

UDC 621

Methods of Positron Annihilation Spectroscopy in Nuclear Technology

1. Constructional Materials of Active Zone Reactors (Method of Temporal Distribution of Annihilation Photons)

¹ Viktor I. Grafutin² V.A. Ilyukhin³ Ol'ga V. Ilyukhina⁴ Galina G. Myasishcheva⁵ Evgenii P. Prokop'ev⁶ Yurii V. Funtikov

¹⁻⁶ Russian Research Center "Kurchatov Institute", Russian Federation
25, B. Cheremushkinskaya street, Moscow, 117218

Abstract. Experimental research of steels, used in nuclear industry is conducted by the method of positron annihilation spectroscopy (Method of Temporal Distribution of Annihilation Photons). The experimental data process and their comparison with literary data enabled to detect vacancy defects, including the ones, induced by neutron irradiation and determine their sizes.

Keywords: positron annihilation spectroscopy; Method of Temporal Distribution of Annihilation Photons; nuclear technologies.

Введение. В рамках международной программы Primavera в 2007 году начаты работы по исследованию корпусных сталей используемых в действующих реакторах ВВЭР-440. В процессе эксплуатации реакторов этого типа происходит охрупчивание конструкционных материалов. Обычно считают, что причиной распухания является накопление точечных дефектов (в первую очередь вакансий и их кластеров), а также выделение пресипитатов, образующихся под воздействием облучения нейтронами и содержащих преимущественно медь и фосфор. В настоящее время определены режимы отжига для продления срока службы корпусов этих типов реакторов и проведен отжиг корпусов. Дальнейшая эксплуатация отожженных корпусов реакторов, определение возможностей повторного отжига корпусов требуют проведения дополнительных исследований состояния материала в отожженном и повторно облученном состояниях. Для обоснования разрабатываемых прогнозных моделей необходима экспериментальная информация об эволюции тонкой структуры этих состояний. В рамках программы Primavera проведены комплексные исследования различных состояний материала корпусов ВВЭР-440, облученных до флюенсов порядка $6 \cdot 10^{19}$ н/см². Исследовались образцы сталей находящиеся в облученном, отожженном и вторично облученном состояниях [1-3].

Объектами исследования являлись образцы сварных соединений с различным содержанием фосфора и с различной степенью облучения. Цель работы состоит в выяснении влияния нейтронного облучения и последующего отжига на свойства конструкционных материалов, используемых в реакторах ВВЭР. Образцы исследуемых сталей облучались в 2002–2003 годах на реакторе Ровенской АЭС. Химический состав и состояние предназначенных для исследования образцов сталей представлен в таблицах №1 и №2.

Данная работа посвящена исследованию указанных образцов сталей одним из методов позитронной аннигиляционной спектроскопии – методом основанным на измерении временного распределения аннигиляционных фотонов ВРАФ.

Метод позитронной спектроскопии является сравнительно новым методом изучения строения вещества. Метод основан на имплантации в исследуемый образец позитронов, образующихся в результате бета+ распада источника (как правило, ядер изотопов Na-22, Cu-64, Co-58, Ti-44), и последующей регистрации характеристик аннигиляционного гамма-излучения. В позитронной спектроскопии позитрон выполняет функции зонда,

аннигиляционные характеристики которого определяются свойствами окружающей его среды.

Применение позитронной спектроскопии в физике и химии конденсированных сред обусловлено тем обстоятельством, что этот метод позволяет получать богатую, а зачастую уникальную информацию о свойствах этих сред [4-14]. Кроме того, позитронная спектроскопия относится к методам неразрушающего контроля и позволяет проводить исследования слоистых структур и поверхности твердого тела. Необходимо подчеркнуть, что интерпретация экспериментальных результатов требует наличия развитых теоретических представлений о позитронных состояниях, позитронных процессах и позитронной аннигиляции в полупроводниках, металлах, слоистых структурах, ионных кристаллах и растворах. Параметры аннигиляции позитронов в конденсированных средах тесным образом связаны как со свойствами среды, так и со свойствами первичных продуктов радиолиза среды, окружающих позитрон на конечном участке собственного трека. Таким образом, измерения параметров аннигиляции позитронов в среде позволяет получать информацию об электронной структуре среды, образовании и эволюции дефектов кристаллической решетки, вызванных, в частности, радиационными нарушениями, о механизме и кинетике физико-химических процессов с участием аналога атома водорода – позитрония (связанное состояние позитрона и электрона) и первичных продуктов радиолиза конденсированных сред.

Использование позитронных методик для изучения твердого тела дает информацию о структуре твердого тела, дефектах кристаллической структуры, состоянии поверхности и свойствах приповерхностных слоев вещества и слоистых структур, распределении валентных электронов и электронов зоны проводимости по импульсам и позволяет изучать локальные микрополя в веществе, образовании, эволюции и концентрации радиационно индуцированных дефектов.

В средах, содержащих дефекты вакансионного типа, позитроны с большой вероятностью захватываются дефектами и аннигилируют в них. При этом экспериментально наблюдаемое время жизни позитронов зависит от размера полости, в которой он находится.

Сопоставление измеряемых времен жизни позитронов в исследуемых материалах с известными временами жизни в различного типа дефектах позволяет идентифицировать тип дефекта, а по измерению доли позитронов, аннигилирующих в этом дефекте, получать информацию о концентрации дефектов. Эти свойства и являются главными при определении размера нанополостей и дефектов структуры [3, 8, 15-19].

Позитронный метод основан на экспериментальном измерении параметров аннигиляции позитронов и позитрония (временное и угловое распределение аннигиляционных фотонов) в среде при варьировании состава среды, напряженности внешнего электрического поля, температуры и иных термодинамических параметров.

Методы позитронной диагностики интенсивно используются при исследовании электронной структуры металлов и сплавов. Это связано с тем, что метод аннигиляции позитронов позволяет определять такие важные характеристики металлов, как распределение электронов по импульсам, энергию уровня Ферми ϵ_f , число свободных электронов Z_e , приходящихся на один атом металла, и их концентрацию n_p в зоне проводимости. Эти характеристики, как известно, во многом определяют механические, электрические и магнитные свойства металлов. Кроме того, этот метод является наиболее чувствительным методом для выявления изменений электронной структуры и свойств наноразмерных вакансионных дефектов.

Позитронная аннигиляционная спектроскопия является по-существу единственным методом, позволяющим изучать процессы накопления и отжига радиационных дефектов вакансионного типа.

Однако, применение метода позитронной спектроскопии для исследования облученных нейтронами реакторных сталей имеет ряд особенностей. Одной из них является активация исследуемых материалов, обусловленная наработкой в них изотопов ^{60}Co и ^{64}Mn их последующего распада. Так, например, в стальном образце размером $1\text{ см}^2 \times 0.4\text{ мм}$ (типичный размер для позитронной спектроскопии) и облученном флюенсом $\sim 10^{21}\text{ н/см}^2$ образуется такое количество ^{60}Co , что его активность достигает 4 МБк. Примерно такую

активность приобретает корпус водо-водяного ядерного реактора за 10 лет. Средняя активность исследованных образцов составляла ≈ 5 МБк.

Активность исследованных образцов сопоставима с активностью используемых в методе ВРАФ позитронных источников.

Работа по контракту включала в себя ниже перечисленные этапы работ:

1. Сборка и настройка позитронного спектрометра.

В первом квартале 2010 года в ИТЭФ проводилась сборка и настройка электронных трактов временного позитронного аннигиляционного спектрометра (ПАС) из блоков наносекундной электроники (Рис. 1).

Спектрометр представляет собой набор модульных наносекундных электронных блоков, размещенных в крейте Canberra и соединенных между собой набором кабелей. ПАС предназначен для измерения временного интервала между двумя гамма квантами, образующимися при аннигиляции позитронов, введенных в исследуемую среду. Гамма-кванты регистрируются двумя детекторами на основе быстрых фотоумножителей XR1020 и сцинтилляторов BaF_2 . Сигнал с одного из детекторов запускает систему отсчета времени, а с другого ее выключает. Детекторы соединены с блоками высоковольтного питания (Ortec 556), обеспечивающими необходимое для их работы напряжение (2000 В) и ток (≈ 10 микро Ампер). С каждого из детекторов снимается по два сигнала разной полярности. Эти сигналы (несколько вольт) анализируются по амплитуде и времени испускания модульными блоками Ortec 583B, Canberra 2126. После амплитудного анализа сигналы поступают через блок временной задержки (Canberra 2058) на быструю схему совпадений (Ortec 414A), которая отбирает сигналы, испущенные в заданный интервал времени. Сигналы, обработанные дискриминаторами Canberra 2126 и Ortec 583B, поступают на время - амплитудный конвертор (Ortec566), где интервал времени между сигналами преобразуется в амплитуду выходного сигнала (несколько вольт). Далее этот сигнал блоком Acqiris Digitalizer card PCI преобразуется в набор цифровых кодов и в таком виде поступает на обработку (PC Fujitsu-Siemens) и хранение в многоканальный анализатор MCA Ortec PC.

После сборки и настройки позитронной установки экспериментально измерены спектры временного распределения аннигиляционных фотонов в ряде металлов с целью определения разрешающего времени установки. При регистрации гамма-квантов от Co^{60} достигнуто разрешающее время 240 пикосекунд, что сопоставимо со временем жизни позитронов в радиационных дефектах.

