

PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM

XÁC ĐỊNH SAI HỎNG

Giới thiệu phương pháp phân hủy positron

Phương pháp phân hủy positron là phương pháp xác định mật độ electron nội tại và cấu trúc nguyên tử tại vị trí khảo sát do tương tác tĩnh điện của positron với môi trường.

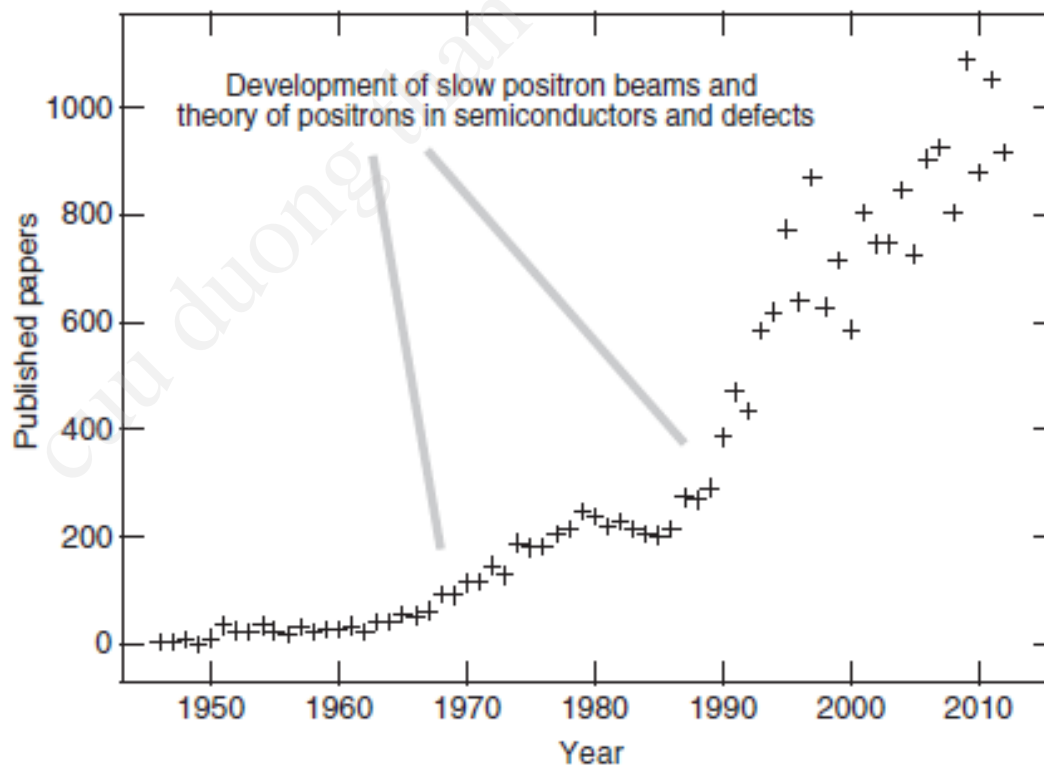
Thông tin về cấu trúc được đo lường theo thời gian và phổ năng lượng của bức xạ phân hủy positron do đó có thể kiểm tra cấu trúc của vật liệu khối như nút khuyết, sự kết tụ nguyên tử, siêu mạng, chấm lượng tử, sự lệch mạng, sự đảo, sự mới, ...

Những sai hỏng này giúp xác định tính chất của vật liệu như tính chất cơ, tính dẫn điện, sự khuếch tán, sự phát xạ ánh sáng.

Lịch sử phát triển

Sự tồn tại của phản hạt electron – positron được phát hiện bởi Dirac (1928).

Cuối những năm 1960, MacKenzie phát hiện ra hạt positron rất nhạy với những sai hỏng mạng tinh thể trong kim loại, bán dẫn.



Khái niệm positron

Trong những mô hình chuẩn để mô tả hạt cơ bản và tương tác, mỗi hạt đều có 1 phản hạt. Positron là phản hạt của electron, nó có khối lượng bằng khối lượng electron nhưng mang điện tích dương. Nếu electron gặp positron thì nó sẽ bị phân hủy bằng cách tạo thành tia gamma.

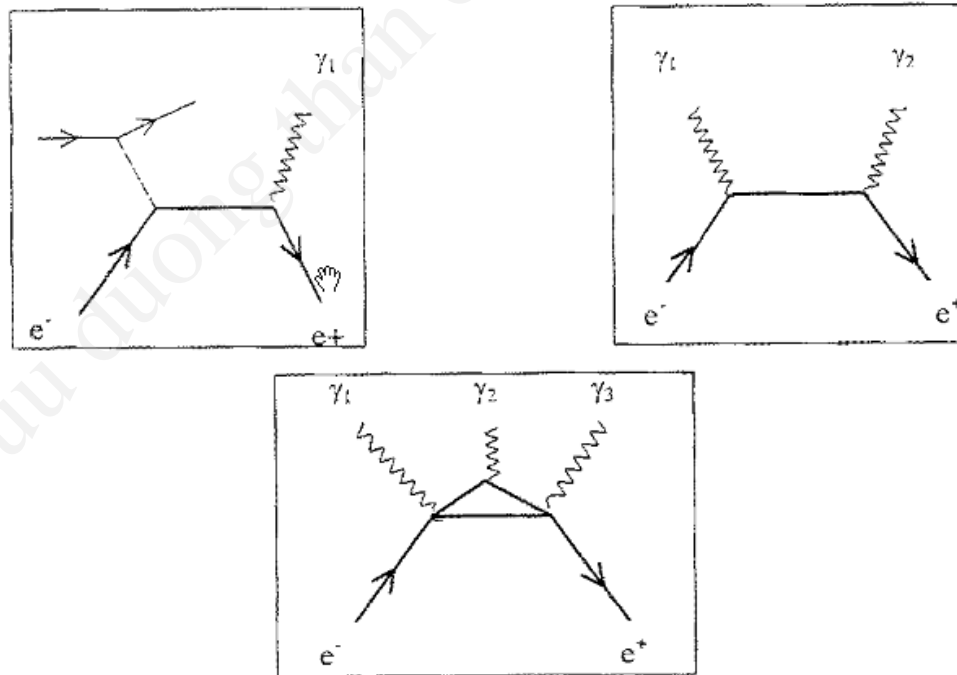
Tính chất vật lý và cấu trúc tinh thể được nghiên cứu thông qua tia gamma

Trong một số vật liệu, positron có thể liên kết với electron để hình thành positronium. Sự hủy positron phụ thuộc vào trạng thái positronium và sự tương tác của positronium với môi trường xung quanh.

Positron phát ra từ nguồn có năng lượng vài KeV đến vài MeV, với vận tốc tương ứng khi đi vào trong tinh thể, do quá trình tán xạ trên các electron dẫn, electron liên kết, dao động mạng (phonon), positron sẽ giảm vận tốc đến vận tốc nhiệt. Thời gian nhiệt hóa phụ thuộc vào năng lượng ban đầu. Thời gian sống trung bình của positron trong hầu hết kim loại khoảng 200ps → positron bị nhiệt hóa trước khi phân hủy

Khi bị nhiệt hóa, positron có vận tốc 10^5 m/s, di chuyển quãng đường tổng cộng từ lúc nhiệt hóa đến lúc bị hủy là 20 μ m. khoảng cách trung bình giữa các nguyên tử trong mạng tinh thể khoảng 0.1nm → positron đi qua 10^6 nút mạng. Xác suất sẽ gặp nút khuyết hoặc sai hỏng có kích thước nguyên tử rất lớn dù nồng độ sai hỏng nhỏ 10^{-6} .

Positron bị nhiệt hóa có thể bị hủy bởi electron \rightarrow giải phóng năng lượng. Đối với cặp $e^- - e^+$ chuyển động chậm khi hủy sẽ phát ra 1 gamma, 2 gamma, 3 gamma theo giản đồ Feynman. Trong đó 1 gamma do bảo toàn động lượng chỉ xảy ra khi có mặt của hạt thứ 3 là electron hoặc hạt nhân nguyên tử của môi trường



Giản đồ Feynman đối với sự hủy $e^+ - e^-$ phát 1, 2, 3 gamma

Trong phạm vi phòng thí nghiệm, positron có thể tạo ra bằng nguồn phóng xạ tạo β^+ như ^{22}Na , ^{64}Cu , ^{58}Co và ^{68}Ge

Bảng 1.1. Những nguồn positron thông dụng.

