

## معرفی قابلیت‌های روش طیف‌سنجی تابش نابودی پوزیترون در مطالعه تحولات حفره‌ها در اثر فرآیند پخت حرارتی

علی بیگانه<sup>۱</sup>، حسین رفیع خیری، امیدرضا کاکویی

پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم فنون هسته‌ای، تهران - ایران

### چکیده:

فرآیند پخت حرارتی یک روش کارآمد برای کاهش غلظت و اندازه حفره‌ها در آلیاژهای فلزی، پلیمرها و نیمرساناها به منظور دست‌یابی به یک محصول با کیفیت و مقاوم است. با این حال، ایجاد اثر مطلوب بر روی یک محصول با استفاده از فرآیند پخت حرارتی نیازمند کنترل صحیح پارامترهای این فرآیند شامل دما و زمان پخت است. روش طیف‌سنجی با استفاده از تابش نابودی پوزیترون یک روش غیرمخرب برای ارزیابی غلظت، اندازه و محیط شیمیایی اطراف حفره‌ها در آلیاژهای فلزی و پلیمرها است. در این مقاله، تحولات حفره‌ها در اثر فرآیند پخت حرارتی بر روی یک نمونه نیکل خام و پخت شده با استفاده از روش طیف‌سنجی تابش نابودی پوزیترون مورد مطالعه قرار گرفته است. نتایج این مطالعه نشان می‌دهد که روش طیف‌سنجی تابش نابودی پوزیترون امکان دیده‌بانی تحولات حفره‌ها در فرآیند پخت حرارتی را دارد و می‌تواند برای استخراج منحنی دما-زمان موثر در فرآیند پخت حرارتی مورد استفاده قرار گیرد.

کلیدواژه‌ها: طیف‌سنجی نابودی پوزیترون، حفره، پخت حرارتی.

## Introducing the capabilities of positron annihilation spectroscopy in the investigation of defects evolution due to annealing process

Ali Biganeh\*, Hossein Rafi-Kheiri, Omidreza Kakuee

Physics and accelerators research school, Nuclear science and technology research institute, Tehran, Iran.

### Abstract:

Thermal annealing process is an efficient method to reduce the concentration of defects in alloys, polymers, and semiconductors in order to achieve a quality and durable product. However, creating the desirable effect on a product using a thermal curing process requires proper control of the parameters of this process, including the temperature and curing time. Positron Annihilation Spectroscopy (PAS) is a non-destructive technique for assessment of concentration, size and chemical environments of defects in metal alloys and polymers. In this paper, the evolution of defects due to the thermal annealing process on a raw and annealed Nickel samples is studied by Positron Annihilation Spectroscopy (PAS). The results of this study show that the positron annihilation radiation can monitor the evolution of defects during the thermal annealing process and can be used to extract the effective diagram of temperature-time in annealing process.

