

文章编号: 1007-4627(2005)03-0267-05

## 符合多普勒展宽谱的源修正研究\*

苏本法, 王 柱#, 黄长虹, 王少阶

(武汉大学物理科学与技术学院, 湖北 武汉 430072)

**摘 要:** 测量了 Ti, Ni, Cu, Al 以及 Si 的符合多普勒展宽谱。对于 Ni 的多普勒展宽谱, 采用最小二乘法拟合得出其中的源强度。给出了源修正前后湮没量子在 Si 中的多普勒展宽谱, 讨论了源成分的影响。用高斯-抛物线模型拟合多普勒展宽谱, 将多普勒展宽谱中自由电子的湮没贡献和束缚电子的湮没贡献分开, 进而探讨了只对束缚电子的湮没贡献做源修正的方法。

**关键词:** 正电子湮没; 符合多普勒展宽谱; 源修正; 最小二乘法

**中图分类号:** O57 **文献标识码:** A

### 1 引言

正电子湮没谱学作为一种研究固体中缺陷的常用手段, 其原理是: 正电子注入到固体中, 经过热化过程, 最后和电子湮没发射出一对 511 keV 的  $\gamma$  光子, 通过测量湮没辐射所带出的电子密度和电子动量密度研究固体缺陷。常用的研究手段包括正电子寿命谱测量、多普勒展宽谱测量以及正电子湮没辐射角关联测量。

由于正电子寿命反比于缺陷处的电子密度, 正电子寿命谱方法一般可以给出缺陷的大小、密度、种类和电荷态等信息<sup>[1]</sup>。而符合多普勒展宽测量则具有正电子寿命谱测量所不具备的优点, 它可以给出缺陷周围的化学环境, 可以起到鉴别元素的作用<sup>[2]</sup>。

传统的单探头多普勒展宽谱测量的本底很高, 峰本比约为  $10^2$ , 高动量电子的湮没信息被覆盖, 无法得到有用的信息。符合多普勒展宽谱仪是在此基础上采用两个探头进行符合测量, 其原理是正电子湮没辐射发射的两个  $\gamma$  光子满足以下关系:

$$E_1 = m_0c^2 + \frac{cP_L}{2} - \frac{E_b}{2}, \quad (1)$$

$$E_2 = m_0c^2 - \frac{cP_L}{2} - \frac{E_b}{2}, \quad (2)$$

其中,  $m_0$  表示电子的静止质量,  $E_b$  为  $e^+$  和周围原

子的结合能,  $P_L$  为正负电子对在探头方向的动量分量。因  $E_b$  较小, 可以忽略, 这时  $E_1$  和  $E_2$  满足:

$$E_1 + E_2 = 2m_0c^2, \quad (3)$$

$$E_1 - E_2 = cP_L, \quad (4)$$

经过符合, 测量本底大大降低, 可以将峰本比提高到  $10^{5[2]}$ , 分辨率也提高了  $\sqrt{2}$  倍<sup>[3]</sup>。通过符合多普勒展宽测量, 可以利用高动量电子的湮没信息研究缺陷周围的化学环境。

由于正电子实验所采用的放射源在制备过程中通常采用薄膜材料进行封装, 因此正电子在膜中的湮没成分需要加以考虑并扣除。在正电子寿命测量中, 源修正的工作已经做了很多并逐步趋于完善<sup>[4-6]</sup>。而在多普勒展宽测量中, 源修正的工作相对较少, 且一般采用解寿命谱的方法来确定源成分<sup>[7,8]</sup>, 但是如果采用 Ti 和 Ni 金属薄膜封装放射源, 在金属样品正电子寿命测量中, 金属本身的体寿命和薄膜成分的寿命相当接近, 要想准确地解出源成分的湮没份数相对较难。为此, 本文探讨了一种通过拟合符合多普勒展宽谱求解源湮没份数的方法。

### 2 实验

在本实验中, 我们对金属元素 Ti, Ni, Cu, Al

收稿日期: 2004-11-10; 修改日期: 2005-04-29

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10375043); 湖北省自然科学基金资助项目(2003ABA021)

作者简介: 苏本法(1979-), 男, (汉族), 山东菏泽人, 在读硕士研究生, 从事 GaSb 材料的研究;

