

锗的正电子表面态的测量研究

郭学哲 翁惠民 韩荣典

(中国科技大学近代物理系, 合肥 230026)

摘 要

通过测量低能正电子入射到锗 (Ge) 靶的电子偶素产额随靶温度的变化, 测定了在真空度为 1.33×10^{-4} Pa 时锗的正电子表面态的束缚能 $E_b = 2.2$ eV; Ps 形成的激活能 $E_a = 0.2 \pm 0.01$ eV. 讨论了高真空与超高真空条件下 E_b , E_a 的变化.

一、引 言

Madanshy 和 Rasetti 在 50 年代提出可能存在正电子表面态^[1]. 在观察到中子辐照损伤的铝材料中正电子湮没特征有很大变化^[2]: 寿命谱中出现 500ps 的成份; 角关联曲线明显变窄. 对此, Hodges 和 Stott^[3] 及 Nierminen 和 Manninen^[4] 分别计算了正电子表面态的性质. 正电子在金属粉末里的湮没寿命和角关联测量结果也要用正电子表面态的存在才能较好地解释. 人们对了解正电子在固体表面的状况有极大的兴趣却无法直接进行研究. 因为以上间接表明正电子表面态存在的实验, 都是用放射源发射的快正电子在大气环境里照射样品, 无法对与表面态存在直接相关的产物电子偶素 (Ps) 进行单独的研究. 关于正电子表面态存在的较为直接的证据来自七十年代的一个新发现^[5], 即低能正电子 (~ 10 eV) 在真空中入射到固体表面时能有效地形成电子偶素. 进一步的研究还发现入射正电子形成真空电子偶素的比例 F 依赖于靶表面温度, 这就意味着电子偶素的形成有一个“热激活”的过程^[6]. 这一现象表明正电子确实存在表面态, 并且可以对其进行直接测量.

慢正电子入射到固体后, 在很短的时间内 (~ 1 ps) 就因碰撞损失能量而与晶格达到热平衡. 然后可能经历以下某一过程: (1) 与固体里的电子发生湮没. (2) 大部分正电子扩散到表面, 并遇到可能给正电子以负功函数的偶极层^[7]. 正电子在离开表面时, 一部份以自由正电子或快正电子偶素的形式发射, 一部分被束缚在“镜像”势阱里. 在势阱里的正电子可能直接湮没成 2γ 光子, 也可能在热波动中获得足够的能量后与一个电子结合成为自由 Ps 离开表面, 这就是所谓“热”Ps^[6]. 表面“镜像”势阱与固体表面的性质及界面的环境有直接关系, 因此测量研究“热”Ps 的发射, 可以测量正电子表面态的束缚能大小, 从而得到有关表面的状况及了解 Ps 的形成过程.

本工作测量了真空电子偶素产额随靶温度变化的关系, 通过热动力学的分析来测定

正电子表面态的束缚能 E_b 和电子偶素激活能 E_a 。

二、实验装置和方法

实验是在我们建造的慢正电子束上进行的。装置类似于文献 [8], 由一置于高真空

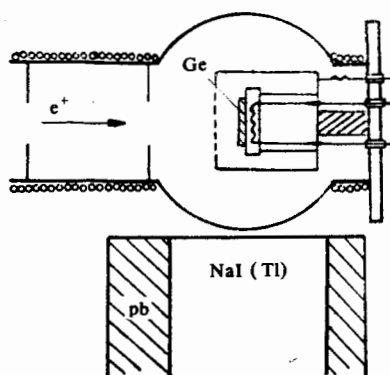


图1 装置示意图

靶室的样品台和一垂直于慢正电子束流的 NaI (Tl) 探测器组成, 见图 1。样品台内绕有加热灯丝, 样品温度可由室温加热到 1000°K 。温度测量使用的是镍铝-镍铬热电偶, 参考点为冰点, 温差电势由一台四位半数字电压表 (PZ8 型) 测定。图中未标出热电偶引出线, 加热丝和样品台之间由陶瓷绝缘。入射到靶上的正电子能量 $E = 24\text{eV}$ 。在样品温度达到 1000°K 时, 靶室真空度仍保持在 $1.33 \times 10^{-4}\text{Pa}$ 。慢正电子入射到靶上后湮灭的光子能谱用一个 $\phi 40 \times 40$ 的 NaI (Tl) 探头测量, 为减少直接来自放射源的本底 γ 光子, 探头垂直于束流放置。所测能谱由一台 4096 道多道分

