

Позитронная Аннигиляционная Спектроскопия

С.В. Степанов

Институт теоретической и экспериментальной физики

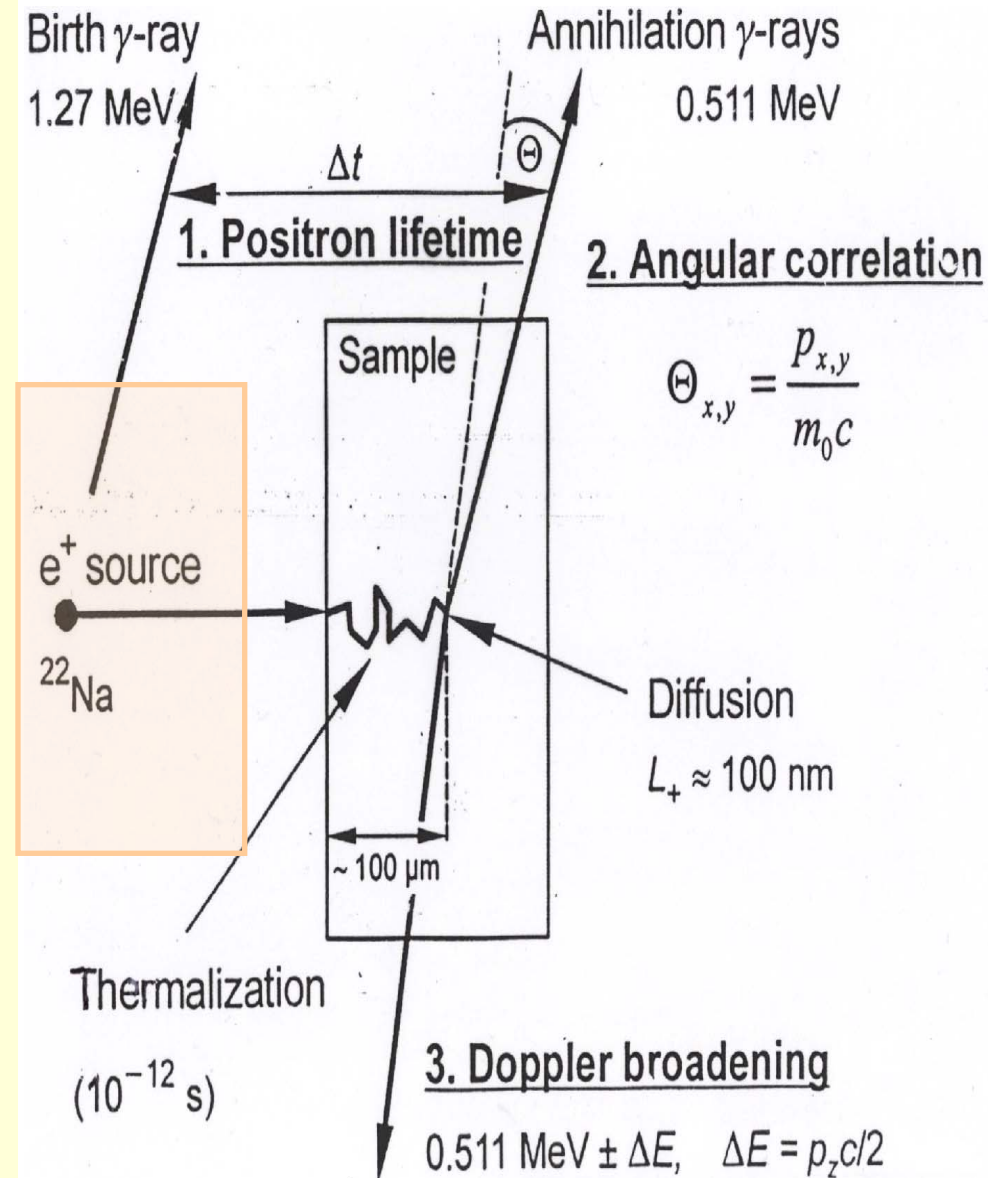
- Что такое ПАС?
- Источники e^+
- Законы сохранения энергии и импульса
- Типичные эксперименты (PALS, ACAR, DBARS, PAES)
- Позитронная эмиссионная томография (ПЭТ)
- Атом позитрония (Ps), процесс его pick-off аннигиляции
- Структура трека быстрого e^+ в диэлектрических средах
- Образование Ps . Ps пузырьки в жидкостях
- Определение канцерогенности хим. соединений

Позитронная Аннигиляционная Спектроскопия

Суть ПАС состоит в инъекции e^+ в образец и последующей регистрации параметров аннигиляционных γ -квантов.

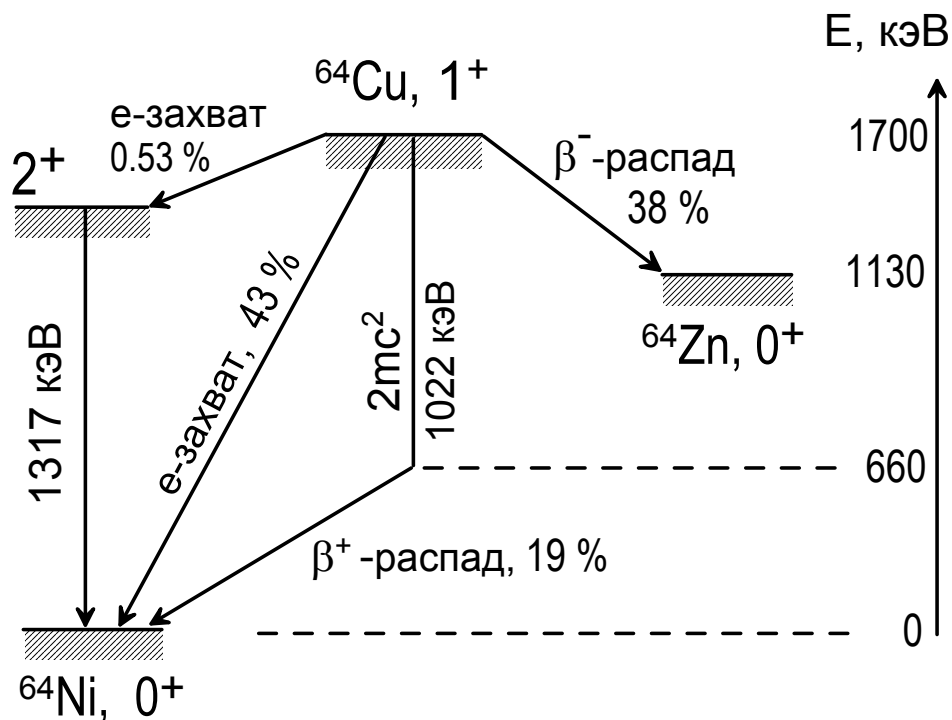
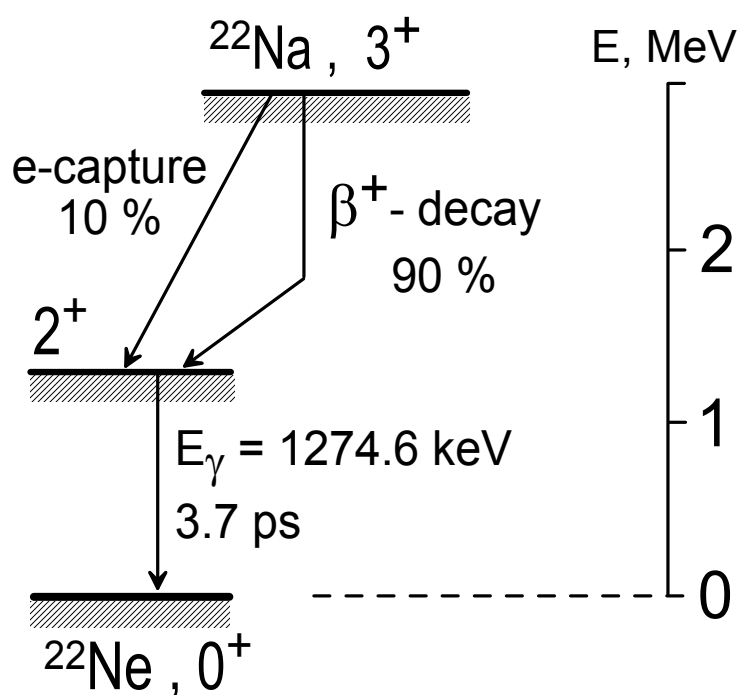
Три основных метода ПАС:

- 1) **временной** (измерение времён жизни e^+ состояний);
- 2) **угловой** (измерение отклонения угла разлета аннигиляционных фотонов от 180°)
- 3) **доплеровский** (измерение энергии аннигиляционного γ -кванта)





Источники позитронов – радиоактивные изотопы, или рождение e^+e^- пар



^{11}C – 20 мин	^{19}Ne – 17.4 сек	^{58}Co – 71 день
^{13}N – 10 мин	^{22}Na – 2.6 года	^{57}Ni – 36 часов
^{15}O – 123 мин	^{26}Al – $\sim 8 \cdot 10^5$ лет	^{64}Cu – 12.8 часов
^{18}F – 110 мин	^{44}Ti – 47 лет	^{68}Ge – 275 часов

Energy and momentum conservation for 2γ -annihilation

$$t_{ann} \sim \hbar/mc^2 \sim 10^{-21} \text{ s}$$

$$\Delta x \sim c \cdot t_{ann} \approx 0.004 \text{ \AA}$$

$$t_{ion} \leq 10 \text{ ps}; \quad t_{e^+} \sim 0.1\text{-}10 \text{ ns}$$

- annihilation occurs in a “**point**”

- annihilation takes very short time

$$2mc^2 + \frac{p_-^2 + p_+^2}{2m} - E_{bound} \approx c(p_1 + p_2)$$

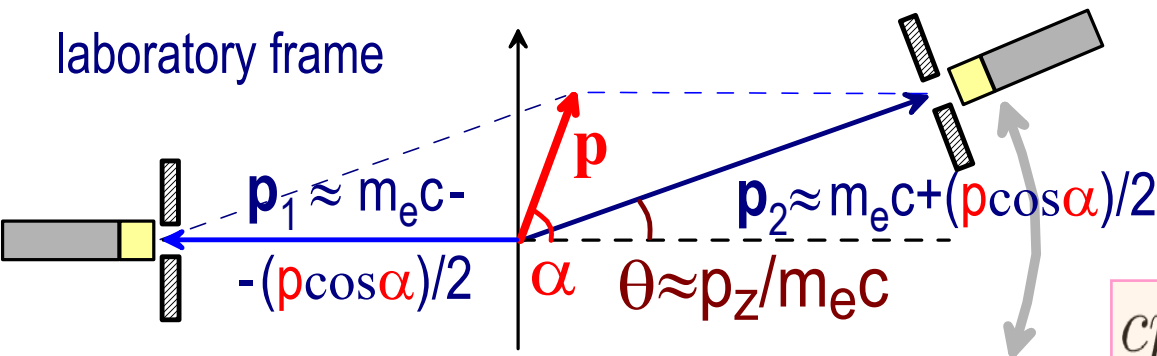
$$\mathbf{p} \equiv \mathbf{p}_+ + \mathbf{p}_- = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2$$

Наблюдаемые
в угловых изм.:

$$\theta \rightarrow \langle p_z \rangle p_x; p_y$$

в доплеровских:

