

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

Симоновски Димитар

**Метод экспрессной газовой транспортировки
продуктов ядерных реакций и распадов в
различных газовых ячейках**

Научная специальность 1.3.15. Физика атомных ядер
и элементарных частиц, физика высоких энергий

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
Новиков Юрий Николаевич
д-р физ.-мат. наук, проф.

Санкт-Петербург
2024

Содержание

Введение	4
Глава 1 Теоретические основания метода газовой струи	18
1.1 Искусственный метод наработки экзотических нуклидов	20
1.2 Термализация продуктов ядерных реакций	22
1.3 Ламинарный поток в газовой ячейке	25
1.3.1 Параметры бинарной газовой смеси	26
1.4 Оценка параметров транспортировки	29
1.4.1 Время газовой транспортировки	29
1.4.2 Эффективность газовой транспортировки	32
Глава 2 Метод газовой транспортировки на реакторе TRIGA-Mainz	35
2.1 Установка TRIGA-SPEC и мишенная камера	35
2.2 Экспериментальные и теоретические исследования	38
2.2.1 Экспериментальные измерения кумулятивного времени транспортировки	38
2.2.2 Критерий выживания нуклидов	42
Глава 3 Экспериментальные изучения газовой ячейки MARA-LEB	46
3.1 Исследования газовой ячейки MARA-LEB на установке IGISOL	47
3.2 Экспериментальные изучения метода газовой транспортировки в ячейке MARA-LEB	49
3.2.1 Измерение эффективности транспортировки	49
3.2.2 Измерение времени эвакуации	56
Глава 4 Метод газовой транспортировки сверхтяжёлых нуклидов в институте GSI	69
4.1 Исследование сверхтяжёлых элементов в институте GSI	69
4.2 Газовая ячейка UniCell	70
4.2.1 Исследования конструкции клетки постоянного тока	72
4.2.2 Исследования конструкции радиочастотной воронки	75
4.2.3 Минимальное время транспортировки сверхтяжёлых элементов	79

4.3	Осесимметричная газовая камера отдачи	81
4.3.1	Скоростной профиль ламинарного потока в камере отдачи	84
4.3.2	Медианное время транспортировки $\langle \tau \rangle$ нуклидов $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$	88
4.3.3	Эффективность газовой транспортировки η нуклидов $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$	90
Глава 5	Газовая мишенная камера на установке PITRAP	93
5.1	Реактор ПИК и установка PITRAP	93
5.2	Геометрия мишени $^{235}_{92}\text{U}$ и мишенной камеры	94
5.3	Оптимизация метода газовой транспортировки	97
5.4	Новые доступные экзотические ядра для экспериментального изучения	99
Заключение		103
Список сокращений и условных обозначений		108
Список литературы		109
Благодарности		116
Приложение А	Вывод математических формул	117
A.1	Плотность бинарной газовой смеси ρ_{mix}	117
A.2	Обобщение уравнения распределения термализованных ионов	118
A.2.1	Пространственно распределенный источник	119
A.2.2	Точечный источник с произвольным угловым распределением испускаемых ионов	121
A.2.3	Распределение ионов, испускаемых изотропным точечным источником	124
A.3	Аналитический вывод подгоночной функции	130

Введение

Фундаментальные исследования в современной физике тесно связаны с раскрытием тайн элементарного строения физической материи и её разнообразного проявления в природе. Хотя сильное научное любопытство и быстрое технологическое развитие прошлого века довели физиков до экспериментального исследования субъядерной структуры атома, основные физические свойства для большинства ядерных изотопов элементов остаются всё ещё экспериментально неисследованными. В настоящее время количество исследованных изотопов среди всех известных элементов вплоть до $Z = 118$ исчисляется примерно около 4000, а в то же время теоретически предсказывается существование более 9000 различных нуклидов. Очевидная сложность, возникающая в экспериментальных исследованиях, связана, в первую очередь с отсутствием самих экзотических нуклидов в природе и их мощных природных источников, так-как среди всех вышеупомянутых исследованных нуклидов всего около 10% можно обнаружить непосредственного в земных условиях [1, 2]. Вторая причина, которая отчасти объясняет предыдущий изложенный факт, связана напрямую с радиоактивной природой доминирующего большинства изотопов данного элемента, которая может в свою очередь сильно ограничить время проведения экспериментальных измерений и физических исследований.

Среди них в особенности большой научный интерес вызывает изучение короткоживущих экзотических нуклидов с необыденным ядерным составом протонов и нейтронов, уносящих их вдаль от ландшафта стабильности к водам моря ядерной неустойчивости, где ожидается нахождение ответа о наличии существования, изотопной распространённости и природном синтезе элементов тяжелее ${}^{56}_{26}\text{Fe}$ после Большого Взрыва. Последнее ограничение в ядерном синтезе элементов связано с предельным максимальным значением

энергии связи нуклона в ядре, с которым могли бы быть созданы элементы путём термоядерных реакций слияния в звёздных ядрах. Для преодоления этого ограничения, были предложены более радикальные астрофизические условия синтеза элементов, присутствующие в предельном случае при мощных взрывных сверхновых звёздных процессах, при которых могут проявиться теоретически предполагаемые процессы медленного s- и быстрого r-захвата нейтронов (r-rapid и s-slow процесс). Хотя s-процесс может объяснить синтез элементов вплоть до ^{209}Bi , синтеза более тяжёлых и «экзотических» изотопов элементов и более точного объяснения изотопической распространённости в природе можно добиться только через более мощный r-процесс [3]. Таким образом, экспериментальные изучения, а в первую очередь масс-спектрометрия сильно нейтронно и нейтроноизбыточных экзотических нуклидов вблизи линий r-процесса, открывают не только редкую возможность исследования природы астрофизических взрывных процессов в земных условиях, но и телескопический взгляд назад во время создания подавляющего большинства элементов в природе.

Также нельзя обойтись без упоминания ещё одного особого множества научно интригующих нуклидов, чья «экзотика» заключается не в избыточности их состава по отношению к определённому типу нуклона, а в величине их массовых чисел, благодаря чему они были названы сверх-тяжёлыми элементами. Они представляют собой трансактиниды с атомным числом $Z \geq 104$, заселяющие самую верхнюю часть моря неустойчивости на карте нуклидов, где по теоретическим предсказаниям ядерных моделей ожидается нахождение острова стабильности из-за проявления дополнительной ядерной устойчивости, связанной с закрытиями нейтронных и протонных оболочек в районе магических чисел $Z = 114$ и $N = 184$. Таким образом, исследования сверх-тяжёлых нуклидов, в первую очередь измерение их массы в основном состоянии, могут не только послужить проверкой теоретических ядерных теорий и моделей, предсказывающих энергию связи (массу) ядра, но и раскрыть возможный неизведанный изолированный ландшафт на карте нуклидов, где удивительным образом другими ядерными моделями не предсказывается локального уменьшения времени полураспада в районе глубокого моря ядерной неустойчивости [2].

С целью экспериментальных исследований основных физических свойств экзотических нуклидов, основным для ядерной физики, которое является масса ядра, учитывая ранее изложенную природу экспериментальной проблематики, в разных точках мира были построены и усовершенствованы комплексные физические установки с целью наработки и высокоточного измерения масс редких короткоживущих нуклидов. Среди самых известных можно перечислить установку TRIGA-TRAP в университете имени Иоганна Гутенберга (Майнц, Германия) [4, 5, 6], JYFLTRAP на установке IGISOL-4 в ускорительной лаборатории в Университете Ювяскюля (Ювяскюля, Финляндия) [7, 8] и установки SHIPTRAP и TASCA в институте GSI (Дармштадте, Германия) [9, 10]. В большинстве из существующих установок основным вариантом промежуточного этапа, связывающего начальный этап наработки экзотического нуклида (реакторный, ускорительный) и конечный этап экспериментального измерения (ядерная спектроскопия распада, масс-спектрометрия), является так называемый метод газовой транспортировки, который ещё с 60-х годов прославился своей высокоэффективной и быстрой доставкой короткоживущих нуклидов к измерительным установкам [11, 12, 13, 14]. На данный момент метод газовой транспортировки приспособлен для изучения всех вышеупомянутых типов экзотических нуклидов, независимо от метода продукции на ускорителях или реакторах и метода экспериментального измерения, через модификации, оптимизации и усовершенствования газовых ячеек, которые обычно являются основной частью имплементации метода газовой транспортировки. Благодаря этому создаются требуемые обстоятельства для экспериментального изучения протоноизбыточных и сверхтяжёлых ядер на ускорительных установках и нейтроноизбыточных ядер на реакторных установках, которые обеспечивают расширение наличия известных изотопов нуклидов на карте нуклидов к предельным линиям протонной и нейтронной устойчивости и к линии спонтанного деления.

В данной работе были проведены экспериментальное и теоретическое изучение метода газовой транспортировки, который успешно реализован на установках TRIGA-SPEC, IGISOL и на экспериментальной установке на масс-сепараторе TASCA. Основной целью диссертации являлось экспериментальное

измерение и математическое описание основных измеряемых параметров транспортировки (время и эффективность транспортировки) и перенос полученных результатов и математических моделей для оптимизации и реализации метода газового носителя на один из предполагаемых вариантов экспериментальной установки PITRAP для выноса активности из мишенной камеры на высокопоточном реакторе ПИК (Гатчина, Российская Федерация) [15]. Помимо того, были проведены теоретические исследования для конструкции будущей газовой ячейки UniCell и численные расчёты для исследования осесимметричной камеры отдачи продуктов ядерных реакции (RTC-Recol Transfer Chamber) на масс-сепараторе TASCA.

Диссертация состоит из пяти основных глав, введения, заключения и одного приложения.

В первой главе изложены теоретические основы, математические уравнения и формулы, описывающие процесс экспрессной газовой транспортировки, которые используются в дальнейшем моделировании экспериментов и оценок основных параметров газовой транспортировки.

Во второй главе представлены экспериментальные результаты, проведённые на установке TRIGA-SPEC на реакторе TRIGA-Mainz, и их теоретическое моделирование для предсказания минимального кумулятивного времени транспортировки осколков деления из мишенной камеры.

В третьей главе представлены экспериментальные результаты тестирования газовой ячейки MARA-LEB по определению эффективности и характерных времён транспортировки, проведённые на установке IGISOL-4 в ускорительной лаборатории в университете Ювяскюля, и их теоретическое моделирование для предсказания параметров транспортировки.

В четвёртой главе представлены исследования новой конструкции и численные расчёты для определения основных параметров транспортировки, проведённые в программе COMSOL Multiphysics, для газовой ячейки UniCell и аксиально симметричной камеры отдачи продуктов ядерных реакций (RTC).

В пятой главе рассматривается перенос ранее полученных результатов исследования для имплементации и оптимизации метода газового носителя на предлагаемую экспериментальную установку ПИТРАП, учитывая

использование более массивной мишени с осесимметричной геометрией и более мощных потоков нейтронов на высокопоточном реакторе ПИК по отношению к уже существующим экспериментальным условиям на реакторе TRIGA-Mainz.

Актуальность темы

Экспрессный метод транспортировки газовой струи представляет собой мощный инструмент для транспортировки короткоживущих экзотических радиоактивных изотопов, что позволяет проводить важные исследования в области ядерной физики. Данная диссертация посвящена использованию этого метода для высокоэффективного и сверхбыстрого выноса исследуемых короткоживущих ядер из газовой ячейки, прежде всего для экспериментальной спектроскопии распада и масс-спектрометрии. В особенности важность сочетания данного метода с высокоточной масс-спектрометрией экзотических ядер заключается в её многогранном вкладе в физическое понимание ядерного ландшафта на карте нуклидов.