析器记录。所用靶片为高纯锗单晶 (110)。

慢正电子入射到靶上会有一些的比例形成真空电子偶素。基态的电子偶素原子有 $1/4$ 的几率处在 1S_0 态, $3/4$ 的几率处在 3S_1 态。单态 Ps 湮灭为两个能量为 511keV 的 γ 光子; 三态 Ps 湮灭为三个共面的 γ 光子, 湮灭光子具有从 $0-511\text{keV}$ 的连续谱。在能谱测量中, 没有 Ps 形成时所测能谱为 511keV 单能谱; 有 Ps 形成时, 由于三态 Ps 湮灭的 γ 光子有连续谱, 因此全能峰下降 (2γ 湮灭减少), 同时低于全能峰的计数增加。根据相同入射正电子强度下所测能谱的变化就可以算出 Ps 的产额, 这就是所谓“峰法”^[9]。Ps 的产额 F 可由下式得到:

$$F = (4/3)[a - (1/372 + 371/372a)P_i/P_0], \quad (1)$$

其中 P_0 、 P_i 分别是在相同慢正电子入射数目下无 Ps 形成和有 Ps 形成时的全能峰区计数; $a = [E/(E - \Delta\Gamma)]^2$ 是考虑 3γ 连续能谱对所取峰区贡献的修正因子, $E = 511\text{keV}$, $\Delta\Gamma$ 是全能峰全宽度的一半。测量时全能峰区取为 $450-588\text{keV}$, 全谱区为 $70-588\text{keV}$ 。峰法公式标准误差为:

$$\sigma = \pm(4a/3)\{a[2\Delta\Gamma(1 - P_i/P_0)\eta/E]^2 + (1 + P_i/P_0)P_i/P_0^2\}^{1/2}, \quad (2)$$

η 是 γ 探测器效率。

实验时改变样品的温度从室温升到 1000°K , 对每一温度点测量湮灭能谱并用公式 (1) 算出电子偶素的产额。实验为升温测量。

三、数据分析与结果讨论

图 2 给出真空 Ps 产额随靶温度变化的情况。可以看到 20eV 的正电子入射到锗

靶表面在室温时已有 Ps 产生, 随着靶温度升高 Ps 产额不断增加。这表明, Ps 在固体表面的形成存在两个不同的过程: 热正电子直接从表面俘获一个电子形成“快”Ps 和处于表面态的正电子热激活而形成“热”Ps。

根据能量守恒, Ps 在外表面的形成势能 E_{Ps} 为:

$$E_{Ps} = \phi_- + \phi_+ - \frac{1}{2} R_{yd}, \quad (3)$$

$\frac{1}{2} R_{yd} = 6.8\text{eV}$ 是 Ps 在真空中的束缚能, ϕ_- ,

ϕ_+ 分别是电子和正电子的功函数。Ps 的形成势能 E_{Ps} 一般为负值, 即对于一般材料, 表面热化正电子都有一定几率直接形成 Ps。对于金属和半导体材料 (正电子在其体内不会形成 Ps) Ps 形成势能 E_{Ps} 就是 Ps 对这种材料的功函数。

对于由样品表面温度升高而形成的“热”Ps, 可以看作正电子被束缚在稳定的表面态, 束缚能为 E_b , 受到热激活得到一定的激活能 E_a 离开表面, 然后与一个电子结合形成 Ps。形成 Ps 的激活能 E_a 与 E_b 有如下关系:

$$E_a = E_b + \phi_- - (1/2)R_{yd}. \quad (4)$$

E_a 可以通过测量 Ps 产额随温度的变化求出。设表面态正电子数目为 N_s , 热激活发射的 Ps 数目为 N_{Ps} , 则

$$\begin{aligned} dN_s/dt &= -R_p N_s - R_{Ps} N_s; \\ dN_{Ps}/dt &= +R_{Ps} N_s. \end{aligned} \quad (5)$$

其中 R_p 是表面态正电子直接湮没率, R_{Ps} 是 Ps 热激活率, 它是温度的函数:

$$R_{Ps}(T) = \gamma_0 \exp(-E_a/kT), \quad (6)$$

E_a 是激活能, γ_0 是与温度无关的频率因子。假设 $R_p \ll R_{Ps}(T = \infty)$, 则 $R_{Ps}(T)$ 和 R_p 的关系可用 Ps 产额 $F(T)$ 表示:

$$R_{Ps}(T)/R_p = [F(T) - F(0)]/[F(\infty) - F(T)], \quad (7)$$

其中 $F(\infty)$ 和 $F(0)$ 分别是最高温度和最低温度时 Ps 的产额。将 (6) 和 (7) 式取对数就有:

$$\begin{aligned} \ln[R_{Ps}(T)/R_p] &= \ln(\gamma_0/R_p) - E_a/kT \\ &= \ln\{[F(T) - F(0)]/ \\ &\quad \times [F(\infty) - F(T)]\}, \end{aligned} \quad (8)$$

即 $\ln[R_{Ps}(T)/R_p]$ 和 $1/T$ 有线性关系。在本实验中 $F(0)$ 和 $F(\infty)$ 分别取室温和 1000°K 温度下 Ps 的产额, 由所测实验值 $F(T)$ (见图 2)