E-mail: subenfa@positron.whu.edu.cn

# 联系人: 王 柱, E-mail: wangzhu@positron.whu.edu.cn

以及 Si 进行符合多普勒展宽谱测量。在符合多普勒展宽测量之前首先对金属样品进行了真空退火处理,以消除金属中残留的缺陷,样品纯度及退火情况如表 1 所示。

表 1 样品说明

样品	纯度/(%)	退火温度/(℃)
Al	99.99	530
Ti	99.99	1 200
Ni	99.95	1 150
Cu	99.9	850

实验中的符合多普勒展宽装置采用两个高纯锗探头,对 1.33 MeV 的  $\gamma$  射线的能量分辨率分别为 1.76 和 1.64 keV。两个探头和样品放在同一直线上,样品和源采用夹心式结构,每个探头和样品间的距离为 20 cm。采用了 0.5  $\mu$ s 的符合时间,每个谱总计数约为 2 000 万,计数率约为 150/s。采用的放射源是  $^{22}\text{Na}$  源,其半衰期为 2.6 a。

在符合多普勒展宽实验中,所使用的  $^{22}\text{Na}$  放射源分别采用 Ti 和 Ni 两种金属薄膜进行封装,分别称为 Ti 源和 Ni 源。首先,我们采用 Ti 源测量了样品 Al, Ti, Ni, Cu 和 Si 的符合多普勒展宽谱,其次采用 Ni 源测量了金属 Ni 的符合多普勒展宽谱。

### 3 结果与分析

在数据处理时,常选择一标准样品的多普勒展宽谱作为参考谱,用其他多普勒展宽谱除以该参考谱,得到标准化的电子动量谱,简称为电子动量谱,公式表示为  $R(E) = N(E)/N_0(E)$ 。通过分析电子动量谱可以得到不同元素的信息,起到元素鉴别的作用。

我们以退火 Al 的多普勒展宽谱作为参考谱,做出了 Ti, Ni, Cu 和 Si 的电子动量谱曲线(如图 1 所示),其中 NiO 为采用 Ni 源所测得的金属 Ni 的多普勒展宽谱,其它谱线均采用 Ti 源测量。

从图 1 可以看出,采用 Ni 源测量的 Ni 的电子动量谱曲线(NiO),在高动量部分其明显高于采用 Ti 源所测的 Ni 的电子动量谱曲线(Ni)。这可以解释为:在高动量区间,Ti 电子的湮没贡献低于 Ni 电子的湮没贡献,因此,采用 Ti 源所测的 Ni 的电子动量谱曲线就会被拉低;而采用 Ni 源测量的 Ni

的多普勒谱可以近似地视为没有源成分的理想谱,就相对较高。另外,电子动量谱曲线 Ni 和 NiO 中,在分布了多个峰的区域,峰之间的相对高度发生改变,这点在先前已有的工作中已经得到证实<sup>[7]</sup>。

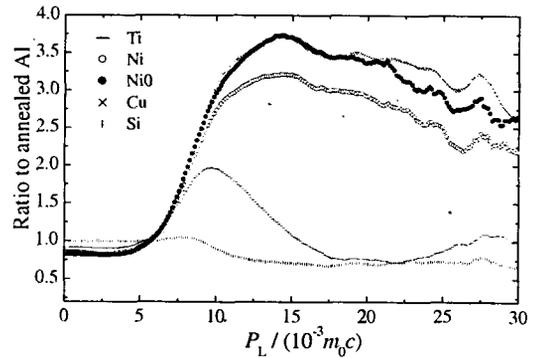


图 1 以退火后 Al 的多普勒展宽谱作为参考谱,做出的金属 Ti, Ni, Cu 和 Si 的电子动量谱曲线,其中 NiO 为金属 Ni 采用 Ni 源所测得的多普勒谱,其它谱线均采用 Ti 源测量

一般认为,电子动量谱曲线的高动量区间体现的是金属内层电子的湮没特征,而源成分的存在会使金属样品的湮没特征发生一定的改变,因此有必要对符合多普勒展宽测量谱进行源修正。

### 4 源修正方案

如前面所述,用解寿命谱的方法做源修正不太容易,为此我们探索出了一种用最小二乘法拟合多普勒展宽谱求解源湮没份数的方法。

#### 4.1 最小二乘法拟合源强度

我们已测量了金属 Ti 和 Ni 的三个符合多普勒展宽谱,详细说明见表 2。

表 2 所测多普勒展宽谱编号及说明

多普勒展宽谱(编号)	所测样品	源掩膜材料
$C_{Ti}$	金属 Ti	Ti
$C_{Ni}$	金属 Ni	Ti
$C_{NiO}$	金属 Ni	Ni

若不考虑正电子在  $^{22}\text{Na}$  盐中的湮没部分,可以将采用 Ti 源所测的 Ti 的多普勒展宽谱( $C_{Ti}$ )视为没有源成分的理想谱,同样也可以将采用 Ni 源所测

