

# 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<sup>1)</sup>

(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  $\gamma$ 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  $\gamma$ 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.<sup>[1]</sup>, Mills<sup>[2]</sup>和Lynn<sup>[3]</sup>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<sup>[4]</sup>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 $\gamma$ 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 $3\gamma$ 湮没强度 $I_{3\gamma}$ 和 $2\gamma$ 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 $3\gamma$ 能谱从0—511keV连续分布,与p-Ps和正电子自由湮没511keV峰的 $2\gamma$ 谱不同.发生 $3\gamma$ 和 $2\gamma$ 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 $\gamma$ 射线的数目.由于认为正电子与电子主要发生 $3\gamma$ 和 $2\gamma$ 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,得的多普勒展宽能谱(如图1所示)是由几种 $\gamma$ 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  $\gamma$ 光峰,另外包含湮没产生的 $\gamma$ 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 $3\gamma$ 湮没发射的能量从0—511keV连续分布的 $\gamma$ 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.

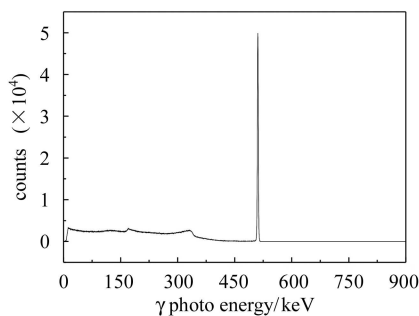


图1 多普勒展宽能谱示意图

由实验探测得到的 $3\gamma$ 湮没计数,是与发生 $3\gamma$ 湮没强度成正比关系的,同样对于 $2\gamma$ 湮没强度来说,也

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

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  $I_{3\gamma}$ :  $3\gamma$  湮没强度,  $I_{2\gamma}$ :  $2\gamma$  湮没强度,  $C_{3\gamma}$ : 能谱中 400—500keV 的  $3\gamma$  计数,  $C_{2\gamma}$ : 511keV 光峰计数. 从公式(1)中, 只要知道了系数  $\eta$ , 则可以得到发生  $3\gamma$  湮没,  $2\gamma$  湮没的有效事例数, 即强度. 而系数  $\eta$  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  $\eta$ .

在确定系数  $\eta$  之后, 用气凝硅胶样品对系数进行检测. 已知  $\alpha$ -Ps 在被约束在气凝硅胶中的条件下,  $I_{3\gamma} = 26.6\%$ <sup>[5]</sup>, 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 实验内容

在1987年, 张天保、唐孝威研究员测得净  $3\gamma$  能谱分布<sup>[6]</sup>, 如图2所示, 横坐标表示  $3\gamma$  湮没的  $\gamma$  光子能量, 纵坐标表示每个单能  $\gamma$  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, 否定了其它理论.

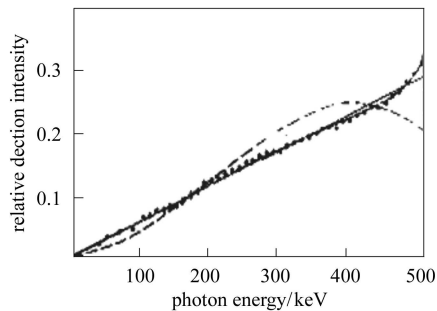


图2 正态电子偶素  $3\gamma$  湮没  $\gamma$  能量分布的理论和实验结果  
其中虚线为 Ore-Powell 相空间预言结果, 线性直线为 Adkins 相空间预计结果, 实线为量子电动力学理论计算结果, 实心点为其实验结果.

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

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

定义  $C_{3\gamma}$ , 它表示发生  $3\gamma$  湮没放出的所有  $\gamma$  光子

的数目, 为图2中整个曲线与  $x$  轴所围的面积.

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

$E$ :  $\gamma$  光子能量,  $P$ : 每个单能  $\gamma$  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  $2\gamma$  湮没的  $\gamma$  光子都被探测到,  $3\gamma$  只有在 400—500keV 范围内才能被分别探测到,  $\varepsilon$  为 1**

在这种情况下,  $3\gamma$  在 400—500keV 范围内的计数为

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

$A_1$ : 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  $I_{2\gamma} = 25.1$ . 同样根据式子(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  $3\gamma$  衰变的  $\gamma$  能量分布) 的数据进行分析时引入的.

**2.3 在实际情况中, 高纯 Ge 探测器对  $3\gamma$  湮没的不同能量的  $\gamma$  光峰相对效率  $\varepsilon$  不一致, 对 511keV 的  $\gamma$  光子,  $\varepsilon$  仍设为 1**

用已知  $\gamma$  发射强度的  $^{152}\text{Eu}$ <sup>[7]</sup> 和  $^{133}\text{Ba}$ <sup>[8]</sup> 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  $\gamma$  光峰, 在实验中, 选取的  $\gamma$  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  $d = 1.5\text{cm}$ .

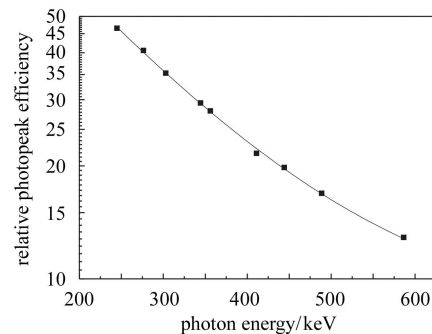


图3 高纯 Ge 探头的相对光峰效率曲线  
实线为指数衰减拟合结果.

