

文章编号: 1007-4627(2003)03-0213-05

正电子寿命-动量关联技术*

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, 安徽 合肥 230027)

摘 要: 评述了国际正电子领域的新探测技术——寿命-动量关联技术. 介绍了该技术的发展过程, 讨论了该技术的分析方法, 详细阐述了该技术在 Ps 形成和热化过程中的应用, 并讨论了该技术在 Ps 化学上的应用.

关键词: 正电子谱学; 寿命-动量关联; 正电子偶素

中图分类号: O565 **文献标识码:** A

1 引言

正电子领域最广泛使用的技术是正电子寿命谱技术和多普勒展宽技术. 正电子寿命谱技术通常采用 γ - γ 符合技术, 其中一个 γ 为 1.27 MeV, 另一个 γ 为正电子湮没发出的 511 keV. 1953 年, Bell 和 Graham^[1] 首先提出了 β^+ - γ 实验测量技术. 1978 年, Maier 和 Myllyla^[2] 重新建立了 β^+ - γ 测量技术, 他们认为, β^+ 探测器的探测效率通常为 100%, 而使用触发 γ (1.27 MeV) 作开始信号的探测器其探测效率小于 10%, 这样就可用更小的时间获得更好的统计. 在这些实验基础上, 人们发展了正电子寿命-动量关联 (Age-Momentum Correlation, AMOC) 技术, 即同时测量正电子湮灭时的寿命和正负电子对的湮没动量, 进行二维作图, 可以分析多普勒展宽随时间的演化和不同正电子湮灭寿命随动量的变化及不同正电子偶素态之间的跃迁. 对研究 Ps(Positronium) 形成、Ps 热化过程和 Ps 化学等十分重要.

2 AMOC 技术

首先提出寿命-动量关联 (AMOC) 概念的是 MacKenzie 和 McKee^[3], 第一个给出缩写 AMOC 的是 Stoll 和 Wesolowski 等^[4]. 图 1 是典型的 AMOC 谱.

AMOC 技术按测量寿命的起始触发信号分,

主要有两种: 一种是采用触发 γ (1.27 MeV) 作起始信号, 即所谓的 AMOC- $\gamma\gamma\Delta E$ 技术; 另一种是采用正电子作起始信号, 即 AMOC- $\beta^+\gamma\Delta E$ 技术.

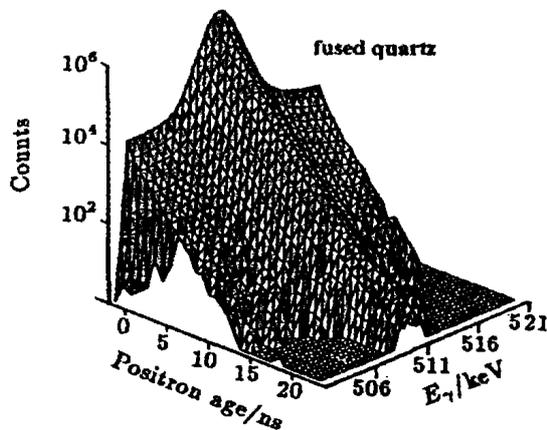


图 1 熔融石英在室温下的 AMOC 谱

在 β^+ - γ 测量技术上发展起来的 AMOC- $\beta^+\gamma\Delta E$ 技术比之 AMOC- $\gamma\gamma\Delta E$ 技术, 有以下优点: (1) 符合计数率增加、统计性更好和测量时间减少; (2) 塑料闪烁体对 e^+ 有 100% 效率, 符合计数率大大增加, 因而本底计数也大大减少; (3) 采用了去脉冲堆积电路和多次撞击探测电路加以去本底, 因而系统可以在高计数率上仍有很低的本底计数, 特别适合测量低强度长寿命分量; (4) 样品准备可大大简化. 因为使用 MeV 的正电子束, 注入深度较大,

收稿日期: 2002-11-21; 修改日期: 2003-01-06

* 基金项目: 中国科学院留学回国基金资助项目; 中国科学院院长基金资助项目; 中国科学院知识创新工程重要方向项目 (KJ CX2-SW-No7)

作者简介: 叶邦角(1962-), 男(汉族), 浙江平阳人, 教授, 博士生导师, 从事核物理与核技术应用研究.

