

Ing. Matúš Saro

Autoreferát dizertačnej práce

**Optimalizácia PALS meracej techniky pre pokročilú mikroštruktúrnú analýzu ocelí pre
SCWR**

na získanie akademického titulu: philosophiae doctor, PhD.

v doktorandskom študijnom programe: Jadrová energetika

v študijnom odbore: Elektrotechnika

Forma štúdia: denná

Miesto a dátum: Bratislava, 2022

Dizertačná práca bola vypracovaná na:

Slovenská Technická Univerzita v Bratislave
Fakulta elektrotechniky a informatiky
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva

Predkladateľ:

Ing. Matúš Saro
Slovenská Technická Univerzita v Bratislave
Fakulta elektrotechniky a informatiky
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva
Ilkovičova 3, 812 19 Bratislava

Školiteľ:

prof. Ing. Vladimír Slugeň, DrSc.
Slovenská Technická Univerzita v Bratislave
Fakulta elektrotechniky a informatiky
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva
Ilkovičova 3, 812 19 Bratislava

Oponenti:

RNDr. Ondrej Šauša, CSc.
Prof. Mgr. Jakub Čížek, PhD.

Autoreferát bol rozoslaný:

Obhajoba diz. práce sa bude konať dňa:

na:

Slovenská Technická Univerzita v Bratislave
Fakulta elektrotechniky a informatiky
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva
Miestnosť číslo:

Prof. Dr. Ing. Miloš Oravec
Dekan FEI STU

Abstrakt

Zlepšovanie úrovne jadrovej bezpečnosti je logickým krokom súčasného jadrovej-energetického sektoru. Používané materiály podliehajú inšpekcii na základe rôznych techník a jednou z nich je aj technika merania doby života pozitronov (PALS). Cieľom tejto práce je nájsť nové a vylepšiť existujúce prístupy k doterajšiemu vhodnocovaniu dát a výsledkov merania na Ústave jadrového a fyzikálneho inžinierstva (ÚJFI) a taktiež implementovať nové detekčné zariadenia s cieľom zlepšiť doterajšie PALS meranie. PALS môže byť vhodná metóda na inšpekciu nových a súčasných materiálov, vo všetkých plánovaných projektoch generácie IV (GenIV). Dosiachnuté výsledky merania musia byť interpretované vzhľadom na príspevky ^{22}Na a $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ pri dekonvolúcii spektra. Výpočty pre interakciu častíc s hmotným prostredím boli robené vo výpočtovom prostredí Geant4. Vytvorený výpočtový model bol validovaný na základe PALS a koincidenčnom meraní dopplerovského rozšírenia spektra (CDBS). Kvôli neprítomnosti monoenergetického zväzku fotónov na ÚJFI, venovali sme sa aj aplikácii PALS metódy s izotopovým zdrojom pre výskum materiálov na základe železa v oblastiach blízkosti povrchu. Ďalej sme za účelom zlepšovania PALS aparatury na ÚJFI testovali plastové a LYSO scintilátory v kombinácii konvenčnými fotonásobičmi (PMT) a novými kremíkovými fotonásobičmi (SiPM). Táto dizertačná práca obsahuje obsiahlu analýzu vplyvu zdroja na výsledné PALS spektrum a poukazuje výsledky s implementáciou nových detektorov.

Abstract

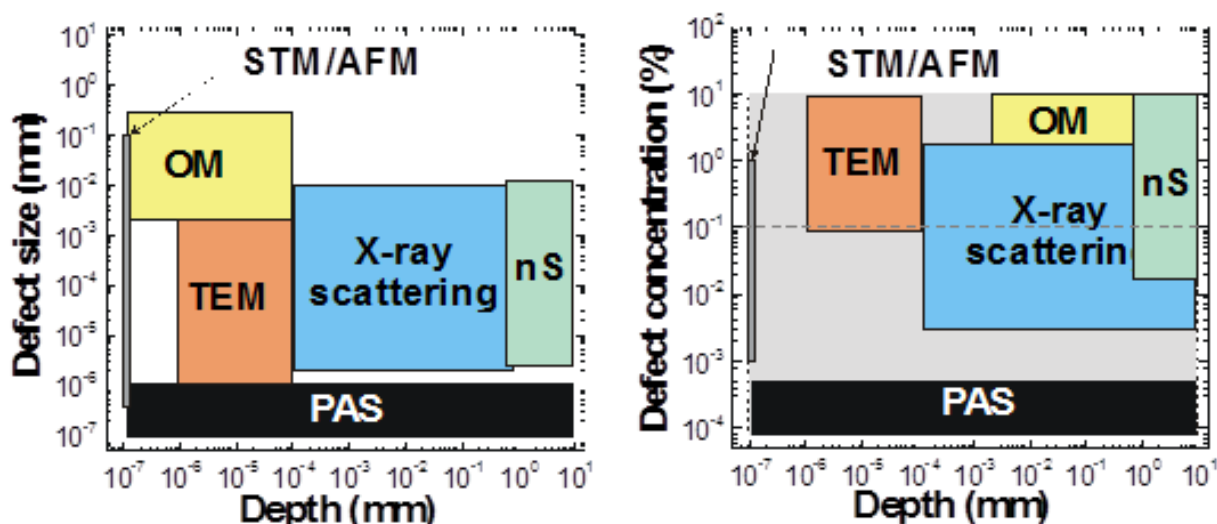
Nuclear safety improvement is a logical step in the current nuclear power industry. Materials are being investigated by many techniques and positron-annihilation life-time spectroscopy (PALS) is one of them. The goal of this thesis is to find new and improve existing approaches to the so far used data evaluation and measurement results interpretation at Institute of Nuclear and Physical Engineering (INPE), as well as implement new measurement devices in order to renew and improve standing PALS measurement at INPE. PALS can be a suitable method for inspection of new and existing materials planned to be used in Generation IV (GenIV) reactor projects. This research, however, requires the comparison of different types of positron sources as well as different geometries of the source-sample-detector systems. Therefore, the results must carefully consider and determine various spectra contributions that do not originate in the microstructure of the studied sample. Positrons' interactions with matter were mostly calculated using the toolkit Geant4. The model was validated with PALS and coincidence doppler-broadening spectroscopy (CDBS) measurements. The unavailability of variable positron beam at INPE led us to inspect the possibility of scanning near-surface areas with conventional sources. Such an approach is particularly interesting in the evaluation of the spectra obtained on ion-implanted Fe-based samples, as demonstrated in the present thesis. Plastic and LYSO scintillators have been tested in PALS measurement at INPE combined with conventional photomultipliers (PMTs) and novel silicon photomultipliers (SiPMs). A comprehensive analysis of source contribution to PALS spectra and the results obtained using a new detector system is provided in this dissertation thesis.

