

ЦИФРОВОЙ СПЕКТРОМЕТР ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ ПОЗИТРОНОВ НА ОСНОВЕ МЕТОДА $\beta^+\gamma$ -СОВПАДЕНИЙ

*А.Б. Дудник, А.Н. Бугай, В.Ю. Жовкльий, А.И. Кульментьев,
В.Е. Сторижко, А.И. Чемерис*

Институт прикладной физики НАН Украины, Сумы, Украина

E-mail: abdudnik@mail.ru

Представлены предварительные результаты разработки цифрового спектрометра времени жизни позитронов в Институте прикладной физики НАН Украины, г. Сумы. Отличительной особенностью данного спектрометра является измерение времени жизни позитронов на основе $\beta^+\gamma$ -совпадений с использованием немонотонного пучка позитронов. Такой способ измерения позволяет существенно уменьшить уровень нежелательных компонент в спектре в сравнении с общепринятым методом $\gamma\gamma$ -совпадений. Также представлен новый алгоритм вычисления времени жизни позитронов, который позволил уменьшить временное разрешение спектрометра до 120 пс.

ВВЕДЕНИЕ

Одной из ключевых проблем в современной ядерной энергетике является недостаточная радиационная стойкость основных конструкционных материалов – сплавов на основе циркония и нержавеющей сталей различных классов. Решение данной проблемы невозможно без тщательного изучения эволюции микроструктуры этих материалов и влияния ее на деградацию исходных физико-механических характеристик [1].

В частности, для аустенитных сталей характерным является сильное радиационное распухание, что связано с образованием в процессе облучения вакансионных скоплений – микропор и вакансионных петель, вызванных переизбытком вакансий по отношению к междоузлиям. Пучки позитронов представляют собой уникальный зонд для дефектов вакансионного типа. Позитронная аннигиляционная спектроскопия (ПАС) позволяет исследовать механизмы и динамику возникновения, превращения и исчезновения таких дефектов.

Позитрон является античастицей по отношению к электрону, обладающей той же массой ($0.511 \text{ МэВ}/c^2$), но положительным зарядом. После имплантации в твердое тело позитрон быстро теряет исходную кинетическую энергию и термализуется (в течение ~ 3 пс). Далее позитрон случайно блуждает в кристаллической решетке и в процессе таких блужданий из-за отталкивания со стороны положительно заряженных ионных остовов и притяжения к электронам проводимости локализуется преимущественно в межузельном пространстве. Как следствие, в совершенном кристалле позитрон будет находиться в основном в делокализованном состоянии блоховского типа.

В кристалле со структурными дефектами позитрон будет притягиваться к локальным атомным образованиям, характеризующимся либо избыточным отрицательным зарядом, либо повышенным сродством к позитрону. Такие дефекты можно определить как позитронно-чувствительные. Дефектами первого типа являются вакансии, вакансионные кластеры, а также другие локальные свободные объемы.

Каждый элемент характеризуется уникальным сродством к позитрону, и позитрон может также локализовываться в областях с повышенным сродством. Элементы, важные в реакторном материаловедении, имеют следующие значения этой характеристики [2]: Fe, -3.84 эВ ; Cu, -4.81 эВ ; Ni, -3.72 эВ ; Mn, -3.72 эВ . Как следствие, кластеры, состоящие из $5 \dots 10$ атомов меди в матрице железа, могут захватывать позитрон. Поэтому другими локальными объектами, которые могут эффективно исследоваться с помощью позитронов, являются компактные выделения атомных компонентов с повышенным сродством к позитрону.

ПАС включает в себя в основном три метода измерений:

- 1) временного распределения аннигиляционных фотонов;
- 2) углового распределения аннигиляционных фотонов;
- 3) доплеровского уширения аннигиляционной линии с энергией 0.511 МэВ .

Первый из этих методов дает сведения об электронной плотности в месте аннигиляции позитрона, а два других – информацию о распределении импульсов электронов и о химическом составе среды, окружающей нанообъекты в месте аннигиляции.

Время жизни позитрона τ определяется перекрытием плотностей электрона $n_-(\mathbf{r})$ и позитрона $n_+(\mathbf{r}) = |\psi_+(\mathbf{r})|^2$ в области локализации последнего:

$$\lambda = \frac{1}{\tau} = \pi r_0 c^2 \int |\psi_+(\mathbf{r})|^2 n_-(\mathbf{r}) \gamma d\mathbf{r}, \quad (1)$$

где корреляционная функция

$$\gamma = \gamma[n_-(\mathbf{r})] = 1 + \Delta n_- / n_- \quad (2)$$

описывает увеличение электронной плотности в результате кулоновского притяжения к позитрону, а r_0 – классический радиус электрона.

Поскольку локальные свободные объемы характеризуются меньшей электронной плотностью по сравнению с бездефектными областями, то время жизни позитрона в таком дефекте будет больше, чем в совершенном кристалле. При этом каждый дефект обладает характерным временем жизни τ_i , а интенсивность I_i соответствующей компоненты в сум-

марном экспериментальном спектре связана с концентрацией таких дефектов.

Как следствие, зависящий от времени спектр времени жизни позитрона в образце, содержащем k различных позитронно-чувствительных дефектов, имеет вид

$$N(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right), \quad (3)$$

и информацию как о типе, так и о концентрации дефектов можно получить в едином эксперименте.

