}$: 2γ 湮没强度, $C_{3\gamma}$: 能谱中

2005-04-11 收稿, 2005-07-12 收修改稿

*国家自然科学基金(10275076, 10275077)资助

1) E-mail: weil@ihep.ac.cn

400—500keV的 3γ 计数, $C_{2\gamma}$: 511keV光峰计数. 从公式(1)中, 只要知道了系数 η , 则可以得到发生 3γ 湮没, 2γ 湮没的有效事例数, 即强度. 而系数 η 是跟探测器, 探测几何有关. 经过对各种实验误差进行分析后, 就得到经过修正的系数 η .

在确定系数 η 之后, 用气凝硅胶样品对系数进行检测. 已知o-PS在被约束在气凝硅胶中的条件下, $I_{3\gamma} = 26.6\%$ ^[5], 使用慢束, 将较高的正电子(10keV, 20keV)射入气凝硅胶, 选用已知 $I_{3\gamma} = 0$ 的样品作为背景样, 计算气凝硅胶样品在扣除背景之后相对干净的峰/谷比, 与已知的 $I_{3\gamma} = 26.6\%$ 进行比较.

2 实验及结果讨论

在1987年, 张天保、唐孝威研究员测得净 3γ 能谱分布^[6](如图2), 横坐标表示 3γ 湮没的 γ 光子能量, 纵坐标表示每个单能 γ 光子的相对探测强度, 其结果显示实验与量子电动力学计算符合, 否定了其他理论.

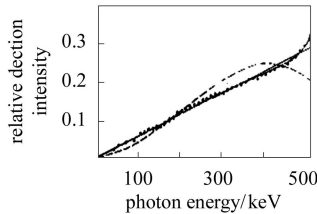


图2 正态电子偶素 3γ 湮没 γ 能量分布的理论和实验结果

其中虚线为Ore-Powell相空间预言结果, 线性直线为Adkins相空间预计结果, 实线为量子电动力学理论计算结果, 实心点为其实验结果.

利用图2中的实验得到的净 3γ 能谱, 根据实际得到的不同能量 γ 光子的相对光峰探测效率, 从理论上得到系数 η , 考虑在实际测量条件下存在的误差, 对系数 η 进行修正.

2.1 假设实验探测得到的 3γ 湮没的 γ 光子单能峰, 其强度分布同图2完全一致, 所有 γ 射线都分别被探测到, 即光峰相对探测效率 ϵ 都为1

定义 $C_{3\gamma}$, 它表示发生 3γ 湮没放出的所有 γ 光子的数目, 为图2中整个曲线与 x 轴所围的面积.

$$C_{3\gamma} = \sum_{E=0\text{keV}}^{E=511\text{keV}} \Delta E \times P, \quad (2)$$

E : γ 光子能量, P : 每个单能 γ 光子对应的强度, 计算得出 $C_{3\gamma} = 75.31$, 所以 $I_{3\gamma} = C_{3\gamma}/3 = 25.1$, 假定 $I_{2\gamma} = 25.1$, 则 $C_{2\gamma} = 2 \times 25.1$.

由 $\frac{I_{3\gamma}}{I_{2\gamma}} = \eta \frac{C_{3\gamma}}{C_{2\gamma}}$, 可以得出 $\eta = 2/3$.

2.2 假定在发生的所有湮没事例中, 发生 2γ 湮没的 γ 光子都被探测到, 3γ 只有在400—500keV范围内才能被分别探测到, ϵ 为1

在这种情况下, 3γ 在400—500keV范围内的计数为

$$C_{3\gamma}^1 = \left(\frac{A_1}{A}\right) C_{3\gamma} = 0.336 C_{3\gamma},$$

A_1 : 图2中400—500keV区间所围的面积; A : 整个曲线所围的面积, $I_{3\gamma} = C_{3\gamma}/3 = 25.1$, 仍然假定 $I_{2\gamma} = 25.1$. 同样根据式(1), 可以得到在这种条件下的系数 $\eta' = 1.984$. 在整个计算过程中, 有2.6%的误差, 这主要是在对图2(正态电子偶素 3γ 衰变的 γ 能量分布)的数据进行分析时引入的.

2.3 在实际情况下, 高纯Ge探测器对 3γ 湮没的不同能量的 γ 光峰相对效率 ϵ 不一致, 对511keV的 γ 光子, ϵ 仍设为1

用已知 γ 发射强度的 ^{152}Eu ^[7]和 ^{133}Ba ^[8]放射源作为相对光峰效率刻度的混合源, 对高纯Ge探头的探测效率进行标定. 测量两者发射的从低能(30.8keV)到高能(1457.6keV)分布的 γ 光峰, 在实验中, 选取的 γ 光峰能量范围为80.9—1212.9keV.

使用的探测器为GLP44510/15高纯Ge探头, 在探头前面放置2mm不锈钢平板作为吸收片, 探头离放射源的距离 $d = 1.5\text{cm}$.

