

М. І. Ворона*, О. А. Лебедь

Інститут прикладної фізики НАН України, Суми, Україна

*Відповідальний автор: marina-vara@ukr.net

**ШВИДКІСТЬ АНІГІЛЯЦІЇ ПОЗИТРОНІВ У ТОЧКОВИХ ДЕФЕКТАХ
РЕАКТОРНИХ МАТЕРІАЛІВ У МОДИФІКОВАНІЙ МОДЕЛІ ТАО - ЕЛДРУПА¹**

Розвинуто теоретичні уявлення про процес анігіляції позитронів у конструкційних матеріалах ядерних реакторів з урахуванням особливостей їхньої електронної структури. Модифіковано модель Тао - Елдрупа, яка дає змогу аналітично розрахувати час життя позитронів у сферично симетричній потенціальній ямі, на випадок потенціальної ями скінченної висоти для розширення меж застосування моделі. Визначено залежності часу життя позитронів від висоти та ширини потенціальної ями, що виникає в місці точкових дефектів. Результати, отримані в рамках модифікованої моделі, дають важливу інформацію для аналізу спектрів часу життя позитронів в опромінених матеріалах та дані для верифікації кількісних розрахунків методами функціоналу щільності.

Ключові слова: спектри часу життя, анігіляція позитрона в матеріалі, дефектна структура, потенціальна яма, тунелювання.

1. Вступ

Вплив радіаційного випромінювання на конструкційні матеріали ядерних реакторів на сьогоднішній день є одним з найактуальніших питань ядерного матеріалознавства. Це зокрема пов'язано із соціальною та економічною необхідністю продовження терміну дії працюючих нині реакторів та реалізації амбітних проєктів по створенню ядерних реакторів нового покоління, що актуально наразі як для України, так і в усьому світі [1]. Одним із наслідків інтенсивного радіаційного опромінення іонами або нейтронами, яке характерне для конструкційних матеріалів ядерних реакторів, є виникнення вакансій та вакансійних пор. Це супроводжується радіаційним розпуханням та впливає на різноманітні властивості матеріалів, зокрема призводить до зменшення їхньої пластичності [2]. Особливого значення ці явища набувають для конструктивних матеріалів ядерних реакторів, що перебувають під інтенсивним постійним нейтронним опроміненням. Макроскопічні ефекти деградації реакторних матеріалів виникають через мікроструктурні зміни, тому для встановлення загальних закономірностей зміни структури та фізико-механічних властивостей необхідно, насамперед, вивчення процесів зародження та еволюції дефектної структури металів та сплавів [1 - 3].

Метод спектроскопії часу життя позитронів дає унікальні можливості для дослідження електронної структури опроміненого матеріалу та

визначення концентрацій точкових і протяжних дефектів, оскільки особливості електронної структури змінюють час життя позитронів у матеріалі. Визначення швидкості анігіляції позитронів потребує обчислення електронної густини та її локальних змін поблизу дефектів [4 - 24]. Завдяки здатності позитрона анігілювати із різних специфічних станів у твердих речовинах, починаючи від стану в бездефектній решітці до сильно локалізованих станів у дефектах решітки, спектроскопія часу життя позитронів може дати унікальну інформацію щодо різних властивостей матеріалів. Основна мета нашого дослідження полягає у розвиненні теоретичних уявлень про процес анігіляції позитронів у матеріалі для прикладних розрахунків в експериментах із спектроскопії часу життя позитронів у конструкційних матеріалах ядерних реакторів для вивчення його дефектної структури.

2. Швидкість анігіляції позитронів у речовині

Анігіляція позитронів у різних речовинах є об'єктом наукового інтересу протягом досить тривалого часу [4 - 19]. Потрапляючи всередину речовини, позитрон втрачає більшу частину своєї енергії до енергії в кілька електронвольт за час, який є малим порівняно з часом його життя. Позитрони можуть безпосередньо анігілювати з електронами середовища в гамма-кванти, такий тип анігіляції зазвичай називають вільною або прямою анігіляцією. Під час процесу уповіль-

© М. І. Ворона, О. А. Лебедь, 2023

¹ Доповідь на XXIX Щорічній науковій конференції Інституту ядерних досліджень НАН України, Київ, 26 - 30 вересня 2022 р.

нення позитрон може захопити електрон із речовини середовища у вузькому діапазоні кінетичних енергій, утворюючи зв'язану воднеподібну систему – позитроній [20]. Така система досить нестабільна і з певним часом також анігілює в гамма-кванти. Закони збереження уможливають анігіляцію позитронію в парну кількість квантів для системи із загальним спіном $S = 0$ (парапозитроній (p-Ps), синглетний стан) і в непарну кількість (більше одного) квантів для електрон-позитронної системи із спіном $S = 1$ (ортопозитроній (o-Ps), триплетний стан). Статистична вага триплетного стану p-Ps у три рази більша, ніж синглетного p-Ps.

