

艾伦电负性与原子中正电子湮灭伽马谱的研究

袁芳 吴钰 马晓光

(鲁东大学 物理与光电工程学院, 山东 烟台 264039)

摘要: 本文将理论计算得到的 36 个原子的正电子湮灭伽马射线谱宽度与艾伦电负性进行对比拟合, 发现艾伦电负性与正电子湮灭伽马射线谱宽度之间存在线性相关关系, 证明了价电子在正电子湮灭过程中起主要作用。同时将艾伦电负性与描述伽马射线谱的特征值—平均多普勒频移(ADS)进行拟合对比, 进一步证明了电负性与正电子湮灭之间存在联系。因为平均多普勒频移是对伽马射线谱积分得到的物理量, 包含伽马谱的所有信息, 所以平均多普勒频移相比于半高全宽(FWHM)具有更广泛的适用性。这些研究将有助于对正电子湮灭过程的理解。

关键词: 艾伦电负性; 正电子湮灭; 伽马射线谱; 半高全宽; 平均多普勒频移

中图分类号: O414.2 文献标志码: A 文章编号: 1673-8020(2021)04-0315-05

低能正电子与原子和分子的相互作用是一个非常活跃的研究领域, 例如散射^[1-2]、正电子形成^[3]、正电子湮灭^[4-8]都被广泛研究。众所周知, 原子核对正电子施加的势具有排斥性, 使正电子波函数在靠近内壳层电子处振幅较小, 所以正电子在原子或分子中主要与价电子湮灭。在过去几十年关于正电子湮灭的研究中, 大多数实验测量结果也都与价电子的理论伽马射线谱的结果保持一致。在之前的研究中, 为了定量证明价电子在正电子湮灭过程中起主要作用, 对一系列原子进行了研究, 结果发现原子的拉姆电负性^[9]与正电子湮灭存在相关性^[10]。电负性表示分子中的原子吸引电子的能力^[11]。为了进一步证明电负性与理论伽马谱之间的关系, 本文中将对艾伦电负性^[12]与正电子湮灭理论伽马谱的关系进行研究。

1 理论介绍

正电子湮灭过程中的伽马射线谱通常由正负电子对的动量分布来测量^[13], 通过正电子-电子对波函数的傅立叶变换获得光子的动量分布

$$A_k(\mathbf{p}) = \int \psi_i(\mathbf{r}) \phi_k(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r}, \quad (1)$$

其中 $\psi_i(\mathbf{r})$ 和 $\phi_k(\mathbf{r})$ 分别表示电子和正电子波函数。

为了研究动量谱和射线谱的关系, 定义动量空间球坐标下的径向分布函数^[14]

$$D(\mathbf{p}) = \int_0^\pi d\theta \int_0^{2\pi} d\phi p^2 \sin\theta |A_i(\mathbf{p})|^2, \quad (2)$$

其中 $A_i(\mathbf{p})$ 是湮灭振幅。根据式(2)可以得到球平均动量分布, 它表示在动量为 $|\mathbf{p}|$ 的动量面上遇到电子-正电子对的平均概率, 可表示为^[14]

$$\sigma_i(\mathbf{p}) = \frac{D_i(\mathbf{p})}{4\pi p^2}. \quad (3)$$

湮灭过程中的 γ 射线由于正电子对的纵向动量分量而在能量上发生多普勒位移。因此, 为了得到动量 $\mathbf{p} = 2\epsilon/c$ 时的总概率密度, 需要对垂直于 \mathbf{p} 的平面进行积分, 得到第 i 个束缚轨道的电子与正电子湮灭的 γ 射线谱^[15]

$$\Omega_i(\epsilon) = \frac{1}{c} \int_{2\epsilon/c}^\infty \sigma_i(\mathbf{p}) p d\mathbf{p}, \quad (4)$$

由 ϵ 给出中心的多普勒频移 ($mc^2 = 511 \text{ keV}$), 对于低能正电子, 它的能谱由分子中的束缚电子决定。多普勒频移 ϵ 与湮灭束缚电子的结合能 ϵ_n 直接相关, 即 $\epsilon \propto \sqrt{\epsilon_n}$ ^[16], 也就是说多普勒频移是由分子键能决定的。对伽马射线谱进行积分, 得