**Keywords:** positron annihilation spectroscopy, defects, thermal annealing.

<sup>1</sup> Corresponding email address: alibiganeh@aut.ac.ir

## ۱. مقدمه

پخت حرارتی یک روش کارآمد جهت کاهش غلظت و اندازه حفره‌های موجود در آلیاژهای فلزی و پلیمرها است [۱]. در طی این فرآیند، نمونه‌ی مورد نظر برای یک مدت مشخص درون یک کوره با دمای از پیش تعریف شده قرار می‌گیرد. اثربخشی این روش نیازمند در اختیار داشتن نمودار دما-زمان مناسب برای حذف موثر حفره‌ها و ناکاملی‌های آلیاژ مورد نظر است. یکی از مهمترین چالش‌های این حوزه، آنالیز غلظت حفره‌ها پس از انجام عملیات حرارتی به منظور بهینه‌سازی فرآیند پخت است. تکنیک طیف سنجی با استفاده از تابش نابودی پوزیترون ( $PAS^1$ ) به عنوان یک روش پیشرفته و غیر مخرب در مطالعه‌ی ساختار ماده شناخته شده است. این تکنیک قادر به آشکارسازی حفره‌هایی به ابعاد  $1-10$  nm از روی سطح تا عمق  $1$  mm از نمونه‌های فلزی، نیمرساناها، پلیمرها و بلورهای یونی است [۲]. جنبه‌های بی‌ظنیر روش PAS متکی به این حقیقت است که طول عمر پوزیترون و انرژی تابش گاما حاصل از تابش نابودی پوزیترون به چگالی الکترونی محیط حساس هستند. بر این اساس، نقص‌های با چگالی الکترونی کمتر، مثل جابه‌جا شدگی‌ها و فضاهای خالی منجر به طول عمرهای طولانی‌تری برای پوزیترون می‌شوند. علاوه بر این، فرآیند نابودی پوزیترون که با تابش گاما همراه است، می‌تواند توزیع تکلنه الکترون‌های شرکت‌کننده در فرآیند نابودی پوزیترون را در اختیار قرار دهد. در این روش، از پوزیترون گسیل شده از چشمه  $^{22}Na$  به عنوان کاوشگر ماده استفاده می‌شود. پوزیترون پس از ورود به ماده در طی برهمکنش‌های مختلف با اتم‌های آن در مدت زمان چند پیکو ثانیه حرارتی می‌شود و سپس به دلیل دافعه‌ای که از طرف هسته اتم‌ها دریافت می‌کند، تمایل دارد در دورترین فاصله ممکن از هسته قرار بگیرد. چنانچه درون شبکه میزبان نقصی وجود داشته باشد، پوزیترون تشکیل یک حالت محلی در مکان حفره‌ها می‌دهد. در نهایت پوزیترون با تابش دوگاما از طریق الکترون‌های آزاد، لایه ظرفیت و یا لایه‌های داخلی نابود می‌شود. دو تفاوت در نابودی پوزیترون در یک شبکه کامل و یک شبکه دارای نقص وجود دارد:

۱- چگالی الکترونی شبکه حفره دار کمتر از شبکه کامل است. از آنجا که احتمال نابودی پوزیترون متناسب با چگالی الکترونی است، در شبکه حفره دار طول عمر پوزیترون بیشتر است.

۲- در شبکه حفره دار، احتمال همپوشانی پوزیترون با الکترون‌های آزاد و لایه ظرفیت بیشتر است. این الکترون‌ها در مقایسه با الکترون‌های لایه‌های داخلی تکلنه کمتری دارند.

هدف روش PAS اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون و تکلنه الکترون‌های شرکت‌کننده در نابودی پوزیترون است. اندازه‌گیری این دو پارامتر در آزمایشگاه به دو روش قابل انجام است: روش اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون و روش پهن شدگی دوپلر تابش نابودی پوزیترون. آزمایشگاه واندوگراف تهران به عنوان یکی از مراکز پیشگام در ارائه خدمات آنالیز، تحقیقات گسترده‌ای برای راه اندازی روش PAS به منظور پشتیبانی از صنایع کشور انجام داده است [۳]. این مقاله به معرفی قابلیت‌های این روش در مطالعه تحولات حفره‌ها در اثر فرآیند پخت حرارتی می‌پردازد.

## ۲. روش انجام کار

در این بخش، روش‌های پهن شدگی دوپلر و طول عمر پوزیترون برای بررسی حفره‌های دو نمونه نیکل خام و پخت شده به کار گرفته شده است. نمونه نیکل با استفاده از کوره نشان داده شده در شکل ۱ در خلا ( $10^{-6}$  mbar) به مدت ۵ ساعت در دمای  $1000$  °C پخت شده و سپس با نرخ  $100$  °C/h تا دمای اتاق سرد شده است. به طور کلی این فرآیند در حدود ۱۲ ساعت زمان می‌برد. هدف از انجام این آزمایش، بررسی تغییرات توزیع تکلنه الکترون‌های شرکت‌کننده در نابودی پوزیترون در روش پهن شدگی دوپلر و تغییرات طول عمر پوزیترون در اثر انجام عملیات حرارتی است.