Відзначимо кілька важливих особливостей взаємодії позитронієвих станів із зовнішнім середовищем. Середній час життя у вільному просторі становить 0,125 нс для парапозитронію та 142 нс для ортопозитронію. У зовнішньому середовищі час життя позитронію, зокрема o-Ps, може суттєво змінюватися. Важливо зазначити, що позитрон у системі o-Ps має можливість відчувати електрони з протилежним спіном у середовищі та анігілювати з ними у режимі випромінювання двох гамма-квантів, відповідно середній час життя зменшується. Цей механізм характерний для всіх типів речовин і називається анігіляцією вилучення [4 - 14] (pick-off). Механізм анігіляції вилучення в речовинах різних типів відразу став об'єктом наукового інтересу, оскільки відповідна компонента в спектрі часу життя позитронів дає унікальну інформацію про структуру середовища, зокрема про особливості розподілу електронної густини. У роботі [6] Ферелл зазначив, що на позитроній діють два різних типи сил – Ван-дер-Ваальсова сила притягання та обмінна сила відштовхування, що є головною причиною відносно тривалого часу життя позитронів у більшості матеріалів. Брандт, Берко та Вокер [7] запропонували модель, коли хвильова функція позитрона в полі зв'язаного з ним електрона замінюється хвильовою функцією позитронію, яка потім обчислюється для різних структур решітки в наближенні Вігнера - Зейтца (теорія «вільного об'єму»). Подібний підхід також використали Огата і Тао [8] з припущенням, що центр елементарної комірки є центром атома Ps замість центра молекули навколишньої речовини, як передбачалося в роботі [7].

Значний внесок зробили Грей, Кук і Штурм [9], які виявили кореляцію між поперечними перерізами анігіляції o-Ps стану та поляризацією молекул органічних середовищ. Вони експериментально виміряли середній час життя довготривалої компоненти спектра o-Ps для анігіляції позитронів у 193 чистих органічних рідинах,

проте без ґрунтового теоретичного пояснення. Метод аналізу в роботі Морі [10] базується на методі «псевдопотенціалу» [11 - 14], де було надано результати за рамками найпростішої моделі рівномірного розподілу (моделі «желе»). У роботі Пушки та Неїмана [15] наведено теоретичні моделі збільшення електронної густини на позитронах у напівпровіднику або ізоляторі. Ці моделі було використано для прогнозування часу життя позитронів у дефектах вакансійного типу. Фізичні основи анігіляції позитронів у речовинах та застосування спектроскопії часу життя для вивчення твердих матеріалів, зокрема їхньої дефектної структури, було також розглянуто в низці важливих робіт, серед яких виділимо роботи Дегтяра 1974 р. [16], Графутіна та Прокоп'єва 2002 р. [17]. Зазначимо також внесок групи Р. Краузе-Реберга з Галле-Віттенберзького університету імені Мартіна Лютера (Німеччина), наукові результати якої, зокрема комплексний огляд досліджень позитронів в елементних і складних напівпровідниках, було систематизовано в монографії [18].

Час життя позитронів у речовині залежить від просторової щільності електронів в області анігіляції позитронів. Час життя позитрона τ і, відповідно, швидкість анігіляції позитрона λ визначається перекриттям густини електрона $n_-(r)$ і позитрона $n_+(r) = |\psi_+(r)|^2$ в області локалізації останнього. Тут залежність від r визначає залежність хвильової функції від просторових координат, $\psi_+(r)$ – хвильова функція позитрона.

У загальному випадку швидкість анігіляції позитрона λ в матеріалі залежить від перерізу анігіляції електрон-позитронної пари та розподілу електронної густини і може бути визначена таким чином [4 - 19]:

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

де r_0 та c – класичний радіус електрона та швидкість світла у вакуумі.

Тут також уведено кореляційну функцію

$$\gamma \equiv \gamma[n_-(r)] = 1 + \frac{\Delta n_-}{n_-}, \quad (2)$$

що описує локальні зміни електронної густини внаслідок кулонівської взаємодії позитрона. Локальні утворення (дефекти) характеризуються меншою електронною густиною порівняно з бездефектними областями, тому час життя позитронів у цьому дефекті буде більшим. При цьому

кожний дефект має власний час життя τ_i , а інтенсивність I_i відповідної компоненти в сумарному експериментальному спектрі визначається з концентрацією таких дефектів [21].

Для більш детального вивчення електронної структури речовини та її фізичних властивостей, тобто для визначення необхідної кореляційної функції, розроблено низку методів. Усі вони мають свої переваги та недоліки та відрізняються необхідними вихідними даними: метод Хартрі - Фока і його узагальнення, метод псевдопотенціалу [10 - 14], теорія функціоналу щільності [22 - 24]. Для розрахунків великих систем (більше 104 атомів) зазвичай застосовуються методи, що ґрунтуються на емпіричних потенціалах взаємодії. При цьому не розв'язується рівняння Шредингера або його аналоги (рівняння Хартрі - Фока або Кона - Шема), а просто обчислюється енергія системи частинок, що взаємодіють за допомогою емпірично підібраних потенціалів.

3. Модифікація моделі Тао - Елдрупа

Модель Тао - Елдрупа забезпечує простий та наочний зв'язок між розміром сферично симетричних потенціальних ям та часом життя в них ортопозитронієвих станів по механізму анігіляції вилучення електрона. У роботі [4] Тао провів систематичний аналіз поведінки о-Ps стану, зокрема процесу анігіляції вилучення в сферичних потенціальних ямах у молекулярних рідинах. Він узагальнив проблему на випадок нескінченного безструктурного середовища. Експериментальне підтвердження спроможності його моделі трохи пізніше було забезпечене Елдрупом та іншими [5], які крім того дослідили температурні ефекти в спектрах часу життя позитронів у матеріалах. Ці роботи стали класичними в цій області і наразі такий підхід у літературі називають *моделлю Тао - Елдрупа*. Також зазначимо, внесок Говорєка [18], який застосував основні положення моделі Тао - Елдрупа на випадок великих розмірів та різної форми потенціальних ям. Так, у роботі [19] представлено результати кількісних розрахунків для кубічної та еліптичної форм.