因而正电子可以容易地注入到固体液体中。

Kostamovara 等^[5]利用基于⁶⁸Ge/⁶⁸Ga 正电子源的 AMOC-β⁺γΔE, 技术研究 Al 的各种参数. 由于该技术通常需要高能正电子束流, 因而实验受到限制. Wesolowski 等^[6]利用基于加速器的正电子束建立了 AMOC-β⁺γΔE, 测量技术. 在 AMOC-β⁺γΔE, 技术上发展最具出色的是德国 Stuttgart 的 H. Stoll 小组, 他们专门建立 1 MeV 的正电子束流设备^[7], 用 AMOC-β⁺γΔE, 技术开展了大量工作.

AMOC-γγΔE, 技术主要使用在非 MeV 量级的正电子源, 如通常使用的²²Na 正电子源, 即在通常的寿命谱仪基础上, 增加一个测量多普勒展宽的探测器, 甚至有的实验室直接利用测量停止信号的探测器来同时测量多普勒展宽. 图 2 就是典型的几种利用正电子源的 AMOC 系统^[8]. AMOC-γγΔE, 技术主要的优缺点有: (1)不需高能正电子束流, 一般实验室都可以实现; (2)由于起始信号探测器的 BaF₂效率低, 需增加活度, 但同时增加脉冲堆积与偶然符合; (3)通常对于常规正电子源, 如²²Na 源, 停止信号探测器和 ΔEγ 探测器可公用一个 Ge 探测器, 但效果不如分开使用两个 Ge 探测器; (4)需要采用去脉冲堆积电路.

为了进一步研究表面、近表面和薄膜的微结构特性, 在现有慢正电子束的基础上结合 AMOC 技术, 使之正电子的注入能量连续可调, 可分层次地研究近表面的缺陷随时间的演化过程. 1992 年, 日本筑波电子技术实验室的 R. Suzuki 等人首先在他们的慢束上增加 buncher, 使之脉冲化. 最近, 他们又发展了该系统^[9], 在寿命测量时, 正电子脉冲宽度延长为 9 ms, 整个系统的符合计数率可达到 2 000/s, 他们用 一个 GeSSD 测量光子的多普勒展

宽, 寿命信号的终止信号用 BaF₂测量.

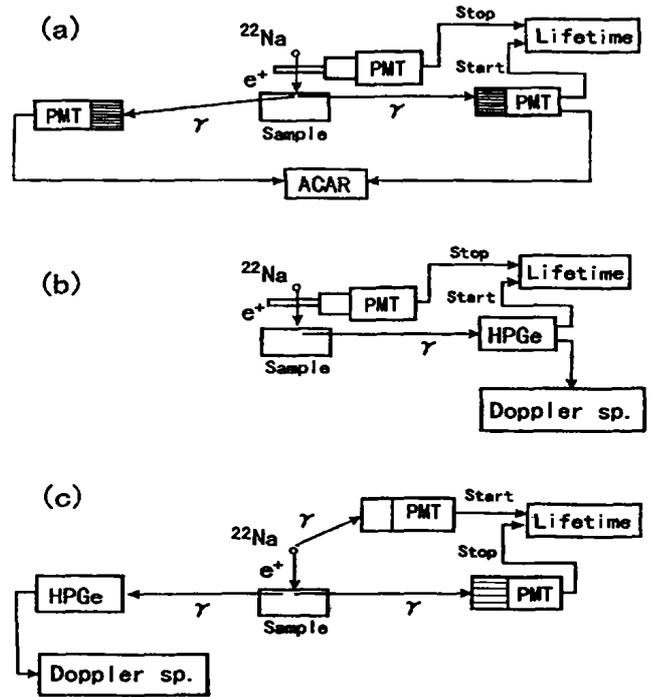


图 2 几种常用的基于放射源的 AMOC 系统
(a)组合 β⁺ 触发时间与一维角关联系统, (b)组合 β⁺ 触发时间和多普勒展宽测量, (c)组合 γ 触发时间和多普勒展宽测量.

