

Copyright © 2015 by Academic Publishing House *Researcher*

Published in the Russian Federation  
 Russian Journal of Astrophysical Research. Series A  
 Has been issued since 2015.  
 ISSN: 2410-9347  
 Vol. 1, Is. 1, pp. 13-31, 2015

[www.ejournal28.com](http://www.ejournal28.com)



UDC 621.315

## The Application of Methods of Positron Annihilation Spectroscopy in Nuclear Technology

### 1. Research of Structural Materials of the Active Zone of the Reactor by the Angular Distribution of Annihilation Photons (ADAP Method)

Viktor I. Grafutin<sup>a</sup>, Vladimir A. Ilyukhin<sup>a</sup>, Olga V. Ilyukhina<sup>a</sup>,  
 Evgeny P. Prokopiev<sup>a,\*</sup>, Gennady I. Savel'ev<sup>a</sup>,  
 Nikolai O. Khmelevskii<sup>a</sup> and Yury V. Funtikov<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Russian Research Center "Kurchatov Institute", Institute for Theoretical and Experimental Physics, Russian Federation

#### Abstract

There were conducted the experimental studies of steels used in the nuclear industry by the method of positron annihilation spectroscopy (method ADAP). The processing of experimental results and its comparison with the published data allowed to reveal the vacancy defects, including caused by neutron irradiation, and to determine its size.

**Keywords:** spectroscopy, nuclear technology, positrons, the method of ADAP.

#### Введение

Работа посвящена исследованию корпусных сталей, используемых в действующих реакторах ВВЭР-440 [1, 2]. В процессе эксплуатации реакторов этого типа происходит охрупчивание конструкционных материалов. Считается, что основной причиной охрупчивания корпусных реакторных сталей является образование нанокластеров, содержащих преимущественно медь и фосфор [3, 4]. 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 радиационно-индуцированных состояний. В рамках международной программы PRIMAVERA проведены комплексные исследования материала корпусов реакторов ВВЭР-440 с использованием различных физических методик [5-9].

Данная работа посвящена исследованию образцов этих сталей одним из методов позитронной аннигиляционной спектроскопии. Методы позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС) являются одними из эффективных неразрушающих методов

\* Corresponding author

E-mail addresses: [eprokopiev@mail.ru](mailto:eprokopiev@mail.ru) (E.P. Prokopiev)

исследования нанообъектов (вакансий, вакансионных кластеров), свободных объемов пор, полостей, пустот, их концентраций и химического состава в месте аннигиляции позитронов.

В последние годы комбинация этих методов широко и успешно используется для исследования радиационных дефектов в материалах атомной техники [10-16].

Целью настоящей работы являлось исследование электронных и дефектных свойств реакторных сталей путем измерения углового распределения аннигиляционных фотонов (метод УРАФ) в образцах этих сталей. Исследованы образцы сварных соединений сталей с различным содержанием фосфора, облученные нейтронами до флюенсов  $6 \cdot 10^{19}$  н/см<sup>2</sup>, облученные и отожженные [17-19].

### Материалы и методы

Для исследуемых материалов экспериментально определены такие важные характеристики металлов, как энергия Ферми, удельное число свободных электронов, приходящихся на один атом металла, их концентрация в зоне проводимости, размеры и концентрация радиационно-индуцированных дефектов.

Исследовано влияние нейтронного облучения и последующего отжига на свойства конструкционных материалов, используемых в реакторах ВВЭР (облучение образцов свидетелей проводилось в каналах Ровенской АЭС). Химический состав и состояние исследованных образцов сталей представлен в таблицах 1 и 2.

### Метод ПАС

Позитронная аннигиляционная спектроскопия (ПАС) является современным методом изучения структуры вещества [10-20]. Ее суть состоит в имплантации в исследуемый образец позитронов, образующихся в результате бета+ - распада радиоактивного источника (как правило, ядер изотопов Na-22, Cu-64, Co-58, Ti-44) и последующей регистрации параметров аннигиляционного гамма-излучения. В позитронной спектроскопии позитрон выполняет функции зонда, аннигиляционные характеристики которого определяются свойствами среды, окружающей его в месте аннигиляции.

В веществе процесс аннигиляции позитронов может протекать как в свободных соударениях с электронами среды, так и через образование связанных состояний позитронов с электронами, атомами, молекулами и различными дефектами, при этом каждый канал аннигиляции вносит свой специфический вклад в экспериментальный аннигиляционный спектр.

Естественно, для корректной интерпретации экспериментальных спектров ПАС необходимы надежные теоретические модели образования позитронных состояний, их взаимодействия с дефектами и продуктами радиолиза среды.

В настоящее время активно используются три основные разновидности ПАС:

1) регистрация временного распределения аннигиляционных фотонов (ВРАФ). Она состоит в измерении времени жизни каждого имплантированного в образец  $e^+$  (то есть интервала времени между регистрацией стартового гамма-кванта, испускаемого радиоактивным ядром – источником позитрона в момент бета+ - распада, и одного из аннигиляционных фотонов с энергией 511 кэВ);

2) измерение углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ). В этом случае регистрируется отклонение от 180 градусов угла разлета фотонов при  $2\gamma$ -аннигиляции;

3) измерение доплеровского уширения аннигиляционной линии (ДУАЛ). Здесь измеряется отличие в энергии аннигиляционных фотонов (при  $2\gamma$ -аннигиляции) от 511 кэВ.

Метод ВРАФ дает сведения об электронной плотности в месте аннигиляции позитрона, а методы УРАФ и ДУАЛ дают информацию о распределении импульсов электронов среды. Таким образом, методики ВРАФ и УРАФ дополняют друг друга и позволяют экспериментально измерять параметры всех каналов аннигиляции позитронов в среде и тем самым получать развернутую информацию об электронных и дефектных свойствах среды. В проводящих средах дефекты (например, вакансии), как правило, обладают избыточным отрицательным зарядом и поэтому притягивают позитроны. Исследование методом ВРАФ облученных нейтронами образцов сталей реакторов ВВЭР-440 показало, что доля

позитронов, захваченных радиационно-индуцированными дефектами, зависит от флюенса нейтронов и при больших флюенсах ( $\approx 10 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>) практически все позитроны захватываются дефектами и аннигилируют в них [18, 19].

Сопоставление измеряемых времен жизни позитронов в исследуемых материалах с известными временами жизни в дефектах различного типа позволяет идентифицировать тип дефекта, а по измерению доли позитронов, аннигилирующих в этом дефекте, получать информацию о концентрации дефектов. Параметры угловых аннигиляционных спектров содержат информацию об энергии аннигилирующей позитрон-электронной пары. Поскольку в процессе аннигиляции участвуют практически термализованные позитроны, то измеряемая энергия аннигилирующей позитрон-электронной пары определяется в основном энергией электронов атомов среды, окружающих дефект. Сопоставление измеряемой энергии с табличными значениями потенциалов ионизации дает информацию о химическом составе среды в месте аннигиляции позитронов, а энергия позитронов характеризует размер дефектов. Применение позитронной методики 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.

### Методика

Установка по измерению углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) расположена в экспериментальном зале реактора ИРТ МИФИ. Источником позитронов в установке служит радиоактивный изотоп  $\text{Cu}^{64}$ , получаемый облучением нейтронами изотопа меди  $\text{Cu}^{63}$  в ядерном реакторе:  $\text{Cu}^{63} + n = \text{Cu}^{64}$ . Близость установки к ядерному реактору позволяет проводить работы с использованием мощных (несколько Кюри) источников позитронов, что существенно расширяет возможности установки, а тем самым и класс исследуемых сред.

Используемые в измерениях источники позитронов представляли собой пластинки размером  $2 \times 2 \times 0,2$  см, вырезанные из фольги электролитической меди. Пластинки облучались сутки в реакторе ИРТ МИФИ нейтронами до флюенса  $1,7 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup>.

После выгрузки из реактора позитронные источники активностью несколько Кюри помещались в облучательную часть установки УРАФ. Угловое разрешение установки составляло 0,4 мрад. Число совпадений в максимуме кривой достигало  $(10 \div 16) \cdot 10^3$ .

Метод углового распределения аннигиляционных фотонов УРАФ [13-15] основан на регистрации совпадений от двух гамма-квантов с энергией  $\sim 511$  кэВ, возникающих в результате аннигиляции электрон-позитронных пар и разлетающихся в противоположные стороны в системе центра масс пары. При аннигиляции электрон-позитронной пары выполняются законы сохранения импульса и энергии. Если центр масс пары неподвижен ( $v = 0$ ), то оба  $\gamma$ -кванта разлетаются в противоположных направлениях (угол  $\theta = 0$ ) с одинаковой энергией  $k_{1c} = k_{2c} = m_0 c^2 = 0,511$  МэВ. Если  $v \neq 0$ , то углы между направлениями разлета  $\gamma$ -квантов будут отличаться от  $180^\circ$ , а их энергия уже не будет равна 0,511 МэВ. Таким образом, измерение угла  $\theta$  (отклонение угла разлета  $\gamma$ -квантов от  $180^\circ$ ) позволяет определить импульс  $e^+e^-$  пары. Позитроны к моменту аннигиляции термализуются, поэтому угол разлёта  $\gamma$ -квантов определяется импульсом электрона.