Слід зазначити, що Тао в роботі [4] також обґрунтував застосування свого підходу до твердих речовин. У чистих кристалічних твердих речовинах стан Ps локалізується біля потенціального бар'єра лише за сприятливих умов та до певної міри, а його присутність у міжвузловій області суттєво не змінює профіль потенціалу. Якісно інша ситуація виникає, коли середовище має значні локальні особливості в електронній структурі, наприклад дефекти. У цьому випадку позитроній локалізується в цих утвореннях, оскільки вони характеризуються потенційною ямою біль-

шої глибини. Ефект такої локалізації може бути суттєвим, оскільки атом Ps може проходити через інші бар'єри, поки не потрапить у потенціальну пастку. Це пояснює, чому навіть невелика кількість певних типів дефектів у твердих тілах дає суттєвий сигнал у довготривалій компоненті середнього часу життя позитронів, яка не спостерігається в чистих кристалічних твердих тілах.

У моделі Тао - Елдрупа взаємодія стану о-Ps із середовищем була апроксимована нескінченно глибокою сферично-симетричною потенціальною ямою певної ширини R (рис. 1, а). Розв'язок рівняння Шредингера для такого типу потенціалу добре відомий [20], а енергія приймає дискретні значення $E = n^2 \pi^2 \hbar^2 / (2mR^2)$, $n = 1, 2, 3 \dots$. Модель Тао - Елдрупа припускає проникнення електронів з основного об'єму матеріалу всередину сфери для можливості реалізації механізму анігіляції вилучення. Таким чином, феноменологічно було включено прошарок електронної густини всередині ями шириною δ ($\delta \ll R$) (див. рис. 1, а), який зайнятий молекулярними електронами і визначає межі інтегрування у загальному виразі (1). Із загального виразу для хвильової функції точкової частинки в нескінченно глибокій сферично симетричній ямі [20], для найнижчого енергетичного стану $n = 1$ хвильова функція позитронію в моделі Тао - Елдрупа набуває вигляду:

$$\psi(0 \leq r \leq R_\infty) = \frac{\sin(\pi r / R_\infty)}{\sqrt{2\pi R_\infty r}},$$

$$\psi(r \geq R_\infty) = 0. \quad (3)$$

Тут R – радіус вільного від електронів об'єму пори о-Ps, а $R_\infty = R + \delta$.

Ще однією особливістю моделі Тао - Елдрупа є припущення, що електронна густина в приграничному шарі така ж, як і в основному об'ємі матеріалу. Таким чином, швидкість анігіляції λ_{po} всередині шару також буде пропорційна швидкості анігіляції позитронів у незбуреному середовищі λ_0 . Підстановка явного виду хвильової функції позитронію (3) і подальше інтегрування виразу для швидкості анігіляції позитронів у матеріалі (1) дає добре відоме співвідношення Тао - Елдрупа

$$\lambda_{po} = \lambda_0 \left[1 - \frac{R}{R_\infty} + \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi R}{R_\infty}\right) \right],$$

або

$$\lambda_{po} = \lambda_0 \left[\frac{\delta}{R} + \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi\delta}{R}\right) \right]. \quad (4)$$

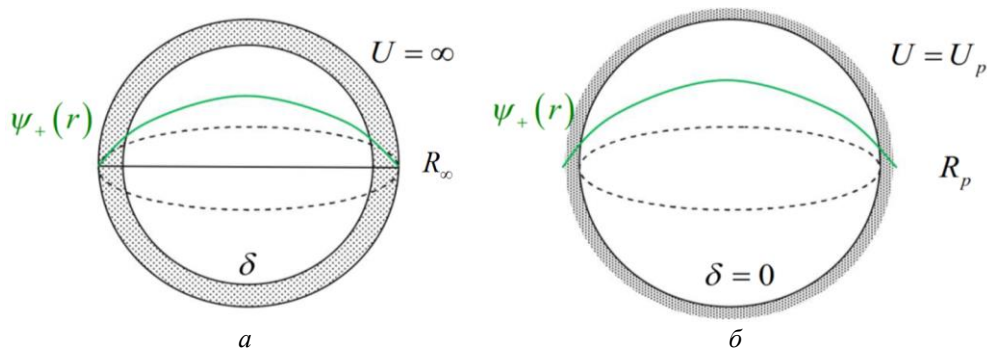


Рис. 1. Модифікація моделі Тао - Елдрупа: *a* – модель Тао – Елдрупа; *б* – модифікована модель. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Значення емпіричного параметра δ отримуються методом підгонки на основі експериментальних даних швидкості “pick-off” анігіляції. З порівняльного аналізу даних було отримано значення $\delta = 1,66 \text{ \AA}$.

Важливим досягненням роботи Тао став простий аналітичний зв’язок між середнім часом життя позитронів та характерними розмірами сферичних утворень у матеріалі. Передбачення моделі мають певні обмеження для застосування через значні спрощення, проте широко використовуються при аналізі експериментальних спектрів часу життя позитронів у металах та сплавах. У представленій роботі пропонується розвинути модель Тао - Елдрупа на випадок, коли висота потенціальної ями має скінченну висоту (див. рис. 1, б).

