

Студент - дипломник: Мишагина А.С.
Научный руководитель: проф. Бяков В.М.
Консультант: д.ф. - м.н. Степанов С.В.

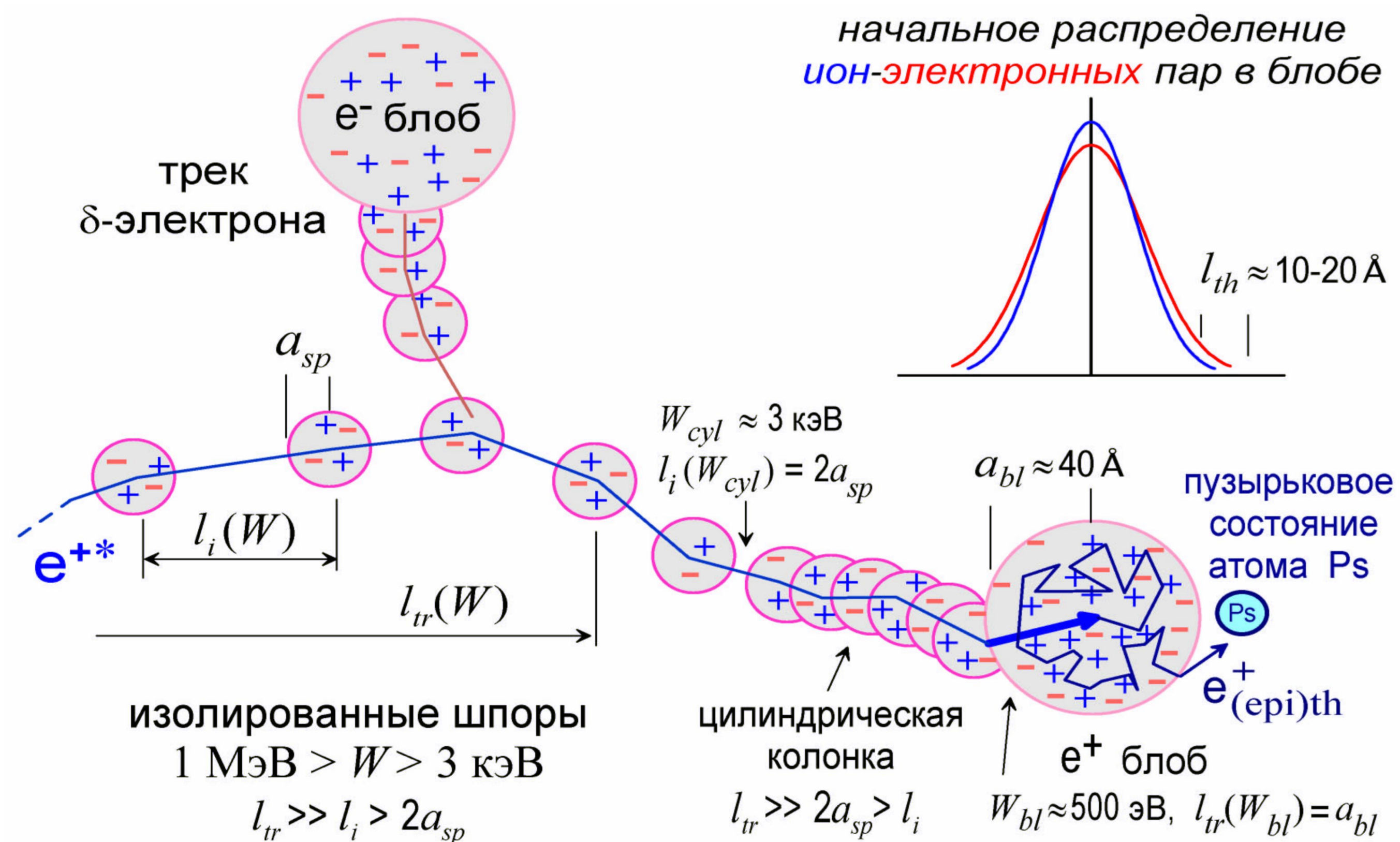
Анализ влияния температуры на образование позитрониевых состояний в воде