Аннигиляционные характеристики долгоживущих компонент спектра могут быть интерпретированы в рамках предложенной Брандом модели свободного объема. В частности, в [3] для дефектов сферической формы была получена простая функциональная зависимость времени жизни позитрона от радиуса сферы R , которым аппроксимируется дефект:

$$\lambda = \lambda_b \left[1 - \frac{R}{R + \Delta R} + \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi R}{R + \Delta R}\right) \right], \quad (4)$$

где λ_b – скорость аннигиляции ортопозитрония в исследуемом материале, а параметр модели $\Delta R = 0,1656$ нм – толщина однородного электронного слоя на поверхности поры, в котором происходит аннигиляция. В [4] предложенный подход был обобщен на случай модельных дефектов вакансионного типа простой несферической формы.

Для ПАС (как и для большинства методов анализа) постоянный интерес представляет задача улучшения их метрологических характеристик, в частности, задача повышения разрешающей способности. Один из способов ее решения может состоять в переходе к новым схемам измерения экспериментальных спектров. В работе описаны предварительные результаты разработки цифрового спектрометра по измерению времени жизни позитронов в Институте прикладной физики НАН Украины. В разработанном спектрометре был использован метод $\beta^+\gamma$ -совпадений, что привело к существенному улучшению метрологических характеристик разрабатываемого варианта позитронной спектроскопии.

1. ОПИСАНИЕ СПЕКТРОМЕТРА

Наиболее распространенным способом определения времени жизни позитронов является метод $\gamma\gamma$ -совпадений. Для измерения времени жизни позитрона в веществе, как правило, используется источник позитронов на основе нуклида ^{22}Na (с периодом полураспада 2.6 года). Суть метода заключается в измерении времени между ядерным γ -квантом (стартовым сигналом) с характерной энергией 1.274 МэВ, генерируемым практически одновременно с рождением позитрона в переходе $^{22}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Ne} + e^+ + \gamma$ (1.274 МэВ), и одним из γ -квантов с энергией 0.511 МэВ, испускаемым при аннигиляции позитрона (стоповым сигналом).

Существует множество экспериментальных установок, реализующих этот метод, например [5, 6, 7, 8]. Преимуществом таких установок является их относительная простота. Однако они имеют два недостатка. Первый недостаток заключается в

присутствии в регистрируемом спектре времени жизни позитронов двух нежелательных компонент, вызванных: а) аннигиляцией позитронов в теле источника позитронов; б) аннигиляцией позитронов в защитной пленке источника. Относительный уровень этих компонент составляет примерно 6...9 и 1 % соответственно от общей площади спектра [8]. Вторым недостатком является уширение аппаратной функции временного разрешения спектрометра из-за разброса скоростей позитронов, испускаемых источником ^{22}Na . Этот эффект проявляется в большей степени при исследовании образцов с малой плотностью $\rho \approx 2...3$ г/см³.

При использовании моноэнергетических пучков позитронов для измерения их времени жизни применяется метод $\beta^+\gamma$ -совпадений. В этом случае стартовый сигнал генерируется не γ -квантом рождения позитрона, а самим позитроном. В зависимости от энергии позитрона существует два способа регистрации стартового сигнала. Первый способ применяется для исследования достаточно толстых образцов толщиной до 1 мм с использованием релятивистских позитронов. Здесь стартовый сигнал генерируется при полете позитроном тонкого сцинтиллятора. При этом потери энергии позитрона в сцинтилляторе незначительны. На базе этого метода в Штутгарте была создана экспериментальная установка, в которой для анализа использовался моноэнергетический пучок позитронов с энергией 6.5 МэВ [9]. Толщина стартового сцинтиллятора составляла ≈ 1 мм. На этой установке были выполнены измерения времени жизни позитронов совместно с доплеровским уширением спектра [10].

Второй способ применяется для исследования тонких пленок толщиной до 10 мкм с энергией позитронов в пучке от 10 эВ до 50 кэВ. В этом случае стартовый сигнал генерируется вторичными электронами, выбиваемыми из поверхности исследуемого образца позитронами, попадающими на образец. Свободные электроны далее ускоряются и направляются к детектору электронов [11].

Метод $\beta^+\gamma$ -совпадений с применением моноэнергетического пучка обладает рядом преимуществ по сравнению с методом $\gamma\gamma$ -совпадений. В спектре времени жизни позитронов, собранном по методу $\beta^+\gamma$ -совпадений, отсутствуют нежелательные компоненты, вызванные источником позитронов и защитной пленкой источника. Также этот метод позволяет достичь более высокого временного разрешения. Однако экспериментальные установки, в которых применяется моноэнергетический пучок позитронов, получают сложными и дорогими.

Спектрометр, разработанный в Институте прикладной физики, создан на базе источника позитронов ^{22}Na . Измерение времени жизни позитронов в спектрометре выполняется по методу $\beta^+\gamma$ -совпадений. В качестве стартового детектора применяется пролетный стартовый сцинтиллятор. Основной целью при проектировании спектрометра являлось создание достаточно простой и относительно недорогой экспериментальной установки, которая бы имела преимущества перед установками, использующими метод $\gamma\gamma$ -совпадений.