Во-первых, экспериментальное определение фундаментальных физических свойств экзотических нуклидов расширит границы известных экспериментально изученных нуклидов на карте нуклидов. Точным измерением масс и исследованием характеристик распада можно получить новую информацию о структуре ядра и пределах стабильности. Результаты исследований такого рода играют важную роль в уточнении современного понимания сил, которые управляют поведением нуклонов в атомных ядрах.

Во-вторых, масс-спектрометрия ядер r -процесса играет ключевую роль в разгадке загадки синтеза тяжёлых элементов после Большого взрыва. Исследуя свойства ядер, которые, как полагают, синтезируются посредством r -процесса, можно проверить теоретические модели и потенциально объяснить происхождение элементов тяжелее железа во Вселенной.

В-третьих, эти измерения служат ценным ориентиром для оценки эффективности различных ядерных моделей и теоретических представлений о физике ядерного взаимодействия. Сравнивая предсказанные энергии связи с экспериментально определенными массами, можно оценить сильные и слабые

стороны существующих моделей, открывая путь для разработки более полных теорий, которые точно описывают поведение ядра по всей карте нуклидов.

Данная диссертация углубляется в исследовании использования метода транспортировки газовой струи в различных газовых ячейках, реализованных в различных известных мировых ускорительных и реакторных лабораториях, представляя новые экспериментальные и теоретические результаты в данной области исследования. Таким образом, впервые был экспериментально использован метод газовой транспортировки в «онлайн режиме» для экспериментального сочетания установки TRIGA-SPEC с установкой TRIGA-TRAP и проведения измерений на ловушке Пеннинга на реакторе TRIGA-Mainz [5]. Помимо этого, впервые был протестирован самый современный тип газовой ячейки MARA-LEB на установке IGISOL-4 и экспериментально определены основные параметры газовой транспортировки, которые подготовили ячейку к подключению на установке MARA-LEB [16]. Математические модели и заключения, полученные при исследовании метода газовой транспортировки в мишенной камеры TRIGA-Mainz и ПИК, могут быть использованы и учтены при технической конструкции мишенной камеры и сопряжённой капиллярной системы на высокопоточном реакторе ПИК и для оценки ожидаемых экспериментальных параметров транспортировки короткоживущих нуклидов.

Цели и задачи работы

Целью диссертации являлось исследование метода газовой транспортировки экзотических нуклидов, реализуемого в разных передовых установках в мире, и перенос полученных результатов на предлагаемый вариант установки PITRAP. Для осуществления этой цели в рамках представленного исследования были поставлены и решены следующие задачи:

- Обзор и исследование метода газовой транспортировки, реализованного в различных физических экспериментальных условиях и на разных установках.
- Обзор и исследование теоретических моделей процессов, лежащих в основе метода газовой транспортировки.

- Экспериментальные измерения и исследования основных параметров транспортировки эвакуированных продуктов ядерных реакции и распадов, реализованные в различных вариантах газовых ячеек.
- Математическое моделирование проведенных экспериментальных исследований и вывод формул, описывающих основные параметры транспортировки.
- Разработка методов и аналитический вывод подгоночных кривых анализа экспериментальных данных и спектров ядерного распада.
- Проведение численных расчётов и моделирование экспериментов в программе COMSOL Multiphysics для реализованных или планируемых в будущем экспериментальных исследований и измерений.

Теоретическая и практическая значимость работы

Теоретическая и практическая значимость работы определяется как экспериментальной проверкой и оценкой особенности метода газовой транспортировки реализованной на разных установках, так и разработкой методов теоретического моделирования проведённых экспериментальных исследований и анализа полученных результатов для получения основных параметров транспортировки. В результате теоретического исследования были сделаны математические выводы формул для оценки времени транспортировки, распределения термализованных ионов, испускаемых изотропно точечным источником, формул подгоночных функций для временных профилей, которые могут быть использованы в подготовительном этапе моделирования и последующей обработке результатов будущих экспериментов. Также результаты теоретической работы могут быть использованы при имплементации оптимизированного метода газового носителя на один из вариантов осуществления экспериментальной установки для выноса наработанной активности на высокопоточном реакторе ПИК под названием PITRAP и использования результатов исследования геометрии установки с учётом геометрии делящейся мишени. В результате экспериментального исследования была протестирована и охарактеризована

работа мишенной камеры с капиллярной системой на установке TRIGA-SPEC и газовой ячейки MARA-LEB на установке IGISOL методом газовой струи, которая обеспечила подготовку установки TRIGA-SPEC к подключению с установкой TRIGA-TRAP и установки газовой ячейки в установку MARA-LEB. Все изложенные методы и результаты исследования в данной работе могут быть полезны при возможной будущей реализации или оптимизации метода газовой транспортировки на высокоэнергетических исследовательских реакторных и ускорительных установках, используемых для наработки экзотических ядер, таких как высокопоточный реактор ILL в институте Лауэ - Ланжевена (Гренобль, Франция) [17], линейный ускоритель SPRIRAL2 LINAC в исследовательском центре GANIL (Кан, Франция) [18], ускорительный комплекс FAIR в исследовательском институте GSI (Дармштадт, Германия) [19], линейный ускоритель в научно-исследовательской лаборатории ESS (Лунд, Швеция) [20], в лаборатории редких изотопов ARIEL в национальном центре ускорителей элементарных частиц TRIUMF (Ванкувер, Канада) [21], ускоритель тяжёлых ионов FRIB в Мичиганском университете (Мичиган, США) [22]. Вне научно исследовательской сферы метод газовой транспортировки может применяться для выноса наработанных радиоактивных нуклидов для медицинских целей в радиологии (радиодиагностика, радиотерапия, радиофармпрепараты), для контроля качества производства в промышленной индустрии (недеструктивная диагностика и тестирование оборудования гамма-лучами и измерения толщины, плотности или состава материалов во время производства), для продления срока хранения и улучшения качества в пищевой промышленности (облучение пищевых продуктов гамма-лучами), для экологических исследований и в гидрологии (исследование течений, мониторинг загрязнений окружающей среды), для производства пожарных извещателей (детектор содержит небольшое количество альфа-распадающихся ядер) и др...

Научная новизна работы

Впервые были проведены онлайн-измерения на экспериментальной установке TRIGA-SPEC с использованием метода газовой транспортировки с целью тестирования и подготовки её к успешному соединению с TRIGA-TRAP.

В результате были проведены первые онлайн-экспериментальные измерения на установке TRIGA-TRAP, которые были опубликованы [5]. Впервые были проведены испытания методом газовой струи на экспериментальной установке IGISOL-4 с целью тестирования газовой ячейки MARA-LEB для дальнейшего успешного соединения газовой ячейки с вакуумным сепаратором MARA-LEB и измерения масс протоноизбыточных ядер. Экспериментальные результаты были опубликованы в работе [16]. Впервые аналитически выведена формула пространственного распределения термализованных ионов, испускаемых изотропно точечным источником, и осуществлено обобщение формулы в более физически реалистичном случае трёхмерного источника.

Личный вклад автора

- Участие в получении и анализе результатов онлайн-экспериментов на реакторе TRIGA-Mainz.
- Участие в экспериментальных испытаниях газовой ячейки MARA-LEB и анализ полученных экспериментальных результатов.
- Участие в теоретическом и математическом моделировании конструкции газовой ячейки UniCell.
- Проведение численных расчётов с целью исследования имплементации метода газовой транспортировки на осесимметричной камере отдачи RTC.
- Математический вывод формул, касающихся времени транспортировки, распределения термализованных ионов, изотропно излучаемых точечным источником ионов, подгоночных функций для временных профилей эвакуации ионов.

Достоверность полученных результатов

Достоверность полученных экспериментальных и теоретических результатов в данной работе были обеспечены как большим количеством обсуждений с научным руководителем и ведущими членами научных групп во время проведения стажировок, так и публикациями полученных

экспериментальных и теоретических результатов в известных международных журналах.

На определённых этапах анализа в данной работе проводилось сравнение полученных результатов с ранее опубликованными результатами сопоставимых исследований и симуляциями в программах TRIM/SRIM и COMSOL Multiphysics [23, 24].

Апробация работы

Результаты работы были представлены на международных конференциях и форумах с международным участием:

1. D. Simonovski, Yu.N. Novikov, Yu.I. Gusev, S.V. Chenmarev, A study on the transportation of reactor produced exotic nuclei by the Gas-jet method, LXVIII International conference “NUCLEUS” 2018, 2-6 July 2018, Voronezh (Russian Federation)
2. D. Simonovski, S.V. Chenmarev, Transportation of exotic fission products targeted for the goals of astrophysical r-process, International conference “Physica.SPb/2018”, 23-25 October 2018, Saint Petersburg (Russian Federation)
3. D. Simonovski, S.V. Chenmarev, A study on the transportation of reactor produced exotic nuclei by the gas-jet method, V Russian youth scientific forum “Open Science 2018”, 21-23 November 2018, Gatchina (Russian Federation)
4. D. Simonovski, Yu.N. Novikov, Gas-jet transportation of nuclear reaction products for spectroscopic investigations of short-lived exotic nuclides, International conference “Physica.SPb/2019”, 22-24 October 2019, Saint Petersburg (Russian Federation)
5. D. Simonovski, I. Moore, Yu.N. Novikov, A comparative study on the gas-jet transportation method for nuclear spectroscopy measurements, LXX International conference “NUCLEUS 2020”, 11-17 October 2020, Saint-Petersburg (Russian Federation)
6. D. Simonovski, PITRAP Group, Thermodynamics of the exotic nuclei gas transportation from the ПИК reactors target chamber, VII Russian youth

scientific forum “Open Science 2020”, 18-20 November 2020, Gatchina (Russian Federation)

7. D. Simonovski, Yu.N. Novikov, Transmission efficiency of isotropically emitted nuclear decay products from the radioactive source, LXXI International conference “NUCLEUS 2021”, 20-25 September 2021, Saint-Petersburg (Russian Federation)
8. D. Simonovski, Study of the design features of a new high-density gas Uni-Cell cells for studying superheavy elements, IX Russian youth scientific forum “Open Science 2022”, 16-18 November 2022, Gatchina (Russian Federation)
9. D. Simonovski, Исследование основных параметров газовой экстракции и транспортировки экзотических ядер в камере отдачи продуктов реакции, X Russian youth scientific forum “Open Science 2023”, 15-17 November 2023, Gatchina (Russian Federation)
10. D. Simonovski, Анализ применения метода газовой транспортировки в разных газовых ячейках для экспериментальных исследований экзотических нуклидов, “Science and Practice 2023”, 22-24 November 2023, Saint Petersburg (Russian Federation)

Публикации по теме работы

1. D. Simonovski, S.V. Chenmarev, “Transportation of exotic fission products targeted for the goals of astrophysical r-process” // J. Phys.: Conf. Ser. — 2018. — V. 1135. — P. 1–6, (<https://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/1135/1/012047>)
2. D. Simonovski, Y.N. Novikov, Y.I Gusev, S.V. Chenmarev, “Gas Transport of Fission Products from a Target Near the Core of a High-Flux Reactor” // Atomic Energy. — 2019. — V. 125. — P. 384–390, (<https://doi.org/10.1007/s10512-019-00498-1>)
3. J. Grund, M. Asai, K. Blaum, M. Block, S. Chenmarev, Ch.E. Düllmann, K. Eberhardt, S. Lohse, Y. Nagame, Sz. Nagy, P. Naubereit, J.J.W. van de Laar, F. Schneider, T.K. Sato, N. Sato, D. Simonovski, K. Tsukada, K. Wendt, “First

online operation of TRIGA-TRAP” // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A. — 2020. — V. 972. — P. 1–8, (<https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164013>)