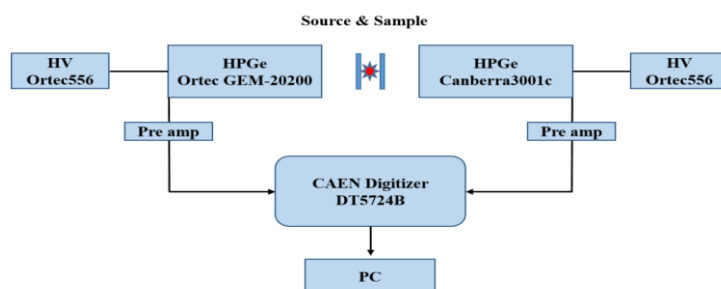
<sup>1</sup> Positron Annihilation Spectroscopy (PAS)



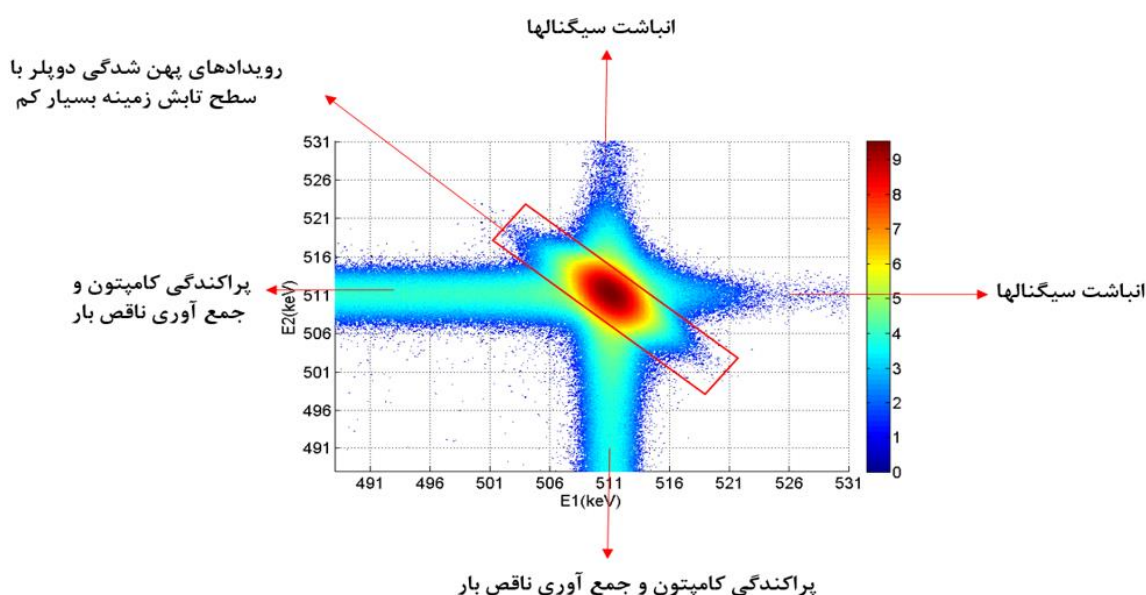
شکل ۱. عملیات پخت حرارتی با استفاده از کوره.