3 AMOC 分析技术

AMOC 二维谱是正电子湮灭时间和湮灭光子的多普勒展宽的关联. 图 1 表明了对熔融石英(水晶)的二维 AMOC 谱, 计数用对数坐标. 图中可清楚地表明不同寿命的正电子多普勒展宽谱和不同正电子能量下的正电子寿命. 通常的正电子寿命谱可对所有正电子能谱积分得到, 通常的多普勒展宽可对不同的寿命积分得到. 如图 3 就是在图 1 上所得到的寿命谱和多普勒展宽谱.

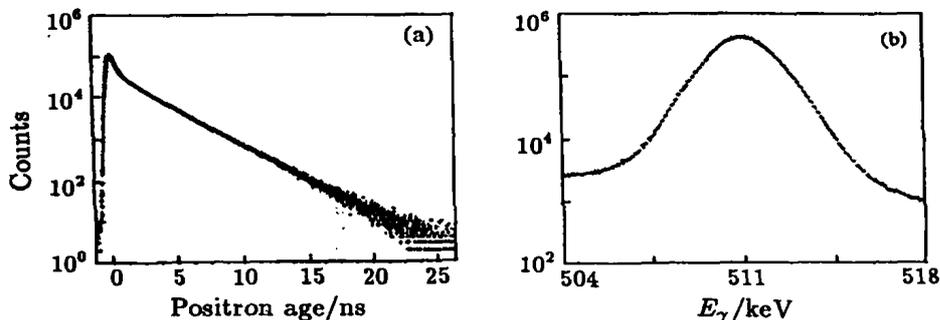


图 3 从二维 AMOC 谱中可以得到通常的寿命谱(a)和多普勒展宽谱(b)

3.1 S' 分析

分析 AMOC 谱目前主要采用的是获得多普勒展宽的 S 参数随寿命的变化(即计算不同寿命下的 S 参数), 称 S' 线性函数:

$$S'(t) = \frac{\int_{\pm\Delta p} N(p, t) dp}{\int N(p, t) dp} = \frac{\int_{\pm\Delta p} N(p, t) dp}{L(t)},$$

$N(p, t)$ 是 AMOC 谱的计数, Δp 是通常用于计算多普勒展宽的动量(或能量)间隔. 图 4 是从图 1 获得的 S' 随平均寿命 τ 的变化, 由此可以分析正电子动量随时间的演化过程.

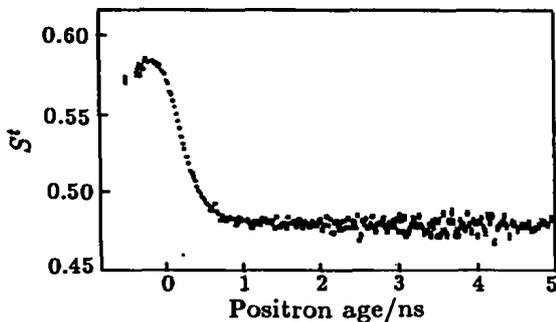


图 4 熔凝石英的 S' 随平均寿命 τ 的变化

3.2 筑波 (Tsukuba) 分析

从 AMOC 二维谱中抽取正电子平均寿命随正电子能量的变化称筑波 (Tsukuba) 分析^[10], 由于平均寿命是以 511 keV 对称分布的, 所以在 511 keV 处是一个谷, 如图 5 所示.

