

Влияние процессов суммирования каскадного гамма-излучения на точность определения вероятности трехфотонной аннигиляции позитрония

© С.К. Андрухович, Н.М. Антович, А.В. Берестов

Институт физики Академии наук Белоруссии,
220072 Минск, Белоруссия

E-mail: berestov@dragon.bas-net.by

(Поступила в окончательном виде 25 февраля 2000 г.)

Изучены неучтенные процессы суммирования каскадных гамма-квантов при регистрации однодетекторным спектрометром энергетического спектра ^{22}Na в образцах и их влияние на изменение площади аннигиляционной линии 511 keV при определении вероятности трехфотонной аннигиляции позитрония $P_{3\gamma}$. Увеличение числа аннигиляционных квантов в "позитронийобразующих" образцах и их перераспределение в низкоэнергетичную часть спектра обуславливает отличие площади фотопика сопутствующего ядерного кванта, по которому производится нормировка спектров, от соответствующего пика в эталоне алюминия. Отклонение реального значения $P_{3\gamma}$ от значения, определяемого без учета процессов суммирования на высокоэффективных сцинтилляционном NaI(Tl)- и полупроводниковом Ge-детекторах при расстоянии между источником позитронов и поверхностью детектора 3 см, составляет соответственно 56 и 25%.

Работа выполнена при частичной поддержке Фонда фундаментальных исследований Республики Беларусь (грант № Ф97-055).

Методы позитронной диагностики находят широкое применение для бесконтактного и неразрушающего контроля, а также при изучении физико-химических и технологических свойств различных материалов и сред.

Известно (см., например, [1]), что существует два основных состояния позитрония — триплетный, или ортопозитроний $o\text{-Ps}$ (3S_1), с параллельными спинами электрона и позитрона, и синглетный, или парапозитроний $p\text{-Ps}$ (1S_0), в котором спины электрона и позитрона антипараллельны. Полный момент ортопозитрония $J_t = 1$, причем здесь возможны три подсостояния, различающиеся магнитными квантовыми числами $m = +1, 0, -1$. Для парапозитрония $J_s = 0$ и $m = 0$. Поэтому статистический вес триплетного состояния втрое больше, чем для синглетного, при образовании позитрония в 75% случаев возникает орто- и в 25% — пара-состояние. $o\text{-Ps}$ испытывает 3γ -аннигиляцию (энергетический спектр гамма-квантов имеет непрерывный характер от 0- до 511 keV), а $p\text{-Ps}$ — 2γ -аннигиляцию (дискретные кванты с энергией 511 keV, разлетающиеся под углом 180°). Время жизни атома $p\text{-Ps}$ составляет $\tau_s^0 = 1.25 \cdot 10^{-10}$ с, время жизни свободного атома $o\text{-Ps}$ до аннигиляции $\tau_t^0 = 1.4 \cdot 10^{-7}$ с.

Процессы тушения (pick-off-аннигиляции, орто-пара-конверсии и химического взаимодействия), как правило, приводят к существенному (на порядок и более) снижению времени жизни $o\text{-Ps}$ в конденсированной фазе τ_t .

Одним из важных параметров, характеризующих распад атомов позитрония в веществе, является вероятность трехфотонной аннигиляции $P_{3\gamma}$, точное знание которой необходимо в конечном итоге для получения информации о структуре и особенностях исследуемых веществ [1,2].

1. Существующие методы определения значения $P_{3\gamma}$

Величина вероятности образования позитрония P связана с вероятностью 3γ -аннигиляции $P_{3\gamma}$ известным выражением [1]

$$P_{3\gamma} \cong 0.75P\tau_t/\tau_t^0 + (1 - P)/372. \quad (1)$$

Значение $P_{3\gamma}$ может быть получено непосредственно путем сравнения экспериментальных энергетических спектров, измеренных в исследуемом образце и в веществе, в котором позитроний заведомо не образуется (например, алюминий), а трехфотонный распад при аннигиляции свободного позитрона возможен с вероятностью $P_{3\gamma} = 1/372$. На этом основан один из известных методов определения $P_{3\gamma}$, описанный в [1], более подробно рассмотренный, в частности, в [2] и широко используемый в экспериментальных исследованиях.