Obsah

1. Úvod.....	5
2. Ciele práce	6
3. Stav problematiky	6
PALS s konvenčnými zdrojmi	6
Zdroje na základe urýchľovačov	7
4. Charakteristika zdrojov	8
5. Použité detektory	9
6. Experimenty a výpočty	10
7. Záver a zhodnotenie	15
8. Referencie	17
9. Zoznam autorových publikácií.....	20

1. Úvod

Energetický mix budúcnosti vyžaduje nízku úroveň produkcie skleníkových plynov, dekarbonizáciu a bezpečnosť energetických zdrojov. S týmto na zreteli, jadrová energetika potrebuje byť konkurencie schopná, efektívna a bezpečná [1]. Podľa medzinárodnej atómovej agentúry (IAEA) a jej databázy informačného systému energetických reaktorov (PRIS) je v súčasnosti v prevádzke 441 jadrových reaktorov s inštalovaným výkonom takmer 400TWe a 53 reaktorov vo výstavbe [2], čo tvorí takmer 11% celkového podielu na výrobe elektrickej energie a má značný vplyv na environmentálne požiadavky súčasnosti a budúcnosti. Jadrová energia musí trhu ponúknuť udržateľnú alternatívu prijateľnú pre životné prostredie, vylepšenú a spoľahlivú. Všetky tieto atribúty ústia do projektov reaktorov zvaných GenIV [1,3], z ktorých sne sa najviac venovali dizajnu reaktorov s nadkritickou vodou (SCWR). V dizajnoch reaktorov GenIV sa očakáva vyššie mechanické aj radiačné namáhanie materiálov a preto je žiaduce skúmať tieto materiály rôznymi metódami pre presné stanovenie vplyvov daného prostredia na ich mikroštruktúru. Používané nedeštruktívne techniky môžeme vidieť na Obr. 1.



Obr. 1 Všeobecný prehľad použiteľnosti niektorých spektroskopických metód. (OM – optická mikroskopia, nS – neutronový rozptyl, STM/AFM – skenovacia tunelová mikroskopia/sondová iónová mikroskopia, PAS – pozitronovo- anihiláčna spektroskopia) [1].

Ako je uvedené na Obr. 1, PAS je jednou z vhodných techník používaných na mikroštruktúrálnu analýzu. Oproti ostatným má však výhodu, že okrem povrchových vrstiev sa môže dostať aj k hlbším miestam v materiáloch. Použitie tejto techniky môže zohrávať významnú úlohu pri kvalifikácii materiálov pre potreby projektov GenIV a v tejto práci hľadáme spôsoby ako presnejšie analyzovať výsledky pri meraní doby života pozitronov, za použitia simulačných nástrojov, súčasnej, ale aj modernizovanej aparatúry a vopred vyvinutého softvéru na ÚJFI.

2. Ciele práce

Hlavným cieľom tejto práce je prispieť k vývoju presnejšieho nástroja na hodnotenie materiálov použitých pri realizácii rozvíjajúcich sa jadrových projektov.

- Výpočet príspevku zdroja na PALS spektrum.
- Analýza hĺbky difúzie pozitronov vo vybraných oceľových materiáloch: Validácia teoretického modelu s meraním série Fe fólií a simuláciami v Geant4. Validácie prebehne pre ^{22}Na a $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroj pozitronov.
- Možnosť inšpekcie oceľových materiálov pomocou konvenčných zdrojov a výpočty pre prípravu iónovej implantácie kombináciou SRIM a Geant4 kódov.
- Overenie vplyvu geometrie na účinnosť detekcie a kvantifikácia tohto efektu pomocou simulácií a meraní.
- Optimalizácia zariadenia pre meranie PALS implementáciou nových detektorov scintilátorov, a štandardov určených pre vývoj a aplikáciu rýchlych meracích techník.

3. Stav problematiky

PAS zahŕňa viacero experimentálnych techník, ktoré majú pôvod v časticovej fyzike, konkrétne jadrovej spektroskopii a preto je jej vývoj úzko spätý s jadrovými experimentálnymi metódami. Najčastejšie používané techniky sú:

- Meranie doby života pozitronov (PALS).
- Dopplerovské rozšírenie anihilačného spektra (DB) and Koincidenčné dopplerovské rozšírenie anihilačného spektra (CDB).
- Uhlová anihilačná korelácia (ACAR). Táto technika sleduje zmeny uhlu dvoch 511keV anihilačných fotónov spôsobenou hybnosťou elektrónu. Tvar korelačnej distribučnej krivky je superpozícia príspevku obrátenej paraboly a gaussovského rozloženia. Prvý príspevok pochádza od anihilácie s valenčnými elektrónmi, ten druhý pochádza z anihilácie s elektrónmi blízko jadra atómu s veľkou väzobnou energiou. Defekty vo vzorke majú za následok zvýšenie počtu voľných elektrónov a teda sploštenie spektra. [4].
- Časovo-hybnostná korelácia (AMOC) zahŕňa dve anihilačné vlastnosti – dobu života pozitronov a dopplerovské rozšírenie spektra [5]. Tieto informácie poskytujú tzv. AMOC reliéf odkiaľ je možné zistiť početnosť anihilácií a rozšírenie spektra vo všetkých pozitronových stavoch.
- Pozitronová anihilácia vyvolaná augerovou elektrónovou spektroskopiou (PAES). V porovnaní s bežnou Augerovou elektrónovou spektroskopiou sú povrchové vrstvy nesledované a sekundárne elektróny sú potlačené [6].

PALS s konvenčnými zdrojmi

Konvenčné zdroje pozitronov sú umelo vytvorené rádioizotopy podliehajúce β^+ rozpadu. Energetické spektrum emitovaných pozitronov z takýchto zdrojov je spojené s maximálnou kinetickou energiou v rozpätí 0,1–1MeV [7,8,9]. Pozitronová hustota v materiáloch v blízkosti zdroja klesá exponenciálne s hĺbkou penetrácie $P(z) \sim \exp(-z/z_0)$, kde stredné penetračné vzdialenosti z_0 sú v rozmedzí 10–100 μm [8,9,10]. Najčastejšie používaným

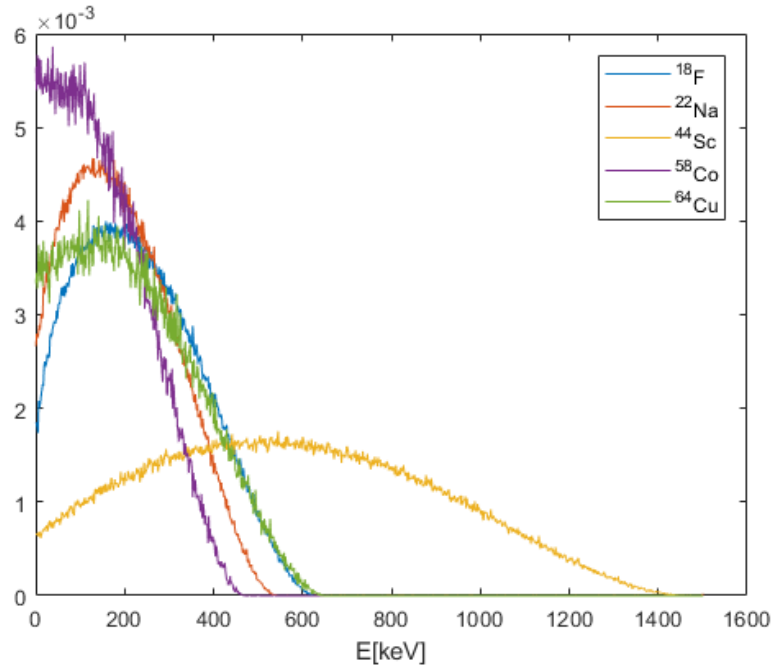
je ^{22}Na izotop, transportovaný vo forme roztoku, pripravovaný v sendvičom zložení v kaptonových fóliách.

