

精密验证量子电动力学的一个重要问题是在必须计及强子的电磁相互作用之前所能达到的准确度。电子反常、电子偶素和 μ 介子素系统还远未受到强子的电磁相互作用的影响,这使它们成为精密验证量子电动力学的更有发展前途的体系。而对于兰姆移位、氢原子的超精细结构和 μ 介子反常来说,理论与实验间的比较要求知道强子的电磁相互作用的贡献。特别是像在 μ 介子反常的情形中,强相互作用的贡献可以与高能散射实验的结果联系起来,所以现在高能散射实验与精密的原子物理学低能量实验间的关系正在发展中。

参 考 文 献

- [1] H. W. Kugel & D. E. Murnick, *Rep. Prog. Phys.*, **40**(1977), 297.
- [2] B. E. Lautrup, A. Peterman, & E. de Rafael, *Phys. Lett.*, **3C**(1972), 193.
- [3] P. O. Egan, V. W. Hughes, & M. H. Yam, *Phys. Rev. A*, **15**(1977), 251.
- [4] K. E. Casperson et al., *Phys. Rev. Lett.*, **38**(1977), 956.
- [5] P. Cvitanovic & T. Kinoshita, *Phys. Rev. D*, **10**(1974), 4007.
- [6] J. Calmet, S. Narison, M. Perrottet, & E. de Rafael, *Rev. Mod. Phys.*, **49**(1977), 21.

正电子湮灭在固体物理学中的应用

倪 蕙 苓

(中国科学院高能物理研究所)

一、引 言

随着核物理实验方法和技术的发展和完善,其中许多方法已被用来研究固体的物质结构,例如,穆斯堡尔效应、扰动角关联、离子注入、沟道效应等等。正电子湮灭方法也是这类重要的核物理实验方法之一。

当正电子进入固体物质时,和物质中的电子相遇而发生湮灭,正负电子对的湮灭结果放出几个 γ 射线。湮灭过程的特性受正电子所遇到的原子环境的影响,因此正电子湮灭实验可以用来探测物质的微观结构,这种方法就称为正电子湮灭方法。1950年 Sergio De Benedetti 等人开始将这种新方法用来研究物质结构。二十多年来这一方法在金属、合金、晶体缺陷、无机晶体、化学、医学等方面得到了不同程度的发展和应用,特别是在研究晶体缺陷方面近年来发展较快。

正电子是电子的反粒子,二者除带有相反电荷外,其他性质(自旋、质量)都相同。当正电子遇到电子时,正负电子对发生湮灭,它们的质量转换成 γ 射线的能量,湮灭过程服从爱因斯坦方程

$$E = mc^2,$$

其中 E 是释放的能量, m 是粒子质量, c 是光速。由于湮灭过程中动量守恒,因此最常见的是发射两个方向相反、能量各为511keV的 γ 射线,这一湮灭过程是现代物理学几个基本守恒定律(能量、电荷、自旋、动量守恒)的直接证明。

从辐射源(如 Na^{22} , Co^{57} , Ni^{57} , Co^{58} , Cu^{64} 等)发出的正电子进入到固体物质后,就在其中热化,其动能逐渐减小到热能($\cong kT$, k :玻耳兹曼常数, T :物质的绝对温度,当 $T = 300\text{K}$ 时, $kT \cong 0.0258\text{eV}$),热化所需时间极短($\cong 10^{-13}\text{sec}$),随后正电子以 kT 量级的动能物质中运动,直到最后与电子发生湮灭。能够与正电子发生湮灭的电子,通常是离原子核较远的电子:在金属中是导电电子;在化合物中是价电子;在离子化合物中是负离子附近的电子。正负电子对发生湮灭时也可以发出两个以上的 γ 射线。但是发出三个 γ 射线的几率是发出两个 γ 射线的几率的 $1/372$ 。

正电子湮灭方法可以给出固体物质中电子的动量分布和密度分布,这两种分布在很大程度上决定了固体材料的许多特性。

正电子湮灭的实验方法主要有三种:

- (1) 两个 γ 射线过程的 γ - γ 角关联;
- (2) 正电子湮灭寿命谱;
- (3) 湮灭 γ 射线的能谱。

二、实验方法

1. γ - γ 角关联

正负电子对在湮灭前后的动量和能量是守恒的。在发出两个 γ 射线时,每一个 γ 射线的能量是511keV,两个 γ 射线之间的夹角接近于 180° 。正电子湮灭前的动能是 kT 量级,即 0.0258eV ,而与正电子发生湮

灭的电子的动能是eV量级,所以正电子的动能和动量与电子相比一般可以忽略。在实验室系统中,湮灭前正负电子对的动量应该等于湮灭后发出的两个 γ 射线的动量,因此两个 γ 射线的夹角与 180° 有一个小角度偏离,这个偏离就反映了物质中的电子的动量分布。

图1给出实验原理简图。A, B窄缝构成 θ 角,通

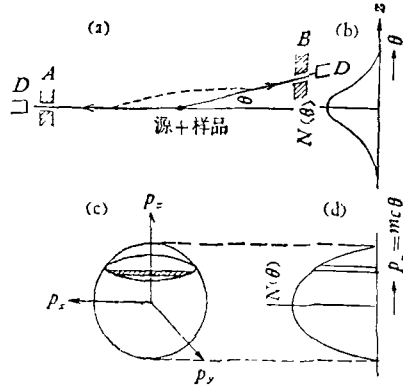


图1 γ - γ 角关联原理简图

过A, B缝的两个 γ 射线由闪烁计数器探测,两个探测器的符合脉冲数 $N(\theta)$ 由符合线路记录, θ 角是很小的,通过A, B缝的两个 γ 射线的总动量的 z 分量由下式给出,

$$p_z = mc\theta.$$

改变 θ ,就可以得到图1(b)中的 $N(\theta)$ 分布曲线。

正电子湮灭时发出的 γ 射线大约有95%落在 $\theta = 1^\circ$ 之内,所以测量 $N(\theta)$ 要求仪器有较高的精度。为了改善角关联曲线的精度,采用了多探测器系统来做二维动量分布的测量。多探测器可以由许多NaI(11)晶体组成,也可以用Ge(Li)半导体探测器,也有用火花室做探测器的,但是火花室的效率较低,所以需要很强的源。这些探测器的制备是比较复杂的。

2. 正电子寿命谱

正电子湮灭的几率正比于发生湮灭位置处的电子密度,湮灭几率决定了在实验上测量到的正电子寿命。

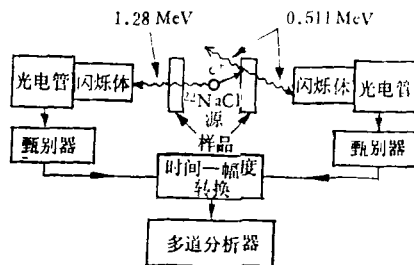


图2 实验装置简图

图2给出测量正电子湮灭寿命的简图。用 Na^{22} 放射性同位素作为正电子源, Na^{22} 衰变到 Ne^{22} 产生一个正电子(能量为540keV)同时也产生一个1.28MeV的 γ 射线。探测1.28MeV的 γ 射线作为正电子产生的信

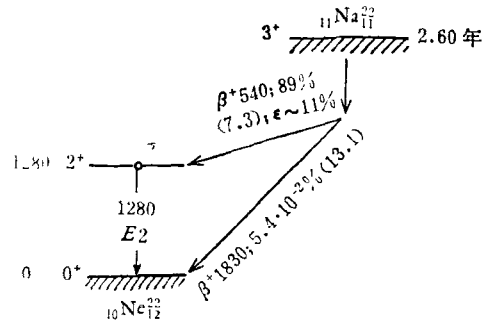


图3 Na^{22} 的衰变图

号。1.28MeV和湮灭后产生的0.511MeV γ 射线的时间间隔用电子学仪器来测量,这就得到了正电子湮灭的寿命谱如图4。 Co^{60} 级联 γ 射线的瞬时符合峰的半宽度即为仪器的分辨时间,从Au的寿命谱的斜率可以