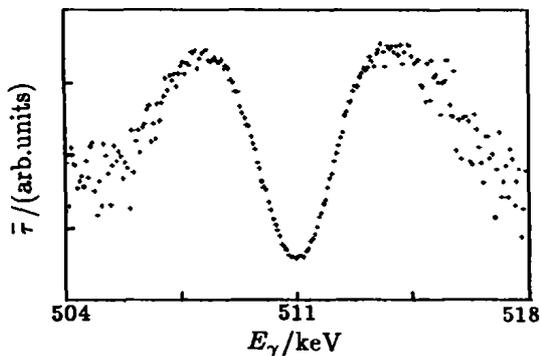


图 5 熔凝石英的正电子平均寿命随能量的变化

3.3 二维分析

要建立真正的二维 AMOC 分析技术, 需要找到合适的模型, 建立计数率 $N(p, t)$ 随寿命 t 和

量变化的方程. 结合初始条件, 可由样品条件、仪器时间和能量分辨函数来获得理论解. 理论上, 德国的 Seeger^[11] 已经建立了 AMOC 分析技术, 目前还没有真正用于实验分析. 这是一个较复杂的分析过程, 需要引进合适的模型以及相应的拟合参数来获得更精确的信息, 预计这种分析技术将包含下列因素: (1) 所有正电子态的多普勒展宽线性参数和湮灭率; (2) 正电子态之间的跃迁率; (3) 正电子形成正电子偶素分量; (4) 谱仪的时间分辨函数、多普勒展宽分辨函数和本底; 等等.

4 AMOC 技术的应用

4.1 冷凝稀有气体中的 Ps 态

基于束流的 AMOC 测量技术本底极低, 峰谷比可达 10^7 , 故可测量低强度长寿命成分, Siegle^[12] 完成了用 AMOC 研究液态和固态 Ne, Ar 和 Kr. 固态 Ar 在 16 K 时, o-Ps(ortho-Ps) 寿命为 2.4 ns, 固态 Kr 在 50 K 时 o-Ps 寿命为 2.1 ns. 这可用 o-Ps 的 pick-off 湮灭来解释, 在液体中, 更长的 o-Ps 寿命可用 o-Ps 在长寿命自局域态的湮灭, 即所谓的 Ps 气泡来解释. 例如在固态 Ne 中, o-Ps 的寿命在 15 K 时为 5.3 ns, 表明 Ne 中有 Ps 气泡形成.

在液态 Ar 和 Kr 中, 正电子的多普勒展宽 S' 参数在 3 ns 处有一极大值. 分析表明, 液态 Ar 和 Kr 中有 Ps 气泡从一个附加的 delocalized 亚稳 o-Ps 态中形成^[13]; 液态亚稳 o-Ps 态寿命与固态在熔点附近的 o-Ps 寿命相同. 在液态 Ar 和 Kr 中, 跃迁到长寿命态或者到更稳的 o-Ps 气泡态的跃迁几率是 $3 \times 10^8/s$. 在液体 Ne 中, 线形参数在正电子寿命 4—6 ns 区域有小峰, 表明可能有亚稳态 Ps 形成. 实验表明, 在 Xe 中没有发现有 Ps 气泡形成.

4.2 Ps 热化

Ps 形成和热化过程是低能 Ps 物理和化学的基本课题, 同时, 对研究 Ps 束的应用亦十分重要, 但在凝聚态中的 Ps 形成迄今还没有很好地了解. 例如, 通过测量 o-Ps 的湮灭可以了解多聚物的结构. 这里就有一个关键问题: 是否 Ps 是在特定的位置(如, 自由体积)形成, 或者 Ps 是否可以处处形成? 当正电子能量较大时, 通过碰撞将使气体分子或原子电离, 这时 Ps 形成的几率就很小. 仅当从气体分

子中剥离一个电子的能量部分来自 Ps 的结合能 ΔE_{Ps} 时, Ps 形成在稀薄气体中才成为主要的去弹性碰撞道. 这意味着, 对 Ps 形成, 其正电子动能 E_{e^+} 必须落入所谓的 Ore gap, 即: $\Delta E_{Ps} > E_{e^+} > (E_{e^+} - \Delta E_{Ps})$. 在凝聚态材料中, 同样也存在 Ore gap, 但 Ps 形成并不受该能隙的限制^[14]. 基于束流的 AMOC 可以用于研究 Ps 在凝聚态材料中的热化过程^[15].