Špeciálny prípad použitia konvenčného pozitronového zdroja je tvorba spomaleného zväzku pozitronov. Pozitrony sú vedené magnetickým poľom vopred definovanou energiou E (30eV-36keV) a sú implantované do hĺbky niekoľkých mikrometrov vo vzorke. Následne pozitrony stratia svoju kinetickú energiu v časovom rámci niekoľkých pikosekúnd cez nepružné zrážky (termalizácia) a difundujú do mriežky alebo defektu (10 - 100nm) kým anihilujú s elektrónom [8,11]. Výsledný implantačný profil môže byť popísaný Makhovovým profilom [11], závislým na energii pozitronov a hustote vzorky. Takéto zväzky sú na pracoviskách v HZDR (Nemecko) [12], na Univerzite Aalto (Fínsko) [13] a niekoľkých ďalších.

Zdroje na báze urýchľovačov

Nedávny progres vo vývoji umožnil použitie zväzku s variabilnou energiou pozitronov ako zdroj pre potreby PAS [14]. Energie pozitronového zväzku s pohybujú v rozmedzí 10eV až 100keV. Stredná vzdialenosť doletu je takýchto zväzkov je od 1nm po niekoľko mikrometrov, čo nám ukazuje potenciál týchto zväzkov najmä na povrchové časti vzoriek. Tu je zoznam niektorých takýchto zariadení:

- NEPOMUC pri FRM-II v Garchingu (Mníchov, Nemecko) [15]
 - Merací kanál z reaktora; 5 vyústení s meraním: PALS, CDBS, PAES, Mikroskop, 1 voľné vyústenie na experimenty.
 - Tok spomalených pozitronov $5 \cdot 10^8 \text{ e}^+/\text{s}$.
- Argonne projekt APosS / USA
 - Linac, 15.5 MeV, 0.1 mA, 60 Hz
 - Očakávaných do $3 \cdot 10^9 \text{ e}^+/\text{s}$.
- Helsinki Pulzujúci pozitronový zväzok na HUT / Fínsko [13]
 - PALS.
- EPOS: ELBE Pozitronový zdroj vo výskumnom centre Rossendorf / Nemecko [16]
 - 40 MeV, 1 mA, 26 MHz doba opakovania v pulznom režime,
 - PAS spúšťaná gama fotónmi GIPS [17].



Obr. 2 Normalizované pozitronové spektrá z ^{18}F , ^{22}Na , ^{44}Sc , ^{58}Co , ^{64}Cu izotopov.

4. Charakteristika zdrojov

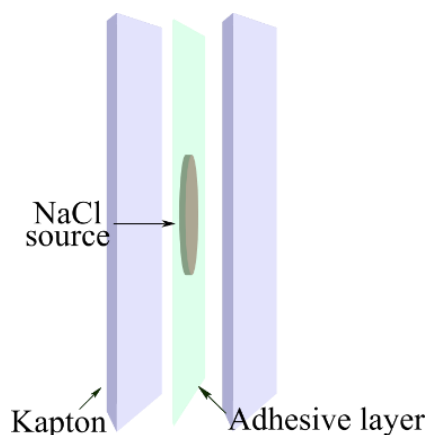
Typický zdroj pre PAS je umelo pripravený β^+ rádioizotop. Energia pozitronov z takéhoto zdroja je v rozmedzí 0 až 2MeV (viď

Obr. 2). Profil spomaľovaných β^+ častíc je exponenciálna funkcia hĺbky penetrácie. Zdroje pre potreby PAS sa vyberajú na základe doby pol-premeny emitovaného spektra pozitronov a zložitosti výroby. Najčastejšie používaným rádioizotopom je ^{22}Na . Tu je pri β^+ premene 1,274MeV gama fotón do 3.7ps od premeny. Maximum pozitronového emisného spektra je pre ^{22}Na 545keV.

^{22}Na zdroj má viacero výhod. Má relatívne dlhú dobu pol-premeny (2,6 rokov). Má výhodnú cenu a vo vodnom roztoku sa s ním dobre manipuluje vo forme $^{22}\text{NaCl}$ alebo $^{22}\text{NaCO}_3$. [18,19].

Okrem kaptonom (Obr. 3) alebo inak zakapsulovaných pozitronových zdrojov sa vyskytujú prvky priamo v študovaných materiáloch, ktoré podliehajú β^+ rozpadu. “Vnútrotný” zdroj pozitronov prví popísali Weisberg a Berko [20], založený na vytvorení ^{22}Na v Mg vzorke ožiarenej protónmi s energiou 22MeV. Neskôr publikoval výsledky Kršjak [21] o PALS používajúcej vnútrotný zdroj vytvorený vo vzorke zo spalačného programu.

V porovnaní s fúznymi reaktormi, ocele ožiarené protónovo-neutrónovým spektrom môžu obsahovať vzácne rádionuklidy. ^{44}Ti je typický produkt spalačných reakcií v oceliach ožiarenými vysoko energetickými protónmi. S dobou pol-premeny 60 rokov je ^{44}Ti veľmi zaujímavý kandidát pre dlhodobé užívanie. ^{44}Sc má dobu pol-premeny 3,67 hodín.



Obr. 3 ^{22}Na zdroj modelovaný v Geant4.

Maximálna energia pozitronov zo $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroja je 1474,3keV. ^{44}Sc pozitronové spektrum môžeme vidieť na Obr. 4. Na našom ústave máme $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ pozitronový zdroj z Eurofer-97 vo forme ožiarenej spalačnej TEM vzorky. Táto vzorka má 3mm priemer a hrúbku 0.25mm. Pre potreby merania sa rovnako ako pri ^{22}Na používa sendvičová geometria.

5. Použité detektory

Scintilačné vlastnosti predurčujú BaF_2 pre merania s dôrazom na rýchlosť detekcie. BaF_2 má dve scintilačné komponenty: Prvú scintilačnú komponentu s výťažkom 1800 fotónov/MeV, priemernou vlnovou dĺžkou 220nm a dĺžkou pulzu 900ps. Druhú pomalú komponentu s dĺžkou pulzu 630ns a oveľa vyšším svetelným výťažkom fotónov/MeV a priemernou vlnovou dĺžkou 220nm.(vid' Tab. 1).

Tab. 1 Vlastnosti vybraných scintilátorov

	BaF₂	LYSO	BC420
Hustota [g/cm ³]	4.88	7.1	1.03
Hygroskopickosť	Mierne	Nie	Nie
Vlnová dĺžka v maxime [nm]	310 / 220(195)	420	391
Tylo pulzu [ns]	630 (pomalá) / 0.6-0.8 (rýchla)	4	1.5
Svetelný výťažok [fotónov/keV]	10 (pomalá) / 1.8 (rýchla)	30	11.5

Scintilátor LYSO je anorganická chemická zlúčenina s vysokým scintilačným výťažkom, hustotou a dobrým energetickým rozlíšením (vid' Tab. 1). LYSO obsahuje lutécium

s dvomi izotopmi: stabilným ^{175}Lu (97,41% prírodný obsah) a druhým β -rádioaktívnym ^{176}Lu s dobou pol-premeny $3,78 \times 10^{10}$ rokov (prírodný obsah 2,59%).