В рамках модели свободного электронного газа электроны проводимости в металле имеют импульсное распределение:

$$n_e(p) = \left[ \exp \left( \frac{(p^2 / 2m) - \varepsilon_F}{k_B T} \right) + 1 \right]^{-1} \quad (1)$$

где  $\varepsilon_F$  - энергия Ферми;

$k_B$  - постоянная Больцмана;

$T$  - абсолютная температура.

Для низких температур это распределение близко к прямоугольному, поэтому в кривых УРАФ металлов наблюдается параболическая  $f_p(\theta)$  компонента:

$$f_p(\theta) = \begin{cases} (3I_p / 4\theta_p^3) \cdot (\theta_p^2 - \theta^2), & |\theta| \leq \theta_p; \\ 0, & |\theta| > \theta_p. \end{cases} \quad (2)$$

Аннигиляция позитронов в металлах и сплавах происходит как на электронах зоны проводимости, так и на электронах ионного остова. Оставшаяся после вычитания параболы зависимость, как правило, описывается одной  $f_g(\theta)$  или суммой нескольких гауссовых кривых вида:

$$f_g(\theta) = (I_g / \sqrt{2\pi} \cdot \theta_g) \cdot \exp(-\theta^2 / 2\theta_g^2) \quad (3)$$

где:  $I_g$  - интенсивность гауссовой компоненты;

$\theta_g$  - дисперсия гауссовой кривой;

$\theta_p$  - угол пересечения параболой оси абсцисс  $\theta$  («угол отсечки»).

На рис. 1 приведен характерный вид измеренных спектров УРАФ с разложением на параболическую и гауссову компоненты. После коррекции спектров угловой корреляции их разложение на параболические и гауссовы составляющие с учётом функции разрешения установки проводилось на ЭВМ с использованием программы ACARFIT.

Определяя из эксперимента параметр  $\theta_p$ , можно оценить импульс Ферми  $p_F$  и энергию Ферми  $\varepsilon_F$  исследуемого металла:

$$p_F = \theta_p \cdot m \cdot c; \quad \varepsilon_F = \theta_p^2 \cdot (mc^2 / 2). \quad (4)$$

В приближении модели свободного электронного газа параметр  $\theta_p$  определяет удельное число свободных электронов  $Z_c$  (число электронов проводимости), приходящихся на один атом металла, и их концентрацию  $n_p(\theta)$

$$Z_c = (8\pi/3) \cdot (mc^2/h)^3 \cdot (A/\rho N_A) \cdot \theta_p^3; \quad (5)$$

$$n_p(\theta) = Z_c \cdot n_a = (8\pi/3) \cdot (mc^2/h)^3 \cdot \theta_p^3, \quad (6)$$

а параметр  $\theta_g$  – энергию остовных электронов (т.е. электронов, для которых угловое распределение аннигиляционных фотонов в спектрах УРАФ описывается гауссовой функцией)

$$\varepsilon_g = (3/2) \cdot (mc^2/2) \cdot \theta_g^2.$$

Здесь  $N_A$  – число Авогадро;  $h$  – постоянная Планка;  $A$  – атомный вес металла;  $\rho$  – его плотность.

Принято сопоставлять экспериментально получаемые значения  $Z_c$ ,  $\varepsilon_F$ ,  $n_p$  с аналогичными параметрами идеального металла. Идеальным металлом считают такой металл, в котором все валентные электроны переходят в зону проводимости. В этом случае удельное число электронов проводимости  $Z_c$  определяется номером группы периодической системы элементов Менделеева, а энергия Ферми  $\varepsilon_F$  и концентрация электронов проводимости  $n_p$ , в рамках модели свободного электронного газа, являются его константами

$$\varepsilon_F = (h^2/8m) \cdot (3/\pi \cdot n_a \cdot Z_c)^{2/3}; \quad (7)$$

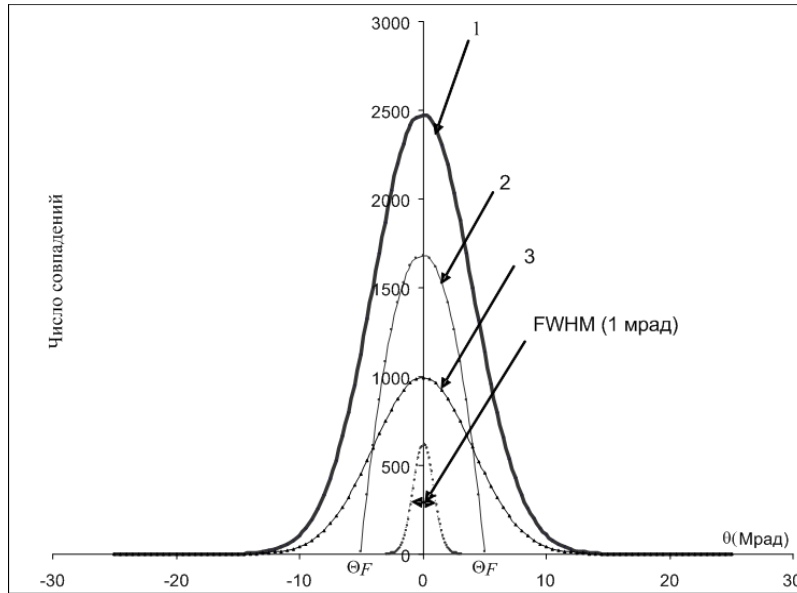
$$n_p = Z_c \cdot n_a = (N_A \rho / A) \cdot Z_c, \quad (8)$$

где  $n_a$  - концентрация атомов в единице объема металла.

### Обработка экспериментальных результатов

На рис. 1 приведен характерный вид спектров УРАФ с разложением на параболическую и гауссовы составляющие. Использовалось два типа обработки экспериментальных спектров: разложение на один гаусс и параболу и разложение на два гаусса и параболу.

Наилучший  $\chi^2$  наблюдался при разложении экспериментальных спектров УРАФ на три компоненты – два гаусса и параболу. Каждая составляющая спектра УРАФ несет информацию о своем канале аннигиляции позитронов. Определены параметры каждого канала аннигиляции позитронов для каждого образца стали. Результаты представлены в виде таблиц (3-5) и в графической форме (рис. 2-3).



**Рис. 1.** Характерное угловое распределение аннигиляционных фотонов в образцах стали:

(1) – кривая УРАФ, построенная по экспериментальным точкам;  
 (2) – параболическая компонента спектра; (3) – гауссова компонента спектра.

*FWHM* (full width half-maximum) – полная ширина гауссовой кривой на половине максимума

В [таблицах 3-5](#) представлены вероятности аннигиляции позитронов по каждому каналу, энергии Ферми, концентрации свободных электронов в зоне проводимости и энергии аннигилирующих позитрон-электронных пар.

Для выяснения роли отжига на облученные образцы строились разностные кривые нормированных на единицу угловых распределений аннигиляционных фотонов в облученных и отожженных и исходных образцах. Для этих целей создана специальная математическая программа обработки экспериментальных спектров.

Кроме реакторных сталей измерены спектры УРАФ в образцах чистого железа, хрома, ванадия и никеля – основных элементов исследуемых сталей.

При обработке экспериментальных спектров УРАФ гауссовы составляющие спектра аппроксимировались функцией

$$\varphi(\theta) = A \cdot \exp(-\theta^2/2\theta_g^2), \quad (9)$$

где  $\theta_g$  – дисперсия.

В [таблицах 3-5](#) приведены значения  $\Gamma_g$  - ширины гауссовой кривой на полувысоте и  $\theta_p$  - угла пересечения параболой оси  $\theta$ .

$$\Gamma_g = 1,665109 \cdot \theta_g \quad (10)$$

Энергия

$$E_g = \frac{3}{2} \cdot \frac{mc^2}{2} \cdot \theta_g^2 = 0,0693246 (\Gamma_g)^2, \text{ где } [\Gamma_g] = \text{мрад}, [E_g] = \text{эВ}, \quad (11)$$

Энергия Ферми

$$E_f = \theta_p^2 \cdot (mc^2/2), \text{ где } [\theta_p] = \text{мрад}, [E_f] = \text{эВ}. \quad (12)$$

$I_p, I_{g1}, I_{g2}$  – интенсивности параболической и гауссовых компонент спектра УРАФ.

$E_{g1}, E_{g2}$  – энергии аннигилирующих позитрон-электронных пар.