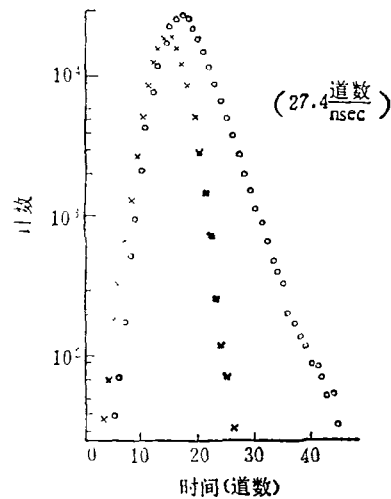


图4 正电子在Au中的寿命谱
×—— Co^{60} ; ○——Au(20°C)

算出正电子在Au中的湮灭寿命。正电子湮灭的典型寿命是几百个ps($1\text{ps} = 10^{-12}$ 秒)。在不同物质中正电子湮灭的平均寿命是不同的,平均寿命的差可以是几十个ps,有时只有几个ps量级,因此正电子湮灭寿命谱测量系统的分辨时间需要较高的精度,目前国外的仪器已达到200ps左右。

3. 湮灭 γ 射线的能谱——湮灭辐射的多普勒展宽

湮灭时发出两个 γ 射线的能量大约是0.511MeV,

然而由于正负电子对系统的运动(质心运动),所以在实验室坐标系统中湮灭的 γ 射线呈现出多普勒展宽。这个展宽可以用高分辨率的 Ge(Li) 半导体探测器来测量。

设正负电子对系统的运动具有动量 p ,湮灭后产生的 γ 射线一个和 p 方向相同,能量为 $h\nu$,另一个和 p 方向相反,能量为 $h\nu'$ 。湮灭前后的动量、能量守恒,所以下式成立:

$$2mc^2 = h\nu + h\nu',$$

$$p = h\nu/c - h\nu'/c,$$

m 是电子的静止质量。因为湮灭时正电子的动量和能量与电子相比可以忽略,所以动量 p 即是电子的动量,而电子的动能 E_c (eV量级)等于

$$E_c = p^2/2m.$$

例如当 $E_c = 8.8\text{eV}$ 时,可以算出

$$h\nu = (511 + 1.5)\text{keV},$$

$$h\nu' = (511 - 1.5)\text{keV},$$

这就是湮灭 γ 射线的多普勒展宽。

探测仪器本身的有限分辨率会使测量到的单能 γ 射线的脉冲高度有一个分布。而探测湮灭 γ 射线时会叠加一个展宽的量,它可以由观察湮灭 γ 射线的脉冲高度分布直接测量。图5给出 Sr^{85} 放出单能514keV

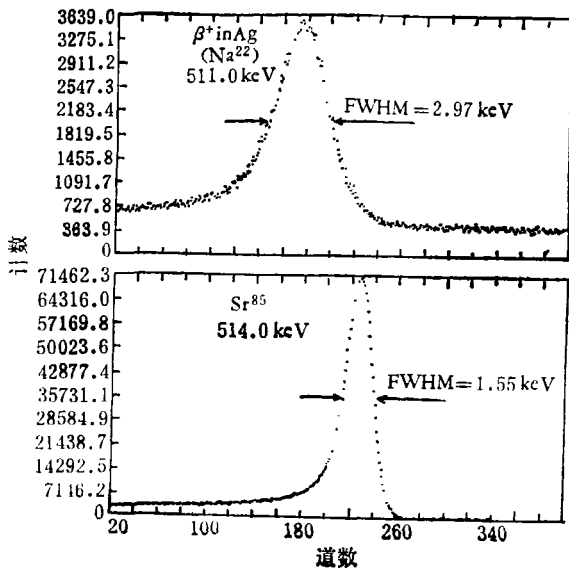


图5 正电子在 Ag 中湮灭射线的多普勒展宽

γ 射线的谱形和正电子在 Ag 中湮灭时的 511keV γ 射线的多普勒展宽。这个实验的精度受到探测器能量分辨率的限制。

三、正电子湮灭方法的应用

1. 研究晶体缺陷

正电子湮灭方法对点阵缺陷,特别是对空位型缺

物理

陷和位错非常灵敏。

用正电子湮灭方法研究晶体缺陷有三个优点:(i)由于缺陷对正电子的俘获作用较强,所以灵敏度高。(ii)对局部地区缺陷的选择性,例如在金属、离子晶体和半导体中,正电子湮灭方法可以区分空位型和间隙型缺陷。(iii)正电子湮灭方法可以在很宽的温度范围内应用。

