

Principles and Applications of Positron Annihilation Technique

Xing Zhang, Yan-Ling Hao, Chuan-Kun Wang

Xingyi Normal University for Nationalities, Xingyi Guizhou
Email: xingzhang1125@163.com

Received: Jun. 15th, 2017; accepted: Jun. 29th, 2017; published: Jul. 5th, 2017

Abstract

Positron annihilation technology (PAT) is the noninvasive detection method of the material structure and the electronic states. In this paper, firstly the introduction of the PAT was given by describing fundamental principles and elucidating characteristic advantages of the PAT in micro structure analysis of materials. Then the features and advantages of the PAT in characterization of micro structures of materials were reviewed. In addition, the newly developments and applications in recent years of the PAT were reviewed.

Keywords

Positron Annihilation, Structural Defects, Microstructure, Defects

正电子湮没技术及其应用

张 星, 郝艳玲, 王传坤

兴义民族师范学院, 贵州 兴义
Email: xingzhang1125@163.com

收稿日期: 2017年6月15日; 录用日期: 2017年6月29日; 发布日期: 2017年7月5日

摘 要

正电子湮没技术是研究物质结构和电子状态的无损的探测分析手段。介绍了正电子湮没技术基本原理、基本实验方法, 结合正电子湮没技术在材料微观结构领域的独特优势, 介绍了其在材料微结构研究工作中的特点及优势, 综述了近几年来正电子湮没技术的发展及应用。

关键词

正电子湮没, 结构缺陷, 微结构, 缺陷

Copyright © 2017 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

1930年由英国物理学家保罗·狄拉克(Paul Adrien Maurice Dirac)从理论上预言了正电子的存在, 随后1932年美国物理学家安德森(C.D.Anderson)在宇宙射线中发现了正电子的存在[1], 这是人类第一次发现反粒子。五十年代开始, 正电子研究迅猛发展, 并诞生了一门相应的学科——正电子湮没谱学, 而后在六十年代后期得到了飞速发展, 在固体物理中得到了应用[2]。利用正电子的湮没现象, 正电子湮没技术已经成为研究金属、半导体、高温超导体、高聚物等材料物质结构(材料表面及内部缺陷)和电子状态(电子动量分布)的无损的探测分析手段[3] [4] [5]。

2. 正电子湮没理论简介

2.1. 正电子与物质的相互作用

从放射源中发射出来的正电子($E < 1 \text{ MeV}$)进入固体材料后, 首先将在约1ps内通过与物质中原子的各种非弹性散射作用(如电子电离、等离子体激发、正电子-电子碰撞、正电子-声子相互作用等元激发过程)迅速损失能量并慢化至热能($\sim 0.025 \text{ eV}$), 这称为正电子在固体中的热化[6]。热化后的正电子将在体内作扩散运动, 平均扩散长度满足:

$$L = \sqrt{6D_+ \tau} \quad (1)$$

其中, D 为扩散系数, τ 为正电子寿命, 常温下其扩散长度为 $\sim 100 \text{ nm}$ 。

正电子在完整晶格中遇到电子会与之发生湮没, 往往是自由湮没。但如果介质中存在缺陷(如空位、位错、微空洞等), 正电子就容易被缺陷所捕获, 形成捕获态。因为在介质中, 正电子总是受到带正电荷的离子实的库仑排斥力, 而在空位型缺陷中, 没有离子实存在, 电子密度也比较低, 因此空位、位错、微空洞这类缺陷会强烈吸引正电子, 正电子被束缚, 称为捕获态。

2.2. 正电子湮没理论

在扩散过程中如果遇到电子会与之发生湮没, 放出单个、两个或三个 γ 光子。湮没过程是正电子(e^+) - 电子(e^-)对质量转换成电磁能量的相对论质能转换过程。发射单光子必须存在第三者(原子核或原子内层电子)吸收反冲动量, 相对几率很小, 可以忽略。当正电子与电子自旋反平行时, 表现为单态 1s 相互作用, 湮没发射偶数个 γ 光子, 二光子发射几率恒大于多 γ 光子几率。当正电子与电子自旋平行时, 表现为三态 3s 相互作用, 湮没发射三个 γ 光子。由量子电动力学的不变性导出正电子与电子的两 γ 衰变与三 γ 衰变的事件比为371:1, 因此主要的过程是两 γ 湮没。

