

碳同素异形体的康普顿轮廓研究

张良平 叶邦角 陈祥磊 孔 伟 程明福 翁惠民 杨保忠

(中国科学技术大学近代物理系 合肥 230026)

摘要 本文介绍了用康普顿散射方法研究碳同素异形体的电子动量密度分布。实验中得到了碳不同结构材料的康普顿轮廓,发现由于晶体结构、成键方式的不同,它们的核外电子动量有着较显著的区别,纳米材料的表面效应表现明显。

关键词 康普顿轮廓,电子动量密度,表面效应

中图分类号 O571.1

任何物质都是由各种元素的原子组合而成。相同的原子组成不同的空间构象,会产生不同的物质属性。金刚石、石墨、碳纳米管等化学成份都是碳,但由于它们的原子组合构象不同,金刚石坚硬无比、石墨质地柔软、而碳纳米管更表现出更多的奇特性能^[1]。物质的很多特性主要取决于原子壳层外价电子的性质,而康普顿散射实验正好提供了一种从微观上研究物质电子特性的重要方法^[2,3]。康普顿散射实验是基于放射源发出的光子与介质中电子的散射,被散射后的光子带有介质中电子的动量信息;又因为康普顿轮廓对于电子动量分布变化敏感,是一种无损的检测方法,可以用来研究原子处于不同状态时介质电子动量分布的变化。

本实验研究了碳的同素异形体康普顿散射谱的变化,即不同的碳的结构与康普顿轮廓的关系,并得到了比较一致的结论。

1 实验

1.1 实验原理

康普顿效应指的是光子被静止电子散射后产生

$$B(\vec{r}) = \left(\frac{1}{2\pi}\right)^{3/2} \int \int \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-i \vec{p} \cdot \vec{r}) \eta(\vec{p}) d p_x d p_y d p_z = \left(\frac{1}{2\pi}\right)^{3/2} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-i \vec{p} \cdot \vec{r}) J(q) dq \quad (2)$$

从式(2)可以得到电子空间密度分布的信息。这样,就可以将实测的康普顿散射谱通过适当的数学计算得到康普顿轮廓。在本实验中,入射光子能量为 59.537 keV,散射角为 165°,电子束缚能相对较小,满足近似条件。

能移的现象。但在实际物质中,电子总是在运动的,多普勒效应导致散射光子的能量变化,这一变化又因物质中电子动量的不同而不同,其结果是在一个固定方向上出射光子能量不再是单能的,而是有一定的展宽,展宽的能谱中包含了电子动量的信息^[4]。

当光子传递给电子的能量远大于原子中电子的束缚能时,可以假设电子在碰撞前后的束缚能不变,即冲量近似。在冲量近似条件下,根据含时微扰论一级近似,给出微分散射截面如式(1):

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} = C_x J(P_z) \quad (1)$$

其中, Ω 是散射立体角, ω 是散射光子的能量, C_x 为截面修正因子, $J(P_z) = \iint n(p) d p_x d p_y$ 为康普顿轮廓—表示了电子动量密度分布在散射矢方向上的投影^[5,6], $n(p)$ 为电子动量分布密度。若对康普顿轮廓作傅利叶变换,可以得到自关联空间波函数^[7]如式(2):

1.2 实验装置

探测器的结构如图 1 所示:放射源使用两个 7.4 GBq 的 ²⁴¹Am 源,其发射出的 59.537 keV 的 γ 光子经过长 60 mm、直径 8 mm 的准直孔入射到待

测样品上，散射后的 γ 光子在 165° 角再经过长 110 mm、直径 10 mm 的准直孔后，被高纯锗探测器 (HPGe) 接收。探测器的灵敏尺寸为 $\phi 8 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$ ，由准直孔引起的散射角范围为 $165^\circ \pm 2^\circ$ ，对于 59.537 keV 光子散射后能量展宽为 73 eV。探测器的输出信号经过前置放大器和主放大器放大后，被多道脉冲幅度分析器记录，再用计算机进行数据分析。高纯锗探测器在 59.537 keV 附近的能量分辨为 440 eV。测量过程中标定、数据获取过程由微机控制自动完成。