#### ۱.۲. روش پهن شدگی دوپلر

تکانه الکترون‌هایی که در فرآیند نابودی پوزیترون شرکت می‌کنند، سبب ایجاد پهن‌شدگی در طیف دوپلر به میزان  $\Delta E = \pm p_1 c / 2$  می‌شوند. در این رابطه،  $p_1$  تکانه‌ی الکترون‌ها در راستای طولی و  $c$  سرعت نور است. با اندازه‌گیری مقدار پهن شدگی دوپلر می‌توان توزیع تکانه الکترون‌های آزاد، لایه ظرفیت و لایه‌های داخلی را در فرآیند نابودی پوزیترون اندازه‌گیری کرد. برای اندازه‌گیری این توزیع تکانه، از دو آشکارساز HPGe با قدرت تفکیک انرژی عالی (keV) ۱ در انرژی (۵۱۱ keV) استفاده شده است. با توجه به سهم کم مشارکت الکترون‌های داخلی (۰/۰۱٪) نسبت به الکترون‌های آزاد و والانس در نابودی پوزیترون، برای تشخیص محیط شیمیایی اطراف حفره‌ها از سیستم طیف‌سنجی همزمان استفاده می‌شود. در شکل ۲ چیدمان سیستم طیف‌سنجی دیجیتال پهن شدگی دوپلر دو بعدی ارائه شده است. چشمه  $^{22}\text{Na}$  با فعالیت  $\mu\text{Ci}$  توسط دو نمونه ساندویچ می‌شود و در فاصله‌ی ۲۰ cm از دو آشکارساز و روی محور مشترک آن‌ها قرار می‌گیرد. در این چیدمان، همه‌ی ماژول‌های الکترونیک هسته‌ای آنالوگ حذف شده‌اند و به جای آن از یک دیجیتالایزر ۱۴ بیتی استفاده شده است. این دیجیتالایزر به صورت مستقیم از پیش تقویت کننده آشکارسازها نمونه برداری می‌کند و فرآیند شکل دهی به سیگنال و استخراج رویدادهای همزمان به صورت نرم افزاری انجام می‌شود. برای انجام روش پهن شدگی دوپلر، نمونه و چشمه در فاصله ۲۰ cm از دو آشکارساز قرار گرفته‌اند. به منظور جمع‌آوری  $10^6$  شمارش بر روی قله نابودی پوزیترون، داده برداری از هر نمونه در مدت زمان ۶ روز انجام شده است. استخراج رویدادهای همزمان تابش نابودی پوزیترون از لیست داده‌ها که شامل فایل‌ها با حجم ۴GB به ازای هر نمونه است، با استفاده از نرم افزار Matlab انجام شده است. با فرض اینکه  $E_1$  و  $E_2$  مقدار انرژی ثبت شده از رویدادهای همزمان توسط آشکارسازهای شماره ۱ و ۲ باشند، یک آرایه ماتریسی به اندازه  $500 \times 500$  از رویدادهای  $E_1$  بر حسب  $E_2$  استخراج شده است. طیف دوپلر با استفاده از این ماتریس برای نمونه نیکل خام در شکل ۳ رسم شده است. ناحیه بیضی شکل (مرکز طیف)، تقریباً عاری از رویدادهای انباشتگی بار، جمع آوری ناقص بار، پراکندگی کامپتون و تابش زمینه است. این ناحیه حاوی اطلاعات ارزشمندی از توزیع تکانه الکترون‌های شرکت کننده در فرآیند نابودی پوزیترون است.



شکل ۲. چیدمان الکترونیک هسته‌ای دیجیتال روش پهن شدگی دوپلر دو بعدی.



شکل ۳. طیف دو بعدی پهن شدگی دوپلر تابش نابودی پوزیترون.