的 Ni 的多普勒展宽谱 ( $C_{Ni0}$ ) 视为没有源成分的理想谱。而金属 Ni 采用 Ti 源所测得的多普勒展宽谱 ( $C_{Ni}$ )，应该为  $C_{Ni0}$  和源成分  $C_{Ti}$  的叠加，可以表示为以下形式：

$$\begin{aligned} C_{Ni}(E) &= \int_{-\infty}^{\infty} W_{Ni}(E')R(E-E')dE' \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} [W_{Ni0}(E')(1-x) + W_{Ti}(E')x]R(E-E')dE' \\ &= C_{Ni0}(E)(1-x) + C_{Ti}(E)x, \end{aligned} \quad (5)$$

其中， $C_{Ni}(E)$ ， $C_{Ni0}(E)$  和  $C_{Ti}(E)$  代表实测谱， $W_{Ni}(E)$ ， $W_{Ni0}(E)$  和  $W_{Ti}(E)$  代表本征谱， $R(E)$  代表分辨函数， $x$  代表源强度。

采用最小二乘法对 (5) 式进行拟合，使得下式取最小值：

$$\begin{aligned} f(x) &= \frac{1}{2} \sum_i [C_{(i)Ni0}(E)(1-x) + \\ &C_{(i)Ti}(E)x - C_{(i)Ni}(E)]^2. \end{aligned} \quad (6)$$

对于多普勒谱  $C_{Ni}$ ，拟合可得正电子在 Ti 源中的湮没份数  $x$  为 17.8%，拟合优度为 1.5。

从多普勒谱  $C_{Ni}$  扣除 17.8% 的源成分 ( $C_{Ti}$ )，得到源修正以后金属 Ni 的多普勒展宽谱  $C_{Ni1}$ 。然后以退火 Al 的多普勒展宽谱作为参考谱得到  $C_{Ni0}$  和  $C_{Ni1}$  的电子动量谱曲线，如图 2 所示。从图中可以看出，按 17.8% 的源成分进行源修正得到的多普勒谱  $C_{Ni1}$  和实测谱  $C_{Ni0}$  的电子动量谱曲线相当接近，这说明拟合出的多普勒谱  $C_{Ni}$  中的源湮没份数较好。

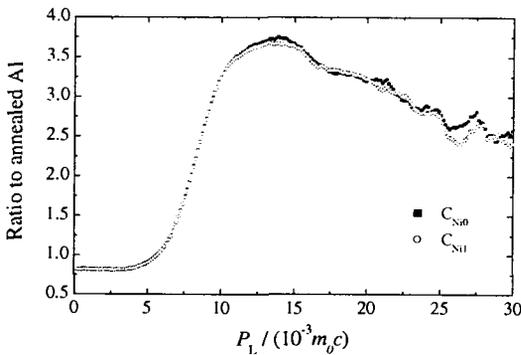


图 2 以退火金属 Al 为参考谱，得到的多普勒谱  $C_{Ni0}$  和从多普勒谱  $C_{Ni}$  中扣除 17.8% 的源成分后得到的多普勒谱  $C_{Ni1}$  的电子动量谱曲线

#### 4.2 源修正结果与分析

由于正电子在样品表面的背散射，源成分的湮

没份数和样品的原子序数有关，它满足下面关系式<sup>[9]</sup>：

$$I = \frac{3.24 \times 10^{-3} Z^{0.93} s^{3.45}}{s^{0.41}}, \quad (7)$$

其中， $I$  为源强度， $Z$  为材料原子序数， $s$  为源掩膜材料的面密度。由此公式，可以从样品 Ni 的源强度相应推出样品 Si 的源强度为 12%。

从所测样品 Si 的多普勒展宽谱扣除 12% 的 Ti 源成分 ( $C_{Ti}$ )，并以退火 Al 的多普勒谱作为参考谱得到的电子动量谱曲线如图 3 所示。从图中可以看出，源修正前 Si 的电子动量谱曲线在  $8 \times 10^{-3} m_0c$  的位置出现了峰，但是源修正以后该峰消失。而在

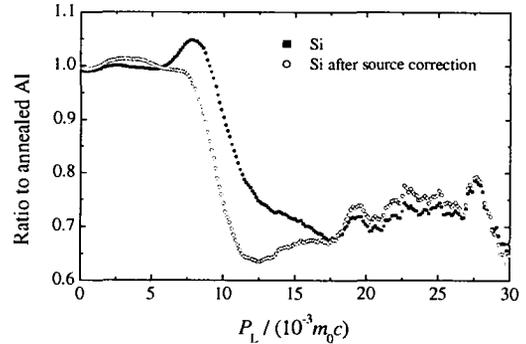


图 3 以退火金属 Al 的多普勒谱作为参考谱，做出的样品 Si 在源修正前后的电子动量谱曲线

$12 \times 10^{-3} - 18 \times 10^{-3} m_0c$  的动量区间，源修正前呈一定斜率的下降趋势，而源修正以后基本呈水平走势。从金属 Ti 的电子动量谱曲线 (如图 4 所示)，