迄今为止, 所测量的在固体和液体中的 Ps 形成过程^[16]中都发现 S' 在短寿命时有一个峰值. 如

测量四甲基硅烷的 S' 谱. 而在其它无 Ps 形成的材料中, 则不能观测到这个峰值. 如 Al 的 S' 谱. AMOC 数据的这种短寿命展宽现象可以用二态模型来分析, 在材料中, Ps 的主要慢化过程是与光声子相互作用把能量传给晶格^[17]. Ps 的能量损失过程允许超热 Ps 与热化 Ps 之间跃迁. 表 1 给出了 p-Ps(para-Ps)和 o-Ps 热化湮灭的各种特性. 表明只有用寿命与多普勒关联技术才能区别各种正电子态的湮灭过程, 而单独用寿命或多普勒展宽是无法区别这些湮灭的.

表 1 AMOC 实验中不同正电子态的湮灭特性

	热化 p-Ps	非热化 p-Ps	o-Ps pick-off 湮灭	自由 e ⁺
正电子寿命	短寿命	短寿命	长寿命	中间
多普勒展宽 ΔE_D	小	大	大	大
S-参数	大	小	小	小

4.3 Ps 和正电子化学

Ps 态由于氧化、复合和自旋转换等过程将产生不同 Ps 态之间的跃迁, 即所谓的 Ps 反应. 这种过程导致一个更短的 o-Ps 寿命并改变正电子-电子对的湮没动量. 利用 AMOC 技术就可以观察这种不同 Ps 态之间的跃迁^[18], 例如, 在 HTMPO 材料中 o-Ps 转化为 p-Ps 引起在长寿命区 S' 的增加.

使用 AMOC 技术过程中, 人们还发现, 当自由正电子与水溶液中卤化物离子反应时, 在一定寿命区域观察到比纯溶液更窄的多普勒展宽现象^[19]. 这种过程表明 AMOC 技术可以把正电子与卤化物离子反应和 Ps 反应区别开来.

基于正电子 AMOC 技术还有许多其他应用, 如最近日本东京大学 Suzuki 等^[20]采用 AMOC 技术测量固体 In 和 Zn 的空位形成能 E. 他们所采用的方法与以前人们所使用的方法具有较大的不同, 他们测量不同温度下的 S', 采用了二分量最小二乘法分析和外推, 得到了空位形成能 E_D .

5 结束语

正电子寿命-动量关联技术, 是国际正电子界广泛应用的一种新技术, 它不仅可以得到通常的正电子寿命和多普勒展宽的信号, 还可以观察多普勒展宽随时间的演化过程以及不同正电子素态之间的跃迁. 在 Ps 化学领域, AMOC 结合 o-Ps 寿命测量和多普勒展宽测量, 可以观测窄动量分布的 p-Ps 态. 此外, AMOC 可以在时间范畴上观察不同的正电子态的占有率和跃迁过程. 此外, Ps 分子的化学反应, 如氧化、自旋转化和 Ps 态形成禁戒等都可用基于束流的 AMOC 来研究. 也可用 AMOC 来研究正电子与卤化物离子的结合态的寿命. 另外, AMOC 也应用于研究天然和人工合成金刚石中的缺陷捕获正电子过程及对光和温度的关系依赖.

目前, 国内中国科学技术大学正在发展一套基于正电子源的 AMOC 技术, 并且把二维多普勒展宽技术与 AMOC 技术结合起来, 可以获得更多的信息.

参 考 文 献:

[1] Bell R E, Graham R L. Time Distribution of Positron Annihilation in Liquids and Solids[J]. Phys Rev, 1953, 90: 644.
 [2] Maier K, Myllyla R. Positron Lifetime Spectrometer with Be-ta⁺ Gamma-Coincidences[M]. In: Hasiguti R R, Fujiwara K ed. Positron Annihilation. Sendai, Japan Institute of Metals, 1979, 829—831.
 [3] MacKenzie I K, McKee B T A. A Two-parameter Measurement of the Correlation of Positron Age with the Momentum