在金属中,当空位比浓度为 10^{-7} 数量级时,空位对正电子湮灭特性的影响就能够探测出来;当空位比浓度为 10^{-8} 数量级时,几乎所有进入金属中的正电子都能在空位处湮灭。因此它是测定金属空位形成能的最好方法之一。正电子湮灭方法也可以用来研究空位串和空位-杂质原子对。Thomas M. Hall 等人用正电子寿命方法来研究金属中的缺陷,在低温、高温和中间

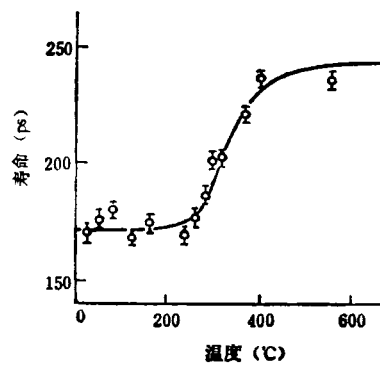


图6 正电子在 Al 中湮灭平均寿命与温度的关系。

O 为 Al; - 为俘获模型

温度下测量了正电子在金属、合金中湮灭的平均寿命。图6是正电子在 Al 中湮灭的数据。用 Brandt 提出的俘获模型(trapping Model)分析了纯 Al、纯 Au 和 Al + 1.7%Zn 三个样品。所得到的单空位形成能 E_{ν}^f 和合金的空位-杂质原子结合能 $E_{\nu p}^b$ 列于表1。从实验得到的 γ - γ 角关联曲线和湮灭 γ 射线的多普勒展宽对温度的依赖关系中也可以研究金属中的空位形成能和合金中的空位-杂质原子的结合能。

表1 几种金属、合金的 E_{ν}^f 、 $E_{\nu p}^b$

样品	寿命测量的温度范围	E_{ν}^f	$E_{\nu p}^b$
纯 Al	200--400°C	$0.69 \pm 0.03\text{eV}$	
纯 Au	360--760°C	$1.00 \pm 0.03\text{eV}$	
Al+1.7%Zn	200--400°C		$+0.04 \pm 0.07\text{eV}$

塑性形变可以产生几种点阵缺陷,如位错、空位和间隙。正电子在不同的点阵缺陷处有不同的俘获和湮灭速度。

P. Hautajarvi, A. Vehanen 等人把经过塑性形变的高纯铁(99.998%)和带杂质的 Armco 铁(99.85%)

样品进行等时退火后，测量了正电子寿命和湮灭 γ 射线的多普勒展宽来研究各种恢复过程。多普勒展宽用线形“S 参数”来描写，Ge(Li) 半导体探测器在 514keV 时的半宽度为 1.5keV，S 参数定义为湮灭峰中心两侧固定道数上的计数总和被湮灭 γ 射线的面积除。实验结果见图 7。Armco 铁的寿命在 20—400°C 保持不

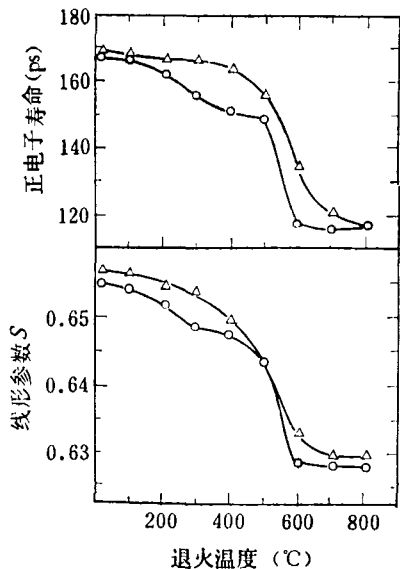


图 7 在两个形变样品上得到的正电子寿命和线形参数 S 的恢复与等时退火温度(1 小时)的关系。圆点大小表示统计标准偏差。△ 为 Fe99.85%；○ 为 Fe99.998%