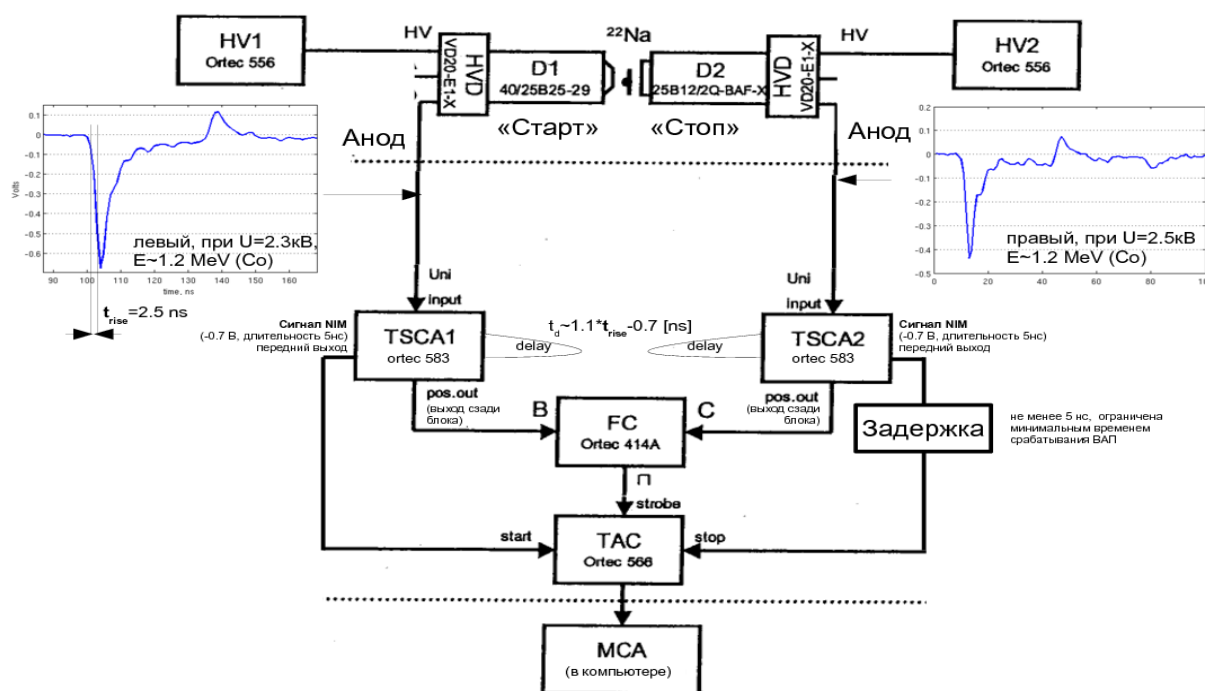
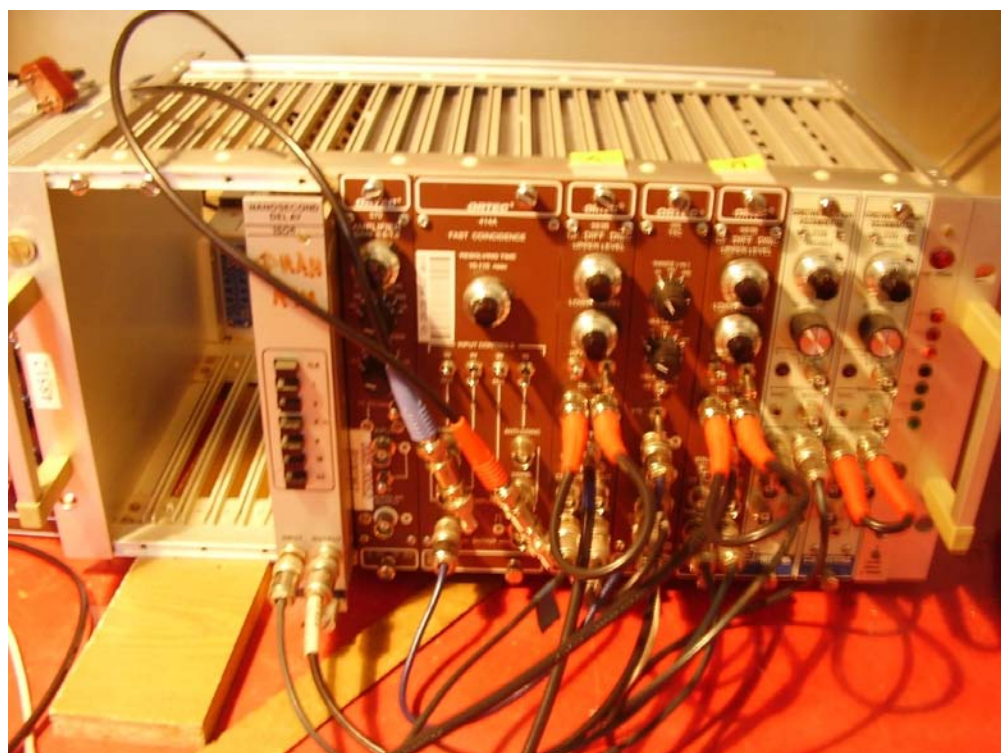
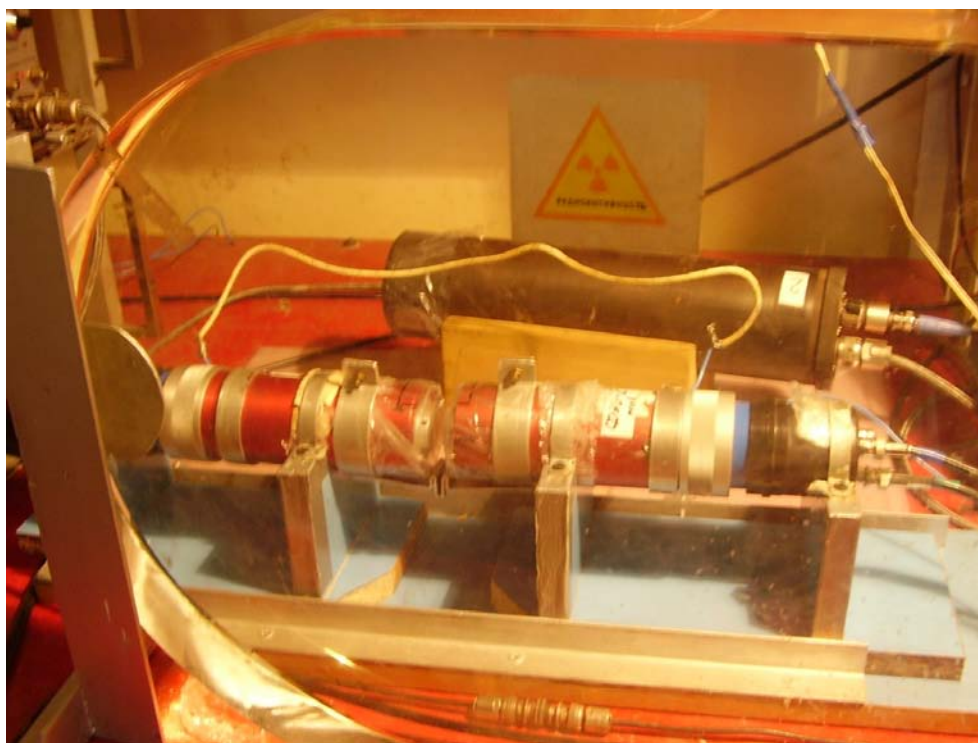


Рис. 1. Схема позитронного спектрометра

Тестирование спектрометра

Для тестирования временного аннигиляционного спектрометра проведены измерения спектров ВРАФ в образцах чистого Si.

Кремний нужен для проверки правильности настройки аппаратуры. Для кремния хорошо известно из литературы время жизни позитронов – 218 пикосекунд. Обработка экспериментальных спектров ВРАФ с ранее определенной функцией разрешения установки позволила определить долю позитронов, аннигилирующих в материалах источника позитронов (25 %) и время жизни позитронов в образцах кремния (220 пс), полученного из МИЭТ.



2. Позитронный источник.

2.1. Приобретение радиоактивного изотопа Na-22

Во втором квартале 2010 года для проведения экспериментов по измерению времен жизни позитронов были изготовлены необходимые источники позитронов, предназначенные для выполнения работ по контракту IE.V103511IE с JRC. Для этих целей произведена закупка в ОАО «В/О «Изотоп» радионуклида Na-22 номинальной активностью 5 мКи (185 МБк) в виде водного раствора соли NaCl. Выпуск препарата осуществляется согласно требованиям системы обеспечения качества – стандартам серии ISO-9001-2001.

Наработка и выделение радионуклида Na-22 произведена в ФГУП «Государственный научный центр Российской Федерации – Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского».

Технология получения изотопа Na-22 состоит в его выделении из алюминиевых мишеней, облученных протонами (4000 МэВ). В конечном счете, изотоп Na-22 переводился в водный раствор хлорида натрия.

Параметры закупленного водного раствора NaCl (изотопа Na-22):

- тип излучения Na-22 - $+\beta$, γ
- период полураспада, 2.6 года.
- содержание неактивных примесных катионов ≤ 50.0 мкг/мл
- содержание радионуклидных примесей ≤ 0.1 атомных %
- объемная активность = 1.0 мКи/мл

2.2. Изготовление источника позитронов для временных экспериментов

Для изготовления источника позитронов для временных экспериментов был использован водный раствор соли $^{22}\text{NaCl}$. Зная активность всего раствора и его объём, было рассчитано количество препарата, необходимое для изготовления источника позитронов активностью ≈ 100 мКи. Для герметизации радиоактивного препарата использовалась лавсановая пленка толщиной 7,5 микрон. Водный раствор соли $^{22}\text{NaCl}$ наносился микропипеткой на лавсановую пленку и высушивался при температуре -60 °C. Эта процедура повторялась несколько раз до достижения требуемой активности источника позитронов. Затем лавсановая пленка с солью $^{22}\text{NaCl}$ накрывалась пленкой такой же толщины и заваривалась.

Получившийся сэндвич помещался внутрь металлической оправки, с наружи которой крепились липкой лентой исследуемые образцы (рис. 2).

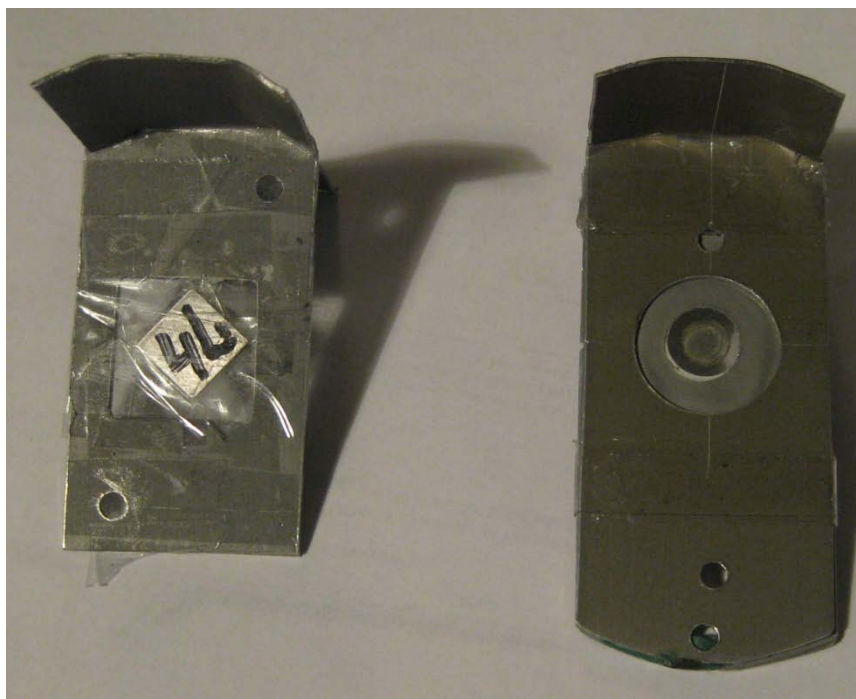


Рис. 2. Справа – источник позитронов на основе $^{22}\text{NaCl}$ в лавсане для проведения экспериментов по аннигиляции позитронов. Наличие радиоактивной соли видно по потемнению в середине лавсановой пленки. Диаметр источника ≈ 1 см. Слева – позитронный источник, с исследуемыми образцами стали (пластинки размером 1 кв.см)

Приготовленный источник был протестирован на герметичность. Для этого он помещался в прозрачный сосуд, который затем был откачен до ~ 1 мм рт. ст. В результате воздух, содержащийся внутри «конверта», может его покинуть только через дефект в конверте (например, плохо заделанный шов между двумя пластинами, либо сквозная дыра в пластине или пленке). Если же вместо этого «конверт» раздувается и сохраняет такую форму в течение нескольких часов то, его можно считать герметичным и не представляющим опасности при проведении последующих экспериментов по позитронной аннигиляционной спектроскопии.

При проведении измерений временных аннигиляционных спектров источник позитронов зажимается между двумя пластинами исследуемых стальных образцов (Рис. 2, слева, Рис. 3).