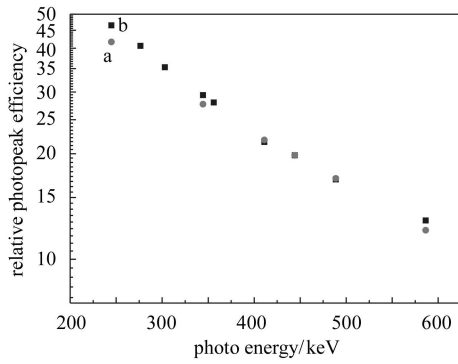


图 4 两种不同探测几何条件下测得的相对光峰效率曲线

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

$$y = 7.666 + 167.65e^{-0.005944x}, \quad (4)$$

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  $\gamma$  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  $\gamma$  光子对应着一定的道数. 图 5 为利用  $^{152}\text{Eu}^{[7]}$  和  $^{133}\text{Ba}^{[8]}$  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  $\gamma$  光峰的总计数高于  $10^4$ , 寻找已知能量的  $\gamma$  光峰在谱图中相对应的道数, 得到图 5 所示的结果.

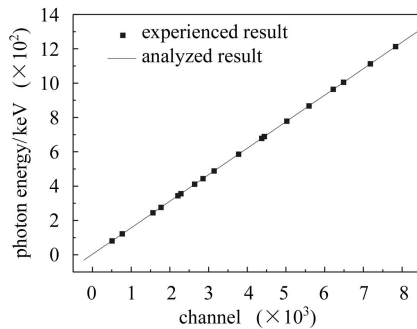


图 5  $\gamma$  光峰能量与道数的关系图

从图中可以看出,  $\gamma$  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  $\gamma$  能峰强度  $P_1 = P \times N$ .

在这种情况下, 设定  $3\gamma$  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

$$\frac{C_{3\gamma}^2}{C_{3\gamma}^1} = \frac{\sum_{E=400\text{keV}}^{E=500\text{keV}} \nabla E \times P_1}{\sum_{E=400\text{keV}}^{E=500\text{keV}} E \times 1} = 1.20296, \quad (5)$$

此时对应的系数为  $\eta''$ , 由  $\eta''$  与  $\eta$  的关系式得出

$$\eta'' = \frac{\eta'}{\frac{C_{3\gamma}^2}{C_{3\gamma}^1}} = \frac{1.984}{1.20296} = 1.649, \quad (6)$$

这是在理想情况下得出的  $\eta$  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 $\eta$ 的修正

以上只是分析了单能的孤峰, 在实际情况下, 测得的  $2\gamma$  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  $\eta''$  进行修正, 得到在实际情况下适用的  $\eta$ .

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  $3\gamma$  湮没  $\gamma$  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  $2\gamma$  湮没产生的 511keV 光峰, 用  $^{60}\text{Co}$  的  $\gamma$  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  $2\gamma$  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  $\gamma$  光子能谱所对应的峰位, 得到的即为具有某个能量的  $\gamma$  光子的能谱; 将 511keV  $\gamma$  光子的相对效率定位 1, 各个能量的  $\gamma$  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  $3\gamma$  湮没能谱 (400—511keV), 图 6 为保留 511keV 光峰低能部分得到的模拟  $3\gamma$  湮没能谱,

扣除511keV光峰低能部分得到的模拟 $3\gamma$ 湮没能谱与此类似。

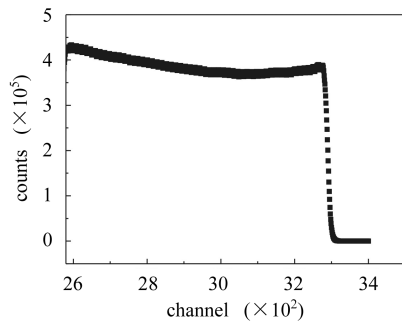


图6 模拟的 $3\gamma$ 湮没 $\gamma$ 光子能谱(400—511keV)  
(保留511keV光峰的低能部分)

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

$$c = \frac{\text{未扣除低能部分得到的 } 3\gamma \text{ 能谱计数}}{\text{扣除低能部分得到的 } 3\gamma \text{ 能谱计数}} \quad (7)$$

用 $c$ 修正系数 $\eta$ ,  $\eta = \eta''/c = 1.60 \pm 0.5$ , 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%)<sup>[5]</sup>。

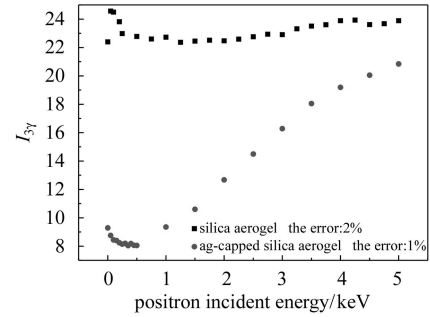


图7 气凝硅胶的 $\alpha$ -Ps湮没强度( $I_{3\gamma}$ )随正电子入射能量的变化关系

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。

## 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 Debertain 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 Long<sup>1)</sup>

(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