BC420 plastové scintilátory sú vyvinuté pre rýchle časové merania. V porovnaní s BaF_2 and LYSO majú nižšiu hustotu a tak nižšiu účinnosť detekcie. Pre 511keV fotóny pochádzajúce z anihilácie platí, že jedinou interakciou s nimi je komptonov rozptyl.

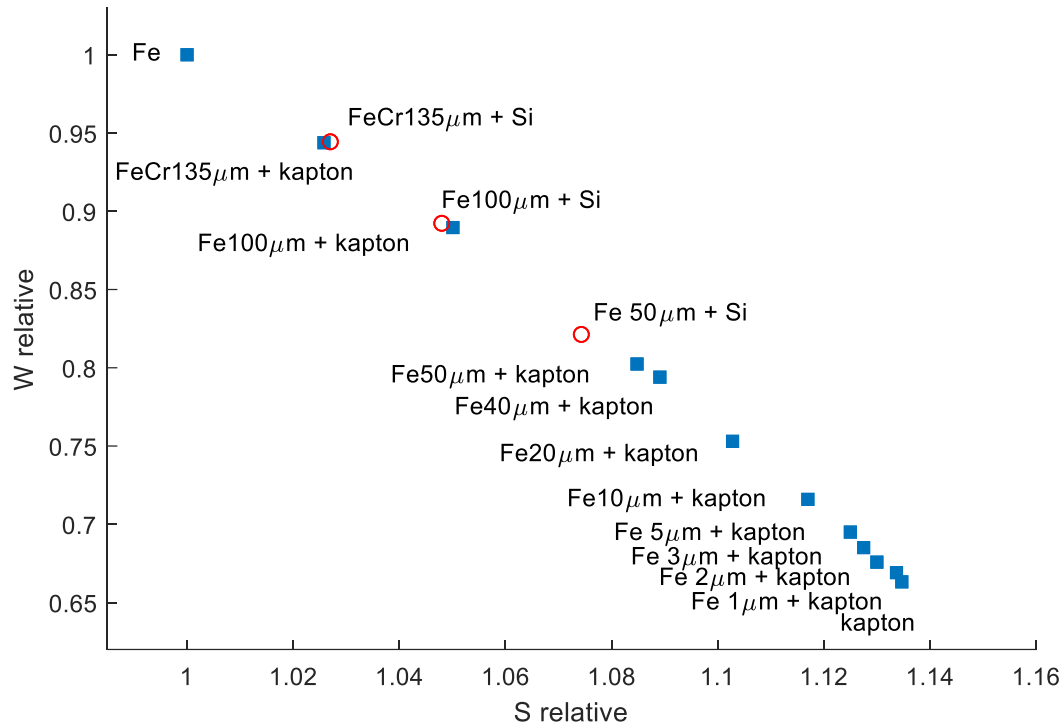
Konvenčné fotonásobiče (PMT) pozostávajú z fotokatódy a série dynód slúžiacich pre zosilnenie signálu a anódy. Po zásahu fotokatódy optickým fotónom sú emitované fotoelektróny. Tieto fotoelektróny sú unášané elektrickým poľom a vyražajú ďalšie elektróny v dynódovej kaskáde, ktoré po zbere na anóde a následnom vybití vytvárajú pulz.

Kremíkové fotonásobiče (SiPM) sú extrémne citlivé detektory svetla s vysokou účinnosťou a malou časovou zmenou pulzu. Pozostáva z p/n diód a priamo deteguje svetlo od ultrafialových až po infračervených vlnových dĺžok. Boli vyvinuté hlavne do podmienok, kde sa očakáva nízka úroveň svetla/radiácie a kladie sa dôraz na presnosť merania. Konštrukčne je SiPM pole mikrociel alebo pixelov, z ktorých každý je fotodióda v Geiger-Müllerovom režime v napätí a úrovňou prierazného napätia s integrovaným rezistorom a pasívnym zhasaním.

6. Experimenty a výpočty

Po vytvorení výpočtového modelu v prostredí Geant4 a prvých čiastkových výsledkoch sme uskutočnili aj sériu meraní. Ktorá viedla najmä k validácii modelu a taktiež k bližšej charakterizácii príspevkov zdroja pre PALS spektrá. Hĺbkové profily pozitronov z ^{22}Na boli pozorované viacerými autormi v minulosti [22,23,24]. Za účelom zistenia absorpčného profilu v železe. Vykonali sme sériu PALS a CDBS meraní s železnými fóliami s hrúbkou od 1 do 135 μm . Fólie mali kaptonové doštičky ako vonkajšiu materiálovú vrstvu. Fólie do 100 μm sú z čistého železa, vzorka s 135 μm je FeCr.

Namerané CDBS spektrá sme analyzovali naším programom [25] Obr. 4 vidíme S-W graf zo série meraní. Transmisia pozitronov naprieč fóliami je viditeľná ako posun S-W súradníc bližšie k obalovému materiálu. Namerané dáta ležia na pomyselnnej priamke, ktorá spája čisté železo a kapton.

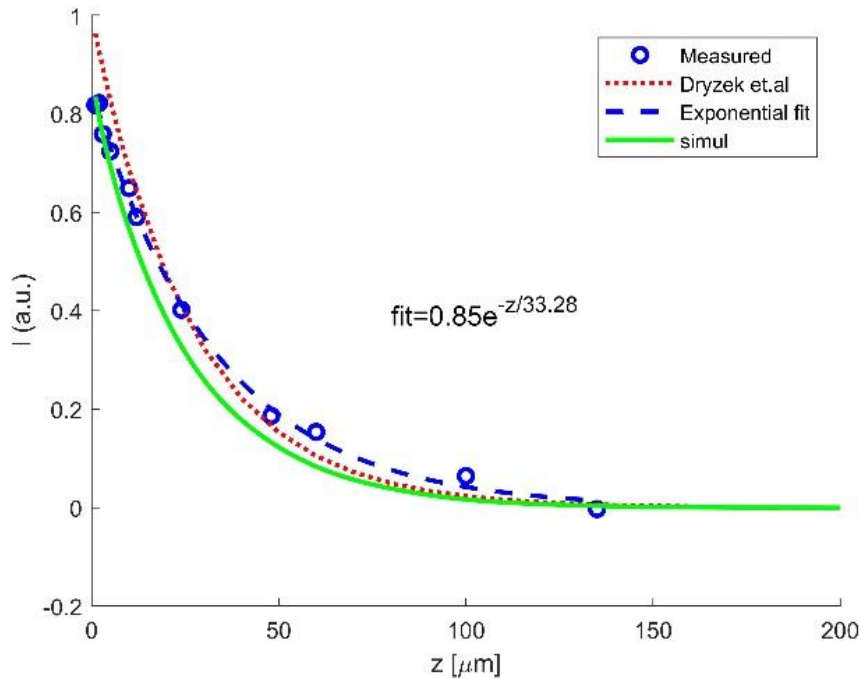


Obr. 4 S-W graf CDBS meraní železných fólií s kaptonom alebo kremíkom. S-W bod monokryštalického kremíku nezobrazený (1.231;0.425).

Na základe dát z Obr. 4 S-W a z PALS meraní sme mohli stanoviť hĺbkový profil pozitronov. Spolu s výpočtovými dátami a meraniami a odhadmi vykonanými na iných pracoviskách [22,23,24] sme ich vyniesli do grafu na Obr. 5. Tu vidíme výraznú zhodu medzi meraním a simuláciou, čím sme docielili validáciu výpočtového modelu. Taktiež bol na základe merania stanovený empirický vzťah na výpočet doletu pozitronov v železe pre stanovený ^{22}Na zdroj.