Рис. 3. Слева – источник позитронов, справа – оправки с исследуемыми образцами сталей. Образцы крепились к оправкам тонкой липкой лентой

Были приняты необходимые меры для исключения повреждения образцами защитной оболочки источника.

После сборки металлический держатель с источником позитронов и двумя пластинками исследуемого вещества помещался в детектирующий узел временного спектрометра между двумя фотоумножителями, регистрирующими «стартовый» и «стоповый» гамма-кванты (Рис. 4).

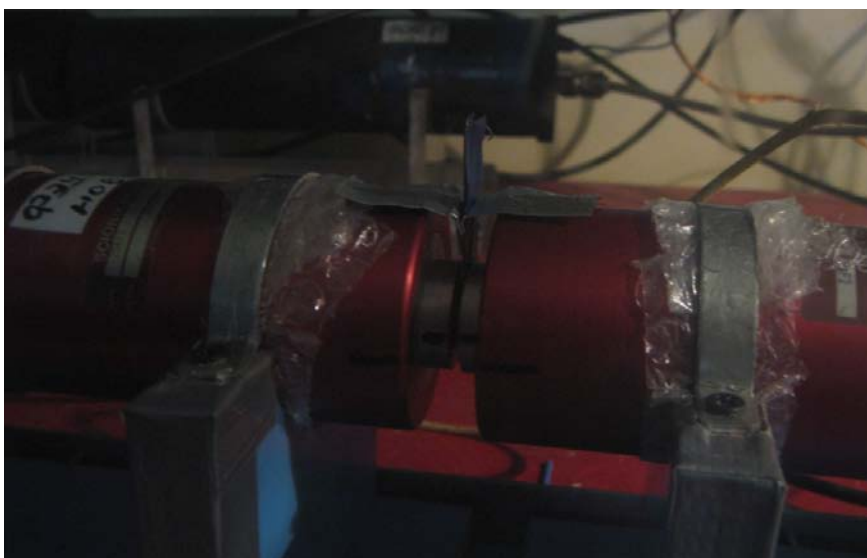


Рис. 4. Детектирующий узел аннигиляционного спектрометра: источник позитронов, с двух сторон обложенный исследуемыми образцами, зажат между двумя фотоумножителями, регистрирующими «стартовый» и «стоповый» гамма-кванты

В ходе тестовых измерений временных аннигиляционных спектров в монокристаллических образцах кремния была определена доля позитронов, аннигилирующих в источнике (соль NaCl + примеси и лавсановая оболочка). Эта доля составила 23%. Соответственно, остальные позитроны (77%) вылетают из источника и могут попадать в исследуемые образцы. При этом определено и характерное время жизни позитронов, аннигилирующих в самом позитронном источнике (0.175 нс, 0.427 нс, 1.84 нс).

3. Определение функции временного разрешения спектрометра при использовании изотопа Co-60

Функция разрешения (ФР) в идеале представляет собой форму спектра, регистрируемого многоканальным анализатором от фотонов 1.28 и 0.511 МэВ, попавших одновременно в «стартовый» и «стоповый» детекторы.

В качестве первого приближения обычно принимают за функцию разрешения параметры пика «мгновенных совпадений» от гамма-квантов 1.17 МэВ и 1.33 МэВ, испускаемых последовательно с ничтожной временной задержкой (менее 1 пс) сразу после бета-распада Co-60. рис. 5.

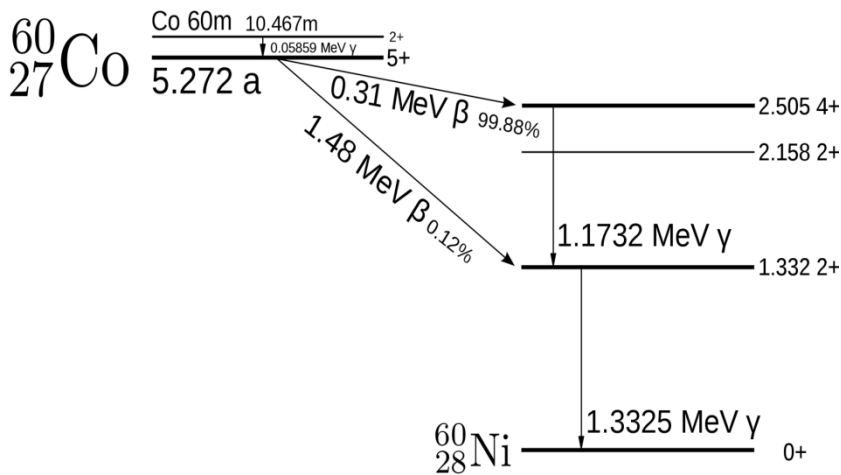


Рис. 5. Схема ядерных переходов изотопа Co-60, период полураспада $T_{1/2} = 5.272$ года

Следует иметь в виду, что в этих измерениях значения энергетических «порогов» дискриминаторов в «стартовом» и «стоповом» каналах оптимизированы для регистрации фотонов 1.28 и 0.511 МэВ соответственно, то есть для измерений позитронных аннигиляционных спектров при использовании изотопа Na-22 в качестве источника позитронов. При этом гамма-кванты кобальта с высокой эффективностью регистрируются «стартовым» ФЭУ и с заметно меньшей (примерно в пять раз) эффективностью «стоповым». С целью изучения стабильности работы электроники спектрометра спектры записывались последовательно через каждые 4 часа в течение 30 часов без выключения установки. Установлено, что температурно-временной дрейф установки оказывается небольшим ($\approx 10 - 15$ пс) и не должен мешать проведению непрерывных измерений. Скорее всего этот дрейф связан с суточной вариацией температуры в экспериментальной комнате (температурная стабилизация отсутствует). Кроме того, в процессе настройки спектрометра установлено, что функция разрешения спектрометра зависит как от геометрии (расположения источника относительно детекторов) измерений, так и от активности кобальтового источника. Сделан вывод, что измерения должны проводиться со строго фиксированной геометрией.

Для уточнения вида ФР был проведен ряд экспериментов с источником позитронов при использовании в качестве исследуемых образцов простых веществ с известными из литературы временами жизни (Sn, Al, Mo, Ni, Si). В идеале реперные образцы должны характеризоваться моноэкспоненциальной кинетикой аннигиляции позитронов в них. При этом это время жизни позитронов достаточно точно рассчитано теоретически для многих простейших одноэлементных кристаллических веществ и многократно подтверждено экспериментально. Основная сложность, тем не менее, состоит в том, чтобы удостовериться,

что тот или иной имеющийся в лаборатории образец действительно является «реперным», т.е. бездефектным, с временем жизни позитронов, близким к теоретически рассчитанному. В силу этой неопределенности уточнение вида ФР носит итеративный характер и достигается при совместной обработке некоторого числа экспериментальных спектров.

Для отработки методики и определения параметров источника проведено измерение аннигиляционного спектра позитронов в лавсане. Для этого источник позитронов был окружен с двух сторон толстым слоем лавсана, что обеспечивало в нем полную остановку (и аннигиляцию) всех позитронов. Измерения проводились непрерывно в течение суток с записью результатов через каждые 2 часа. Эти измерения позволили уточнить временной дрейф спектрометра и определить параметры аннигиляционных спектров позитронов в источнике.

В процессе эксплуатации спектрометра неоднократно измерялись и обрабатывались аннигиляционные спектры вышеприведенных простых веществ, что позволяло следить за стабильностью работы установки.

4. Стратегия исследования методом ВРАФ образцов реакторных сталей.

Проведены измерения временного распределения аннигиляционных фотонов (ВРАФ) в необлученных, облученных, облученных и отожженных образцах сталей действующих реакторов ВВЭР-440. Исследованы образцы сварных швов с различным содержанием фосфора и с разной степенью облучения. Образцы облучались в 2002-2003 годах в каналах реактора Ровенской АЭС. Флюенс нейтронов варьировался от $1 \cdot 10^{19}$ н/см² до $6 \cdot 10^{19}$ н/см².

Химический состав и состояние исследованных образцов сталей представлен в таблицах №1-2

Таблица 1.

Химический состав исследованных образцов стали

	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	Cu	V
LP	0.04	0.04	1.12	0.027	0.013	1.42	0.13	0.49	0.16	0.19
MP	0.04	0.39	1.15	0.031	0.013	1.42	0.13	0.50	0.16	0.18
HP	0.05	0.36	1.09	0.038	0.014	1.54	0.13	0.51	0.16	0.19

LP - Сварной шов с «низким» содержанием фосфора

MP - Сварной шов со «средним» содержанием фосфора

HP - Сварной шов с «высоким» содержанием фосфора

Отжиг проводился при температуре 475 °С.

Как уже говорилось выше применение метода позитронной спектроскопии для исследования облученных реакторных сталей осложняется наличием в них радиоактивного изотопа Co^{60} .

Проведенный нами гамма активационный анализ облученных образцов показал, что на момент исследования активность этих образцов в основном определяется Co^{60} с незначительной примесью Mn^{64} .

Экспериментальные спектры ВРАФ в облученных сталях являются суперпозицией ряда спектров – аннигиляции позитронов в сталях, аннигиляции позитронов в материалах источника, совпадений гамма квантов от Co^{60} , содержащегося в этих сталях, и совпадений гамма квантов Co^{60} и гамма квантов, порожденных Na^{22} , содержащимся в позитронном источнике.

Таблица 2.

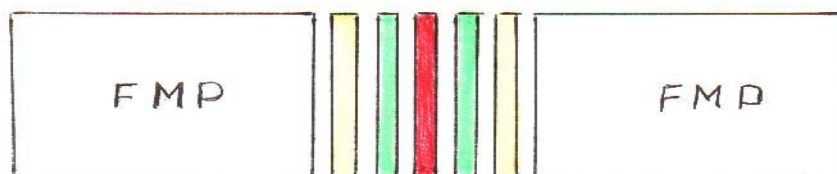
Состояние исследованных образцов стали реакторов ВВЭР-440: 10x10x1 мм

Маркировка образцов	P (%)	Состояние образцов	Флюенс $\times 10^{19} \text{H}/\text{см}^2$ ($E > 0.5 \text{ МэВ}$)	Кол-во
HP Н1	0.038	необлученные	0	2
MP М1	0.031	необлученные	0	2
LP L1	0.027	необлученные	0	2
HP Н2	0.038	облученные	1.3	2
MP М2	0.031	облученные	1.2	2
LP L2	0.027	облученные	1.3	2
MP М3	0.031	облученные	~5.9	2
HP Н3	0.038	облученные	~6.4	2
LP L3	0.027	облученные	~6.2	2
HP Н4	0.038	облученные+ отожженные	~5.7	2
MP М4	0.031	облученные + отожженные	5.9	2
LP L4	0.027	облученные + отожженные	~5.7	2
Суммарное количество		Все позиции		24

4а. Схема эксперимента с облученными образцами сталей «PRIMAVERA»

Для учета в измеряемый спектр вклада от Co^{60} , содержащегося в облученных образцах, измерения проводились с использованием различных конфигураций исследуемых образцов по отношению к источнику позитронов:

а)

Красный - источник Na^{22} FMP – фотоумножители с детекторами BaF_2

Зеленые – облученные образцы с флюенсом F

Желтые – необлученные образцы того же состава, что и облученные

б)

Красный - источник Na^{22} 

Зеленые - облученные образцы с флюенсом F

Желтые - необлученные образцы того же состава, что и облученные

Сделаны измерения исследуемых образцов по обоим вариантам - а) и б).