4. A. Zadvornaya, J. Romero, T. Eronen, W. Gins, A. Kankainen, I.D. Moore, P. Papadakis, I. Pohjalainen, M. Reponen, S. Rinta-Antila, J. Sarén, D. Simonovski, J. Uusitalo, "Offline commissioning of a new gas cell for the MARA Low-Energy Branch“ // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res B. — 2023. — V. 539. — P. 33–42, (<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2023.03.016>)

Положения, выносимые на защиту

- Анализ данных экспериментальных результатов, полученных для мишенной камеры при стажировке на реакторе TRIGA-Mainz (Германия) и для газовой ячейки MARA-LEB на установке IGISOL-4.
- Математический вывод формул, касающихся распределения термализованных ионов, испускаемых точечным источником ионов и вывод подгоночных функций для временных профилей эвакуированных частиц и определения времени эвакуации для газовой ячейки MARA-LEB при стажировках в ускорительной лаборатории в университете Ювяскюла (Финляндия).
- Численные расчёты и теоретическое моделирование конструкции электродов постоянного тока и вывода оценочной формулы для минимального времени транспортировки сверхтяжёлых элементов из газовой ячейки UniCell при стажировке в институте GSI в Дармштадте (Германия).
- Численные расчёты и теоретическое моделирование для оценки основных параметров транспортировки транспортируемых ядер сверхтяжёлых элементов до детектора на основе новой аксиально симметричной геометрии RTC, планируемой для установки в сопряжении с масс-сепаратором TASCA, проведённых при стажировке в институте GSI в Дармштадте (Германия).
- Численные и аналитические расчёты с целью оптимизации метода газовой

транспортировки и переноса полученных результатов и математических моделей на предполагаемый вариант экспериментальной установки PITRAP на высокопоточном реакторе ПИК для выноса наработанной активности газовым потоком к измерительной установке.

Основные научные результаты

1. Теоретический вывод формулы и численные оценки времени транспортировки из мишенной камеры до конца капиллярной системы на реакторе TRIGA-Mainz, см. работу [25, 26] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 90%)
2. Теоретический вывод критического условия выживания транспортируемых радиоактивных нуклидов и определение наличия самых тяжёлых изотопов, доступных для экспериментального изучения на реакторе TRIGA-Mainz и ПИК, см. работу [25, 26] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 90%)
3. Оптимизация времени транспортировки в мишенной камере и капиллярной системе с помощью вывода формул для оптимальных критических значений для газодинамических условий и размеров капиллярной системы на реакторе TRIGA-Mainz и ПИК, см. работу [25] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 90%)
4. Экспериментальное измерение эффективности транспортировки радиоактивных нуклидов $^{219}_{86}\text{Rn}$ из газовой ячейки MARA-LEB до дипольного магнита на установке IGISOL-4, см. работу [16] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 70%)
5. Экспериментальное измерение временных профилей и определение характерных времён транспортировки радиоактивных нуклидов $^{219}_{86}\text{Rn}$ из газовой ячейки MARA-LEB сразу после дипольного магнита на установке IGISOL-4, см. работу [16] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 70%)
6. Экспериментальное измерение времени транспортировки из мишенной

камеры до конца капиллярной системы на реакторе TRIGA-Mainz, см. работу [5] из списка литературы (личный вклад составляет не менее 50%)

ГЛАВА 1

Теоретические основания метода газовой струи

Основная идея применения метода газового носителя заключается в использовании химически инертных и лёгких газов (благородные газы типа гелий, неон, аргон...) в таких термодинамических и газодинамических условиях, которые обеспечивают очень компактный объём термализации в буферном газе и очень быструю транспортировку термализованных короткоживущих нуклидов до последующей части установки. В реальных экспериментальных условиях данный метод реализуется через особые технически сконструированные устройства, которые называются газовые ячейки. В общем, изучение метода газовой транспортировки можно разделить на два основных варианта его применения в зависимости от сопряжения газовой ячейки с разными типами установки для наработки экзотических нуклидов, которые разделяются на ускорительные и реакторные.

1. На ускорительных установках метод газового носителя осуществляется через использование газовых ячеек вдали от места продукции экзотических нуклидов на экспериментальной установке. Начальная часть этих установок обычно состоит из тяжёлой вращающейся мишени, которая облучается ускоренным потоком ионов из ускорителя, в следствии чего полученные продукты ядерных реакций слияния-испарения или фрагментации вылетают из вещества мишени и попадают на масс-сепаратор для предварительной масс-сепарации экзотического пучка ионов. После предварительного масс-сепаратора устанавливается газовая ячейка, в которую фокусируется ионный пучок, которая в общем состоит из:

- а) Отверстия для вкачки газа во внутренний объём ячейки

- б) Входного окна, через который пропускается сфокусированный экзотический пучок ионов, служащий в качестве энергетического деградера для уменьшения энергии пучка
- в) Основного внутреннего объёма для газовой термализации и транспортировки термализованных нуклидов
- г) Выходного отверстия для откачки газа и экстракции транспортируемых нуклидов.

В этих газовых ячейках метод газовой транспортировки начинается с момента термализации нуклидов в буферном газе и заканчивается экстракцией транспортируемых нуклидов из газовой ячейки.

2. На реакторных установках, в отличие от ускорительных, метод газового носителя осуществляется через использования газовых ячеек типа мишенной камеры, так как сама делящаяся мишень наносится на внутренние стенки ячейки. Так как облучение мишени в реакторном варианте осуществляется нейтронным потоком, мишенная камера устанавливается в одном из нейтронных каналов реактора, из-за чего нужна дополнительная экстракция транспортируемых нуклидов из выходного отверстия мишенной камеры до следующей части остановки вне нейтронного канала, при помощи длинной капиллярной трубкой. В этом варианте газовой ячейки полностью отсутствует предварительная масс-сепарация экзотического пучка, и в общем она состоит из:

- а) Отверстия для вкачки газа в камеру
- б) Тонкого слоя делящейся мишени, которая наносится обычно на заднюю стенку мишенной камеры
- в) Основного внутреннего объёма для газовой термализации и транспортировки термализованных нуклидов
- г) Выходного отверстия и системы капиллярных трубок для откачки газа и экстракции транспортируемых нуклидов из газовой ячейки и нейтронного канала соответственно.

В этом варианте газовой ячейки исследование метода газовой транспортировки начинается с момента наработки нуклидов в веществе делящейся мишени и заканчивается экстракцией транспортируемых нуклидов из нейтронного канала.

Несмотря на некоторые присутствующие отличия между двумя вариантами газовой ячейки, критерии оценки эффективности метода газовой транспортировки в обоих случаях одинаковы и заключаются в повышении эффективности и уменьшении времени транспортировки нуклидов. В последующих подглавах изложено необходимое теоретическое знание, используемое в последующих анализах в тексте диссертации, в последовательном порядке относительно физических процессов, в которых участвуют частицы, транспортируемые методом газовой транспортировки: наработка, термализация и транспортировка ламинарным потоком. В конце этой главы также излагаются теоретические основы и модели, используемые для оценки и описания основных параметров газовой транспортировки, таких как время и эффективность транспортировки.

1.1 Искусственный метод наработки экзотических нуклидов

Как было раньше упомянуто, экзотические нуклиды требуют особых установок для их искусственной наработки, таких, как ускорители или реакторы, из-за отсутствия их мощных источников в природе. Так как только в случае использования данного метода на реакторных установках требуется учёт наработки нуклидов внутри мишенной камеры, тогда можем записать число поделившихся ядер мишени в единицу времени при облучении потоком нейтронов, которое выражается формулой

$$R = \sigma N \Phi = \sigma N_A \Phi \frac{m}{M}, \quad (1.1)$$

где σ —эффективное сечение деления ядра мишени, N —число ядер мишени, m —масса вещества мишени, M —молярная масса атомов мишени, N_A —число Авогадро и Φ —плотность потока нейтронов [27]. Так как в практике очень часто в качестве мишени используется $^{235}_{92}\text{U}$, тогда эффективное сечение деления при облучении потоком тепловых нейтронов ($E_n = 0.025$ эВ) составляет около 582 барн [28].

Чтобы определить скорость генерации данного нуклида $\Gamma = Y_i \cdot R$ при делении ядер мишени, без учёта вклада от радиоактивного распада его материнского нуклида, нужно умножить формулу (1.1) на индивидуальный относительный выход данного нуклида Y_i . Также индивидуальный выход нуклида можно использовать, чтобы приблизительно определить начальную кинетическую энергию $E_k(A)$ для данного изобара осколка деления с массовым числом A без учёта нейтронов испускания и энергии возбуждения [29], пользуясь формулой [30]

$$E_k(A) = E_{k,tot} \frac{A_{tot} - A}{A_{tot}}, \quad (1.2)$$

где $E_{k,tot}$ — полная кинетическая энергия, уносимая осколками деления (примерно 162 кэВ) и A_{tot} — массовое число $^{235}_{92}\text{U}$. Сравнивая экспериментально измеренные значения [31] для средней кинетической энергии тяжёлых $\langle E_k \rangle = 69.1$ МэВ и лёгких $\langle E_k \rangle = 99.1$ МэВ осколков деления и посчитанные значения формулой (1.3) $\langle E_k \rangle = 69.4$ МэВ и $\langle E_k \rangle = 100.7$ МэВ, где $A \in (118, 170)$ и $A \in (60, 118)$ для тяжёлых и лёгких осколков соответственно, можно легко сделать вывод, что можно с достаточной уверенностью пользоваться формулами (1.2) и (1.3) для оценочного определения начальных кинетических энергий осколков деления.

$$\langle E_k \rangle = \frac{\sum_A E_k(A) Y_i(A)}{\sum_A Y_i(A)} = \left(\frac{E_{k,tot}}{A_{tot}} \right) \frac{\sum_A (A_{tot} - A) Y_i(A)}{\sum_A Y_i(A)} \quad (1.3)$$

Для оценки эффективности транспортировки нужно определить наличие не распавшихся нуклидов определённого типа N при постоянном облучении мишени потоком нейтронов. Вместо того чтобы решать систему уравнений Батемана [32] для всех материнских нуклидов в изобарной цепочке данного типа нуклида, можно просто учесть относительный кумулятивный выход данного нуклида Y_c и его период полураспада $T_{1/2}$ и решить уравнение, заданное формулой (1.4) при начальном условии $N(0) = 0$.

$$\frac{dN}{dt} = RY_c - \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} N. \quad (1.4)$$

Посмотрев на решение дифференциального уравнения, заданного формулой (1.5), легко заключить, что при больших временах облучения мишени $t \gg$