$$cp_2 \rightarrow mc^2 + c\langle (p \cos \alpha)/2 \rangle_\alpha$$



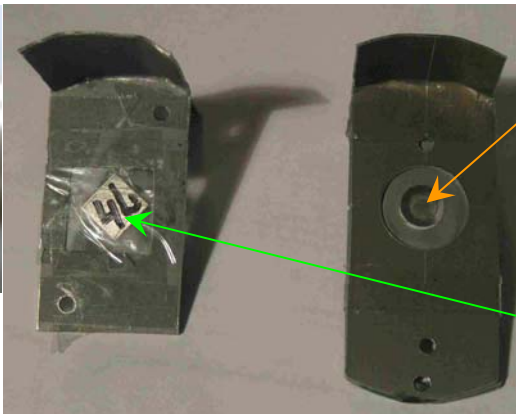
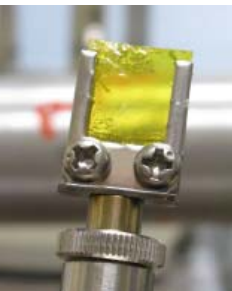
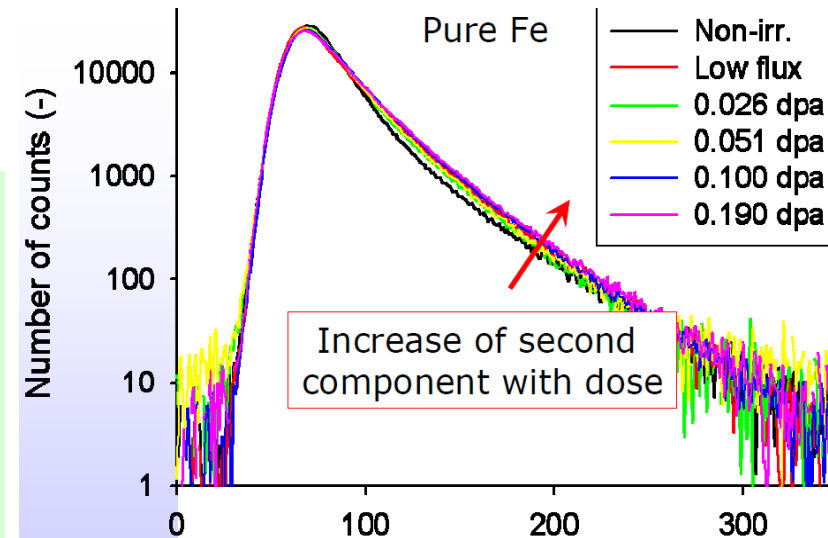
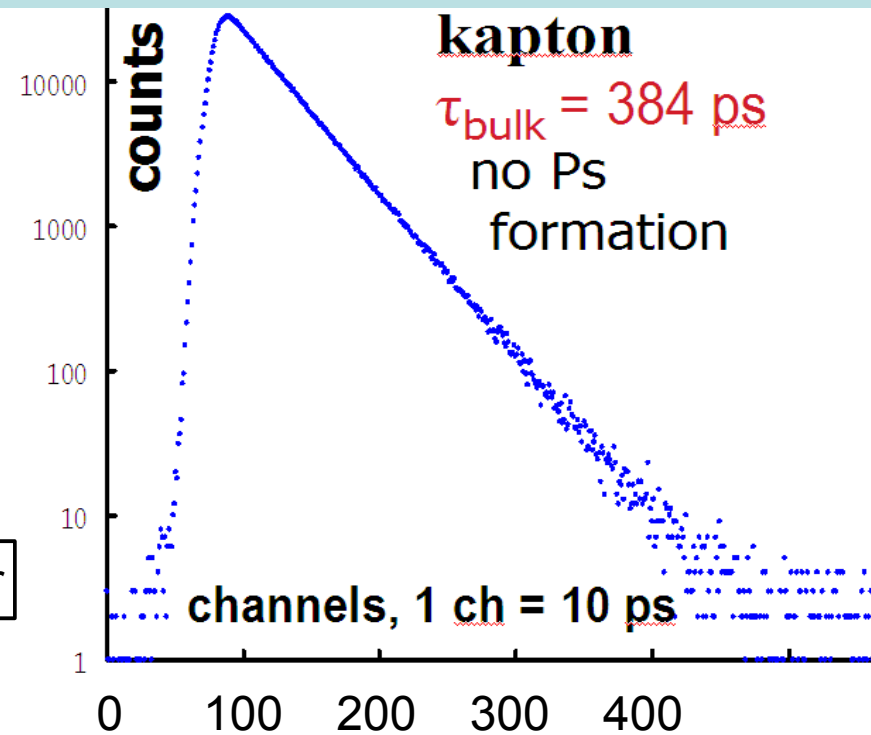
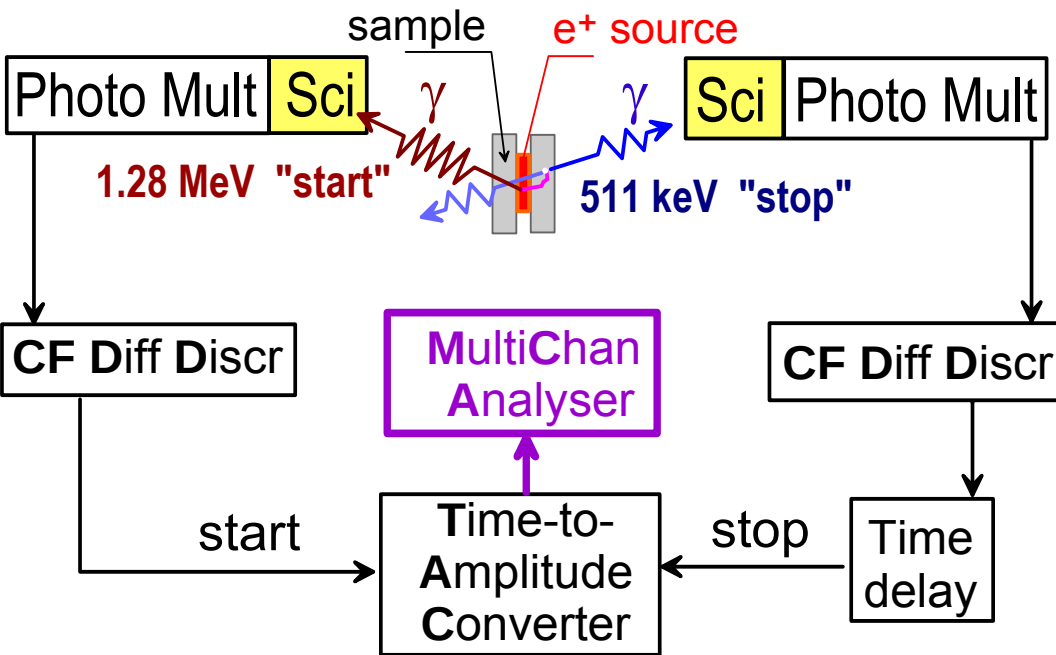
во вре-
менных

$$\lambda_i^{2\gamma} = \pi r_0^2 c \int n_+^{(i)}(r) n_-(r) d^3r$$

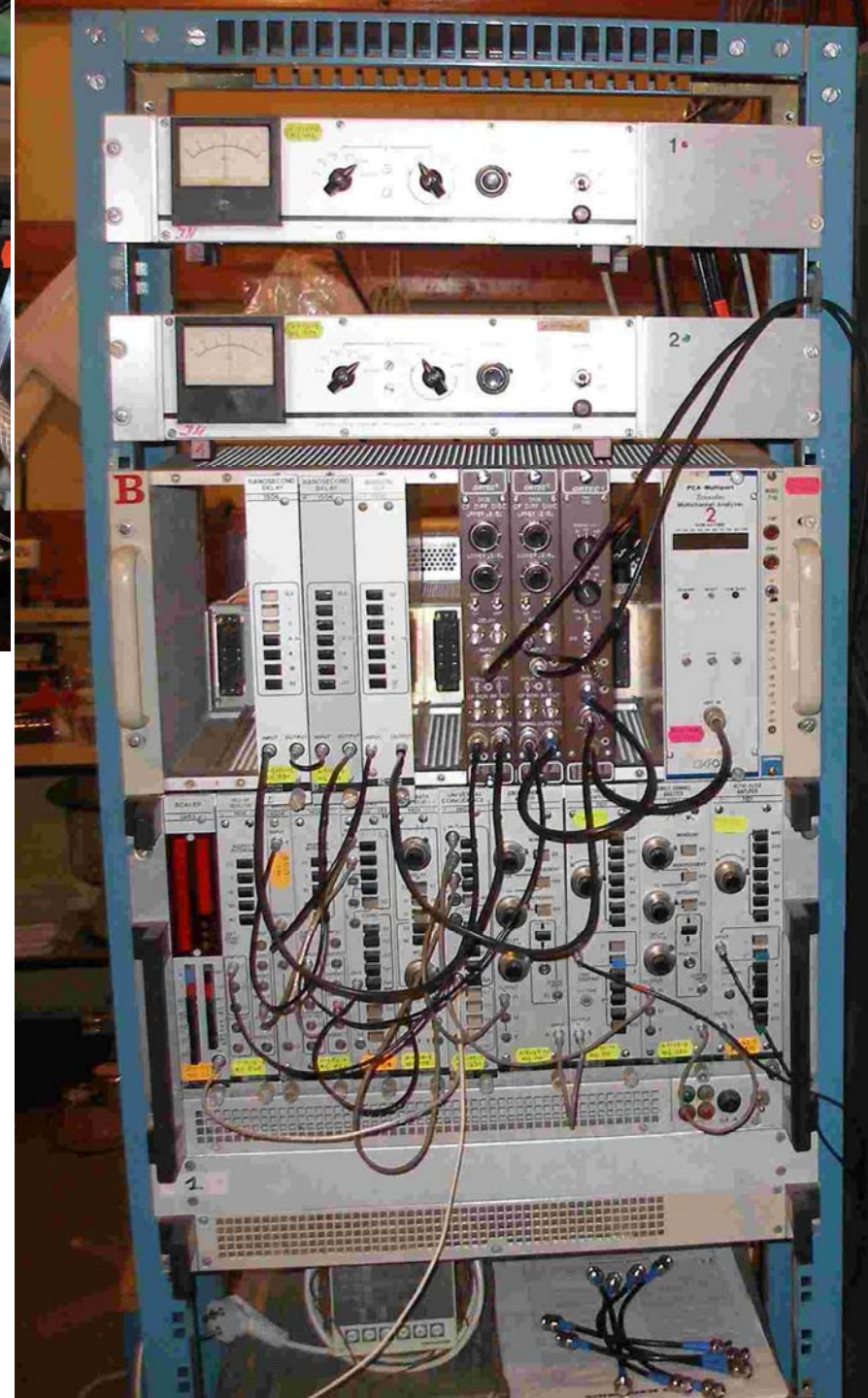
+ кинетика образ-я
 e^+ состояний

Positron Annihilation Lifetime Spectrometry (PALS)

PALS measures distribution over e^+ ages in matter



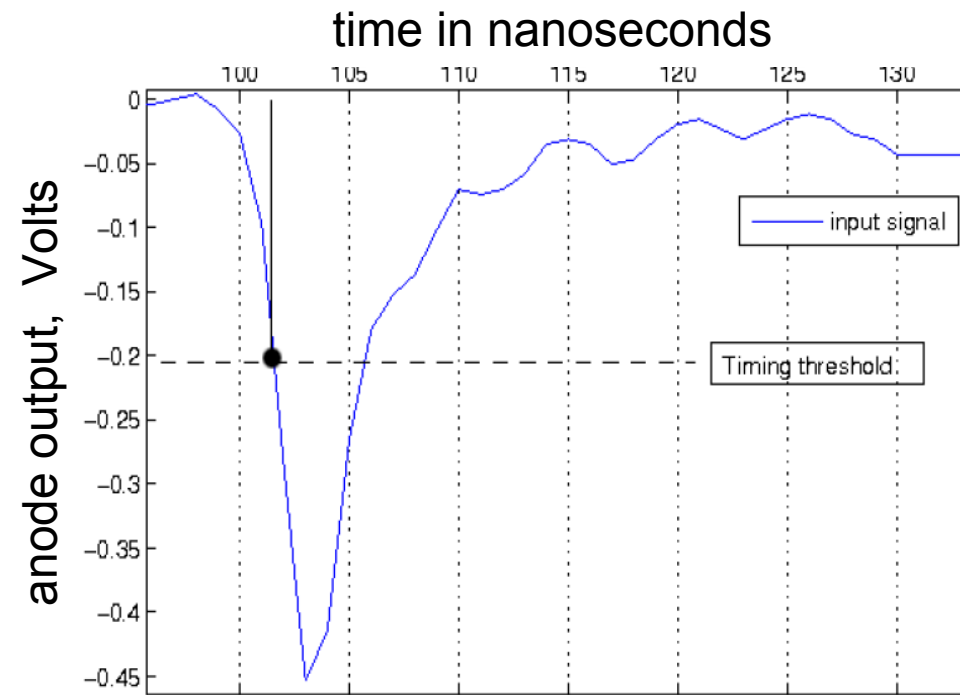
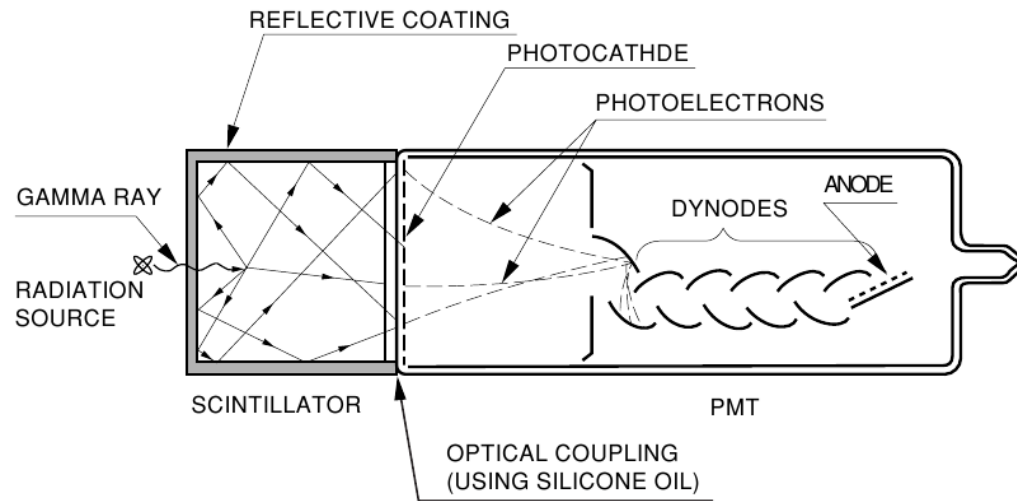
Источник e^+
8 μm лавсан.
пленка
Источник и
образцы