В варианте а) аннигиляция позитронов происходит в облученных образцах, а необлученные образцы нужны для сохранения геометрии эксперимента.

В варианте б) аннигиляция позитронов происходит в необлученных образцах, а облученные образцы нужны для сохранения геометрии эксперимента и учета вклада от различных комбинаций гамма квантов Na^{22} и Co^{60} .

Геометрия эксперимента в обоих вариантах одинакова и, можно надеяться, что паразитные эффекты будут также одинаковы и их корректно удастся учесть.

Этапы обработки экспериментальных результатов:

1). Вычитание фона из экспериментальных спектров.

2). Нормировка спектров с вычетом фона на единицу.

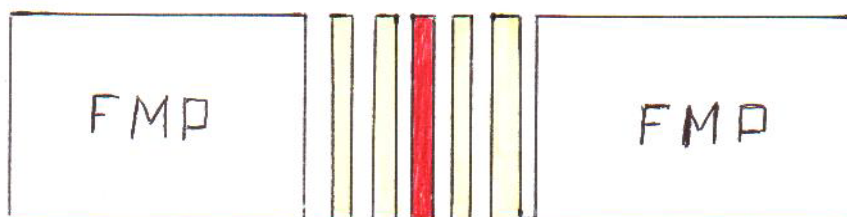
3). Из отнормированного спектра облученных образцов вычтем отнормированный спектр необлученных образцов.

Можно полагать, что таким образом нам удастся учесть все нежелательные эффекты, связанные с совпадениями генетически не связанных гамма квантов, т.е. получаемых от разных распадов – Na^{22} и Co^{60} .

Ожидаемый результат. Из литературных данных известно [20, 21], что при облучении в сталях подобного состава исчезает короткоживущая компонента с временем жизни $\approx 50 - 60$ ps и интенсивностью $\approx 10\%$ и появляется новая компонента с временем жизни ≈ 260 ps и интенсивностью $\approx 10\%$, обусловленная радиационными дефектами.

Для учета в измеряемый спектр паразитного вклада от совпадений генетически не связанных гамма квантов Co^{60} , содержащегося в облученных образцах, с гамма квантами от Na^{22} проведены дополнительные измерения по схеме

в)

Красный - источник Na^{22} 

Желтые – необлученные образцы той же толщины, что и облученные.

Дополнительная пара необлученных образцов той же толщины, что и облученные

Сделаны также измерения исследуемых образцов по этому вариантам б) и вариант в).

В варианте б) аннигиляция позитронов происходит в необлученных образцах, а облученные образцы нужны для сохранения геометрии эксперимента и учета вклада от различных комбинаций гамма квантов Na^{22} и Co^{60} .

В варианте в) аннигиляция позитронов происходит в необлученных образцах, а вторая пара необлученных образцов нужна для сохранения геометрии эксперимента.

Геометрия эксперимента в обоих вариантах одинакова и, можно надеяться, что паразитные эффекты будут также одинаковы и их корректно удастся учесть.

Этапы обработки экспериментальных результатов:

- 1). Вычитание фона из экспериментальных спектров.
- 2). Нормировка спектров с вычетом фона на время единицу.
- 3). Из отнормированного на время спектра необлученных образцов варианта б) вычтем отнормированный спектр необлученных образцов варианта в).

Можно полагать, что таким образом нам удастся учесть все нежелательные эффекты, связанные с совпадениями генетически не связанных гамма квантов, т.е. получаемых от разных распадов – Na-22 и Co-60, так и спектр мгновенных совпадений гамма квантов Co-60.

Можно полагать, что таким образом нам удастся учесть все нежелательные эффекты, связанные с совпадениями генетически не связанных гамма квантов, т.е. получаемых от разных распадов – Na-22 и Co -60.

Ожидаемый результат. Если корректно провести измерения с соблюдением геометрии то, по нашему мнению, из анализа спектров, полученных в вариантах б) и в) удастся получить

форму спектра совпадений генетически не связанных гамма квантов от Co-60 и Na-22. Предположительно, эти совпадения должны приводить только к линейному увеличению фона без изменения его формы. Однако это предположение нуждается в экспериментальной проверке.

В экспериментах отдельно измерялись аннигиляционные спектры в необлученных и облученных сталях, а также спектры мгновенных совпадений от гамма квантов Co-60, содержащегося в облученных образцах. В последнем случае измерения проводились без позитронного источника.

Проведенные анализы экспериментальных результаты позволяют оценить влияние каждого из перечисленных факторов и наметить стратегию проведения экспериментов и обработки полученных результатов.

Таблица 3.

Параметры спектров ВРАФ исследованных сталей

Markin of the welds	Condition	Fluence· 10 ¹⁹ , sm ⁻² E>0.5Me B	N _{start} 10 ²	N _{stop} 10 ²	N coincid ences	Contributor Co60 in the PAL spectru (%)	Contribution Na22 in the <i>background</i> (%)
H1- Na - H1	unirradiat ed		300	700			100
H2 - Na +Co- H2	irradiated	1.3	307	794			87
H2 - Co - H2	irradiated	1.3	32	13,8	4	2	0
H3 - Na+ Co - H3	irradiated	≈ 5.9	400	812			62
H3 - Co - H3	irradiated	≈ 5.9	137	56	16	7,7	0
H4- Na+Co - H4	irradiated +annealing	≈ 5.7	405	885			61,6
H4 - Co - H4	irradiated +annealing	≈ 5.7	145	58	18	8,25	0
L1-Na - L1	unirradiat ed						100
L2 - Na+Co - L2	irradiated	1.3	282	640			82
L2 - Co - L2	irradiated	1.3	38	14	5	2,1	0
L3 - Na+Co - L3	irradiated	≈ 6.2					58

L3 – Co - L3	irradiated	≈ 6.2	133	54	21	9,3	1
L4 - Na+Co - L4	irradiated +annealing	≈ 5.7	425	800			59,4
L4 – Co - L4	irradiated +annealing	≈ 5.7	121	51	17	7,7	0,6
M1- Na - M1	unirradiated		290	750	315		100
M2 -Na+Co - M2	irradiated	1.2	250	750	240		84,5
M2 –Co - M2	irradiated	1.2	28	12	5	1,95	0
M3 - Na+Co - M2	irradiated	≈ 6.4	350	680	260		63,6
M3 – Co - M3	irradiated	≈ 6.4	133	45	18	7,6	0
M4 - Na+Co - M4	irradiated +annealing	≈ 5.9	340	660	260		63,6
M4 - Co - M4	irradiated +annealing	≈ 5.9	100	40	16	6,6	0
H3 - M3 -L3 + Co	irradiated		333	156	60		

Совпадения гамма квантов $Co\ 60$ и гамма квантов Na^{22} приводят к увеличению фона примерно на 10–15 % для слабо облученных образцов и на 35–40 % для сильно облученных образцов сталей. Активность (число распадов в единицу времени) образцов с маленькими флюенсами по отношению к активности позитронного источника составляла ~ 5 %, для образцов с большим флюенсом ~ 25 %.

Совпадения от гамма квантов $Co\ 60$ вносят вклад в суммарный спектр в виде спектра мгновенных совпадений (гаусс). Центр пика от Co^{60} сдвинут на 80–100 пикосекунд от центра пика ВРАФ в сторону меньших каналов. Сдвигка отражает время термализации и диффузии позитронов в образце. Вклад совпадений гамма квантов от Co^{60} в суммарный спектр составляет ≈ 2 % для слабо облученных образцов и ≈ (7-9)% для сильно облученных образцов. Вклад Co^{60} в фон составляет (1 –2)% в зависимости от степени облучения образцов.

Аннигиляция позитронов в материале источника (лавсан, соль) сопровождается появлением в суммарном спектре ВРАФ трех новых компонент с временами жизни ≈ 200, ≈ 400 пикосекунд и 1,6 –1.8 наносекунды. Соотношение интенсивностей этих компонент составляет примерно 0.28, 0.56, 0.16. Точнее будет определено из обработки спектра ВРАФ в лавсане. Общая доля позитронов, аннигилирующих в источнике, примерно 25–30 %.

В настоящее время есть три типа спектров:

1. Спектры ВРАФ только от аннигиляции позитронов (источник позитронов + необлученные образцы, источник позитронов + чистые вещества Sn, Al, Mo, Ni, Si с известными временами жизни).

2. Спектры совпадений от Co^{60} (облученные образцы, источник Co в форме иглы).

3. Спектры ВРАФ + Co^{60} (источник позитронов + облученные образцы сталей).

С учетом имеющихся экспериментальных результатов можно в суммарном спектре облученных образцов сталей (ВРАФ + Co^{60}) учесть вклад Co^{60} , аннигиляцию позитронов в источнике и выделить компоненты, характеризующие аннигиляцию позитронов в свободном состоянии $\tau \approx 80 - 100$ пс) и захваченных в дефекты (границы зерен $\tau \approx 150 - 200$ пс, радиационно-индуцированные дефекты $\tau \approx 250 - 350$ пс).

Порядок обработки экспериментальных результатов.

Источник позитронов + лавсан. Из этих спектров можно определить время жизни позитронов лавсане и соотношение интенсивностей наблюдаемых компонент.

Аннигиляцией в соли в первом приближении пренебрегаем. Она косвенно войдет в одну из лавсановых компонент.

Спектры ВРАФ в чистых материалах ($\text{Sn} - \tau \approx 200$ пс, $\text{Mo} - \tau \approx 100 - 110$ пс, $\text{Al} - \tau \approx 160$ пс, $\text{Ni} - \tau \approx 110$ пс, $\text{Si} - \tau \approx 210 - 220$ пс). В совокупности с результатами по лавсану можно определить долю позитронов аннигилирующих в источнике. При этом следует учитывать повторное прохождение через источник части позитронов отраженных от образца. Эта доля будет возрастать с возрастанием Z материала образца [22]. Для учета доли позитронов, аннигилирующих в источнике лучше всего подходит Ni , так как Z никеля и железа близки. Из этих спектров можно определить долю позитронов аннигилирующих в материале источника – лавсане (см. приложение – учет аннигиляции в источнике).

Из спектров ВРАФ в облученных образцах (ВРАФ+Собо) убрать Собо. Первый вариант - из спектра ВРАФ+Собо вычесть спектр от Собо. Оба спектра должны быть сделаны в одной геометрии, с одинаковым временем измерения и с одинаковым расположением Собо по отношению к фотоумножителям. Второй вариант – из спектра Собо определить параметры гаусса (ширину на полувысоте и интенсивность) и зафиксировать их при дальнейшей обработке спектров программой PALSfit либо LT. Установлено, что ширина FWHM гаусса, описывающего спектр Собо меняется от ≈ 250 пс для слабо облученных образцов (L2, M2, H2) до ≈ 275 пс для сильно облученных образцов (L3, L4, M3, M4, H3, H4). Пример с вычитанием: из спектра с обозначениями L1-L3-Na22-L3-L1 вычесть спектр L1-L3-X-L3-L1. Второй спектр, сделанный без позитронного источника, содержит только совпадения от Собо и в разностном спектре их не должно быть.

Учет аннигиляции позитронов в источнике.