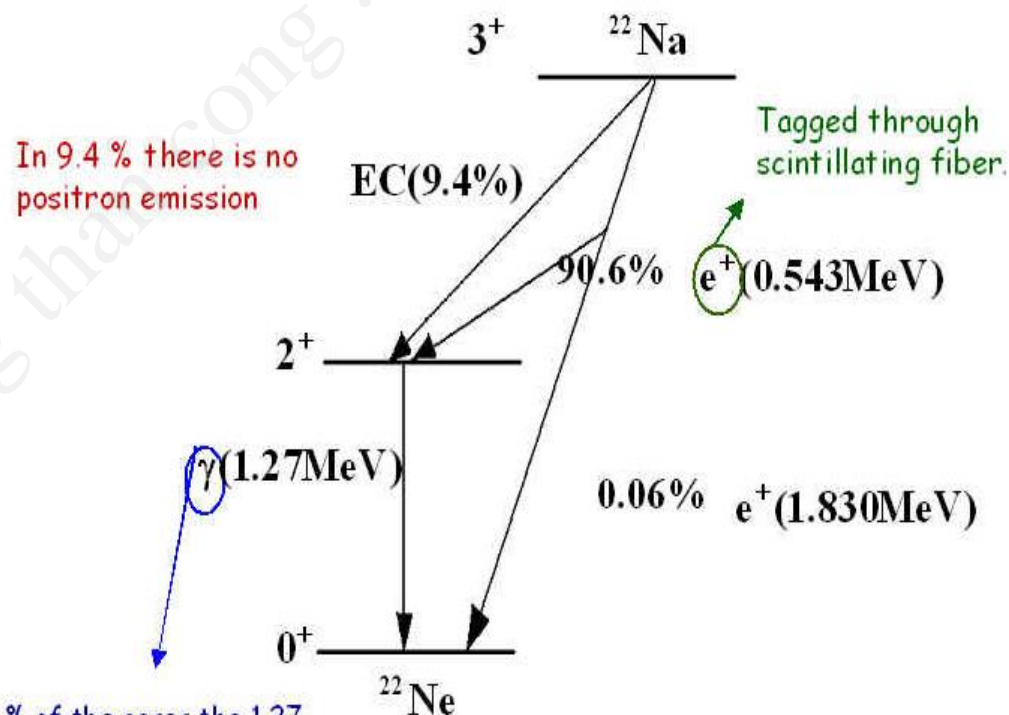
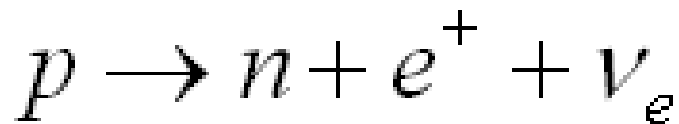
Nguồn	Cách tạo	Chu kỳ bán hủy $T_{1/2}$	Phần trăm e^+	E_{\max} [MeV]
Na^{22}	$\text{Al}^{27}(\text{He}^3, 2\alpha)\text{Na}^{22}$	2,58 năm	89	0,54
Co^{55}	$\text{Ni}^{58}(p, \alpha)\text{Co}^{55}$	18,2 giờ	60	1,50
Ni^{57}	$\text{Fe}^{56}(\text{He}^3, 2n)\text{Ni}^{57}$	36 giờ	50	0,85
Co^{58}	$\text{Ni}^{58}(n, p)\text{Co}^{58}$	71,3 ngày	15	0,48
Cu^{64}	$\text{Cu}^{63}(n, \gamma)\text{Cu}^{64}$	12,9 ngày	19	0,65
Nb^{90}	$\text{Zr}^{90}(p, n)\text{Nb}^{90}$	14,7 giờ	54	1,50
Ti^{44}		47 năm	80	1,47
Ge^{68}		275 ngày	88	1,89

^{22}Na có nhiều ưu điểm:

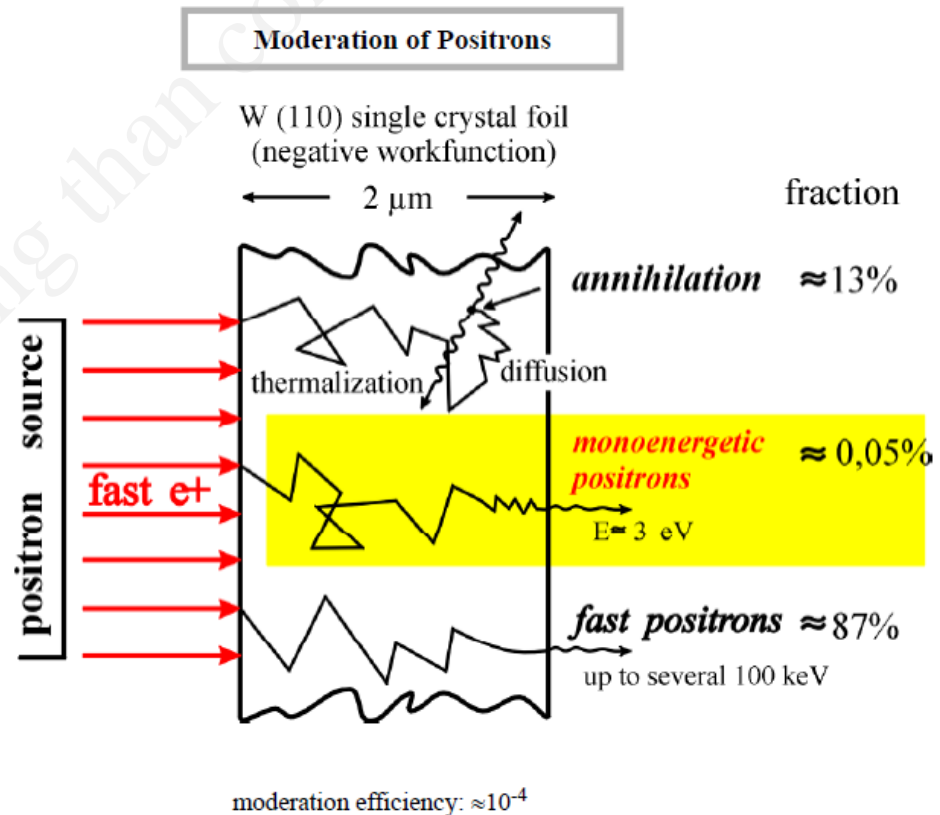
- Hiệu suất cao ($> 90\%$)
- Dễ điều khiển trong nước ($^{22}\text{NaCl}$ hoặc $^{22}\text{Na}_2\text{CO}_3$)
- Rẻ tiền
- Thời gian bán hủy dài 2.6 năm
- Phát ra positron có năng lượng ban đầu cực đại là 0,54MeV, kèm theo gamma năng lượng 1,28MeV.

Khoảng thời gian trễ giữa lúc phát hiện gamma 1,28MeV và gamma hủy 0,51MeV là thời gian sống của positron trong mẫu

Đồng vị ^{22}Na : khi phát positron, ^{22}Na chuyển thành ^{22}Ne ở trạng thái kích thích với thời gian sống trung bình 3,3ps. Sau đó khử kích thích tạo ra β^+ , quá trình chuyển proton thành neutron và positron, phát ra hai tia gamma có năng lượng 1.274MeV.



Positron có thể tạo ra bằng đồng vị phóng xạ β^+ (^{22}Na) có nồng độ 10^9 positron/s. Positron có phổ năng lượng rộng và liên tục với năng lượng trung bình khoảng vài trăm KeV. Những positron nhanh này được sử dụng cho mẫu vật liệu khối, để nghiên cứu màng mỏng thì positron cần phải làm chậm lại.

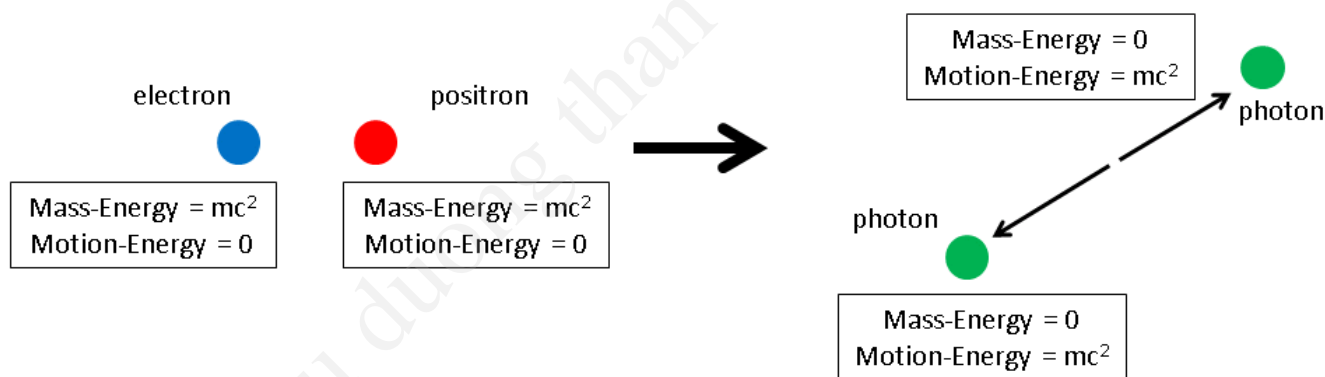


Positron tự do trong mạng tinh thể tạo tương tác đẩy với với ion dương trong mạng. Một nút khuyết trở thành tâm hấp thụ bẫy positron. Sự giảm nồng độ electron ở vị trí nút khuyết sẽ làm tăng thời gian sống của positron.