Постановка задачи

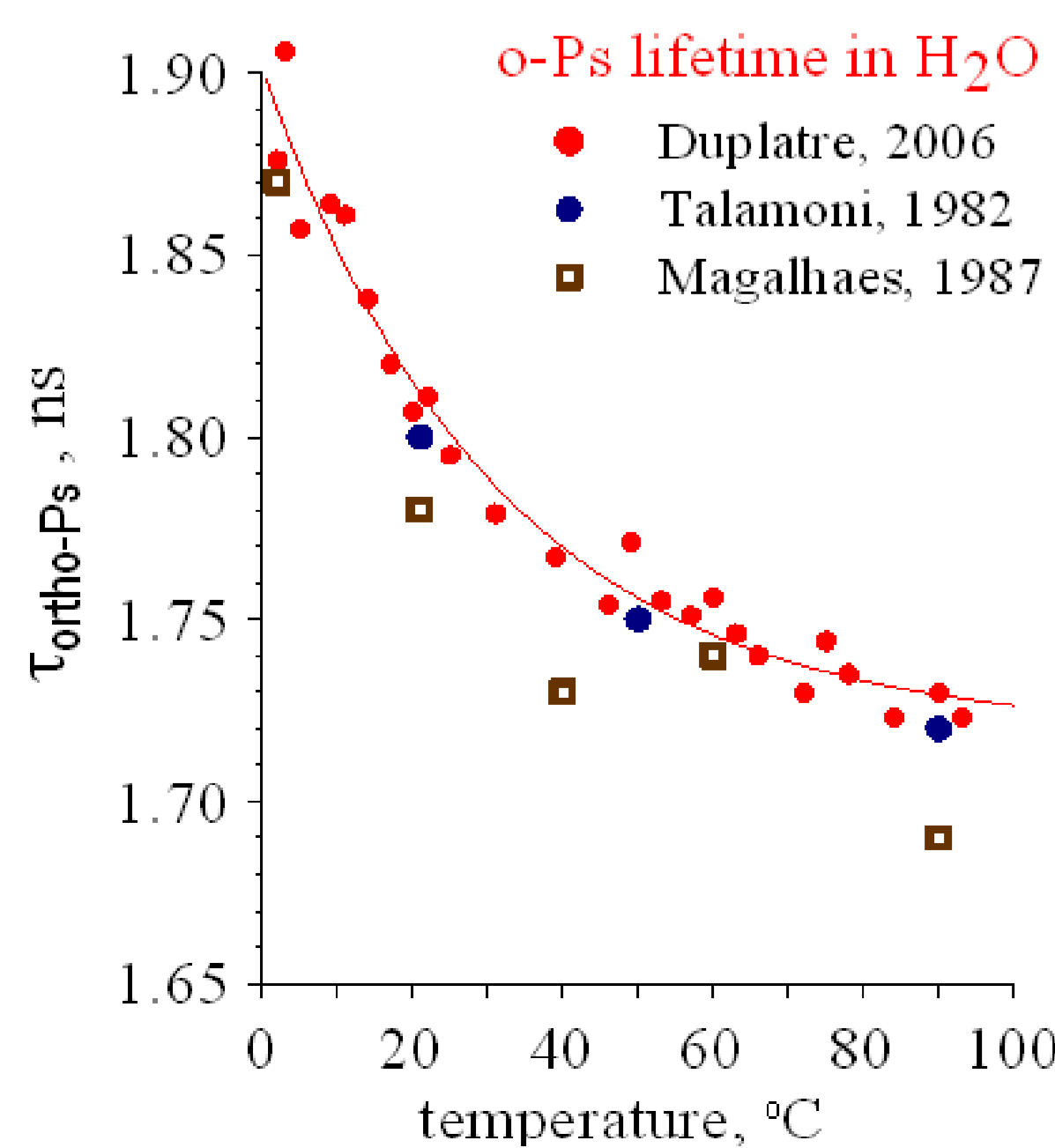
Позитронная спектроскопия — перспективный метод исследования вещества. Он основан на измерении параметров аннигиляционного излучения. На конечном участке трека позитрон окружен большим количеством ион-электронных пар. Позитрон может реагировать с одним из электронов и образовывать две разновидности атома позитрония (долгоживущий ortho-Ps (несколько нс) и короткоживущий para-Ps (около 0.1 нс)). Согласно общепринятым представлениям, позитроний образует вокруг себя пузырек нанометровых размеров. Оказывается, время жизни oPs:

$$\lambda_{pick-off} \propto \sqrt{\sigma(T)}$$

С повышением температуры время жизни ortho-Ps должно увеличиваться. В большинстве жидкостей это и имеет место, однако, в одной из самых распространенных жидкостей – воде, время жизни ortho-Ps убывает с температурой. Этот результат ставит под сомнение применимость пузырьковой модели. Задачей данной работы является объяснение такой “аномальной” зависимости времени жизни ortho-Ps от температуры.



Температурная зависимость времени жизни орто-позитрония в воде



Простой взгляд:
T ↑, σ(T) ↓, R ↑,
τ_{ortho-Ps} ~ σ(T)^{-1/2} ↑

Эксперимент

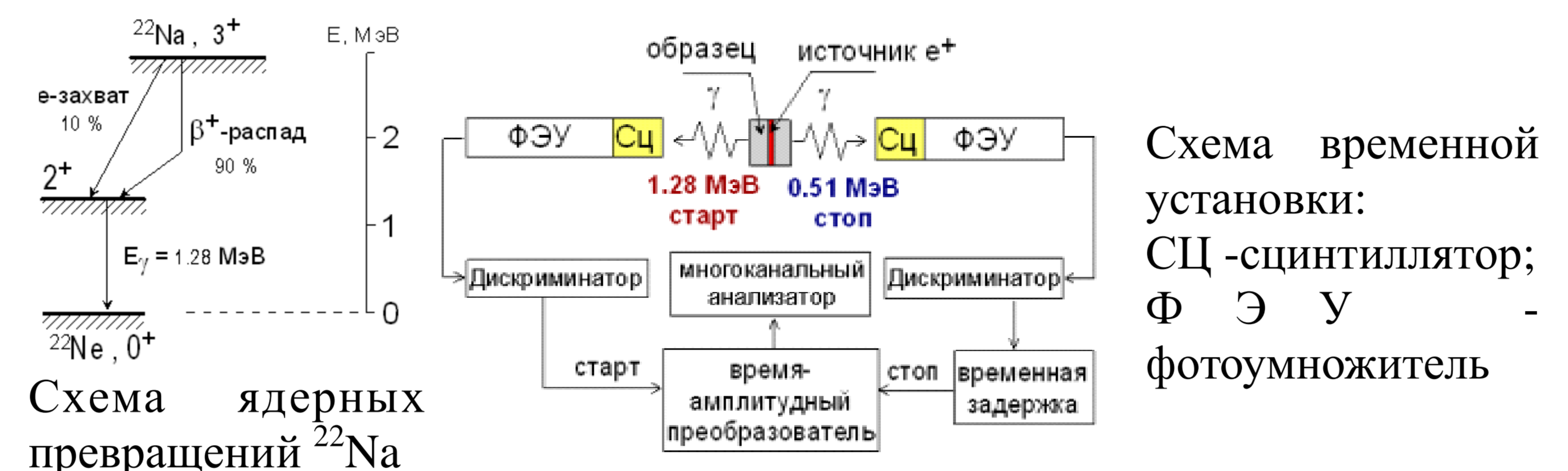
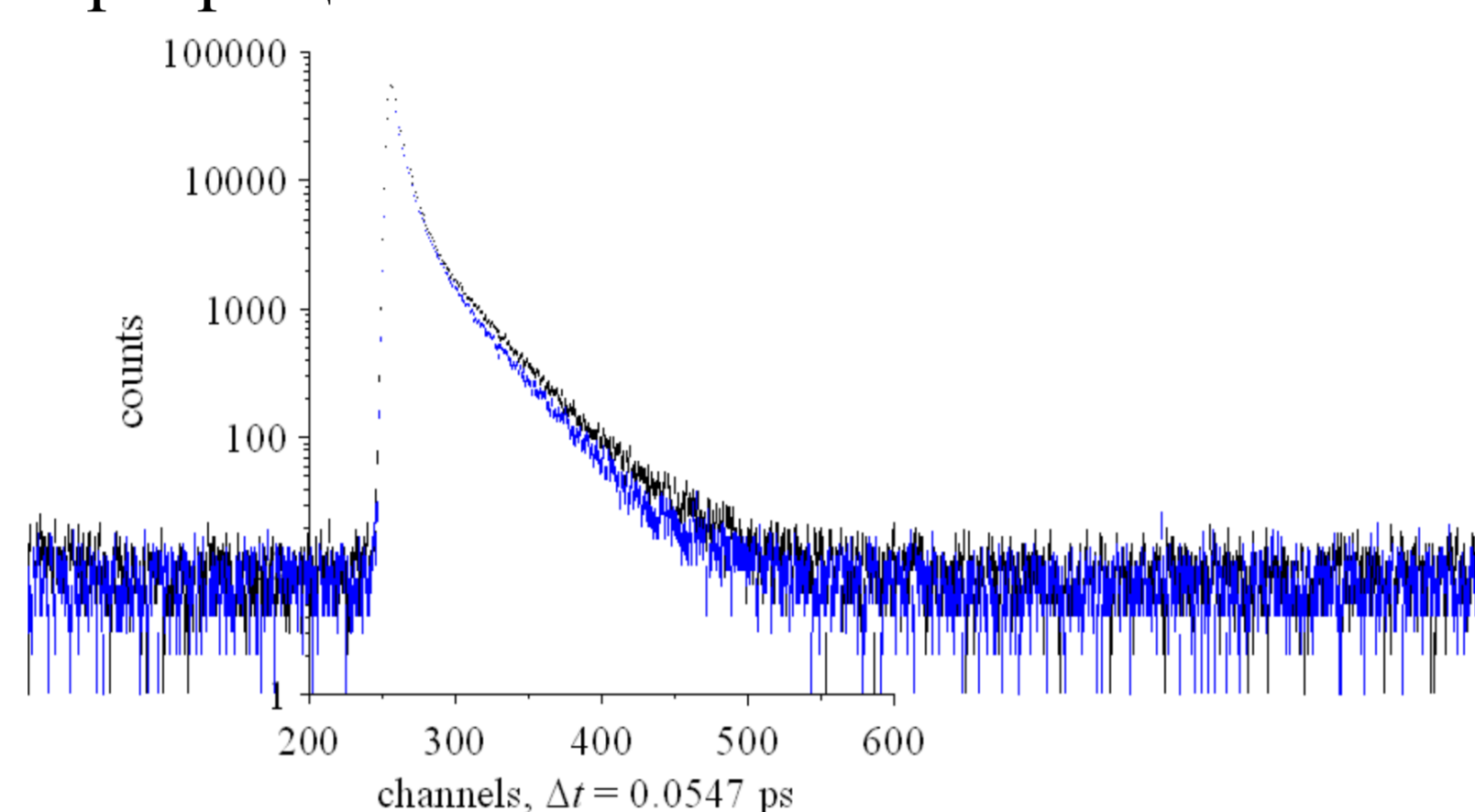
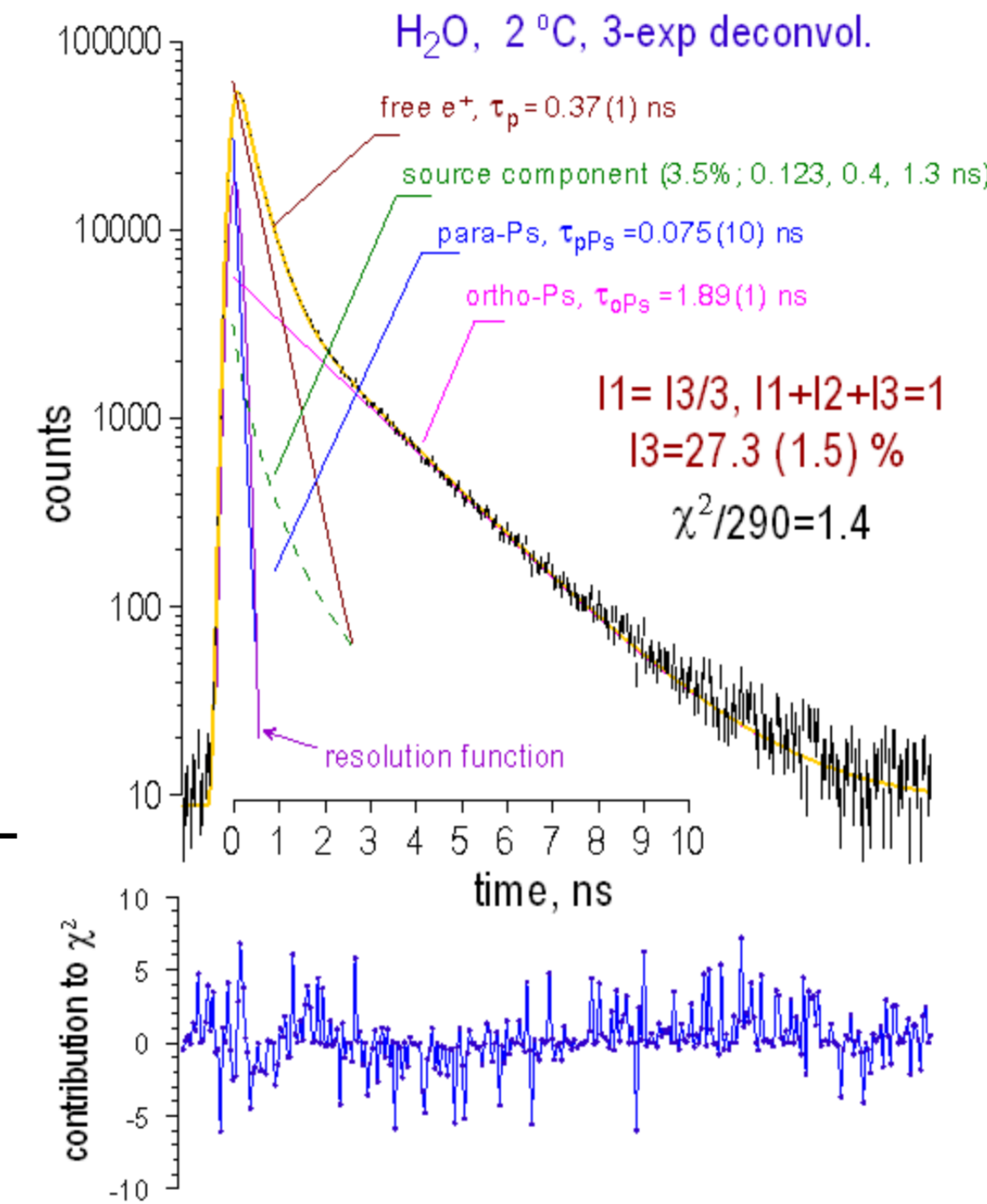