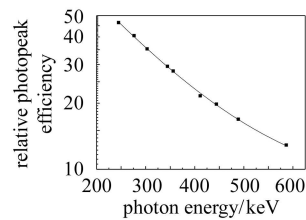


图3 高纯Ge探头的相对光峰效率曲线
实线为指数衰减拟合结果.

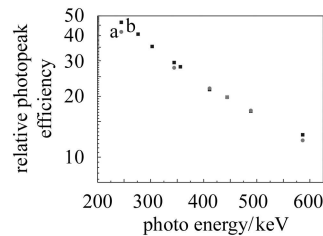


图4 两种不同探测几何条件下测得的相对光峰效率曲线

a: GLP44510/15探头, 吸收片为4mm不锈钢平板, $d = 7\text{cm}$; b: GLP44510/15探头, 吸收片为2mm不锈钢平板, $d = 1.5\text{cm}$.

从图4中可以看出,在两种不同的探测几何下,在我们所需要的区间(400—500keV)探测效率曲线基本符合,因此在以后的工作中,采用了图3中的效率曲线.对图3中的数据采用指数衰减拟合曲线得到在250—580keV区间,相对效率曲线方程为

$$y = 7.666 + 167.65e^{-0.005944x}, \quad (3)$$

其中 x 为光子的能量, y 为相对探测效率.

在计算具有特定能量的光子的相对探测效率的时候,由于对某些能量 γ 射线的发射强度未知,因此导致在80—250keV范围内,实验误差估计为2%,250—580keV为1%,580—1200keV范围内的实验误差大概为2%.

在利用多道卡采集多普勒数据的结果中,探测到的一定能量的 γ 光子对应着一定的道数.图5为利用 ^{152}Eu ^[7]和 ^{133}Ba ^[8]放射源测得能谱中的道数与光子能量的对应关系.在测试的过程中,每个特征能量的 γ 光峰的总计数高于 10^4 ,寻找已知能量的 γ 光峰在谱图中相对应的道数,得到图5所示的结果.

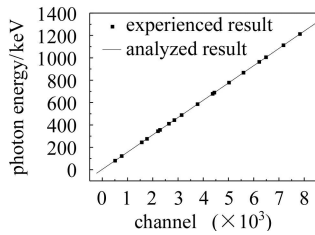


图5 γ 光峰能量与道数的关系图

从图中可以看出, γ 光峰所在的道数与其能量成线性关系,但曲线并未经过零点.根据线性函数拟合得到的关系函数,可以求得某一道下对应的能量.

由方程(3)得到400—511keV区间各个能量所对应的相对探测效率,设511keV的相对探测效率为1,将其他能量所对应的相对探测效率与511keV光峰的相对探测效率比值设为 N ,此时不同能量的 γ 能峰强度 $P_1 = P \times N$.

在这种情况下,设定 3γ 湮没计数为 $C_{3\gamma}^2$,由方程(2)得出 $C_{3\gamma}^2$ 与 $C_{3\gamma}^1$ 之比为

$$\frac{C_{3\gamma}^2}{C_{3\gamma}^1} = \frac{\sum_{E=400\text{keV}}^{E=500\text{keV}} \nabla E \times P_1}{\sum_{E=400\text{keV}}^{E=500\text{keV}} E \times 1} = 1.20296,$$

此时对应的系数为 η'' ,由 η'' 与 η' 的关系式得出

$$\eta'' = \frac{\eta'}{C_{3\gamma}^2} = \frac{1.984}{1.20296} = 1.649,$$

这是在理想情况下得出的 η 值,在实际的能谱中,并不存在单能的孤峰,而是峰形具有一定的展宽,因此还需对此参数进行修正.

2.4 对系数 η 的修正

以上只是分析了单能的孤峰,在实际情况中,测得的 2γ 能谱并不是单能孤峰,在峰的低能、高能部分存在着尾翼.针对这种情况,对系数 η'' 进行修正,得到在实际情况下适用的 η .

修正的方法在测得的511keV光峰中,扣除高能尾翼部分,而对低能尾翼部分采取两种处理方法:1:保留低能部分,2:扣除低能部分.

经过两种方法处理的能谱,用移峰的方法模拟 3γ 湮没 γ 光子能谱(400—500keV),用两个能谱的比值对系数进行修正.

选用本征硅样品,测量某一正电子能量下的 2γ 湮没产生的511keV光峰,用 ^{60}Co 的 γ 能谱扣除谱峰高能端后,保留低能部分后,结果设为a图,而另一个则是将低能尾部去掉后,设为b图,a,b两个 2γ 峰计数都为 10^6 .

从511—400keV按等能量间距10eV划分能量点,分别将a,b图的峰位移到一定能量的 γ 光子能谱所对应的峰位,得到的即为具有某个能量的 γ 光子的能谱;将511keV γ 光子的相对效率定位1,各个能量的 γ 光子相对光峰效率与511keV的相对光峰效率之比为系数 k ,各个能量所对应的谱图乘上系数 k ,逐个叠加,得到两种情况下的 3γ 湮没能谱(400—511keV),图6为保留511keV光峰低能部分得到的模拟 3γ 湮没能谱,扣除511keV光峰低能部分得到的模拟 3γ 湮没能谱与此类似.