## ۲.۲. روش طول عمر پوزیترون

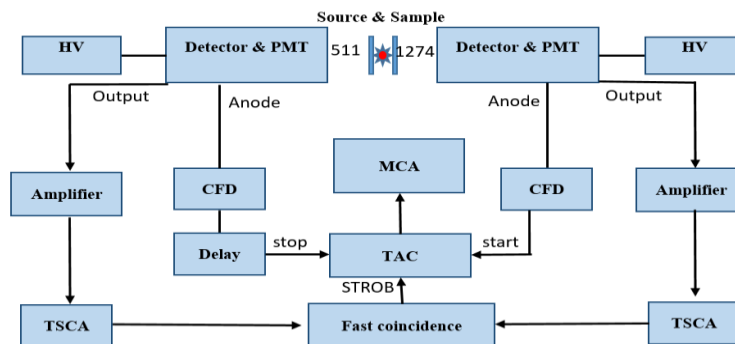
چیدمان تکنیک اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون در شکل ۴ نشان داده شده است. چشمه  $^{22}\text{Na}$  با میزان فعالیت  $1\mu\text{Ci}$ ، بین دو نمونه‌ی یکسان ساندویچ می‌شود. هدف کلی الکترونیک هسته‌ای در این روش، جداسازی تابش‌های گاما  $1274\text{ keV}$  (سیگنال تولد پوزیترون) از  $511\text{ keV}$  (سیگنال مرگ پوزیترون) گسیل شده از چشمه و اندازه‌گیری فاصله زمانی آن‌ها (طول عمر پوزیترون) است. از آنجا که اختلاف زمانی این رویدادها از مرتبه نانو ثانیه است، برای ثبت آن‌ها از آشکارساز پلاستیک استفاده می‌شود. الکترونیک هسته‌ای این سیستم از یک بخش کند برای اندازه‌گیری انرژی و جداسازی تابش‌های مورد نظر، و یک بخش سریع برای استخراج اطلاعات زمانی سیگنال‌ها تشکیل شده است. بخش کند مدار با داینود  $\text{PMT}^1$  و بخش سریع آن با استفاده از خروجی آند تغذیه شده است. در بخش سریع مدار، اطلاعات زمانی سیگنال به روش تبعیضگر کسر ثابت با استفاده از ماژول  $\text{CFD}^2$  استخراج می‌شود. خروجی  $\text{CFD}$  ورودی‌های  $\text{start}$  و  $\text{stop}$  ماژول  $\text{TAC}^3$  را تغذیه می‌کند. بدون در نظر گرفتن قسمت کند مدار،  $\text{TAC}$  اختلاف زمانی همه

<sup>1</sup> Photo Multiplier Tube (PMT)

<sup>2</sup> Constant Fraction Discriminator (CFD)

<sup>3</sup> Time to Amplitude Converter (TAC)

سیگنال‌هایی که به آن وارد می‌شود را اندازه‌گیری و در خود ذخیره می‌کند اما برای انتقال آن به  $MCA^1$  منتظر دریافت پیام از قسمت کند مدار می‌ماند. در بخش کند مدار، سیگنال خروجی از داینود پس از تقویت وارد  $TSCA^2$  می‌شود. در سمت راست مدار، سیگنال‌های مربوط به تابش  $1274 \text{ keV}$  و در سمت چپ مدار سیگنال‌های مربوط به تابش  $511 \text{ keV}$  انتخاب می‌شوند. پس از آن، خروجی سیگنال منطقی  $TSCA$  وارد ماژول همزمانی سریع می‌شود. در صورتی که دو سیگنال وارد شده به این ماژول در پنجره زمانی  $50$  نانوثانیه قرار گیرند، این دو رویداد، همزمان شناخته می‌شوند و ماژول همزمانی به  $TAC$  فرمان می‌دهد که اختلاف زمان اندازه‌گیری شده را بر روی  $MCA$  ذخیره کند. خروجی  $TAC$  سیگنالی را به  $MCA$  انتقال می‌دهد که ارتفاع آن متناسب با فاصله زمانی بین رویدادهای  $start$  و  $stop$  است. در نهایت، طیف طول عمر پوزیترون استخراج و سپس با استفاده از یونیت تاخیر کالیبره می‌شود. اندازه‌گیری قدرت تفکیک زمانی این سیستم نیز با استفاده از تابش های گاما همزمان از چشمه  $^{60}\text{Co}$  انجام می‌شود. طیف طول عمر پوزیترون برای نمونه نیکل پخت شده در شکل ۶ نشان داده شده است. در این طیف، به منظور دستیابی به آمار شمارش قابل قبول ( $10^6$  رویداد بر روی قله طیف)، اندازه‌گیری در مدت زمان ۵ روز انجام شده است.



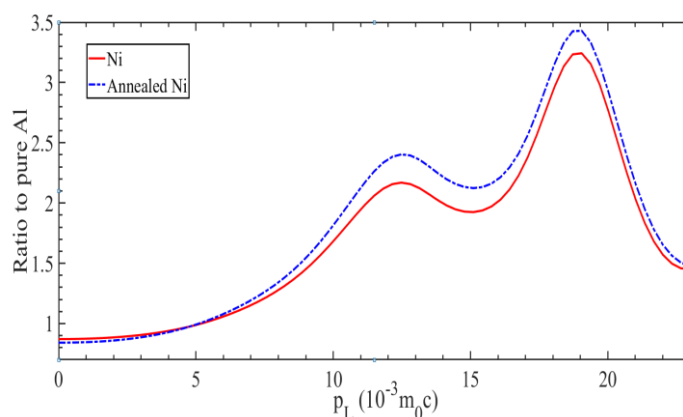
شکل ۴. چیدمان الکترونیک هسته‌ای سیستم اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون.