Концентрация электронов в зоне проводимости связана с параметрами спектра УРАФ и с энергией Ферми выражениями

$$n_p(\theta) = (8\pi/3) \cdot (mc^2/h)^3 \cdot \theta_p^3 = 5,942 \cdot 10^{20} \theta_p^3, \text{ см}^{-3}. \quad (13)$$

$$n_p(\theta) = 4,6 \cdot 10^{-21} \cdot (E_f)^{3/2} \text{ см}^{-3}, \text{ где энергия Ферми в эВ}. \quad (14)$$

### Обсуждение экспериментальных результатов

Для исследуемых сплавов экспериментально определены такие важные характеристики металлов, как энергия Ферми, удельное число свободных электронов, приходящихся на один атом металла, и их концентрация в зоне проводимости, размер и концентрация радиационных дефектов.

Проведены измерения углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) 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 каналах реактора Ровенской АЭС. Флюенс нейтронов варьировался от  $1 \cdot 10^{19}$  н/см<sup>2</sup> до  $6 \cdot 10^{19}$  н/см<sup>2</sup>.

Химический состав и состояние исследованных образцов сталей представлен в [таблицах 1-2](#).

**Таблица 1.** Химический состав исследованных образцов стали

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

LP – Сварной шов с «низким» содержанием фосфора

MP – Сварной шов со «средним» содержанием фосфора

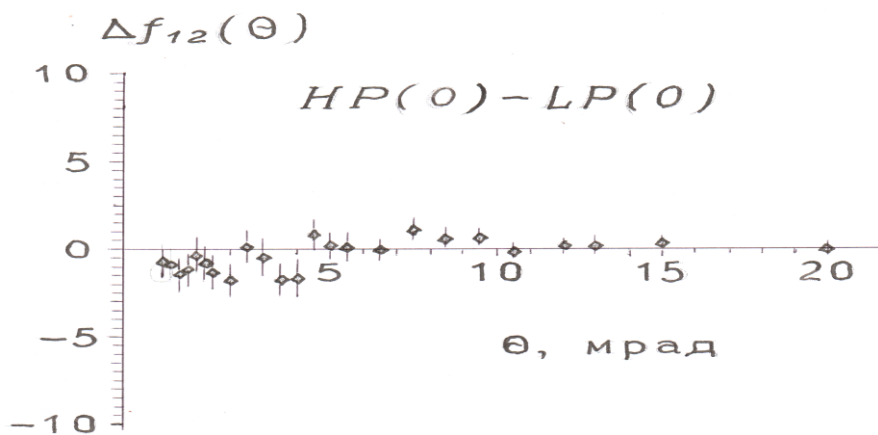
HP – Сварной шов с «высоким» содержанием фосфора

**Таблица 2.** Состояние исследованных образцов стали реакторов ВВЭР-440: 10 x 10 x 1 мм

Маркировка образцов	P (%)	Состояние образцов	Флюенс $\times 10^{19} \text{H}/\text{cm}^2$ ( $E > 0.5 \text{ МэВ}$ )	Кол-во
HP	0.038	необлученные	0	2
MP	0.031	необлученные	0	2
LP	0.027	необлученные	0	2
HP	0.038	облученные	1.22	2
MP	0.031	облученные	1.24	2
LP	0.027	облученные	1.22	2
MP	0.031	облученные	6.39	2
HP	0.038	облученные	5.95	2
LP	0.027	облученные	5.95	2
HP	0.038	облученные+ отожженные	5.71	2
MP	0.031	облученные + отожженные	5.94	2
LP	0.027	облученные + отожженные	5.71	2
Суммарное количество		Все позиции		24

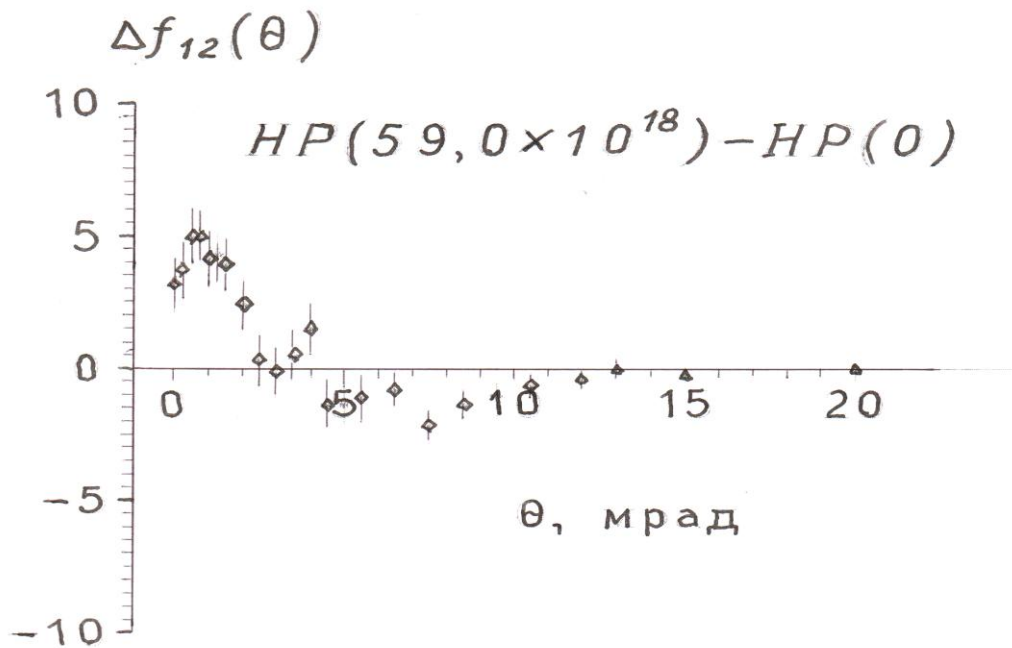
Для выяснения влияния отжига на облученные образцы строились разностные кривые нормированных на единицу угловых распределений аннигиляционных фотонов в облученных и отожженных и исходных образцах.

Сопоставление разностных спектров УРАФ необлученных образцов с различным содержанием фосфора в пределах ошибок показало их идентичность (рис. 2).



**Рис. 2.** Разностный спектр УРАФ необлученных образцов с высоким (HP) и низким (LP) содержанием фосфора

Таким образом, фосфор не является позитрончувствительным элементом. В спектрах УРАФ образцов стали HP с высоким содержанием фосфора, облученных до больших флюенсов  $59 \cdot 10^{18} \text{ н}/\text{см}^2$ , в области малых углов, а следовательно и малых энергий ( $< 1 \text{ эВ}$ ) аннигилирующих позитрон-электронных пар, наблюдается повышенная интенсивность (рис. 3).



**Рис. 3.** Разностный спектр УРАФ облученных и необлученных образцов с высоким (НР) содержанием фосфора

Это может быть связано с аннигиляцией позитронов (квазипозитрония) в радиационных дефектах, индуцированных нейтронным облучением, либо порах на границе раздела трех кристаллитов. Существует большое количество экспериментальных данных, косвенно подтверждающих возможность образования позитрония. Так, в работе [21] в образцах Fe, Al, Ni, Pd, Cu наблюдалась компонента с маленькой интенсивностью и со временем жизни порядка наносекунды, в нашей работе [22] по исследованию пористого кремния с поверхностью, декорированной палладием, также наблюдался термализованный позитроний. При этом экспериментально определенный размер пор составлял 10–20 Å. Вообще, по нашему мнению, интенсивность данной компоненты должна зависеть от размера кристаллитов. Если размер кристаллитов много больше длины диффузии термализованных позитронов, т.е.  $\approx 100$  нм, то большая часть позитронов будет аннигилировать внутри кристаллитов и на границе раздела зерен и, следовательно, уменьшается вероятность захвата позитронов дефектами в тройном стыке кристаллитов. Из параметров ширины узкого пика (рис. 3) можно оценить размеры радиационных дефектов. Ширина на полувысоте этого пика равна примерно 3–4 миллирадиана. Такому уширению соответствует полость радиусом  $\approx 4$ –5 Å. Интенсивность этого пика увеличивается с увеличением флюенса и значительно уменьшается в отожженных образцах сталей. В образцах с низким содержанием фосфора, LP, также наблюдается узкая составляющая с аналогичной шириной. Отжиг на интенсивность этой составляющей практически не оказывает влияния.

В образцах стали со средним содержанием фосфора МР узкая составляющая слабо выражена и при низких флюенсах  $12,4 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup> практически незаметна.

В [таблицах 3-5](#) представлены экспериментальные результаты при двух вариантах обработки экспериментальных спектров УРАФ: разложение на гаусс и параболу, разложение на два гаусса и параболу.

В этих таблицах приведены вероятности аннигиляции позитронов по каждому каналу, энергии Ферми, концентрации свободных электронов в зоне проводимости и энергии аннигилирующих позитрон-электронных пар.