Một positron mang năng lượng khi đi vào trong vật rắn sẽ nhanh chóng mất năng lượng, thời gian sống khoảng vài trăm pico giây trong trạng thái cân bằng nhiệt với môi trường.

Electron khi tương tác với sai hỏng (defect), nó có thể bị bẫy vào 1 trạng thái định xứ. Do đó sự phân hủy của positron cuối cùng với 1 electron có thể xảy ra ở những trạng thái khác nhau.

Năng lượng và động lượng được bảo toàn trong quá trình phân hủy khi đó hai photon có năng lượng 511KeV (tia gamma) được phát ra theo hai hướng ngược nhau. Những photon này mang thông tin về trạng thái của sự phân hủy positron.



M. Strassler 2012

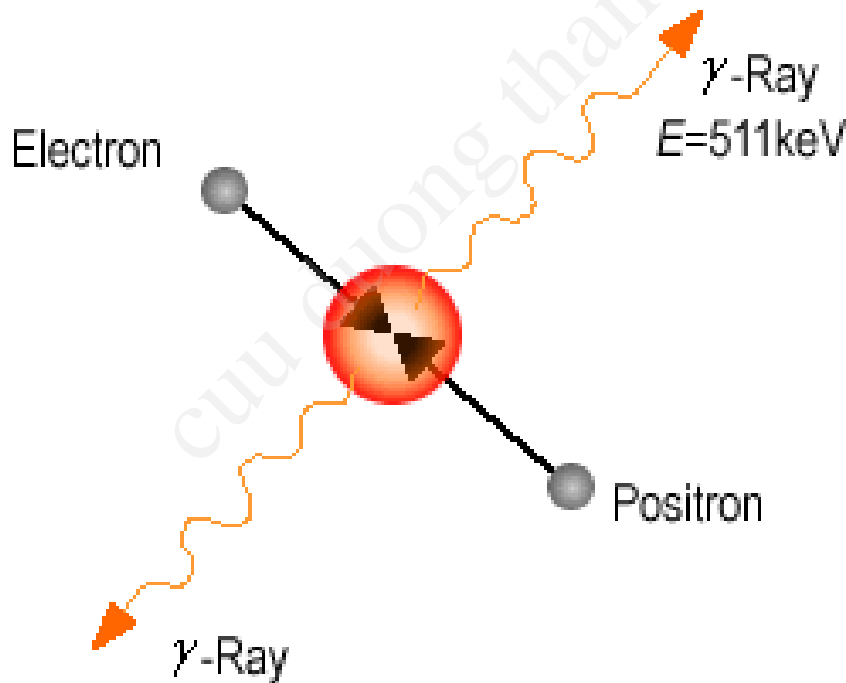
Thời gian sống của positron tỉ lệ nghịch với nồng độ electron bị phân hủy bởi positron.

Thời gian sống τ của positron trong môi trường tương ứng với quá trình phân hủy phát 2 gamma.

$$\tau = \frac{1}{\pi r_0^2 c n_e} \quad r_0 = \frac{e^2}{m_0 c^2}$$

Thời gian sống của positron bị nhiệt hóa tỉ lệ nghịch với bán kính cổ điển r_0 và mật độ electron của môi trường

Động lượng của electron bị phân hủy tạo 1 góc lệch 180° giữa hai tia gamma và tạo ra sự dịch Doppler. Do đó việc quan sát bức xạ do quá trình phân hủy positron sẽ cho thông tin thực nghiệm về sai hỏng trong cấu trúc vật rắn.



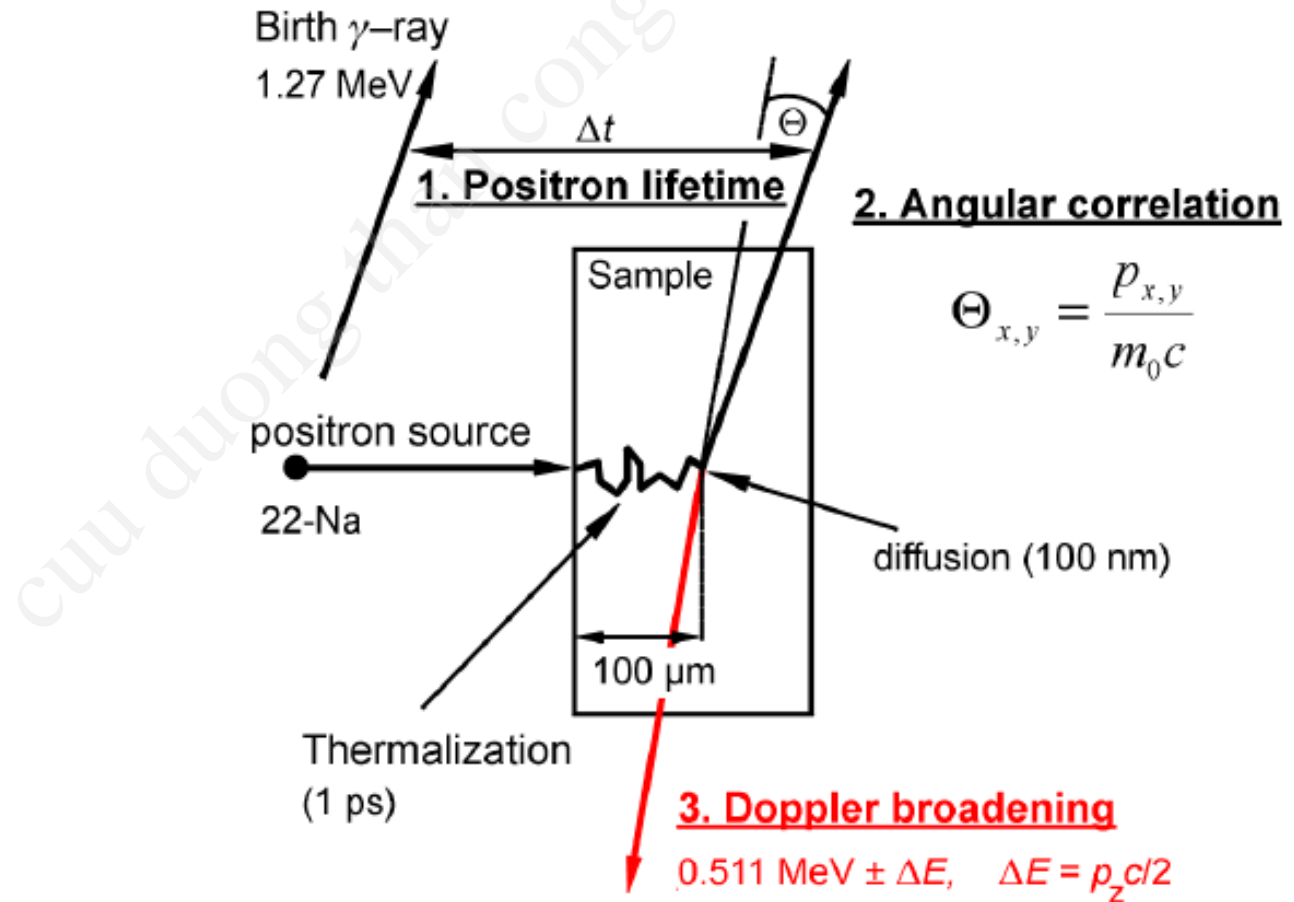
Trong quá trình khảo sát hủy của positron với electron trong trạng thái không liên kết, quá trình hủy phát ra gamma có xác suất lớn nhất. Trong quá trình dịch chuyển của positron có năng lượng thấp trong kim loại, positron không gây ra sai hỏng vì năng lượng ngưỡng để tạo sai hỏng trong mạng tinh thể (nút khuyết, vị trí xen kẽ) lớn hơn động năng ban đầu của positron phát ra từ nguồn.