### ۳. بحث در نتایج

طیف دو بعدی نشان داده شده در شکل ۳ با در نظر گرفتن پهنای انرژی در هر آرایه ( $84 \text{ eV}$ ) به طیف یک بعدی تصویر و به طیف نمونه  $Al$  (به عنوان مرجع) تقسیم شده است. شکل ۵ طیف توزیع تکانه الکترون‌های شرکت‌کننده در نابودی پوزیترون برای نمونه خام و پخت شده را نشان می‌دهد. با توجه به توزیع تکانه الکترون‌ها، فرآیند پخت سبب خروج حفره‌ها از نمونه شده است. خارج شدن حفره‌ها از نمونه سبب می‌شود که احتمال همپوشانی تابع موج پوزیترون با الکترون‌های لایه‌های داخلی افزایش یابد. بنابراین، در تکانه‌های بیشتر سهم نابودی پوزیترون از طریق الکترون‌های لایه‌های داخلی افزایش می‌یابد.

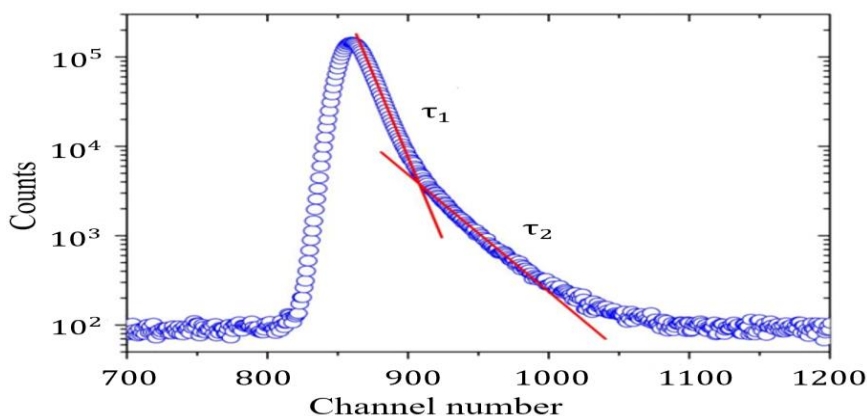
<sup>1</sup> Multi-Channel Analyzer (MCA)

<sup>2</sup> Timing Single Channel Analyzer (TSCA)



شکل ۵. منحنی نسبی توزیع تکانه الکترون‌ها برای دو نمونه نیکل خام و نیکل پخت شده.

به منظور اعتبارسنجی نتایج روش پهن شدگی دوپلر، نتایج این روش با نتایج حاصل از تکنیک طول عمر پوزیترون مقایسه شده است. شکل ۶ طیف طول عمر پوزیترون برای نمونه‌ی پخت شده را نشان می‌دهد. تحلیل طیف طول عمر پوزیترون به منظور استخراج طول عمرها و شدت مربوط به هر طول عمر با استفاده از کد LT-10 انجام شده است [۴]. کد LT-10 پس از انطباق داده‌های تجربی با مدل‌های محاسباتی، چند تابع نمایی با زمان واپاشی  $\tau$  و شدت  $I$  رسم می‌کند. با توجه به اینکه در نمونه‌های فلزی فاقد حفره، احتمال تشکیل اتم اورتوپوزیترونیم به دلیل زیاد بودن چگالی الکترونی بسیار کم است، این طیف تنها به دو مولفه تجزیه شده است. مولفه اول ( $\tau_1$ ) مربوط به نابودی پوزیترون در فضاهای با چگالی الکترونی بیشتر درون شبکه نیکل و مولفه دوم ( $\tau_2$ ) مربوط به نابودی پوزیترون درون فضاهای با چگالی الکترونی کمتر (حفره‌ها) است. نتایج کمی آنالیز روش طول عمر پوزیترون در جدول ۱ ارائه شده است. طول عمر اندازه‌گیری شده برای نمونه نیکل پخت شده در این آزمایش برابر با  $0.109$  ns است. مقدار طول عمر پوزیترون برای این نمونه در مرجع [۵] برابر با  $0.105$  ns گزارش شده است. با توجه به جدول ۱، طول عمر پوزیترون و شدت این طول عمر برای نمونه پخت شده نسبت به نمونه خام کاهش یافته است. این نتیجه به معنای کاهش اندازه و غلظت حفره‌های موجود درون نمونه پخت شده است. بنابراین در این مورد مطالعاتی، نتایج حاصل از دو روش پهن شدگی دوپلر و طول عمر پوزیترون کاهش غلظت و اندازه حفره‌ها در اثر عملیات پخت حرارتی موثر بر روی نمونه‌ها را تایید می‌کنند.