**Таблица 3.** Параметры спектров УРАФ для образцов стали LP

Характеристика образцов	$\Gamma_{g1}$ , мрад	$I_{g1}$ , %	$E_{g1}$ , эВ	$\Gamma_{g2}$ , мрад	$I_{g2}$ , %	$E_{g2}$ , эВ	$\theta_p$ отсечка (мрад.)	$I_p$ , %	$E_f$ , эВ	$N_p(\theta)$ [ $10^{22}\text{cm}^{-3}$ ]
необлученные	13,20 $\pm 0,07$	82,94 $\pm 3,00$	12,00 $\pm 0,01$				5,74	17,06 $\pm 1,10$	8,41 $\pm 0,88$	11,2
необлученные	10,00 $\pm 0,38$	53,15 $\pm 14,00$	6,91 $\pm 0,05$	16,40 $\pm 0,60$	40,61 $\pm 15,00$	18,60 $\pm 0,08$	5,97	6,24 $\pm 2,70$	9,08 $\pm 5,10$	12,6
облучение (12,2x10 <sup>18</sup> )	13,60 $\pm 0,07$	79,01± $\pm 3,20$	12,80 $\pm 0,01$				5,65	20,99 $\pm 1,00$	8,132 $\pm 0,43$	10,6
облучение (12,2x10 <sup>18</sup> )	9,39 $\pm 0,39$	42,80 $\pm 11,00$	6,09 $\pm 0,05$	16,20 $\pm 0,47$	48,74 $\pm 14,00$	18,10 $\pm 0,07$	5,63	8,46 $\pm 2,90$	8,07 $\pm 3,30$	10,5
облучение (59,5x10 <sup>18</sup> )	13,30 $\pm 0,07$	78,97± $\pm 2,80$	12,20 $\pm 0,01$				5,60	21,03 $\pm 0,87$	8,00 $\pm 0,37$	10,4
облучение (59,5x10 <sup>18</sup> )	8,94 $\pm 0,37$	34,69 $\pm 9,10$	5,52 $\pm 0,05$	15,00 $\pm 0,33$	55,63 $\pm 14,00$	15,50 $\pm 0,05$	5,61	9,68 $\pm 2,70$	8,02 $\pm 2,40$	10,4
облучение (57,1x10 <sup>18</sup> ) + отжиг	13,20 $\pm 0,06$	79,73 $\pm 2,40$	12,10 $\pm 0,01$				5,37	20,27 $\pm 0,74$	7,36 $\pm 0,31$	9,2
облучение (57,1x10 <sup>18</sup> ) + отжиг	11,60 $\pm 0,40$	63,65 $\pm 17,00$	9,23 $\pm 0,06$	18,80 $\pm 1,70$	20,80 $\pm 14,00$	24,40 $\pm 0,23$	5,31	15,54 $\pm 3,60$	7,18 $\pm 0,82$	8,8

**Таблица 4.** Параметры спектров УРАФ для образцов стали MP

Характеристика образцов	$\Gamma_{g1}$ , мрад	$I_{g1}$ , %	$E_{g1}$ , эВ	$\Gamma_{g2}$ , мрад	$I_{g2}$ , %	$E_{g2}$ , эВ	$\theta_p$ отсечка (мрад.)	$I_p$ , %	$E_f$ , эВ	$N_p(\theta)$ [ $10^{22}\text{cm}^{-3}$ ]
необлученные	13,40 $\pm 0,09$	79,07 $\pm 3,60$	12,40 $\pm 0,01$				6,03	20,93 $\pm 1,20$	9,26 $\pm 0,59$	13
необлученные	9,97 $\pm 0,42$	48,06 $\pm 15,00$	6,86 $\pm 0,06$	16,10 $\pm 0,59$	42,53 $\pm 16,00$	17,90± 0,08	6,09	9,40 $\pm 3,40$	9,45 $\pm 3,70$	13,3
облучение (12,4x10 <sup>18</sup> )	13,30 $\pm 0,09$	79,37 $\pm 3,50$	12,20 $\pm 0,01$				5,64	20,63 $\pm 1,10$	8,12 $\pm 0,49$	10,6
облучение (12,4x10 <sup>18</sup> )	9,14 $\pm 0,29$	46,23 $\pm 11,00$	5,76 $\pm 0,04$	15,90 $\pm 0,45$	47,55 $\pm 13,00$	17,50± 0,06	5,81	6,21 $\pm 2,50$	8,62 $\pm 4,70$	11,6
облучение (63,9x10 <sup>18</sup> )	13,90 $\pm 0,08$	77,70 $\pm 2,90$	13,30 $\pm 0,01$				5,66	22,30 $\pm 0,93$	8,17 $\pm 0,37$	10,7
облучение (63,9x10 <sup>18</sup> )	9,16 $\pm 0,40$	35,85 $\pm 9,20$	5,79 $\pm 0,06$	15,90 $\pm 0,38$	53,77 $\pm 13,00$	17,40 $\pm 0,05$	5,68	10,39 $\pm 3,00$	8,23 $\pm 2,70$	10,8
облучение (59,4x10 <sup>18</sup> ) + отжиг	12,90 $\pm 0,08$	83,76 $\pm 3,30$	11,50 $\pm 0,01$				5,35	16,24 $\pm 0,92$	7,29 $\pm 0,52$	9,0
облучение (59,4x10 <sup>18</sup> ) + отжиг	9,79 $\pm 0,38$	57,04 $\pm 14,00$	6,61 $\pm 0,05$	16,70 $\pm 0,67$	38,09 $\pm 14,00$	19,30 $\pm 0,09$	5,14	4,87 $\pm 2,30$	6,73 $\pm 4,40$	8,0

**Таблица 5.** Параметры спектров УРАФ для образцов стали НР

Характеристика образцов	$\Gamma_{g1}$ , мрад.	$I_{g1}$ , %	$E_{g1}$ , эВ	$\Gamma_{g2}$ , мрад.	$I_{g2}$ , %	$E_{g2}$ , эВ	$\theta_p$ отсечка (мрад.)	$I_p$ , %	$E_f$ , эВ	$N_p(\theta)$ [ $10^{22}\text{cm}^{-3}$ ]
необлученные	13,20 $\pm 0,09$	81,69 $\pm 3,00$	12,30 $\pm 0,01$				6,00	18,31 $\pm 1,20$	9,18 $\pm 0,71$	12,8
необлученные	9,21 $\pm 0,40$	39,33 $\pm 14,00$	5,86 $\pm 0,06$	15,00 $\pm 0,44$	56,05 $\pm 11,00$	15,60 $\pm 0,06$	6,29	4,62 $\pm 2,70$	10,10 $\pm 8,00$	14,8
облучение ( $12,2 \times 10^{18}$ )	13,90 $\pm 0,07$	75,09 $\pm 2,40$	13,30 $\pm 0,01$				6,00	24,91 $\pm 0,83$	9,18 $\pm 0,32$	12,8
облучение ( $12,2 \times 10^{18}$ )	10,00 $\pm 0,33$	42,42 $\pm 9,20$	6,92 $\pm 0,05$	16,50 $\pm 0,42$	43,69 $\pm 11,00$	18,70 $\pm 0,06$	5,98	13,90 $\pm 2,90$	9,13 $\pm 1,60$	12,7
облучение ( $59,5 \times 10^{18}$ )	13,40 $\pm 0,07$	79,34 $\pm 2,60$	12,50 $\pm 0,01$				5,71	20,66 $\pm 0,82$	8,31 $\pm 0,38$	11,0
облучение ( $59,5 \times 10^{18}$ )	9,77 $\pm 0,30$	45,81 $\pm 10,00$	6,58 $\pm 0,04$	16,30 $\pm 0,44$	44,16 $\pm 12,00$	18,40 $\pm 0,06$	5,86	10,03 $\pm 2,60$	8,77 $\pm 2,40$	12,0
облучение ( $57,1 \times 10^{18}$ ) + отжиг	13,80 $\pm 0,09$	77,60 $\pm 3,10$	13,10 $\pm 0,01$				5,65	22,40 $\pm 0,99$	8,13 $\pm 0,39$	10,7
облучение ( $57,1 \times 10^{18}$ ) + отжиг	9,24 $\pm 0,35$	43,22 $\pm 10,00$	5,89 $\pm 0,05$	16,20 $\pm 0,41$	49,24 $\pm 13,00$	18,00 $\pm 0,06$	5,55	7,54 $\pm 2,70$	7,85 $\pm 3,70$	10,1

Здесь  $\Gamma_{gi}$  – полная ширина (FWHM) гауссовой компоненты на полувысоте,  $\theta_p$  – угол пересечения параболической компонентой оси  $\theta$ ,  $E_f$  (эВ),  $N_p(\theta)$  – соответственно, энергия Ферми и концентрация электронов в зоне проводимости,  $E_{gi}$  – энергия аннигилирующих электрон-позитронных пар,  $I_{g1}$ ,  $I_{g2}$ ,  $I_p$  – интенсивности гауссовых и параболической составляющих спектра УРАФ, численно равные отношению площади под соответствующей компонентой спектра к суммарной площади спектра (рис. 1).