- of the Annihilating Positron-electron Pair[J]. *Appl Phys*, 1976, **10**: 245.
- [4] Stoll H, Wesolowski P, Koch M, *et al.* $\beta^+ \gamma E$ Age-momentum-correlation Measurements with an MeV Positron Beam [J]. *Materials Science Forum*, 1992, **105—110**: 1 989.
- [5] Kostamovara K, Karras M, Myllyla R. Positron Annihilation [M], In: Coleman P G, Sharma S C, Diana L M ed. North-Holland; Amsterdam, 1982, 868.
- [6] Wesolowski P, Maier K, Major J, *et al.* A Continuous Time-tagged Positron Beam and Its Application to Materials Research[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1992, **B68**: 468.
- [7] Stoll H, Koch M, Maier K, *et al.* Positron Age-momentum Correlation Studies of Defects and Positronium by an MeV Positron Beam[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1991, **B56/57**: 582.
- [8] Hyodo T, Suzuki N, Saito H, *et al.* Age-momentum Correlation Study of Positronium, Fine Particle Surface and Monovacancy Formation Energy[J]. *Radi Phys and Chem*, 2000, **58**: 767.
- [9] Suzuki R, Ohdaira T, Mikado T, *et al.* Development of High-rate Correlation System with a Variable-energy Pulsed Positron Beam[J]. *Mater Sci For*, 2001, **363—365**: 661.
- [10] Kishimoto Y, Tanigawa S. Positron Annihilation[M], In: Coleman P G, Sharma S C, Diana L M ed. North-Holland; Amsterdam, 1982, 168, 404, 790, 815.
- [11] Seeger A. Slowing-down of Positronium; Analysis of the Age-momentum Correlation[J]. *Radi Phys and Chem*, 2000, **58**: 411.
- [12] Siegle A. Positronenstrahlung in Kondensierter Materie—eine Untersuchung mit der Methode der Lebensalter-Impuls-Korrelation[D]. (Dr rer nat). Thesis, Universität Stuttgart (Cuvillier, Göttingen), ISBN3-89712-129-8, 1998.
- [13] Seeger A. Evidence for the Existence of Two Kinds of o-Ps in Condensed Rare Gases and for Irreversible Transitions between Them[J]. *Radi Phys and Chem*, 2000, **58**: 503.
- [14] Seeger A. Positronium Formation in Condensed Matter[J]. *Mater Sci For*, 2001, **363—365**: 257.
- [15] Stoll H. MeV Positron Beams, In: Positron Beam and Their Applications[M]. In: Coleman P ed. Singapore, New Jersey, London, Hong Kong: World Scientific, 2000, 251.
- [16] Stoll H, Koch M, Lauff U, *et al.* Positron Diffusion in Solids and Liquid Metals[J]. *Appl Surf Sci*, 1995, **85**: 8.
- [17] Seeger A. An Analytical Theory of the Slowing Down and the Thermalization of Positrons in Condensed Matter[J]. *J Phys, Condens Matter*, 1998, **10**: 10 461.
- [18] Castellaz P, Major J, Mujica C, *et al.* Chemical Reactions of Positronium Studied by Age-momentum Correlation (AMOC) Using a Relativistic Positron Beam[J]. *J Radi Nucl Chem Arti*, 1996, **210**: 457.
- [19] Mogensen O E. Positron Annihilation in Chemistry[M]. Heidelberg: Springer, 1995.
- [20] Suzuki N, Nagai Y, Itoh Y, *et al.* Vacancy Formation Energy of Metals Determined by Using Positron Age-momentum Correlation Technique[J]. *Mater Sci For*, 2001, **363—365**: 185.

A Technique of Positron Age-momentum Correlation*

YE Bang-jiao, WENG Hui-ming, ZHOU Xian-yi, HAN Rong-dian

(*Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230027, China*)

Abstract: A new detection technique—age-momentum correlation in international positron field is reviewed. The recent development is described and the analysis methods are discussed for the technique. The application of the technique in the positronium formation and thermalization processes are systematically summarized. Besides the application of the technique in Ps chemistry is discussed.

Key words: positron spectroscopy; age-momentum correlation; positronium

* **Foundation item:** Foundation of Chinese Academy of Sciences for Back Abroad; Foundation of President of Chinese Academy of Sciences; Foundation of Chinese Academy of Sciences Knowledge Innovation Project(KJCX2-SW-No7)