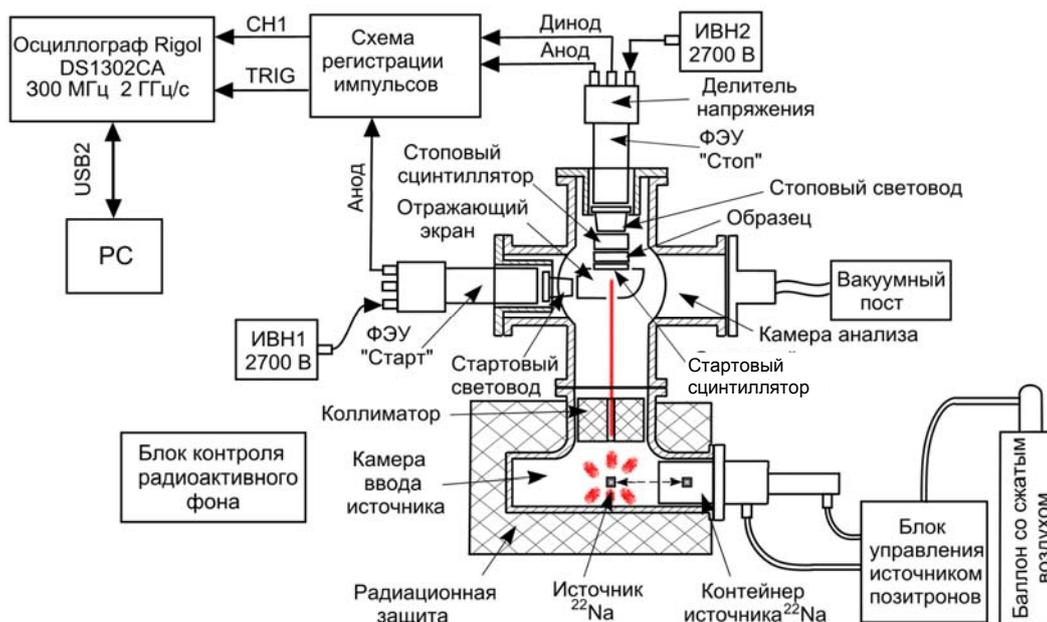


Рис. 1. Структурная схема спектрометра времени жизни позитронов

1.1. СТРУКТУРНАЯ СХЕМА СПЕКТРОМЕТРА

Структурная схема спектрометра приведена на рис. 1. Во время работы источник позитронов ^{22}Na с активностью 86 МБк выдвигается из защитного контейнера в камеру ввода источника блоком пневматического управления. Камера ввода источника имеет радиационную защиту. Уровень радиационного фона в рабочем помещении контролируется блоком контроля радиоактивного фона. На выходе из камеры ввода источника установлен коллиматор, который формирует пучок позитронов с энергиями в диапазоне от 0 до 540 кэВ. Этот пучок попадает в камеру анализа и проходит через пластмассовый стартовый сцинтиллятор типа NE102 с размерами $\text{Ø} 25 \text{ мм} \times 80 \text{ мкм}$.

Световые вспышки стартового сцинтиллятора через алюминиевый отражающий экран и стартовый световод попадают на фотокатод фотоэлектронного умножителя ФЭУ «Старт». Геометрия отражающего экрана выбрана таким образом, чтобы разница длин соседних траекторий фотонов от сцинтиллятора до световода ФЭУ «Старт» была минимальной. На выходе ФЭУ «Старт» формируются импульсы, амплитуда которых соответствует потерям кинетической энергии позитронов в теле стартового сцинтиллятора. После прохождения стартового сцинтиллятора позитроны попадают на исследуемый образец с размерами $\text{Ø} 25 \times 1 \text{ мм}$. Непосредственно к образцу примыкает стоповый сцинтиллятор ($\text{Ø} 25 \times 12 \text{ мм}$), который регистрирует γ -кванты с энергией 511 кэВ, возникающие при аннигиляции электрон-позитронной пары в образце. Материал стопового сцинтиллятора – BaF_2 .

Световые вспышки стопового сцинтиллятора через стоповый световод попадают на фотокатод ФЭУ «Стоп», который генерирует стоповый импульс. Световоды, кроме основной функции передачи фотонов от сцинтиллятора к фотокатоду ФЭУ еще выполняют функцию вакуумного уплотнения в камере анализа.

В спектрометре применяются ФЭУ типа XR2020Q. Источники питания ФЭУ ИБН1 и ИБН2 имеют повышенное напряжение питания, равное 2700 В, делители напряжения ФЭУ выполнены согласно рекомендациям в [12], при этом время нарастания напряжения на аноде ФЭУ уменьшается по сравнению со штатным, и в нашем случае это время составляет 2.2 нс. В камерах спектрометра поддерживается давление на уровне 10^{-3} Па.

Следует отметить, что для схемы спектрометра, приведенной выше, не все позитроны достигнут исследуемого образца. Позитроны с небольшой энергией (до 50 кэВ) будут аннигилировать в теле стартового сцинтиллятора и будут источником нежелательной компоненты в спектре времени жизни. Приближенный расчет показал, что при толщине стартового сцинтиллятора, равной 80 мкм, относительный вклад этой компоненты в спектр будет составлять $\approx 0,7 \%$.

Таким образом, в разработанном спектрометре в спектре времени жизни будет присутствовать только одна нежелательная компонента, и ее относительный уровень оказывается меньшим в сравнении с компонентой, вызванной защитной пленкой источника позитронов при методе $\gamma\gamma$ -совпадений [8].

Компонента аннигиляции в теле источника позитронов, которая присутствует в спектре при методе $\gamma\gamma$ -совпадений [8], в разработанном спектрометре отсутствует вообще.

Кроме позитронов на стартовый сцинтиллятор будут попадать γ -кванты с энергией 1.274 и 0.511 МэВ, испускаемые источником позитронов. Была рассчитана вероятность принятия ложного решения об акте аннигиляции позитрона в образце, в случае прохождения этих квантов через стартовый сцинтиллятор и образец с помощью программного пакета PENELOPE [13]. Эта вероятность не превышает 10^{-4} .