Кратко изложим его суть. Вылет позитрона при распаде ядра изотопа ^{22}Na сопровождается вылетом ядерного гамма-кванта с энергией 1275 keV. Пусть ε_1 — эффективность регистрации аннигиляционного кванта 511 keV в фотопик, ε_2 — эффективность регистрации ядерного кванта в соответствующий фотопик. Тогда с учетом того, что вероятность трехфотонной аннигиляции свободного позитрона пренебрежимо мала ($1/372$), в случае эталона алюминия имеем

$$(S_{511})_{\text{Al}} = 2\varepsilon_1 Q, \quad (2)$$

$$(S_{1275})_{\text{Al}} = \varepsilon_2 Q, \quad (3)$$

где $(S_{511})_{\text{Al}}$, $(S_{1275})_{\text{Al}}$ — скорости счета аннигиляционных и ядерных гамма-квантов соответственно, Q — активность источника позитронов. Для исследуемого образца

аналогичные величины составляют

$$(S_{511})_{Ps} = 2\varepsilon_1(1 - P_{3\gamma})Q, \quad (4)$$

интенсивность же линии 1275 keV остается неизменной, поскольку не зависит от структуры исследуемого образца, т. е.

$$(S_{1275})_{Ps} = \varepsilon_2 Q. \quad (5)$$

Для экспериментального определения величины трехфотонной аннигиляции необходимо сравнить два энергетических спектра — в эталоне алюминия и в исследуемом образце в предположении равенства числа испущенных позитронов в обоих случаях. Поскольку в эксперименте невозможно соблюсти абсолютно точно геометрию измерений при замене образцов, а также поскольку используются источники позитронов разной активности, обычно прибегают к следующей процедуре нормировки: после вычитания фоновой скорости счета энергетические спектры должны содержать пики ядерного гамма-излучения одинаковой площади, т. е.

$$(S_{1275})_{Al} = (S_{1275})_{Ps}. \quad (6)$$

С учетом этого спектры нормируются к равной площади пика ядерного излучения и тогда наблюдаемая в эксперименте величина

$$\Delta = (S_{511})_{Al} - (S_{511})_{Ps} = 2\varepsilon_{3\gamma}Q, \quad (7)$$

откуда

$$P_{3\gamma} = \Delta / 2\varepsilon_1 Q. \quad (8)$$

Другой применяемый метод определения вероятности трехфотонной аннигиляции, схожий с описанным выше, связан с использованием сильных (> 2.5 Т) магнитных полей, в которых наблюдается магнитное тушение позитрония, в результате чего вероятность трехфотонной аннигиляции в образце по сравнению со случаем отсутствия магнитного поля уменьшается на $1/3$ [1].

Отметим, что авторы монографии [2], приводя результаты исследований образцов эластомеров различных марок с помощью описанной методики, отмечают существенное превышение абсолютных значений вероятности трехфотонной аннигиляции по сравнению с расчетами по формуле (1) с использованием данных о временах жизни позитрония в этих образцах. Отмеченное различие абсолютных значений объясняется в [2] недостаточно корректной процедурой определения внешнего фонового излучения, в то время как на наш взгляд, оно может быть обусловлено описанными далее причинами.

2. Учет процессов суммирования каскадного гамма-излучения при определении значения $P_{3\gamma}$

Не будем рассматривать процессы, связанные с неправильным учетом фона, а также события, соответствующие случайным (не имеющим общего генетического

происхождение) совпадениям квантов от различных распадов и их вкладу в исследуемые энергетические спектры. Рассмотрим физические эффекты, возникающие при регистрации каскадного гамма-излучения для описанных выше распадов.