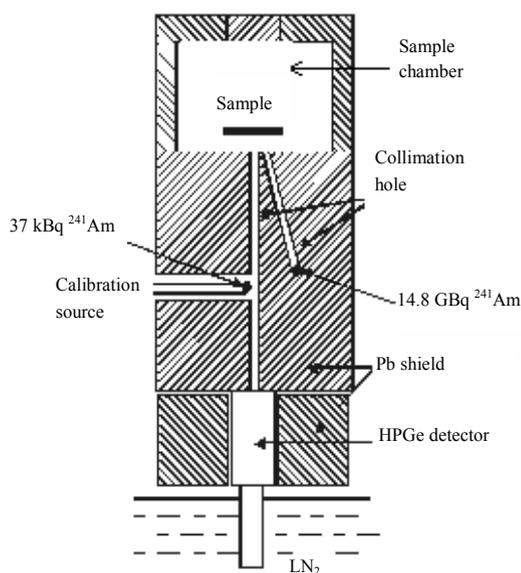


图 1 探测器结构示意图

Fig.1 Schematic diagram of the detector

1.3 实验样品

(1) 金刚石：样品由中国科技大学低温等离子体实验室提供。厚度为 0.5 mm，纯度大于 99% (用 Raman 散射光谱分析得到)。

(2) 石墨：样品由北京丰特斯公司提供。厚度为 0.5 mm，尺寸为 10 mm \times 10 mm，纯度为 99.80%。

(3) 碳纳米管：样品由中国科学院成都有机化学公司提供。由 Raman 散射法，根据公式 $d = 2\pi(\frac{B}{\Delta\omega})^{1/2}$ 得到样品的晶粒尺寸为 30—50nm。

实验中，将粉末状样品在 100 MPa 的压强下压成圆片，直径为 15 mm，厚度为 2.1 mm，纯度大于为 95%。

1.4 数据处理

实验测得的能谱，要进行一系列的修正后才能得到康普顿轮廓，从而得到电子动量分布。实验数据由谱仪每隔 1800 s 作一次记录，并用 37 kBq 的

^{241}Am 作标定，标定谱 59.537 keV 峰的峰值计数在 3×10^4 以上，峰位在 1024 道多道分析器的 989 道附近。当标定峰的半高宽大于 7.3 道 (对应 440 eV) 或者平移超过 0.5 道时，将此数据抛弃不用 (去除测量系统漂移的数据)。余下的谱用标定谱的 26.345 keV 和 59.537 keV 的峰位作标准修正，修正后再对齐叠加，结果取整。数据获取过程由计算机自动控制完成。为了保证实验精度，康普顿散射峰的积分计数大于 3×10^6 个。对齐叠加后的数据用芬兰 T. Paakkari 教授提供的移植程序 COMPTON 进行分析。将实验测得的散射 γ 射线能谱 $M(\omega)$ 按下式进行修正：

$$C(\omega) = [M(\omega) - B(\omega)]G(\omega)A(\omega)X(\omega) \quad (3)$$

式中： $C(\omega)$ 为修正后的 γ 能谱； $B(\omega)$ 为本底谱， $G(\omega)$ 为探测器的探测效率修正因子； $A(\omega)$ 为样品吸收修正因子； $X(\omega)$ 为截面修正因子。为消除仪器固有分辨函数的影响，还需对修正后的 γ 能谱 $C(\omega)$ 作退卷积处理，然后把能量标度转换成动量标度，经过多次散射修正，归一化后得到康普顿轮廓 $J(p_z)$ 。

2 结果及讨论

2.1 实验结果

图 2 是实验测量到的石墨样品 Compton 散射能谱，散射峰为 807 道 (对应能量为 48.869 keV)，989 道处为计数很少的相干散射峰；图 3 是经过数据处理后得到的金刚石、石墨、碳纳米管的康普顿轮廓。

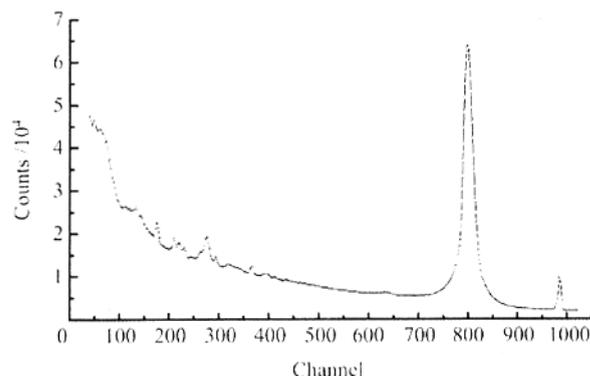


图 2 石墨样品康普顿散射的 γ 能谱

Fig.2 The γ - spectrum of Compton scattering in graphite

从实验结果可以得出，金刚石、石墨和碳纳米管的康普顿轮廓值在低动量端有较明显的区别。在低动量端，我们得到碳纳米管康普顿轮廓值最大，石墨次之，金刚石最小，这可以用杂化轨道理论和纳米材料的表面效应^[8]来解释。我们知道，石墨的价电子是 sp^2 杂化，金刚石的价电子是 sp^3 杂化，因