Ďalej sme sa venovali zisteniu miesta anihilácie jednotlivých pozitronov. Pre oba typy zdrojov na INPE sme dostali anihilačný profil pozitronov, ktorý nám slúži na odhad, ktoré vrstvy materiálu prispievajú k PALS spektru najviac. Došli sme k zisteniam, že konvenčný v kaptone uložený ^{22}Na zdroj poskytuje najviac informácií z objemu medzi hĺbkou $7\mu\text{m}$ až $50\mu\text{m}$, keď je vzorka na báze železa. Toto zodpovedá héliovej implantácii s energiami od 3.5 po 14MeV.

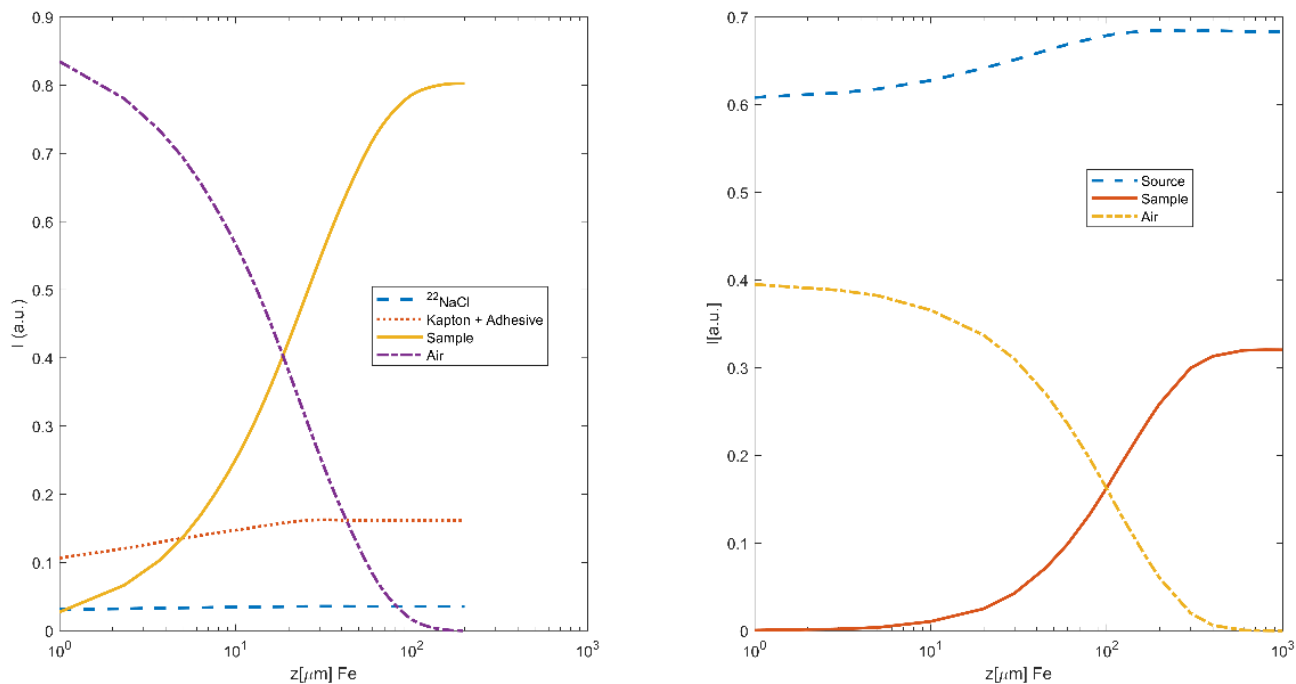
Pre vrstvy blízko povrchu medzi $1\mu\text{m}$ až $3\mu\text{m}$ platí, že pomer anihilovaných pozitronov v tomto regióne je malý a príspevok k finálnemu PALS spektru je pod úrovňou ostatných okolitých materiálov pri meraní (kapton, NaCl, vzduch, držiaky, atď.).



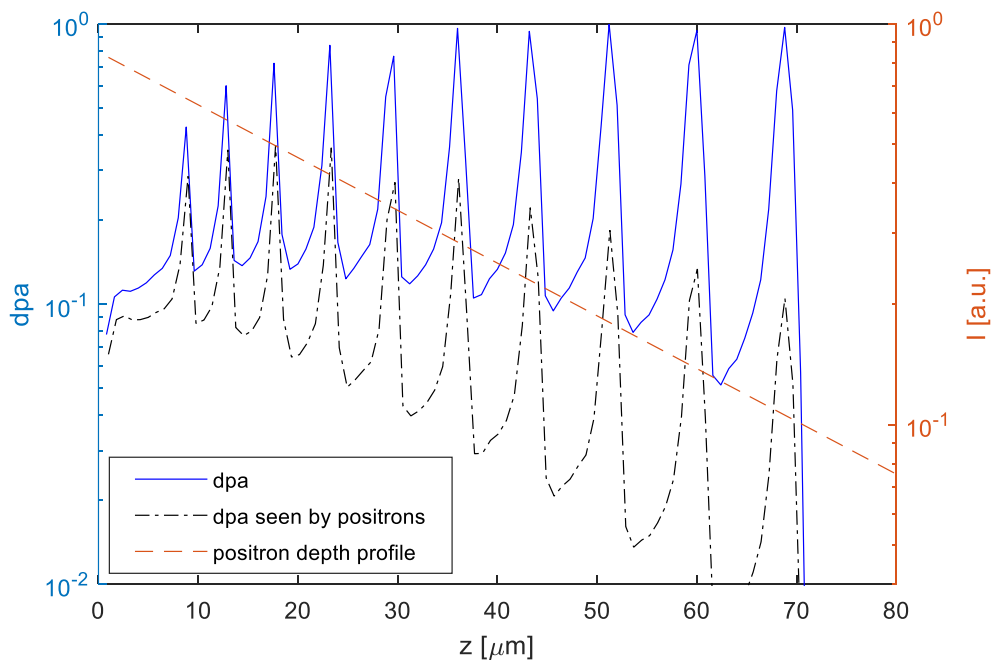
Obr. 5 Profil hĺbky pozitronov z kaptónom uzavretého ^{22}Na zdroja v železe

Druhý výpočet prebehol pre $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroj. Zdroj geometriou odpovedá TEM disku. Používanom v rôznych materiálových experimentoch. Priemer disku je 3mm a hrúbka 250 μm . Materiál bol definovaný ako zliatina Fe9Cr1W z dôvodu dostupnosti niekoľkých vzoriek z feritickej/martenzitickej ocele, ožarovaných v spalačnom zdroji na ÚJFI a neskoršom používaní pri PAS meraniach. Nemoderovaný TEM disk $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroja je užitočný viac pre hĺbkové charakteristiky vzorky než na povrchovú analýzu v prípade, že je použitá sendvičová geometria.

Použitie TEM diskov ako pozitronových zdrojov je možné v škálach načrtnutých na Obr. 6. Pred meraním je však požadovaná detailná analýza zdroja, keďže anihilácia v ňom má dominantný podiel.



Obr. 6 Pomer anihilovaných pozitronov vo vzorke zo železa, so zakapsulovaným sodíkovým zdrojom (vľavo) and s TEM diskovým $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdrojom (vpravo).