Có 3 phương pháp thực nghiệm nghiên cứu sự hủy positron

-Phương pháp đo thời gian sống

- Phương pháp đo tương quan góc

-Phương pháp đo độ mở rộng vạch Doppler



Ưu điểm của phương pháp:

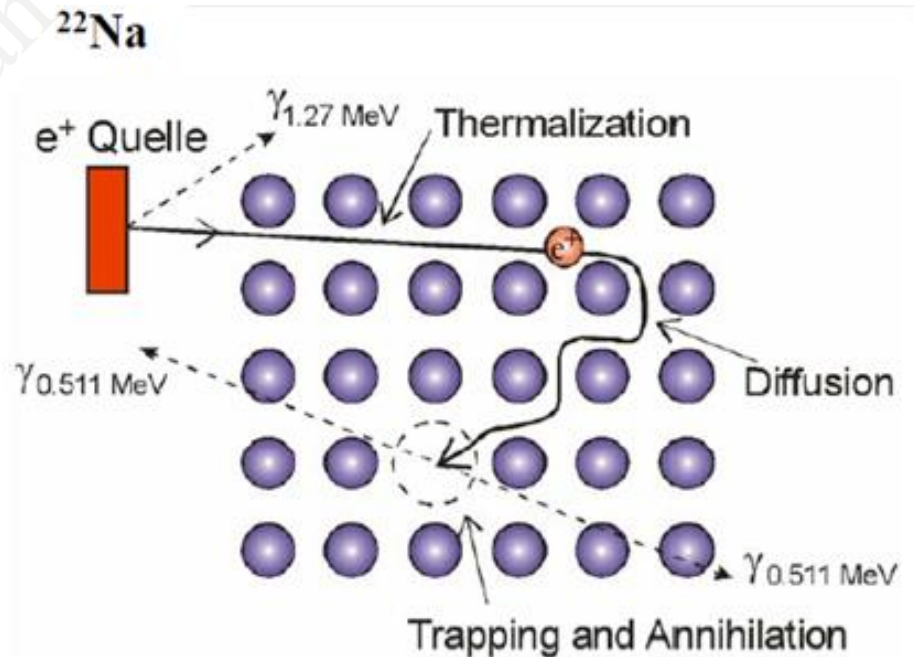
- xác định loại sai hỏng rất đơn giản
- có lý thuyết chứng minh chặt chẽ
- phương pháp có thể áp dụng cho vật khối, màng mỏng cho bất kỳ vật loại dẫn điện loại nào (n, p)

Mô hình bẫy positron

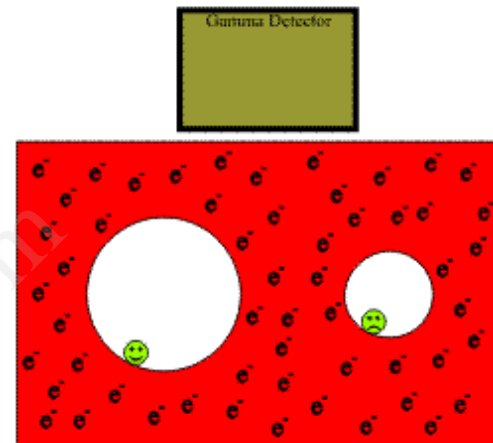
Khi positron đi vào tinh thể sẽ tương tác với nguyên tử nút mạng, với electron ở vùng dẫn và vùng hóa trị khiến nó mất dần năng lượng và bị nhiệt hóa. Sau khi bị nhiệt hóa positron sẽ bị phân hủy với electron và phát ra tia gamma. Tại những sai hỏng trong khối thể tích hình thành những tâm có thể tương tác lên positron khác với thể tạo ra trong khối tinh thể hoàn hảo.

Nếu sai hỏng là nút khuyết thì nó hút mạnh các positron, do nút khuyết được tạo ra do sự mất đi ion dương ở nút mạng nên vị trí đó được xem như mang điện âm. Điện tích tại nút khuyết là do sự phân bố lại của electron dẫn và electron của nút mạng lân cận → nút khuyết tạo thế hấp dẫn tạm ngắn trong quá trình bẫy positron.

Nút khuyết có thể tích tụ lại tạo thành lỗ trống (voids), bên trong lỗ trống có không gian đủ lớn để positron có thể liên kết với electron trước khi bị hủy.



Nếu nút khuyết có kích thước lớn thì thời gian sống của positron sẽ lớn hơn

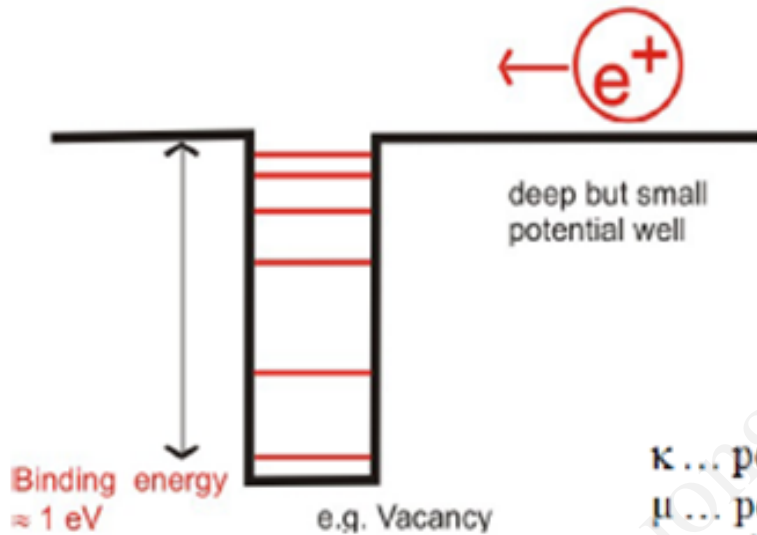


Nếu sai hỏng là do biến dạng tinh thể, thì đặc tính hủy positron sẽ khác so với trong tinh thể hoàn hảo.

Nếu có nguyên tử nội trong mạng tinh thể thì nó sẽ tác động lên positron lực hút (đẩy) tùy theo điện tích của nguyên tử nút mạng.

Các thông tin về sai hỏng cấu trúc mạng tinh thể được biểu diễn thông qua cường độ và năng lượng của các tia gamma phát ra.

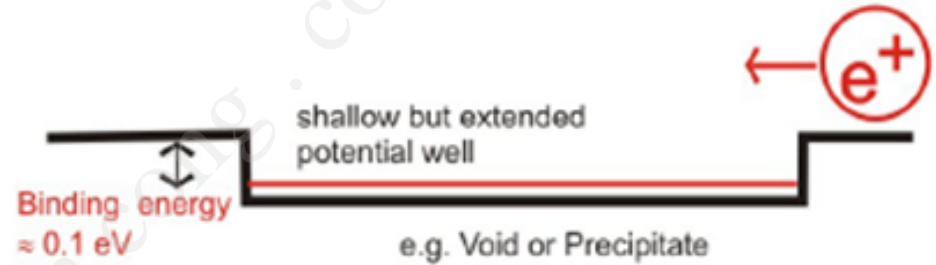
Transition-limited Trapping



$$\kappa = \mu \cdot C$$

- κ ... positron trapping rate
- μ ... positron trapping coefficient
- C ... defect density
- r_d ... radius of defect
- D_+ ... positron diffusion coefficient

Diffusion-limited Trapping



$$\kappa = 4\pi r_d D_+ C$$

Khảo sát bài toán tương tác của positron lên từng electron, từng sai hỏng trong mạng tinh thể trên đường đi của positron bằng lý thuyết lượng tử → phức tạp do xét tương tác hệ nhiều hạt, 1 bài toán hệ phương trình vi phân rất lớn.

Số liệu thực nghiệm thu được ở dạng thống kê → muốn giải thích → có mô hình tính toán → thu được thông tin về nồng độ nút khuyết, năng lượng hình thành nút khuyết, năng lượng liên kết giữa nút khuyết và tạp chất thông qua phép đo thực nghiệm.

Hệ phương trình vi phân gồm $(m+1)$ phương trình diễn tả sự biến thiên số positron tự do $n_f(t)$ trong tinh thể hoàn hảo và số positron n_j trong m loại bẫy

$$\frac{dn_j(t)}{dt} = -\nu_j n_j(t) - \lambda_j n_j(t) + \sigma_j C_j n_f(t) \quad j = 1, 2, \dots, m$$

$$\frac{dn_f(t)}{dt} = \sum_{j=1}^m \nu_j n_j(t) - \lambda_f n_f - \sum_{j=1}^m \sigma_j C_j n_f(t) + N \quad j = 1, 2, \dots, m$$

$\sigma_j C_j n_f$ là số positron bị bẫy trong 1 đơn vị thời gian đối với bẫy loại j . Số hạng này làm giảm số positron tự do trong miền tinh thể hoàn hảo.

n_j : số positron bị bẫy $\rightarrow n_j \nu_j$ là số hạng góp phần làm tăng

ν_j : tần số thoát bẫy của bẫy loại j số positron trong trạng thái tự do

λ_f : xác suất hủy positron ở trạng thái tự do $\rightarrow \lambda_f n_f$: số positron bị hủy ở trạng thái tự do trong 1 đơn vị thời gian. Số hạng này làm giảm số positron trong trạng thái tự do