变,然后下降。从 400—600°C 湮灭参数恢复,这一区域对应形变铁的再结晶过程,所以正电子的主要俘获陷阱是位错而不是空位。两类形变铁的开始寿命 167ps 是正电子在位错中的寿命,117ps 最后寿命值是自由正电子的。在 300°C 附近,在高纯铁样品中已经看到局部恢复,把它归为位错结构的重新排列。所以正电子湮灭方法可以跟踪位错结构的变化,也可以研究退火时杂质的作用。

B. Nielsen 和 K. Petersen 等人用正电子湮灭方法研究了 Al 样品在液氮下(77K)加压形变后的退火问题。形变范围由厚度减少 2% 到 28%。测量了正电子寿命和多普勒展宽,如图 8。由正电子湮灭特性指出,恢复发生在三个阶段。从液氮(-196°C)到(-90°C)温度范围内观察到了饱和效应,给出正电子寿命为 260 ± 5 ps。恢复的第一阶段是在(-80°C)观察到的,这是由于空位的迁移。第二阶段是在(-30)—210°C 温度范围内观察到的,强烈地依赖于形变的程度,这是由于再结晶。第三阶段大约是在 215°C 观察到的。所以用正电子湮灭方法可以研究材料塑性形变后在恢复过程中的机制。此外,正电子寿命测量还可以

用于材料疲劳实验的无损检验。

正电子湮灭方法已经用来研究材料的辐照损伤,例如空洞的生长,空洞对点缺陷、位错、晶粒间界、内表面等的交互作用的影响。空洞是运动的空位聚集而形成的。稳定空洞的直径可以是几个空位的尺度一直到几百个 Å。辐照所产生的空洞最早是在金属 Mo 中发

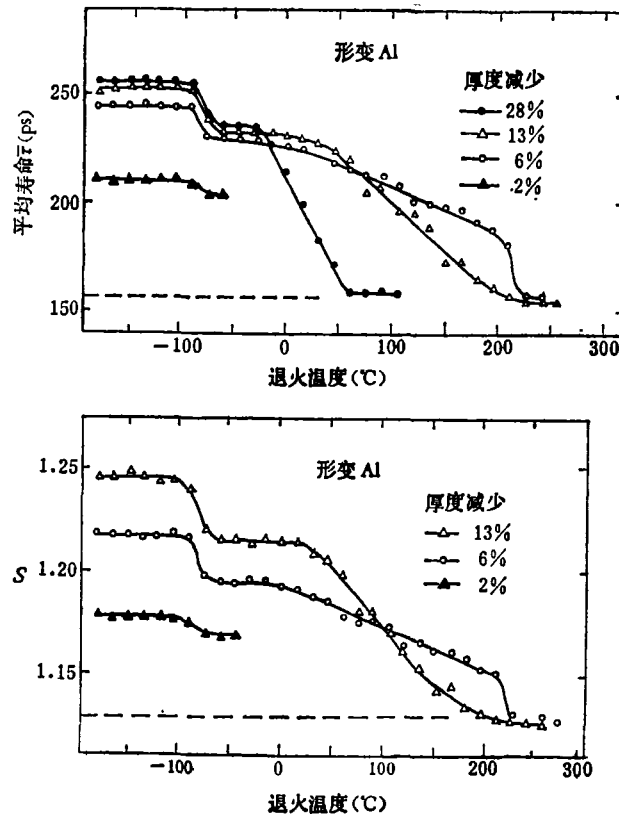


图 8 对形变 Al 样品测量到的正电子平均寿命 $\bar{\tau}$ 和线形参数 S 与退火温度的关系。Al 样品厚度减少分别为 28%, 13%, 6% 和 2%。退火时间为 1 小时

现的。在高通量堆内进行辐照之后的 Mo 样品,角关联曲线的宽度是 6.1 毫弧度,而未辐照 Mo 样品的宽度是 12.4 毫弧度。正电子湮灭寿命的测量结果是,含有空洞的 Mo 样品的寿命是 500ps 数量级,它是未辐照 Mo 样品寿命的四倍。所以正电子湮灭方法用来研究辐照损伤是很灵敏的。

