



## **Лекция 12.**

# **ВОЗМОЖНОСТИ ПРАКТИЧЕСКОГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ РАДИАЦИОННЫХ ЯВЛЕНИЙ И ЭФФЕКТОВ.**

**О применении явления электрон-позитронной аннигиляции для  
изучения дефектной структуры металлов и сплавов**

**Дисциплина: Радиационные эффекты и современная спектроскопия твердого тела.**

**Преподаватель: Phd, и.о. доцента Мархабаева А.А.**



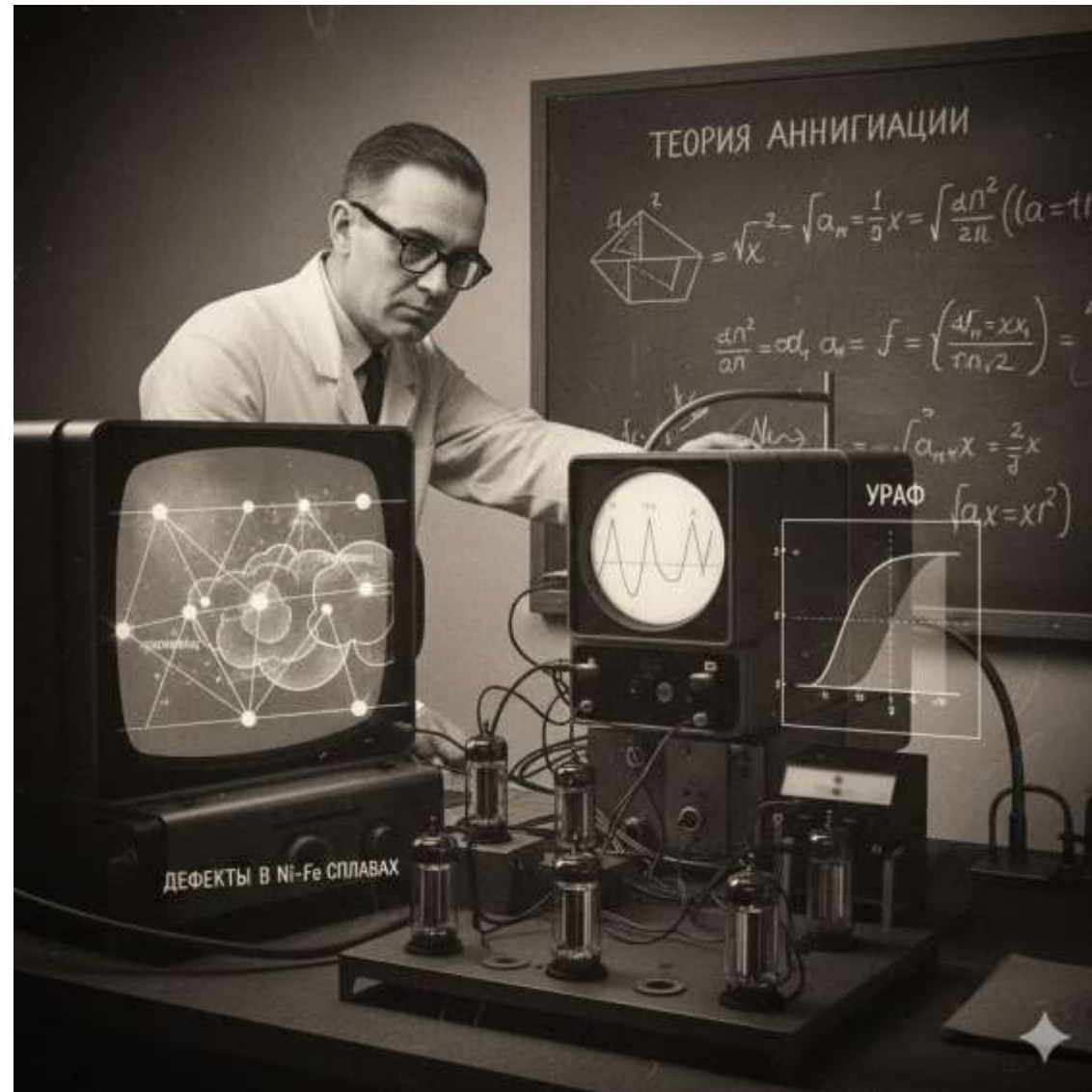
**Цель лекции:** Изучить физические основы явления электрон-позитронной аннигиляции, принципы позитронных методов диагностики дефектов и рассмотреть возможности их применения для анализа микроструктуры металлов и сплавов после термической обработки и радиационного воздействия.