Будемо розглядати дефект як сферично-симетричну потенціальну яму скінченної висоти U_p та розміром R_p , тоді маємо

$$U = \begin{cases} 0, & 0 < r \leq R_p, \\ U_p, & r > R_p. \end{cases} \quad (5)$$

Наразі ми не накладаємо обмежень на значення висоти і ширини потенціальної ями, тому не конкретизуємо тип дефекту (вакансія, пора), який може бути описаний такою ямою.

Ідеалізація системи за допомогою моделі сферичної потенційної ями (5) зводиться до припущень про повну ізотропію сил і сталість потенціальної енергії при $r \leq R_p$. Розглянемо також випадок, коли хвильова функція ортопозитронію відповідає основному стану з енергією, меншою за висоту ями $E < U_p$. Це відповідає фінітному руху частинки та дискретному енергетичному спектру. Хвильова функція частинки залежить тільки від просторової координати. Рівняння Шредінгера може легко бути приведені до виду для частинки в одновимірній потенціальній ямі простою підстановкою $\chi(r) = r \cdot \psi(r)$ [20]. Роз-

в’язки рівняння для модифікованої моделі можуть бути знайдені аналітично, вони мають різний вигляд усередині ями та за її межею:

$$\begin{aligned} \chi_1(r) &= B_1 \sin(\kappa r), & 0 < r \leq R_p, \\ \chi_2(r) &= B_2 \exp(-\kappa_p r), & r > R_p. \end{aligned} \quad (6)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2m_p}{\hbar^2} E}, \quad \kappa_p = \sqrt{\frac{2m_p}{\hbar^2} (U_p - E)}. \quad (7)$$

Умови нормування та неперервності хвильової функції, а також неперервності її похідної, при зшиванні на границі потенціальної ями дають змогу визначити невідомі коефіцієнти в загальному виразі для хвильової функції (6) та умову для значень енергії станів позитронію:

$$\begin{aligned} \tan(\kappa R_p) &= -\frac{\kappa}{\kappa_p} \Rightarrow \sin(\kappa R_p) = \\ &= \pm \sqrt{\frac{E}{U_p}} = \pm \kappa R_p \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_p U_p R_p^2}}. \end{aligned} \quad (8)$$

Останнє співвідношення може бути легко приведені до вигляду:

$$\frac{\sin(\kappa R_p)}{\kappa R_p} = \pm \frac{a_0}{R_p} \sqrt{\frac{Ry}{2U_p}}, \quad (9)$$

де $Ry = 13,6 \text{ eV}$ – постійна Рідберга; $a_0 = 0,53 \text{ \AA}$ – радіус Бора.

Отже, дискретний спектр значень енергії ортопозитронієвого стану визначається трансцендентними рівняннями (8) чи (9). При цьому вибираються тільки ті корені рівняння, за яких величина $\tan(\kappa R_p)$ від’ємна. Кількісне обчислення значення енергії за явними виразами (8) і (9) при сьгоднішніх можливостях не викликає труднощів (рис. 2).

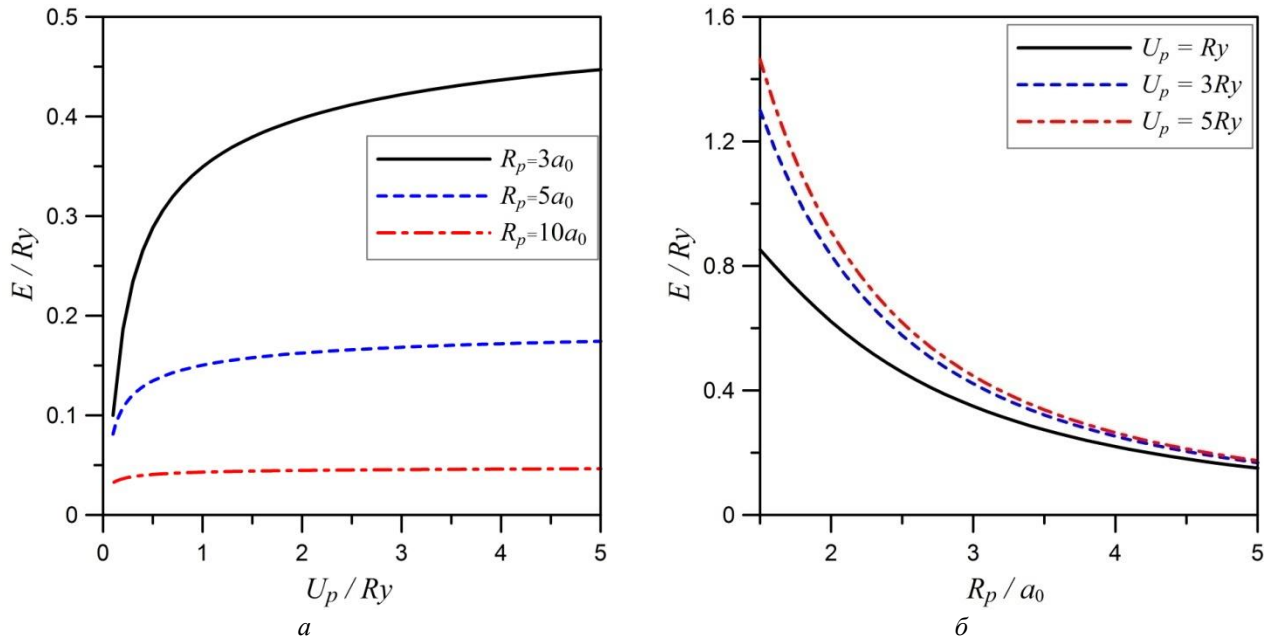


Рис. 2. Залежність енергії основного о-Рс стану в сферично-симетричній потенціальній ямі скінченної висоти як функція висоти (а) та ширини (б) потенціальної ями. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Як бачимо з виразу (9), постійна Рідберга та радіус Бора зручно вибрати як масштабні величини для енергії та відстані відповідно. Уведемо безрозмірні величини:

$$r' = \frac{r}{a_0}, r_p = \frac{R_p}{a_0}, \quad \varepsilon = \frac{E}{Ry}, \quad u_p = \frac{U_p}{Ry}. \quad (10)$$

Хвильова функція та умова на значення енергії в нових позначеннях набувають вигляду

$$\begin{aligned} \chi_1(r') &= B_1 \sin(r' \sqrt{2\varepsilon}), & 0 < r' \leq r_p, \\ \chi_2(r') &= B_2 \exp(-r' \sqrt{2(u_p - \varepsilon)}), & r' > r_p. \end{aligned} \quad (11)$$

$$\sin^2(r_p \sqrt{2\varepsilon}) = \frac{\varepsilon}{u_p}. \quad (12)$$

Коефіцієнти B_1 та B_2 визначимо, враховуючи їхній зв'язок та умову нормування хвильової функції:

$$\begin{aligned} \int_0^\infty |\psi(r)|^2 4\pi r^2 dr &= 4\pi \int_0^\infty |\chi(r)|^2 dr = \\ &= 4\pi a_0 \left[\int_0^{r_p} |\chi_1(r')|^2 dr' + \int_{r_p}^\infty |\chi_2(r')|^2 dr' \right] = 1. \end{aligned} \quad (13)$$

Після математичних перетворень з урахуванням (11) - (13), маємо:

$$|B_1|^2 = \frac{1}{2\pi a_0} \cdot \frac{u_p}{\varepsilon} \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \cdot \frac{1}{\tau_u}, \quad (14)$$

$$|B_2|^2 = \frac{1}{2\pi a_0} \cdot \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \exp(-2r_p \sqrt{2(u_p - \varepsilon)}) \cdot \frac{1}{\tau_u}, \quad (15)$$

$$\tau_u = 1 + \frac{r_p u_p}{\varepsilon} \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \left(1 - \frac{\sin(2r_p \sqrt{2\varepsilon})}{2r_p \sqrt{2\varepsilon}} \right). \quad (16)$$

Тут r_p , u_p – безрозмірні параметри потенціальної ями; ε – значення енергії основного о-Рс стану, визначене з виразу (12). Зауважимо, що з ростом висоти потенціальної ями ($u_p \rightarrow \infty$) значення $\sin(r_p \sqrt{2\varepsilon}) \rightarrow 0$, тобто $\varepsilon \rightarrow \pi^2 / r_p^2 = Ry \cdot \pi^2 \hbar^2 / 2m_p R_p$, таку характерну залежність також можна бачити з динаміки на рис. 2, б. При цьому, другий інтеграл по області за межами ями у виразі (13) швидко прямує до нуля, а коефіцієнт B_1 прямує до значення $1/\sqrt{2\pi R_p}$. Таким чином, отримані вирази в граничному переході до випадку нескінченно високої ями відповідають раніше отриманим виразам для цього випадку.

Отже, ми фактично описали тунелювання позитронів за межі потенціальної ями. Оскільки в області за границею ями електронна густина відповідає густині в основному об'ємі матеріалу, то швидкість анігіляції позитронів λ_p у сферичній потенціальній ямі скінченної висоти пропорційна швидкості анігіляції позитронів у незбуреному середовищі λ_0 . Значення λ_p визначається перекриттям хвильової функції ортопозитронію та

електронної густини за границею ями, що якісно відрізняє розроблену модель від моделі Тао - Елдруса.

Таким чином, беручи до уваги (1), маємо:

$$\begin{aligned} \lambda_p &= \lambda_0 \int_{R_p}^{\infty} |\psi(r)|^2 4\pi r^2 dr = \\ &= \lambda_0 \cdot 4\pi a_0 \int_{r_p}^{\infty} |\chi_2(r')|^2 dr'. \end{aligned} \quad (17)$$

Для прикладного використання результатів зручніше їх представити через величину часу життя позитронів $\tau_p = 1/\lambda_p$, оскільки ця характеристика вимірюється експериментально. Виконаємо відповідні розрахунки і отримаємо для часу життя о-Ps стану такий вираз:

$$\tau_p = \frac{1}{\lambda_p} = \tau_0 \cdot \tau_u =$$

$$= \tau_0 \left\{ 1 + \frac{r_p u_p}{\varepsilon} \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \left(1 - \frac{\sin(2r_p \sqrt{2\varepsilon})}{2r_p \sqrt{2\varepsilon}} \right) \right\}, \quad (18)$$

який є оригінальним результатом і описує зміну часу життя ортопозитронієвого стану в сферично-симетричній потенціальній ямі скінченної висоти. При цьому не вводиться додатковий шар, а швидкість анігіляції визначається перекриттям позитронної та електронної густини за рахунок тунелювання за межі потенціальної ями в основний матеріал.