1.2. СХЕМА РЕГИСТРАЦИИ ИМПУЛЬСОВ

Временное разрешение спектрометра определяется не только геометрией экспериментальной установки, но и способом извлечения информации о времени жизни позитронов из электрических сигналов, генерируемых ФЭУ.

В последнее время в спектрометрах времени жизни позитронов широкое применение нашли цифровые осциллографы [7] и сверхбыстродействующие дигитайзеры [8]. В отличие от популярной ранее аналоговой схемы извлечения времени между стартовым и стоповым импульсами [5], применение цифрового осциллографа или дигитайзера позволяет записывать временные регистрации в компьютер и затем выбирать наиболее оптимальный алгоритм обработки этих реализаций. Соответственно можно получить лучшее временное разрешение по сравнению с аналоговым методом.

Для регистрации стартового и стопового импульсов в разработанном спектрометре применяется цифровой осциллограф типа Rigol DS1302CA с полосой пропускания 300 МГц и временем выборки $\Delta t = 500$ пс. Схема регистрации импульсов (рис. 2) создает сигнал, удобный для регистрации осциллографом, а также вырабатывает импульс синхронизации осциллографа при возникновении полезного события. Схема построена с применением стандартных блоков фирмы ORTEC.

Импульсы с выхода ФЭУ «Стоп», соответствующие энергии γ -кванта, равной $E_\gamma = 511$ кэВ, имеют достаточно большую амплитуду, их можно

подавать на вход осциллографа без дополнительного усиления. При прохождении позитронами стартового сцинтиллятора на фотокатод ФЭУ «Старт» попадает только несколько фотонов. Поэтому амплитуда импульса с выхода ФЭУ «Старт» мала, она равна 20...30 мВ. Этот сигнал усиливается регулируемым усилителем $U1$. После усиления стартовые импульсы задерживаются на время $Td = 50$ нс линией задержки $L1$. Далее задержанный стартовый и стоповый импульсы суммируются пассивным сумматором Σ и подаются на вход канала вертикального отклонения осциллографа CH1. Коэффициент усиления $U1$ выбирается таким, чтобы амплитуды стартового и стопового импульсов на входе сумматора были примерно одинаковыми.

Сигнал синхронизации осциллографа TRIG вырабатывается схемой в том случае, если произойдут два события (совпадение): появятся стоповый импульс и задержанный стартовый импульс. Верхний и нижний пороги дифференциальных дискриминаторов $D1$ и $D2$ настроены на обнаружение этих событий. Триггер $DT1$ срабатывает в случае одновременного существования двух импульсов. Выход $DT1$ подключен к входу внешней синхронизации осциллографа TRIG.

При наличии сигнала внешней синхронизации осциллограф записывает временную реализацию, состоящую из первого, стопового, и второго, стартового, импульсов. Временная реализация из осциллографа передается в персональный компьютер для дальнейшей обработки.



Рис. 2. Схема регистрации импульсов

2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВРЕМЕННОГО РАЗРЕШЕНИЯ СПЕКТРОМЕТРА

В спектрометрах, использующих метод $\gamma\gamma$ -совпадений, для определения временного разрешения $\Delta T_{0,5}$ (полной ширины на полувысоте пика мгновенных совпадений) обычно применяется радионуклид ^{60}Co , который устанавливается вместо источника позитронов ^{22}Na [7]. Для метода $\beta^+\gamma$ -совпадений таким способом воспользоваться нельзя.

В нашем случае для определения $\Delta T_{0,5}$ была собрана экспериментальная установка (рис. 3), имитирующая работу спектрометра. Здесь ФЭУ принимает темновые импульсы ФЭУ с амплитудой примерно 50 мВ. Сигнал с выхода динода ФЭУ имитирует слабый стартовый импульс. Этот сигнал формируется усилителями $U1$ и $U2$ и задерживается линией задержки $L1$ на $Td = 50$ нс. Стоповый и задержанный стартовый импульсы подаются на пассивный сумматор. С выхода сумматора сформированный сигнал подается на вход канала вертикального отклонения осциллографа.

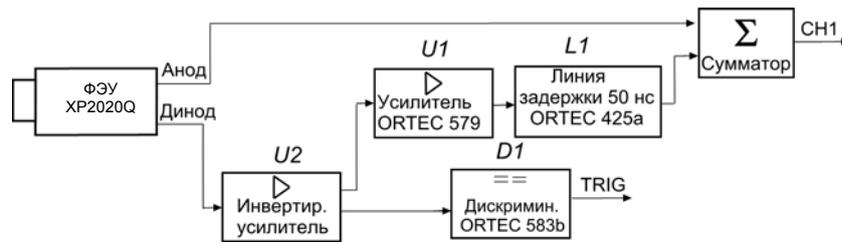


Рис. 3. Экспериментальная схема для определения временного разрешения спектрометра

Для выполнения эксперимента было зарегистрировано $K=5000$ временных реализаций со стоповым и задержанным стартовым импульсами. Пример одной реализации $s_k(i)$ приведен на рис. 4, где $k = 1, \dots, K$ – номер реализации, $i = 1, \dots, N$ – номер текущей выборки в реализации. В нашем случае $N=200$.