### **Основные вопросы лекции**

- Физическая сущность электрон-позитронной аннигиляции.
- Параметры аннигиляционного процесса и их связь с электронной структурой.
- Механизмы захвата позитронов в дефектах твёрдого тела.
- Время жизни позитрона и характеристика типов дефектов.
- Методы позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС): время-жизненный анализ, доплеровское уширение, угловая корреляция.
- Исследование вакансий, кластеров и пор в металлах и сплавах.
- Эволюция дефектов при облучении и термообработке по данным ПАС.
- Применение электрон-позитронной аннигиляции в материаловедении и радиационной физике

Первые эксперименты, посвященные изучению дефектной структуры в Ni и его сплавах с Fe, созданной пластической деформацией, показали перспективность использования явления аннигиляции для этой цели.

Впервые идея локализации позитрона в такого рода дефектах была высказана авторами работ и в последующем она нашла свое теоретическое и экспериментальное подтверждение. Безусловно, приоритет решения этой проблемы при этом принадлежит Дехтяру И.Я. и его сотрудникам. В качестве принципиальных факторов, приводящих к изменению формы УРАФ и спектра времени жизни позитрона, можно отметить следующие: изменение плотности электронов в дефектах;





Открытие явления локализации позитрона в области структурных нарушений вызвало резкое повышение интереса исследователей к этому методу. Спустя некоторое время после первых опытов с деформацией, Маккензи с сотрудниками, изучая влияние нагрева металлических материалов на характеристики УРАФ, обнаружил аналогичные их изменения. Расчеты показали, что изменение формы кривой при этом значительно превосходит возможный вклад от термического расширения кристаллической решетки. Позже это явление тоже нашло свое объяснение, как локализация и аннигиляция позитронов в термических вакансиях, когда удалось исключить влияние термического расширения решетки путем закалки с высокой температуры. При этом в металлах сохраняется повышенная концентрация вакансии при комнатной температуре. Главным результатом подобных температурных исследований явилась возможность определения энергии образования вакансии  $E_V$  в металлах:

$$\frac{h - h_c}{h_0 - h} = \frac{\nu_c}{\lambda_c} = \frac{\nu C_0}{\lambda_c} \exp\left(-\frac{E_V}{kT}\right)$$



Изучение кинетических процессов, связанных с температурными изменениями структуры, лучше всего проводить методом измерения ДУАЛ, обеспечивающего хорошую статическую точность при высокой экспрессности. Примером эффективного использования этого метода является работа, в которой исследовался процесс рекристаллизации ультрадисперсных порошков Мо. Было обнаружено постоянство аннигиляционного параметра  $S_1/S_0$  при нагреве до  $850^\circ\text{C}$  и последующее резкое возрастание его в интервале до  $1000^\circ\text{C}$ , свидетельствующее о происходящих структурных перестройках в материале, вызванных генерацией неравновесных вакансий и, возможно, процессом спекания.

На сегодняшний день с достаточной полнотой, как в экспериментальном, так и теоретическом плане изучены процессы взаимодействия позитрона с вакансиями и их скоплениями. В ходе этих исследований была установлена нелинейная зависимость вероятности захвата позитронов дефектами от концентрации вакансии.

Было установлено, что насыщение в изменениях времени жизни наступает при 50 вакансиях в кластере, достигая значения 500 пс (рис. 43). Такую величину среднего времени жизни можно получить при аннигиляции позитронов на плоской поверхности тела.