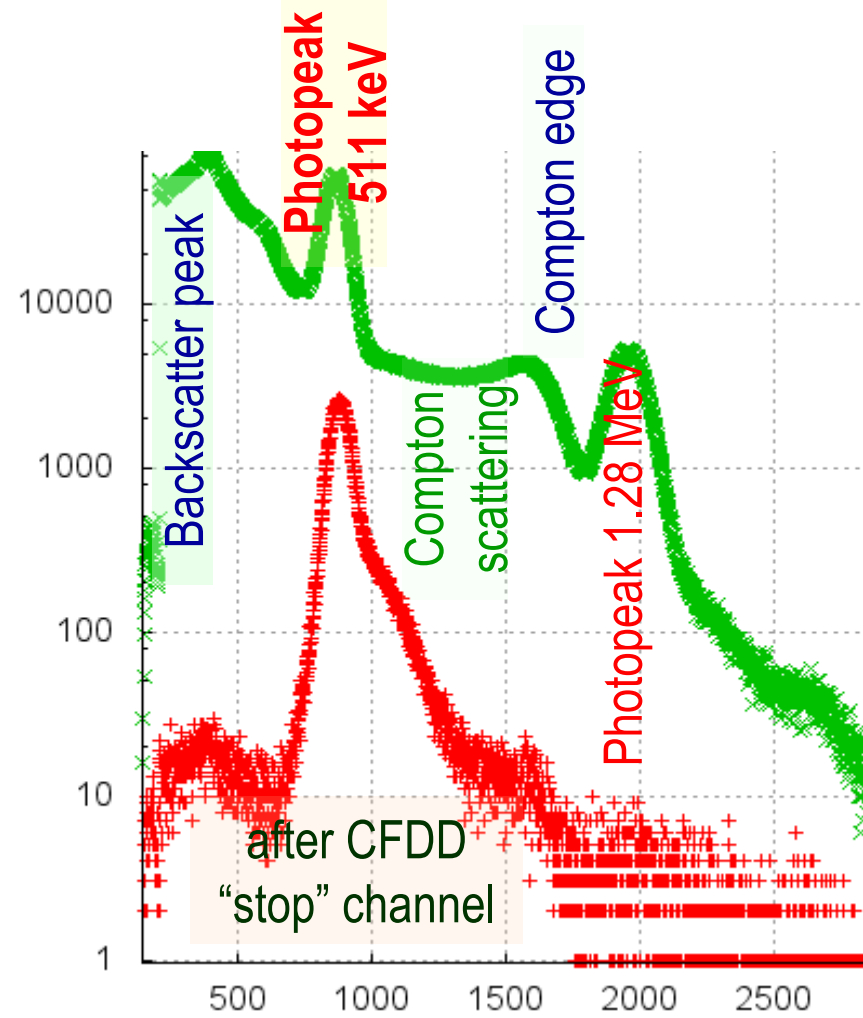
Detector =
scintillator BaF_2 +
PMT (XP2020q)



Яд. физ. аспекты и наносекундная электроника: фотоэффект, комптон-эффект, ФЭУ, fast timing...



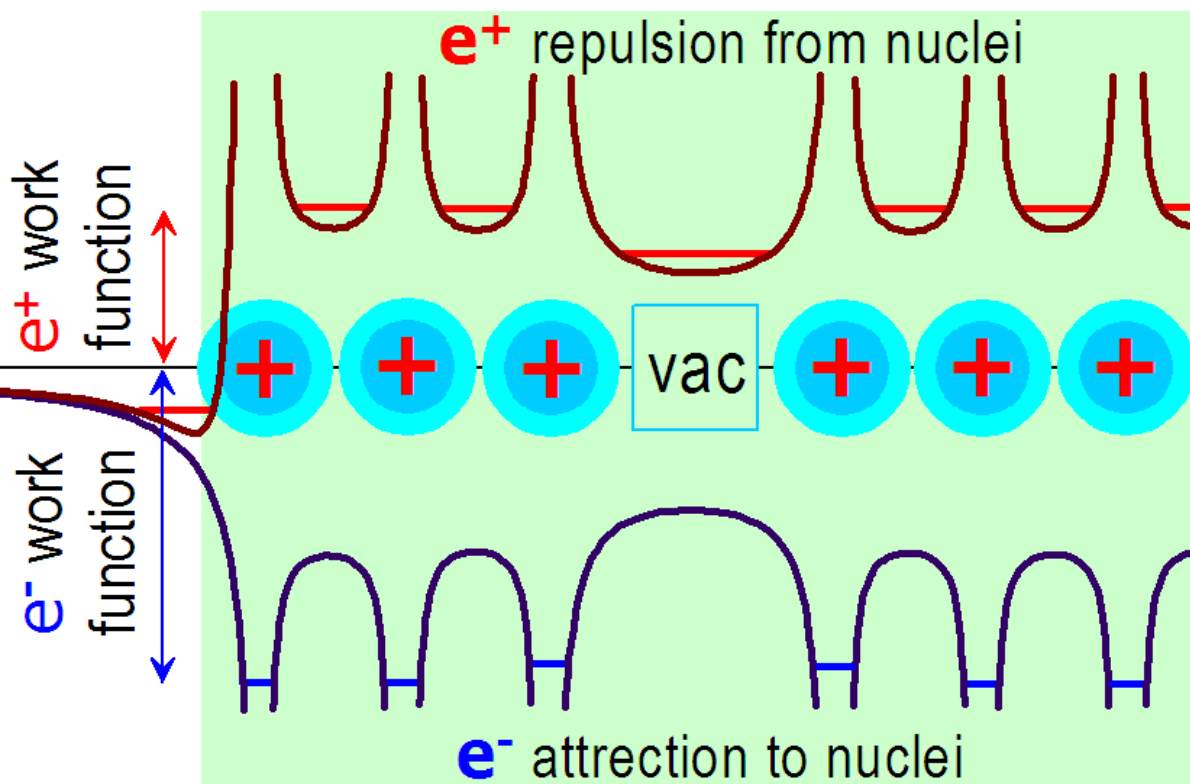
^{22}Na as a e^+ source;
BaF2 + XP2020q



e^- «втягивается» в металл (притяжение к ядрам)

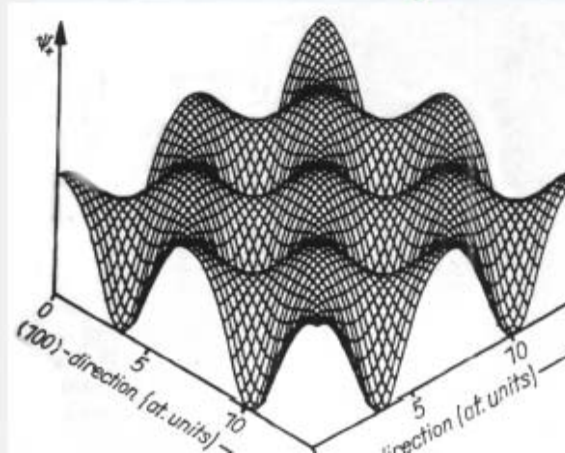
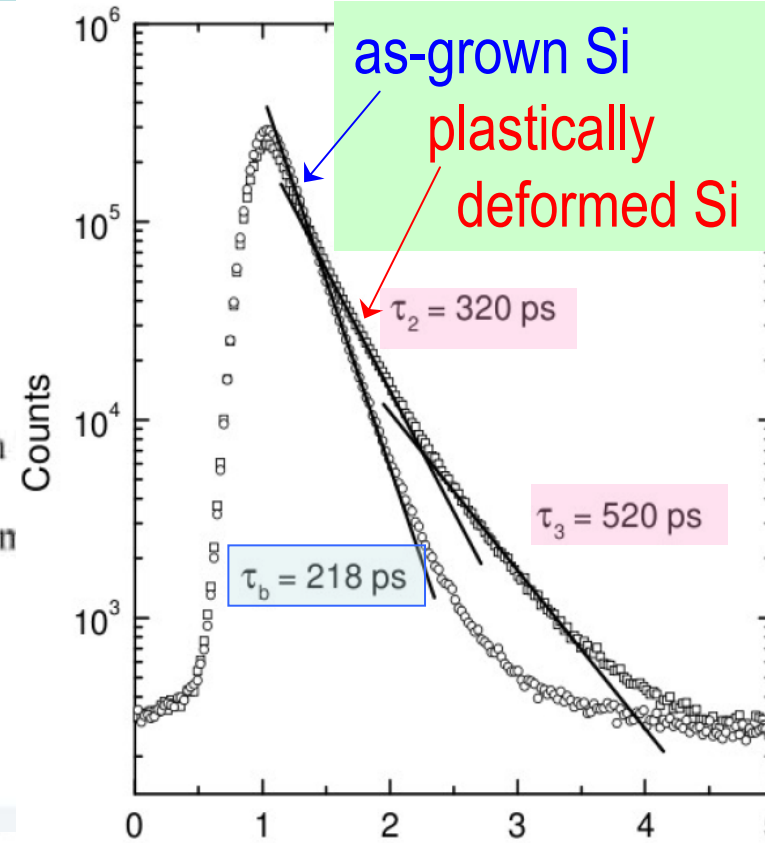
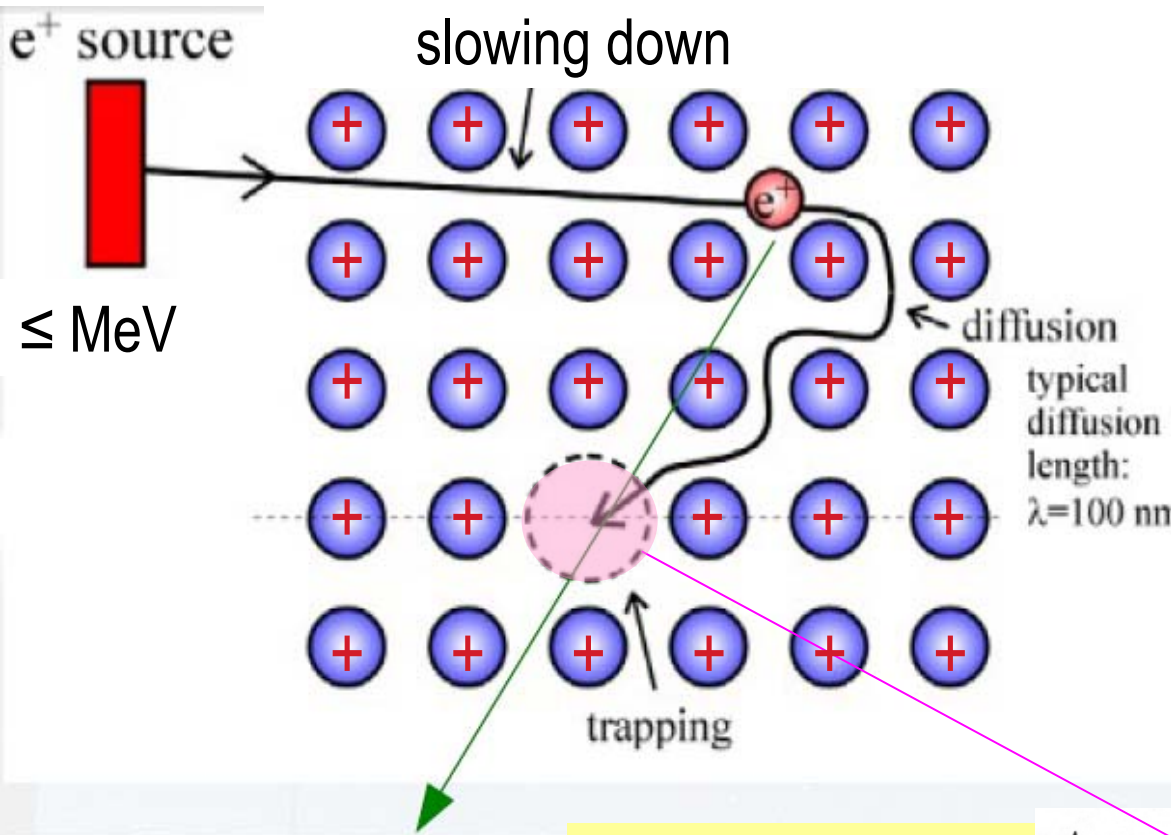
**e^+ выталкивается из металла в «свободный объем»
(доминирует отталкивание от ядер)**

Энергия, необходимая для того, что бы затолкнуть e^+/e^- в бездефектный металл (work function)

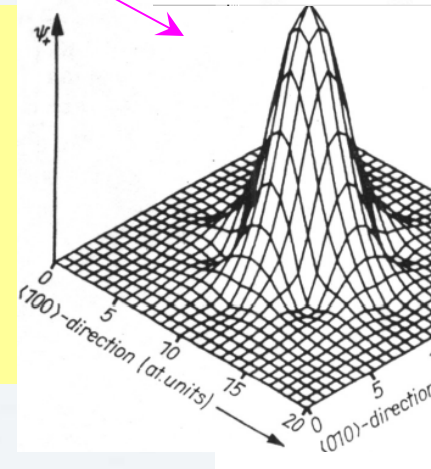


	Φ_+, eV	Φ_-, eV
Al	0-0.2	-(4.2-4.3)
Cr	1.76	-4.5
Fe	1.2	-4.4
Co	0.8	-5.0
Ni	1-1.4	-(5-5.2)
Cu	0.2-0.4	-(4.5-5.1)
Mo	1.7-2.2	-(4.5-4.6)
Ta	1.2	-4.25
W	2.6-3	-(4.6-5.2)
Pt	1.8	-5.64
Au	-0.9	-5.2
Pb	-0.9	-4.25

Positron Annihilation Lifetime Spectrometry (PALS)



Delocalized e^+
Bloch wave
 $\lambda_{\text{th}} \sim 60 \text{ \AA}$
 $\tau_{\text{bulk}} = 0.1\text{-}0.2 \text{ ns}$



Localized or
trapped state
 $\tau_{\text{vac}} = 0.3\text{-}0.5 \text{ ps}$
trapping rate =
 $= 4\pi D_+ R c_v$

