

正电子湮没辐射多普勒展宽谱 的 处 理 及 其 应 用

郑万辉 彭郁卿 张怡萍

(中国科学院上海原子核研究所)

王景成

(上海钢铁研究所)

用迭代法对湮没辐射的Doppler展宽谱去卷积, 获取湮没辐射的本征分布。用高斯—牛顿法将本征分布拟合为一个高斯函数(心电子贡献)和抛物线函数(传导电子贡献)之和。从本征分布和抛物线函数可以算出电子的动量分布信息和估测费米能。用纯Ge探测器测量了Al、Ag、Cu、Co、Ni、Sn、In、Mo、W、Zr、Ti、Ge、Si等13种材料的多普勒展宽谱, 算出它们的动量分布和费米能, 显示各种材料的动量分布明显不同, 由实验测得的费米能值与由自由电子气模型计算的理论值很好符合。对Fe-Si-B非晶和晶态合金的研究表明: 两者的动量分布差异甚小, 但费米能略有不同。

关键词: 正电子湮没 多普勒展宽谱 电子动量分布 费米能

一、引 言

近年来, 由于Ge(Li)和HpGe探测器分辨率的改进, 在正电子湮没研究中, 湮没辐射多普勒展宽方法越来越得到广泛的应用。除了用湮没辐射谱的形状参数来研究湮没特性外, 还可通过去卷积等数据处理方法获得被研究材料的电子动量分布、费米能等信息。虽然用角关联的方法获取这些信息有较高的精确度, 但用多普勒展宽法有以下优点: 只需要约 10^5 Bq的放射源, 样品辐射损伤效应可以忽略; 大尺寸的试样, 甚至是气体样品也可以进行测量; 容易获得好的计数统计; 易于测量高动量区的分布, 而这个区的情况与材料缺陷密度密切相关; 设备简单、轻便, 适于作动态和频繁测量。

为了从湮没辐射多普勒展宽谱中求取本征分布、电子对动量分布等, 需要对多普勒展宽谱去卷积, 消除仪器分辨率的影响。去卷积的问题在研究固态探测器的 β 射线谱、复杂 γ 射线谱、中子谱等分析中也经常遇到, 通常使用的方法是迭代法、傅里叶分析法和矩阵求逆法^[1-6]。

本文将讨论用迭代法对湮没辐射谱去卷积求本征分布, 并用高斯—牛顿法对本征谱做高斯—抛物线函数拟合求费米能的基本原理和数学模式; 给出13种纯金属和半导体材料的多普勒展宽谱的测量和分析结果; 最后讨论这个方法在铁基非晶态合金研究中的应用。

二、基本原理和数学模型

在材料中, 正电子—电子对主要湮没为两个511keV的 γ 光子。精确地说, 这两个 γ 光子的平均能量稍微偏离电子的静止质量能, 并且有一个分布。在实验室坐标系中, 湮没时 γ 射线的能量可表达为

$$E_{1,2} = m_0 c^2 + E_B/2 \pm CP_Z/2 \quad (1)$$

式中, $m_0 c^2$ 是对应于电子静止质量的能量; E_B 为在材料中正电子—电子对的总能(动能与势能之和)或正电子素的结合能; P_Z 是沿观察方向(Z)的动量分量; $CP_Z/2$ 代表了多普勒展宽项。一般情况下, 正电子是热化的, 所测到的 P_Z 是电子的Z向动量。辐射谱的能量分布可表达为

$$W(E) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(P_x, P_y, P_z) dp_x dp_y \quad (2)$$

式中, $\rho(P_x, P_y, P_z)$ 是电子的动量密度。式(2)相当于角关联的平行狭缝几何的公式, 所不同的是角关联测到的是横向(垂直)方向动量分布, 而多普勒展宽谱测到的是纵向(水平)方向的动量分布。如果动量分布是各向同性的, 方程(2)可写为