Во всех образцах стали облучение и отжиг сопровождаются перестройкой электронной подсистемы – уменьшается энергия Ферми и концентрация электронов в зоне проводимости (таблицы 3-5), что свидетельствует о возникновении дополнительных химических связей.

Для интерпретации полученных результатов измерены с большой статистикой спектры УРАФ в образцах железа высокой чистоты и ряде чистых металлов (Cu, Cr, Mo, Ni), входящих в состав реакторных сталей. В таблице 6 в качестве примера представлены параметры спектров УРАФ для чистого железа и хрома.

Сопоставление результатов обработки спектров УРАФ для исследованных образцов стали со спектрами УРАФ для чистых металлов показывает, что позитроны преимущественно аннигилируют на электронах железа (хрома) – сопоставимы значения энергии  $E_{g1}$  и  $E_{g2}$  для чистого железа (хрома) с аналогичными параметрами для сталей.

**Таблица 6.** Параметры спектров УРАФ для образцов чистого железа и хрома

	$\Gamma_{g1}$ , мрад.	$I_{g1}$ , %	$E_{g1}$ , эВ	$\Gamma_{g2}$ , мрад.	$I_{g2}$ , %	$E_{g2}$ , эВ	$\theta_p$ отсечка (мрад.)	$I_p$ , %	$E_f$ , эВ	$N_p(\theta)$ $10^{22}\text{cm}^{-3}$
Fe	12,50 $\pm 0,06$	87,62 $\pm 2,90$	10,80 $\pm 0,01$				5,34	12,38 $\pm 0,72$	7,26 $\pm 0,58$	9
Fe	10,10 $\pm 0,31$	64,99 $\pm 14,00$	7,05 $\pm 0,04$	16,70 $\pm 0,72$	32,29 $\pm 12,00$	19,20 $\pm 0,10$	5,01	2,71 $\pm 1,60$	6,40 $\pm 5,60$	7,45
Cr	11,90 $\pm 0,08$	90,82 $\pm 4,30$	9,75 $\pm 0,01$				5,76	9,18 $\pm 1,00$	8,45 $\pm 1,44$	11,3
Cr	9,84 $\pm 0,45$	54,60 $\pm 30,00$	6,68 $\pm 0,06$	14,60 $\pm 0,91$	41,76 $\pm 30,00$	14,60 $\pm 0,13$	6,41	3,63 $\pm 2,60$	10,48 $\pm 8,40$	15,6

Экспериментальные величины концентрации электронов зоны проводимости сопоставлены с расчетными значениями. Показано, что выбранная для расчета модель свободного электронного газа, хорошо зарекомендовавшая себя в таких металлах как магний, алюминий, медь, цинк, индий, олово, свинец, висмут для металлов переходной группы с 3d электронной оболочкой малоприспособна. Из экспериментальных данных следует, что все исследованные металлы, кроме хрома (железо, никель, ванадий), отдают в зону проводимости всего лишь по одному электрону, в то время как их внешняя электронная оболочка содержит по два S-электрона (их конфигурация  $3d^n4S^2$ ). Концентрации электронов в зоне проводимости и энергии Ферми для этих металлов соответственно составляют  $7,4 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  ( $E_F = 6,45 \text{ эВ}$ ) для железа,  $15,6 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  ( $E_F = 10,48 \text{ эВ}$ ) для хрома,  $9,1 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  ( $E_F = 7,29 \text{ эВ}$ ) для никеля и  $8,0 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  ( $E_F = 6,7 \text{ эВ}$ ) для ванадия. Вероятно, для этих металлов часть валентных электронов идет на образование химических связей, чем и объясняется присущая им высокая температура плавления (а также высокие механические свойства). Для хрома ( $3d^54S^1$ ) экспериментально измеренная концентрация электронов в зоне проводимости значительно больше (в  $1,6 \div 2$  раза) расчетного значения, выполненного в предположении, что хром может отдавать в зону проводимости только один электрон. Этот вопрос требует дальнейших исследований и может быть связан с тем что, электронная конфигурация хрома, входящего в состав кристалла, отличается от электронной конфигурации изолированного атома хрома, например ( $3d^44S^2$ ).

Проведенные сопоставления измеренных и расчетных концентраций электронов в зоне проводимости дают основания полагать, что позитронная спектроскопия может быть с успехом применена и для исследования внутренних связей в металлах.

### 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 [24-26]: позитрон находится в сферической яме радиусом  $R_0$  с бесконечно высоким потенциальным барьером. При этом скорость  $\lambda$  его аннигиляции в приграничном слое  $\Delta R$  зависит от радиуса свободного объема поры  $R$

$$\lambda = \lambda_0 \left[ 1 - \frac{R}{R_0} + (2\pi)^{-1} \sin\left(\frac{2\pi R}{R_0}\right) \right], \text{нс}^{-1}, \quad (15)$$

где  $R = R_0 - \Delta R$ , а  $\lambda_0$  - 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  $\Delta R$  зависит от природы вещества. Поэтому уравнение (15) возможно применять лишь для оценок размеров радиусов пор.

Размер пор можно также найти, используя только данные УРАФ.

В рамках рассматриваемой модели энергия частицы  $E$  в основном состоянии в потенциальной яме, моделирующей пору, дается выражением

$$E = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2mR^2}, \quad (16)$$

где  $m$  - масса частицы.

В случае позитрона его энергия будет связана с размером поры соотношением

$$E_{e\nu} = \frac{37,7}{R_0^2}, \quad (17)$$

где 37,7 - переводной множитель,  $R$  – в ангстремах.

Из параметров аннигиляционных спектров УРАФ можно определить энергию позитрона, аннигилирующего в поре, и тем самым оценить размер поры. Поскольку

позитрон перед аннигиляцией успевае практически термализоваться, то измеряемая энергия аннигилирующей позитрон-электронной пары в основном будет определяться энергией электрона.

Рассмотрение кинетической схемы гибели позитронов в среде позволяет по параметрам аннигиляционных спектров определять средние величины концентрации дефектов.

Экспериментальный спектр углового распределения фотонов представляет собой суперпозицию отдельных кривых, характеризующих аннигиляцию позитронов в бездефектной области и в дефектах разных типов [13-15].

Для определения средней величины концентрации дефектов и их размеров по основным характеристикам аннигиляционных спектров в случае, когда в образце имеется два типа дефектов ( $N = 2$ ), можно написать следующие уравнения для скорости захвата позитронов в вакансию и в кластер [10,13]:

$$k_{d1}N_{d1} = \frac{I_1}{1 - I_1 - I_2} \lambda_0, \quad k_{d2}N_{d2} = \frac{I_2}{1 - I_1 - I_2} \lambda_0 \quad (18)$$

$$I_1 = \frac{k_{d1}N_{d1}}{\lambda_0 + k_{d1}N_{d1} + k_{d2}N_{d2}}, \quad I_2 = \frac{k_{d2}N_{d2}}{\lambda_0 + k_{d1}N_{d1} + k_{d2}N_{d2}},$$

где  $I_i$  – вероятность аннигиляции позитронов в областях, соответствующих дефектам  $i$ -го типа,  $\lambda_0$  – скорость аннигиляции позитронов в бездефектной области,  $k_d$  – константа захвата позитронов дефектами,  $N_d$  – концентрация дефектов.

Среднее значение константы захвата позитронов дефектами можно записать в виде

$$k_d = \sigma \cdot \nu = 4 \cdot \pi \cdot D_+ \cdot R_d \quad (19)$$

Здесь  $D_+$  – коэффициент диффузии позитронов,  $R_d$  – средний радиус дефектов (пор),  $\sigma$  – сечение захвата дефектами позитрона,  $\nu$  – скорость термализованного позитрона.

Если имеются образцы с разной концентрацией дефектов одного типа, то можно найти разностный спектр

$$\Delta I = I_1'' - I_1'$$

$$\Delta I = \lambda_0 k_d (N_{d1}'' - N_{d1}') / (\lambda_0 + k_d N_{d1}'' + k_d N_{d2}'') (\lambda_0 + k_d N_{d1}' + k_d N_{d2}') \quad (20)$$

В частном случае дефектов одного типа и изначально бездефектного образца  $N_d'' \gg N_d'$

$$\Delta I = k_d N_d'' / (\lambda_0 + k_d N_d'') \quad (21)$$

Здесь  $\Delta I$  – экспериментально измеряемая величина методом УРАФ,  $\lambda_0$  – скорость аннигиляции позитронов в объеме материала, измеряется методом ВРАФ.

Используя приведенные выражения, можно оценивать радиусы свободных объемов в пористых системах, дефектных материалах по параметрам экспериментально измеренных спектров УРАФ и ВРАФ.

Рассмотрим, для примера, сталь с низким содержанием фосфора (LP).