Оценка минимальной концентрации дефектов, которую «видят» позитроны

Примем, что порогом регистрации дефектов является 10%-е изменение скорости λ_{bulk} аннигиляции e^+ в бездефектном объеме образца (за счет его захвата на дефекты), то есть

Скорость захвата e^+ дефектами равна:

$$0.1 \lambda_{bulk} \sim 4\pi D_+ R c_d$$

$D_+ \sim \lambda v_{th}/6 \sim 1 \text{ см}^2/\text{с}$ - коэффициент диффузии e^+ ; $v_{th} = 10^7 \text{ см/с}$;

R - радиус захвата позитрона дефектом (примем, что он равен

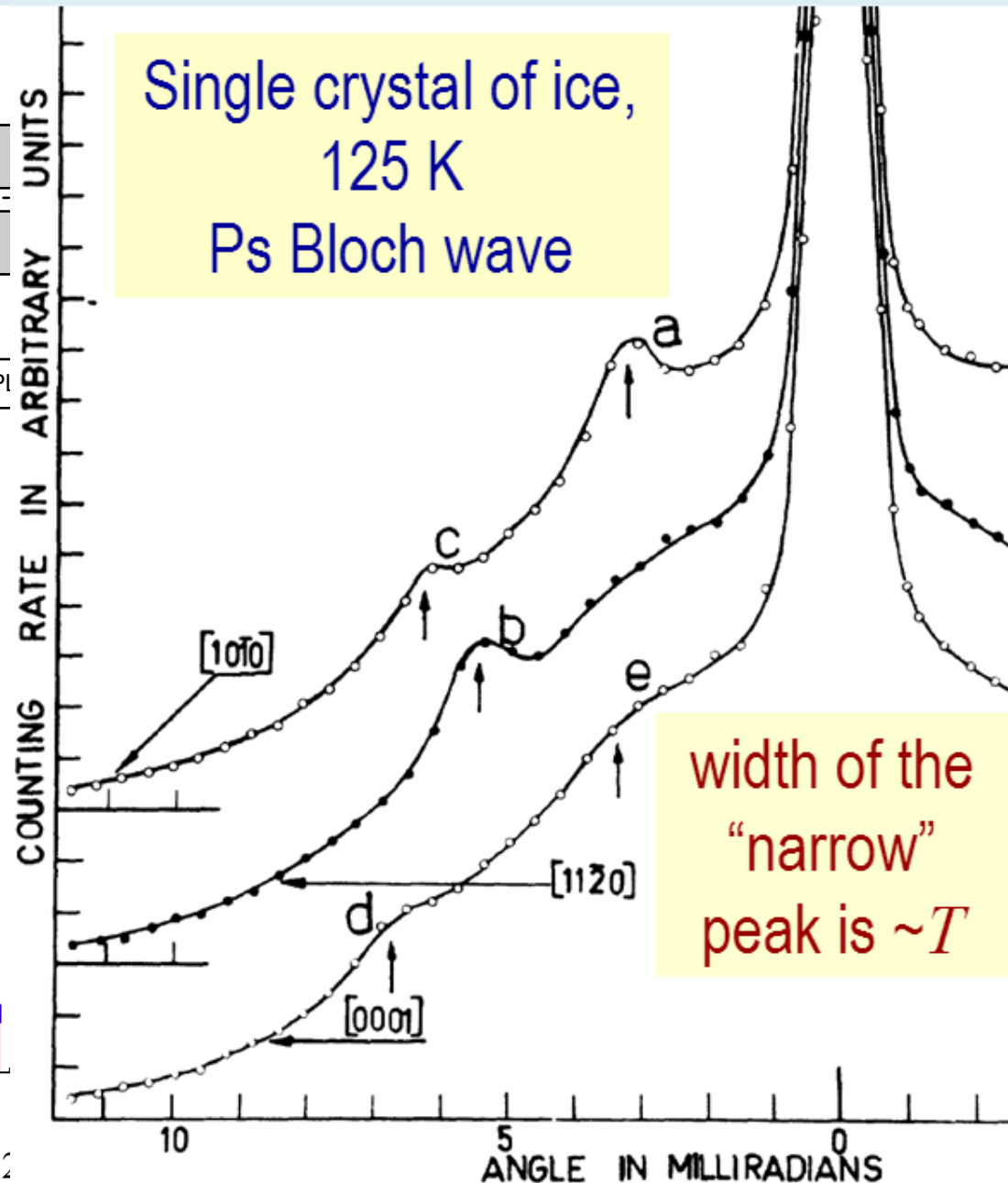
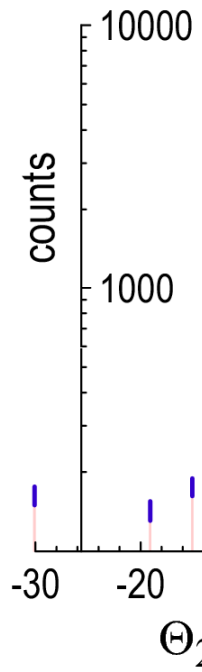
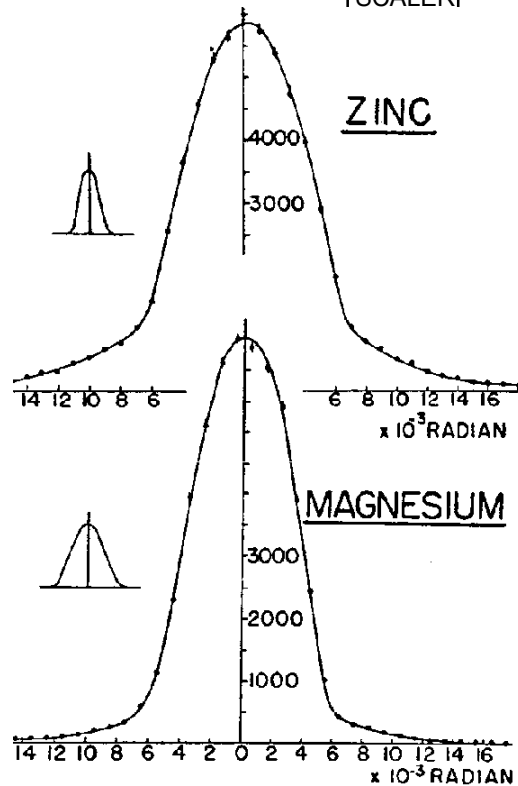
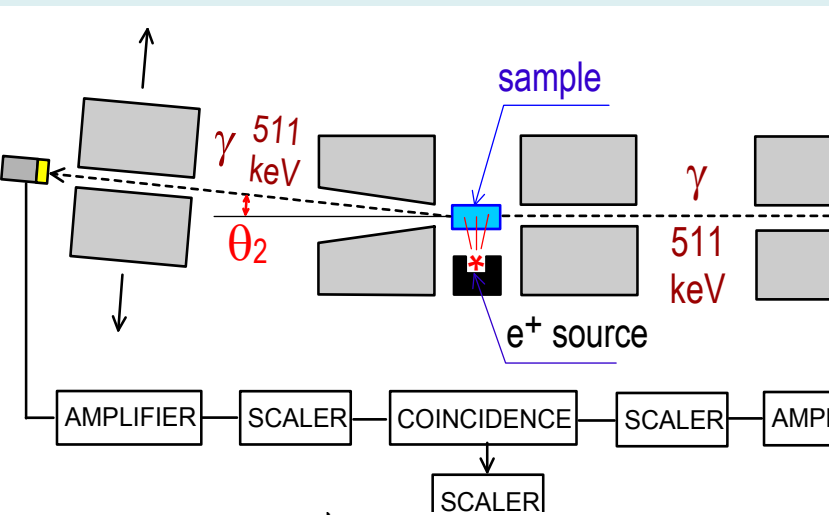
$\lambda = 2\pi\hbar/mv_{th} = 60 \text{ \AA}$ дебройлевской длине волны теплового e^+);

c_d - концентрация дефектов.

Отсюда находим, что $c_d \geq 10^{15} \text{ дефектов/см}^3$.

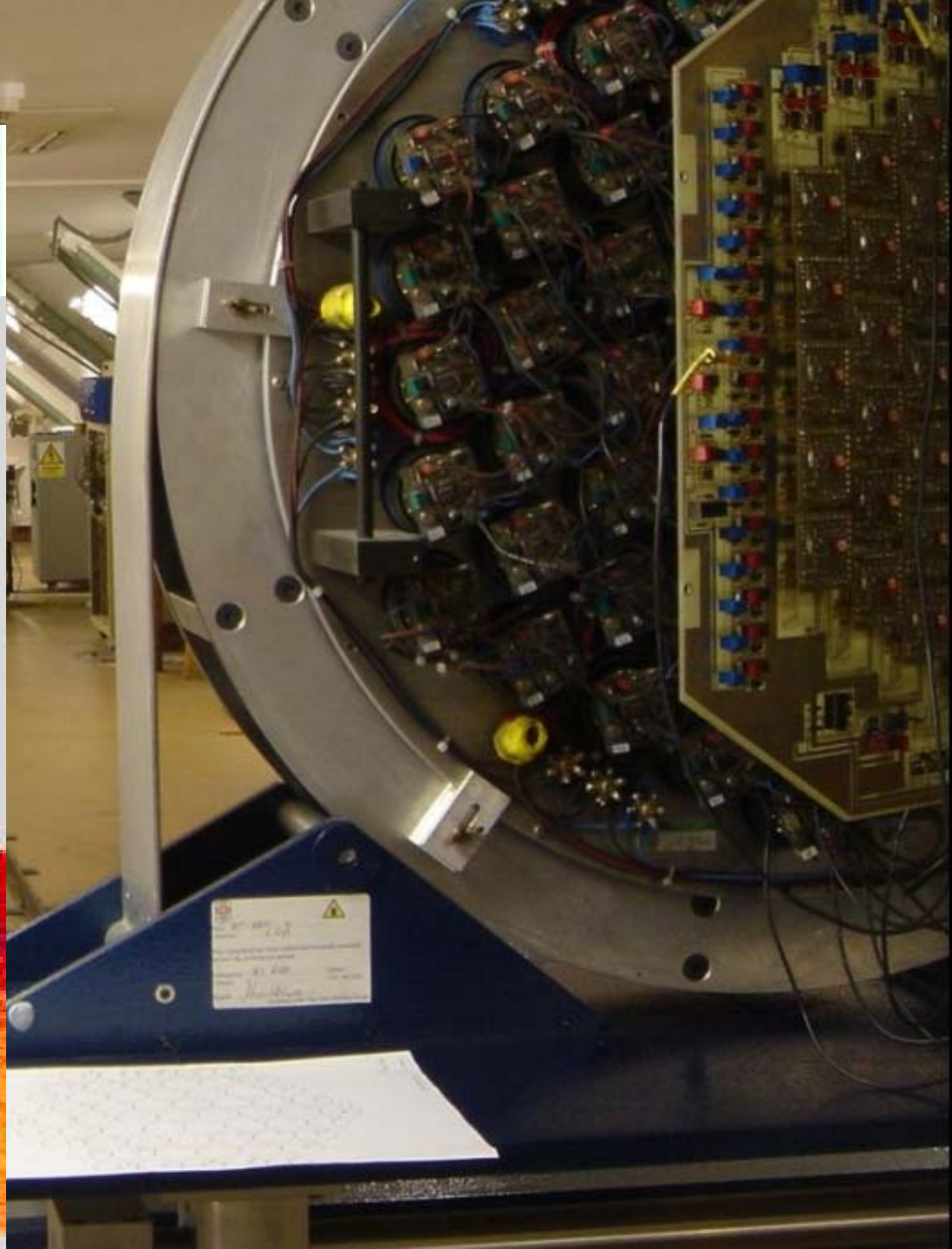
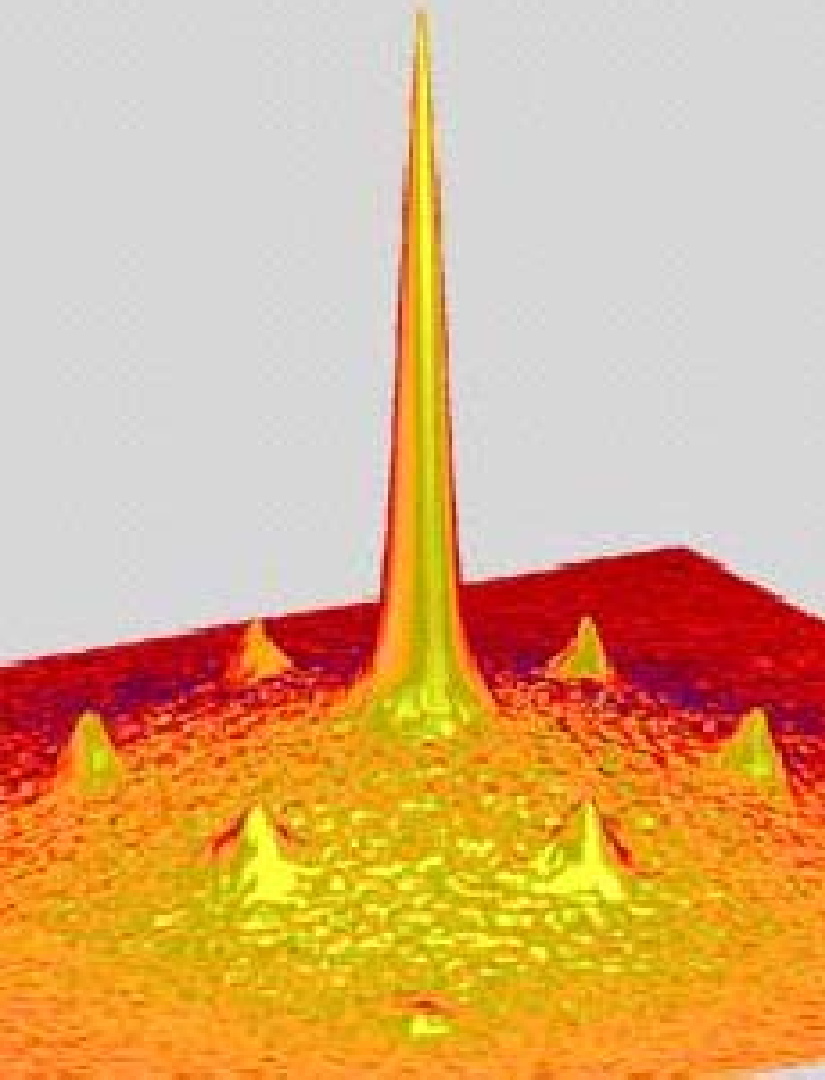
Диффузионное смещение e^+ за время его жизни $\sim (6D_+/\lambda_{bulk})^{1/2} \sim 2000 \text{ \AA}$