$$W(E) = 2\pi \int_{P_z}^{\infty} P \rho(P) dP \quad (3)$$

式中, $P^2 = P_x^2 + P_y^2 + P_z^2$ 。

动量分布为

$$N(P) = 4\pi P^2 \rho(P) \propto E \frac{dW(E)}{dE} \quad (4)$$

测量时所观察到的湮没辐射谱 $C(E)$ 并不是湮没辐射的本征分布, 而是本征谱受探测器系统响应函数卷积的结果。卷积后的分布一般表达为

$$C(E) = \int_0^{\infty} W(E') R(E - E') dE' \quad (5)$$

式中, 能量 E 是直接 with 观察谱的道数相联系的, $R(E - E')$ 为仪器的响应函数, 它表示 E' 能量的 γ 光子在能量 E 处的响应。由(5)式可以看出, 要得到本征分布 $W(E')$, 可用实测的响应函数对观察谱 $C(E)$ 进行去卷积求得, 然后便可以根据(4)式求出动量分布 $N(P)$ 。在金属中, 本征分布被认为是倒抛物线(传导电子的贡献)与高斯分布(心电子的贡献)之和。在非金属中, 本征分布可以是一个高斯或两个高斯和。我们在此仅考虑金属的情况。当将本征分布分解为高斯分布和抛物线分布后, 可算出抛物线的底宽 E_D , 则费米能 E_f 可由下式求得^[1]

$$E_f = E_D^2 / 2m_0 c^2 \quad (6)$$

1. 去卷积的数学模型

方程(5)可写成直接与道数相关的分量求和形式, 本征分布按下式^[2]求得:

$$W_i^{(N+1)} = W_i^{(N)} + K_i \left[\sum_{k=-m}^m \frac{R_k}{C'_{i+k}} (C_{i+k} - P_{i+k}^{(N)}) \right] / \sum_{k=-m}^m \frac{R_k}{C'_{i+k}} \quad (7)$$

式中,

$$K_i \begin{cases} = -\frac{W_i^{(N)}}{W_{n_0}^{(N)}} / \frac{P_i^{(N)}}{P_{n_0}^{(N)}} & (n_0 \geq i \geq 1) \\ = K_{2n_0-i} & (n \geq i \geq n_0) \end{cases},$$

$P_i^{(N)} = \sum_{j=1}^n R_{ij} W_j^{(N)}$; C_i 是未扣本底的观测谱第 i 道计数, $W_i^{(N+1)}$ 为 N 次迭代后的本征分布, n_0 为本征分布的中心, K_i 为松弛系数, 它是为了克服远离峰区的 $W_i^{(N+1)}$ 出现复数和振荡问题加进的一个调节因子。为了克服放射性的统计涨落影响, 在求 i 道的本征函数值时采用了在仪器分辨率 $FWHM$ 范围内 $2m+1$ 道加权平均的措施。迭代的手续一直到约化 χ^2/n 的变化小于 0.03 为止, 此时的 $W_i^{(N+1)}$ 便可视为本征分布。我们这一部分的计算程序是采用覆盖方法写成, 在一般中小型计算机上都可运算。本工作在 PDP11/70 机上计算, 一般迭代 10 次以下便可以得到满意的去卷积谱, 约化 χ^2/n (n 为拟合道数) 在 1 左右。

2. 高斯—抛物线分布拟合的数学模型

对本征分布用下列两式拟合为高斯分布和抛物线分布

$$W(x) = A - B(x - x_1)^2 + C \exp[-D(x - x_2)^2] \quad (8)$$

当 $|x - x_1| \leq (A/B)^{1/2}$ 时

$$W(x) = C \exp[-D(x-x_2)^2] \tag{9}$$

当 $|x-x_1| > (A/B)^{1/2}$ 时

式中， x 为道数， x_1, x_2 相应于倒抛物线分布与高斯分布的中心。用高斯—牛顿法来实现最小二乘拟合，求取 A, B, C, D, x_1, x_2 六个参数，拟合时要选取适当的初始值，初值离真值太远，泰勒展开不成立，可能导致发散，无法计算。拟合一般选取约 4 倍本征谱的 $FWHM$ 范围即可获得较好的结果。为了求得倒抛物线的底宽，可令

$$A - B(x-x_1)^2 = 0, \text{ 即 } |x-x_1| = \left(\frac{A}{B}\right)^{1/2} \tag{10}$$