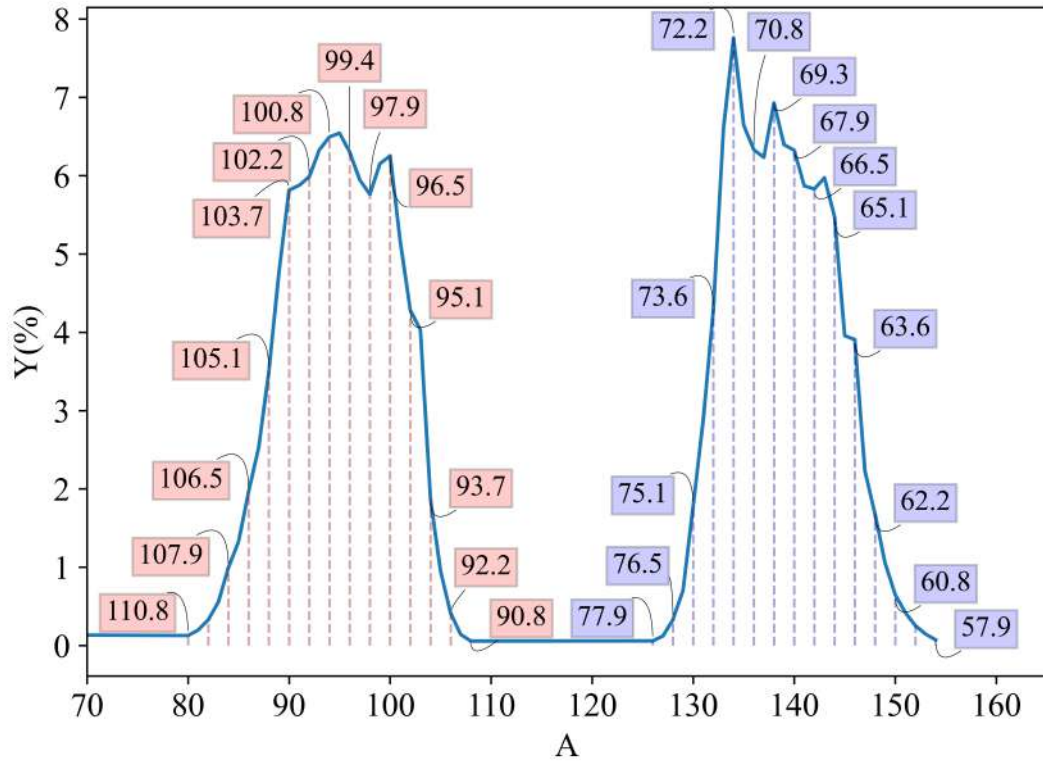


Рисунок 1.1: Индивидуальный относительный выход и средние кинетические энергии изобаров осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ при облучении тепловыми нейтронами, выражены в МэВ.

$\frac{T_{1/2}}{\ln(2)}$, число нуклидов данного сорта будет постоянным.

$$N(t) = RY_c \frac{T_{1/2}}{\ln(2)} \left[1 - \exp\left(-\frac{\ln(2)t}{T_{1/2}}\right) \right] \rightarrow \sigma N \Phi Y_c \frac{T_{1/2}}{\ln(2)}. \quad (1.5)$$

1.2 Термализация продуктов ядерных реакций

После процесса получения высокоэнергетического заряженного пучка экзотических нуклидов он должен быть эффективно термализован в наиболее возможном компактном объёме в буферном газе внутри газовой ячейки, чтобы снизить диффузионные потери на стенках ячейки при транспортировке частиц. Физические процессы торможения заряженных частиц в веществе имеют долгую историю изучения [33, 34], и на настоящий момент не существует единой теории, которая может одновременно математически выразить и объяснить формулы для торможения ионов по всему интервалу возможных кинетических энергий иона. Поэтому в теории первым делом было создано различие между двумя особыми причинами торможения ионов: электронными и ядерными.

Электронное торможение представляет собой процесс торможения иона при прохождении через вещество из-за взаимодействия электронных оболочек иона и атомов вещества, который всегда сопровождается последовательной ионизацией среды торможения ионов. Так как в настоящий момент не существует общей теории и математической формулы, выражающей среднюю энергию электронного торможения иона по всему интервалу возможных энергий, существуют модели Линхарда-Шарфа, промежуточная модель и Бете-Блоха, которые дают выражение для электронной энергии торможения при низких, средних и высоких энергиях соответственно.

Ядерное торможение представляет собой процесс торможения иона при прохождении через вещество из-за взаимодействия ядер иона и атомов вещества, который всегда сопровождается последовательным нагревом среды торможения ионов. В отличие от случая с электронным торможением, существует полуэмпирическая формула, выражающая среднюю энергию ядерного торможения иона по всему интервалу возможных энергий иона.

После потери всей кинетической энергии ионы термализуются в данном объёме в буферном газе, который описывается пространственным распределением заторможенных ионов, которое играет очень важную роль при определении времени транспортировки, так как оно является начальным условием в процессе газовой транспортировки частиц. В общем случае моноэнергетические и однонаправленные термализованные ионы, выпускаемые из точечного источника в данной среде имеют несимметричное распределение, но в практике очень часто и с достаточной точностью используется симметрическое трёхмерное распределение Гаусса, так как довольно редко публикуются моменты для распределения ионов выше второго порядка [35]. Пространственное распределение термализованных ионов можно выразить как умножение трёх одномерных распределений Гаусса $G(x, y, z) = p_x(x) p_y(y) p_z(z)$, каждая из которых зависит от каждой

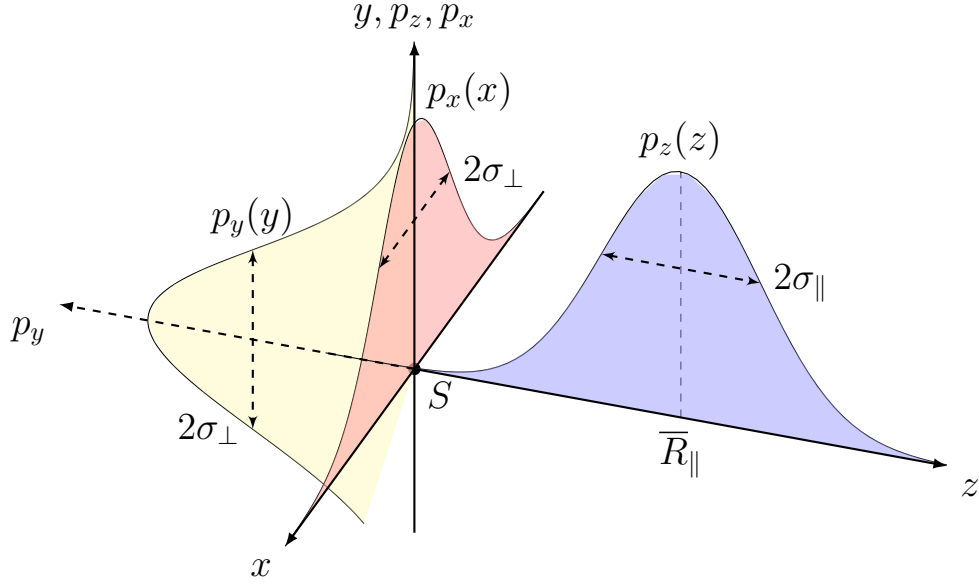


Рисунок 1.2: Одномерные функции распределения $p_x(x)$, $p_y(y)$ и $p_z(z)$ термализованных ионов, выпускаемых с одинаковой энергией и направлением вдоль оси- z из точечного источника, помещённого в центр системы координат

пространственной переменной x , y и z соответственно.

$$G(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_{\perp}^2 \sigma_{\parallel}} e^{-\left(\frac{x^2 + y^2}{2\sigma_{\perp}^2}\right) - \left(\frac{z - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} \quad (1.6)$$

где $\bar{R}_{\parallel}$ —средний проецированный (продольный) пробег по начальному направлению испускания ионов, и $\sigma_{\parallel}$ и $\sigma_{\perp}$ представляют продольный и поперечный разброс пробега. Данное выражение предполагает, что моноэнергетический ионный пучок излучается точечным источником в направлении оси- z (см. рис. 1.2). О более сложном случае источника ионов, имеющего реальные размеры и определённое угловое распределение испускания ионов, речь будет идти в третьей главе и в приложении А.2.

Чтобы обойти вышеперечисленные теоретические сложности и математические проблемы, связанные с аналитическим решением уравнений для получения выражений основных параметров распределения термализованных ионов, которые входят в формулу (А.2), было решено проводить симуляции торможения ионов в газовой среде и веществе мишени в программе TRIM/SRIM [23].

1.3 Ламинарный поток в газовой ячейке

После успешной термализации высокоэнергетических ионов экзотических нуклидов во внутреннем объёме газовой ячейки начинается процесс газовой транспортировки частиц к выходному отверстию и последующей части экспериментальной установки. Ранее полученное распределение термализованных частиц нужно использовать в уравнении диффузии с конвекцией, заданном формулой (1.7), в качестве начального условия $c(\vec{r}, 0)$ или источника частиц g_c . Чтобы решить уравнение диффузии с конвекцией

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D \vec{\nabla} \cdot c) - \vec{\nabla} \cdot (\vec{v} c) + g_c, \quad (1.7)$$

где c —концентрация транспортируемых частиц, D —коэффициент диффузии транспортируемых частиц в несущем газе, g_c —источник частиц, нужно сначала получить решение для скорости газового потока $\vec{v}$, решив систему дифференциальных уравнений Навье-Стокса [36]. Учитывая стандартные экспериментальные условия при использовании метода газовой транспортировки, т.е. относительно большие размеры газовых ячеек, из-за которых происходят очень незначительные перепады давления p в них, практически постоянная температура T вокруг газовой ячейки, отсутствие или очень слабые источники тепла Φ внутри ячейки и непрерывное вкачивание газа при комнатной температуре, очень легко можно сделать заключение, что газовые параметры, такие как плотность газа ρ , вязкость газа μ , теплоёмкость газа при постоянном давлении c_p и коэффициент теплопроводности k будут иметь практически постоянные значения. Если в этом числе учесть тот факт, что скорость газового потока в подавляющей части газовой ячейки намного меньше скорости распространения звука в той же газовой среде, т.е. число Маха $M \ll 0.3$ (кроме некоторых случаев вблизи выходного отверстия ячейки), тогда можно дополнительно упростить уравнения Навье-Стокса (левая часть формулы (1.8)) в случае потока несжимаемого флюида (правая часть формулы

(1.8))

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} (\rho \vec{v}) = 0 \\ \rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\vec{\nabla} p + \vec{\nabla} \tau_{ij} \\ \rho c_p \frac{dT}{dt} + p (\vec{\nabla} \vec{v}) = \vec{\nabla} (k \vec{\nabla} T) + \Phi \end{array} \right. \Rightarrow \left\{ \begin{array}{l} \vec{\nabla} \vec{v} = 0 \\ \rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\vec{\nabla} p + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{v} \\ k \vec{\nabla}^2 T + \Phi = 0 \end{array} \right. , \quad (1.8)$$

где ρ —плотность, p —давление, T —температура, τ_{ij} —тензор вязкого напряжения, μ —вязкость, c_p —теплоёмкость при постоянном давлении, k —коэффициент теплопроводности газа и Φ —источник температуры в газовой ячейке.

Одно из самых важных экспериментальных условий, которое нужно соблюсти, — это обеспечение ламинарного газового потока в газовой ячейке. Для ламинарного течения в устройствах с аксиальной симметрией характерна параболическая упорядоченность скоростного профиля потока (см. рисунок 1.3), которая чрезвычайно важна для избежания турбулентностей в потоке, а вместе с тем и уменьшения потерь частиц на стенках газовой ячейки. Как видно на рисунке 1.3 в центральной оси аксиально симметричной трубы скорость газового потока достигает максимального значения, и с приближением к её стенкам она снижается до теоретически предполагаемого состояния покоя. В осесимметричном случае геометрии газового потока, которая очень часто будет встречаться в следующих главах диссертации, можно пользоваться тем фактом, что максимальная скорость ламинарного потока на поверхности поперечного сечения объёма газового потока, которая перпендикулярна вектору скорости потока, представляет одну половину средней скорости газового потока через данное поперечное сечение.