Dirac曾用量子力学证明, 一个正电子设能量为 $\gamma m_0 c^2$ 、动量为 $\beta \gamma m_0 c$ 和物质中静止的负电子湮没几率用负电子的有效截面表示:

$$\sigma_{\text{湮没}} = \frac{\pi\gamma_0^2}{\lambda+1} \left[\frac{\lambda^2+4\gamma+1}{\gamma-1} \ln\left(\gamma+\sqrt{\gamma^2-1}\right) - \frac{\gamma+3}{\sqrt{\gamma^2-1}} \right] \quad (2)$$

其中, $\gamma = (1-\beta^2)^{-1/2}$, $\beta = v/c$, $\gamma_0 = \frac{e^2}{m_0c}$ 为经典电子半径。当正电子速度远低于光速 c 时, 上式可以简化为:

$$\sigma_{\text{湮没}} = \frac{\pi\gamma_0^2c}{v} \quad (3)$$

假设 n_e 为正电子周围的电子密度, 则其湮没几率 λ ($\lambda = 1/\tau$, τ 为正电子寿命)为:

$$\lambda = \pi\gamma_0^2cn_e \quad (4)$$

可见, 湮没几率与正电子速度无关, 只与电子密度成简单的线性关系。湮没几率的倒数:

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \approx \frac{1}{\pi\gamma_0^2cn_e} \quad (5)$$

称为正电子在介质中的寿命。

通过测量正电子在介质中的寿命, 我们可以得到正电子所在处的电子密度, 即正电子寿命的大小反映了介质中电子密度的大小, 进而获得物质微观结构信息。事实上, 式(4)给出的湮没率是用独立粒子模型(independent particle model, IPM)近似的结果。在金属材料中传导电子的密度通常在 10^{29} m^{-3} 数量级, 电子的经典半径为 $2.82 \times 10^{-15} \text{ m}$ 。因此根据式(5)计算得到的正电子寿命约为 600 ps, 这明显大于我们实际测量的金属中的正电子寿命。产生这一差别的原因在于正电子与电子的电荷符号相反, 它们之间存在着强烈的库仑吸引作用, 正电子周围的电子密度会增强(称为屏蔽效应), 从而明显地缩短正电子的寿命。因此, 在计算正电子在材料中的湮没率时, 应考虑电子 - 正电子的关联。

3. 正电子湮没实验装置

正电子谱学实验通常使用正电子源是 ^{22}Na , 放射源的制作方法是把 $^{22}\text{NaCl}$ 水溶液(几微居里)蒸发到 1 mg/cm^2 的塑料泊或金属箔上, 再盖上一块同样的泊。 ^{22}Na 衰变图如图 1 所示。伴随着正电子发射有一个起始信号, 这就是生成核 ^{22}Ne 退激时发出的 1.28 MeV 的 γ 光子。正电子在样品中湮没后发出的能量为 0.511 MeV 的 γ 光子是湮没事件的终止信号。正电子的寿命即为起始信号和终止信号之间的时间间隔。

常用的快 - 快符合寿命谱仪装置示意图如图 2 所示。源和样品在寿命测量时常采用“夹馅”结构, 即把正电子源夹在两片相同的样品之间, 并置于两探头中间, 使其共线。探头由 BaF_2 晶体(或塑料闪烁体)、光电倍增管及分压线路组成。湮没起始信号和湮没终止信号在探头中会产生不同高度的电脉冲。调节恒比定时甄别器(CFDD)的能量阈, 使起始道中甄别器只接受起始 γ 光子产生的脉冲, 终止甄别器只接受终止 γ 光子产生的脉冲。恒比定时甄别器具有两种功能, 一是对所探测的 γ 光子进行能量选择, 二是在探测到 γ 光子时产生定时信号。时间幅度转换器 TAC 将这两个信号之间的时间间隔转换为一个高度与之成正比的脉冲信号输入多道分析器 MCA, 将不同的高度的脉冲信号分别计入不同的道, MCA 所记录的即为正电子寿命谱。

4. 正电子淹没的实验过程

正电子寿命测量采用 ORTEC-100U 快 - 快符合正电子寿命仪系统, ^{22}Na 源用 MyLar 膜密封后置于几何尺寸为 $\phi 15 \times 2.3 \text{ mm}$ 的两样品之间, 采用 Pilot-U 塑料闪烁探头, 用 ^{60}Co 测得谱仪的时间分辨率优于 220 ps, 每个谱积分包含 10^6 以上的湮没事件, 以保证足够的统计精度。考虑到样品中多种缺陷共存,