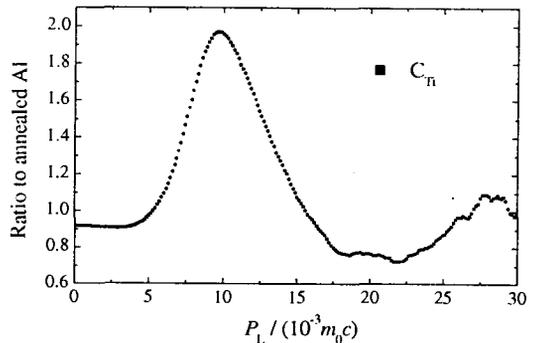


图 4 以退火金属 Al 的多普勒谱作为参考谱，做出的样品 Ti 的电子动量谱曲线

可以看出，在  $10 \times 10^{-3} m_0c$  的位置出现了明显的峰，因此，源修正前 Si 在  $8 \times 10^{-3} m_0c$  的位置出现

的峰应该是由 Ti 源的影响产生。另外，由于 Ti 的电子动量谱曲线在  $12 \times 10^{-3} - 18 \times 10^{-3} m_0c$  缓慢下降，且相对 Si 的电子动量谱曲线有较高的幅度，因此样品 Si 在该位置也被抬高，表现为按一定斜率下降的趋势。

综上所述，如果源成分的电子动量谱曲线相对所测样品的电子动量谱曲线特征变化较大，就会掩盖所测样品在高动量区间的湮没特征，因而进行源修正是必要的。

### 4.3 研究缺陷化学环境时的源修正方法

Ti 源中 Ti 金属薄膜的结构状况和样品 Ti 未必一样，它们的高低动量电子湮没占的比例也会不同，因此将多普勒谱  $C_{Ti}$  视为源的多普勒谱有不足之处。在用符合多普勒展宽谱研究材料缺陷化学环境时，更关心内壳层电子的贡献，因为它能够表征不同元素的特征。理想情况是扣除多普勒展宽谱中自由电子的湮没贡献，而仅仅研究多普勒展宽谱的高能部分，即内壳层电子贡献的部分。此时也需考虑内壳层电子贡献部分的源修正，从而排除 Ti 源中内壳层电子湮没份数与样品 Ti 中内壳层电子湮没份数不同对源修正的影响。

在金属中，正电子与自由电子湮没对多普勒展宽谱的贡献近似为一条倒抛物线，而内壳层电子湮没的贡献近似为高斯曲线<sup>[10]</sup>。于是正电子在金属中湮没的本征谱可用下式表示：

$$\begin{cases} W(E) = A + BE^2 + C \exp(-DE^2), & |E| \leq \left(\frac{A}{B}\right)^{1/2} \\ W(E) = C \exp(-DE^2), & |E| > \left(\frac{A}{B}\right)^{1/2} \end{cases} \quad (8)$$

我们按照此模型对实验谱  $C_{Ti}$ 、 $C_{Ni}$  和  $C_{Ni0}$  进行拟合，将其中自由电子的贡献和内壳层电子的贡献分开。内壳层电子的贡献可以表示为实验谱扣除了自由电子湮没贡献后的剩余部分，即

$$I(\text{内层}) = C(\text{实验}) - P(\text{自由})。 \quad (9)$$

实验谱  $C_{Ti}$ 、 $C_{Ni}$  和  $C_{Ni0}$  中内壳层电子贡献的部分分别用  $I_{Ti}$ 、 $I_{Ni}$  和  $I_{Ni0}$  来表示。在研究元素特征时，只分析内壳层电子的湮没贡献，也只对内壳层电子的贡献部分做源修正。同样采用公式(6)进行拟合，得

到  $I_{Ni}$  中正电子在源中的湮没份数为 16.08%，拟合优度为 1.33。

同样按模型(8)拟合可以得到 Al 内壳层电子的湮没贡献  $I_{Al}$ 。从  $I_{Ni}$  中扣除 16.08% 的源成分  $I_{Ti}$  得到源修正后的谱  $I_{Ni2}$ ，然后以  $I_{Al}$  作为参考谱，得到  $I_{Ni0}$  和  $I_{Ni2}$  的电子动量谱曲线，如图 5 所示。从图中可以看出，对金属 Ni 内壳层电子贡献部分  $I_{Ni}$  做源修正所得到的谱线  $I_{Ni2}$  和理想谱线  $I_{Ni0}$  比较接近，这说明 16.08% 的湮没份数较为接近理想值。