Як і слід було очікувати, з урахуванням зв'язку для енергії (9), відносна зміна часу життя позитронів повністю визначається висотою та шириною потенціальної ями. При зменшенні висоти і ширини ями $\tau_p \rightarrow \tau_0$, як це легко бачити з виразу (18). На рис. 3 представлено залежність відношення τ_p / τ_0 від висоти та ширини потенціальної ями. Розглянуто випадок, коли в потенціальній ямі є лише один основний рівень енергії, тобто одне значення ε , що задовольняє умову (9).

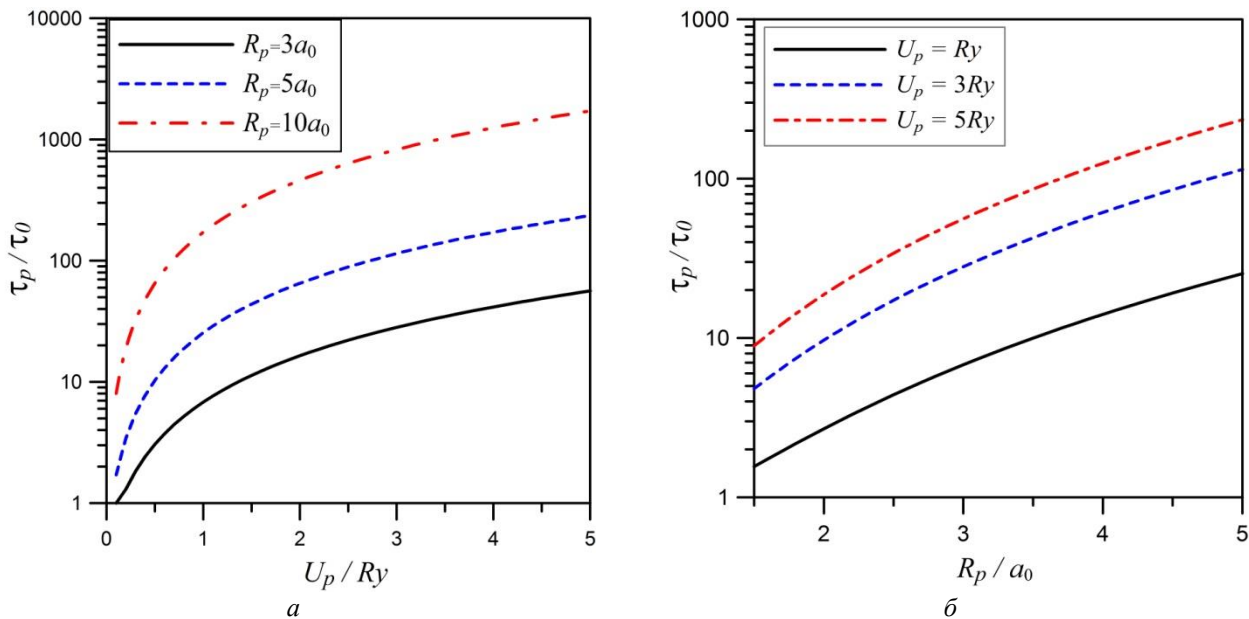


Рис. 3. Відношення часу життя позитронів у сферично-симетричній потенціальній ямі скінченної висоти до часу життя позитронів в основному об'ємі матеріалу як функція висоти (а) та ширини (б) потенціальної ями. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Як випливає з рис. 3, з ростом висоти потенціальної ями значення часу життя о-Ps стану досить швидко зростає і в розглянутому діапазоні на два порядки величини може перевищувати час життя позитронів в основному об'ємі матеріалу. Це може бути використано при експериментальних дослідженнях реакторних матеріалів. Відношення середнього часу життя позитронів у потенціальній ямі до відповідної величини в основному матеріалі досить швидко зростає та-

кож при збільшенні розмірів ями. У характерному діапазоні значень розмірів дефектів це відношення становить до двох порядків величини.

Представлена модифікована модель Тао - Елдруса має обмеження в застосуванні. Дійсно, при збільшенні висоти потенціальної ями час життя позитронів у такому підході досить швидко зростає, що насправді не відповідає реальній ситуації. Це є наслідком розглянутих спрощень, що не враховують певних процесів та особливо-

стей анігіляції позитронів у матеріалі. Зауважимо, що лише певні ділянки на графіках залежностей на рис. 3 відповідають характерним співвідношенням розмірів локальних утворень електронної густини реальних матеріалів та висотам потенціальних ям, що відповідають цим утворенням.

Проте врахування обмеження у висоті потенціальної ями для розвинутої моделі більше відповідає реальному розподілу потенціального поля поблизу дефектів у матеріалах, зокрема в конструкційних матеріалах реакторів. У певних межах, визначення яких потребує подальшого дослідження, відносно невеликих висот потенціальних ям, при обробці експериментальних даних представлена модель дає можливість досить швидко розрахувати характерні часи життя позитронів і, відповідно, тип та концентрацію дефектів у матеріалах, для яких відомі характерні розміри утворень та їхні енергетичні характеристики. Розрахунок останніх з перших принципів є досить складною задачею і потребує вагомий верифікації. Більше того, метод спектроскопії часу життя може бути використаний для визначення енергетичних характеристик та розподілу поля дефектів матеріалів, якщо характерні розміри вдалося визначити, наприклад, дифракційними методами аналізу.