$|x-x_1|$ 就是倒抛物线底宽的一半，由此并根据 (6) 式可算出费米能。

三、纯金属和半导体材料的费米能和电子动量分布的估测

我们测量并在计算机上处理了 Al、Ag、Cu、Co、Ni、Sn、In、Mo、W、Zr、Ti、Ge、Si13 种材料的多普勒展宽谱（金属材料系多晶，Si 与 Ge 是单晶）。多普勒展宽谱用体积 13cm^3 、分辨率为 1.05keV （对 514keV γ 射线）的平板型高纯锗探测器进行测量。样品均经抛光处理，每片约 1—2mm 厚，测量时使用约 $37 \times 10^4 \text{ Bq}$ 的 ^{22}Na 正电子源夹于两片相同材料之间，源与探测器的距离约 10cm，以减少源位置效应。电子学系统由前放、主放、偏压放大器及 1024 道脉冲高度分析器组成，增益为 71eV/道 。响应函数由 ^{85}Sr 514keV γ 射线测定，减去本底后各道计数对峰中心高度进行归一化处理的一套响应系数被用作响应函数。表 1 为 13 种材料的湮没谱的分析结果，包括去卷积情况和测量的费米能值与理论值的比较。由表 1 可以看到，约

表1 13种材料湮没谱的分析结果
Table 1 Analyses of annihilation spectra for 13 materials

材料 Material	去卷积拟合 χ^2/n Unfolding fitting	抛物线分量强度 (%) Parabolic component	费米能 (eV) Fermi energy		
			本工作 Present work	K. Sizuma	理论值 Theoretical
Al	1.53	60.2	12.1	12.33	11.63
Ag	1.33	13.7	6.4	5.68	5.48
Cu	1.21	23.0	8.7	9.82	7.00
Co	1.07	16.3	9.9	9.01	10.73
Ni	1.04	23.7	10.4	11.51	10.92
Sn	1.10	50.7	10.8		10.03
In	2.00	42.9	9.0		8.60
Mo	1.22	8.8	9.1		
W	1.16	12.6	12.1		
Zr	1.23	15.9	7.8		
Ti	1.23	18.7	9.6		
Ge	1.09	50.0			
Si	1.64	61.2			

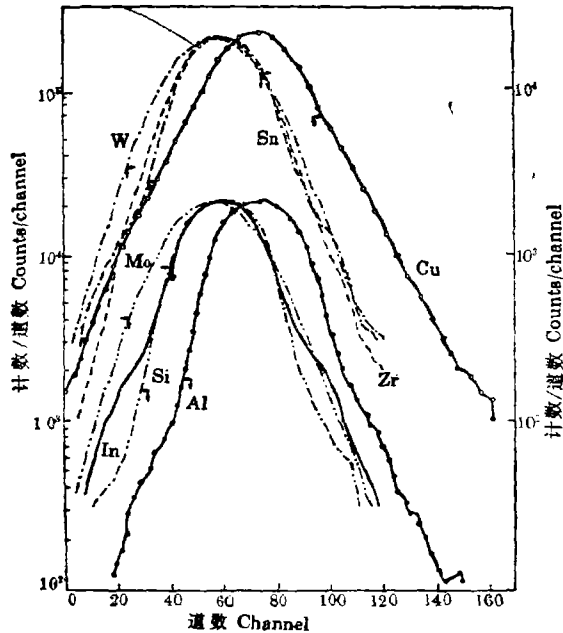


图1 Al、Cu、Mo、W、In、Zr、Si、Sn 的湮没辐射本征谱
Fig. 1 Spectra of intrinsic annihilation radiation for Al, Cu, Mo, W, In, Zr, Si and Sn. (71eV/ch.)

为上述8种材料的电子动量分布,也显示出它们随材料而异的特性,其中In、Sn、Zr、Si是用这种方法测得的新结果。从以上本征分布、电子动量分布、费米能几个方面的结果看,这种分析方法与计算程序是成功的。