1.3.1 Параметры бинарной газовой смеси

Иногда, чтобы добиться высокой эффективности и быстрой газовой транспортировки, нужно пользоваться преимуществами более тяжёлых и более лёгких благородных газов одновременно, чтобы снизить диффузионную потерю частиц с сохранением достаточно высокой допустимой границы скорости газового потока при нужных экспериментальных условиях. В этих случаях смешивание двух благородных газов представляет самое

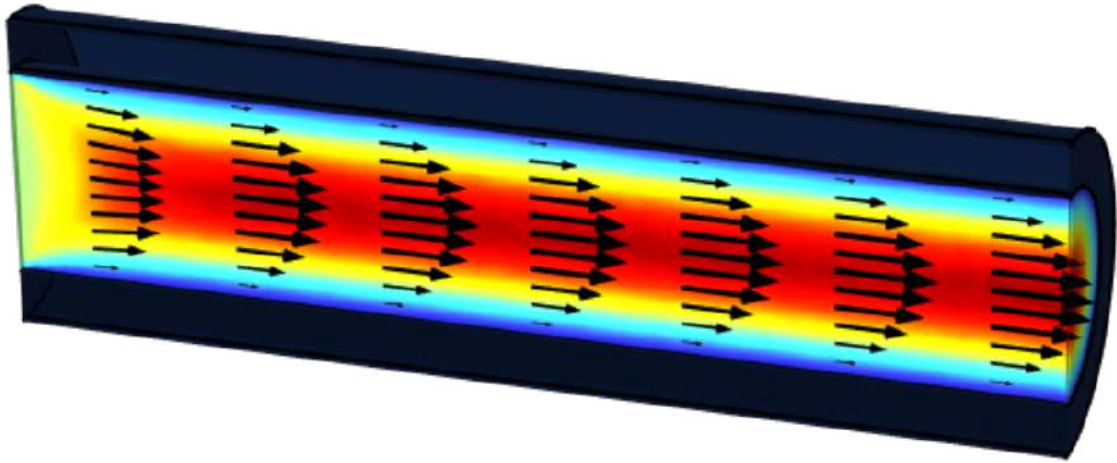


Рисунок 1.3: Ламинарное течение через осесимметричную трубку

идеальное решение, так как из-за присущего свойства химической инертности исключается взаимодействие между ними, и таким образом их смесь ведёт себя как новый благородный газ, который обладает новыми физическими свойствами, определёнными относительными концентрациями газов в бинарной смеси. При пренебрежении третьего уравнения в формуле (1.8) возможно переписать остальные уравнения Навье-Стокс, просто заменяя газодинамические параметры на параметры бинарной газовой смеси [37, 38].

Плотность газовой смеси ρ_{mix} n -компонентной газовой смеси можно рассчитать просто по формуле, приведенной ниже

$$\rho_{mix} = \sum_{i=1}^n \rho_i,$$

где ρ_i — плотность i -го компонента газовой смеси. В бинарной газовой смеси, состоящей из благородных газов, таких как He и Ar, мы получаем простую формулу $\rho_{mix}(\text{He}, \text{Ar}) = \rho(\text{He}) + \rho(\text{Ar})$. Если известна молярная доля $y(\text{He})$ в газовой смеси можно вывести плотность бинарной газовой смеси $\rho_{mix} = \rho(\text{He}, \text{Ar})$, состоявшую из He и Ar, как это показано в приложении А.1.

$$\rho(\text{He}, \text{Ar}) = (y(\text{He})(M(\text{He}) - M(\text{Ar})) + M(\text{Ar})) \frac{P}{RT} \quad (1.9)$$

Вязкость газовой смеси μ_{mix} n -компонентной газовой смеси может быть рассчитана с использованием метода Уилкса и приближения Хернинга и

Ципперера (как показано в [39] раздел 9-5) и показано в хорошо известном выражении ниже

$$\mu_{mix} = \frac{\sum_{i=1}^n y_i \mu_i \sqrt{M_i}}{\sum_{i=1}^n y_i \sqrt{M_i}} \quad (1.10)$$

где y_i — мольная доля, μ_i — динамическая вязкость, а M_i — молярная масса i -го компонента газовой смеси.

$$\mu_{mix}(\text{He, Ar}) = \frac{y(\text{He}) \mu(\text{He}) \sqrt{M(\text{He})} + y(\text{Ar}) \mu(\text{Ar}) \sqrt{M(\text{Ar})}}{y(\text{He}) \sqrt{M(\text{He})} + y(\text{Ar}) \sqrt{M(\text{Ar})}} \quad (1.11)$$

Коэффициент диффузии газовой смеси можно рассчитать по формулам разных моделей согласно известной литературе. В статьях [39, 40, 41] представлен обзор известных методов расчета коэффициента диффузии с использованием более или менее точных формул для необходимой оценки. В нашем случае невозможно использовать более точные методы расчета, так как они требуют знания некоторых характерных термодинамических свойств актинидов и трансактинидов (как актиний и нобелий), недоступных в настоящий момент [42]. Таким образом можно использовать максимально точную формулу для оценки коэффициентов диффузии (формула Чепмена-Энскога), которая требует только знания известных параметров диффундирующих частиц, таких как их атомные массы или атомные радиусы [43, 44]. Учитывая это, коэффициент диффузии D_{AB} диффундирующих веществ А в газообразной среде веществе В определяется по формуле, приведенной ниже.

$$D_{AB} (\text{cm}^2/\text{s}) = 0.001859 \frac{T^{3/2} (\text{K})}{P (\text{atm}) \sigma_{AB}^2 (\text{\AA}^2)} \sqrt{\frac{1}{M_A (\text{g/mol})} + \frac{1}{M_B (\text{g/mol})}} \quad (1.12)$$

где T — абсолютная температура, выраженная в К, P — давление газа, выраженное в атм, σ_{AB} — диаметр столкновения диффундирующих веществ и атомов газа, выраженный в Å и M_A и M_B — молярные массы диффундирующих частиц и атомов газа, выраженные в г/моль. Коэффициент диффузии $D_{mix} = D_{ABC}$ диффундирующих частиц А в бинарной газовой смеси, состоящей из газов В и С, определяется

формулой, приведенной ниже.

$$D_{mix} = \frac{1 - Y_A}{\frac{Y_B}{D_{AB}} + \frac{Y_C}{D_{AC}}} \rightarrow \frac{1}{\frac{Y_B}{D_{AB}} + \frac{Y_C}{D_{AC}}} \quad (1.13)$$

В последней формуле D_{AB} и D_{AC} представляют коэффициенты диффузии диффундирующих частиц А в газах В и С соответственно, а Y_A , Y_B и Y_C представляют собой молярные доли каждого из участвующих веществ А, В и С в общей газовой смеси. Ввиду того, что в нашем случае $Y_A \ll Y_B < 1$ и $Y_A \ll Y_C < 1$, левая часть вышеприведенной формулы преобразуется в более известное выражение (правая часть формулы) для бинарной газовой смеси (как показано в [39] раздел 11-7).

Скорость распространения звуковых волн внутри n -компонентной газовой смеси c_{mix} определяется по следующей формуле

$$c_{mix} = \sqrt{\frac{\gamma_{mix} R T}{M_{mix}}} = \sqrt{R T \frac{\sum_{i=1}^n y_i C_{P,i}}{\sum_{i=1}^n y_i M_i \sum_{i=1}^n y_i C_{V,i}}}, \quad (1.14)$$

где γ_{mix} и M_{mix} представляют собой показатель адиабаты и молярную массу газовой смеси, R — универсальная газовая постоянная, а T — абсолютная температура. Правая сторона вышеприведенной формулы получена с использованием формул, показанных ниже [45].

$$\gamma_{mix} = \frac{\sum_{i=1}^n y_i C_{P,i}}{\sum_{i=1}^n y_i C_{V,i}}; \quad M_{mix} = \sum_{i=1}^n y_i M_i, \quad (1.15)$$

1.4 Оценка параметров транспортировки

Основными параметрами, оценивающими степень успешного применения метода газовой транспортировки независимо от типа газовой ячейки, являются время транспортировки и эффективность транспортировки.

1.4.1 Время газовой транспортировки

Длительность времени газовой транспортировки короткоживущих нуклидов из термализирующего объёма внутри газовой ячейки до выхода

газовой ячейки играет решающую роль по отношению к доступности и наличию определённого типа радиоактивного нуклида для последующего экспериментального измерения и изучения в дальнейших частях установки. Таким образом, от длительности времени газовой транспортировки будет зависеть и эффективность доставки определённого изотопа экзотического нуклида, так как их количество будет уменьшаться в течении процесса газовой транспортировки из-за их радиоактивной природы и, в основном, диффузионных потерь на стенках газовой ячейки.

Полное время транспортировки частиц можно разделить на три этапа транспортировки, характеризующие три основных процесса транспортировки: время термализации, время начального ускорения термализующихся частиц до скоростей газового потока и время газовой транспортировки со скоростью газового потока.

1. Время термализации высокоэнергетических частиц представляет собой временной интервал процесса газовой транспортировки с момента попадания частиц в газовой объём ячейки или с момента наработки в веществе делящейся мишени на реакторных установках до их полной термализации в буферном газе. Для этой цели были сделаны симуляции термализации в программе TRIM всех получавшихся нуклидов при распаде $^{235}_{92}\text{U}$ в гелии при нормальных условиях. В результате было получено среднее время термализации около 27 фемтосекунд, которое даёт уверенное разрешение ими пренебречь при полных временах транспортировки в районах сотых и тысячных миллисекунд.
2. Время начального ускорения термализующихся частиц до скоростей газового потока представляет временной интервал, за который термализованная частица ускоряется практически от состояния покоя до скорости близкой к скорости газового потока. Для оценки второго этапа транспортировки были использованные формулы, описывающие силу влечения частицы газовым потоком

$$F_S = \frac{\pi}{8} C_D \rho_g \bar{v}_r^2 d^2 \quad (1.16)$$

$$C_D = \begin{cases} \frac{24}{Re_p}, & Re_p < 0.1 \\ \frac{24}{Re_p} (1 + 0.0169 \cdot Re_p), & 0.1 \leq Re_p < 5 \\ \frac{24}{Re_p} \left(1 + 0.158 \cdot Re_p^{2/3}\right), & 5 \leq Re_p < 1000 \end{cases} \quad (1.17)$$

где $\bar{v}_r = (U - v)$ — скорость частицы относительно скорости несущего газа, U — средняя скорость газового потока, v — скорость частицы, C_D — коэффициент сопротивления формы частицы, где d — диаметр частицы, ρ_g — плотность газа, η_g — вязкость газа, D — характерный диаметр геометрии ячейки газовой транспортировки, $Re = \rho_g U D / \eta_g$ — число Рейнольдса газового потока, $Re_p = \rho_g \bar{v}_r d / \eta_g = Re (d/D)$ — $\rho_g u d / \eta_g$ — относительное число Рейнольдса частицы [46]. Учитывая используемые экспериментальные условия газовой транспортировки $Re < 2300$, $D < 100$ мм и $d \approx 150$ нм и предполагая начальное условие $v(t=0) = 0$, легко показать, что $Re_p \ll 0.1$ в течение всего интервала ускорения частицы $v \in [0, U]$. Таким образом, подставив значение $C_D = 24/Re_p$ из формулы (1.17) в формулу (1.16) для F_S и решив дифференциальное уравнение в формуле 1.18 для определения скорости частицы $v(t)$,

$$F_S = m \frac{dv}{dt} = 3\pi\eta_g d (U - v) \quad (1.18)$$

можно подставить выражение $v(t) = kU$, где коэффициент k , характеризует время, за которое частица достигает долю k средней скорости флюида U . Выражая время t_S , из последнего выражения решения были сделаны оценки времени

$$t_S = \frac{m}{3\pi\eta_g} \ln \left(\frac{1}{1-k} \right),$$

за которое получавшиеся нуклиды при делении $^{235}_{92}\text{U}$ достигают долю $k = 99.9\%$ средней скорости флюида U , которое в итоге составило несколько десятков пикосекунд, которое в очередной раз разрешает им пренебречь и упрощает исследования и формулу времени транспортировки.