Angular Correlation of Annihilation Radiation (ACAR)



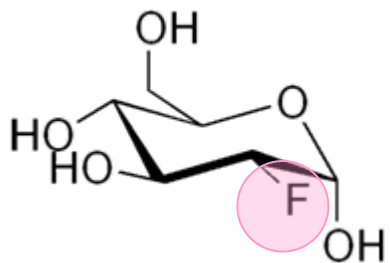
on

Para-Ps in a crystalline
quartz (Ps Bloch wave)



Positron Emission Tomography (PET, ПЭТ)

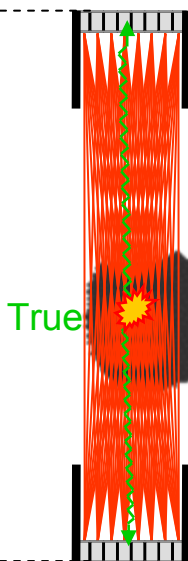
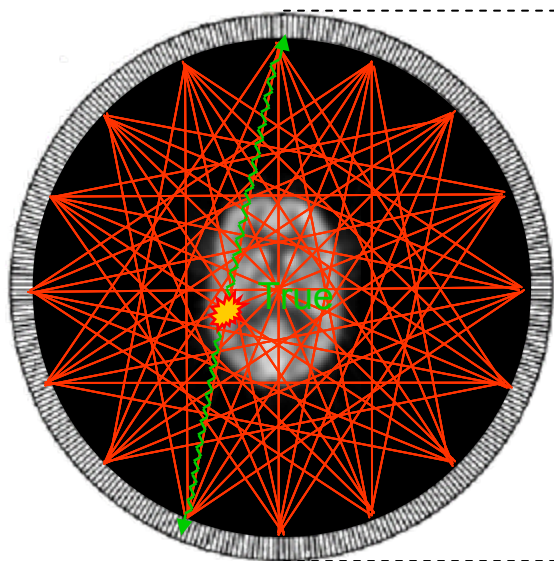
позволяет in vivo отслеживать распределение в организме радиофармпрепаратов - биологических соединений, меченных e^+ изотопами



$\leq$ **фтордезоксиглюкоза** (^{18}F -FDG) - аналог природной глюкозы, используется для визуализации опухолей (**раковые клетки активно потребляют глюкозу**).

^{18}F ($T_{1/2} = 109,8 \text{ min}$; e^+ mean energy 250 keV)

Для поиска опухоли пациенту внутривенно вводится активность **5-10 мКи** = $(2-4) \cdot 10^8$ распадов/сек.

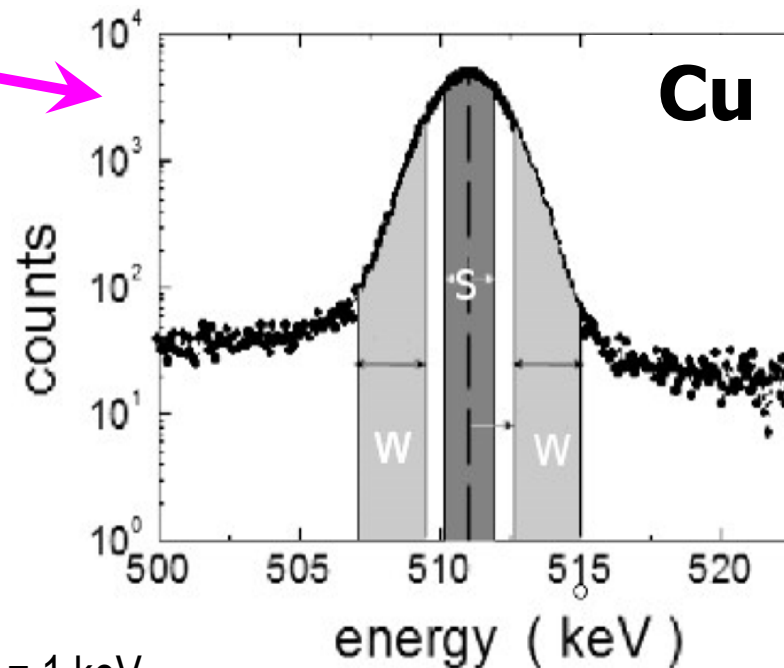
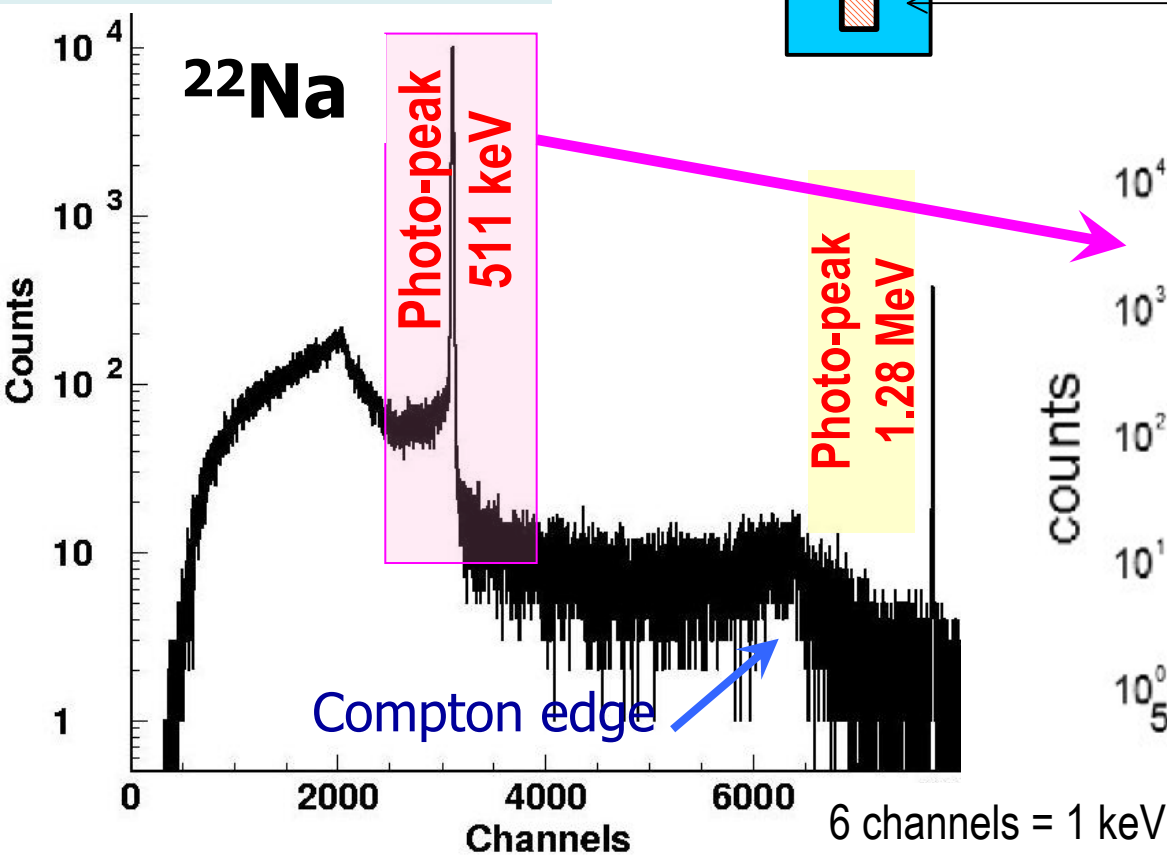
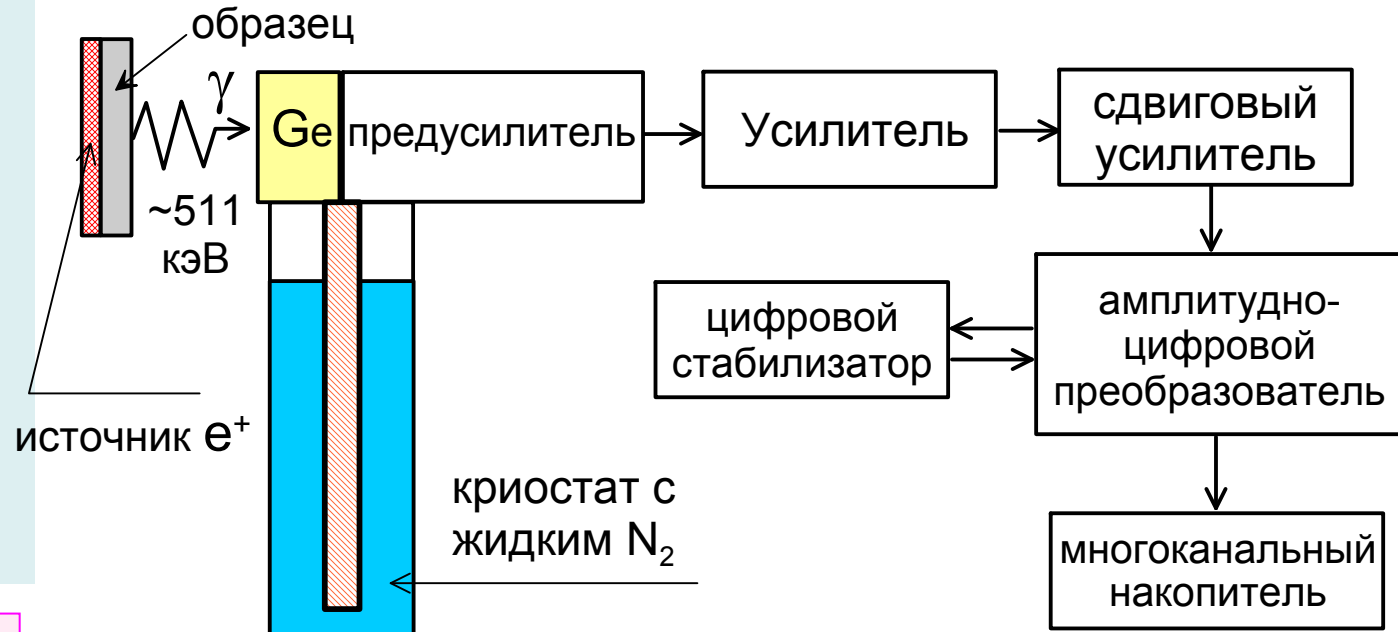


При этом лучевая нагрузка на все тело составляет **4-14 мЗв**.

Радиационный фон на Земле = **1-10 мЗв/год**; $1 \text{ Зв} \approx 100 \text{ рад}$

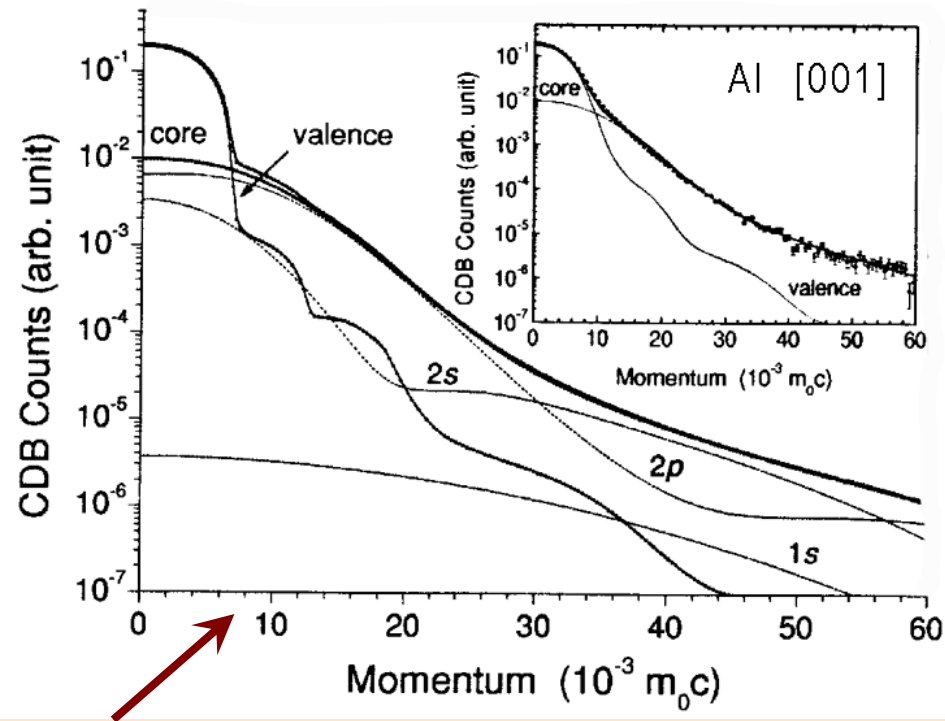


Doppler Broadening of Annihilation Radiation

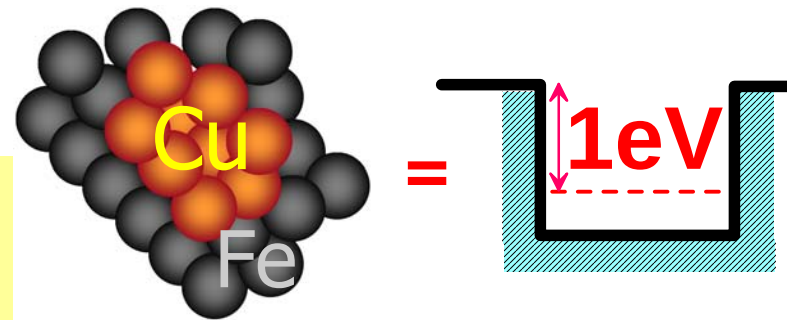


Doppler Broadening of Annihilation Radiation

Монокристаллический алюминий



Доплеровские спектры разных элементов отличаются в меру различия энергий электронов вещества (на «крыле» -- внутренних «коровых» электронов).
Чтобы увидеть эту разницу, «делим» поканально один спектр на другой.