Обозначим ε_1^c — эффективность регистрации детектором комптоновски рассеянного аннигиляционного гамма-кванта 511 keV, $d\varepsilon_2^c$ — эффективность регистрации комптоновски рассеянного ядерного кванта 1275 keV, ε_3^t — полную эффективность регистрации кванта распада атома ортопозитрония.

Тогда для эталона алюминия с учетом того, что позитрон и гамма-квант 1275 keV испускаются в каскаде, в детекторе происходят дополнительные к рассмотренным выше процессы, возникающие за счет суммирования квантов (от одного распада ядра), одновременно попадающих в створ датчика:

1) регистрация комптоновски рассеянного аннигиляционного кванта с совпадавшим комптоновски рассеянным ядерным квантом; скорость счета данного процесса равна $2\varepsilon_1^c \varepsilon_2^c Q$;

2) регистрация комптоновски рассеянного аннигиляционного кванта вместе с полностью поглощенным ядерным квантом — $2\varepsilon_1^c \varepsilon_2 Q$;

3) регистрация полностью поглощенного аннигиляционного кванта вместе с комптоновски рассеянным ядерным квантом — $2\varepsilon_1 \varepsilon_2^c Q$;

4) регистрация полностью поглощенного аннигиляционного кванта и полностью поглощенного ядерного кванта — $2\varepsilon_1 \varepsilon_2 Q$.

В принципе возможна регистрация суммы комптоновски рассеянных аннигиляционного и ядерного квантов в область исследуемых фотопиков. Однако процесс 1) практически не влияет на определяемые площади фотопиков 511, 1275 keV, поскольку вносит вклад в непрерывное комптоновское распределение на всех участках энергетического спектра, которое вычитается при обработке линий обычными спектроскопическими методами (например, методом "трапеции"). Помимо этого, вследствие высокого энергетического разрешения полупроводникового детектора, например, вероятность попадания суммы двух комптоновски рассеянных квантов в область рассматриваемых фотопиков пренебрежимо мала по сравнению со всеми возможными комбинациями суммирования квантов.

Процессы 3), 4) приводят к изменению площади фотопика 511 keV, процессы 2), 4) — к изменению площади фотопика 1275 keV. Отметим также, что в отличие от процессов 2), 3), приводящих к изменению площади только одного (соответствующего) фотопика, процесс 4) приводит к одновременному уменьшению как аннигиляционного, так и ядерного фотопиков. С учетом изложенного выше имеем для линии 511 keV

$$(S_{511})_{Al}^* = 2\varepsilon_1 Q(1 - \varepsilon_2^t), \quad (9)$$

где $\varepsilon_2^* = (\varepsilon_2 + \varepsilon_2^c)$ — полная эффективность регистрации ядерного кванта и

$$(S_{1275})_{\text{Al}}^* = \varepsilon_2 Q (1 - 2\varepsilon_1^t), \quad (10)$$

где $\varepsilon_1^t = (\varepsilon_1 + \varepsilon_1^c)$ — полная эффективность регистрации аннигиляционного кванта 511 keV.

В случае исследуемого "позитронийобразующего" образца кванты аннигиляции ортопозитрония имеют энергию, меньшую 511 keV и регистрируются не в фотопик, а в комптоновскую часть спектра. Учитывая также, что при распаде атома ортопозитрония испускается одновременно 3 гамма-кванта, имеем следующие, аналогичные по происхождению рассмотренным выше, процессы:

- 1) $[2\varepsilon_1^c(1 - P_{3\gamma}) + 3\varepsilon_3^t P_{3\gamma}] \varepsilon_2^c Q$,
- 2) $[2\varepsilon_1^c(1 - P_{3\gamma}) + 3\varepsilon_3^t P_{3\gamma}] \varepsilon_2 Q$,
- 3) $2\varepsilon_1(1 - P_{3\gamma}) \varepsilon_2^c Q$,
- 4) $2\varepsilon_1(1 - P_{3\gamma}) \varepsilon_2 Q$.