N : số positron từ nguồn đi vào trong tinh thể trong đơn vị thời gian

λ_f : xác suất hủy positron ở trạng thái tự do

λ_j : xác suất hủy positron ở trạng thái bẫy loại j

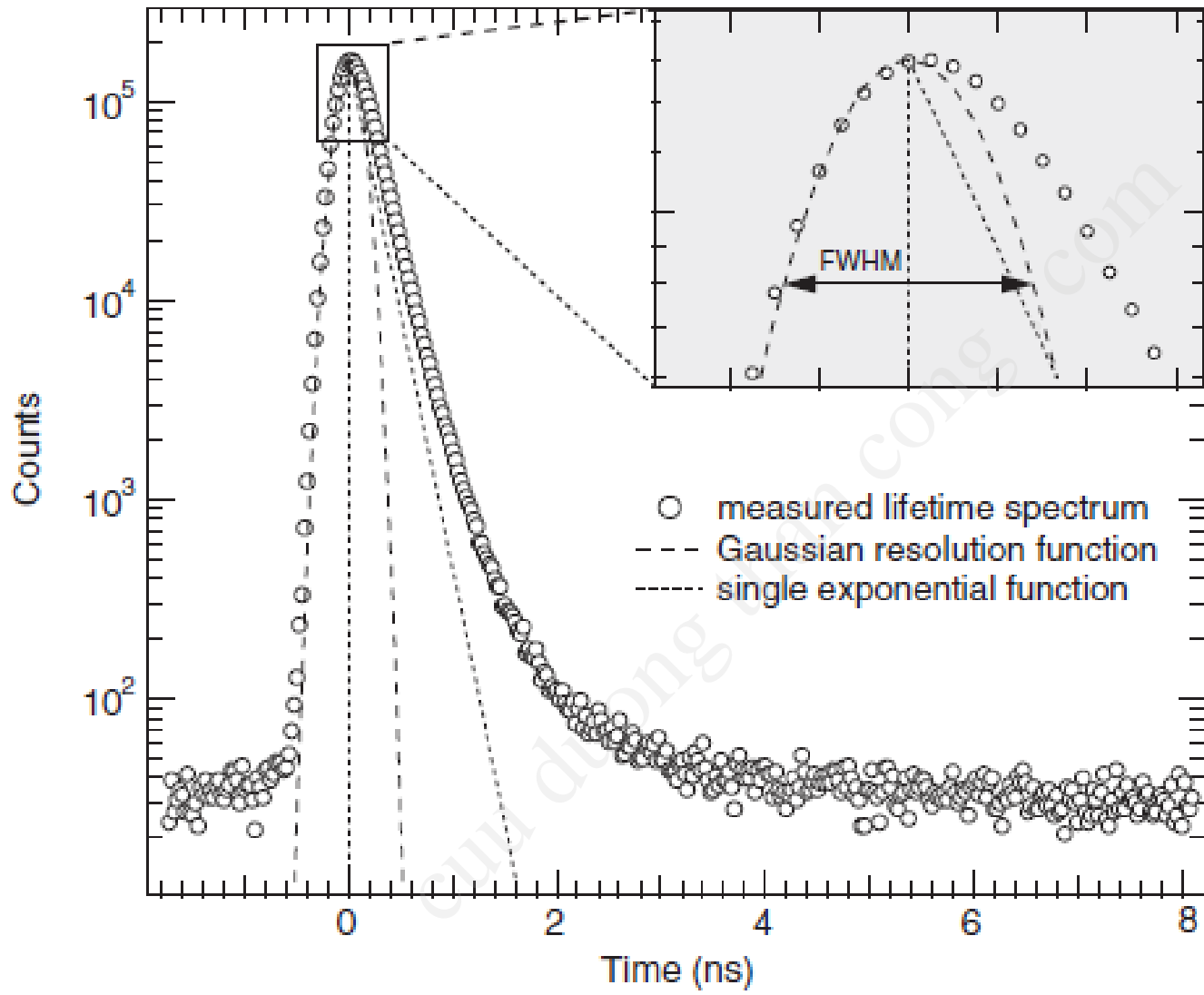
$$\lambda_f = \frac{1}{\tau_f} \quad \lambda_j = \frac{1}{\tau_j}$$

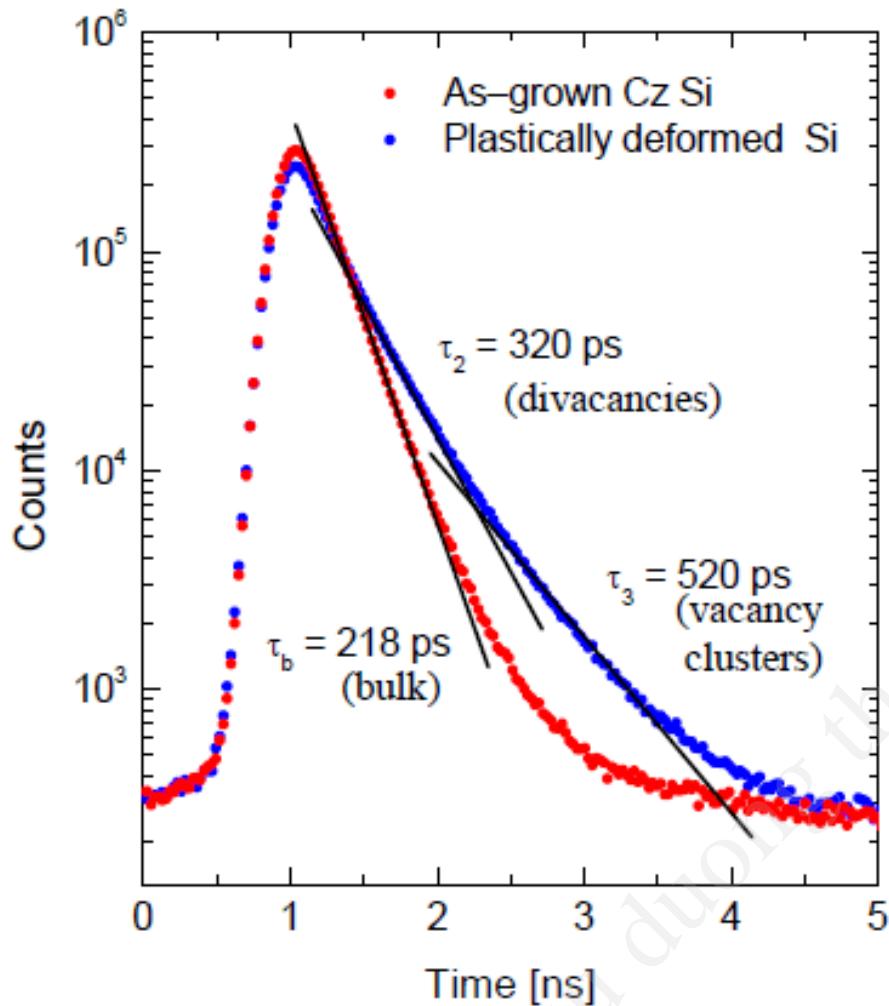
τ_f, τ_j là thời gian sống của positron tự do và positron ở bẫy loại j

Phổ thời gian sống của positron

Phổ thời gian sống positron đo bằng thực nghiệm sử dụng nguồn phóng xạ ^{22}Na tạo ra tia β^+ , tạo ra 1 positron và neutron, để lại hạt nhân ^{22}Ne bị kích thích, nhanh chóng phân rã thông qua sự phát xạ tạo photon năng lượng 1.2745MeV . Photon này được sử dụng như tín hiệu kích, bắt đầu cho quá trình đo thời gian sống positron, trong khi tín hiệu kết thúc sử dụng 1 trong hai photon hủy có năng lượng 511KeV .

Khoảng thời gian trễ giữa lúc phát hiện gamma $1,28\text{MeV}$ và gamma hủy $0,51\text{MeV}$ là thời gian sống của positron trong mẫu



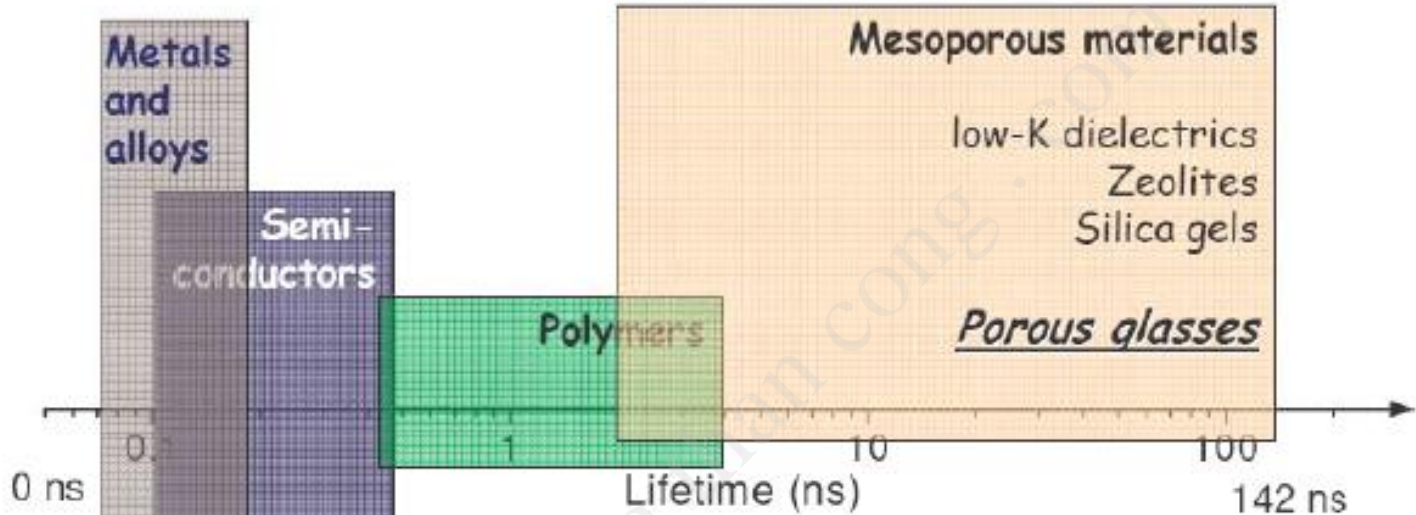


Phổ thời gian sống của positron là hàm phụ thuộc theo thời gian với hàm mũ e

$$N(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$

Lấy Ln 2 vế ta vẽ được đường tuyến tính \rightarrow xác định thời gian sống τ

Typical Lifetimes



Positron

Positronium

Thời gian sống của positron bị bẫy trong nút khuyết dài hơn so với trong khối do nồng độ electron tại nút khuyết thấp hơn trong khối.