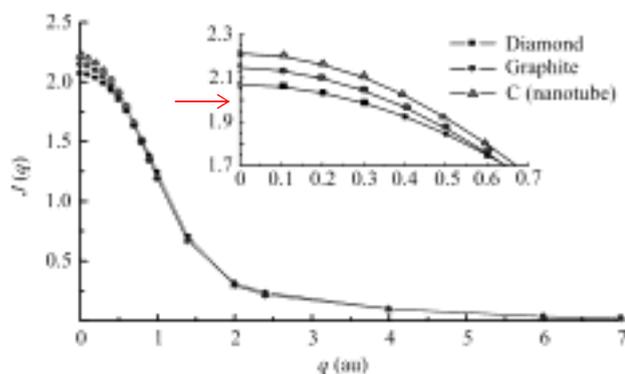


图3 金刚石、石墨、碳纳米管的康普顿轮廓(右上角的小图是左边虚框的放大图)

Fig.3 Compton profile of diamond, graphite and carbon nanotube

(The small graph at the top right corner is magnification of left dot square)

而金刚石的价电子能量应高于石墨的价电子能量,金刚石的价电子动量应低于石墨的价电子动量,而电子动量谱在低动量端主要是价电子的贡献,因此金刚石低动量端的电子密度应高于石墨低动量端的电子密度。但是,石墨和金刚石一样,都是碳原子,核外有四个价电子。在石墨晶体中除三个价电子形成共价键外,还有一个电子是以 π 电子的形式在石墨晶体中存在,我们知道 π 电子所处的能带,其能量要高于 sp 杂化轨道的能量, π 电子在低动量端的概率要高于 sp 杂化轨道上电子在低动量端的概率,因此石墨在低动量端的电子密度应高于金刚石在低动量端的电子密度。碳纳米管是由石墨烯层片卷成的,直径为纳米尺度的圆筒。石墨烯层在卷成纳米管时掺入了少量的 sp^3 中的碳原子,这样碳纳米管在低动量端的电子密度应在石墨和金刚石之间,并

接近石墨。事实上测量到的碳纳米管在低动量端的电子密度比石墨还要高,这是因为构成纳米碳管的碳原子基本上都处在表面位置,故比表面积比石墨大^[9],这些原子与晶体内部的原子不同,有许多不饱和的悬键,这些悬键的电子结合松散,能量偏高,动量偏低,所以在低动量区,电子的密度比石墨的高。

参考文献

- 1 刘治,陈晓红,宋怀河. 化工新型材料, 2002, **30**(4): 1—4
LIU Zhi, CHENG Xiaohong, SONG Huaihe. Neotype Mater Chem Ind, 2002, **30**(4): 1—4
- 2 Mo H D, Guo Y, Gong Z F, *et al.* Chin Phys Lett, 1996, **13**(1): 5—8
- 3 Guo Y, Gong Z F, Mo H D, *et al.* Phys Lett A, 1994, **193**: 298—304
- 4 Rao D V, Takeda T. J Phys Chem Refer Data, 2002, **31**(3): 769—818
- 5 Varghese T, Balakrishna K M, Siddappa K. Indian J or Phys and Proc of the Indian Assoc for the Cultiv of Sci: Part B, 2003, **77B**(6): 631—634
- 6 Cooper M J, Radiat Phys Chem, 1997, **50**(1): 63—76
- 7 Pattison P, Williams B G. Solid State Com, 1976, **20**: 585
- 8 张立德, 牟季美. 纳米材料和纳米结构. 科学出版社, 2001. 59—63
ZHANG Lide, MOU Jimei. Nanometer material and nanometer structure. Science Press, 2001. 59—63
- 9 Peigney A, Laurent Ch, Flahaut E, *et al.* Carbon, 2000, **39**: 507

Compton profile study of carbon allotropes

ZHANG Liangping YE Bangjiao CHEN Xianglei KONG Wei CHENG Mingfu WENG Huimin
YANG Baozhong

(Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

Abstract The distribution of electron momentum (DEM) in carbon allotropes was measured by Compton scattering method. Different Compton profiles in carbon allotropes were obtained. The difference of momentum distributions of the valence electrons is attributed to different crystal structures and bonding modes, and the surface effect of nanocrystalline material is distinct.

Key words Compton profile, Electron momentum, Surface effect

CLC O571.1