Отсюда имеем

$$(S_{511})_{\text{Ps}}^* = 2\varepsilon_1 Q (1 - \varepsilon_2^t) (1 - P_{3\gamma}), \quad (11)$$

$$(S_{1275})_{\text{Ps}}^* = \varepsilon_2 Q [1 - 2\varepsilon_1^t + P_{3\gamma}(2\varepsilon_1^t - 3\varepsilon_3^t)]. \quad (12)$$

Оценим, к чему приводит требование равенства площадей фотопиков ядерного гамма-кванта, которое используется в качестве критерия при сравнении спектров. Для этого необходимо умножить спектр в эталоне алюминия на нормировочный коэффициент

$$(S_{1275})_{\text{Ps}}^* / (S_{1275})_{\text{Al}}^* = [1 - 2\varepsilon_1^t + P_{3\gamma}(2\varepsilon_1^t - 3\varepsilon_3^t)] / (1 - 2\varepsilon_1^t). \quad (13)$$

В этом случае имеем

$$P_{3\gamma}^* = \Delta^* (1 - 2\varepsilon_1^t) / 2Q\varepsilon_1 (1 - \varepsilon_2^t) (1 - 3\varepsilon_3^t). \quad (14)$$

Таким образом, по сравнению со значением, описываемым выражением (8), имеем различие в определении значения $P_{3\gamma}$ в

$$\kappa = (1 - 2\varepsilon_1^t) / (1 - \varepsilon_2^t) (1 - 3\varepsilon_3^t) \quad (15)$$

раз. Значения коэффициента κ для некоторых применяемых типов детекторов приведены в табл. 1. Для расчета использовались экспериментальные данные для Na(Tl)-детектора размерами $\phi 150 \times 100$ mm и высокоэффективного Ge-детектора GC8021 объемом 200 cm^3 [3], исследуемый энергетический диапазон: 0.03–2.0 MeV.

Отметим, что целью настоящей работы не является получение точного аналитического выражения для коэффициента коррекции, поскольку данная процедура потребовала бы тщательного учета зависимости эффективности регистрации квантов трехфотонной аннигиляции от энергии, а также учета углового распределения квантов распада *o*-Ps. Цель данной работы заключается

Таблица 1. Значения эффективностей регистрации и коэффициента κ для сцинтилляционного и полупроводникового детектора в зависимости от расстояния от источника позитронов и образца до поверхности детектора R

NaI(Tl) $\phi 150 \times 100$ mm						
$R, \text{ cm}$	ε_1	ε_1^t	ε_2	ε_2^c	ε_3^t	κ
3	0.11	0.046	0.07	0.083	0.16	1.56
10	0.037	0.015	0.023	0.028	0.052	1.12
20	0.013	0.005	0.008	0.0095	0.017	1.035
Ge 200 cm^3						
3	0.036	0.072	0.019	0.069	0.103	1.25
10	0.009	0.017	0.005	0.015	0.026	1.05
20	0.0025	0.0065	0.0016	0.006	0.010	1.02

Таблица 2. Результаты экспериментального исследования значения $P_{3\gamma}$ на спектрометре с NaI(Tl)-детектором размерами $\phi 150 \times 100$ mm

Расстояние от источника и образца до поверхности детектора $R, \text{ cm}$	$P_{3\gamma}, \%$
0	14.65 ± 0.12
3	4.71 ± 0.12
5	4.03 ± 0.12
10	3.65 ± 0.12

в том, чтобы обратить внимание экспериментаторов на существующие процессы суммирования каскадного гамма-излучения, оценить их и предложить меры по устранению их влияния на результаты измерений.

С целью упрощения оценок значение ε_3^t принято равным полной эффективности регистрации кванта 392 keV. Согласно [4], отклонение значения полной эффективности регистрации гамма-квантов от среднего в энергетическом диапазоне 0.1–0.5 MeV не превышает 12% для сцинтилляционного детектора на основе кристалла Na(Tl) $\phi 150 \times 100$ mm.