对比图 2 和图 5，发现两种源修正方法的效果差别不大，这应该是因为源中 Ti 薄膜材料的结构状况和 Ti 样品相近，采用第一种方法做源修正时将多普勒展宽谱  $C_{Ti}$  视为源成分是接近理想情况的。

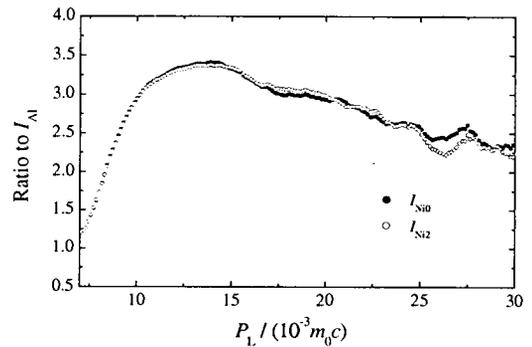


图 5 以 Al 的内壳层电子贡献  $I_{Al}$  作为参考谱，做出的理想谱  $I_{Ni0}$  和 Ni 的内壳层电子贡献部分源修正后得到的  $I_{Ni2}$  的电子动量谱曲线

## 5 结论

在本文中，在测量了 Al、Ti、Ni、Cu 和 Si 的符合多普勒展宽谱的基础上，利用最小二乘法拟合出了正电子在源中的湮没分数为 17.8%；若排除自由电子的影响，按照高斯-抛物线模型拟合实验谱，将自由电子的贡献和内壳层电子的贡献分开，求源湮没份数的过程中只考虑内壳层电子的贡献，得到 16.08% 的源湮没份数。从电子动量谱曲线可以看出，这两种湮没份数都比较接近理想值。因此，它能够作为源修正方法的一种补充。

另外，对比源修正前后 Si 的电子动量谱曲线，可知：在高动量区间，如果源成分的电子湮没贡献大，就会掩盖所测样品在高动量区间的湮没特征。

## 参 考 文 献:

- [1] Dupasquier A, Mills A P. Positron Spectroscopy of Solids. Amsterdam; North-Iolland Publ. Co. 1995.
- [2] Asoka-Kumar P, Alatalo M, Ghosh V J, *et al.* Phys Rev Lett, 1996, **77**: 2 097.
- [3] Britton D T, Junker W, Sperr P. Matter Sci Forum, 1992, **1 845**: 105.
- [4] Eldrup M, Huang Y M, McKee B T A. Appl Phys, 1978, **15**: 65.
- [5] Puff W. Appl Phys, 1979, **18**: 165.
- [6] Staab T E M, Somieski B, Krause-Rehberg R. Nucl Instr and Meth in Physics Research, 1996, **A381**: 141.
- [7] Brusa R S, Deng W, Karwasz G P, *et al.* Nucl Instr and Meth in Physics Research, 2002, **B194**: 519.
- [8] Deng W, Pliszka D, Brusa R S, *et al.* Acta Physica Polonica, 2002, **A101**: 875.
- [9] Schrader D M, Chiu S W, Nakanishi H, *et al.* A Determination of the Source Correction and Backscattering in Positron Lifetime Spectroscopy in: Positron Annihilation. Singapore: World Scientific, 1985, 822—824.
- [10] Brandt W, Dupasquier A. Positron Solid-state Physics. Amsterdam: North-Iolland Publ Co, 1983.

## Study on Source Correction of CDB Spectroscopy\*

SU Ben-fa, WANG Zhu, HUANG Chang-hong, WANG Shao-jie  
(Department of Physics, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

**Abstract:** In the present work, Coincidence Doppler Broadening (CDB) measurements have been performed for five elements i. e. Ti, Ni, Cu, Al and Si. As to the CDB spectra of Ni, we obtained the annihilation fraction of positron-electron pairs in the source by least square fitting. After source correction, spectra for Si are also given to indicate the influence of source components. CDB spectra were simulated with Gauss-Parabola model to separate annihilation contribution of core electrons from outermost electrons. Furthermore, a new source correction method, i. e. source correction will be done only in the contribution of core electron, has been presented.

**Key words:** positron annihilation; coincidence doppler broadening; source correction; linear square fitting

\* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China (10375043); Natural Science Foundation of Hubei Province(2003ABA021)