В Cu кластерах (>1 нм) энергия e^+ ниже на ~ 1 эВ. Они захватывают e^+

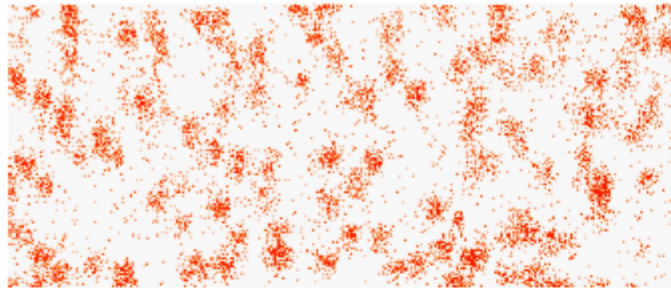
Времена жизни e^+ в Fe и Cu одинаковые, а энергии «коровых» эл-нов разные => **доплеровская спектроскопия**

$$\tau_{\text{bulk}}(\text{Fe}) \approx 107 \text{ ps}$$
$$\tau_{\text{bulk}}(\text{Cu}) \approx 113 \text{ ps}$$

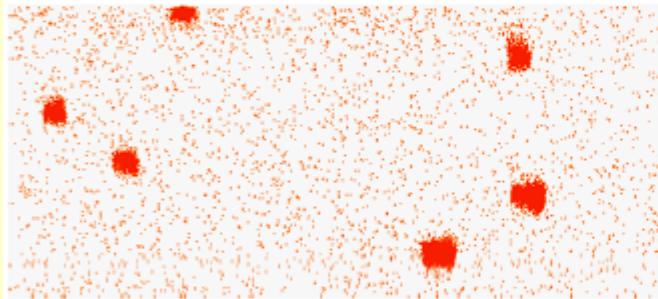
Formation Cu precipitates in Fe+0.3w%Cu

Neutron irradiation leads to accumulation of immobile vacancy clusters. => They become decorated by Cu. => Cu precipitates

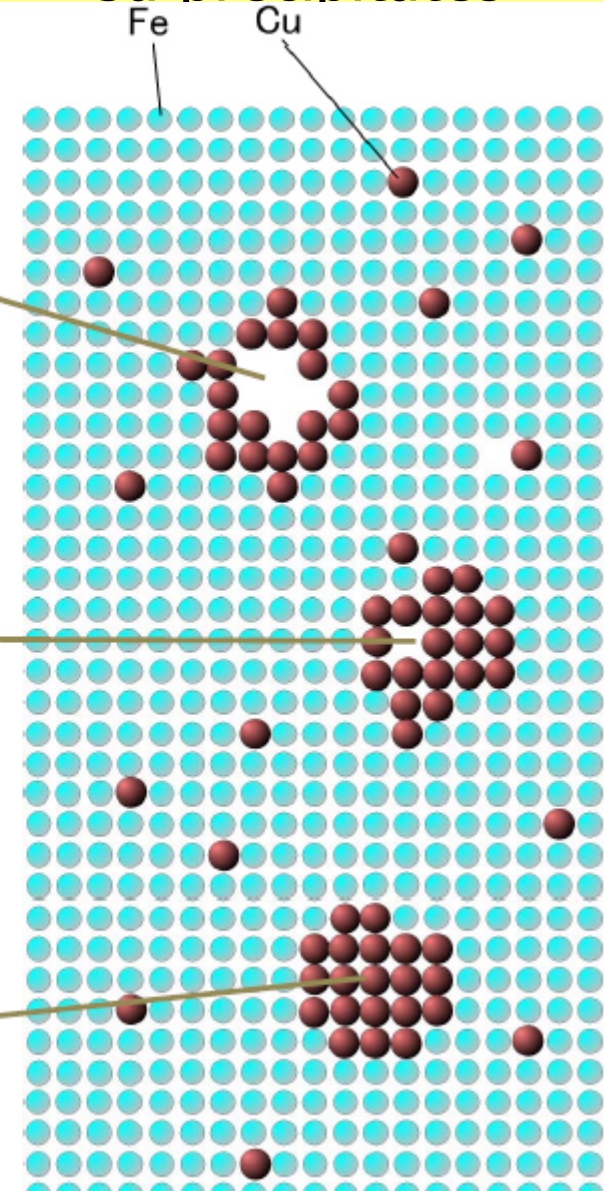
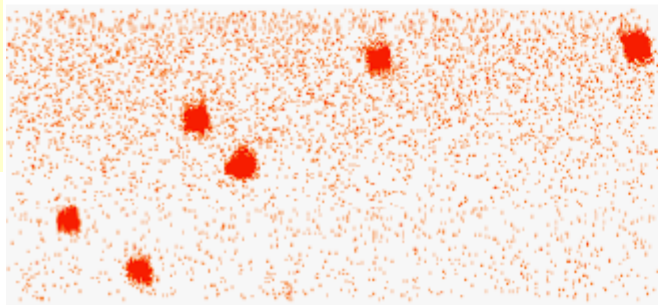
Cu-Decorated Nanovoid



Cu Nano-precipitate with vacancy



Cu Nano-precipitate



3d Atom Probe

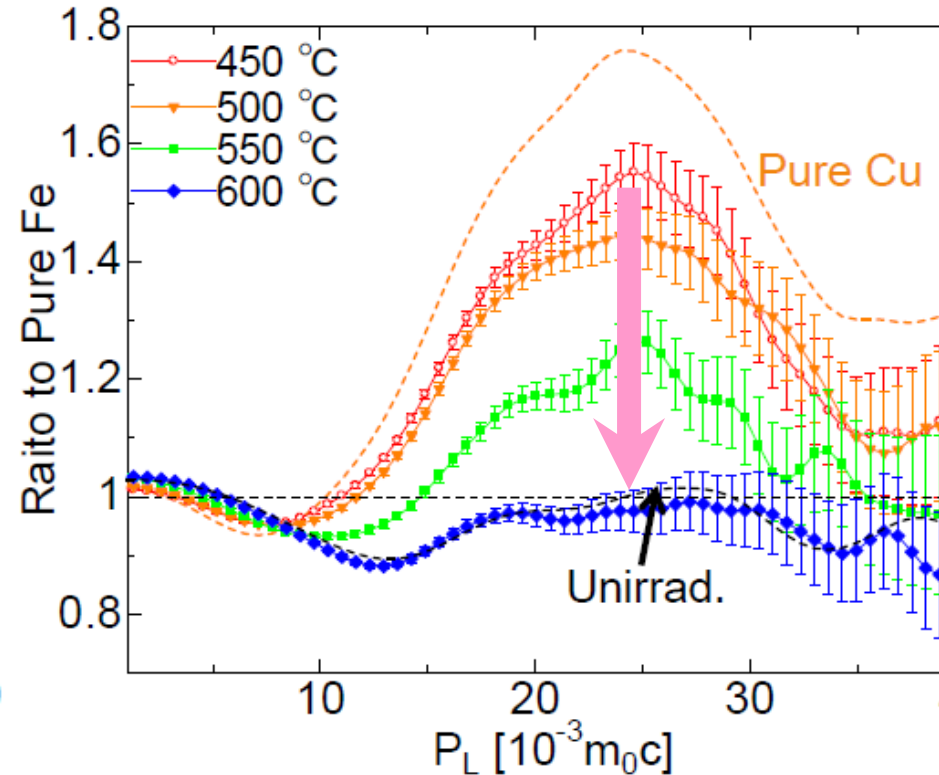
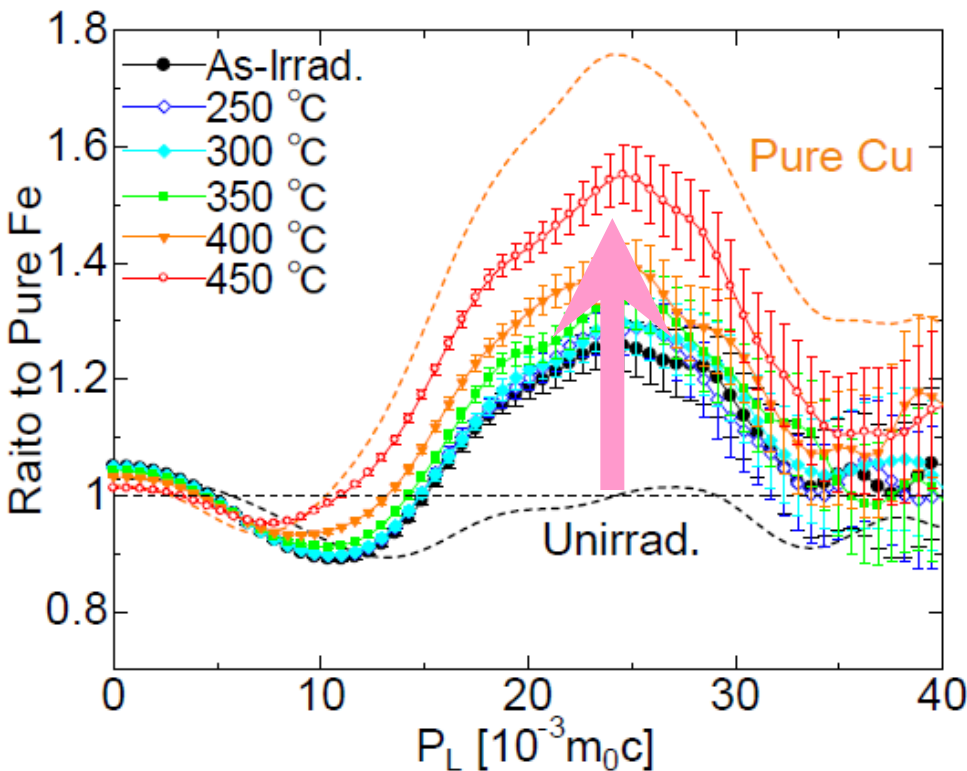
&

PAS
(Coincidence
Doppler
Broadening)

«Крылья» доплеровского спектра чувствительны к хим. составу «ловушки», в которой аннигилирует e^+