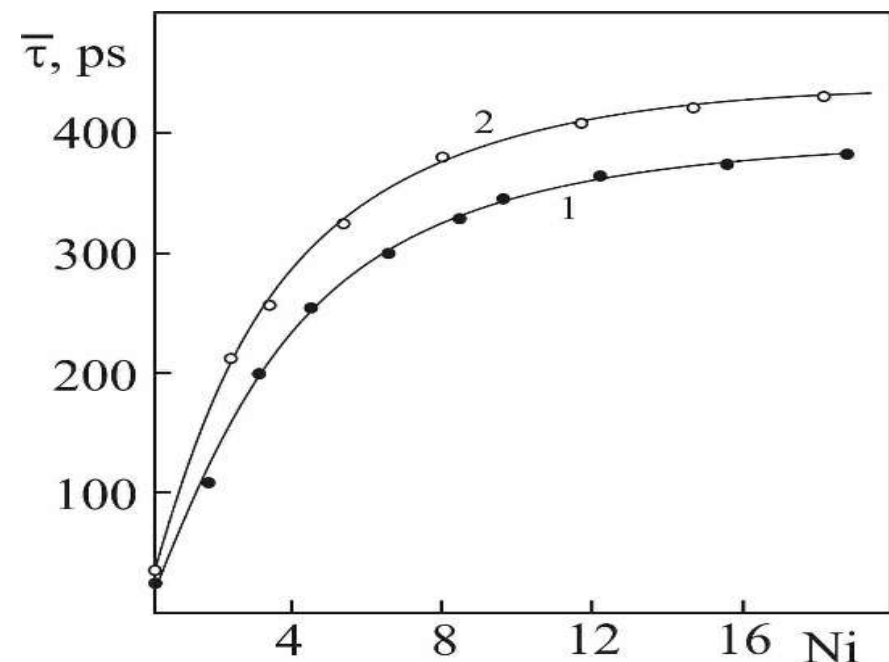


Рис. 5.11. Среднее время жизни позитронов в Fe (1) и Mo (2) в зависимости от размера кластера





## 5.6 Модель захвата позитронов дефектами кристаллической структуры

Начиная с 60-х годов прошлого века попытка феноменологического описания взаимодействия позитронов с дефектами кристаллической структуры с различной степенью приближения осуществлялась многими авторами. Позже Зеегером и Брандтом результаты этих работ были обобщены и систематизированы и получили название **модели «захвата»** позитронов. В ней были учтены практически все типы существующих дефектов и вероятность выхода позитрона из «ловушек» в результате тепловых возмущений. В основе феноменологической модели «захвата» позитронов дефектами кристалла лежит следующая физическая картина. Возникновение структурных нарушений в кристалле сопровождается обязательным перераспределением электронной плотности вблизи дефектной области. Этот процесс непременно отражается в значениях граничного импульса Ферми. Изменение плотности свободного электронного газа и отсутствие кулоновского потенциала отталкивания иона в этом месте создает благоприятные условия для локализации и захвата позитрона.

Поскольку любой подобный подход в широких масштабах представляет всегда сложную задачу, рассмотрение модели следует начинать с простейших случаев, предполагая присутствия в исследуемом материале дефектов только одного типа, распределенных равномерно по всему объему. Тогда кинетические уравнения модели изменения относительной концентрации позитронов в совершенной  $n_f(t)$  и дефектной  $n_v(t)$  областях кристаллической решетки записываются в следующем виде:

$$\begin{aligned} \frac{dn_f}{dt} &= -\lambda_f n_f - \mu_v C_v n_f \\ \frac{dn_v}{dt} &= -\lambda_v n_v + \mu_v C_v n_f \end{aligned} \quad (5.47)$$

где  $\lambda_f$ - и  $\lambda_v$ - скорости аннигиляции позитрона из квазисвободного и захваченного состояний;  $\mu_v$ - удельная скорость захвата «ловушками»;  $C_v$ - концентрация «ловушек».