Из спектров Источник+Ni и Источник+лавсан по интенсивности долгоживущей компоненты определить долю позитронов аннигилирующих в источнике. Из разностного спектра, полученного в пункте 3, вычесть фон и вычесть спектр Источник+лавсан (с вычтенным фоном) с учетом выше определенной доли (веса). Подробнее смотри в приложении.

Обработать необлученные образцы сталей, зафиксировав параметры аннигиляции в источнике. Определить параметры спектров ВРАФ, соответствующие аннигиляции позитронов в стали ($\tau_1 \approx 80-100$ пс, I_1 – определить, $\tau_2 \approx 150-180$ пс, I_2 – определить).

Обработать спектры ВРАФ облученных образцов сталей, зафиксировав ранее определенное параметры гаусса от Собо, источника (лавсан) и часть определенных параметров ВРАФ в необлученной стали (τ_1, τ_2). Найти компоненту, соответствующую аннигиляции позитронов в радиационных дефектах ($\tau_3 = ?$, $I_3 = ?$).

Найти изменение этого параметра в зависимости от флюенса и восстановительного отжига.

5. Учет в спектрах ВРАФ облученных образцов сталей вклада Собо.

В случае двухдетекторной позитронной временной установки, $\mu\text{ти}$ -кванты Co-60 могут регистрироваться как «стартовым», так и «стоповым» детекторами спектрометра, нарушая регистрацию позитронных аннигиляционных событий. Обычно при использовании источника позитронов ^{22}Na , энергетические окна дискриминаторов выставляются вокруг значений 1274 и 511 КэВ. Тем не менее, даже если выбрать «окна» достаточно узкими, все равно из-за флуктуаций потерь энергии фотонов в сцинтилляторах, из-за эффекта комптоновского рассеяния невозможно различить фотоны, испускаемые Собо с энергией 1170 и 1330 КэВ, от фотонов Na^{22} , а в некоторых случаях и от аннигиляционных фотонов.

Вследствие этого при исследовании облученных образцов сталей на позитронных спектрах появляется пик мгновенных совпадений 0μ -квантов кобальта (один гамма-квант из пары мгновенных фотонов Co запускает спектрометр, а второй останавливает его), а также увеличивается фон случайных совпадений.

На первый взгляд можно просто вычесть кобальтовый пик мгновенных совпадений из позитронного спектра, определив разность двух спектров, измеренных за одно и то же время, в случае, когда источник позитронов находится между парой облученных стальных образцов, и когда источник позитронов удален и вклад в спектр дают только гамма-кванты ^{60}Co . Однако, вследствие достаточно сильной загрузки детекторов, вклады от кобальта и

позитронов не являются аддитивными (фотоны от $Co-60$ и $Na-22$ конкурируют между собой за «запуск» спектрометра). В результате мы не знаем точно веса, с которыми в «суммарном» спектре подмешаны друг к другу «кобальтовый» и «позитронный» спектры. Более того, как было показано выше при загрузке детекторов ~ 1 МБк от $Co-60$ и от $Na-22$ пик мгновенных совпадений (а значит и функция временного разрешения спектрометра) заметно уширяются.

Корректный учет вклада кобальта в суммарный аннигиляционный спектр облученных образцов сталей требует специальных исследований.

Следует отметить, что существует и другой способ решения этой проблемы-использование трех-детекторной установки, регистрирующей как стартовый фотон 1.274 МэВ, так и оба аннигиляционных по 511 кэВ. Эта методика позволяет исключить из спектра присутствие пика мгновенных совпадений от гамма-квантов кобальта, хотя фон случайных совпадений и в этом случае останется завышенным. Однако, следует иметь ввиду, что использование трех-детекторной установки ведет к резкому уменьшению скорости набора спектра [20, 25].

Нами проведены специальные исследования по учету вклада кобальта в спектры ВРАФ облученных образцов сталей.

Совпадения гамма квантов $Co\ 60$ и гамма квантов $Na22$ приводят к увеличению фона в суммарных спектрах примерно на 15–20 % для слабо облученных образцов и на 35–45 % для сильно облученных образцов сталей, а совпадения от двух гамма квантов $Co\ 60$ вносят вклад в суммарный спектр в виде спектра мгновенных совпадений (гаусс). При обработке спектров ВРАФ эти эффекты необходимо учитывать.

5.1. Увеличение фона. Этот параметр отражает случайные совпадения гамма квантов $Co60$ с гамма квантами $Na22$ (1,28 и 0,51 МэВ) и проявляется в виде аддитивной добавки к случайным совпадениям (фону) гамма квантов от разных распадов $Na22$. Численное значение этого эффекта легко определяется как разность фонов в спектрах ВРАФ облученных образцов, необлученных образцов и спектров $Co60$.

Пример. 1. спектр НЗ- Na -НЗ	фон $N_1 = 163$ на канал
2. спектр НЗ- X -НЗ	фон $N_2 = 3,6$ на канал
3. спектр Н1- Na -Н1	фон $N_3 = 102$ на канал

Из этих данных найдем суммарный вклад кобальта в фон спектра ВРАФ облученных образцов сталей $\Delta N = (N_1 - N_3) = 61$ и вклад в фон от совпадений квантов $Co\ 60$ и гамма квантов $Na22$

$\Delta N = (N_1 - N_2 - N_3) = 57,4$. Таким образом вклад $Co60$ в суммарный фон для сильно облученных образцов составляет $\approx (35 - 40)\%$.

Эти же данные позволяют определить общее число гамма квантов $Co60$ зарегистрированных одним из каналов спектрометра (Start либо Stop) за время набора суммарного спектра (НЗ- Na -НЗ). Эта величина будет равна $(N_1 - N_2 - N_3) \cdot n$, где n - число рабочих каналов в спектре ВРАФ.

В нашем примере $(N_1 - N_2 - N_3) \cdot n = 57,4 \cdot 2176 = 124902$, при этом суммарное число событий в спектре от 512 канала до 2599 составляло 1844090, а с вычетом фона 1503909. таким образом вклад фона в суммарный спектр составляет 18,4%.

5.2. Учет вклада мгновенных совпадений гамма квантов кобальта в суммарный спектр ВРАФ облученных образцов сталей. Этот вклад приводит к изменению формы левого края суммарного спектра ВРАФ и к увеличению N_{max} .

В нашем случае

1. спектр НЗ- Na -НЗ	$N_{max} = 27478$ в 692 канале
2. спектр НЗ- X -НЗ	$N_{max} = 3994$ в 682 канале
3. спектр Н1- Na -Н1	$N_{max} = 26834$ в 692 канале

Возникает вопрос - как учесть вклад мгновенных совпадений $Co60$ в суммарном спектре ВРАФ. Один из вариантов - из суммарного спектра ВРАФ (НЗ- Na -НЗ) вычесть спектр (НЗ- X -НЗ) мгновенных совпадений от $Co60$. В этом случае необходимо знать с каким весом нужно проводить вычитание, так как часть гамма квантов $Co60$, участвующих в мгновенных совпадениях с собственными гамма квантами, будет участвовать в совпадениях с гамма квантами $Na22$. Этот эффект, в принципе, должен приводить к уменьшению вклада мгновенных совпадений гамма квантов $Co60$ в суммарный спектр ВРАФ (НЗ- Na -НЗ).

По сути дела задача сводится к определению вероятности регистрации спектрометром совпадения двух генетически связанных гамма квантов ^{60}Co от одного распада, если один из них уже зарегистрирован спектрометром.

Ответ на этот вопрос можно получить сравнивая (случай H3-X-H3) скорости счета мгновенных совпадений гамма квантов ^{60}Co со скоростью счета в каналах (Start, Stop) спектрометра

В рассматриваемом случае $N_{\text{Start}} = 545 \cdot 10^2$, $N_{\text{Stop}} = 223 \cdot 10^2$, $N_{\text{совп}} = 102$ (измерено за 4 секунды).

Эти данные позволяют определить вероятность F одновременной регистрации двух гамма квантов из одного распада ^{60}Co если зарегистрирован один из этой пары.

$$F_{\text{Start}} = \frac{102}{545} \cdot 10^{-2} \approx 2 \cdot 10^{-3}, \quad F_{\text{Stop}} = \frac{102}{223} \cdot 10^{-2} \approx 5 \cdot 10^{-3}$$

Из проведенного анализа фонов можно определить сколько гамма квантов кобальта зарегистрировано одним из каналов спектрометра за время набора суммарного спектра и, зная вышеприведенные вероятности, определить какая часть гамма квантов ^{60}Co , зарегистрированных в качестве фона, могла бы пойти на мгновенные совпадения с генетически связанными гамма квантами ^{60}Co .

В нашем примере

$$(N_1 - N_2 - N_3) \cdot n \cdot F = 57,4 \cdot 2176 \cdot F = 124902 \cdot F$$

Для каналов Start и Stop эти величины соответственно равны 250 и 600 штук.

Доля этих гамма квантов в спектре (H3-X-H3) составляет

$$\frac{124902}{115701} \cdot 5 \cdot 10^{-3}, \text{ т.е. примерно } 0,6\%$$

Таким образом спектр мгновенных совпадений ^{60}Co входит в суммарный спектр с весом 0,994, т.е. практически его можно вычитать целиком.

Если это так, то суммарное число событий в спектре H3-Na-H3 (1503909) после вычитания фона должно равняться сумме событий в спектрах H3-X-H3 (115701) и H1-Na-H1 (1421012). Видно, что в пределах ошибки эти величины совпадают.

Аналогичные результаты получаются и для спектров с участием других облученных образцов (H, M, L).

Для проверки правильности сделанных выводов были измерены спектры PAL в лавсане без кобальта (Lavsan+Na+Lavsan)) и в его присутствии (H3+H4+Lavsan+Na+Lavsan+H4+H3).

Для этого источник позитронов со стенками из лавсана был окружен с двух сторон толстым слоем лавсана, а для выяснения влияния кобальта с каждой стороны сборки добавлялось еще по два облученных с большим флюенсом образца сталей. Фитирование этих спектров (рис. 6) проводилось в трех экспоненциальном приближении с использованием параметров пика мгновенных совпадений от ^{60}Co в качестве функции разрешения. Изменением этого параметра в небольших пределах добивались наилучшего описания спектра (минимальный χ^2). В результате получили времена жизни позитронных состояний в лавсане

$$\begin{array}{ll} \tau_{11} = 0.175 \text{ нс} & I_1 = 28 \% \\ \tau_{12} = 0.427 \text{ нс} & I_2 = 55.8 \% \\ \tau_{13} = 1.84 \text{ нс} & I_3 \sim 16.2 \% \end{array}$$

Полученные результаты находятся в хорошем согласии результатами работы [23]:

$$\begin{array}{ll} \tau_{11} = 0.16-0.21 \text{ нс} & I_1 = 37-49 \% \\ \tau_{12} = 0.4-0.46 \text{ нс} & I_2 = 35-48 \% \\ \tau_{13} = 1.8 \text{ нс} & I_3 \sim 15 \% \end{array}$$

При обработке спектров оказалось достаточным аппроксимировать функцию разрешения суммой двух гауссиан с $\text{FWHM}_1 = 300 \text{ пс}$ и $\text{FWHM}_2 = 583 \text{ пс}$, и, соответственно, с весами $I_1 = 85 \%$ и $I_2 = 15 \%$.