收稿日期: 2021-03-18; 修回日期: 2021-06-02

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(11674145)

第一作者简介: 袁芳(1994—), 女, 山东泰安人, 硕士研究生, 研究方向为原子与分子物理。E-mail: 1056623833@qq.com

通信作者简介: 马晓光(1974—), 男, 山东青岛人, 教授, 硕士研究生导师, 博士, 研究方向为原子与分子物理。E-mail: hsiaoguangma

@ldu.edu.cn

到湮灭率^[17]

$$Z_{eff} = \int \Omega(\epsilon) d\epsilon. \quad (5)$$

湮灭电子的平均成键能量表示为^[10]

$$\bar{\epsilon} = \frac{\int \Omega(\epsilon) \epsilon d\epsilon}{\int \Omega(\epsilon) d\epsilon}, \quad (6)$$

射线谱携带了束缚态轨道中电子动量分布的信息。在本研究中, $\bar{\epsilon}$ 被称为平均多普勒频移 (average Doppler shift, ADS)。因为射线谱的多普勒频移与湮没的束缚电子的束缚能绝对值的平方根成正比, 所以射线谱的 ADS 代表了正电子对的

平均成键能。

2 结果与讨论

本文利用 Gaussian 09 软件化学包计算得到 36 个主族原子的正电子湮灭伽马射线谱的半高全宽 (full width at half maximum, FWHM) (见表 1) 将它们分别与其艾伦电负性进行拟合与对比分析。因为艾伦对于电负性的定义为“电负性是基态自由原子中价电子的平均单电子能”^[12], 所以对于艾伦电负性与伽马谱半高全宽的研究可以对价电子在正电子湮灭过程中的作用进行证明。

表 1 36 个原子的平均多普勒频移、半高全宽和艾伦电负性

Tab.1 FWHM, ADS and Allen's electronegativity of 36 atoms

原子	半高全宽 ^[10]	平均多普勒频移 ^[10]	艾伦电负性 ^[12]	原子	半高全宽 ^[10]	平均多普勒频移 ^[10]	艾伦电负性 ^[12]
H	1.94	0.79	2.3	K	0.67	0.33	0.734
He	3.06	1.31	4.160	Ca	0.89	0.45	1.034
Li	0.89	0.38	0.912	Ga	1.64	0.88	1.756
Be	1.12	0.58	1.576	Ge	1.86	0.88	1.994
B	2.09	0.91	2.051	As	2.24	1.02	2.211
C	2.46	1.13	2.544	Se	2.46	1.13	2.424
N	3.28	1.45	3.066	Br	2.76	1.27	2.685
O	3.73	1.67	3.610	Kr	2.98	1.38	2.966
F	4.55	1.98	4.193	Rb	0.67	0.33	0.706
Ne	5.00	2.21	4.787	Sr	0.82	0.44	0.963
Na	0.82	0.37	0.869	In	1.49	0.72	1.656
Mg	1.04	0.52	1.293	Sn	1.64	0.83	1.824
Al	1.57	0.69	1.613	Sb	1.94	0.95	1.984
Si	1.86	0.86	1.916	Te	2.09	1.05	2.158
P	2.39	1.04	2.253	I	2.39	1.17	2.359
S	2.61	1.19	2.589	Xe	2.54	1.26	2.582
Cl	3.06	1.37	2.869	Cs	0.67	0.34	0.659
Ar	3.36	1.52	3.242	Ba	0.75	0.44	0.881

将艾伦电负性与 36 个原子的正电子湮灭伽马谱的半高全宽进行线性拟合, 结果见图 1。从图 1 可以看出, 艾伦电负性与伽马谱的半高全宽具有很强的线性相关关系。因为在计算原子的正电子湮灭伽马谱的半高全宽时, 只包含价电子轨道, 所以定量证明了价电子在正电子湮灭过程中起主导作用。

平均多普勒频移是用来描述正电子湮灭伽马射线谱特征的物理量。正电子湮灭伽马谱线不是一条平滑的曲线, 它具有多个峰和肩峰。由公式 (6) 可以看出, 平均多普勒频移是对伽马谱线上的所有点进行积分得到的, 也就是说, 它包含伽马射线谱上的所有信息, 并且它具有明确的物理意义, 即表示平均成键能量。半高全宽只是伽马谱