四、在铁基非晶态合金研究中的应用

为了研究铁基合金的晶态—非晶态转变时电子态发生的变化,我们采用上述方法处理多普勒展宽谱观察电子动量分布和费米能的变化。非晶合金 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_{15}\text{B}_7$ 和 $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ 缎带是用单辊急冷法在空气中喷成。样品由长30mm、宽10mm、厚50 μm 的薄片堆迭至0.3mm厚,约 25×10^4 Bq的 ^{22}Na 放射源夹在两块同样的样品中。测量条件与上节大体相同。 $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ 非晶合金的去卷积与卷积谱示于图3,可见去卷积的效果是好的。由此算出的晶态和非晶态的 $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ 的电子动量分布见图4,从图4中没有见到它们有明显的差异,这与其他作者^[9-11]利用角关联方法测量若干种材料的晶态/非晶态转变所得的结论一致。我们估算的室温下几种样品的费米能:纯铁为11.07eV, $\text{Fe}_{78}\text{Si}_{15}\text{B}_7$ (非晶)为12.7eV, $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ (非晶)为13.7eV, $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ (晶态)为13.2eV。从晶态和非晶态的 $\text{Fe}_{76}\text{Si}_{15}\text{B}_9$ 的费米能看,非晶化时费米能稍大些,似乎非晶化时电子浓度稍有变大。而从不同的非晶态材料看,每个Fe原子差不多贡献相同的有效电子数(1.9电子/原子)。

我们还将去卷积方法应用于含微量铝的铁基非晶态合金的研究中,因为铝含量仅在1—3at.%之间变化,未去卷积的线形参数 S_f 变化微小,经去卷积后,线形参数 S_{mf} 变化较为灵敏(见表2)。从表2中可看到,去卷积的 S_{mf} 与Al含量呈线性关系,Al含量越高,线形参数愈大,这说明随着Al含量的增加,铁基非晶合金中的空位型缺陷也增加。由于缺陷是不稳定的状态,较多的缺陷将降低合金的热稳定性。随着Al含量的增加,该合金的居里温度

化 χ^2/n 一般都在1—1.6之间,去卷积的效果是好的。估测的费米能值有一部分被K. Sizuma^[11]估测过,我们的结果较他更接近由以下电子气模型公式算出的理论值^[7]

$$E_f = \frac{\hbar^2}{2m} (3ne\pi^2)^{2/3} \quad (11)$$

式中, m 、 c 、 $\hbar$ 分别为电子的质量、光速和普朗克常数; E_f 为费米能; ne 为电子浓度。图1为Al、Cu、Mo、W、In、Sn、Zr、Si等8种材料去卷积后的本征谱,可以看出各种材料的本征谱呈现明显差异,而去卷积前是难以看到的。其中Al、In、Sn明显显示心电子与传导电子的不同贡献。用此法求得的Cu、Al的本征分布与现有的角关联测得的结果^[6]是一致的。图2