Схема ядерных превращений ²²Na

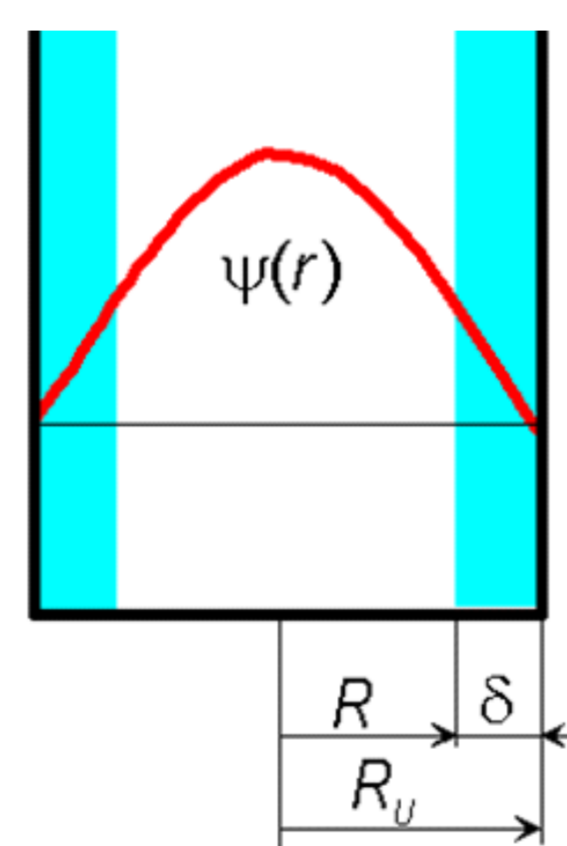


Примеры временных аннигиляционных спектров при 2^oС (черный) и 93^oС (синий)

Экспоненциальное разложение временного аннигиляционного спектра H₂O при 2^oС



Пузырьковая модель позитрония



$$\Psi(r) = \begin{cases} \frac{\sin(\pi r/R_U)}{\sqrt{2\pi R_U r}}, & 0 < r < R_U, \\ 0, & r > R_U, \end{cases}$$

$$P_R = \int_R^\infty |\Psi(r)|^2 4\pi r^2 dr = 1 - \frac{R}{R_U} + \frac{\sin(2\pi R/R_U)}{2\pi} \quad \lambda_{pick-off} = \lambda_p P_R$$

$$\lambda_{pPs} \approx \lambda_{pPs}^{2\gamma} \eta + \lambda_p P_R, \quad \lambda_{oPs} \approx \lambda_{oPs}^{3\gamma} \eta + \lambda_p P_R$$

$$\eta = |\psi(r_+ = r_-)|^2 / |\psi_{vac}(r_+ = r_-)|^2$$

Ионизация и электронные возбуждения:
e⁺⁺⁺ + H₂O → { e⁺⁺ + e⁻ + H₂O⁺, H₂O⁺ → { H₂O, H + OH

(Суб)пикосекундная стадия:
e⁻ + H₂O → e⁻ + H₂O⁺, e⁺ + H₂O → e⁺ + H₂O⁻
e⁻ + H₂O⁺ → H₂O⁺ + (H₂O) → H₂ + 2OH
H₂O⁺ + H₂O → OH + H₃O⁺
e⁻ + OH → OH⁻
e⁻ + H₂O₂ → H₂O₂⁻ → OH + OH⁻
e_{th}⁺ + e_{th}⁻ → qf-Ps
e_{th}⁺ + e_{aq}⁻ → qf-Ps

Наносекундная стадия:
e_{aq}⁻ + e_{aq}⁻ + 2H₂O → H₂ + 2OH⁻
e_{aq}⁻ + H + H₂O → H₂ + OH⁻
e_{aq}⁻ + H₃O⁺ → H + H₂O
e_{aq}⁻ + OH → OH⁻
e_{aq}⁻ + H₂O₂ → H₂O₂⁻ → OH + OH⁻
H + H → H₂
H + OH → H₂O
H + H₂O₂ → OH + H₂O
OH + OH → H₂O₂
OH + H₂O₂ → HO₂ + H₂O
OH⁻ + H₃O⁺ → 2H₂O