线上的一个特殊点, 相比于半高全宽, 平均多普勒

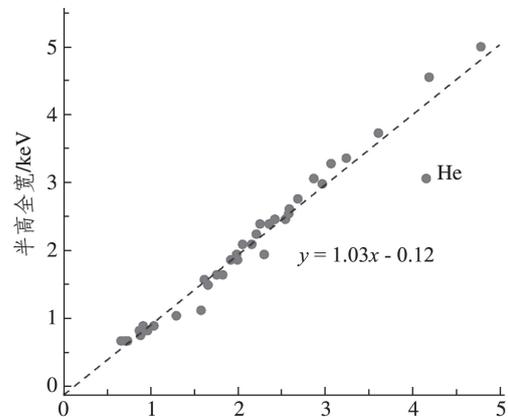


图 1 艾伦电负性与半高全宽拟合结果

Fig.1 Fitting result of Allen's electronegativity and FWHM

频移在描述伽马射线谱特征时更有优势。将艾伦电负性与原子的正电子湮灭伽马射线谱的平均多普勒频移值进行线性拟合,结果见图2。从图2可以看出,它们具有强线性相关关系。从图1和图2可以看出,H原子和He原子偏离出拟合线,这是因为这两个原子都只有一层电子,无法区分它们的价电子与核心电子,所以可能导致计算存在误差。

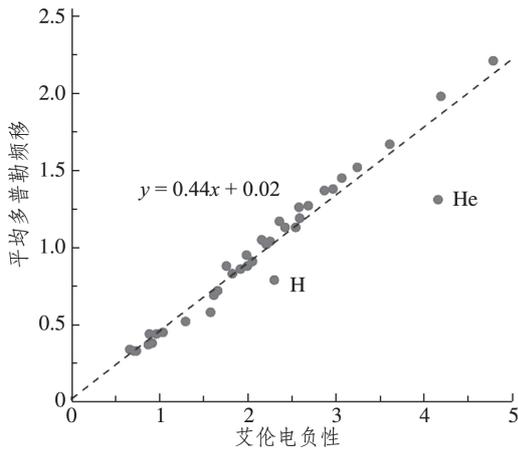


图2 艾伦电负性与平均多普勒频移拟合结果

Fig.2 Fitting result of Allen's electronegativity and ADS

将平均多普勒频移与半高全宽进行拟合,结果见图3。从图3可以看出,两者具有强线性相关关系,这说明平均多普勒频移完全可以像半高全宽一样作为描述正电子湮灭伽马射线谱的特征值。理论上来说,这些原子应该完全处在拟合线

上,但是不少原子游离在拟合线附近,这是半高全宽存在误差导致的。

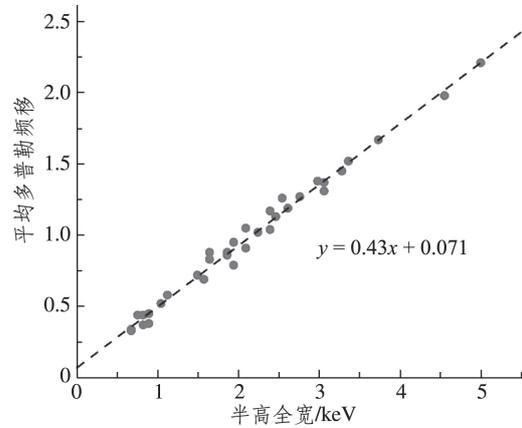
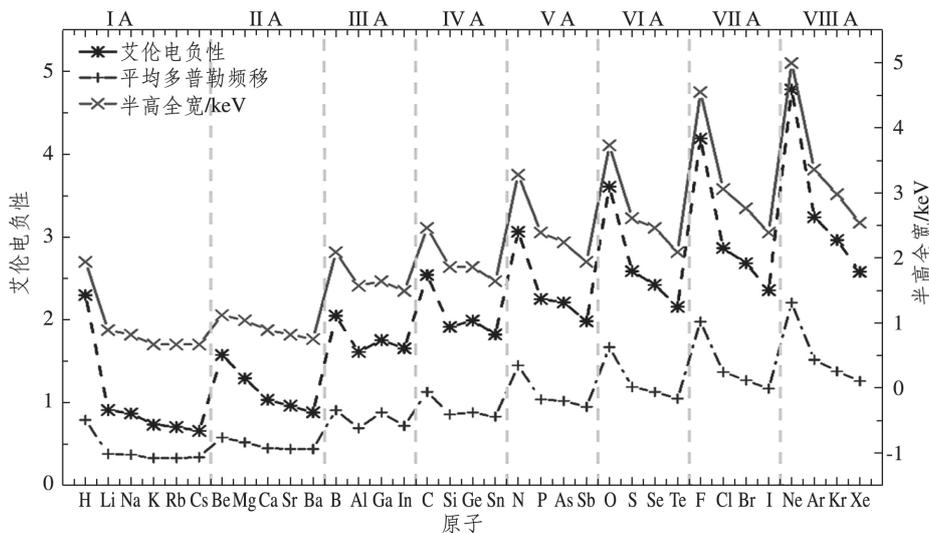