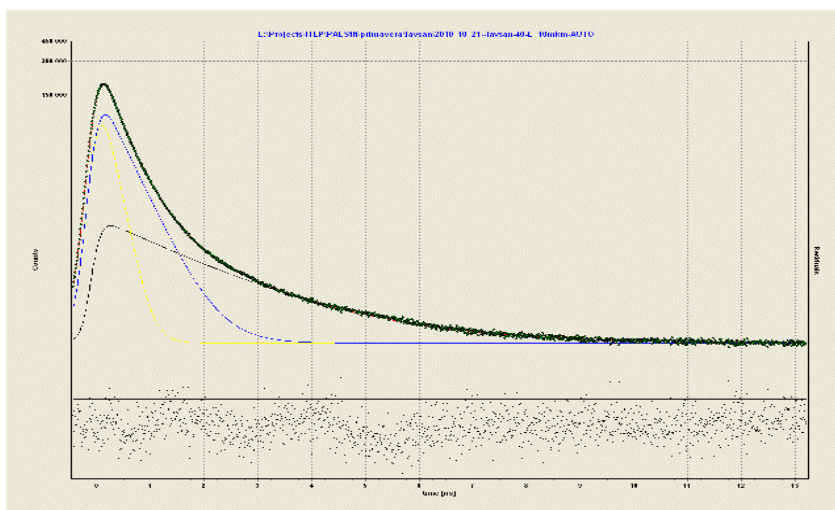


Рис. 6. Аннигиляционный спектр позитронов в лавсане. Видно три экспоненты, соответствующие различными временами жизни

В работе [23] сделан вывод, что короткая и средняя компоненты обусловлены аннигиляцией свободных позитронов, пара-позитрония и позитрониевых образований, Однако разделить эти компоненты не удалось. Третья долгоживущая компонента связана с аннигиляцией орто-позитрония.

Следует отметить, что значение $\tau_2 = 0.427$ нс численно совпадает с рассчитанным нами значением, обусловленным скоростью аннигиляции свободных позитронов в соударениях с валентными электронами лавсана.

Для выяснения вклада кобальта в суммарный спектр PALS проводилась обработка спектров с кобальтом (Рис.7) с вышеприведенными фиксированными временами и интенсивностями, определенными для лавсана в отсутствии кобальта. Получили вклад кобальта равный 11.9-13.3%.

С другой стороны вклад кобальта можно оценить используя результаты независимо полученных спектров $N_1+N_3+X+N_3+N_1$, $N_1+N_4+X+N_4+N_1$, $(N_3+N_4+Lavsan+Na+Lavsan+N_4+N_3)$:

- | | |
|--|--|
| 1. спектр $N_1+N_3+X+N_3+N_1$ | $\sum N_i - \sum background = 116902$ |
| 2. спектр $N_1+N_4+X+N_4+N_1$ | $\sum N_i - \sum background = 122727$ |
| 3. спектр $(N_3+N_4+Lavsan+Na+Lavsan+N_4+N_3)$ | $\sum N_i - \sum background = 1796802$ |

В предположении аддитивности вкладов кобальта и натрия: доля "кобальта" составляет $((239629/1796802)*100)=13.3\%$

Полученное значение вклада кобальта использовалось при обработке 24 спектров PAL лавсана, содержащих кобальт. Оказалось, что фиксирование доли кобальта 13.3% приводит лишь к незначительному изменению параметров аннигиляционных спектров.

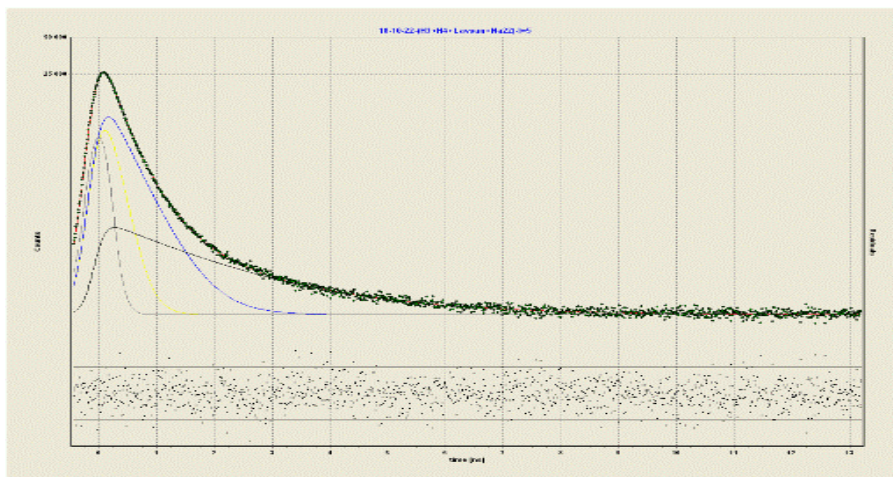


Рис. 7. Аннигиляционный спектр позитронов в лавсане в присутствии Собо – комбинация $H3+H4+Lavsan+Na+Lavsan+H4+H3$. Кобальт аппроксимирован экспонентой с $\tau = 0.01$ пс. На рисунке кобальт представлен самой узкой компонентой с максимумом при нулевом времени

Сделан вывод, что вклад кобальта, в пределах точности проведенных измерений, можно считать аддитивным. Времена жизни позитронов в лавсане не зависят от наличия кобальтовой составляющей в аннигиляционном спектре

6. Измерения аннигиляционных спектров в образцах реакторных сталей.

Проведены измерения временного распределения аннигиляционных фотонов (ВРАФ) в необлученных, облученных, облученных и отожженных образцах сталей. Спектры ВРАФ измерялись в разной конфигурации образцов по отношению к детекторам и источнику позитронов. Кроме того, для учета влияния геометрии эксперимента, сделаны три серии измерений с различным расстоянием D (distance) источника позитронов до детекторов ($D=0$, $D=5$, $D=10$). Здесь D – расстояние в миллиметрах между исследуемыми образцами и детекторами позитронного спектрометра. Для случая $D=5$ суммарное число совпадений в каждом спектре составляло $(1,5- 2,0) \cdot 10^6$ при скорости совпадений на канал 250–300 событий в секунду. Цена деления спектрометра составляла 10пс на канал.

7. Обработка экспериментальных результатов с использованием персональных компьютеров.

Обработка экспериментальных спектров проводилась с использованием стандартной программы LT, имеющейся в свободном доступе в интернете.

При обработке спектров ВРАФ образцов сталей фиксировались ранее определенные параметры аннигиляции позитронов в материале источника ($\tau_1=0,175$ нс, $\tau_2=0,427$ нс, $\tau_3=1,84$ нс и, соответственно, $I_1=28,63\%$, $I_2=55,50\%$, $I_3=15,87\%$).

Для выявления вклада радиационно-индуцированных дефектов в параметры аннигиляционных спектров облученных сталей, с учетом имеющихся литературных данных [20, 21, 24], обработку спектров проводили в трех экспоненциальном приближении с фиксированием характерных времен 120 пс, 255 пс и 350 пс. Интенсивности этих компонент (I_1 , I_2 , I_3) являлись свободными параметрами и подлежали определению.

Обработка спектров необлученных образцов сталей разного состава (НР, МР, ЛР) показала, что наилучшее описание достигается при фитирование этих спектров в двух экспоненциальном приближении с использованием параметров пика мгновенных совпадений от Со-60 в качестве функции разрешения. При этом оказалось достаточным аппроксимировать функцию разрешения суммой двух гауссиан с $FWHM_1 = 300$ пс и $FWHM_2 = 583$ пс, и, соответственно, с весами $I_1=85\%$ и $I_2=15\%$. При обработке спектров облученных сталей (рис. 8) эти соотношения гауссиан фиксировались, а функция разрешения

варьировалась (в зависимости от активности образцов) в небольших пределах для получения наилучшего описания спектров (минимальный χ^2).

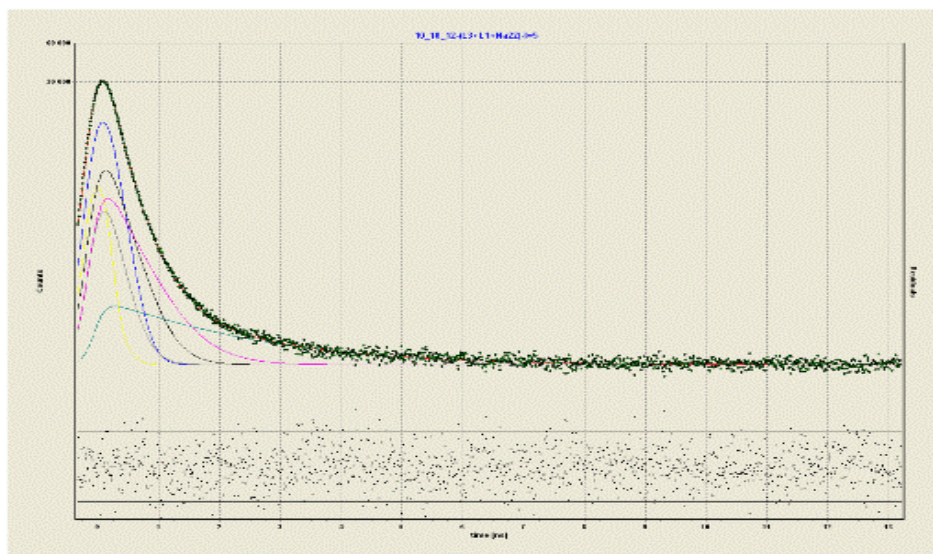


Рис. 8. Типичный аннигиляционный спектр облученных образцов сталей. Показаны шесть компонент, обусловленных аннигиляцией позитронов в материале источника (3 компоненты) и в образцах стали (3 компоненты). Пик мгновенных совпадений Собо на рисунке не показан

Значения доли позитронов, аннигилирующих в источнике, и вклад мгновенных совпадений Собо в суммарный спектр ВРАФ являлись свободными параметрами и подлежали определению.

Результаты измерений для случая $D=5$ представлены в табл. 4.