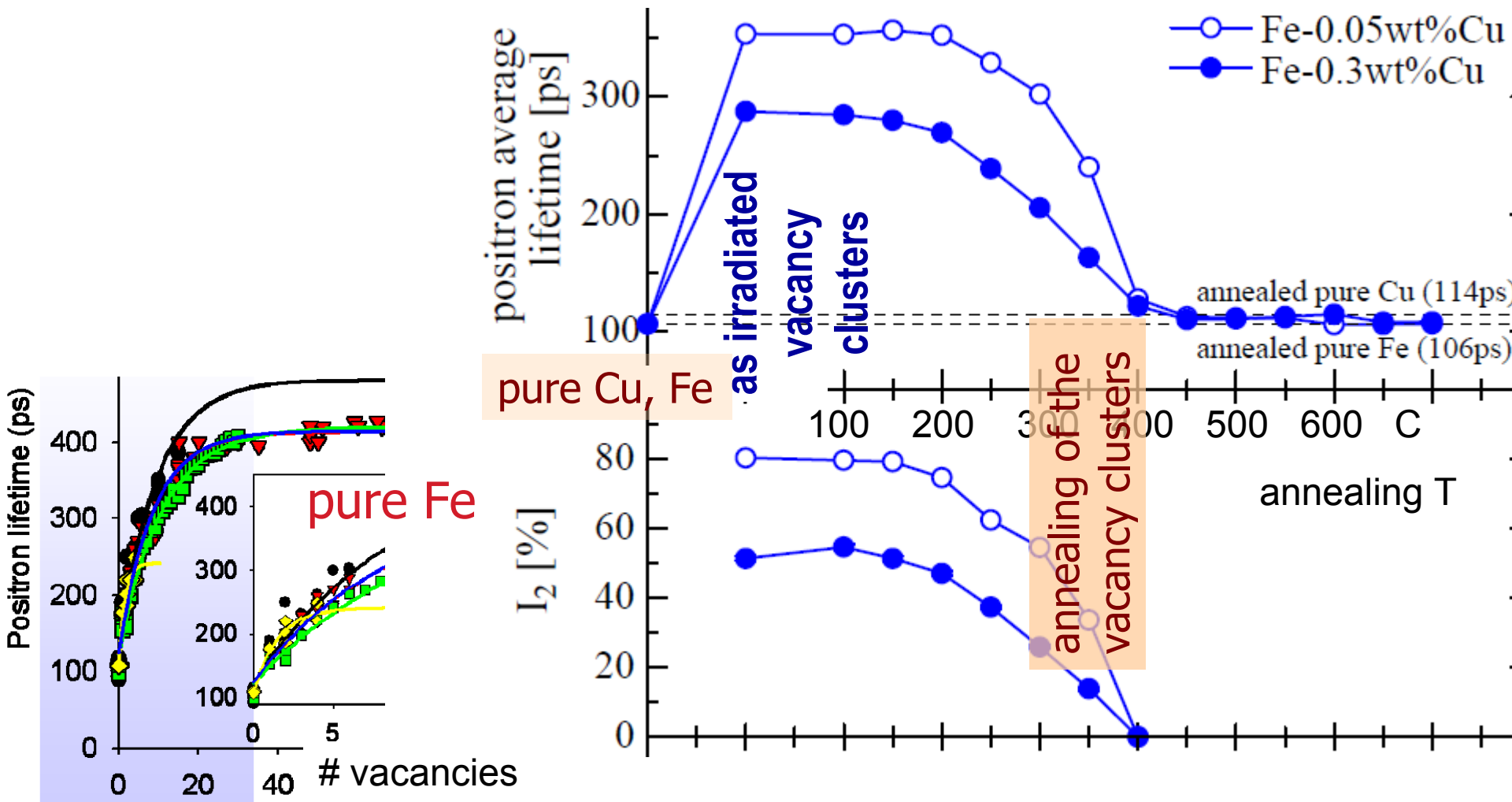
Делим поканально доплеровский спектр сплава на спектр чистого железа. Отличие спектров – из-за различия импульсов внутренних (коровых) электронов у Fe и Cu.

1st. Gen. (0.16Cu) A533B, $3.9 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

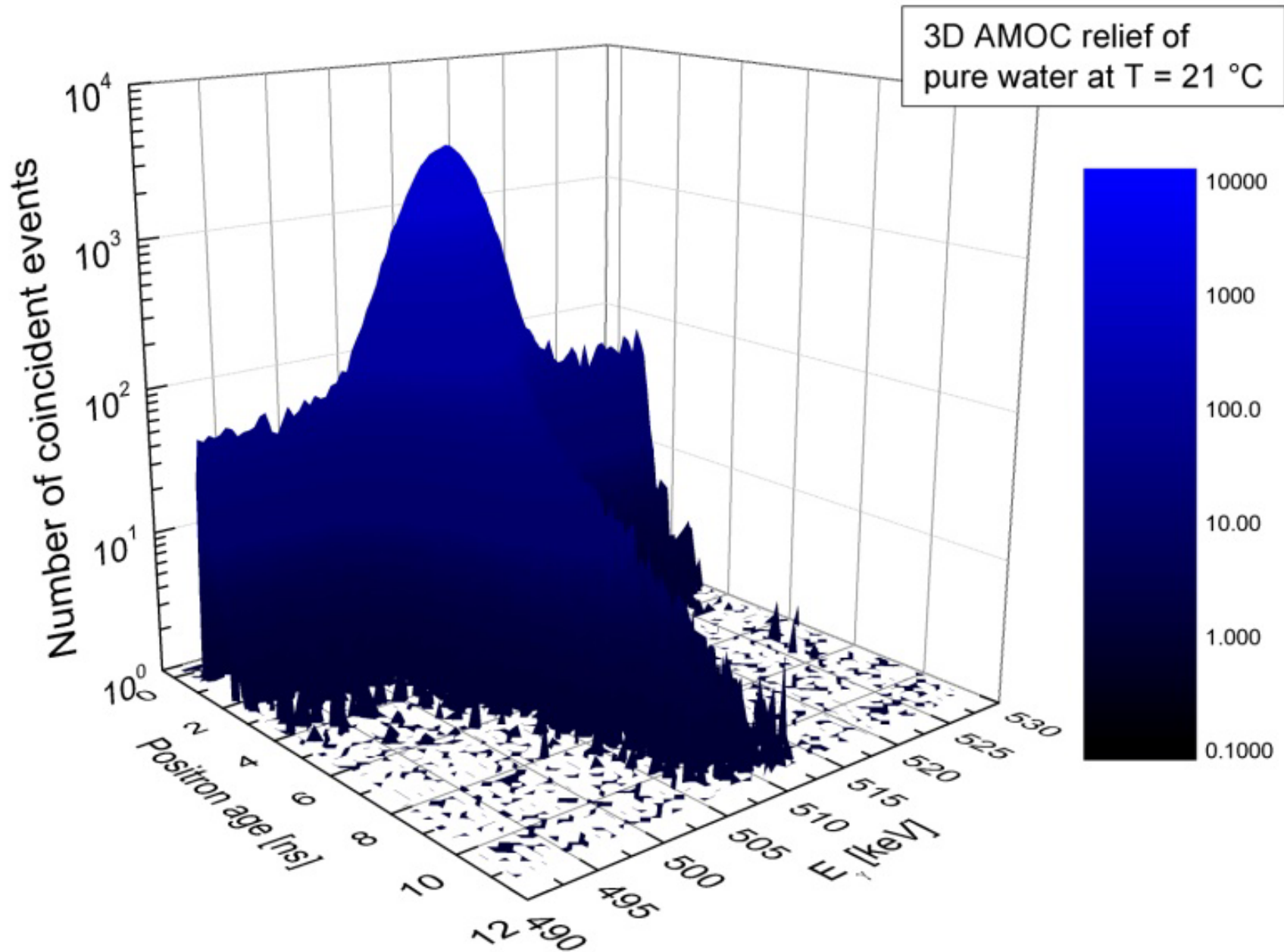


Fe-0.3wt%Cu + neutron irr. 10^{19} n/cm² (0.013 dpa; 100°C)

Удлинение времени жизни e^+ в сплавах связано образованием радиационных дефектов вакансионного типа, которые отжигаются при повышенных температурах.



Age-MOmentum Correlation (AMOC)

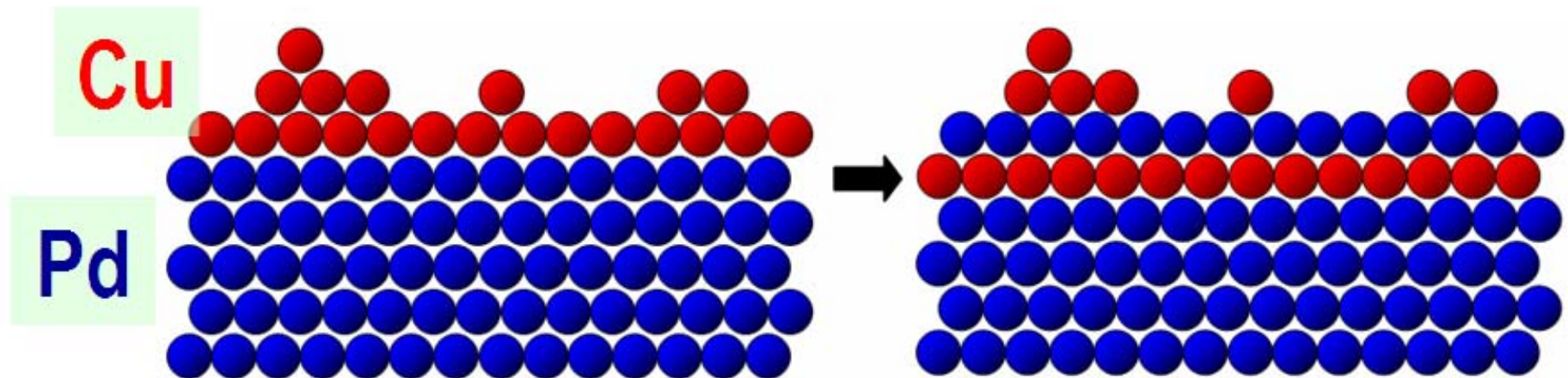


Emission Auger-Electron Spectroscopy

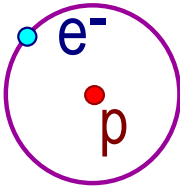
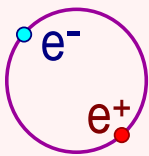
EAES

PAES

Cu on Pd: Evolution of the surface
**surface contamination, surface diffusion,
segregation, topmost layer modification**



Водород и позитроний

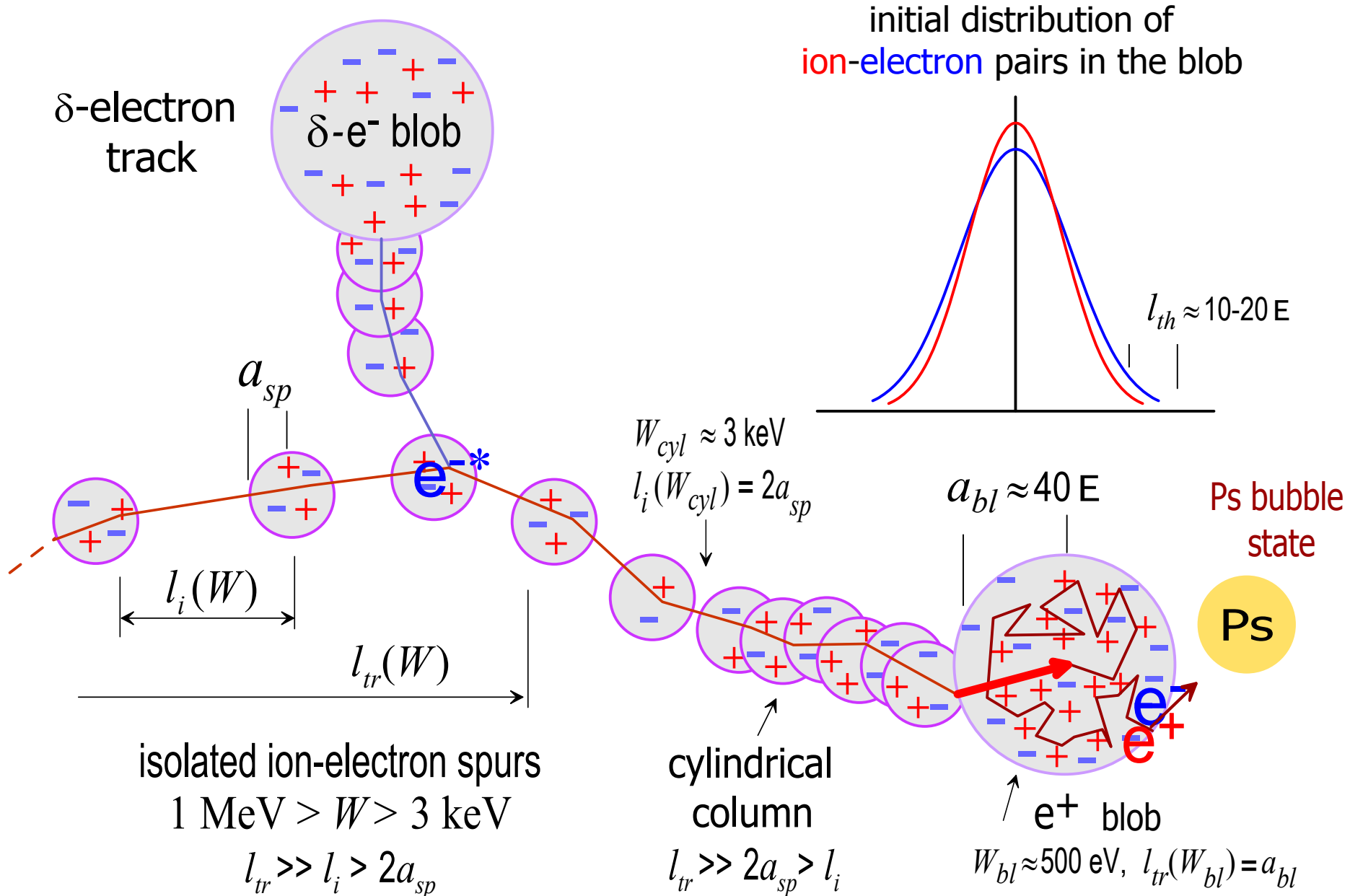
• масса:	$m_p + m_e$	$2m_e$
• диаметр:	 $\langle r_{ep} \rangle = 3a_B/2$	 $\langle r_{-+} \rangle = 3a_B$
• энергия связи E_b :	$Ry = 13.6 \text{ эВ}$	$Ry/2 = 6.8 \text{ эВ}$
• СПИНОВЫЕ СОСТОЯНИЯ:		
пара-состояние ($\uparrow\downarrow$ спин=0): стабильно		125 пс (2γ)
орто-состояние ($\uparrow\uparrow$ спин=1): стабильно		142 нс (3γ)

Сохранение заряда и четности: $(-1)^{(\text{спин} + \text{орбитальный момент})} = (-1)^{(\text{число фотонов})}$