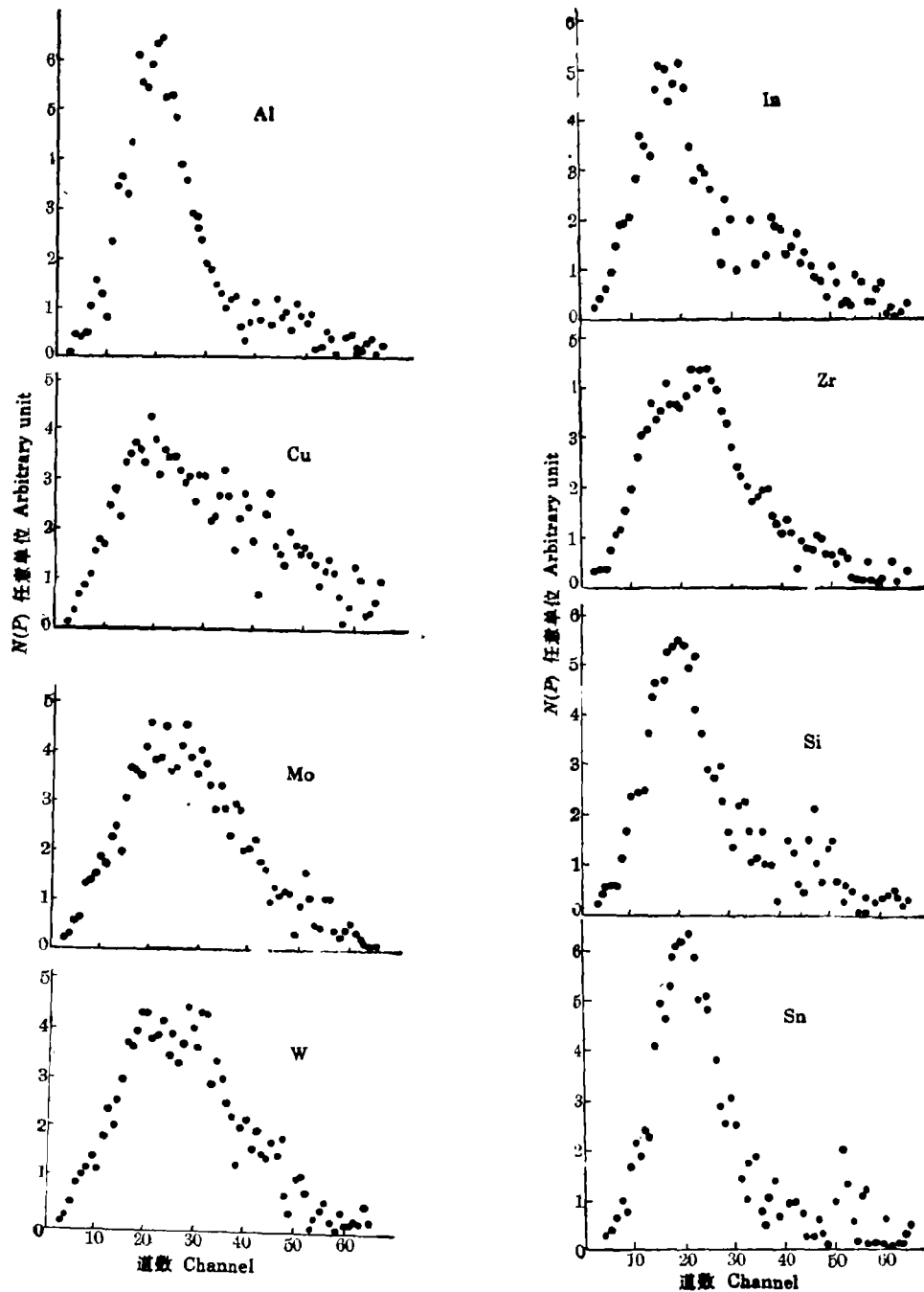


图2 由多普勒展宽谱测得的 Al、Cu、Mo、W、In、Zr、Si、Sn 的电子动量分布
 Fig. 2 Electron momentum distribution obtained from the Doppler broadening measurement for Al, Cu, Mo, W, In, Zr, Si and Sn. (0.037a.u./ch.)

表2 含微量Al铁基非晶合金的去卷积和卷积线形参数 S_{unf} 、 S_f 与材料物理性能的关系
Table 2 Relation between unfolded and folded lineshape parameters S_{unf} 、 S_f and physical properties for amorphous FeSi B alloys with small amount of Al

合金成分 (At.%) Alloy Component	卷积 S_f Folded	去卷积 S_{unf} Unfolded	居里温度 T_c (℃) Curie temp.	晶化温度 T_x (℃) Crystallization temp.	晶化激活能 E (eV) Activation energy for crystallization
Fe _{77.70} Si _{9.20} B _{13.10}	0.456	0.457	428	515	4.29
(Fe _{77.75} Si _{9.51} B _{12.74}) _{89.90} Al _{1.10}	0.459	0.461	426	538	4.29
(Fe _{77.75} Si _{9.30} B _{12.95}) _{87.00} Al _{3.00}	0.460	0.464	423	530	3.97
(Fe _{77.75} Si _{9.11} B _{13.14}) _{79.00} Al _{2.00}	0.461	0.465	423	503	3.42
Fe		0.475			