Таблица 4

Marki n of the weld	I_1 (%)	I_2 (%)	I_3 (%)	$FWHM_1$ (ns)	$FWHM_2$ (ns)	Contribu tion Co60 in the PAL spectrum (%)	Contri bution Source (%)	Mean lifetim e (ns)	Back ground	χ^2
H1	59,35 $\pm 1,4$	40,65	0	0,2972 $\pm 0,0009$	0,5317 $\pm 0,0050$	0	32,56 $\pm 0,43$	0,1738	102,2	1,0561
H2	64,19 $\pm 0,8$	32,46	3,44	0,3044 $\pm 0,0050$	0,5936 $\pm 0,0062$	2,9	31,15 $\pm 0,29$	0,1667	123,5	0,864
H3	59,17 $\pm 1,40$	37,57 $\pm 1,35$	3,26 $\pm 1,20$	0,3192 $\pm 0,0006$	0,6231 $\pm 0,0057$	11,1	28,34 $\pm 0,54$	0,1583	163,0	0,883
H4	63,96 $\pm 1,44$	28,76 $\pm 1,15$	7,2 $\pm 1,0$	0,3200 $\pm 0,0008$	0,658 $\pm 0,012$	9,95	30,66 $\pm 0,49$	0,1579	164,6	1,0311
M1	59,01	40,99	0	0,2958	0,5306	0	32,83 $\pm 0,13$	0,1758	106,3	0,998 9
M2	63,44 $\pm 0,35$	32,58 $\pm 0,34$	3,98 $\pm 0,25$	0,3035 $\pm 0,0005$	0,566 $\pm 0,010$	2,7	30,77 $\pm 0,14$	0,1684	124,8	1,0086
M3	58,76 $\pm 1,37$	41,12 $\pm 1,26$	0,11 $\pm 1,40$	0,3123 $\pm 0,0002$	0,652 $\pm 0,012$	11	30,33 $\pm 0,63$	0,1564	173,4	1,0964
M4	61,31 $\pm 0,34$	34,17 $\pm 0,31$	4,5 $\pm 0,2$	0,3125 $\pm 0,0005$	0,623 $\pm 0,012$	9,76	30,60 \pm	0,1592	164,6	0,8295
L1	56,5 $\pm 1,42$	43,5	0	0,3000	0,580 $\pm 0,016$	0	33,81 $\pm 0,67$	0,1716	95	0,9685
L2	67,44 $\pm 0,58$	25,16 $\pm 0,73$	7,4 $\pm 0,5$	0,3204	0,581	3,43	29,04	0,1651	134,7	1,3570

L3	60,11 ±1,50	35,26 ±1,43	4,7 ±1,1	0,3246 ±0,0008	0,635 ±0,012	13,5	29,18 ±0,56	0,1542	169,2	1,0076
L4	67,43 ±1,48	24,38 ±1,35	8,2 ±1,0	0,3195 ±0,0007	0,653 ±0,008	10,57	28,30 ±0,49	0,1535	167,7	0,922 0

8. Обсуждение экспериментальных результатов.

Анализ экспериментальных данных (таб. №4) показывает, что во всех спектрах компонента I_1 ($\tau_1 = 0,12$ нс) практически не зависит от флюенса нейтронов, компонента I_2 ($\tau_2 = 0,255$ нс) возрастает с увеличением флюенса и убывает после отжига. В спектрах облученных образцов появляется новая компонента ($\tau_3 = 0,35$ нс) с интенсивностью I_3 . Основываясь на литературных данных [20,21,26], можно полагать, что компонента I_1 обусловлена суммарным вкладом в аннигиляционный спектр делокализованных позитронов и позитронов, захваченных в дефекты, присутствующие в необлученных образцах (границы зерен) сталей. Компонента I_2 может быть связана с аннигиляцией позитронов захваченных в дефекты (границы зерен, стыки трех кристаллитов, радиационно-индуцированные вакансионные кластеры). Компонента I_3 , по нашему мнению, может быть обязана захвату позитронов крупными вакансионными кластерами.

Сопоставление значений параметров спектров ВРАФ необлученных образцов с различным содержанием фосфора в пределах ошибок показало их идентичность. Таким образом можно сделать вывод, что фосфор не является позитрончувствительным элементом. Увеличение интенсивностей I_2 с ростом флюенса нейтронов, по нашему мнению, отражает увеличение концентрации радиационных дефектов вакансионного типа (маленькие вакансионные кластеры, содержащие 5-6 вакансий [20,21]). Уменьшение этого параметра с отжигом связано с уменьшением концентрации вакансионных дефектов этого типа и их частичной трансформации в более крупные дефекты. О таком механизме, по нашему мнению, свидетельствует и появление в спектрах ВРАФ компоненты с временем жизни 0,350 нс. Такому времени жизни соответствует полость радиусом $\approx 4 \text{ \AA}$, обусловленная вакансионными кластерами, состоящими из 10-12 моновакансий (см. приложение). Аналогичные выводы были сделаны в нашей работе по исследованию этих же сталей методом углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) [3].

Определение размера дефектов и их концентрации.

Существуют модели, позволяющие сопоставлять параметры аннигиляционных спектров (ВРАФ и УРАФ) со средним размером пор и их концентрацией.

Время жизни позитронов в веществе зависит от пространственной плотности электронов в месте аннигиляции позитронов. При наличии свободного объема (поры) в веществе время жизни позитронов определяется размером поры. Обычно для расчетов используется простая модель, предложенная Тао и Элдрупом [15]: позитрон находится в сферической яме радиусом R_0 с бесконечно высоким потенциальным барьером. При этом скорость λ его аннигиляции в приграничном слое ΔR зависит от радиуса свободного объема поры R

$$\lambda = \lambda_0 \left[1 - \frac{R}{R_0} + (2\pi)^{-1} \sin\left(\frac{2\pi R}{R_0}\right) \right], \quad (1)$$

где $[\lambda] = \text{нс}^{-1}$, $R = R_0 - \Delta R$, а λ_0 - скорость аннигиляции в бездефектной части вещества

Анализ аннигиляции позитронов в материалах с известными значениями радиусов пор в молекулярных твердых телах и цеолитах показал, что величина $\Delta R = R_0 - R = 1,66 \text{ \AA}$. Вообще говоря, значение величины ΔR зависит от природы вещества.

Поэтому уравнение возможно применять лишь для оценок размеров радиусов пор. В таком виде модель Тао-Элдрупа используется для определения размера свободного объема $\frac{4\pi R^3}{3}$ полости по наблюдаемой скорости аннигиляции позитронов в ней.

В твердом теле с дефектами позитроны могут аннигилировать как в бездефектной части твердого тела так и захватываться дефектами с последующей аннигиляцией в них. Убыль делокализованных позитронов из объема твердого тела можно записать

$$\frac{d[e^+]}{dt} = -(\lambda_0[e^+] + k_d N_d [e^+]) \quad (2)$$

Здесь $[e^+] = [n]$ – концентрация позитронов в объеме твердого тела, k_d – константа захвата позитронов дефектами, N_d – концентрация дефектов, λ_0 – скорость аннигиляции позитронов в бездефектной части объема. Так что

$$\frac{dn}{n} = -(\lambda_0 + k_d N_d) dt \quad (3)$$

Решение $n(t)$ уравнения (3) для i - делокализованного объемного позитронного состояния имеет вид

$$n(t) = n^0 \exp[-(\lambda_0 + k_d N_d)t] = n^0 \exp(-\lambda_1 t) \quad (4)$$

Здесь $\lambda_1 = \lambda_0 + k_d N_d$ – скорость убыли свободных позитронов из бездефектной части объема твердого тела, обычно измеряемая в экспериментах как самое короткое время жизни позитронов $\tau_1 = 1/\lambda_1$ (при этом предполагается, что скорость аннигиляции позитронов на дефектах много больше скорости захвата их дефектами).

Если позитроны, захваченные дефектами, аннигилируют на дефектах и других трансформаций с ними не происходит, то их доля (I_d) в суммарной аннигиляции составит

$$I_d = \frac{\lambda_d}{\lambda_0 + \lambda_d} \quad (5)$$

Если скорость аннигиляции позитронов на дефектах много больше скорости захвата их дефектами, выражение 5 трансформируется в 6

$$I_d = k_d N_d / (\lambda_0 + k_d N_d) \quad (6)$$

Если параметры аннигиляции позитронов на дефектах и в объеме отличаются, то I_d поддается экспериментальному определению. Рассмотрим два случая с разной концентрацией дефектов. Им будут соответствовать спектры ВРАФ с различной интенсивностью соответствующей компоненты. Разностный спектр можно записать

$$\Delta I = \lambda_0 k_d (N_d^{\parallel} - N_d^{\perp}) / (\lambda_0 + k_d N_d^{\parallel})(\lambda_0 + k_d N_d^{\perp}) \quad (7)$$

В случае $\lambda_0 \gg k_d N_d$

$$\Delta I = k_d (N_d^{\parallel} - N_d^{\perp}) / \lambda_0 \quad (8)$$

Здесь ΔI – экспериментально измеряемая величина методом ВРАФ, λ_0 – скорость аннигиляции в объеме материала.

Зная λ_0 и ΔI , можно найти произведение $k_d (N_d^{\parallel} - N_d^{\perp})$, т.е. скорость захвата позитронов дефектами.

Если мы имеем дело с дефектами типа свободного объема (полость), то электронная плотность в этих дефектах меньше, чем в объеме, и в спектрах ВРАФ будет наблюдаться долгоживущая компонента $\tau_{\text{exp}} = 1/\lambda_{\text{exp}}$

Зная λ_{exp} , I и λ_0 , можно найти скорость аннигиляции позитронов на дефектах λ_d , которая связана со средним размером пор через соотношение (1)

Зная размер пор, из выражения (7) можно оценить концентрацию дефектов

$$k_d N_d \cong \lambda_0 \Delta I \cong \Delta I / \tau_0 \quad (9)$$

С другой стороны, среднее значение константы скорости взаимодействия позитронов с дефектами можно записать в

$$\bar{k}_d = \bar{\sigma}_+ v = 4\pi D_+ \bar{R}_d \quad (10)$$

Здесь $\bar{\sigma}_+$ - сечение захвата позитронов дефектами, v - скорость термализованных позитронов, D_+ - коэффициент диффузии позитронов, \bar{R}_d - средний радиус дефектов (пор). Зная коэффициент диффузии, из выражения (10) можно найти \bar{k}_d , и далее, используя выражения (9), найти концентрацию \bar{N}_d дефектов. Радиус \bar{R}_d дефектов определяется из выражений (1) по экспериментально измеренному значению λ . Таким образом, из приведенных выражений можно определить величины \bar{k}_d , \bar{N}_d и \bar{R}_d , если известны такие параметры, как λ_1 , D_+ , $\bar{\sigma}_+(i)$ и v .

Оценим значение $k_d N_d$ для значения $\Delta I_2 = 0,08$ (см. табл. 4) и известного для железа значения $\tau_0 = (1,10 \pm 0,05) \cdot 10^{-10}$ с [26] для данной стали. С этим значением ΔI получаем $k_d N_d \cong 0,08 / 1,10 \cdot 10^{-10} = 7,3 \cdot 10^8$.

Величина скорости захвата $k_d N_d$ в свою очередь может быть определена на основе известного выражения

$$k_d N_d = \sigma \cdot v \cdot N_d \quad (11)$$

Здесь σ - сечение захвата дефектами позитрона; v - скорость термализованного позитрона; N_d - средняя концентрация дефектов (в дефектной области кристалла). Средняя тепловая скорость позитрона при комнатной температуре $T = 293\text{K}$ оценивалась по формуле $v = (8k_0 T / \pi m_+^*)^{1/2} \approx 1,05 \cdot 10^7$ см/с, где k_0 - постоянная Больцмана, $m_+^* \approx m_0$ - эффективная масса позитрона, $m_0 = 9,1 \cdot 10^{-28}$ г - масса свободного позитрона. Предполагая, что сечение захвата позитронов центрами захвата примерно равно среднему значению геометрического сечения дефекта, получим $\sigma \approx \pi \cdot R_d^2 = 3,14 \cdot 0,16 \cdot 10^{-14} \approx 5 \cdot 10^{-15}$ см² (приняли, что $R_d \approx 0,4$ нм). Используя определенные выше значения $R_d \approx 0,4 \cdot 10^{-7}$ см, k_d и v , можно оценить среднее значение концентрации центров захвата позитронов в облученных образцах стали $N_d = \lambda_0 \Delta I / \sigma \cdot v = 7,3 \cdot 10^8 / 5 \cdot 10^{-15} \cdot 10^7 \approx 1,4 \cdot 10^{16}$.