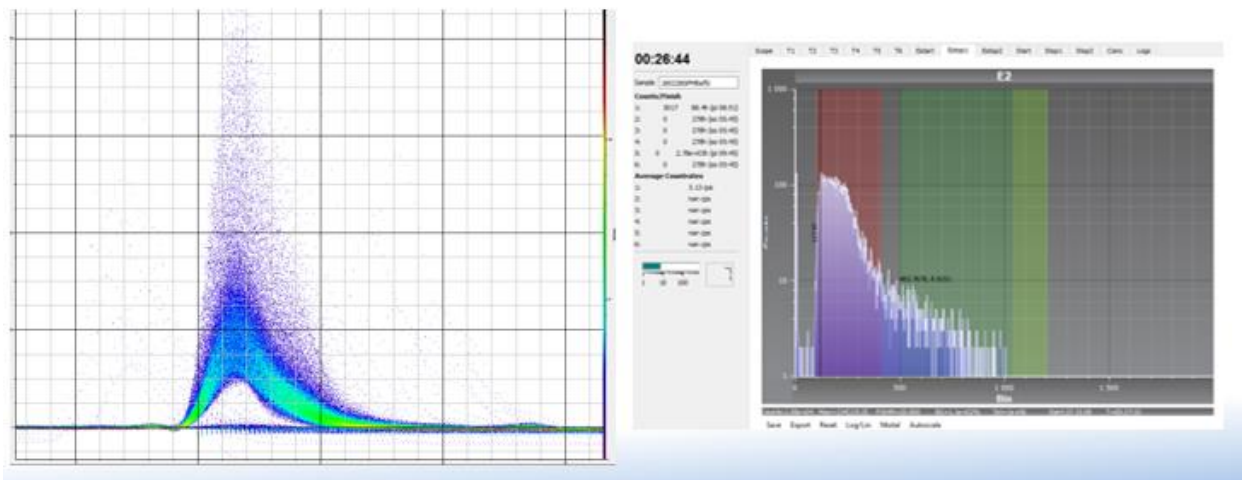


Obr. 7 Dpa profil v železe vypočítaný SRIM and pozitronový hĺbkový profil.

Iónovú implantáciu ako zdroj porúch, ktoré budú následne merané na našich aparatúrach, môžeme plánovať len s ohľadom na nami namerané anihilačné profily alebo s

ohľadom na výsledky výpočtov. Za účelom výpočtu parametrov určujúcich poruchy (dpa, tvorba Frenkelových párov, koncentrácia iónov, atď.) musíme stanoviť váhový priemer parametra s ohľadom na pozitronový anihilačný profil. Použitím SRIM kódu [26] sme simulovali dpa profily v železe po hélionej implantácii rôznych energií v rozmedzí 4,5 až 18MeV. Ako vidíme na Obr. 7, implantáciami narušený región siaha až po 70 μ m. V priemere bolo namodelovaných 20,43dpa spôsobených hélionej implantáciou. S ohľadom na vyššie stanovené skutočnosti, hodnota opisujúca poškodenie “videné” pozitronmi zo ^{22}Na zdroja je 6.42dpa, čo je len 31,4% celkovo implantovaných porúch. V zliatinách na báze železa anihiluje viac ako 50% pozitronov vo vzorke v regióne do 20 μ m. Takáto hĺbka zodpovedá implantácii 8MeV hélionových iónov. Tým pádom je preukázané, že ^{22}Na zdroj je vhodný aj na skúmanie porúch vnesených multienergetickou iónovou implantáciou.

Charakterizácia PALS systému je najmä na základe časovej rozlišovacej schopnosti a početnosti [5], kvôli ich dopadu na experimentálne dáta. V súčasnosti sa na detekciu používa prevažne BaF₂ s konvenčným fotonásobičom v dvoj a troj-detektorovom vyhotovení. My sme testovali parameter sústavy, keď jeden stop detektor bol nahradený kombináciou scintilátorov LYSO a BC420 so Sensl SiPM alebo Ketek SIPM. Vo všeobecnosti môžeme tvrdiť, že z hľadiska početnosti pulzov je výhodnejšie používanie LYSO scintilátora. Tento fakt má najväčší vplyv na čas merania. Detektor od firmy Ketek v kombinácii so scintilátorom LYSO dosahuje početností 2,25cps a s BC420 1,26cps, čo je 44% pokles. V kombinácii s SiPM od firmy Sensl bol rozdiel ešte väčší, keď so scintilátorom LYSO sme dosiahli 53,5cps a s BC420 3,13cps. Napriek tomu sme zvolili na ďalšiu implementáciu plastový scintilátor BC420, pretože rozlišovacia schopnosť u neho bola v kombinácii s oboma detektormi vždy o viac ako 50% lepšia v porovnaní s LYSO-m. Pulzy a energetické spektrum s parametrami merania môžeme vidieť na Obr. 8.



Obr. 8 Sensl SIPM kombinované s plastovým scintilátorom. Na ľavo história pulzov x-ís 20ns/div a y-os 100mV/div.

7. Závěry a zhodnotenie

Hlavným cieľom tejto práce bolo poskytnúť precíznejší nástroj na inšpekciu materiálov v súčasných, ale aj budúcich jadrových reaktorov s vyššími teplotnými nárokmi (SCWR). Snažili sme sa to docieľiť analýzou prebiehajúcich javov a testovaním nových prístupov v technológii PAS. Vzhľadom na stanovené ciele sme dosiahli nasledovné výstupy:

1.) Výpočet príspevku zdroja na PALS spektrum.

Od začiatku sme pracovali na postupnom simulačnom modeli, ktorý by poskytoval užitočné dáta o prebiehajúcich javoch v našej meracej aparatúre. Každá ďalšia kvantifikácia deformácie meraného spektra nás približuje k širšiemu poznaniu meraných dát a tým presnejšiemu vstupu pre vyhodnocovací SW, pomocou ktorého dostávame informáciu o zmene vlastností vzorky. Najprv sme skúmali moderáciu pozitronov v konštrukčných materiáloch zdroja. Tieto výsledky nám dali predstavu o tom, aký hĺbkový profil pozitronov môžeme očakávať. Ďalší krok vo vývoji modelu bol, aby sa viac podobal skutočnému meraniu. Vypočítali sme pomer anihilovaných pozitronov na základe miesta anihilácie prevažne pre materiály s vysokým obsahom železa. Model je variabilný a použiteľný pre oba typy pozitronov na ÚJFI. Hodnoty zobrazené na Obr. 5 and Obr. 6 sa v súčasnosti používajú ako vstup na presnejšie vyhodnotenie dát.

2.) Analýza hĺbky difúzie pozitronov vo vybraných ocelových materiáloch: Validácia teoretického modelu s meraním série Fe fólií a simuláciami v Geant4. Validácie prebehne pre ^{22}Na a $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroj pozitronov.

Tento krok bol jeden z kľúčových pre validáciu nášho modelu. Výsledky simulácií súhlasia s teóriou aj meraním. Merania PALS a CDBS boli použité na určenie anihilačného profilu vo vzorke z ^{22}Na zdroja. Získané parametre S-W z CDBS spektra ukázali čistý obraz o brzdom profile pozitronov. Naše výsledky súhlasili s výpočtami a zaviedli sme nový empirický vzťah pre určenie doletu pozitronov vo vzorke. Dolet pozitronov vo vzorke bol určený aj pre $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ zdroj. Spektrá získané za pomoci tohto zdroja sú však náročnejšie na analýzu, kvôli vysokej hustote defektov v samotnom zdroji.