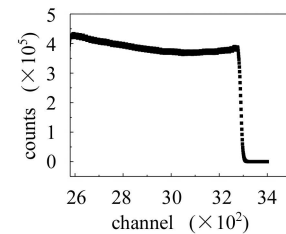


图6 模拟的 3γ 湮没 γ 光子能谱(400—511keV)
(保留511keV光峰的低能部分)

在实际测得的谱图中,511keV光峰的低能部分与 3γ 湮没辐射的光子叠加在一起,因此定义系数 c :

$$c = \frac{\text{未扣除低能部分得到的 } 3\gamma \text{ 谱计数}}{\text{扣除低能部分得到的 } 3\gamma \text{ 能谱计数}}$$

用 c 修正系数 η , $\eta = \eta''/c = 1.60 \pm 0.5$,此过程的实验误差为3%,主要是由于谱的计数涨落造成的.

对结果的验证: 用 20keV 的正电子束流在 Al 箔中的湮没能谱作为背景, 测得气凝硅胶的 $I_{3\gamma} = 28\%$, 与已知的 26.6% 相比, 有 5% 的偏差, 这是由前面提到的实验误差, 分析数据引进的误差造成的, 但在可接受范围内 (10%)^[5].

对于本征硅样品, 在正电子能量大于 20keV 的范围内, 没有 Ps 生成, 即 $I_{3\gamma} = 0$, 因此选用本征硅作为标准样品, 对气凝硅胶、用 Ag 盖帽的气凝硅胶进行 $I_{3\gamma}$ 参数的分析, 结果如图 7 所示. 图 7 中未盖帽的样品的曲线表明: 在样品的近表面区生成了大量的 Ps, 随着正电子的能量增加, 入射的深度增加, Ps 的数量相对于在表面减少, 但是仍有 Ps 生成, 并且逐渐趋于稳定, 结合盖帽的结果, 表明材料内的孔隙是相互关

联的 (open porous). 结果表明我们建立的 $3\gamma/2\gamma$ 分析方法对研究介孔材料和纳米薄膜材料提供了更为丰富的信息.

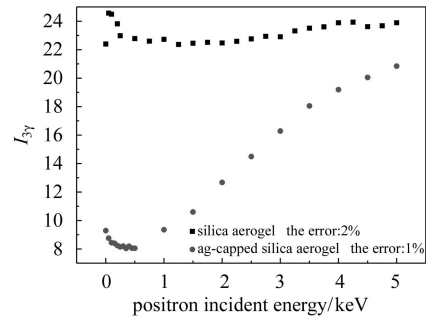


图 7 气凝硅胶的 o-Ps 湮没强度 ($I_{3\gamma}$) 随正电子入射能量的变化关系

参考文献 (References)

- 1 Canter K F, Jr Mills A P, Berko S. Phys. Rev. Lett., 1974, **33**: 7—10
- 2 Jr Mills A P. Phys. Rev. Lett., 1978, **41**: 1828—1831
- 3 Lynn K G. Phys. Rev. Lett., 1979, **43**: 391—394
- 4 Heitler W. The Quantum Theory of Radiation (3rd ed). New York: Oxford University Press, 1954
- 5 ZHANG Tian-Bao et al. HEP & NP, 1990, **14**(4): 289—295 (in Chinese)
(张天宝等. 高能物理与核物理, 1990, **14**(4): 289—295)
- 6 CHANG Tian-Bao, TANG Xiao-Wei, LI Yao-Qing. Phys. Lett., 1985, **B157**(5-6): 357—360
- 7 Debertin K. Nucl. Instrum. Methods, 1979, **165**: 279—281
- 8 Vaninbroukx R, Denecke B. Nucl. Instrum. Methods, 1982, **193**(1-2): 191—196

Analysis of $3\gamma/2\gamma$ Ratio in the Measurement of Positron Annihilation Doppler-Broadening Spectroscopy*

ZHOU Chun-Lan ZHANG Tian-Bao MA Chuang-Xin ZHANG Zhi-Ming
CAO Xing-Zhong WANG Bao-Yi WEI Long¹⁾

(Laboratory of Nuclear Analytical Technology, Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100049, China)

Abstract Doppler-broadening slow positron annihilation spectroscopy is used to measure the concentration, spatial distribution, and size of open-volume defects in surface and interface of material. In this method, the quantitative evaluation is generally carried out with the line shape parameter S and W , but sometimes the parameters provide some finite information. For example, if positron and electron form positronium (include o-Ps and p-Ps) in material, the parameters S and W may provide little information about positronium even complicate the analyses. A parameter $I_{3\gamma}$, defined as o-Ps self-decay intensity, was used to analyze Ag layer capped and non-capped silica aerogel by slow positron annihilation Doppler-broadening spectroscopy. The result shows that $I_{3\gamma}$ can provide more information for researching mesoporous material and nanometer film.

Key words slow positron beam, pore, positronium, mesoporous material, film

Received 11 April 2005, Revised 12 July 2005

*Supported by NSFC (10275076, 10275077)

1) E-mail: weil@ihep.ac.cn