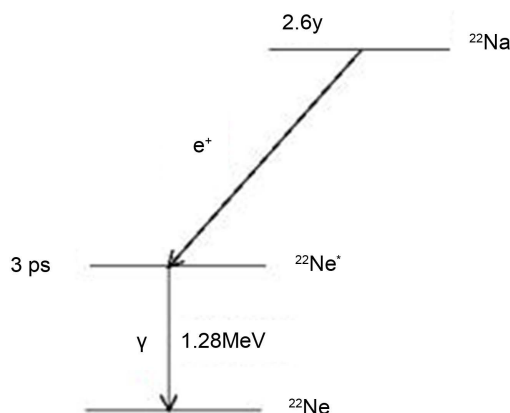


Figure 1. The decay diagram of the positron source ^{22}Na

图 1. 正电子源 ^{22}Na 的衰变图

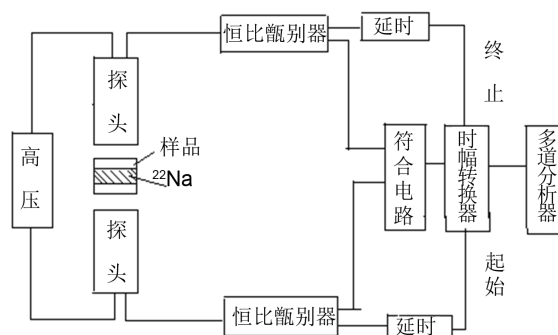


Figure 2. Fast-fast conform to the positron life spectrometer

图 2. 快-快符合正电子寿命谱仪框图

寿命谱采用 Positron fit-Extended 程序进行两分量解谱，在扣除本底(background)和源修正以后，拟合方差优于 1.2。实验环境温度稳定于 20°C 。

5. 正电子湮没技术研究材料的优点

1、它对样品的种类几乎没有什么限制，可以是固体、液体、气体。凡是涉及材料的电子密度及电子动量有关的问题，原则上都可以用正电子湮没技术来研究。实验证明，正电子湮没谱学是研究金属、半导体、高温超导体、高聚物等材料中的微观结构、电荷密度分布、电子动量密度分布极为灵敏的工具；

2、它对样品中原子尺度的缺陷和各相变极端敏感(缺陷浓度在 $10^{-7}\sim 10^{-4}$ 范围都可以探测到(原子位置百分比)) [7]，正电子缺陷所感知的限度约为 $1\sim 10\text{ nm}$ ，如果晶格中缺少一个或几个原子的缺陷，这些缺陷在电镜、X 衍射中研究颇为困难，所以正电子湮没可以和电镜、X 衍射及其他技术相辅相成，互为补充；

3、它是一种非破坏性研究方法而且对测量温度区间几乎没有限制，可以跨越材料的熔点或凝固点，信息又是通过穿透力很强的 γ 射线携带出来的，因此易于对样品做高低温的动态原位测量，即一面升温一面测量，或在测量时施加电场、磁场、高气压、真空等特殊环境。

6. 正电子湮没技术的应用

正电子湮没技术在材料科学研究中的应用集中体现在晶体缺陷方面的研究。钙钛矿结构材料具有许

多独特的物理性质, 而且在该类材料中微观缺陷对性能的影响比其它材料中微观缺陷的影响更大, 因此更引起人们的注意。从以下的几篇文献中可以看出正电子湮没技术在缺陷探测中有着重要作用。

李喜贵等[8]用正电子湮没技术研究了高温超导体 YBaCuO 光掺杂效应, 采用卤素灯光对样品表面进行照射, 在完全相同的实验条件下, 对同一炉制备的样品进行了系列化的光掺杂, 研究表明随着光掺杂量的增加, 光激发的电子-空穴对也大量的增加, 电子浓度增加, 电子与正电子产生湮没, 湮没率增高, 故各种寿命持续降低。当光照 30 min 以后, 样品的温度可能会急剧升高, 使晶体结构产生变化, 晶格畸变的结果可能使大量的氧空位复合为空位团, 正电子被此种缺陷捕获而湮没, 湮没率降低, 各种寿命普遍增高。张星等[9]采用固相反应法制备了 $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{Mn}_{0.9}\text{A}_{0.1}\text{O}_3$ (其中 A 为 Cr、Co、Fe、Al、Cu) 系列 Mn 位替代的氧化物样品; 利用正电子湮没对该系列样品的结构缺陷进行了分析, 结果表明样品主要受大尺寸点缺陷的影响, 存在一定数量的空洞及微空洞等缺陷。类比合金中正电子长寿命与缺陷簇之间的关系, 估算了元素替代后样品的缺陷半径大小, 可能大的空位团簇、位错和晶界在样品中起着重要作用。