3. Учитывая результаты исследований предыдущих начальных этапов газовой транспортировки, можно уверенно сделать заключение,

что достаточно рассматривать и исследовать третий этап газовой транспортировки, пренебрегая первыми двумя. Таким образом, для оценки времени транспортировки нужно решить систему уравнений Навье-Стокса, заданных формулой (1.8), для которой в случае аналитических оценок для простоты было использовано упрощение несжимаемого флюида и однородных транспортных коэффициентов газового потока, а в случае численных расчётов и стимуляций в программе COMSOL Multiphysics [24] рассматривались и некоторые случаи сжимаемого флюида.

1.4.2 Эффективность газовой транспортировки

Исследование эффективности транспортировки играет очень важную роль не только в определении и оценке наличия доступных короткоживущих нуклидов при газовой транспортировке, но также при оптимизации метода газовой транспортировки. В самом простом случае изучение эффективности транспортировки можно разделить на три отдельных случая: эффективность трансмиссии из мишени, эффективность термализации в буферном газе и эффективность транспортировки ламинарным потоком; из которых последние два являются основными случаями, характеризующими эффективность газовой транспортировки, и на них будут опираться подавляющее большинство оценок и изучение в дальнейших главах диссертации.

1. Эффективность трансмиссии из мишени

Эффективная трансмиссия продуктов ядерной реакции из вещества мишени, где они получают, является предварительным условием для обеспечения достаточного начального количества частиц для их быстрой транспортировки в газовом потоке. Обычно в практике высокая трансмиссия частиц обеспечивается выбором оптимальной геометрии мишени, подходящей геометрии газовой ячейки и обладающей минимальной возможной толщиной, чтобы минимизировать путь прохождения и энергетические затраты частиц через вещество мишени.

2. Эффективная термализация в буферном газе

Эффективная термализация частиц в буферном газе, успешно выходящих из вещества мишени, заключается в изучении распределения термализованных частиц во внутреннем объёме газовой ячейки и обеспечивается выбором оптимальных газодинамических параметров для уменьшения объёма термализации. Основным параметром, влияющим напрямую на размер объёма термализации частиц, является статическое давление газа в газовой ячейке, который на практике регулируется объёмным расходом газа в ней. С его увеличением все основные параметры, характеризующие распределение термализованных частиц, уменьшаются из-за их обратной пропорциональной зависимости от давления буферного газа.

3. Эффективная транспортировка ламинарным потоком газа

При транспортировке частиц газовым потоком существуют три основных причины потерь транспортируемых частиц, связанных с гравитационным осаждением, осаждением при сгибах в геометрии и диффузионным осаждением частиц, из которых последнее играет самую важную роль в потере частиц при транспортировке [46]. Диффузионное осаждение частиц при ламинарном течении флюида происходит из-за диффузии транспортирующихся частиц из мест с высокой концентрацией к местам с низкой концентрацией частиц, и, так как стенки газовой ячейки представляют зоны с нулевой концентрацией, они считаются абсорберами частиц. Эффективность транспортировки частиц в газовой ячейке с аксиальной симметрией, которая учитывает потери частиц на стенках трубки из-за диффузионного осаждения при их транспортировке, выражается формулой 1.19.

$$\eta_{diff} = e^{-\xi Sh} \quad (1.19)$$

$$Sh = 3.66 + \frac{0.2672}{\xi + 0.10079\xi^{\frac{1}{3}}} \quad (1.20)$$

$$\xi = \frac{\pi L D_{diff}}{Q} \quad (1.21)$$

где D_{diff} —коэффициент диффузии частицы, Q —объёмный расход газа, L —длина газовой ячейки и Sh —число Шмидта, заданное формулой (1.20). Таким образом, с уменьшением длины ячейки или увеличением

объёмного расхода газа можно добиться повышенной эффективности транспортировки. В реакторных вариантах газовой ячейки эффективность газовой транспортировки увеличивается за счёт использования макроаэрозоли в газовом потоке, к которым транспортируемые частицы прикрепляются при их Броуновском движении в газовом потоке. Таким образом, можно условно добиться уменьшения коэффициента диффузии частиц при транспортировке частиц за счёт прилипания к массивным аэрозольным кластерам, обладающим низким коэффициентом диффузии.

ГЛАВА 2

Метод газовой транспортировки на реакторе TRIGA-Mainz

Одним из самых известных научных центров мирового уровня, где успешно реализован метод газовой транспортировки, является Институт ядерной химии Майнцкого университета имени Иоганна Гутенберга в Германии. Наличие реактора типа TRIGA позволяет проводить исследования ядерных свойств нейтроноизбыточных осколков деления ядер мишени $^{235}_{92}\text{U}$, получающихся при её облучении тепловыми нейтронами. Так как реактор способен работать и в постоянном режиме, в котором нейтронный поток облучения мишени постоянен и его средняя плотность потока нейтронов составляет около $\langle\Phi\rangle = 1.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^2\text{с}^{-1}$, и в импульсном режиме, при котором во время короткого облучения длящегося 30 мс, значение плотности нейтронного потока достигает $\langle\Phi\rangle = 3 \cdot 10^{13} \text{ см}^2\text{с}^{-1}$, появляется возможность как экспериментального исследования и измерения масс короткоживущих экзотических нуклидов, так и исследования основных параметров газовой транспортировки соответственно [47, 48].

2.1 Установка TRIGA-SPEC и мишенная камера

В одном из нейтронных каналов реактора TRIGA-Mainz установлена газовая ячейка типа мишенной камеры, на задней стенке которой находится очень тонкий слой делящейся мишени $^{235}_{92}\text{U}$ массой около 2 мкг, покрытый тонким слоем алюминия толщиной около 10 мкм целью уменьшения кинетической энергии высокоэнергетических осколков деления вплоть до стадии их термализации в газообразном N_2 (см. рисунок 2.1). После эффективной термализации во внутреннем объёме мишенной камеры с размерами, указанными в таблице 2.1, осколки деления выносятся ламинарным

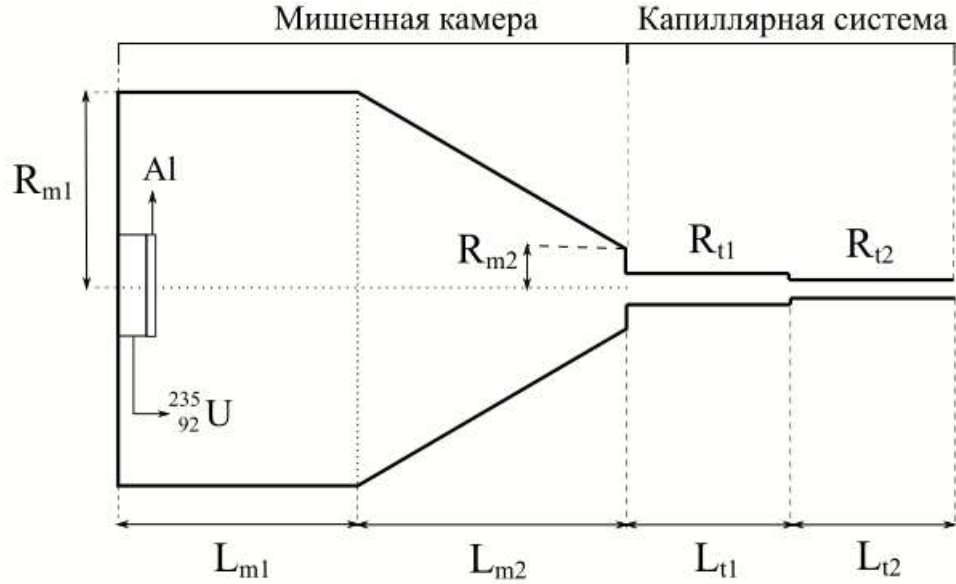


Рисунок 2.1: Поперечное сечение аксиально симметричной мишенной камеры TRIGA-Mainz в сочетании с капиллярной системой [26]

Таблица 2.1: Размеры мишенной камеры TRIGA-Mainz и капиллярной системы

Мишенная камера		Капиллярная система	
R_{m1}	25 мм	R_{t1}	0.43 мм
R_{m2}	5 мм	R_{t2}	0.6 мм
L_{m1}	15 мм	L_{t1}	5.23 м
L_{m2}	20 мм	L_{t2}	≈ 2.7 м

газовым потоком совместно с аэрозольными кластерами CdI_2 , к которым они прикрепляются, к выходному отверстию мишенной камеры, откуда далее попадают в капиллярную систему для очень быстрой доставки короткоживущих нуклидов из нейтронного канала реактора к последующим частям установки TRIGA-SPEC. На рисунке 2.2 представлена схема метода газовой транспортировки и начальной части установки TRIGA-SPEC [49, 50], который начинается с вкачивания газа в аэрозольную печь (часть 1 на рисунке 2.2) и заканчивается экстракцией ионизированных осколков деления из ионизатора поверхностной ионизации вытягивающими электродами к дипольному магниту (часть 7 на рисунке 2.2). Плотность аэрозольных частиц

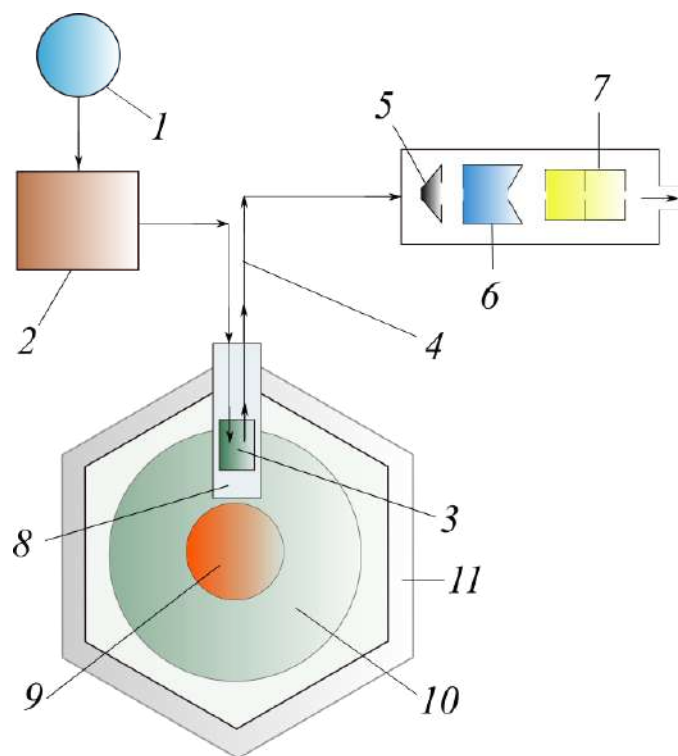


Рисунок 2.2: Схема системы газового транспорта продуктов деления из мишенного устройства, расположенного в горизонтальном канале реактора TRIGA-Mainz: 1 – баллон для газа, 2 – аэрозольная печь, 3 – мишенная камера, 4 – система капиллярных трубок, 5 – скиммер, 6 – ионный источник, 7 – вытягивающие электроды, 8 – горизонтальный канал, 9 – активная зона, 10 – отражатель, 11 – защита.