System	τ (ps)	λ_c/λ (%)
Bulk	221	2.19
V	254	1.48
V ₂	299	0.97
V ₃	321	0.79
V ₄	330	0.72
V ₅	355	0.57

λ_c : tốc độ hủy electron trong vật liệu khối

hoặc tại nút khuyết

λ : tốc độ hủy tổng cộng

Khái niệm nút khuyết

nút khuyết đơn (*monovacancy*) là do sự mất nguyên tử trong mạng tinh thể.

khi hai nút khuyết đơn kết hợp lại \rightarrow nút khuyết đôi (*divacancy*). Nếu có

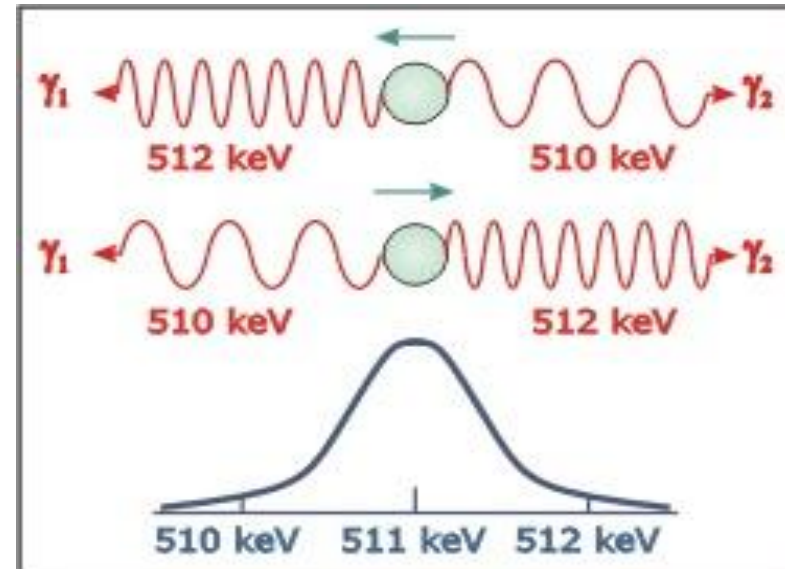
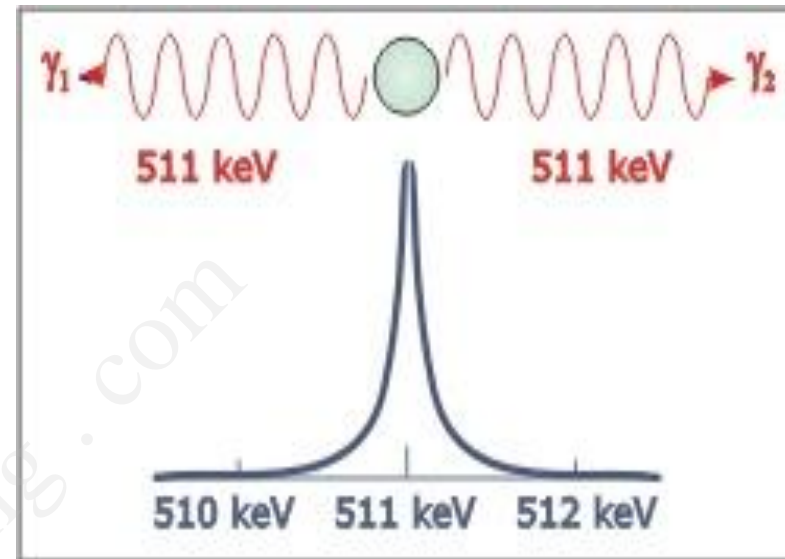
nhiều nút khuyết kết hợp \rightarrow lỗ trống (*voids*) hoặc bọt khí (*bubbles*)

Sự mở rộng vạch Doppler

Khi 1 positron nhiệt hóa bị hủy bởi 1 electron trong chất rắn, để bảo toàn động lượng thì xuất hiện sự dịch doppler của tia gamma hủy, sự dịch này liên quan đến động lượng của electron hủy.

Nếu positron đứng yên thì phổ năng lượng cho thấy 1 đỉnh rất hẹp tại năng lượng 511KeV.

Do positron chuyển động, nên khi detector ghi nhận năng lượng thì sẽ bị chênh lệch xung quanh giá trị 511KeV



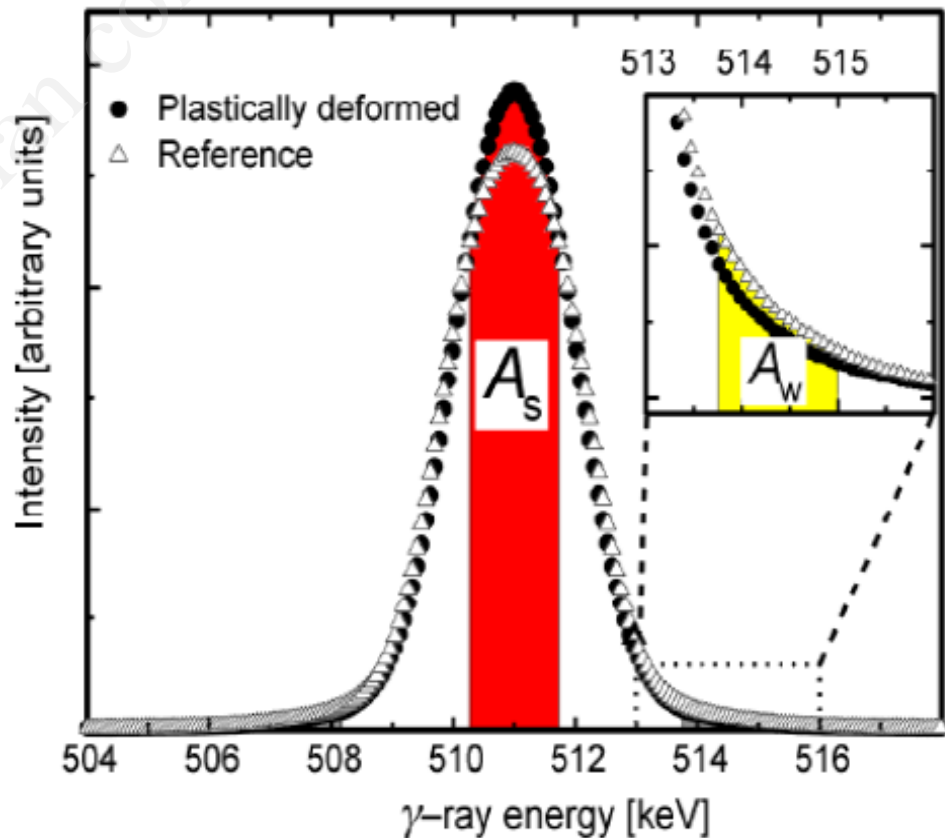
Phổ mở rộng Doppler cho thông tin về động lượng electron trong mẫu

♦ Giá trị tham số S liên quan đến sự hủy positron với electron hóa trị. S nhạy với những sai hỏng là thể tích trống (open volume). Giá trị S tăng chứng tỏ có sự hiện diện của nút khuyết