Chen 等[10]用正电子湮没研究了无规 PS 在不同压力、温度的 CO_2 环境中暴露不同时间, 其自由体积性质、尺寸以及分布的情况。随着压力的增加, 自由体积增加, 分布变宽, 材料玻璃化转变温度降低。泄压后, 自由体积随时间发生松弛, 然而一部分由 CO_2 导致的自由体积的增加会永久地保留在材料中。

美国某公司开发的光致正电子湮没无损测试技术[11], 可有效的检测机翼中埋在第二层内的疲劳损伤, 这是无损检测技术的一项重要进展。可有效的检测机翼中的缺陷, 探测轮机叶片、飞机起落装置的疲劳损伤, 特别是在小裂缝出现之前做出预报, 在不分解产品的情况下定量地评估各种材料和预测昂贵部件的剩余寿命。该技术未来将成为参与飞机、导弹总体保障性论证过程中的一种具有发展情景的无损评估疲劳失效的方法, 在航空航天零部件早期疲劳诊断等方面有着良好的开发与应用价值。

正电子湮没技术在理论与实验上都取得了很大的发展。正电子湮没技术已经成为目前研究物质结构(材料表面及内部缺陷)和电子状态(电子动量分布)的无损的灵敏核分析手段。然而, 由于正电子与物质的相互作用非常复杂, 正电子在介质中的状态尚不清楚, 正电子湮没的理论还不够完善, 所以对正电子湮没的实验结果还不能够给出很圆满的解释, 往往要结合其他测试手段才能获得有价值的物理信息。这是正电子湮没技术的不足之处, 相信随着理论的完善和实验技术的进一步提高, 正电子湮没技术必将在材料科学研究中发挥重要作用。

基金项目

贵州省科技厅自然科学研究项目(黔科合J字[2013]2279号); 黔西南州科技局科技计划项目(2012-2); 兴义民族师范学院自然科学研究重点项目(12XYZZ01)资助项目。

参考文献 (References)

- [1] Anderson, C.D. (1932) Energies of Cosmic-Ray Particles. *Physical Review*, **41**, 405-421. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.41.405>
- [2] 王少阶. 应用正电子谱学[M]. 武汉: 湖北科学技术出版社, 2008.
- [3] 王胜, 杨静, 田丽霞, 等. 用正电子湮没谱学技术表征一种有机-无机杂化膜[J]. 核技术, 2015, 38(3): 030202-1-6.
- [4] Sawada, S., Yabuuchi, A., Maekawa, M., *et al.* (2013) Location and Size of Nanoscale Free-Volume Holes in Crosslinked-Poly Tetrafluoroethylene-Based Graft-Type Polymer Electrolyte Membranes Determined by Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy. *Radiation Physics and Chemistry*, **87**, 46-52. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2013.02.016>
- [5] 廖霞, 张琼文, 何汀, 等. 正电子湮没寿命谱技术应用于聚合物微观结构研究的进展[J]. 高分子材料科学与工程, 2014, 30(2): 198-203.

- [6] 王华馥, 吴自勤, 固体物理实验方法[M]. 北京: 高等教育出版社, 1990: 373-381
- [7] 路庆凤, 杜保立, 李喜贵. $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$ (M=Sr, Ba) 体系的正电子湮没研究[J]. 核技术, 2004, 27(8): 594-597.
- [8] 李喜贵, 胡保付, 王海英, 等. 高温超导体 YBaCuO 光掺杂效应的正电子寿命谱研究[J]. 河南师范大学学报(自然科学版), 2004, 32(3): 30-32.
- [9] 张星, 郝艳玲, 路庆凤. 锰氧化物 $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{Mn}_{0.9}\text{A}_{0.1}\text{O}_3$ 的正电子湮没研究[J]. 江西师范大学学报(自然科学版), 2011, 35(5): 494-497.
- [10] Chen, H., Cheng, M.L., Jean, Y., *et al.* (2008) Effect of CO_2 Exposure on Free Volumes in Polystyrene Studied by Positron Annihilation Spectroscopy. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, **46**, 388-405. <https://doi.org/10.1002/polb.21374>
- [11] 许占显. 正电子湮没无损测试技术与应用[J]. 无损检测, 2013, 35(11): 72-75.

期刊投稿者将享受如下服务:

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: mp@hanspub.org