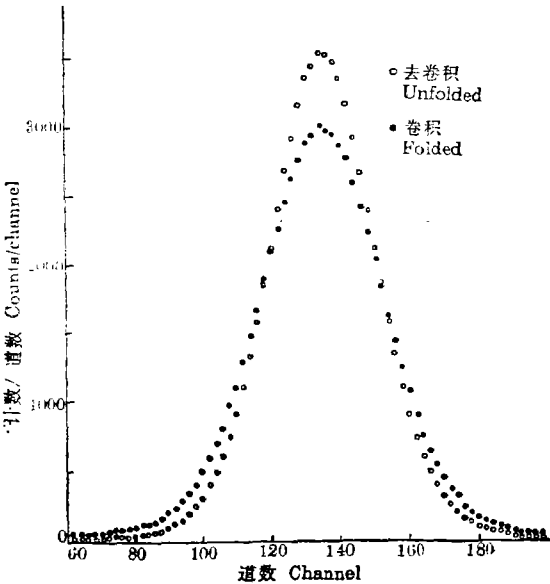


图3 非晶合金 Fe₇₆Si₁₅B₉ 的卷积和去卷积的湮没辐射分布
Fig. 3 Folded and unfolded annihilation radiation distributions for amorphous Fe₇₆Si₁₅B₉ alloy

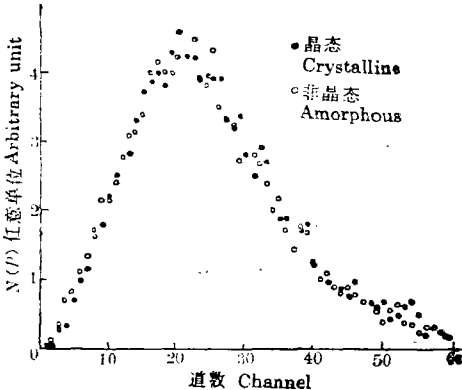


图4 晶态和非晶态 Fe₇₆Si₁₅B₉ 合金的电子动量分布
Fig. 4 Electron momentum distributions for amorphous and crystalline Fe₇₆Si₁₅B₉ alloy (0.041 a. u./ch.)

T_c 、晶化温度 T_x 与晶化激活能都有所下降。

五、结 论

本文所用的多普勒展宽谱去卷积方法和从谱中提取电子动量分布与估测费米能的方法是成功的，可以在研究工作中应用。在线形参数变化微小时，可用去卷积方法提高参数的灵敏度，增强多普勒展宽谱线形参数的分析能力。
对张金根、包于洪、朱家璧、石松耀、周晓波等同志在工作中所给予的帮助表示感谢。

参 考 文 献

[1] K. Shizuma, Nucl. Instr. Meth., 150 (1978), 447.
[2] ibid, 173 (1980), 395.
[3] V. I. Goldanskii et. al., Appl. phys., 16 (1978), 413.
[4] S. Dannefear et. al., Nucl. Instr. Meth., 131 (1975), 119.
[5] H. P. Hotz et. al., Phys. Rev., 170 (1968), 351.
[6] Ch. Dauwe et. al., Solid State Commun., 11 (1972), 717.

- [7] D. pines, Elementary excitations in solids, W. A. Benjamin, New York, 1964, p.58.
[8] P. Hautojarvi et. al., *Phys. Stat. Sol. (b)*, **56**, (1973), 421.
[9] S. Y. Chung et. al., *J. Phys. F. Metal Phys.*, **5** (1975), 1681.
[10] N. Shiotani et. al., *J. Phys. Soc. JP*, **50** (1981), 828.
[11] J. Filipecki et. al., *Phys. Stat. Sol.*, **66** (1981), 463.

Processing of Doppler broadening spectra of positron annihilation radiation and its application

Zheng Wanhui Peng Yuqing Zheng Yiping
(Shanghai Institute of Nuclear Research, Academia Sinica)
Wang Jingcheng

(Shanghai Institute of Iron and Steel Research)

Abstract

An unfolding method to obtain intrinsic distributions of positron annihilation radiation from Doppler broadening spectra by means of an iterative method is described. The intrinsic distribution can be fitted into a Gaussian function and an invert parabola function. Electron momentum distribution and Fermi energy can be calculated.

Positron annihilation spectra for 13 materials were analyzed. Their momentum distribution and Fermi energy were obtained. The results show that electron momentum distributions for various materials are different and experimental values of Fermi energy for various materials are consistent with theoretical ones. The study on amorphous and crystalline Fe-Si-B alloys indicates that momentum distributions are almost the same, while there is a small difference on Fermi energy.

Keywords: Positron annihilation Doppler broadening spectra Electron momentum distribution Fermi energy

(1989年12月4日收到)