V. W. Lindberg 等人测量了单晶 Al 在辐照到 neutron 积分通量为 4.96×10^{21} 个中子/cm² 之后的正电子寿命,结果如图 9。它有三个指数衰变成分。300°C 时的上下两点的的结果分别是在退火后 60min 和 40min 时取的。最长寿命是正电子在空洞中湮灭的结果,它的数值为 550ps,其强度的起始值为 57%,在 312°C 退火之后下降为零。中间成分是在杂质空位串中湮灭的,它的平均寿命由 250ps 变化到 400ps,然后稍微下

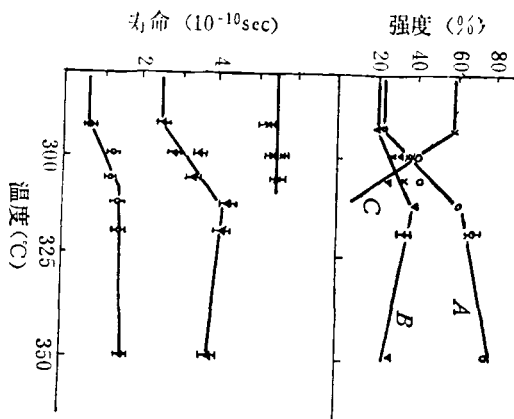


图9 单晶 Al 三个衰变成分的使用寿命和强度与退火温度的关系

降,在 350°C 退火之后此成分仍然存在。

2. 研究费米面和动量密度

正电子湮灭方法在固体物理学的应用中最重要、历史最长的是研究金属合金的费米面的几何形状。1955年 Long 等人对一系列金属做了系统的两 γ 射线角关联的测量。Stewart 等人指出在许多金属里动量密度很清楚地显示出费米面的切断。二十多年来角关联技术不断得到改进,如用单晶样品代替了多晶样品,用点缝装置代替了长缝装置,从而改善了角分辨率。

用正电子湮灭方法测量纯金属的费米面,在精度上不如低温德哈斯-范阿利芬效应和磁致电阻的方法。然而后两种方法对于无序合金只能用于原子浓度 < 1% 的情况,而正电子湮灭方法不受低温和浓度的限制。

用角关联曲线可以决定费米面的切断位置。一般所用的长缝几何条件,是用两个接受射线面积为长条状的计数管,因此将动量分布的一个分量(图 1 p_y 分量)积分,此时符合计数率正比于

$$N(p_x) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(\mathbf{p}) dp_y dp_z$$

两维计数几何条件采用了点缝条件,可以同时决定三个动量分量的两个,符合计数率正比于

$$N(p_y, p_z) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho(\mathbf{p}) dp_x$$

$\rho(\mathbf{p})$ 是动量密度。从图 1 可以看出在球形自由电子费米动量分布时,长缝条件下测量的符合计数率正比于和 p_x 垂直的动量平面,点缝条件

物理

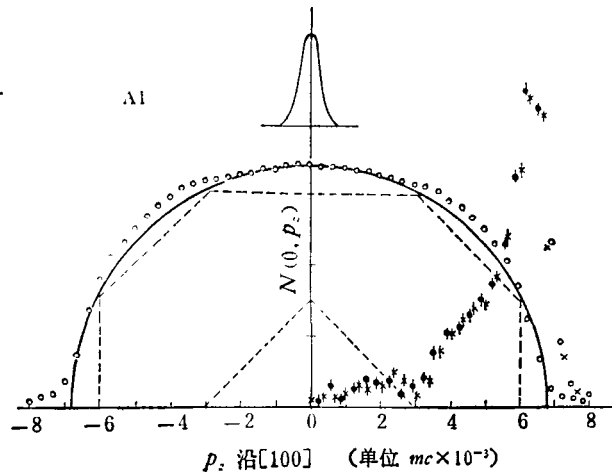


图 10 Al 样品 $N(p_y, p_z)_{p_y=0}$ 的实验值 (○) 和其导数 $dN(p_y, p_z)/dp_z|_{p_y=0}$ (*为 $p_z > 0$; ϕ 为 $p_z < 0$), 虚线给出布里渊区的投影。曲线上方给出 p_z 的有效分辨率