Окисление позитрония OH-радикалами и H₃O⁺:
OH + Ps => OH⁻ + e_{aq}⁺
H₃O⁺ + Ps => H + H₂O + e_{aq}⁺

Орто-пара конверсия Ps на внутритрековых радикалах:
o-Ps ⇌ p-Ps

Радиационно-химические реакции в позитронном блобе

Упрощение: во внутритрековых реакциях принимают участие лишь частицы одного вида - радикалы R

Внутритрековые реакции формализуются с помощью уравнений неомогенной химической кинетики:

$$\frac{\partial c_p}{\partial t} = D_{bl} \Delta c_p + k_{oxi} c_R (c_{pPs} + c_{oPs}) - \lambda_p c_p,$$

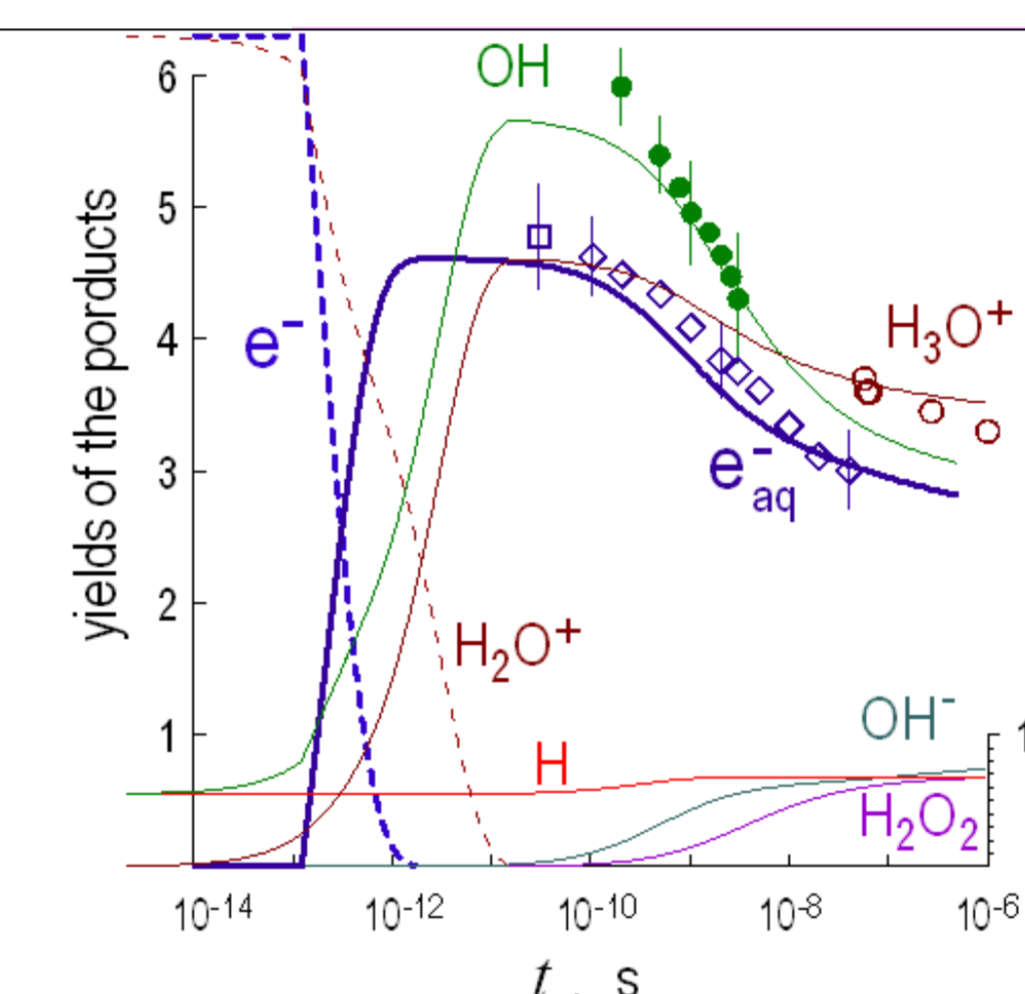
$$\frac{\partial c_{pPs}}{\partial t} = D_{bl} \Delta c_{pPs} - k_{oxi} c_R c_{pPs} - k_{opc} c_R (3c_{pPs} - c_{oPs}) - \lambda_{pPs} c_{pPs},$$