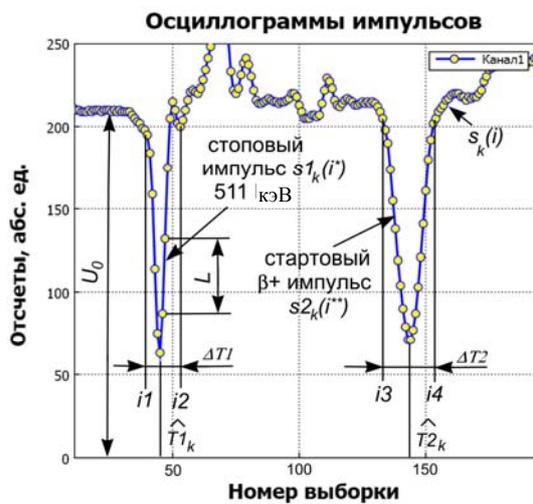


Рис. 4. Регистрация пары импульсов цифровым осциллографом. Время выборки осциллографа $\Delta t = 500$ пс. Стартовый импульс имеет менее крутой передний фронт по сравнению со стоповым импульсом из-за ограниченной полосы пропускания усилителя U2

Целью эксперимента являлось получение рас-пределения оценок времени задержки $\hat{T}d_k$, создаваемого линией задержки L1 (см. рис. 3):

$$\hat{T}d_k = \hat{T}2_k - \hat{T}1_k, \quad (5)$$

где $\hat{T}1_k$ и $\hat{T}2_k$ – оценки моментов появления стопового и стартового импульсов соответственно для k -й реализации (см. рис. 4). Для этого в каждой реализации $s_k(i)$ выделяются две подпоследовательности $s1_k(i^*)$ и $s2_k(i^{**})$, соответствующие стоповому и стартовому импульсам. Здесь $i^* = i1, \dots, i2$ и $i^{**} = i3, \dots, i4$. Эти подпоследовательности соответствуют отрезкам времени $\Delta T1$ и $\Delta T2$.

Основная идея алгоритма заключается в получении из K подпоследовательностей $s1_k(i^*)$ и $s2_k(i^{**})$ оценок формы стопового $\hat{S}1(j)$ и стартового импульсов $\hat{S}2(j)$ с временной дискретой Δt_L , в L раз меньшей времени выборки осциллографа Δt , где L – целое число. Здесь $j = 1, \dots, L \cdot N$. Назовем L коэффициентом расширения. Необходимым условием

эффективности оценок $\hat{S}1(j)$ и $\hat{S}2(j)$ является условие неизменности форм стопового и стартового импульсов за время сбора K реализаций. Такое условие обычно выполняется, так как после прогрева электронной аппаратуры спектрометра передаточные функции цепей формирования импульсов можно считать постоянными. Кроме того, получение оценок $\hat{S}1(j)$ и $\hat{S}2(j)$ с меньшей временной дискретой Δt_L возможно по той причине, что время выборки непрерывного сигнала аналоговым устройством выборки-хранения цифрового осциллографа составляет 5...10 пс.

Имея оценки $\hat{S}1(j)$ и $\hat{S}2(j)$, можно рассчитать оценки $\hat{T}1_k$ и $\hat{T}2_k$ методом минимизации средне-квадратичной ошибки. Метод расчета оценок $\hat{T}1_k$ и $\hat{T}2_k$ однотипный, поэтому далее описывается процедура получения оценки $\hat{T}1_k$:

$$\hat{T}1_k = \{ \underset{m1}{\operatorname{argmin}} \sum_j [s1_k(j) - \hat{S}1(j - m1)]^2 \} \cdot \Delta t_L \quad (6)$$

при $s1_k(j) \neq 0$,

где $j = (i1 - P1) \cdot L, \dots, (i2 + P1) \cdot L$; $P1 = i2 - i1$, $m1 = i1 \cdot L, \dots, i2 \cdot L$.

В выражении (6) $s1_k(j)$ – подпоследовательность, полученная из $s1_k(i^*)$ и «растянутая» в L раз. Она формируется следующим образом:

$$s1_k(j) = U_0, \quad j = (i1 - P1) \cdot L, \dots, (i2 + P1) \cdot L, \quad (7)$$

$$s1_k(L \cdot i^*) = s1_k(i^*), \quad i^* = i1, \dots, i2,$$

где U_0 – средний уровень напряжения на входе осциллографа при отсутствии импульсов (см. рис. 4).

$m1$ в выражении (4) представляет собой координату сдвига оценки формы $\hat{S}1(j)$ относительно $s1_k(j)$. Размер массива $s1_k(j)$ равен $2 \cdot L \cdot P1$, а размер массива оценки формы $\hat{S}1(j)$ равен $L \cdot P1$. На рис. 5 приведена иллюстрация взаимного положения $s1_k(j)$ и $\hat{S}1(j - m1)$.

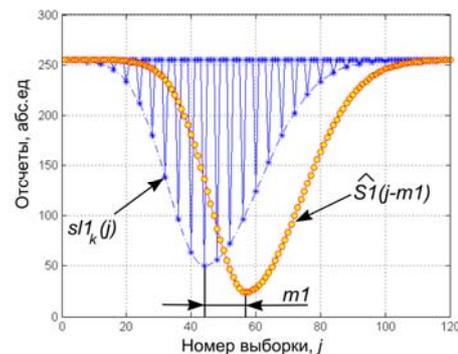


Рис. 5. Иллюстрация к выражению (4). Здесь $L = 4$

В сформированных рядах $sI_k(i)$ сохраняется информация о форме импульса, но исключается информация о флуктуациях сигнала, вызванных отражениями импульса в длинных линиях (например, на интервале $i2 \dots i3$ временной реализации $s_k(i)$, см. рис. 4).