图3 半高全宽与平均多普勒频移拟合结果

Fig.3 Fitting result of FWHM and ADS

为了比较直观地呈现艾伦电负性、半高全宽和平均多普勒频移的变化趋势,本文将这36个主族原子按族分组进行对比,结果见图4。由于在前面的讨论中已经发现VIII族中氦原子较为特殊,所以图4中不包含氦原子。从I族到VIII族,每一族原子的艾伦电负性、平均多普勒频移和半高全宽均呈现逐渐降低趋势。电负性越低,伽马谱线半高全宽越窄,这表明电负性越高的原子越容易与正电子产生湮灭,进一步证明:可以利用艾伦电负性预测原子的正电子湮灭伽马谱的能量。因此,伽马谱的宽度可能代表价电子吸引正电子的能力。



(C)1994-2021 China Academic Electronic Journal Service. All rights reserved. http://www.cnki.net

图4 艾伦电负性、平均多普勒频移和半高全宽的对比

Fig.4 Comparison of Allen's electronegativity, ADS and FWHM

3 结语

本文将 36 个原子的正电子湮灭伽马射线谱的半高全宽和平均多普勒频移与其艾伦电负性进行对比拟合,发现它们具有强线性相关关系。艾伦电负性是价电子的平均单电子能,这说明在正电子湮灭过程中,价电子起主导作用。平均多普勒频移包含伽马射线谱上的所有点以及所有信息,与半高全宽相比,能更准确地表现伽马射线谱的特征。因为电负性与伽马射线谱的半高全宽和平均多普勒频移存在正相关关系,所以电负性越大的原子越容易与正电子发生湮灭。根据以上结论推测,伽马谱的半高全宽和平均多普勒频移可以表示价电子吸引正电子的能力。

参考文献:

- [1] BOYLE G J ,TATTERSALL W J ,COCKS D G ,et al . Kinetic theory of positron-impact ionization in gases [J].*Physics Review A* 2015 ,91(5) : 052710.
- [2] FABRIKANT I ,GRIBAKIN G F . Positronium-atom scattering at low energies [J].*Physics Review A* 2014 , 90(5) : 1185-1188.
- [3] SWANN A R ,CASSIDY D B ,DELLER A ,et al . Formation of positron-atom bound states in collisions between Rydberg Ps and neutral atoms [J]. *Physics Review A* 2016 ,93(5) : 052712.
- [4] IWATA K ,GRIBAKIN G F ,GREAVES R G ,et al . Positron annihilation on large molecules [J]. *Physics Review A* 2000 ,60(2) : 180.
- [5] CRAWFORD O H . Mechanism for fragmentation of molecules by positron annihilation [J].*Physics Review A* ,1994 ,49(5) : R3147-R3150 .
- [6] MURPHY T J ,SURKO C M . Annihilation of positrons on organic molecules [J].*Physics Letters A* ,1994 ,67(21) : 2954-2957.
- [7] GRIBAKIN G F ,YOUNG J A ,SURKO C M . Positron-molecule interactions: resonant attachment , annihilation ,and bound states [J].*Reviews of Modern Physics* 2010 ,82(3) : 2557.
- [8] MA X G ,ZHU Y H ,LIU Y . The γ -ray spectra of 5-carbon alkane isomers in the positron annihilation process [J].*Physics Letters A* ,2016 ,380(21) : 1848-1855.
- [9] RAHM M ,ZENG T ,HOFFMANN R . Electronegativity seen as the ground-state average valence electron binding energy [J].*Journal of the American Chemical Society* 2019 ,141(1) : 342-351.
- [10] 吴钰. 低能正电子与原子中的电子湮灭的物理机制研究[D].烟台: 鲁东大学, 2020.
- [11] PAULING L . The nature of the chemical bond. IV. The energy of single bonds and the relative electronegativity of atoms [J]. *Journal of the American Chemical Society* ,1932 ,54(9) : 3570-3582.
- [12] ALLEN L C . Electronegativity is the average one-electron energy of the valence-shell electrons in ground-state free atoms [J]. *Journal of the American Chemical Society* ,1989 ,111(25) : 9003-9014.
- [13] DUNLOP L G M ,GRIBAKIN G F . Many-body theory of gamma spectra from positron-atom annihilation [J]. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* , 2005 ,39(7) : 1647-1668.
- [14] MA X G ,WANGL Z ,YANG C L . Lovo electrons: the special electrons of molecules in positron annihilation process [J].*Journal of the Physical Society of Japan* , 2014 ,83(5) : 054301.
- [15] SWANN A R ,GRIBAKIN G F . Positron binding and annihilation in alkane molecules [J].*Physical Review Letters* 2019 ,123(11) : 113402 .
- [16] MA X G ,WANG L Z ,YANG C L . The dominant contributions of the inner valence electrons to the positron annihilation process in methanol [J].*Physical Letters A* 2014 ,378(16/17) : 1126-1129.
- [17] WANG F ,MA X G ,SELVAM L ,et al . Effects of quantum chemistry models for bound electrons on positron annihilation spectra for atoms and small molecules [J]. *New Journal of Physics* ,2002 ,14(8) : 85022-85034.

Allen's Electronegativity and the Positron Annihilation γ -Spectrum in Atoms

YUAN Fang , WU Yu , MA Xiaoguang

(School of Physics and Optoelectronic Engineering ,Ludong University ,Yantai 264039 ,China)

Abstract: In this paper ,the positron annihilation gamma-ray spectrum widths of 36 atoms obtained by theoretical calculation were compared with Allen's electronegativity. It was found that there was a linear correlation between the Allen's electronegativity and the width of the positron annihilation gamma-ray spectrum. It was proved that the valence electron played a major role in the positron annihilation process. The relationship between the electronegativity and positron annihilation was further proved by fitting the Allen's electronegativity with the average Doppler shift (ADS) ,which is the characteristic value of the gamma-ray spectrum. Because the average Doppler shift is the physical quantity obtained by the integration of the gamma-ray spectrum ,which contains all the information of the gamma-ray spectrum ,the average Doppler shift has a wider applicability than the full width at half maximum (FWHM) . These studies will contribute to the understanding of the positron annihilation process.

Keywords: Allen's electronegativity; positron annihilation; gamma-ray spectrum; full width at half maximum; average Doppler shift

(责任编辑 李秀芳)

(上接第 302 页)

Abstract ID: 1673-8020(2021) 04-0298-EA

Robust Predictive Control for Uncertain Fractional-order Descriptor Systems

ZHAO Baojia , LIU Xiaohua , GAO Rong

(School of Mathematics and Statistics Science ,Ludong University ,Yantai 264039 ,China)

Abstract: In this paper a robust model predictive control scheme was proposed for a class of fractional order singular systems with uncertainty. By constructing an appropriate Lyapunov function and using Lyapunov stability theory and LMI toolbox ,the sufficient conditions for the existence of robust predictive controller were obtained by solving the optimization problem of min-max quadratic performance index and the closed-loop system was proved to be admissible.

Keywords: fractional-order descriptor systems; uncertainty; robust predictive control; Lyapunov function

(责任编辑 顾建忠)