Суттєвою перевагою нашого аналітичного підходу є проста адаптація розрахунків, наприклад, для врахування тунелювання електронів усередину ями. Це можна реалізувати, скориставшись підходом, що був запропонований Тао [4], тобто ввести додатковий прошарок електронної густини всередині ями. Розглянемо випадок, коли електрони проникають усередину сферично симетричної ями на глибину δ . Припустимо, що розподіл електронів у цьому прошарку рівномірний, тоді швидкість анігіляції позитронів буде пропорційна швидкості анігіляції в основному об'ємі матеріалу і може бути представлена у вигляді

$$\lambda_{p2} = 4\pi a_0 \lambda_0 \cdot \left[\int_{r_p - \delta}^{r_p} |\chi_1(r')|^2 dr' + \int_{r_p}^{\infty} |\chi_2(r')|^2 dr' \right], \quad (19)$$

де δ вибрано в одиницях боровського радіуса. Другий інтеграл у виразі (19) очевидно відповідає розглянутому раніше випадку, що враховує тунелювання позитронів за межі ями, і його внесок визначається виразом (18). Внесок першого доданку у виразі (19) може бути обчислений аналітично

$$\int_{r_p - \delta}^{r_p} |\chi_1(r')|^2 dr' = |B_1|^2 \left(\delta - \frac{1}{\sqrt{2\varepsilon}} \cos((2r_p - \delta)\sqrt{2\varepsilon}) \sin(\delta\sqrt{2\varepsilon}) \right). \quad (20)$$

Після нескладних математичних перетворень отримаємо швидкість анігіляції позитронів у сферично симетричній ямі кінцевої висоти, з урахуванням тунелювання позитронів назовні та електронів усередину потенціальної ями, у вигляді

$$\lambda_{p1} = \lambda_0 \tau_u^{-1} \left[1 + \frac{u_p}{\varepsilon} \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \left(\delta - \frac{1}{\sqrt{2\varepsilon}} \cos((2r_p - \delta)\sqrt{2\varepsilon}) \sin(\delta\sqrt{2\varepsilon}) \right) \right]. \quad (21)$$

Очевидно, що при $\delta \rightarrow 0$ переходимо до отриманого раніше виразу для швидкості анігіляції (18), коли враховується лише тунелювання позитронів. У граничному випадку $u_p \rightarrow \infty$ одиницею у виразах (16) і (21) можна знехтувати і вираз (21) переходить у добре відомий результат класичної моделі Тао - Елдрупа (4) для зв'язку швидкості анігіляції позитронів у нескінченно глибокій потенціальній ямі визначеної ширини.

Зауважимо, що аналітичний вираз (21) не передбачає обмеження на розміри електронного прошарку, проте умова $\delta \ll r_p$ є цілком логічною в припущенні рівномірного розподілу електронів у цьому прошарку. У цьому випадку вираз (21) спрощується:

$$\lambda_{p1} = \lambda_0 \tau_u^{-1} \left(1 + 2\delta \sqrt{2(u_p - \varepsilon)} \right). \quad (22)$$

Розвинута модель дає змогу описати випадок, коли електронна густина всередині потенціальної ями дефекту розподілена нерівномірно. У цьому випадку в перший інтеграл у виразі (19) можна включити додаткову функцію від радіальної координати, що дасть можливість врахувати особливості розподілу електронної густини.

Таким чином, розвинуто аналітичні підходи для обчислення часу життя позитронів у матеріалі з урахуванням локальних змін електронної густини, що пов'язана з його дефектною структурою. Розвинута модель дає змогу аналітично розрахувати час життя позитронів у сферично симетричній потенціальній ямі, на випадок потенціальної ями скінченної висоти з урахуванням тунелювання через межі потенціальної ями.

4. Висновки

Розвинуто аналітичні підходи для обчислення часу життя позитронів у матеріалі з урахуванням локальних змін електронної густини, що пов'язана з його дефектною структурою. Модифікована модель Тао - Елдрупа дає змогу аналітично розрахувати час життя позитронів у сферично симетричній потенціальній ямі, на випадок потенціальної ями скінченної висоти. При цьому швидкість анігіляції визначається перекриттям позитронної та електронної густини за рахунок тунелювання через межі потенціальної

ями в основний матеріал та всередину ями. Показано, що з ростом висоти або ширини потенціальної ями значення часу життя досить швидко зростає і в характерному діапазоні енергій на два порядки величини може перевищувати час життя позитронів в основному об'ємі матеріалу.

Розвинена модифікована модель дає важливу інформацію для аналізу спектрів часу життя позитронів в опромінених матеріалах та дані для верифікації кількісних розрахунків часу життя позитронів методами функціоналу щільності, що широко використовується для таких задач.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ / REFERENCES