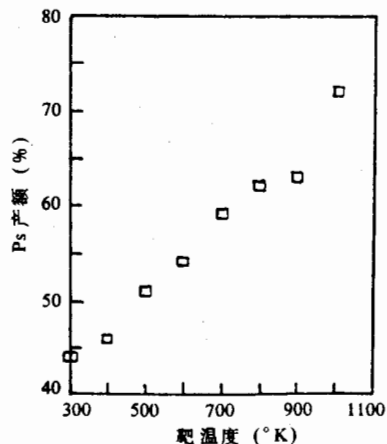


图 2 24eV 入射能量下电子偶素产额与靶温度关系

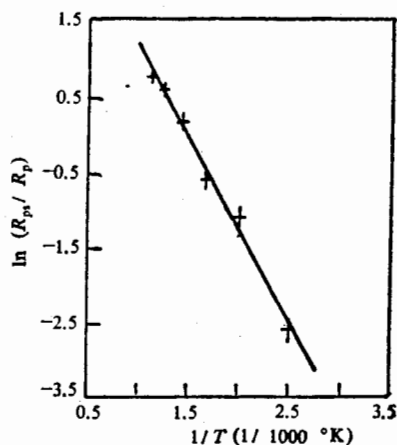


图 3 拟合激活能 E_a 直线为理论拟合结果

表1 对(8)式的拟合结果

样品	$F(0)$	$E_a(\text{eV})$	$\nu_0(1/\text{s})$
Ge	$0.44 \pm .04$	$0.2 \pm .01$	$(0.67 \pm 0.06) \times 10^{11}$

拟合线性关系式(8)所得参数列于表1。图3是拟合结果。取 Ge 的电子功函数 $\phi_- = 4.8\text{eV}$, 用拟合所得的 E_a 由(4)式可以算出正电子表面态的束缚能 $E_b = 2.2\text{eV}$ 。到目前为止, 我们见到的唯一实验结果是由 Mills 等人在超高真空 ($\sim 1.3 \times 10^{-7}\text{Pa}$) 对锗的测量(他们的样品亦非原位材料), 结果为 $E_a = 0.83 \pm 0.07\text{eV}$, $E_b = 2.8\text{eV}$, $F(0) = 0.75 \pm 0.05$ 。两者相比本实验的 E_a 和 E_b 均较小。由于真空 Ps 形成机制比较复杂, 而影响正电子表面态及镜像势阱的因素, 除表面性质外, 还与界面环境有关, 在一般高真空条件下, 残留气体中的氧与表面作用会使正电子表面束缚能降低^[9], 而残余气体运动又会使势阱内形成的 Ps 表面态能级变高, 这两个因素的等物理结果是使 E_a 和 E_b 变小, 而 $F(T)$ 变大。这方面也有实验证实。一个附带的结论是若研究 Ps 原子性质, 获得大量 Ps 原子, 在一般高真空条件下做实验比超高真空更为有利。

参 考 文 献

- [1] L. Madanshy and F. Rasetti, *Phys. Rev.*, **79** (1950), 397.
- [2] R. M. J. Cotterill, I. K. Mackenzie, L. Smedskjaer, G. Trumpy and J. H. O. L. Traff, *Nature*, **239** (1972), 101
- [3] C. H. Hodges and M. J. Stott, *Solid State Commun.*, **12** (1973), 1153.
- [4] R. Nieminen and M. Manninen, *Solid State Commun.*, **15** (1974), 403.
- [5] K. F. Canter, A. P. Mills, Jr. and S. Berko, *Phys. Rev. Lett.*, **33** (1974), 7.
- [6] A. P. Mills, Jr., *Solid State Commun.*, **31** (1979), 623.
- [7] S. Chu, A. P. Mills, Jr., and A. Nurray, *Phys. Rev.*, **B23** (1981), 2060.
- [8] 韩荣典 郭学哲 翁惠民 石星军 谢力, *物理学报*, **40**(1991), 205.
- [9] Mills, A. P., Jr and Loren Pfeiffer., *Phys. Rev.* **B32** (1985), 53.

The Observation of Positron Surface State of Germanium

GUO XUEZHE WENG HUIMIN HAN RONGDIAN

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

ABSTRACT

The formation yield of positronium (Ps) as a function of target temperature has been measured when positron implanting energy was 20 eV. By thermal dynamic analysing we obtained the binding energy E_b of positron surface state of germanium to be 2.2eV and the thermal activation energy E_a of Ps to be $0.2 \pm 0.01\text{eV}$ at vacuum $1.33 \times 10^{-4}\text{Pa}$. The different of E_b and E_a at the condition of high and ultra-high vacuum was discussed.