в газе и средний диаметр аэрозольных кластеров контролируется объёмным расходом газа и температурой в аэрозольной печи. После внесения аэрозольных частиц в поток газа полученная смесь поступает по капиллярной трубке в мишенную камеру и затем выходит через капиллярную систему из выходного отверстия камеры. Тяжёлые аэрозольные частицы вместе с осколками деления, прикрепленными к ним, выходят из последней капиллярной трубки и пространственно отделяются от расходящегося сверх звукового газового потока с помощью скиммера. После попадания в ионизатор поверхностной ионизации и сталкивания с его стенками аэрозольные кластеры разрушаются и ионизированные осколки деления вытягиваются электродом к дипольному магниту для проведения первой масс-сепарации [5].

2.2 Экспериментальные и теоретические исследования

В этой части представлены результаты экспериментального измерения кумулятивного времени транспортировки во время одного из экспериментальных сеансов на реакторе TRIGA-Mainz, теоретические выводы формул для оценки времени транспортировки и численные расчёты для определения наличия нуклидов, доступных для исследований в экспериментальных условиях на реакторе TRIGA-Mainz.

2.2.1 Экспериментальные измерения кумулятивного времени транспортировки

Во время одного из экспериментальных сеансов на реакторе TRIGA-Mainz был проведён эксперимент по определению кумулятивного времени транспортировки осколков деления, который суммарно состоял из 13 запусков в импульсном режиме при разных объемных расходах газа, во время которых время облучения мишени составляло около 30 мс. Сцинтилляционный γ -детектор на базе NaI был расположен перпендикулярно последней капиллярной трубке на длине 7.66 м капиллярной системы, для регистрации гамма частиц при распаде транспортируемых из мишенной камеры короткоживущих нуклидов. Гамма спектр транспортируемых нуклидов, изображенный на рисунке 2.3, состоит из двух областей: а) левый пик вызван повышением радиационного фона при импульсном облучении мишени, б) правая часть спектра обусловлена детектированием транспортируемых в системе радиоактивных осколков деления.

Термин «кумулятивное время транспортировки» означает время транспортировки всех образующихся нуклидов до детектора и используется для отличия времени транспортировки всех нуклидов от времени транспортировки индивидуального нуклида. Для формулировки четкого математического определения термина «кумулятивное время транспортировки» было использовано два подхода: (см. рисунок 2.3):

1. Под минимальным временем транспортировки Δt_{min} будет подразумеваться временной интервал с момента облучения тепловыми

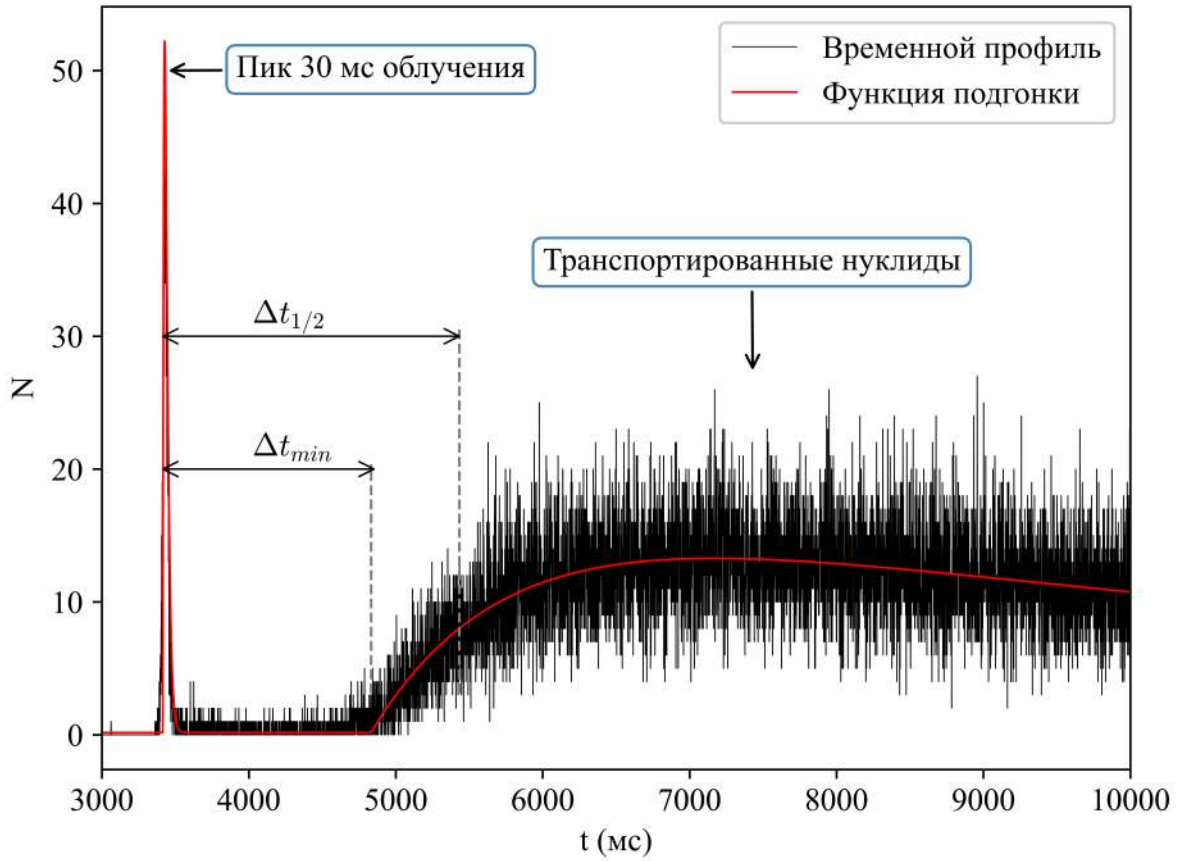


Рисунок 2.3: Экспериментальный гамма спектр радиоактивного распада транспортированных осколков деления из мишенной камеры

нейтронами мишени до детектирования первых зарегистрированных транспортируемых радиоактивных нуклидов.

2. Под временем транспортировки $\Delta t_{1/2}$ подразумевается интервал с момента облучения тепловыми нейтронами мишени до достижения полувысоты максимума гамма-спектра зарегистрированных транспортируемых радионуклидов.

Таким образом, были использованы две отдельные функции подгонки $F_{min}(t)$ для определения Δt_{min} и $F_{1/2}(t)$ совместно с функцией Гаусса [51, 5] для определения $\Delta t_{1/2}$, которые задаются формулами

$$F_{min}(t) = \max \left[\frac{b}{2}, f_p(t; A_p, t_p, t_{pr}, t_{pf}, b) \right] + \max \left[\frac{b}{2}, f_g(t; A_g, t_p, \Delta t_{min}, t_{gr}, t_{gf}, b) \right],$$

где функциями $f_p(t; A_p, t_p, t_{pr}, t_{pf}, b)$ и $f_g(t; A_g, t_p, \Delta t_{min}, t_{gr}, t_{gf}, b)$ описываются

пик импульса и спектр транспортируемых нуклидов соответственно

$$f_p(t; A_p, t_p, t_{pr}, t_{pf}, b) = \frac{b}{2} + A_p \left(1 - \exp \left(\frac{t_p - t}{t_{pr}} \right) \right) \exp \left(\frac{t_p - t}{t_{pf}} \right),$$

$$f_g(t; A_g, t_g, t_{gr}, t_{gf}, b) = \frac{b}{2} + A_g \left(1 - \exp \left(\frac{t_g - t}{t_{gr}} \right) \right) \exp \left(\frac{t_g - t}{t_{pf}} \right),$$

где A_p и A_g - амплитуда импульса облучения и спектра транспортируемых нуклидов, t_{pr} и t_{gr} - параметр роста импульса и спектра транспортируемых нуклидов, t_{pf} и t_{gf} - параметр спада импульса и спектра транспортируемых нуклидов, t_p - момент начала импульсного облучения, $t_g = t_p + \Delta t_{min}$ - момент начала спектра транспортируемых нуклидов, b - уровень фона, и

$$F_{1/2}(t) = \frac{A}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{t - t_{1/2}}{\sigma \sqrt{2}} \right) \right) e^{-\lambda(t - t_{1/2})}$$

где A - максимум функции, σ - наклон функции, λ - асимптотическое поведение функции и $\operatorname{erf}(\bullet)$ - функция ошибок Гаусса. Таким образом, с помощью вышеперечисленных функций подгонки из экспериментальных спектров были определены Δt_{min} и $\Delta t_{1/2}$, значения которых представлены в таблице 2.2.

Для сравнения экспериментальных полученных данных для Δt_{min} с численными расчётами, был сделан теоретический вывод формулы минимального времени транспортировки Δt , определяемого как сумма минимальных времён транспортировки Δt_i в двух частях мишенной камеры (цилиндрической и конической) и в двух цилиндрических капиллярных трубках при предположении ламинарного течения газа через них, с помощью формулы

$$\Delta t_i = \frac{L_i}{v_{max,i}} = \frac{\langle S_i \rangle L_i}{2Q} = \frac{1}{2Q} \int_{L_i} S_i(l_i) dl_i = \frac{V_i}{2Q},$$

где $v_{max,i}$ - максимальная скорость газового потока, Q - объёмный расход газа, L_i - длина, $\langle S_i \rangle$ - усреднённая площадь поперечного сечения и V_i - объём i -ой части мишенной камеры или капиллярной трубки. При использовании выражений для объёмов каждой части установки V_i , согласно рисунку 2.1, и суммировании всех полученных минимальных времён Δt_i , формула Δt получает следующий вид:

$$\Delta t = \frac{L_{m1}}{2Q} \pi R_{m1}^2 + \frac{L_{m2}}{6Q} \pi (R_{m1}^2 + R_{m1} R_{m2} + R_{m2}^2) + \frac{\pi L_{t1} R_{t1}^2}{2Q} + \frac{\pi L_{t2} R_{t2}^2}{2Q} \quad (2.1)$$

Таблица 2.2: Экспериментальные кумулятивные времена транспортировки ($\Delta t_{min}, \Delta t_{1/2}$) и теоретическое минимальное кумулятивное время транспортировки Δt [5, 25]

Число импульсов	Q (мл/мин)	Время транспортировки			p (бар)
		$\Delta t_{1/2}$ (мс)	Δt_{min} (мс)	Δt (мс)	
1	300	2030 ± 50	1505 ± 14	1557	1.0
4	400	1950 ± 50	1376 ± 23	1394	1.1
1	500	1420 ± 50	1263 ± 10	1299	1.3
3	600	1320 ± 50	1094 ± 30	1155	1.4
1	700	1140 ± 14	1028 ± 9	1044	1.5
3	800	1040 ± 14	945 ± 5	954	1.6

Так как для более точных вычислений Δt нужно учесть её зависимости от пробега частиц в мишенной камере, были посчитаны усреднённые пробеги всех получившихся лёгких и тяжёлых осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ через тонкий слой алюминия и азота при давлениях p , использованных при измерении Δt_{min} (см. таблицу 2.2). Согласно рисунку 2.4, необходимо учитывать только средний пробег легких осколков деления $\langle R_l \rangle$ для оценки минимального времени транспортировки, так как по определению они являются первыми дошедшими нуклидами до детектора. Для этого можно ввести замены для L_{m1} и L_{m2} с помощью следующих выражений с целью более корректного использования формулы (2.1).