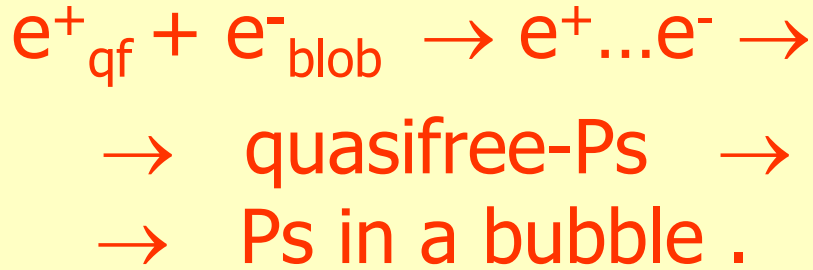
Ps fingerprint – long lifetime component in LT spectrum: в среде время жизни орто-Ps ($\tau_{oPs} = \tau_{\text{pick-off}} = \tau_3$) сокращается до нескольких наносекунд вследствие **pick-off аннигиляции**:



Track structure of a fast e^+ in dielectrics

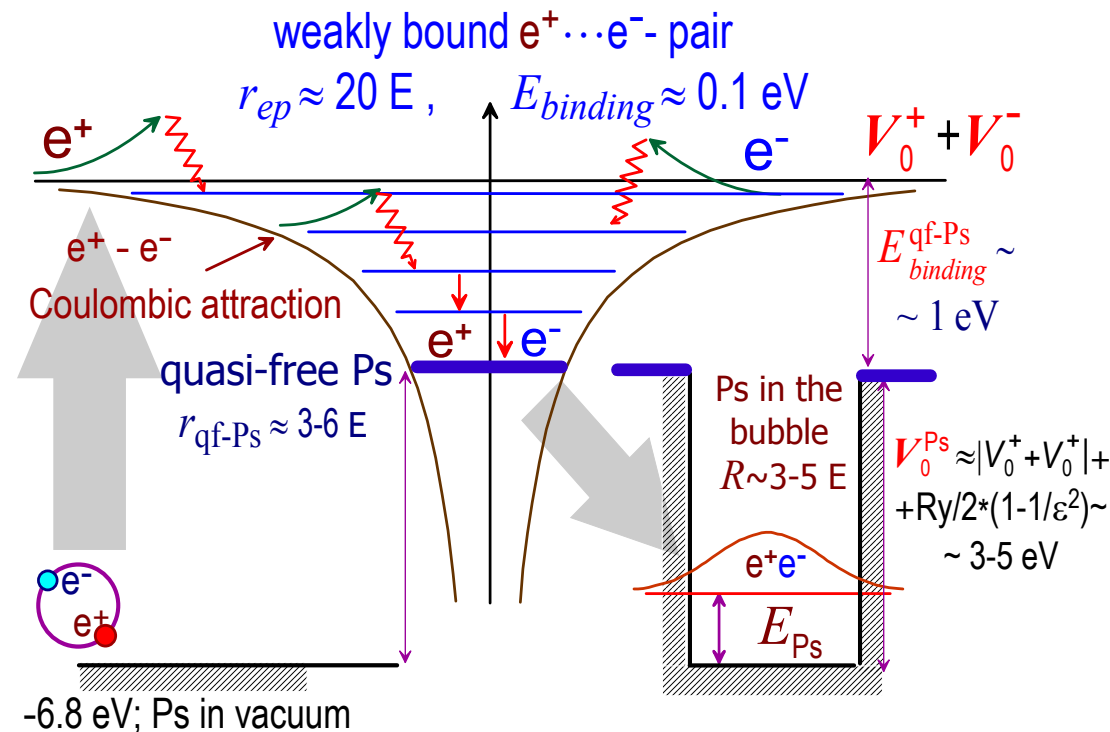


Внутротрековый мех-м образования Ps (ИТЭФ):



Сначала в результате комбинации термализованного e^+ с одним из трековых e^- образуется слабосвязанная $e^+ \dots e^-$ пара. Сбрасывая энергию на возбуждение колебаний, она трансформируется в квазисвободный Ps.

Последующий выигрыш энергии (уменьшение обменной и кулоновской энергий) достигается за счет реорганизации молекул среды, т.е. образования Ps пузырька.



Опускаем все физико-химические аспекты (из-за отсутствия времени):

- Пузырьковая модель (учет конечного размера атома Ps)
- Эффект локального повышения T в треке e^+ . Premelting
- Кинетика роста Ps пузырька в жидких средах. На что при этом расходуется энергия? И какая энергия?
- Внутритрековые реакции с участием атома Ps (окисление, ингибирование, орто-пара-конверсия)
- Влияние внешнего электрического поля
- Роль захваченных e^- при низких T в полимерах
- Микрогетерогенность жидких смесей



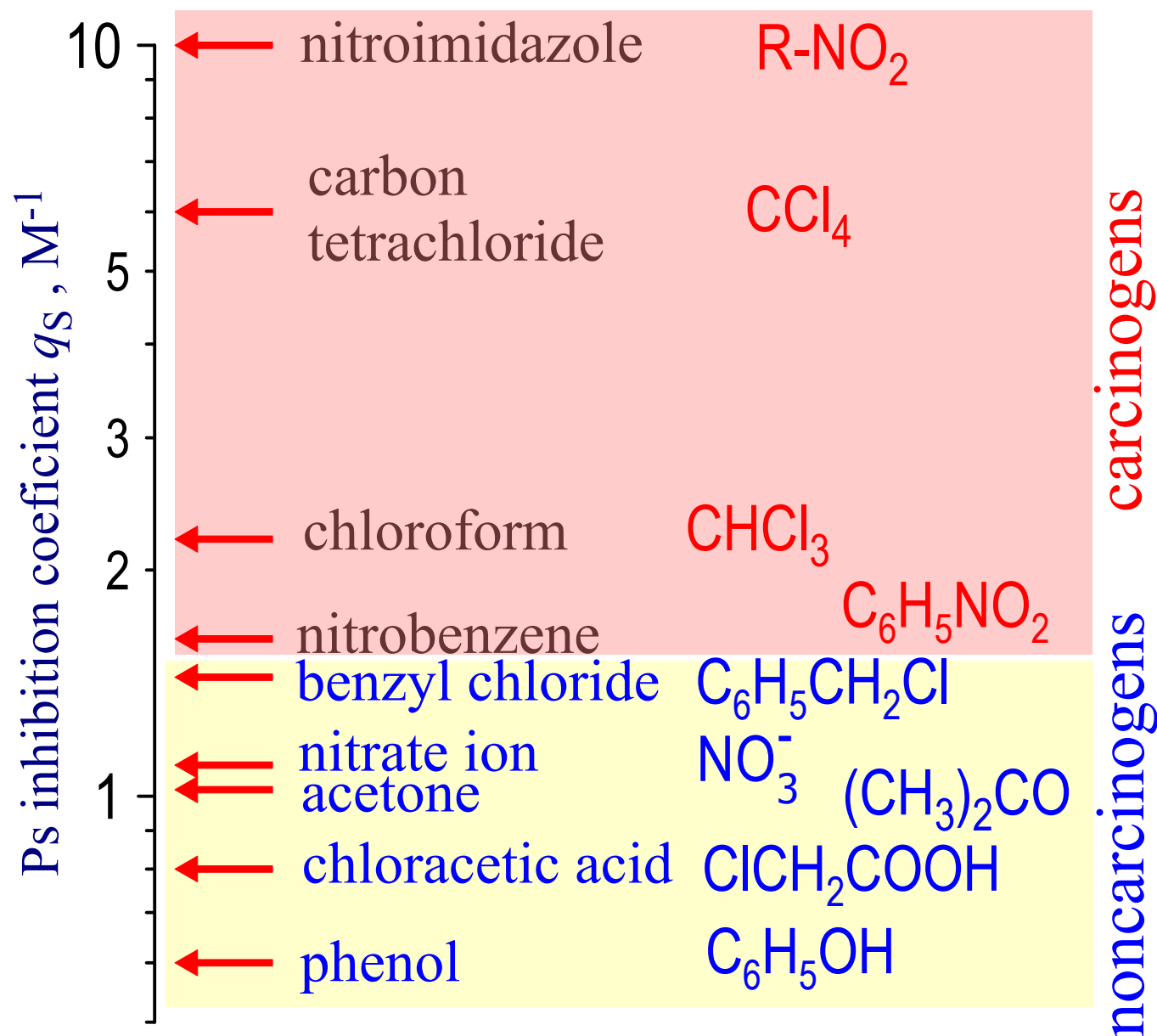
Elizabeth C. Miller
Univ. of Wisconsin
Medical Center

In 1971-79 James and Elizabeth Miller established that the **carcinogens are strong electron scavengers** (S). So they have to efficiently inhibit Ps formation because of competition of the following reactions in the e^+ blob:

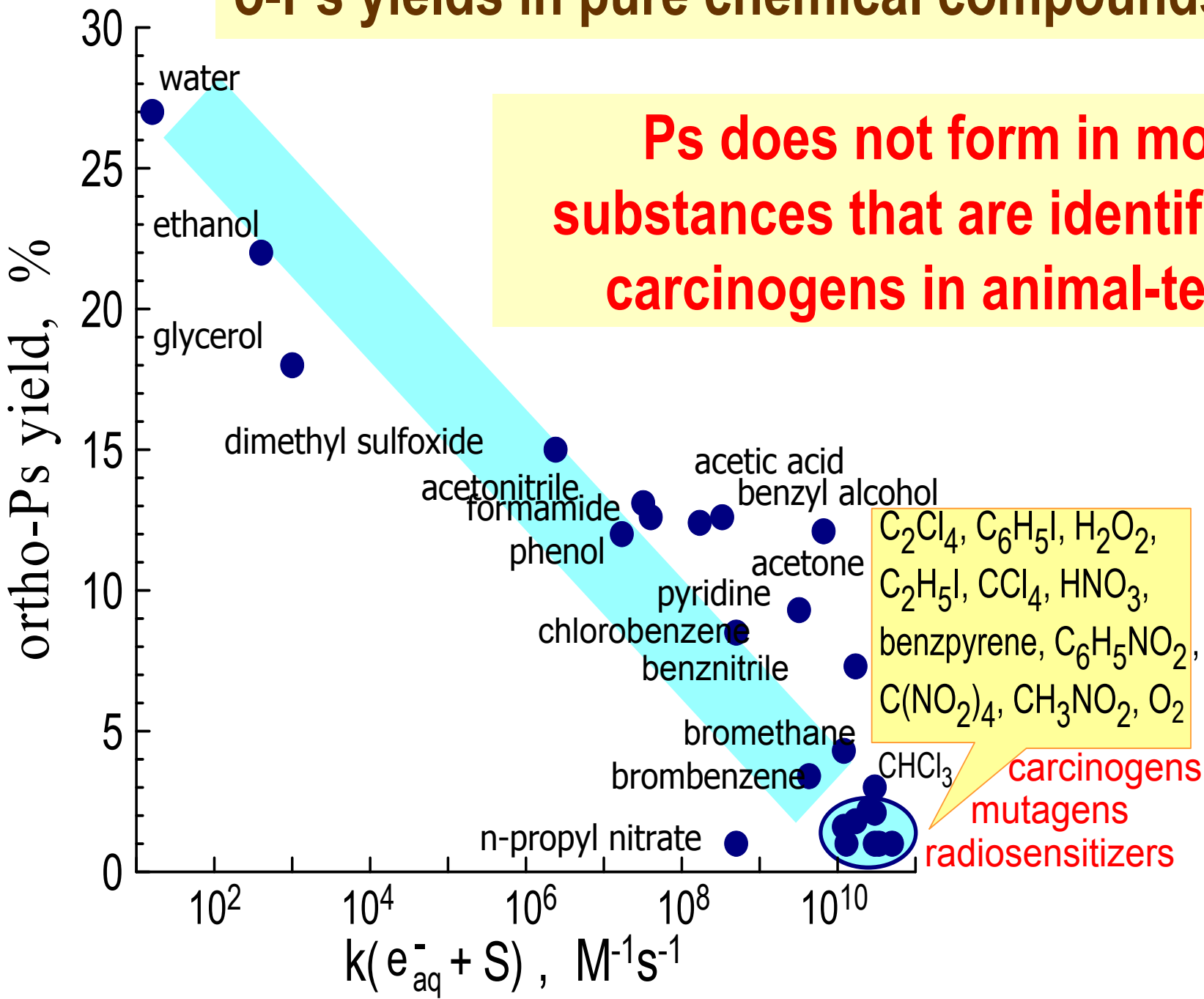


Therefore measuring Ps yeild under the presence of S, one may conclude about its carcinogenic activity.

Inhibition of Ps formation in ethanol by different compounds of track e⁻ (carcinogens and noncarcinogens)



o-Ps yields in pure chemical compounds (as is)



We have discussed only a small part of ...

Thank you!

**Welcome for your
questions,
discussions,
comments...**

**...the Positron
Annihilation
Spectroscopy**

**Хамелеоны *Brookesia micra* --
самые маленькие рептилии на
Земле. Живут на Мадагаскаре.**

10 self-testing questions:

- How positrons may be generated in matter?
- What is the spin of e^+ and Ps atom?
- Does the positron stable in vacuum? How long it lives in condensed matter?
- How much energy is released by a positron during its slowing down (in case of usage a radioactive e^+ source)?
- Why vacancy usually traps e^+ ?
- Why Ps atom does not form in metals (but only in dielectrics)?
- What electron is a precursor of Ps atom in matter?
- Why Ps forms a nanobubble in liquids?
- How e^+ emitters are usually delivered to a cancer tissue?