Заключение. Методами позитронной аннигиляционной спектроскопии проведены исследования облученных нейтронами образцов корпусных сталей, используемых в действующих реакторах ВВЭР-440. Предложен способ учета вклада радиоактивного кобальта, содержащегося в исследованных образцах, в суммарный спектр временного распределения аннигиляционных фотонов (ВРАФ), при использовании двух детекторного спектрометра.

В исследованных образцах сталей выявлены вакансионные дефекты, в том числе вызванные нейтронным облучением, определены их размеры и концентрация в зависимости от флюенса нейтронов и восстановительного отжига. Показано, что концентрация радиационных дефектов возрастает с ростом флюенса и убывает с отжигом. Наблюдается трансформация мелких дефектов (5-6 моновакансий) в более крупные, состоящие из 10-12 моновакансий (полость радиусом 3-4 ангстрем).

Ранее проводились исследования этих же образцов сталей методом углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ). В этих работах были определены концентрации электронов в зоне проводимости, энергии Ферми, концентрации дефектов и химический состав материала окружающего дефект.

Выявлена корреляция между изменениями температуры хрупко-вязкого перехода этих сталей и изменениями концентрации делокализованных электронов в зависимости от флюенса нейтронов.

Совместное использование различных методов позитронной аннигиляционной спектроскопии (ВРАФ и УРАФ) для исследования конденсированных сред позволяет учесть все каналы аннигиляции позитронов и тем самым получить развернутую информацию об электронной и дефектной структуре исследуемых сред.

Показано, что метод позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС) является одним из эффективных методов определения размеров нанобъектов (вакансий, вакансионных кластеров), свободных объемов пор, полостей, пустот, их концентраций и химического состава в месте аннигиляции позитронов в дефектных материалах.

Установлено, что позитронная спектроскопия может с успехом применяться для исследования внутренних связей в металлах и, в частности, для исследования границ раздела кристаллитов. Применение позитронных методик в атомной отрасли позволяет исследовать радиационно-индуцированные дефекты размером до одного кубического нанометра. Порог чувствительности ПАС в отношении подобных дефектов составляет примерно 10^{14} дефектов/куб.см.

Примечания:

1. A. Chernobaeva, J. Shtrombah, A. Krjukov, D. Erak, P. Platonov, J. Nikolaev, E. Krasikov, L. Debarberis, Yu. Kohopaa, M. Valo, Vodenicharov, *Int. J. Pres. Vess. Pip.* 84 (2007) 151–158.
2. S. Rogozkin, A. Chernobaeva, A. Aleev, A. Nikitin, A. Zaluzhnyi, D. Erak, Ya. Shtrombakh, O. Zabusov, L. Debarberis, A. Zeman, in: *Proceedings of Pressure Vessels and Piping Conference, Prague, July 2009*, pp. 26–30.
3. V. Grafutin, O. Ilyukhina, V. Krsjak, R. Burcl, P. Hahner, D. Erak, A. Zeman, *J. Nucl. Mater* 406 (2010) 257–262.
4. V. I Grafutin, E.P. Prokopen, *Phys. – Uspekhi* 45 (1) (2002) 59–74. 63.
5. M.J.Puska and R.M.Nieminen, *J.Phys.F:Met.Phys.*13.(1983) 333-346.
6. M.J.Puska and R.M.Nieminen, *Rev. Mod. Phys.* 66, (1994) 841.
7. Anatoly P. Druzhkov and Denis A. Perminov, «Characterization of nanostructural features in reactor materials using positron annihilation spectroscopy», In: *Nuclear Materials Research Developments* ISBN 1-60021-432-0.
8. R. Burcl, V.I. Grafutin, O.V. Ilyukhina, G.G. Myasishcheva, E.P. Prokop'ev, S.P. Timoshenkov, Yu.V. Funtikov, *Physics of the Solid State*, 2010, Vol. 52, No. 4, pp. 700–705.
9. V. Slugen, et al., *Journal of Nuclear Materials*, Volume 274, Issue 3, September 1999, p.273–286
10. L. Debarberis et al., *International Journal of Pressure Vessels and Piping*, Volume 81, Issue 8, August 2004, Pages 695-701.
11. V. Slugen, A. Zeman, J. Lipka and L. Debarberis, *NDT & E International*, Volume 37, Issue 8, 651-661 (2004).
12. V. Slugen, G. Kogel, P. Sperr, W. Triftshauser, *Journal of Nuclear Materials* 302 (2002), p.89–95.
13. Y. Nishiyama et al., *Acta Materialia*, Volume 56, Issue 16, September 2008, p.4510–4521.
14. V. Krsjak, V. Slugen, M. Miklos, M. Petriska, P. Ballo, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 153–156.
15. S.J.Tao, *J.Phys. Chem.*, 1972, v.56. № 11, p. 5499.
16. Y.C.Jean, *J.Microchem.* 1990,v.42, №, p.72.
17. Amarendra G., Rajaraman R., Venugopal Rao G. et al. *Phys. Rev. B.* 2001. V.63. №22. P.224112-1-224112-6.
18. V. Krsjak, W. Egger, M. Petriska, S. Sojak, *Problem Atom. Sci. Technol.* 4 (2009) 109–115.
19. Schaefer H.-E., *Phys. Stat. Sol.(a)*. 1987. V.102. №1. P.47-65.

20. J.Cizek, F.Becvar, I.Prochazka «Three-detector for positron-lifetime spectroscopy of solids containing ^{60}Co radionuclide». Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. A 450 (2000) 325-337.
21. J. Kocik, E. Keilova, J. Cizek, I. Prochazka, J. Nucl. Mater. 303 (2002) 52–64.
22. N Djourellov and M Misheva, J. Phys.: Condens. Matter 8 (1996) 2081–2087.
23. Hamdy F. M. Mohamed, Yasuo Ito, Masayuki Imai. J. Chem. Phys., Vol. 105, No. 11, 15 September 1996.
24. M. Eldrup, B.N. Singh, Journal of Nuclear Materials 276 (2000) 269-277.
25. V. Krsjak, W. Egger, M. Petriska, S. Sojak, Problem Atom. Sci. Technol. 4 (2009).
26. J. Kuriplach et al., Applied Surface Science 252 (2006) 3303–3308.

References:

27. A. Chernobaeva, J. Shtrombah, A. Krjukov, D. Erak, P. Platonov, J. Nikolaev, E. Krasikov, L. Debarberis, Yu. Kohopaa, M. Valo, Vodenicharov, Int. J. Pres. Vess. Pip. 84 (2007) 151–158.
28. S. Rogozkin, A. Chernobaeva, A. Aleev, A. Nikitin, A. Zaluzhnyi, D. Erak, Ya. Shtrombakh, O. Zabusov, L. Debarberis, A. Zeman, in: Proceedings of Pressure Vessels and Piping Conference, Prague, July 2009, pp. 26–30.
29. V. Grafutin, O. Ilyukhina, V. Krsjak, R. Burcl, P. Hahner, D. Erak, A. Zeman, J. Nucl. Mater 406 (2010) 257–262.
30. V. I Grafutin, E.P. Prokopev, Phys. – Uspekhi 45 (1) (2002) 59–74. 63.
31. M.J.Puska and R.M.Nieminen, J.Phys.F:Met.Phys.13.(1983) 333-346.
32. M.J.Puska and R.M.Nieminen, Rev. Mod. Phys. 66, (1994) 841.
33. Anatoly P. Druzhkov and Denis A. Perminov, «Characterization of nanostructural features in reactor materials using positron annihilation spectroscopy», In: Nuclear Materials Research Developments ISBN 1-60021-432-0.
34. R. Burcl, V.I. Grafutin, O.V. Ilyukhina, G.G. Myasishcheva, E.P. Prokop'ev, S.P. Timoshenkov, Yu.V. Funtikov, Physics of the Solid State, 2010, Vol. 52, No. 4, pp. 700–705.
35. V. Slugen, et al., Journal of Nuclear Materials, Volume 274, Issue 3, September 1999, p.273–286
36. L. Debarberis et al., International Journal of Pressure Vessels and Piping, Volume 81, Issue 8, August 2004, Pages 695-701.
37. V. Slugen, A. Zeman, J. Lipka and L. Debarberis, NDT & E International, Volume 37, Issue 8, 651-661 (2004).
38. V. Slugen, G. Kogel, P. Sperr, W. Triftshauser, Journal of Nuclear Materials 302 (2002), p.89–95.
39. Y. Nishiyama et al., Acta Materialia, Volume 56, Issue 16, September 2008, p.4510–4521.
40. V. Krsjak, V. Slugen, M. Miklos, M. Petriska, P. Ballo, Appl. Surf. Sci. 255 (2008) 153–156.
41. S.J.Tao, J.Phys. Chem., 1972, v.56. No 11, p. 5499.
42. Y.C.Jean, J.Microchem. 1990,v.42, No, p.72.
43. Amarendra G., Rajaraman R., Venugopal Rao G. et al. Phys. Rev. B. 2001. V.63. No22. P.224112-1-224112-6.
44. V. Krsjak, W. Egger, M. Petriska, S. Sojak, Problem Atom. Sci. Technol. 4 (2009) 109–115.
45. Schaefer H.-E., Phys. Stat. Sol. (a). 1987. V.102. No1. P.47-65.
46. J.Cizek, F.Becvar, I.Prochazka «Three-detector for positron-lifetime spectroscopy of solids containing ^{60}Co radionuclide». Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. A 450 (2000) 325-337.
47. J. Kocik, E. Keilova, J. Cizek, I. Prochazka, J. Nucl. Mater. 303 (2002) 52–64.
48. N Djourellov and M Misheva, J. Phys.: Condens. Matter 8 (1996) 2081–2087.
49. Hamdy F. M. Mohamed, Yasuo Ito, Masayuki Imai. J. Chem. Phys., Vol. 105, No. 11, 15 September 1996.
50. M. Eldrup, B.N. Singh, Journal of Nuclear Materials 276 (2000) 269-277.
51. V. Krsjak, W. Egger, M. Petriska, S. Sojak, Problem Atom. Sci. Technol. 4 (2009).
52. J. Kuriplach et al., Applied Surface Science 252 (2006) 3303–3308.

УДК 621

Применение методов позитронной аннигиляционной спектроскопии в ядерных технологиях

1. Исследования конструкционных материалов активной зоны реакторов (метод ВРАФ)

¹ В.И. Графутин

² В.А. Илюхин

³ О.В. Илюхина

⁴ Г.Г. Мясищева

⁵ Е.П. Прокопьев

⁶ Ю.В. Фунтиков

¹⁻⁶ НИЦ «Курчатовский институт», ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ» им. А.И.Алиханова

Аннотация. Методом позитронной аннигиляционной спектроскопии (метод временного распределения аннигиляционных фотонов (метод ВРАФ)) проведены экспериментальные исследования сталей, применяемых в атомной промышленности. Обработка экспериментальных результатов и сопоставление их с литературными данными позволила выявить вакансионные дефекты, в том числе и вызванные нейтронным облучением, и определить их размеры.

Ключевые слова: позитронная аннигиляционная спектроскопия; метод ВРАФ; ядерные технологии.