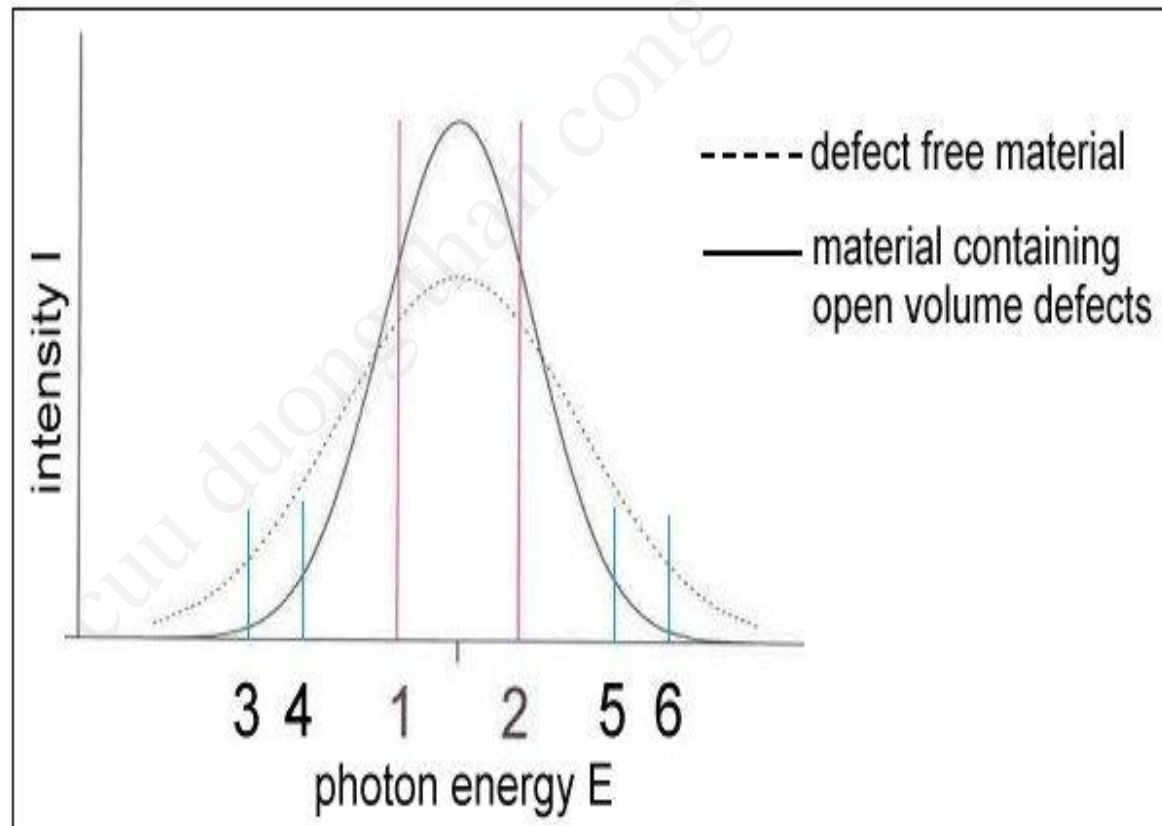
$$S = \frac{A_s}{A_o}$$

♦ Giá trị W liên quan đến sự hủy positron với electron sâu bên trong (core electron). W nhạy với chất hóa học xung quanh vị trí phân hủy.

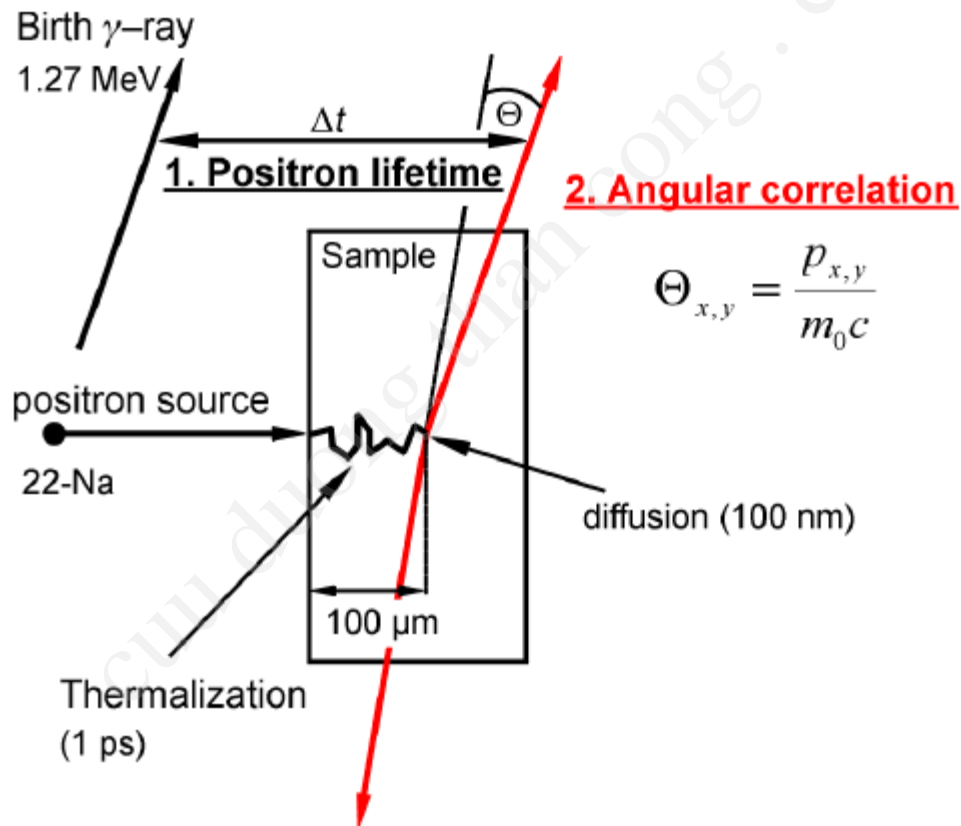
$$W = \frac{A_w}{A_o}$$



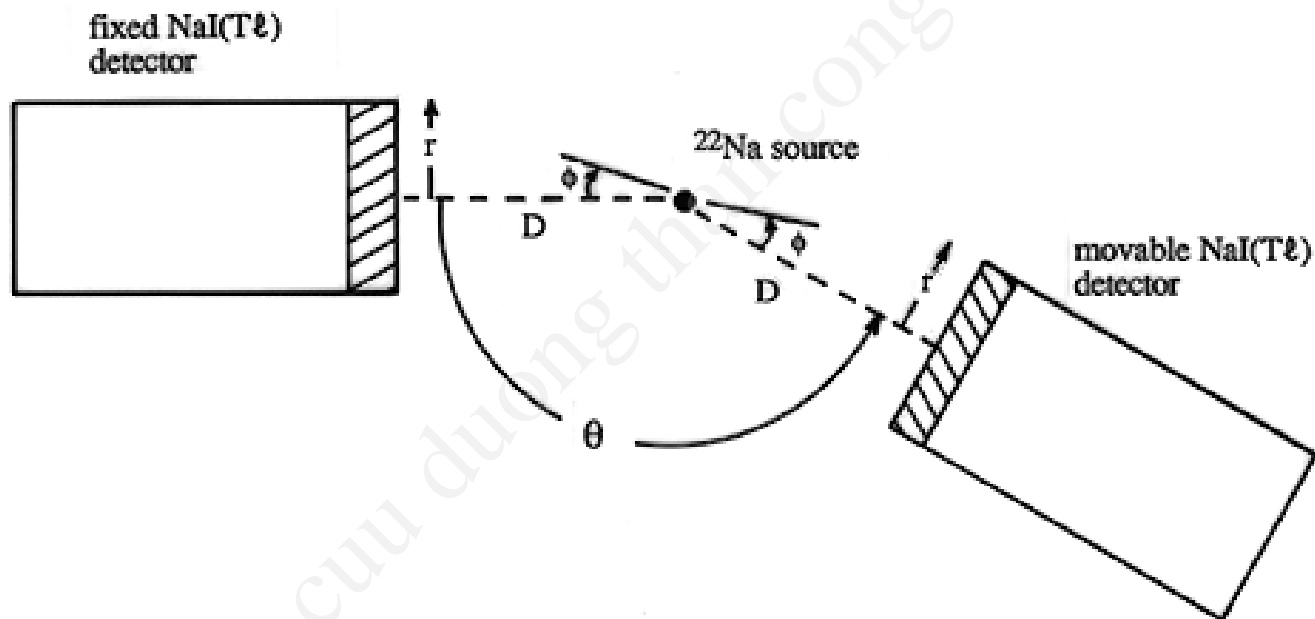
Khi positron bị bẫy trong defect, xác suất phân hủy đối với electron liên kết sâu bên trong (core electron) của những nguyên tử lân cận sẽ nhỏ hơn → dạng đường cong phân hủy bị hẹp lại → sai hỏng có xu hướng làm đường cong thực nghiệm hẹp lại.