下符合计数率正比于弦,如图中阴影部分,在这种简单情况下长缝条件测到的角分布 $N(\theta) \sim \theta$ 是一个倒立的抛物线,相切的 θ_F 即为费米面的动量 $p_F = \theta_F mc$ 。金属中 $\theta_F \sim 4-6$ 毫弧度。一个毫弧度在原子单位中等于 $mc \times 10^{-3}$ 动量。

图 10 给出 Al 样品的二维角分布, p_y 和 p_z 沿着 [100] 方向,而 $p_y = 0$ 。核心电子湮灭对角关联 $N(p_y, p_z)$ 的贡献是一个高斯分布,分布的动量范围比导电电子要大。图中已减去了这一部分贡献,在 $p_z = 0$ 处核心电子对总强度的贡献仅约为 3%。把 $N(p_y, p_z)_{p_y=p_z=0}$ 经过归一化使其大小等于自由电子费米面的半径,在 2.5 毫弧度 < p_z < 6 毫弧度范围内观察到与圆有偏离,图 11 是自由电子费米面有增强和没有增强的两种理论曲线。增强曲线从圆的偏离与实验观察

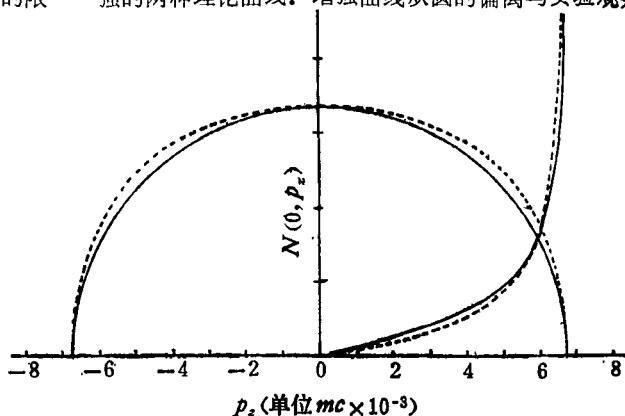


图 11 Al 的自由电子费米球半径(实线)和多体增强效应的理论 $N(p_y, p_z)_{p_y=0}$ 曲线(虚线)。同时也给出两者的导数 $dN(p_y, p_z)/dp_z|_{p_y=0}$

的偏离大小相同。图 10 和图 11 也包括 $P_y = 0$ 时实验和理论的 $dN(P_y, P_z)/dP_z$ 。可以看到在 $P_z = 3$ 毫弧度时实验曲线导数有一个明显的结构, 这反映了能带结构的效应。图 10 还给出布里渊区 (BZ) 的投影。

图 12 给出 Ge 沿两种取向得到的 $N(P_y, P_z)$, 可以观察到各向异性, 特别是在小角度范围内更明显。

用正电子湮灭方法对 Cu 做了广泛的研究。在许多 Cu 基合金中精确地测量了 Cu 的费米面的颈, 对过渡金属 Ni, Nb 和 V 也做了角关联测量, 测量到的各向异性与 Wakoh 等人用级加平面波法计算的值符合得

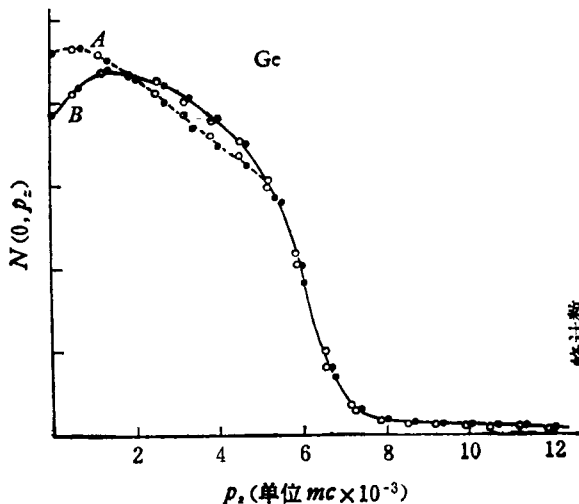


图 12 Ge 在两个取向的 $N(P_y, P_z)_{P_y=0}$ 分布曲线

○ 为 $P_z < 0$; ● 为 $P_z > 0$;
 $A \begin{cases} P_x \rightarrow [001] \\ P_z \rightarrow [110] \end{cases}; B \begin{cases} P_x \rightarrow [110] \\ P_z \rightarrow [110] \end{cases}$