Вычисление оценки формы импульса $\hat{S}I(j)$ выполняется с использованием свойств дискретного преобразования Фурье (ДПФ). Сравнительный анализ фазовых спектров двух реализаций, например, $s_k(i)$ и $s_{k+1}(i)$ позволяет выполнить временной сдвиг реализации $s_{k+1}(i)$ относительно реализации $s_k(i)$, а сравнительный анализ амплитудных спектров этих реализаций позволяет выполнить правильное амплитудное масштабирование выборок $s_{k+1}(i)$ относительно выборок $s_k(i)$. Процедура вычисления $\hat{S}I(j)$ следующая.

1. Вначале выполняется формирование K рядов $spI_k(i)$ со сдвигом i_{shift} из подпоследовательностей $sI_k(i)$:

$$spI_k(i) = \begin{cases} sI_k(i^* - i_{shift}), & iI - i_{shift} < i < i2 - i_{shift} \\ U_0, & i < iI - i_{shift} \\ U_0, & i > i2 - i_{shift} \end{cases}, \quad (8)$$

где $i = 1, \dots, N$. В нашем случае $N = 200$. Сдвиг i_{shift} позволяет сдвинуть ряды $sI_k(i^*)$ так, чтобы минимумы рядов $spI_k(i)$ (где $k = 2, \dots, K$) имели координату, совпадающую с минимумом ряда $sI_1(i^*)$:

$$i_{shift} = \begin{cases} 0, & k = 1 \\ i_k^{min} - i_1^{min}, & k > 1 \end{cases}, \quad (9)$$

где $i_k^{min} = \min_i(sI_k(i^*))$, а $i_1^{min} = \min_i(sI_1(i^*))$.

2. Для каждого ряда $spI_k(i)$ выполняется ДПФ. Назовем амплитудный спектр ряда $spI_k(i)$, как $ASI_k(l)$, а фазовый спектр, как $FSl_k(l)$, где $l = 1, \dots, N/2$. Спектральная компонента $ASI_k(l)$, соответствующая постоянной составляющей, приравнивается нулю.

3. Вычисляется номер спектральной составляющей l_{max} , соответствующей максимальной скорости изменения сигнала, отраженного в ряде $spI_k(i)$:

$$l_{max} = \arg \max_l [2\pi \cdot l \cdot ASI_k(l)], \quad (10)$$

где $l = 1, \dots, N/2$.

Обычно амплитуды спектральных составляющих спектра $ASI_k(l)$ плавно уменьшаются с увеличением частоты, поэтому выражение в квадратных скобках (10) имеет один максимум.

4. Поочередно рассчитываются разности фаз между фазочастотным спектром первой реализации и спектрами последующих реализаций:

$$\Delta\varphi I_k = FSl_k(l_{max}) - FSl_1(l_{max}) \quad (11)$$

и целочисленный сдвиг Δn_k ряда $spI_k(i)$ относительно ряда $spI_1(i)$ при временной дискрете Δt_L :

$$\Delta n I_k = \left[\frac{\Delta\varphi I_k \cdot N \cdot L}{2\pi \cdot l_{max}} \right]. \quad (12)$$

Здесь $k = 2, \dots, K$, $\Delta\varphi_1 = 0$, $\tau_1 = 0$, $[]$ – квадратные скобки обозначают преобразование к целому числу.

5. Поочередно рассчитываются коэффициенты масштабирования рядов $spI_k(i)$:

$$KS_k = \frac{\sum_{l=2}^{l_{max}} ASI_1(l)}{\sum_{l=2}^{l_{max}} ASI_k(l)}. \quad (13)$$

Здесь $k = 2, \dots, K$, $KS_1 = 1$.

6. Обнуляются два вспомогательных массива $V(j)$ и $C(j)$, где $j = 1, \dots, L \cdot N$, и, далее заполняются следующим образом:

$$\begin{cases} \begin{cases} V(i \times L + \Delta n I_k) = spI_k(i), & V(i \times L + \Delta n I_k) = 0, \\ C(i \times L + \Delta n I_k) = 1, \end{cases} \\ \begin{cases} V(i \times L + \Delta n I_k) = V(i \times L + \Delta n I_k) + \\ + KS_k \times spI_k(i), & V(i \times L + \Delta n I_k) \neq 0, \\ C(i \times L + \Delta n I_k) = C(i \times L + \Delta n I_k) + 1. \end{cases} \end{cases} \quad (14)$$

Здесь $k = 1, \dots, K$.

Таким образом, в членах массива $V(j)$ накапливается сумма значений рядов $spI_k(i)$, попадающих в координату j , а в членах массива $C(j)$ подсчитывается количество попаданий в эту координату. В нашем случае при регистрации $K = 5000$ временных реализаций заполнение массива $C(j)$ было примерно равномерным, со средним количеством счетов в координатах значащих отсчетов массива $V(j)$, равным 210.

7. Рассчитывается оценка формы $\hat{S}I(j)$:

$$\hat{S}I(j) = \frac{V(j)}{C(j)}. \quad (15)$$

В выражении (12) должна существовать однозначная связь между фазовым сдвигом $\Delta\varphi I_k$ и целочисленным сдвигом $\Delta n I_k$ при коэффициенте расширения L . Можно доказать, что такая связь существует только в том случае, если во временной реализации $sI_k(i^*)$ найдется хотя бы один отрезок времени, для которого разность между соседними отсчетами превышала L (см. рис. 4). В данной работе это доказательство не приводится.