3.) Možnosť inšpekcie ocelových materiálov pomocou konvenčných zdrojov a výpočty pre prípravu iónovej implantácie kombináciou SRIM a Geant4 kódov.

Za účelom simulácie náročného prostredia, iónová implantácia môže byť vybratá ako vhodný nástroj pre emuláciu defektov materiálov, ktoré sa môžu vyskytnúť v energetickom alebo vedeckom sektore. V tejto časti práce sme sa zamerali na posúdenie možnosti využitia pozitronových techník na ÚJFI za účelom inšpekcie takýchto vzoriek. Implantácia iónov môže byť pripravená tak, aby aj s použitím konvenčného zdroja mohlo mať PAS meranie relevantné výsledky. Dokázali sme, že héliová implantácia dokáže dosiahnuť takú dpa úroveň, akú je možné pozorovať pri neutrónových tokoch a takéto zmeny materiálu sme schopní pozorovať i našimi technikami na ÚJFI.

4.) Overenie vplyvu geometrie na účinnosť detekcie a kvantifikácia tohto efektu pomocou simulácií a meraní.

Rozlišovacia schopnosť aparatury sa dá navýšiť vyššou mierou koincidencie, teda viacerými detektormi a vyššia početnosť udalostí intenzívnejším zdrojom. My sme sa snažili zlepšiť presnosť našich systémov a preto sme sa pri PALS zamerali na troj-detektorovú geometriu. Najlepšiu účinnosť detekcie sme napočítali pre „štart detektor“ krytý oloveným oplechovaním. Aj napriek miernejšiemu zlepšeniu výsledkov sme sa vrátili k pôvodnému rozloženiu detektorov, kvôli výhodnejšiemu času merania.

5.) Optimalizácia zariadenia pre meranie PALS implementáciou nových detektorov scintilátorov, a štandardov určených pre vývoj a aplikáciu rýchlych meracích techník.

V tejto práci sme sa zamerali na využitie LYSO a BC420 scintilátorov pre potreby PAS na základe ich vlastností. Dosiahli sme zlepšenie časovej rozlišovacej schopnosti pri implementácii týchto detektorov s konvenčnými fotonásobičmi a SiPM. Plastový BC420, ktorý má rýchlejšiu svetelnú emisiu s dĺžkou tyla pulzu niekoľkých nanosekúnd sa ukázal byť vhodnejší. Nedokázali sme však implementovať nový FW a algoritmy na digitalizovaný detektorový reťazec, ktorý by mohol zlepšiť vlastnosti PAS ešte viac. Súčasne sa pohybujeme na časovej rozlišovacej schopnosti okolo 120ps.

Cieľom tejto práce bolo zvýšiť mieru bezpečnosti jadrovej energetiky prostredníctvom optimalizácie PALS aparatury na ÚJFI. Vyvinuli sme simulačný model slúžiaci k precíznejšej analýze dát z meraní, ktorý vedie k presnejším výsledkom. Model je všestranný a aplikovaný bol vo viacerých bodoch tejto práce a taktiež v ďalších meraniach na ÚJFI. Druhou časťou práce bola modernizácia detektorového reťazca za účelom vylepšenia našej meracej PAS aparatury.

8. Referencie

- [1] Yvon, P. 2016. *Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors*. Woodhead Publishing 2017. 684 p. ISBN 9780081009123.
- [2] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 2021. *Nuclear Power Reactors in the World*. 2nd issue. Vienna : IAEA, 2021. ISBN 978-92-0-124421-5.
- [3] Guzonas, D., Novotny, J. Supercritical water-cooled reactor materials - Summary of research and open issues. In *Progress in Nuclear Energy*. Vol. 77, (2014). pp. 361–372. ISSN 0149-1970.
- [4] Grone, R. et al. *A positron ID-ACAR spectrometer for the study of ⁶⁰Co containing materials*. In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 129, Iss. 2 (1997). pp. 284-288. ISSN 0168-583X.
- [5] Siegle, A et al. *Two-dimensional analysis of positron age-momentum correlation (AMOC) data*. In *Applied Surface Science*. Vol. 116, (1997). pp 140-144. ISSN 0169-4332.
- [6] Mayer J et al. *High resolution positron annihilation induced Auger Electron Spectroscopy of the CuM_{2,3}VV-transition and of Cu sub-monolayers on Pd and Fe*. In *Surface Science*. Vol. 604, Iss. 19-20 (2010). pp 1772–1777. ISSN 0039-6028.
- [7] Krause-Rehberg, R., Leipner, H.S. *Positron Annihilation in Semiconductors. Defect Studies*. Berlin: Springer, 1999. p. 378. ISSN 0171-1783.
- [8] Bečvář, F. et al. *A high-resolution BaF₂ positron-lifetime spectrometer and experience with its long-term exploitation*. In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* Vol. 443, Iss. 2-3 (2000). pp 557-577. ISSN 0168-9002.
- [9] Dubov, L.Y.u. et. al. *Optimization of BaF₂ positron-lifetime spectrometer geometry based on the Geant4 simulations*, In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 334, (2014). Pp 81-87. ISSN 0168-583X. 35
- [10] *A. Positrons Solid-State Physics : Proceedings of International School of Physics “Enrico Fermi”, Course LXXXIII, Varenna 1981*. Edited by Brandt, W., Dupasquier, A. North-Holland: Amsterdam, 1983. p. 805. ISSN 1879-8195

- [11] Makhov, A.F. *The Penetration of Electrons into Solids. The Intensity of an Electron Beam, Transverse Electrons, Tracks*. In *Fizika Tverdogo Tela*. Vol. 2, Iss. 9 (1961). ISSN 0015-3249.
- [12] Anwand, W. *Design and Construction of a Slow Positron Beam for Solid and Surface Investigations*. In *Defect and Diffusion Forum*. Vol. 331, (2012). pp 15-40. ISSN 1662-9507.
- [13] Laakso, A. *Construction of a pulsing system for low-energy positrons*. Aalto University. Finland: Laboratory of Physics, Helsinki University of Technology (2005) p. 45. Dissertation Thesis. ISSN 1455-1802.
- [14] *Positron Beams and Their Applications*. 2000. Edited by Coleman, P. World Scientific: Singapore (2000). p 340. ISBN 978-981-4496-38-4.
- [15] Hugenschmidt, C. et al. *The upgrade of the neutron induced positron source NEPOMUC*. In *Journal of Physics Conference*. Vol. 443, Iss. 1 (2013). id 2079. ISSN 1742-6596.
- [16] Krause-Rehberg, R. et al. *EPOS—An intense positron beam project at the ELBE radiation source in Rossendorf*. In *Applied Surface Science*. Vol. 252, Iss. 9 (2006). pp. 3106-3110. ISSN: 0169-4332.
- [17] Butterling, M. et al. *Gamma-induced Positron Spectroscopy (GiPS) at a superconducting electron linear accelerator*. In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 269, Iss. 22 (2011). pp 2623–2629. ISSN 0168-583X.
- [18] Slugeň, V. *What kind of information we can obtain from Positron Annihilation Spectroscopy?* Petten : JRC, 2006. p.98. ISSN 1018-5593.
- [19] Puska, M.J., Nieminen, R. M. *Theory of positrons in solids and on solid surfaces*. In *Reviews of Modern Physics*. Vol. 66, Iss. 3 (1994). pp 841-896. ISSN 1539-0756.
- [20] Weisberg, H., Berko, S. *Positron Lifetimes in Metals*. In *Physical Review*. Vol. 154, (1967). p. 154. ISSN 1536-6065.
- [21] Kršjak, V., Dai, Y. *Microstructural probing of ferritic/martensitic steels using internal transmutation-based positron source*. In *Journal of Nuclear Materials* Vol. 465, (2015). Pp 311-315. ISSN 0022-3115.
- [22] Dubov, L.Y. *Evaluation of Positron Implantation Profiles in Various Materials for ^{22}Na Source*. In *Acta Physica Polonica A*. Vol.132, (2017). pp 1482–1485. ISSN 1898-794X.