很好。有序金属化合物动量密度的研究主要是对 V, Si 样品进行的, 用长缝和点缝装置都做了测量, 结果说明动量密度分布结构复杂, 至今没有详细的解释。

目前正电子湮灭方法是研究高浓度无序合金的动量分布和费米面几何形状的唯一较好的方法, 而且预期在今后将会有很大发展。

3. 离子晶体

正电子在离子晶体中通过各种方式发生湮灭, 而且湮灭特性对点阵缺陷特别灵敏。在离子晶体中人为地引进各种缺陷, 这些缺陷常常与各种光学特性有关。已经用正电子湮灭方法做了很多工作, 但是有许多现象还不能解释。

1. Hyodo 等人对 KCl, KBr, KI 和 NaCl 的角关联做了研究, 发现在室温和液氮温度下的角关联曲线有很大差别。对 KCl 角关联曲线与温度的关系做了仔细测量, 曲线峰值的高度随温度升高而增加, 趋于最大值, 如图 13 所示。这说明存在俘获现象, 但是现在还没有一个较好的模型能解释这些数据。

H. Surbeck 等人对用不同技术生长的 AgBr 晶体测量了正电子湮灭寿命, 并且分析了数据, 所用的模型考虑了价电子的极化和银的 d 壳层电子的贡献。AgBr 经过不同处理之后, 发现对正电子湮灭寿命有很大影响。

LiF 和掺杂 Mg 的 LiF:Mg 晶体在 γ 射线辐照前后, 测量了正电子寿命谱, 把谱分成三个寿命, 中间寿命 (τ_2) 强度的增加正比于两个材料的 F -心浓度, 直到 F -心浓度到某个值时, τ_2 强度达到饱和。

KCl 和掺杂 Ag 的 KCl:Ag 晶体在 77K 下用 X 射线辐照, 再在室温下退火。然后测量了正电子湮灭寿命谱。发现辐照引起中间寿命 (τ_2) 成分的减少, 这表明寿命谱的改变与 V_K -心的存在有关。

以上对正电子湮灭的实验方法以及它在固体物理学中几个重要的应用作了简单介绍。正电子湮灭方法

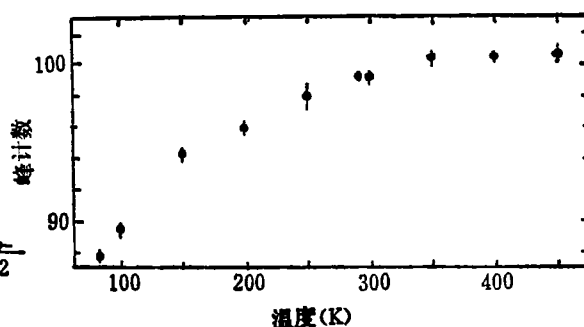


图 13 KCl 角关联曲线归一后峰的高度与温度的关系

还可以研究其他一些问题: 如冶金方面的有序-无序转变, 相的分解, 马氏体相变, 金属表面状态, 铁电体向顺电体的转变, 铁磁体向顺磁体的转变以及钢的氢脆等等。六十年代以来, 由于理论和实验技术的发展, 正电子湮灭方法在许多方面得到了应用。从目前的情况来看正电子湮灭方法在固体物理学中的应用将会有更大的发展。

感谢徐英庭, 计桂泉, 章佩群等同志对本文提出的宝贵意见。

参 考 文 献

- [1] Thomas M. Hall, A. N. Goland and C. L. Snead, *Phys. Rev. B*, 10-8 (1974), 3062.
- [2] S. Berko and J. Mader, *Appl. Phys.*, 5(1975), 287.
- [3] Fourth International Conference on Positron Annihilation Helsingør, Denmark, 23-26 August 1976, Volume two, E15 P81, E23 P123, E24 P131, F2 P11.
- [4] Positron Annihilation, ed by A. Stewart and L. O. Roellig, (Academic Press, New York, London 1967)
- [5] H. P. Hotz, J. M. Mathisen and J. P. Hurley, *Phys. Rev.*, 170(1968), 351.