شکل ۶. طیف طول عمر پوزیترون در نمونه نیکل پخت شده.

جدول ۱. نتایج طیف سنجی با استفاده از روش طول عمر پوزیترون.

نمونه	$(\%)I_1$	$(ns)\tau_1$	$(\%)I_2$	$(ns)\tau_2$
نیکل خام	۱۶/۵۱	۰/۴۹۶	۸۳/۴۹	۰/۱۱۴
نیکل پخت شده	۱۱/۴۳	۰/۴۷۵	۸۸/۵۷	۰/۱۰۹

#### ۴. نتیجه‌گیری

در این مقاله قابلیت‌های روش طیفسنجی با استفاده از تابش نابودی پوزیترون به عنوان یک راهکار برای بررسی تحولات حفره‌ها در اثر فرآیند پخت حرارتی مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج اندازه‌گیری روش پهن شدگی دوپلر بر روی نمونه پخت شده نشان داد فرآیند پخت سبب کاهش غلظت حفره‌ها و افزایش احتمال همپوشانی تابع موج پوزیترون با الکترون‌های لایه‌های داخلی و به طبع آن افزایش سهم نابودی پوزیترون با الکترون‌های دارای تکانه‌های بیشتر خواهد شد. نتایج روش اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون نیز نتایج نشان داد که عملیات حرارتی سبب کاهش غلظت حفره‌ها (کاهش شدت پارامتر  $I_2$ ) و کاهش سایز آن‌ها ( $\tau_2$ ) شده است. بنابراین، روش‌های راه اندازی شده حساسیت کافی برای دیده‌بانی تحولات غلظت و اندازه حفره‌های موجود در آلیاژها در طی انجام عملیات حرارتی را در اختیار قرار می‌دهد. در حال حاضر، آزمایشگاه واندوگراف تهران به منظور پشتیبانی از صنایع کشور امکان ارائه خدمت آنالیز به روش طیفسنجی تابش نابودی پوزیترون را برای ۵۰ نمونه در سال را فراهم کرده است.

#### ۶. مراجع

- [1] Lomer, W. M., and A. H. Cottrell. "LXXXI. Annealing of point defects in metals and alloys." *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 46.378 (1955): 711-719.
- [2] K.G. Lynn, J.R. MacDonald, R.A. Boie, L.C. Feldman, J.D. Gabbe, M.F. Robbins et al., Positron-annihilation momentum profiles in aluminum: Core contribution and the Independent-particle model, *Physi. Rev. Lett.* 38 (1977) 241.
- [3] Biganeh, A., et al. "Development of a 2D digital Coincidence Doppler Broadening Spectrometer." *Journal of Instrumentation* 14.02 (2019): P02017.
- [4] Kansy, J., 1996. Microcomputer program for analysis of positron annihilation lifetime spectra. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrom. Detect. Assoc. Equip.* 374 (2), 235-244
- [5] Brusa, R. S., et al. "Doppler-broadening measurements of positron annihilation with high-momentum electrons in pure elements." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 194.4 (2002): 519-531.