Решение системы (1.47) не представляет особой сложности и может быть выражено суммой двух компонент при граничных условиях  $n_f(0) = 0$  и  $n_v(0) = 0$ , определяющих полную термализацию позитронов, пребывание их в квазисвободном состоянии и отсутствие выхода из «ловушек» в результате термической делокализации:

$$n(t) = n_f(t) + n_v(t) = I_1 \exp(-\lambda_1 t) + I_2 \exp(-\lambda_2 t) \quad (5.48)$$

Здесь  $I_1$  и  $I_2$  относительные интенсивности первой и второй компоненты.

$$\lambda_1 = \lambda_F + \mu_V C_V; \quad \lambda_2 = \lambda_v = \tau_2^{-1};$$

$\tau_2$ -время жизни позитрона в захваченном состоянии.

$$I_2 = \frac{\mu_v C_v}{\lambda_f + \lambda_v + \mu_v C_v}; \quad \underline{\underline{I = I_1 + I_2}} \quad (5.49)$$

Анализ временных распределений позволяет получить практически большинство интересующих нас структурно - чувствительных параметров. Но не менее важны энергетические и угловые распределения аннигиляционного излучения. Спектр угловой корреляции так же определяется полным числом аннигиляции позитронов из всех возможных состояний:

$$N_f = \int_0^{\infty} \lambda_f n_f(t) dt = \frac{\lambda_f}{\lambda_f + \mu_v C_v} \quad (5.50)$$

$$N_v = \int_0^{\infty} \lambda_v n_v(t) dt = \frac{\mu_v C_v}{(\lambda_v + C_v \mu_v)} \quad (5.51)$$

В случае присутствия в материале дефектов нескольких типов, систему уравнений (5.47) можно записать в следующем виде:

$$\begin{aligned} \frac{dn_f}{dt} &= -\lambda_f n_f - \sum_i \mu_{vi} C_{vi} n_f \\ \frac{dn_{vi}}{dt} &= -\lambda_{vi} n_{vi} + \mu_{vi} C_{vi} n_f, \end{aligned}$$

где  $n_{vi}(t)$  - концентрация локализованных позитронов в ловушках  $i$ -типа в момент времени  $t$ .

Количество уравнений в последнем случае должно быть на единицу больше количества типов дефектов. При тех же граничных условиях  $n_f(0) = 0$ ;  $n_{vi}(0) = 0$  решение системы (5.52) можно выразить следующим образом:

$$n_f = n_0 \left\{ 1 - \sum_i \frac{\mu_{vi} C_{vi}}{\lambda_f - \lambda_{vi} + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}} \right\} \exp \left[ -(\lambda_f + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}) t \right]$$
$$n_{vi} = \sum_i \frac{n_0 \mu_{vi} C_{vi}}{\lambda_f - \lambda_{vi} + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}} \cdot \exp(-\lambda_{vi} t)$$

С учетом (5.48) теоретический спектр временных распределений будет иметь вид:

$$n(t) = n_f(t) + n_{vi}(t) =$$
$$= n_0 \left\{ 1 - \sum_i \frac{\mu_{vi} C_{vi}}{\lambda_f - \lambda_{vi} + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}} \right\} \times$$
$$\times \exp \left[ -\left( \lambda_f + \sum_i \mu_{vi} C_{vi} \right) t \right] +$$
$$+ \sum_i \frac{n_0 \mu_{vi} C_{vi}}{\lambda_f - \lambda_{vi} + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}} \cdot \exp(-\lambda_{vi} t)$$

(5.54)

Используя различные методы математической подгонки, теоретический спектр (5.54) можно сравнить с экспериментальным спектром временных распределений:

$$n(t) = n_0 \sum_i I_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (5.55)$$

и находить те же параметры (5.49) для всех присутствующих типов дефектов.

Аннигиляционные параметры, определяющие форму спектра угловых распределений, в этом случае могут быть найдены так же, как в предыдущем случае, путем интегрирования на основании (5.50) и (5.51)

$$N_f = \frac{\lambda_f n_0}{\lambda_f + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}}; \quad N_{vi} = \frac{\mu_{vi} C_{vi} n_0}{\lambda_f + \sum_i \mu_{vi} C_{vi}}; \quad (5.56)$$

При использовании одноловушечной модели с использованием (5.54) и (5.55) можно выразить экспериментальные параметры через теоретические:

$$\begin{aligned}\tau_1 &= \frac{\tau_f}{1 + \tau_f \mu_\nu C_\nu}; \quad \tau_2 = \lambda_2^{-1}; \\ I_2 &= \frac{\mu_\nu C_\nu}{\lambda_f - \lambda_\nu + \mu_\nu C_\nu}; \quad I_1 = 1 - I_2.\end{aligned}\tag{5.57}$$