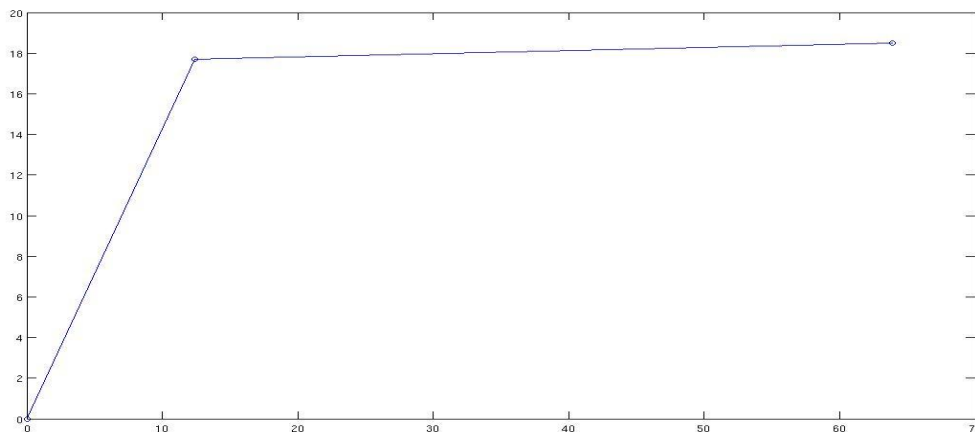
Результаты математической обработки экспериментальных спектров УРАФ показывают, что во всех образцах сталей LP имеются высокоинтенсивные гауссовы компоненты с интенсивностями  $I_{g1} \sim (34 - 63) \%$ ,  $I_{g2} \sim (20 - 55) \%$  и энергиями  $E_{g1} \sim (6 - 9)$  эВ и  $E_{g2} \sim (15 - 24)$  эВ и параболическая компонента с интенсивностью  $I_p \sim (4 - 15) \%$  и энергией Ферми  $E_f \sim (7 - 9)$  эВ. По нашему мнению высокоинтенсивные гауссовы компоненты обусловлены аннигиляцией позитронов, захваченных вакансионными дефектами, а параболическая компонента обусловлена аннигиляцией позитронов на делокализованных электронах проводимости (Ферми-газе объектов). Обращает на себя внимание низкая интенсивность параболической компоненты (таблицы 3-5). Интенсивность этой компоненты для всех исследованных образцов сталей не превышает

15 %. и уменьшается с ростом флюенса нейтронов. Этот эффект, по-видимому, связан с тем обстоятельством, что большая часть позитронов захватывается и аннигилирует в дефектах. Так в работе [18, 19], выполненной методом ВРАФ, показано, что при флюенсе нейтронов  $3,3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$  в аналогичных сталях практически все позитроны захватываются дефектами. Увеличение концентрации позитрончувствительных дефектов с ростом флюенса электронов в сплавах Fe-Ni, Fe-Ni-Al, Fe-Ni-Si наблюдалось также по изменению S-параметра (доплеровского уширения аннигиляционной линии) в работе [27]. В работе [28] показано, что S-параметр характеризует концентрацию вакансионных кластеров малых размеров.

Экспериментально определенная концентрация электронов в зоне проводимости для всех исследованных образцов сплавов уменьшается с ростом флюенса нейтронов (см. [таблицы 3-5](#)). Даже после отжига при  $475 \text{ }^\circ\text{C}$  концентрация делокализованных электронов не возвращается к исходному состоянию. Подобные результаты для чистого железа наблюдались в работе [23], где концентрация электронов проводимости уменьшалась с дозой облучения. По нашему мнению, такое уменьшение концентрации электронов при облучении сплавов обусловлено увеличением межкристаллитных ковалентных связей на границе зерен и формированием упорядоченных структур из примесных атомов. Наблюдается корреляция между характером изменения концентрации делокализованных электронов (рис. 4) и изменениями температуры вязко-хрупкого разрушения материала образцов [6, 7].

Таким образом, появляется возможность исследования методами ПАС внутренних связей в металлах.

$$\frac{N_p^0 - N_p}{N_p^0} \cdot 100\%$$



Флюенс нейтронов  $10^{18} \text{ н/см}^2$

**Рис. 4.** Образцы стали (MP) со средним содержанием фосфора

Здесь  $N_p^0$  и  $N_p$  – соответственно концентрация электронов в необлученных и облученных образцах сталей.

На рис. 4 представлено относительное изменение концентрации электронов в зоне проводимости в зависимости от флюенса нейтронов для стали (MP) со средним содержанием фосфора. Для сталей с низким (LP) и высоким (HP) содержанием фосфора характер зависимости аналогичный (см. [таблицы 3-5](#)).

Как уже говорилось выше, по параметрам аннигиляционных спектров УРАФ можно определить энергию позитрона, аннигилирующего в поре, и тем самым оценить размер поры.

Из данных [таблиц 6 и 7](#) видно, что экспериментально измеренные значения  $E_{g1}, E_{g2}$  образцов стали, железа, хрома и никеля сопоставимы со значениями энергий связи  $E_1 = U_1$  и  $E_2 = U_2$  внешних валентных электронов атомов элементов, входящих в состав стали (табл. 7).

**Таблица 7.** Химический состав образцов стали LP и потенциалы ионизации элементов, входящих в состав стали

Название образца	Fe	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	Cu	V
Содержание, %	~ 97	0,04	0,04	1,12	0,027	0,013	1,42	0,13	0,49	0,16	0,19
$U_1$ , эВ	7,9	11,3	8,15	7,43	10,56	10,35	6,76	7,63	7,13	7,72	6,74
$U_2$ , эВ	16,2	24,4	16,34	15,64	19,65	23,4	16,49	18,15	15,72	20,29	14,65

$E_{g1}$  – необлученные образцы сталей ~ 5.86-6.91 [эВ] (табл. 3-5)

$E_{g2}$  – необлученные образцы сталей ~ 15.6-18.6 [эВ] (табл. 3-5)

Назовем эти центры аннигиляции позитронов с параметрами  $I_{g1}, E_{g1}$  центрами первого рода. Отличие величины  $E_{g1}$  от значения  $E_1 = U_1$  атомов Fe и Cr, по-видимому, обусловлено уменьшением  $E_1 = U_1$  в кристалле (сплаве) по сравнению со значением  $E_1 = U_1$  электрона свободных атомов Fe и других атомов за счет образования химических связей с другими элементами сплава. В свою очередь, значения  $E_{g2}$  для образцов стали, Fe и Cr по своим значениям ближе всего к значениям энергий связи  $E_2 = U_2$  внешних электронов положительно заряженных ионов атомов Fe и других элементов, входящих в состав стали (таблица 7). Назовем эти центры аннигиляции позитронов с параметрами  $I_{g2}, E_{g2}$  центрами второго рода. Из данных табл. 3-5 следует, что эти центры аннигиляции первого и второго рода при облучении и отжиге претерпевают значительные трансформации.

Будем считать центрами аннигиляции первого рода поры в тройном стыке кристаллитов и дислокации (либо комплексы вакансий), декорированные атомами железа и примесей. Аннигиляция позитронов из этих состояний дает компоненту  $I_{g1}(E_{g1})$ . Центрами захвата второго рода могут служить вакансии на границе раздела кристаллитов и радиационно-индуцированные вакансии Fe и их комплексы. Из экспериментальных данных (таблицы 3-5) следует, что при отжиге происходит преимущественно трансформация радиационно-индуцированной части центров захвата второго рода в центры захвата с более глубокими позитронными уровнями. В такой модели с ростом флюенса нейтронов увеличивается концентрация радиационно-индуцированных вакансионных дефектов и, как следствие, увеличивается захват позитронов этими дефектами и, соответственно, уменьшается доля позитронов, аннигилирующих со свободными электронами и в дефектах первого рода (см. таблицы 3-5).

При этом аннигиляция позитронов протекает в основном на внешних (валентных) электронах атома железа и заряженного иона  $Fe^+$ , так как  $E_{g1} \rightarrow U_1, E_{g2} \rightarrow U_2$ .