- [23] Dryzek, J., Singleton, D. *Implantation profile and linear absorption coefficients for positrons injected in solids from radioactive sources ^{22}Na and $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$* . In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 252, Iss. 2 (2006). pp 197–204. ISSN 0168-583X.60
- [24] Petriska, M. Sábelova, V., Slugeň, V. *CDBTools - Evaluate Positron Annihilation Coincidence Doppler Broadening Spectrum*. In *Defect and Diffusion Forum*. Vol. 373, (2017). pp 71–74. ISSN 1662-9507.
- [25] Ziegler, J.F. *SRIM-2003*. In *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 219–220, (2004). pp 1027-1036. ISSN 0168-583X.

9. Zoznam autorových publikácií

- [1] Kršjak, V., Degmová, J., Lauko, R., Snopek, J., **Saro, M.**, Sedláčková, K., Sojak, S., Petriska, M., Farkas, G., Dai, Y., Slugeň, V. Positron annihilation spectroscopy studies of irradiated Fe-based alloys using different radioisotope sources. In *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B - Beam Interactions with Materials and Atoms*. Vol. 434, (2018), s. 73-80. ISSN 0168-583X.
- [2] Kršjak, V., Degmová, J., Noga, P., Petriska, M., Sojak, S., **Saro, M.**, Neuhold, I., Slugeň, V. Application of positron annihilation spectroscopy in accelerator-based irradiation experiment. In *Materials* Vol. 14, iss. 21 (2021), Art. no. 6238 [30] s. ISSN 1996-1944.
- [3] **Saro, M.**, Petriska, M., Slugeň, V. Optimization of positron-lifetime measurement geometry based on Geant4 simulation. In *Acta Physica Polonica A*. Vol. 132, No. 5 (2017), s. 1634-1636. ISSN 0587-4246.
- [4] **Saro, M.**, Kršjak, V., Petriska, M., Slugeň, V. On the characterization of small-scale samples using radioisotope positron sources. In *Acta Physica Polonica A*. Vol. 137, No. 2 (2020), s. 193-195. ISSN 0587-4246.
- [5] Slugeň, V., Pecko, S., Sojak, S., Egger, W., **Saro, M.**, Petriska, M. Positron annihilation studies of reactor pressure vessel steels treated by hydrogen ion implantation. In *Acta Physica Polonica A*. Vol. 137, No. 2 (2020), s. 238-241. ISSN 0587-4246.
- [6] **Saro, M.**, Hincá, R., Oravkin, M., Slugeň, V.. Analysis of signal drifts at co self-powered neutron detectors. In *Bezpečnosť jaderné energie*. Roč. 25 (63), č. 5/6 (2017), s. 161-167. ISSN 1210-7085.
- [7] **Saro, M.**, Kršjak, V., Lauko, R., Slugeň, V. Application of Na-22 positron source to the investigation of Ion-implanted iron samples. In *The 18th International Conference on Positron Annihilation (ICPA-18): Positron Annihilation Spectroscopy-Fundamentals, Techniques ad Applications*. Melville: AIP Publishing, 2019, Art.no. 050016 [5] s. ISBN 978-0-7354-1929-2.
- [8] Slugeň, V., Petriska, M., Sojak, S., **Saro, M.**, Šimeg-Veterníková, J., Sabelová, V., Pecko, Degmová, J., S., Kršjak, V. Radiation damage in nuclear structural materials - Past, present and future challenges. In *The 18th International Conference on Positron Annihilation (ICPA-18): Positron Annihilation Spectroscopy-*

- Fundamentals, Techniques ad Applications*. Melville: AIP Publishing, 2019, Art. no. 050011 [6] s. ISBN 978-0-7354-1929-2.
- [9] Iliť, T., **Saro, M.**, Bokor, J., Valko, P., Skuratov, V. A., Issatov, A., Petriska, M. Development of ion counting system for transient electrical measurements of ion induced effects. In *APCOM 2017: Proceedings of 23rd international conference on applied physics of condensed matter. Štrbské Pleso, Slovak Republic, June 12-14, 2017*. 1. vyd. Bratislava: Vydavateľstvo Spektrum STU, 2017, S. 34-38. ISBN 978-80-227-4699-1.
- [10] **Saro, M.**, Petriska, M., Slugeň, V. Simulation model for positron annihilation lifetime spectroscopy geometry optimization. In *ELITECH'17 [elektronický zdroj]: 19th Conference of doctoral students. Bratislava, Slovakia. May 24, 2017*. 1. ed. Bratislava: Spektrum STU, 2017, CD-ROM, [2] p. ISBN 978-80-227-4686-1.
- [11] **Saro, M.**, Petriska, M., Slugeň, V. Geant4 model validation for fast scintillation detectors. In *APCOM 2017: Proceedings of 23rd international conference on applied physics of condensed matter. Štrbské Pleso, Slovak Republic, June 12-14, 2017*. 1. vyd. Bratislava: Vydavateľstvo Spektrum STU, 2017, S. 123-124. ISBN 978-80-227-4699-1.
- [12] **Saro, M.**, Petriska, M., Slugeň, V. Performance of LYSO and BC420 coupled with Ketek and Sensl SiPM for needs of PALS. In *APCOM 2018 : 24th International conference on applied physics of condensed matter. Štrbské Pleso, Slovak Republic. June 20-22, 2018*. 1. ed. St. Louis : AIP Publishing, 2018, Art. no. 020040 [4] s. ISSN 0094-243X.
- [13] **Saro, M.**, Kršjak, V., Petriska, M., Slugeň, V. Sodium-22 source contribution determination in positron annihilation measurements using GEANT4. In *APCOM 2019: 25th International conference on applied physics of condensed matter. Štrbské Pleso, Slovak Republic. June 19-21, 2019*. 1. ed. Melville: AIP Publishing, 2019, Art. no. 020039 [4] s. ISBN 978-0-7354-1873-8. V databáze: SCOPUS: 2-s2.0-85070547639; WOS: 000535987500039.
- [14] Oravkin, M., Krištofová, K., Farkaš, G., **Saro, M.**, Slugeň, V. Source term determination for VVER-440/V230 reactor decommissioning by MCNP5. In *Proceedings of the twenty-sixth symposium of AER: part II. Helsinki, Finland. October 10-14, 2016*. Budapest: AER, 2016, S. 625-632. ISBN 978-963-7351-27-3.