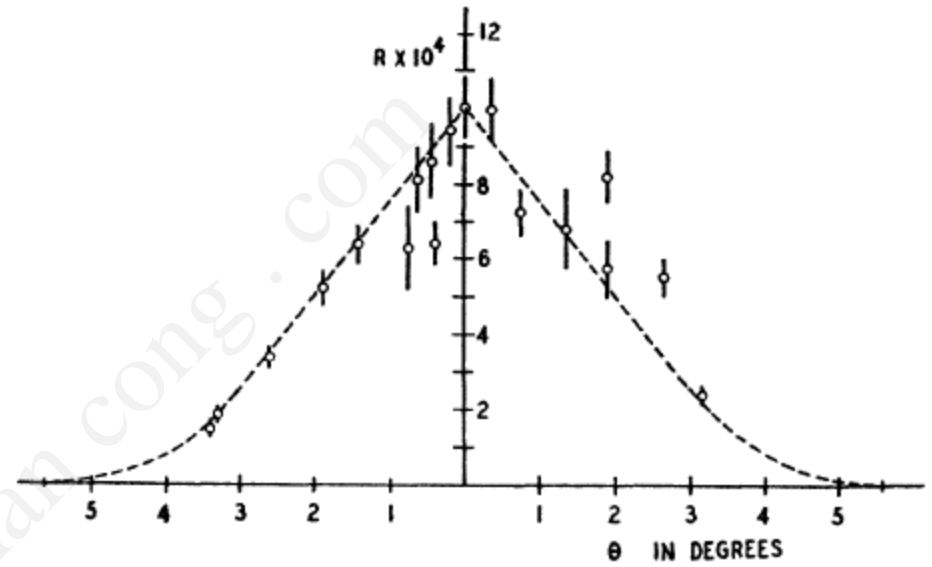
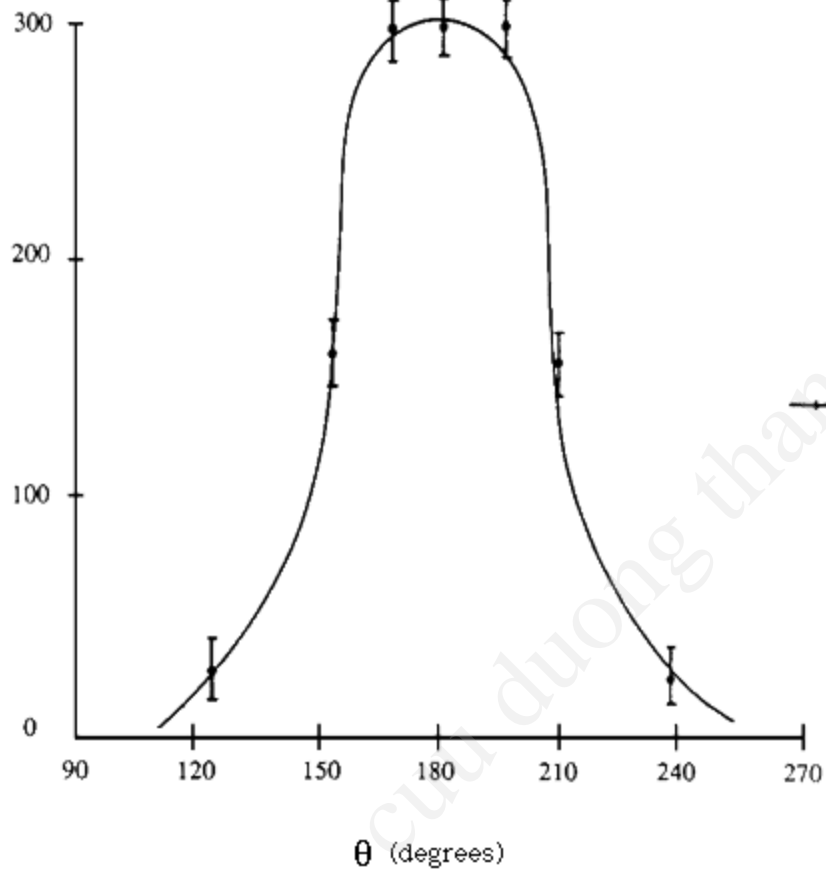
2. Methods of Positron Annihilation Spectroscopy: Angular Correlation of Annihilation Radiation - ACAR



Phương pháp phân tích tương quan góc giữa hai tia gamma giúp xác định sự phân bố động lượng positron-electron tuy nhiên thường dùng để xác định mức Fermi



Counts per minute



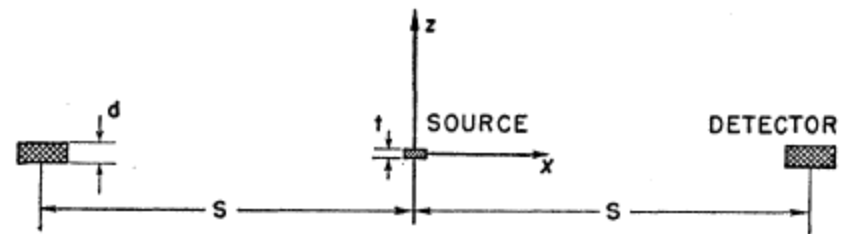
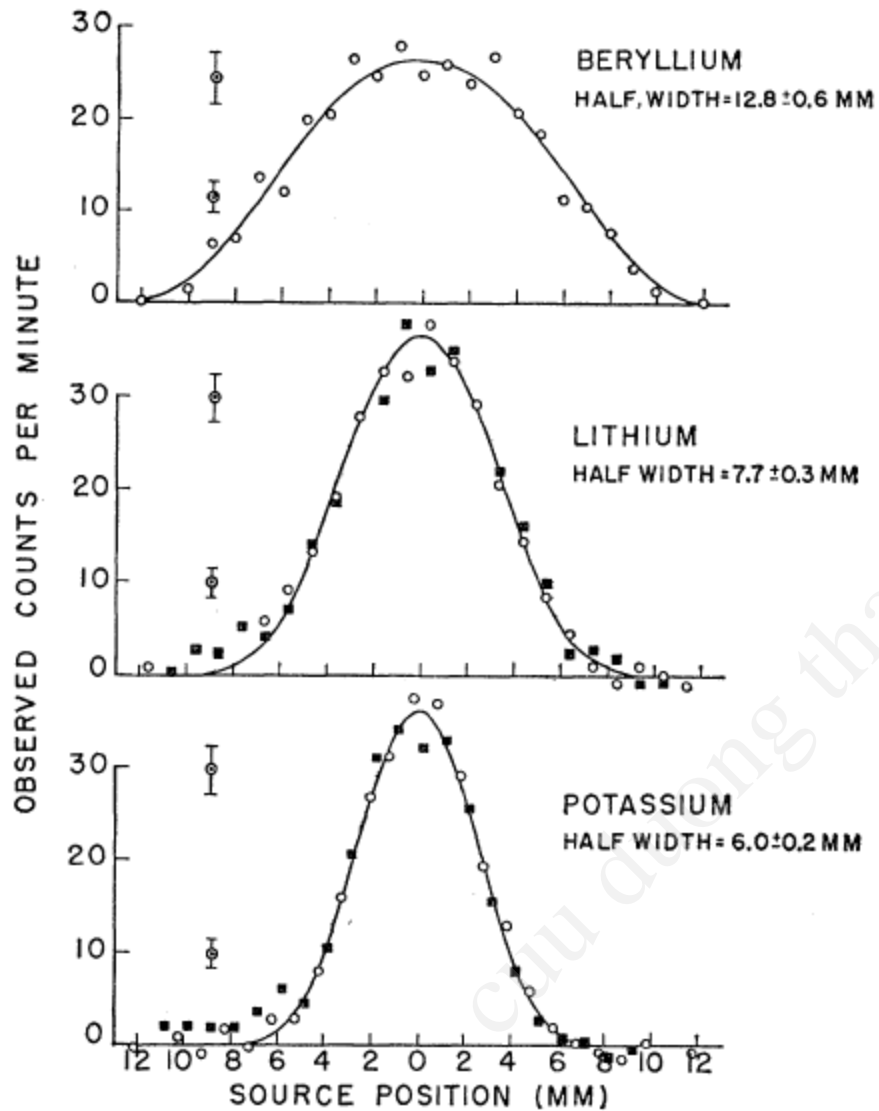


TABLE I. Calculated and observed half-widths of angular correlation curves for various metals. Resolution function, $R(z)$, half-width = 4.5 mm.

	Free electrons per atom	Calculated* Fermi energy (ev)	Calculated half-width (mm)	Observed half-widths (mm)		Fermi energy from measured half-widths (ev)
				Subtracting blank method	Shielded emitter method	
K	1	2.04	6.0	6.0 ± 0.2		2.1 ± 0.3
Na	1	3.16	6.7	6.8 ± 0.3		3.3 ± 0.4
Li	1	4.75	7.8	7.7 ± 0.3		4.6 ± 0.5
Ca	2	4.72	7.8	7.7 ± 0.3	8.0 ± 0.5	4.8 ± 0.4
Mg	2	7.16	9.3		9.4 ± 0.3	7.4 ± 0.5
Al	3	11.75	11.8	11.7 ± 0.6	11.1 ± 0.5	11.1 ± 0.9
Be	2	14.3	12.9	12.8 ± 0.6	12.3 ± 0.6	13.6 ± 0.9