Таким образом, по экспериментально определенным энергиям  $E_{g1}$  и  $E_{g2}$  (см. таблицы 3-5) можно также найти состав и радиусы нанообъектов (пор, вакансий, зерен и включений второй фазы – нанокластеров и возможно дислокаций, декорированных различными примесями и т.д.), используя только данные УРАФ [29-31]. Для этого приведем выражение, связывающее энергию аннигилирующей электрон-позитронной пары с полной шириной на полувысоте соответствующей гауссовой компоненты спектра УРАФ

$$E_{gi} = 6,9 \cdot 10^{-2} \cdot \Gamma_{gi}^2 \quad (22)$$

Здесь  $E$  – энергия в эВ, а  $\Gamma_g$  – полная ширина кривой УРАФ на полувысоте в мрад. Так для образцов сплава LP (таблица 3) рассчитанные по этой формуле значения средних энергий аннигилирующих электрон-позитронных пар оказались равными  $E_{g1} = 6,91, 6,09, 5,52, 9,23$  эВ и  $E_{g2} = 18,6, 18,1, 15,5, 24,4$  эВ. Табличные значения энергий электронов (табл. 7) внешних оболочек атомов железа и иона железа составляют величины 7,89 и

16,19 эВ, а для хрома эти же величины соответственно равны 6,76 и 16,49 эВ. Как видим, значения величин энергий  $E_{gi}$ ,  $E(Fe)$  и  $E(Fe^+)$  близки друг другу. Таким образом, можно полагать, что позитроны аннигилируют в основном на внешних валентных электронах атомов железа (хрома) «стенки» вакансий и комплексов вакансий. В этом случае, разность величин  $E - E(Fe)$  в эВ обусловлена вкладом энергии позитрона, находящегося в вакансиях, в энергию аннигилирующих электрон-позитронных пар. Для оценки размера вакансий можно использовать выражения вида

$$R_{sp} = \left( \frac{37,7}{E - E(Fe)} \right)^{1/2}, \quad R_{sp} = \left( \frac{37,7}{E - E(Fe^+)} \right)^{1/2} \quad (23)$$

Здесь величины имеют размерности  $R_{sp}$  в Å,  $E$  в эВ. Определим размеры центров захвата второго рода, используя параметры ионов железа  $E = E_{g2} - E(Fe^+)$  эВ. Для  $E_{g2} = 18,6$  эВ и  $E(Fe^+) = 16,19$  эВ получим размер пор 4 Å. Значение  $E(Fe^+)$  для всех исследованных образцов сталей (LP, MP, HP) меняется от 15,5 до 24,4 эВ, а размер дефектов, соответственно, от 5 до 2 Å.

Из выражения (21) можно получить связь между скоростью захвата  $k_d N_d$  центрами второго рода и интенсивностью компоненты  $I_{g2}$

$$k_d N_d \cong \lambda_0 \Delta I \cong \Delta I / \tau_0, \text{ с}^{-1} \quad (24)$$

Здесь  $\Delta I$  – разность между интенсивностями гауссовых компонент  $I_{gi}$  (Irradiated), облученных образцов стали, и  $I_{gi}$  (Not irradiated) исходных необлученных образцов стали в спектрах УРАФ,  $K_d$  – константа захвата позитронов дефектами, а  $N_d$  – концентрация дефектов.

Оценим значение  $k_d N_d$  для значения  $\Delta I_{g2} = 0,08$  (см. табл. 3) и значения  $\tau_0 = (1,10 \pm 0,05) \cdot 10^{-10}$  с [18,19] для данной стали. С этим значением  $\Delta I_g$  получаем  $k_d N_d \cong 0,08 / 1,10 \cdot 10^{-10} = 7,3 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ .

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

$$k_d N_d = \sigma \cdot \nu \cdot N_d, \text{ с}^{-1} \quad (25)$$

Здесь  $\sigma$  – сечение захвата дефектами позитрона;  $\nu$  – 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  $\nu = (8k_0 T / \pi m_+^*)^{1/2} \approx 1,05 \cdot 10^7$  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  $\sigma \approx \pi \cdot R_d^2 = 3,14 \cdot 0,16 \cdot 10^{-14} \approx 5 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$  (приняли, что  $R_d \approx 0,4$  нм). Используя определенные выше значения  $R_d \approx 0,4 \cdot 10^{-7}$  см,  $k_d$  и  $\nu$ , можно оценить среднее значение концентрации центров захвата позитронов в облученных образцах стали  $N_d = \lambda_0 \Delta I / \sigma \cdot \nu = 7,3 \cdot 10^8 / 5 \cdot 10^{-15} \cdot 10^7 \approx 1,4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . При использовании данных [18, 19]  $\Delta I_2 = 0,06$ ,  $\tau_0 = 1,1 \cdot 10^{-10}$  с и радиусе вакансий  $R_d \approx 0,25$  нм (радиус вакансий из данных ВРАФ) получим значение  $k_d N_d \cong 0,06 / 1,10 \cdot 10^{-10} = 5,5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$  и концентрацию дефектов  $N_d = k_d N_d / \sigma \cdot \nu = 5,5 \cdot 10^8 / 2 \cdot 10^{-15} \cdot 10^7 \approx 2,7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ .

### Заклучение

Проведены исследования корпусных сталей, используемых в действующих реакторах ВВЭР–440. В исследованных образцах сталей выявлены вакансионные дефекты, в том числе вызванные нейтронным облучением, и определены их размеры. Показано, что метод позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС) является одним из эффективных методов определения размеров нанообъектов (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.

### Примечания:

1. Slugen V., Segers D., de Bakker P.M.A., de Graveb E., Magula V., Hoecke T. van and B. van Waeyenberge // *Journal of Nuclear Materials*, Volume 274, Issue 3, September 1999, p.273-286;
2. Slugen V., Kogel G., Sperr P., Triftshauser W. // *Journal of Nuclear Materials*. 302 (2002) 89–95.
3. Debarberis L., Kryukov A., Erak D., Kevorkyan Yu. and D. Zhurko // *International Journal of Pressure Vessels and Piping*, Volume 81, Issue 8, August 2004, Pages 695-701.
4. Nishiyama Y., Onizawa K., Suzuki M., Anderegg J.W., Nagai Y., Toyama T., Hasegawa M. and J. Kameda // *Acta Materialia*, Volume 56, Issue 16, September 2008, Pages 4510-4521.
5. Rogozkin S., et al. // *The effect of post-irradiation annealing on VVER-440 RPV materials mechanical properties and nano-structure under re-irradiation*, proceedings of PVP2009, July 26-30, 2009, Prague, Czech Republic.
6. Chernobaeva A., Shtrombah J., Krjukov A., Erak D., Platonov P., Nikolaev J., Krasikov E., Debarberis L., Kohopaa Yu., Valo M., Vodenicharov S. and T. Kamenove. *Material characterization and selection for the international research project “PRIMAVERA”*. // *International Journal of Pressure Vessels and Piping*, Volume 84, Issue 3, March 2007, Pages 151-158.
7. Zabusov, E. Krasikov, M. Kozodaev, A. Suvorov, P. Pareige, B. Radiguet., “Redistribution of impurity and alloying elements in VVER-440 reactor pressure vessel steel due to operating factors”, *Physics of radiation damage and radiation material science*, N 3 (83), 2003, pp. 66-72.
8. Zeman A., et al. // *Journal of Nuclear Materials*, Volume 360, Issue 3, 1 March 2007, p. 272-281.
9. Krsjak V., et al. // *Applied Surface Science*; Volume 255, Issue 1, 31 October 2008, Pages 153-156.
10. Lambrecht M., Almazouzi A. // *Journal of Nuclear Materials*, Volume 385, Issue 2, 31 March 2009, Pages 334-338.
11. Druzhkov A.P., Perminov D.A. //Chapter 5 in *Nuclear Materials Research Developments*. Editor: J.E.Keister ISDN 1-60021-432-0, 2007, Nova Science Publishers, Inc.
12. Puska M.J. and R.M. Nieminen // *Reviews of Modern Physics*, vol.66, № 3, July 1994, p. 841-893.
13. Grafutin V.I. and E.P. Prokopev // *Physics - Uspekhi* 45 (1) 59 - 74 (2002), p.63;
14. Grafutin V.I. et al. // *Phys. Solid State* 40 549 (1998).
15. Grafutin V.I. et al. // *Phys. Solid State* 41 843 (1999).
16. Puska M.J., Nieminen R.M. *Defect spectroscopy with positrons a general calculational method*.// *J.Phys. F: Metal Phys.* 1983. V.13. №2. P.333-346.
17. Slugen V. // *What Kind of Information we can Obtain from Positron Annihilation Spectroscopy*, European Commission, Joint Research Centre, EUR 22468 EN, 2006.
18. Kocik J., Keilova E., Cizek J., Prochazka I. // *Journal of Nuclear Materials* 303 (2002) 52–64.
19. Cizek J., Vecvar F., Prochazka I. // *Nuclear Instruments and Methods in Physics research A* 450 (2000) 325-337.
20. Гусев А.И. // *Наноматериалы, наноструктуры, нанотехнологии*, Москва, Физматлит, 2009, С. 415.
21. Schaefer H.-E. *Investigation of termal equilibrium vacancies in metals by positron annihilation*. // *Phys.Stat.Sol.(a)*.1987.V102. №1. P. 47-65.