В результате разложения спектра угловых распределений (5.26) на параболическую и гауссовую компоненты, находят полную площадь под кривой  $S_0$  и площади под каждой составляющей  $S_p$  и  $S_g$ . Эти величины связаны со значениями интенсивностей компонент  $N_p$  и  $N_g$  при  $\theta = 0$  следующими соотношениями:

$$N_p = \frac{3S_p}{4\theta_p^3}; \quad N_g = \frac{S_g}{\sqrt{\pi}\theta_g}\tag{5.58}$$



При интерпретации результатов, очевидно, нельзя забывать, что модель -она есть модель, и не следует ее пытаться использовать всюду, ориентируясь на одно только смысловое слово «захват». Не следует также полностью отвергать ее, оперируя тем, что в отдельных случаях она дает не совпадающие с полученными другими методами результаты, ставя под сомнение истинность добытых при этом данных, тем более, что даже теория свободных электронов не всегда корректно описывает движение электронов проводимости. Поэтому при использовании модели захвата следует иметь ввиду, что модель, может быть применима при изучении дефектной структуры только в том случае, если концентрация дефектов в исследуемых образцах находится в пределах чувствительности самого метода.





Несмотря на значительные успехи в понимании и интерпретации результатов исследования структуры твердых тел методами ЭПА с использованием модели захвата позитрона, имеются факты, вызывающие сомнения в достоверности полученных этими методами данных. Во - первых, модель непосредственно не рассматривает сам процесс захвата позитрона дефектами и его состояние в условиях локализации от момента попадания в потенциальную яму до момента аннигиляции. Во - вторых, с точки зрения изученности методами ЭПА, все металлы условно можно разделить на три класса. В первый класс относят металлы, обеспечивающие эффект захвата позитронов: Al, Zn, V, Fe, Ni, Cu, Cd, In, Sn, Mo, Ag, Pd, Nb, Ta, Pb, W, Pt, Au, охватывающие II, IV – VI - периоды периодической системы элементов. Второй класс представлен элементами Li, Na, Mg, Ti, Rb, Cs, Zr, Ga, Te, Si, Ge, Sb, Bi, Tl, которые эффект захвата  $e^+$  не обнаруживают. Элементы, не изученные методами ЭПА, образуют третий класс: Be, Ca, Sr, Ba, As, Se, Sc, Y, Hf, Cr, Mn, Te, Re, Ru, Os, Rh, Ir. Установление истинности, а также полный анализ причин и следствий этих данных, представляет само по себе отдельную работу, открывающую новое направление в физике конденсированного состояния.



## Контрольные вопросы:

1. В чём состоит физическая сущность электрон-позитронной аннигиляции?
2. Как связаны время жизни позитрона и электронная плотность в кристалле?
3. Какие типы дефектов можно определить с помощью ПАС?
4. В чём отличие методов PALS, ДАЭ и ACAR?
5. Почему позитроны захватываются в вакансиях и порах?
6. Как изменяется время жизни позитрона после облучения и отжига металлов?
7. Какие радиационные дефекты формируются при воздействии быстрых нейтронов?
8. Приведите примеры применения ПАС в исследовании конструкционных материалов.
9. Почему ПАС является неразрушающим методом диагностики дефектов?
10. Как электрон-позитронная аннигиляция используется для анализа сплавов и наноматериалов?



## Рекомендуемая литература:

1. Гребенюк В. Д. Радиационная физика твёрдого тела. М.: Энергоатомиздат, 2008.
2. Кудрявцев Ю. И. Дефекты кристаллической решётки и радиационные процессы. М.: Физматлит, 2010.
3. Krause-Rehberg R., Leipner H. S. Positron Annihilation in Semiconductors: Defect Studies. Springer, 1999.
4. Dupasquier A., Mills A. P. Positron Spectroscopy of Solids. IOS Press, 1995.
5. Jean Y. C. Principles and Applications of Positron and Positronium Chemistry. World Scientific, 2003.
6. Mikhailov M. N. Radiation Physics of Solids. St. Petersburg: BHV-Publishing, 2013.