Как видно из табл. 1, игнорирование описанных процессов суммирования приводит к достаточно существенному завышению истинного значения $P_{3\gamma}$ на расстоянии до поверхности детектора ≤ 10 cm. Необходимо отметить, что рассмотренные процессы суммирования проявляются независимо от того, какой энергетический нижний порог (максимальное значение которого, очевидно, не может превышать 0.5 MeV) установлен при регистрации спектров.

Нами проведена экспериментальная проверка изложенных в данной статье выкладок. С этой целью на сцинтилляционном спектрометре с детектором на основе кристалла Na(Tl) размерами $\phi 150 \times 100$ mm с использованием источника позитронов ^{22}Na активностью $3.2 \cdot 10^5$ Bq исследовалось значение $P_{3\gamma}$ в исходном силикагеле по методике, описанной в разделе 1 (без учета рассмотренных в данной работе процессов сумми-

рования). Результаты исследований приведены в табл. 2, откуда следует, например, что при расположении источника позитронов и образцов вплотную к детектору определенное значение вероятности трехфотонной аннигиляции позитрония почти в 4 раза превышает истинную величину $P_{3\gamma}$.

Приведенные в табл. 2 результаты подтверждают существенное влияние процессов суммирования каскадного гамма-излучения на определяемое значение вероятности трехфотонной аннигиляции позитрония и согласуются с данными табл. 1.

Таким образом, для точного определения вероятности трехфотонной аннигиляции позитрония в исследуемом образце с помощью методики, описанной в работе [2], необходимо учитывать рассмотренные в данной статье процессы суммирования каскадного гамма-излучения. Отметим, что при определении значения вероятности образования позитрония P и вероятности трехфотонной аннигиляции $P_{3\gamma}$ посредством магнитного тушения ошибка за счет неучтенных процессов суммирования каскадного излучения может привести к существенно большим неточностям.

Отметим в заключение, что коррекция спектров с учетом процессов суммирования становится излишней при телесном угле на детектор $\leq 2\%$ от 4π стерадиан.

Авторы признательны О.Н. Метелице, И.В. Бондареву, Б.А. Марцынкевичу за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] В.И. Гольданский. Физическая химия позитрона и позитрония. Наука, М. (1968). 296 с.
- [2] З.Р. Абдурасулев, П.У. Арифов, Н.Ю. Арутюнов, С.Н. Вассерман, А.Р. Группер, Н.Н. Емелин, Г.И. Журавлева, П.А. Кобелев, Ю.П. Кочерга, М.В. Кремков, Ф. Ли, В.М. Мальян, А.А. Пайзиев, В.А. Пихут, Е.П. Прокопьев, С.А. Скопинов, С.А. Тишин, В.Ю. Тращакон, С.В. Шевелев, А.В. Шевченко. Методы позитронной диагностики и расшифровки спектров аннигиляции позитронов. Изд-во "Фан", Ташкент (1985). 312 с.
- [3] С.Ф. Бульга, В.Г. Гуло, И.В. Жук, А.И. Киевицкая, С.В. Корнеев, С.Э. Мазаник, В.П. Петрушкевич, И.Л. Рахно, Л.П. Рогинец, Л.И. Сальников, И.Г. Серафимович, Д.В. Скабицкий, Ю.Г. Фоков, И.А. Цеханович, С.Е. Чигринов, Б.А. Марцынкевич, А.М. Хильманович, Г.Г. Воронин, В.Л. Захаренко, А.В. Морозов, Н.П. Микулас, Г.И. Гусев. Нейтронный генератор РГ-12-1 — базовая установка для проведения исследований в Нейтронном центре Национальной академии наук Беларуси. Препринт ИРФХП НАН Б № 21. Минск (1998). 36 с.
- [4] Н.А. Варганов, П.С. Самойлов. Прикладная сцинтилляционная гамма-спектроскопия. Атомиздат, М. (1975). 406 с.