1. В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов. *Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов* (К.: Наук. думка, 2006) 376 с. / V.N. Voevodin, I.M. Neklyudov. *Evolution of the Structural-Phase State and Radiation Resistance of Structural Materials* (Kyiv: Naukova Dumka, 2006) 376 p. (Rus)
2. В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Т.П. Черняева. *Радиационные дефекты и набухание металлов* (К.: Наук. думка, 1988) 296 с. / V.F. Zelensky, I.M. Neklyudov, T.P. Chernyaeva. *Radiation Defects and Swelling of Metals* (Kyiv: Naukova Dumka, 1988) 296 p. (Rus)
3. V. Naundorf. Diffusion in metals and alloys under irradiation. *Int. J. Mod. Phys. B* 6(18) (1992) 2925.
4. S.J. Tao. Positronium annihilation in molecular substances. *J. Chem. Phys.* 56(11) (1972) 5499.
5. M. Eldrup, D. Lightbody, J. N. Sherwood. The temperature dependence of positron lifetimes in solid pivalic acid. *J. Chem. Phys.* 63 (1981) 51.
6. R.A. Ferrell. Theory of Positron Annihilation in Solids. *Rev. Mod. Phys.* 28 (1956) 308.
7. W. Brandt, S. Berko, W.W. Walker. Positronium Decay in Molecular Substances. *Phys. Rev.* 120(4) (1960) 1289.
8. A. Ogata, S.J. Tao. Ortho-Positronium Annihilation in Nitric Acid Treated Polypropylene. *J. Appl. Phys.* 41 (1970) 4261.
9. P.R. Gray, C.F. Cook, G.P. Sturm. Correlation of Triplet Positronium Annihilation Parameters with Structural and Electronic Properties of Organic Liquids. *J. Chem. Phys.* 48 (1968) 1145.
10. G. Mori. Positrons around vacancies in Al. *J. Phys. F: Met. Phys.* 7(4) (1977) L89.
11. M.J. Stott, P. Kubica. New approach to the positron distribution in metals and alloys. *Phys. Rev. B* 11(1) (1975) 1.
12. W. Brandt. Positron dynamics in solids. *Appl. Phys.* 5 (1974) 1.
13. R.N. West. *Positron Studies of Lattice Defects in Metals*. In: *Positrons in Solids. Topics in Current Physics*. P. Hautojärvi (Ed.). Vol. 12 (Berlin, Heidelberg, Springer, 1979) p. 89.
14. M. Vorona, O. Lebed. Pseudopotential method for description of positron annihilation in spherically symmetric potential. In: *Problems of Theoretical Physics. Book of Abstracts. XII Conf. of Young Scientists, Kyiv, Ukraine, December 21 - 23, 2021 (Kyiv, 2021)* p. 5.
15. M.J. Puska, R.M. Nieminen. Theory of positrons in solids and on solid surfaces. *Rev. Mod. Phys.* 66 (1994) 841.
16. I.Ya. Dekhtyar. The use of positrons for the study of solids. *Phys. Rep.* 9 (1974) 243.
17. В.И. Графутин, Е.П. Прокопьев. Применение позитронной аннигиляционной спектроскопии для изучения строения вещества. *Усп. физ. наук* 172 (2002) 67. / V.I. Grafutin, E.P. Prokopiev. Positron annihilation spectroscopy in materials structure studies. *Physics-Uspekhi* 45 (2002) 59. (Rus)
18. R. Krause-Rehberg, H.S. Leipner. *Positron Annihilation in Semiconductors: Defect Studies* (Berlin, New York, Springer, 1999) 378 p.
19. T. Goworek. Positronium as a Probe of Small Free Volumes. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 1 (2000) 11.
20. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Квантовая механика (нерелятивистская теория)*. Т. III (Москва: Наука, 1989) 750 с. / L.D. Landau, E.M. Lifshits. *Quantum Mechanics (Non-Relativistic Theory)*. Vol. III (Moskva: Nauka, 1989) 750 p. (Rus)
21. А.Б. Дудник и др. Цифровой спектрометр времени жизни позитронов на основе метода β^+ - γ -совпадений. *ВАНТ* 2(84) (2013) 157. / A.B. Dudnyk et al. Digital positron lifetime spectrometer based on the method of β^+ - γ -coincidence. *Problems of Atomic Science and Technology* 2(84) (2013) 157. (Rus)
22. F. Tuomisto, I. Makkonen. Defect identification in semiconductors with positron annihilation: Experiment and theory. *Rev. Mod. Phys.* 85(4) (2013) 1583.
23. R.M. Nieminen, E. Boroński, L.J. Lantto. Two-component density-functional theory: Application to positron states. *Phys. Rev. B* 32(2) (1985) 1377.
24. E. Boroński, R.M. Nieminen. Electron-positron density-functional theory. *Phys. Rev. B* 34(6) (1986) 3820.

M. I. Vorona*, O. A. Lebed*Institute of Applied Physics, National Academy of Sciences of Ukraine, Sumy, Ukraine*

*Corresponding author: marina-vara@ukr.net

**POSITRON ANNIHILATION RATE IN POINT DEFECTS OF REACTOR MATERIALS
WITHIN THE MODIFIED TAO - ELDRUP MODEL**

Theoretical concepts of the positron annihilation process in structural materials of nuclear reactors, taking into account the peculiarities of their electronic structure, have been developed. The Tao - Eldrup model, which allows to analytically calculate the lifetime of a positron in a spherically symmetric potential well, has been modified for the case of a potential well of finite height, in order to expand the limits of the model's application. The dependence of the positron lifetime on the height and width of the potential well, which occurs at the point defects, was determined. The results obtained within the framework of the modified model provide important information for the analysis of positron lifetime spectra in irradiated materials and data for the verification of quantitative calculations by the method of density functional theory.

Keywords: lifetime spectra, positron annihilation in the material, defective structure, potential well, tunneling.

Надійшла/Received 10.01.2023