В нашем эксперименте коэффициент расширения принят равным $L = 50$ ($\Delta t_L = 10$ пс). Условие, приведенное выше, выполняется только для стопового импульса $sI_k(i^*)$, но для стартового импульса $s2_k(i^*)$ это условие не выполняется. Поэтому форма $\hat{S}I(j)$ вначале была рассчитана при $L = 25$, а затем для достижения $L = 50$ была выполнена линейная интерполяция между соседними отсчетами. Окончательно, после вычисления оценок форм $\hat{S}I(j)$ и $\hat{S}2(j)$, согласно (15), была выполнена их очистка от помехи типа «белый шум» методами винеровской фильтрации. Результаты расчетов приведены на рис. 6. Оценки форм $\hat{S}I(j)$ и $\hat{S}2(j)$ импульсов приведены на рис. 6,а и б, оценки времен $\hat{T}I_k$ и $\hat{T}2_k$ – на рис. 6, в и г. Количество оценок $\hat{T}I_k$ и $\hat{T}2_k$ меньше, чем $K = 5000$. Небольшая часть временных реализаций $s_k(i)$ была исключена из анализа по причине наложения импульсов на интервалах $\Delta T1$ и $\Delta T2$ (см. рис. 3). Для отбраковки временных реализаций применялась пороговая обработка выражения (6) в квадратных скобках. На рис. 6,д приведена разность оценок $\hat{T}d_k = \hat{T}2_k - \hat{T}I_k$, а на рис. 6,е – распределение оценок

$\hat{T}d_k$. Из последнего графика видно, что временное разрешение $\Delta T_{0,5}$ составляет 110 пс.

Анализ конструкции спектрометра приводит к выводу, что фактическое временное разрешение спектрометра ожидается порядка 120 пс. Причина ухудшения временного разрешения – разница между длинами соседних траекторий фотонов от стартового сцинтиллятора к ФЭУ «Старт».

ВЫВОДЫ

Представленный спектрометр времени жизни позитронов позволяет измерить концентрации различных видов дефектов вакансионного типа с размерами 1 ... 10 нм и исследовать их поведение в различных материалах, в частности, в сплавах на основе циркония и нержавеющей стали.

Способ измерений методом $\beta^+\gamma$ -совпадений, примененный в данном спектрометре, имеет преимущества в сравнении с методом $\gamma\gamma$ -совпадений. Во-первых, при использовании пучка позитронов, в спектре времени жизни позитронов исчезает нежелательная компонента, вызванная аннигиляцией позитронов в теле источника позитронов. Во-

вторых, при изменении толщины стартового сцинтиллятора появляется возможность исследовать аннигиляцию позитронов в разных слоях образца, начиная от приповерхностных слоев толщиной 5...10 мкм и заканчивая слоями, расположенными на глубинах до 100 мкм. Такие работы в будущем представляют несомненный интерес.

Разработанный новый алгоритм расчета времени жизни позитронов имеет преимущества по сравнению с традиционными алгоритмами. В настоящее время, при обработке временных реализаций, зарегистрированных осциллографами либо дигитайзерами, для вычисления момента появления импульса пользуются либо корреляционными методами [7], либо аппроксимацией гладкими функциями: параболической [8], гауссовской [6] и т. п. В данной работе реальная форма импульса вычисляется статистическими методами с высоким временным разрешением, существенно превышающим быстродействие цифрового регистратора. Такой метод позволяет уменьшить разброс оценок моментов появления импульсов и, следовательно, повысить временное разрешение спектрометра.