22. Бритков О.М., Гаврилов С.А., Графутин В.И., Калугин В.В., Илюхина О.В., Мясищева Г.Г., Прокопьев Е.П., Тимошенко С.П., Фунтиков Ю.В. Исследование пористого кремния методом позитронной аннигиляционной спектроскопии // Химия высоких энергий. 2007. Т.41. №1. С. 1-6.
23. Eldrup M. and B.N. Singh // Investigations of Void Formation in Neutron Irradiated Iron and F82H Steel, Risø report R-1241(EN), ISBN 87-550-2824-1, (2001).
24. Tao S. J. // J. Chem. Phys. 56 (1972) 5499.
25. Eldrup M., Lightbody D., Sherwood J. N. // Chem. Phys. 63 (1981) 51.
26. Deng Q., Jean Y. // Macromolecules 26 30 (1993).
27. Druzhkov A.P., Perminov D.A., Davletshin A.E. // Journal of Nuclear Materials, 384 (2009) 56-60.
28. Brandt W. // Appl. Phys. 5.(1974) 1.
29. Графутин В.И., Илюхина О.В., Мясищева Г.Г., Прокопьев Е.П., Тимошенко С.П., Фунтиков Ю.В. Позитроника нанообъектов в пористых и дефектных системах на основе кремния и кварца. // Украинский физический журнал. 2009. Т.54. №5. С. 443-453.
30. Chaplygin YA, Gavrilo SA, Grafutin VI, Svetlov-Prokopiev E, and Timoshenkov SP. Positronics and nanotechnologies: possibilities of studying nano-objects in technically important materials and nanomaterials. // Proc. IMechE. Part N: J. Nanoengineering and Nanosystems. 2009. Vol. 221. P. 125-132.
31. Chaplygin Yu.A., Grafutin V.I., Svetlov-Prokopiev E.P., Timoshenkov S.P. Positronics and Nanotechnologies: Possibilities of Studying Nano-objects in Technically Important Materials and Nanomaterials. // In Book: Advances in Nanotechnology. Volume 1. Editors: E. J. Chen and N. Peng. 2009.

#### References:

- Slugen V., Segers D., de Bakker P.M.A., de Graveb E., Magula V., Hoecke T. van and B. van Waeyenberge // Journal of Nuclear Materials, Volume 274, Issue 3, September 1999, p.273-286;
- Slugen V., Kogel G., Sperr P., Triftshauser W. // Journal of Nuclear Materials. 302 (2002) 89-95.
- Debarberis L., Kryukov A., Erak D., Kevorkyan Yu. and D. Zhurko // International Journal of Pressure Vessels and Piping, Volume 81, Issue 8, August 2004, Pages 695-701.
- Nishiyama Y., Onizawa K., Suzuki M., Anderegg J.W., Nagai Y., Toyama T., Hasegawa M. and J. Kameda // Acta Materialia, Volume 56, Issue 16, September 2008, Pages 4510-4521.
- Rogozkin S., et al. // The effect of post-irradiation annealing on VVER-440 RPV materials mechanical properties and nano-structure under re-irradiation, proceedings of PVP2009, July 26-30, 2009, Prague, Czech Republic.
- Chernobaeva A., Shtrombah J., Krjukov A., Erak D., Platonov P., Nikolaev J., Krasikov E., Debarberis L., Kohopaa Yu., Valo M., Vodenicharov S. and T. Kamenove. Material characterization and selection for the international research project "PRIMAVERA". // International Journal of Pressure Vessels and Piping, Volume 84, Issue 3, March 2007, Pages 151-158.
- Zabusov, E. Krasikov, M. Kozodaev, A. Suvorov, P. Pareige, B. Radiguet., "Redistribution of impurity and alloying elements in VVER-440 reactor pressure vessel steel due to operating factors", Physics of radiation damage and radiation material science, N 3 (83), 2003, pp. 66-72.
- Zeman A., et al. // Journal of Nuclear Materials, Volume 360, Issue 3, 1 March 2007, p. 272-281.
- Krsjak V., et al. // Applied Surface Science; Volume 255, Issue 1, 31 October 2008, Pages 153-156.
- Lambrecht M., Almazouzi A. // Journal of Nuclear Materials, Volume 385, Issue 2, 31 March 2009, Pages 334-338.
- Druzhkov A.P., Perminov D.A. //Chapter 5 in Nuclear Materials Research Developments. Editor: J.E.Keister ISDN 1-60021-432-0, 2007, Nova Science Publishers, Inc.
- Puska M.J. and R.M. Nieminen // Reviews of Modern Physics, vol.66, № 3, July 1994, p. 841-893.
- Grafutin V.I. and E.P. Prokopev // Physics - Uspekhi 45 (1) 59 - 74 (2002), p.63;
- Grafutin V.I. et al. // Phys. Solid State 40 549 (1998).
- Grafutin V.I. et al. // Phys. Solid State 41 843 (1999).

16. Puska M.J., Nieminen R.M. Defect spectroscopy with positrons a general calculational method. // *J.Phys. F: Metal Phys.* 1983. V.13. №2. P.333-346.
17. Slugen V. // *What Kind of Information we can Obtain from Positron Annihilation Spectroscopy*, European Commission, Joint Research Centre, EUR 22468 EN, 2006.
18. Kocik J., Keilova E., Cizek J., Prochazka I. // *Journal of Nuclear Materials* 303 (2002) 52-64.
19. Cizek J., Becvar F., Prochazka I. // *Nuclear Instruments and Methods in Physics research A* 450 (2000) 325-337.
20. Gusev A.I. // *Nanomaterialy, nanostruktury, nanotekhnologii*, Moskva, Fizmatlit, 2009, S. 415.
21. Schaefer H.-E. Investigation of thermal equilibrium vacancies in metals by positron annihilation. // *Phys.Stat.Sol.(a)*.1987.V102. №1. P. 47-65.
22. Britkov O.M., Gavrilo S.A., Grafutin V.I., Kalugin V.V., Ilyukhina O.V., Myasishcheva G.G., Prokop'ev E.P., Timoshenkov S.P., Funtikov Yu.V. Issledovanie poristogo kremniya metodom pozitronnoi annigilyatsionnoi spektroskopii // *Khimiya vysokikh energii*. 2007. T.41. №1. S. 1-6.
23. Eldrup M. and B.N. Singh // *Investigations of Void Formation in Neutron Irradiated Iron and F82H Steel*, Risø report R-1241(EN), ISBN 87-550-2824-1, (2001).
24. Tao S. J. // *J. Chem. Phys.* 56 (1972) 5499.
25. Eldrup M., Lightbody D., Sherwood J. N. // *Chem. Phys.* 63 (1981) 51.
26. Deng Q., Jean Y. // *Macromolecules* 26 30 (1993).
27. Druzhkov A.P., Perminov D.A., Davletshin A.E. // *Journal of Nuclear Materials*, 384 (2009) 56-60.
28. Brandt W. // *Appl. Phys.* 5.(1974) 1.
29. Grafutin V.I., Ilyukhina O.V., Myasishcheva G.G., Prokop'ev E.P., Timoshenkov S.P., Funtikov Yu.V. Pozitronika nanoob"ektov v poristyykh i defektnyykh sistemakh na osnove kremniya i kvartsa. // *Ukrainskii fizicheskii zhurnal*. 2009. T.54. №5. S. 443-453.
30. Chaplygin YA, Gavrilo SA, Grafutin VI, Svetlov-Prokopiev E, and Timoshenkov SP. Positronics and nanotechnologies: possibilities of studying nano-objects in technically important materials and nanomaterials. // *Proc. IMechE. Part N: J. Nanoengineering and Nanosystems*. 2009. Vol. 221. P. 125-132.
31. Chaplygin Yu.A., Grafutin V.I., Svetlov-Prokopiev E.P., Timoshenkov S.P. Positronics and Nanotechnologies: Possibilities of Studying Nano-objects in Technically Important Materials and Nanomaterials. // *In Book: Advances in Nanotechnology. Volume 1. Editors: E. J. Chen and N. Peng.* 2009.

УДК 621.315

## Применение методов позитронной аннигиляционной спектроскопии в ядерных технологиях

### 1. Исследования конструкционных материалов активной зоны реакторов методом углового распределения аннигиляционных фотонов (метод УРАФ)

Виктор Иванович Графутин<sup>a</sup>, Владимир Аркадьевич Илюхин<sup>a</sup>,  
Ольга Владимировна Илюхина<sup>a</sup>, Евгений Петрович Прокопьев<sup>a,\*</sup>,  
Геннадий Иванович Савельев<sup>a</sup>, Николай Олегович Хмелевский<sup>a</sup>,  
Юрий Васильевич Фунтиков<sup>a</sup>

<sup>a</sup>НИЦ «Курчатовский институт», ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ»  
им. А.И. Алиханова, Российская Федерация

\* Корреспондирующий автор  
Адреса электронной почты: [eprokopiev@mail.ru](mailto:eprokopiev@mail.ru) (Е.П. Прокопьев)

**Аннотация.** Методом позитронной аннигиляционной спектроскопии (метод УРАФ) 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:** спектроскопия, ядерные технологии, позитроны, метод УРАФ.