$$\frac{\partial c_{oPs}}{\partial t} = D_{bl} \Delta c_{oPs} - k_{oxi} c_R c_{oPs} + k_{opc} c_R (3c_{pPs} - c_{oPs}) - \lambda_{oPs} c_{oPs}.$$

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} = D_j(T) \Delta c_j - \sum_i k_{ij}(T) c_i c_j - c_j / \tau_j \quad c_j(t=0) \sim \frac{\exp(-r^2/a_{bl}^2)}{\pi^{3/2} a_{bl}^3}$$

Приближение предписанной диффузии:

$$c_j(r, t) = n_j(t) \cdot \mathcal{G}(r, t, a_{bl}, D_j), \quad \mathcal{G}(r, t, a_{bl}, D_j) = \frac{\exp[-r^2 / (a_{bl}^2 + 4 \int_0^t D_j(\tau) d\tau)]}{\pi^{3/2} (a_{bl}^2 + 4 \int_0^t D_j(\tau) d\tau)^{3/2}}$$



Подгонка радиационно-химических данных в чистой воде

Зависимость параметров от температуры

$$k_{ij} = 4\pi [D_i(T) + D_j(T)] (R_i + R_j)$$

$$D_i(T) = \frac{k_B T}{6\pi \eta(T) R_i}$$

$$\lambda_{pick-off} \propto \sqrt{\sigma(T)}$$

Выводы

1. Разработана кинетическая модель и написана программа, позволяющая интерпретировать временные спектры аннигиляции позитронов в воде в интервале температур 0-100 С.
2. Модель учитывает процессы диффузии и радиационно-химические реакции продуктов радиолитиза в треке позитрона. Образование и последующая судьба атома Ps рассматривались на фоне этих процессов. Приняты во внимание реакции окисления Ps ионами водорода и OH-радикалами, а также процесс орто-пара-конверсии.
3. Времена аннигиляции Ps рассчитывались на основе пузырьковой модели с учетом изменения размеров Ps пузырька при вариации температуры.
4. Для коэффициентов диффузии реагентов и диффузионно-контролируемых констант скорости реакций предполагалась стандартная T-зависимость.
5. Все подгоночные параметры (k_{ep}, k_{ox} (k_{opc}), W_p, δ, η, τ_{shift}) имеют ясный физический смысл. Их числовые значения согласуются с проделанными независимыми оценками.
6. В рамках этих естественных предположений достигнуто хорошее описание временных спектров аннигиляции позитронов в воде в интервале температур 0–100 С.
7. Тем самым продемонстрирована применимость пузырьковой модели Ps в воде. Это указывает на ее справедливость и в других молекулярных жидкостях.
8. Показано, что традиционный метод анализа временных аннигиляционных спектров, состоящий в их разложении на набор экспонент, и не учитывающий влияние внутритрековых процессов на эволюцию позитронных состояний, игнорирует физическую картину явления и оперирует параметрами (интенсивности и времена жизни), не имеющим четкого физического смысла. Это сильно осложняет их интерпретацию, а иногда приводит к парадоксам (таким как уменьшение радиуса Ps пузырька с ростом температуры).