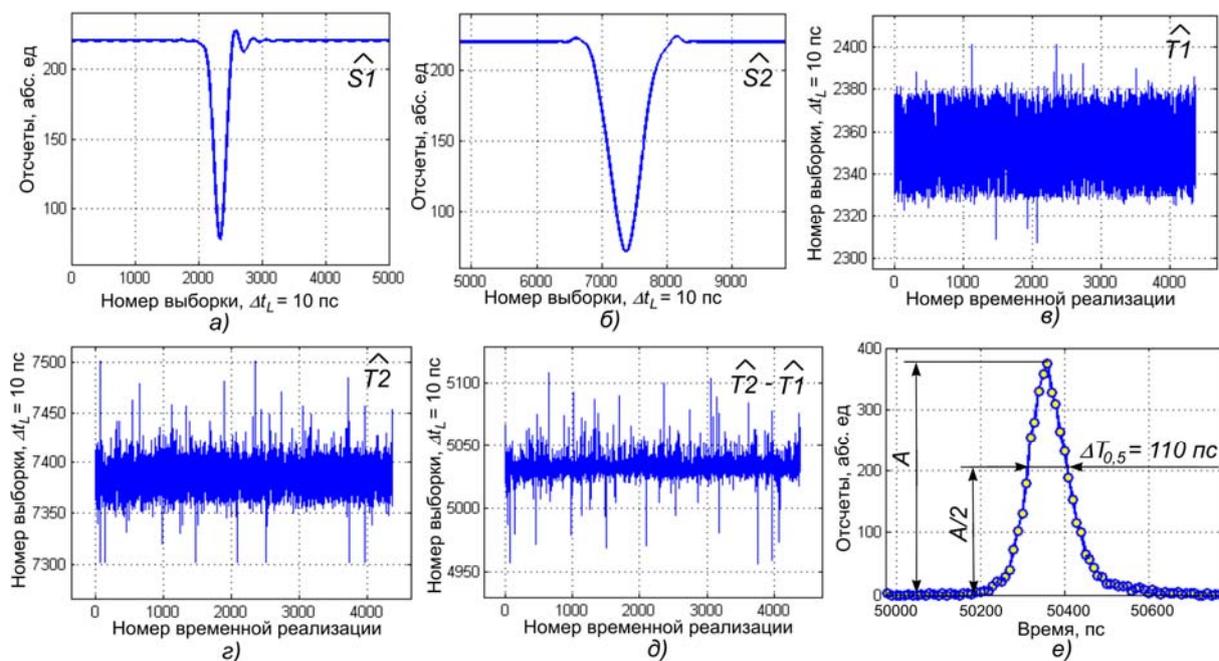


Рис. 6. Результаты расчета временного разрешения

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.Н. Воеводин. Конструкционные материалы ядерной энергетики – вызов 21 века // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2007, №2, с. 10-22.
2. M.J. Puska, R.M. Nieminen. Theory of positrons in solids and on solid surfaces // *Reviews of Modern Physics*. 1994, v. 66, p. 841-897.
3. M. Eldrup, D. Lightbody, and J.N. Sherwood. The temperature dependence of positron lifetimes in solid pivalic acid // *Chemical Physics*. 1981, v. 63, №1-2, p. 51-58.

4. T. Goworek. Positronium as a Probe of Small Free Volumes // *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*. 2000, №1, p. 11-13.
5. D. Bosnar, Zs. Kajcsos, L. Liszkay, L. Lohonyai, P. Major, S. Bosnar, C. Kosanovic, B. Subotic. Digitized positron lifetime spectrometer for simultaneous recording of time and energy information // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2007, v. A 581, p. 91-93.
6. J. Nissila, K. Rytola, R. Aavikko, A. Laakso, K. Saarinen, P. Hautajarvi. Performance analysis of a digital positron lifetime spectrometer // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2005, v. A 538, p. 778-789.

7. K. Rytsoala, J. Nissila, J. Kokkonen, A. Laakso, R. Aavikko, K. Saarinen. Digital measurement of positron lifetime // *Applied Surface Science*. 2002, v. 194, p. 260-263.

8. F. Becvar, J. Cizek, I. Prochazka, J. Janotova. The asset of ultra-fast digitizers for positron-lifetime spectroscopy // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2005, v. A 539, p. 372-385.

9. W. Bauer, K. Maier, J. Major, H.-E. Schaefer, A. Seeger, H.-D. Carstanjen, W. Decker, J. Diehl, and H. Stoll. The positron beam at the stuttgart pelletron accelerator and its applications to $\beta^+\gamma$ positron lifetime measurements // *Applied Physics A: Materials Science & Processing*. 1987, v. 43, №4, p. 261-267.

10. H. Schneider, A. Seeger, A. Siegle, H. Stoll, I. Billard, M. Koch, U. Lauff, and J. Major. Positronium

chemistry studied by AMOC measurements using a relativistic positron beam // *Journal de Physique IV*. 1993, C4, 11, v. 3, p. 69-76.

11. D.W. Gidley, Hua-Gen Peng, R.S. Vallery. Positron annihilation as a method to characterize porous materials // *Annual Review of Material Research*. 2006, v. 36, p. 49-79.

12. F. Becvar, J. Cizek, L. Lestjak, I. Novotny, I. Prochazka, F. Sebesta. A high-resolution BaF2 positron-lifetime spectrometer and experience with its long-term exploitation // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2000, v. A 443, p. 557-577.

13. F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea. Overview of physical interaction models for photon and electron transport used in Monte Carlo codes // *Metrologia*. 2009, v. 46, p. 112-138.

Статья поступила в редакцию 17.12.2012 г.

ЦИФРОВИЙ СПЕКТРОМЕТР ЧАСУ ЖИТТЯ ПОЗИТРОНІВ НА ОСНОВІ МЕТОДУ $\beta^+\gamma$ -СПІВПАДІННЯ

А.Б. Дудник, О.М. Бугай, В.Ю. Жовклий, О.І. Кульментьєв, В.Ю. Сторіжко, О.І. Чемерис

Представлені попередні результати розробки цифрового спектрометра часу життя позитронів в Інституті прикладної фізики НАН України, м. Суми. Відмінною рисою даного спектрометра є вимірювання часу життя позитронів на основі $\beta^+\gamma$ -співпадіннь з використанням немонеенергетичного пучка позитронів. Такий спосіб вимірювання дозволяє суттєво зменшити рівень небажаних компонент у спектрі в порівнянні із загальноприйнятим методом $\gamma\gamma$ -співпадіннь. Також представлено новий алгоритм обчислення часу життя позитронів, який дозволив зменшити часову роздільну здатність спектрометра до 120 пс.

DIGITAL POSITRON LIFETIME SPECTROMETER BASED ON THE METHOD OF $\beta^+\gamma$ -COINCIDENCE

A.B. Dudnyk, A.N. Bugay, V.J. Zhovkly, A.I. Kul'ment'ev, V.E. Storizhko, A.I. Chemeris

Preliminary results of development of digital positron lifetime spectrometer at the Institute of Applied Physics of NAS of Ukraine are presented. The feature of this spectrometer is $\beta^+\gamma$ -coincidences measurement of positron lifetime with the use of nonmonoenergetic positron beam. Such way allows us to decrease a level of parasitic components in spectrum in comparison with routine $\gamma\gamma$ -coincidence technique. New algorithm of positron lifetime calculation is also proposed. It permits to reduce the spectrometer time resolution to 120 ps.