$$L_{m1} \rightarrow \begin{cases} L_{m1} - \langle R_l \rangle, & \langle R_l \rangle < L_{m1} \\ 0, & \langle R_l \rangle \geq L_{m1} \end{cases}$$

$$L_{m2} \rightarrow \begin{cases} L_{m2}, & \langle R_l \rangle < L_{m1} \\ L_{m2} - (\langle R_l \rangle - L_{m1}), & L_{m1} < \langle R_l \rangle < L_{m1} + L_{m2}, \\ 0, & \langle R_l \rangle \geq L_{m1} + L_{m2} \end{cases}$$

Из таблицы 2.2 видно, что теоретические значения для минимального времени транспортировки Δt подтверждают значения Δt_{min} , полученные из

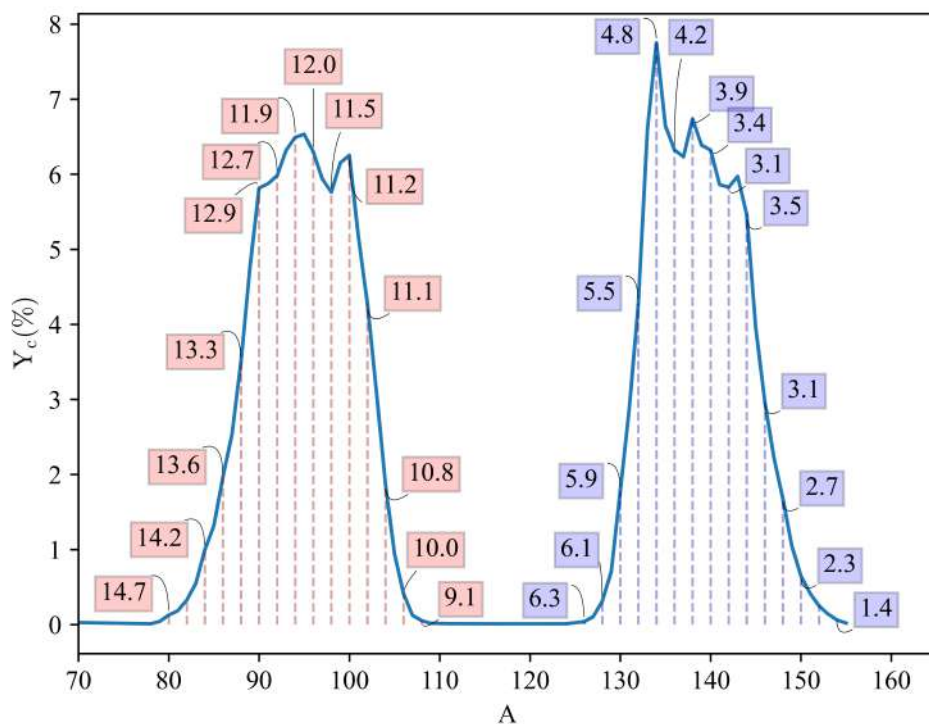


Рисунок 2.4: Индивидуальный относительный выход и средние пробеги изобаров осколков деления ^{235}U при облучении тепловыми нейтронами и при прохождении через 10 мкм тонкого слоя Al и через N_2 при давлении 1 бар, выраженные в мм.

экспериментальных данных, в диапазоне всех используемых объемных расходов 300 мл/мин до 800 мл/мин. Также можно заметить темп уменьшения разности между временами $\Delta t_{1/2}$ и Δt_{min} при увеличении объёмного расхода азота Q , ожидаемое из-за уменьшения диффузионного расширения распределения транспортируемых частиц при более коротком времени транспортировки.

2.2.2 Критерий выживания нуклидов

Для получения представления о возможных доступных для изучения нуклидов в экспериментальных условиях на реакторе TRIGA был выведен критерий выживания процесса газовой транспортировки нуклидов из мишенной камеры [51]. В первом приближении данная задача была рассмотрена в одномерном случае, где, для простоты получения математических оценочных выражений, пренебрегалось процессом диффузии частиц, точной геометрией мишени и прохождением частиц через вещество мишени и металлического буферного слоя. Таким образом, выражение для

числа радиоактивных нуклидов N выживших при процессе транспортировки (формула (2.2)), можно математически смоделировать как число не распавшихся наработанных нуклидов при постоянном облучении мишени тепловыми нейтронами (с помощью формулы (1.5)) за время газовой транспортировки Δt (с помощью формулы (2.1) или экспериментальных данных из таблицы 2.3).

$$N(\Delta t) = \sigma N \Phi Y_c \frac{T_{1/2}}{\ln(2)} \exp\left(-\frac{\ln(2) \Delta t}{T_{1/2}}\right). \quad (2.2)$$

Задав критическое условие выживания нуклидов $N(\Delta t) \geq 1$ за минимальное время транспортировки Δt можно выразить условие:

$$Y_c \geq \frac{\exp\left(\frac{\ln(2) \Delta t}{T_{1/2}}\right)}{\sigma N \Phi \frac{T_{1/2}}{\ln(2)}} \quad (2.3)$$

которому кумулятивный выход нуклида должен отвечать, чтобы данный нуклид мог быть экспериментально исследован после завершения его процесса транспортировки.. Таким образом, в таблице 2.3 представлены самые тяжёлые изотопы данного нуклида, удовлетворяющего критическому условию задано формулой (2.3) и выжившего процесса транспортировки при условиях $Q = 800$ мл/мин и $p = 1.6$ бар, которым соответствует самое короткое экспериментально измеренное время транспортировки $\Delta t_{min} = 954$ мс. Также, чтобы приблизить предыдущие результаты к более реалистичному случаю с учётом прохождения частиц через вещество мишени толщиной $d = 612$ мкг · см⁻² и металлического слоя толщиной 10 мкм в одномерном случае [52], в знаменателе формулы (2.3), был введён дополнительный множитель — параметр $\eta = \eta_t \eta_b \eta_{diff}$, где η_t , η_b и η_{diff} переставляют собой эффективность трансмиссии частиц через вещество мишени, эффективность трансмиссии частиц через буферный металлический слой в направлении к выходному отверстию мишенной камеры и эффективность транспортировки частиц с учётом диффузионных потерь соответственно. Параметр η_t был рассчитан с помощью формулы (2.4), которая определяет вероятность нахождения осколка деления вне вещества мишени $z \in (d, \infty)$ при испускании осколков деления в направлении z и $-z$ из каждой точки одномерной мишени $z_s \in (0, d)$ при

предположении, что распределение заторможенных частиц в веществе мишени описывается распределением Гаусса и параметрами $\langle R_{\parallel} \rangle$ и $\sigma_{\parallel}$. Параметр η_b был рассчитан с помощью симуляции прохождения ионов через вещество в программе TRIM. Для определения η_{diff} были рассчитаны коэффициенты диффузии осколков деления с помощью формулы (1.12), которые примерно находились в интервале значений $D_{diff} \in (0.1 \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}, 1 \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1})$. Таким образом, были получены одинаковые с предыдущим случаем результаты, но с той разницей, что не было обнаружено нуклидов $Z > 63$ (обозначены символом * в таблице 2.3), которые смогут выжить в процессе транспортировки.

$$\eta_t = \frac{1}{2d} \int_d^{\infty} \int_0^d \left(\frac{e^{-\left(\frac{z-z_s-\langle R_{\parallel} \rangle}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} + e^{-\left(\frac{z-z_s+\langle R_{\parallel} \rangle}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2}}{\sqrt{2\pi}\sigma} \right) dz_s dz \quad (2.4)$$

Таблица 2.3: Самые тяжёлые изотопы, доступные для экспериментального изучения на реакторе TRIGA-Mainz [25, 26]

Z	Лёгкие осколки деления	$T_{1/2}$	Z	Тяжёлые осколки деления	$T_{1/2}$
28	$^{74}_{28}\text{Ni}$	507.7 мс	46	$^{121}_{46}\text{Pd}$	285 мс
29	$^{77}_{29}\text{Cu}$	469.8 мс	47	$^{123}_{47}\text{Ag}$	299 мс
30	$^{81}_{30}\text{Zn}$	320 мс	48	$^{130}_{48}\text{Cd}$	162 мс
31	$^{83}_{31}\text{Ga}$	308.1 мс	49	$^{132}_{49}\text{In}$	200 мс
32	$^{86}_{32}\text{Ge}$	226 мс	50	$^{136}_{50}\text{Sn}$	345 мс
33	$^{88}_{33}\text{As}$	200 мс	51	$^{138}_{51}\text{Sb}$	348 мс
34	$^{91}_{34}\text{Se}$	270 мс	52	$^{140}_{52}\text{Te}$	348 мс
35	$^{92}_{35}\text{Br}$	314 мс	53	$^{142}_{53}\text{I}$	222 мс
36	$^{94}_{36}\text{Kr}$	212 мс	54	$^{145}_{54}\text{Xe}$	118 мс
37	$^{97}_{37}\text{Rb}$	169 мс	55	$^{147}_{55}\text{Cs}$	229 мс
38	$^{100}_{38}\text{Sr}$	200 мс	56	$^{150}_{56}\text{Ba}$	259 мс
39	$^{103}_{39}\text{Y}$	230 мс	57	$^{152}_{57}\text{La}$	298 мс
40	$^{105}_{40}\text{Zr}$	660 мс	58	$^{154}_{58}\text{Ce}$	722 мс
41	$^{108}_{41}\text{Nb}$	198 мс	59	$^{156}_{59}\text{Pr}$	444 мс
42	$^{110}_{42}\text{Mo}$	296 мс	60	$^{158}_{60}\text{Nd}$	820 мс
43	$^{112}_{43}\text{Tc}$	271 мс	61	$^{160}_{61}\text{Pm}$	1.05 с
44	$^{115}_{44}\text{Ru}$	318 мс	62	$^{162}_{62}\text{Sm}$	2.4 с
45	$^{118}_{45}\text{Rh}$	286 мс	63	$^{164}_{63}\text{Eu}$	4.15 с
			64*	$^{166}_{64}\text{Gd}$	4.8 с
			65*	$^{167}_{65}\text{Tb}$	19.4 с
			66*	$^{168}_{66}\text{Dy}$	8.7 мин
			67*	$^{169}_{67}\text{Ho}$	4.72 мин

ГЛАВА 3

Экспериментальные изучения газовой ячейки MARA-LEB

Проект MARA-LEB, разрабатываемый в ускорительной лаборатории Университета Ювяскюля в Финляндии, представляет собой новую экспериментальную установку, которая работает с низкоэнергетическими пучками радиоактивных ионов. Новый вакуумный сепаратор MARA, состоящий из квадрупольного триплета, электростатического дефлектора и дипольного магнита, будет использован для выведения и фокусирования в новую газовую ячейку MARA-LEB радиоактивного ионного пучка, полученного в реакциях слияние-испарение. Термализованные нуклиды во внутреннем объёме газовой ячейки будут выведены методом газовой транспортировки к следующей части установки (ионовод, дипольный магнит, детекторная станция), которые всё ещё на момент проведения эксперимента не были технически реализованы. Основная цель данного проекта заключается в обеспечении детального понимания экзотических явлений ядерной структуры путём изучения, в основном, протоноизбыточной области карты нуклидов, включающей ядра с избытком протонов рядом с линией протонной устойчивости и ядра с очень близким протонным и нейтронным количественным составом, в том числе нуклиды в окрестности изотопа $^{100}_{50}\text{Sn}$. Для достижения вышеперечисленных целей данная установка запланирована для разного типа экспериментов, включая лазерную атомную спектроскопию, масс-спектрометрию и спектроскопию ядерного распада [16]. Из-за отсутствия полной технической реализации экспериментальной установки MARA-LEB, экспериментальные изучения метода газовой транспортировки в новой газовой ячейки MARA-LEB были проведены на установке IGISOL-4.

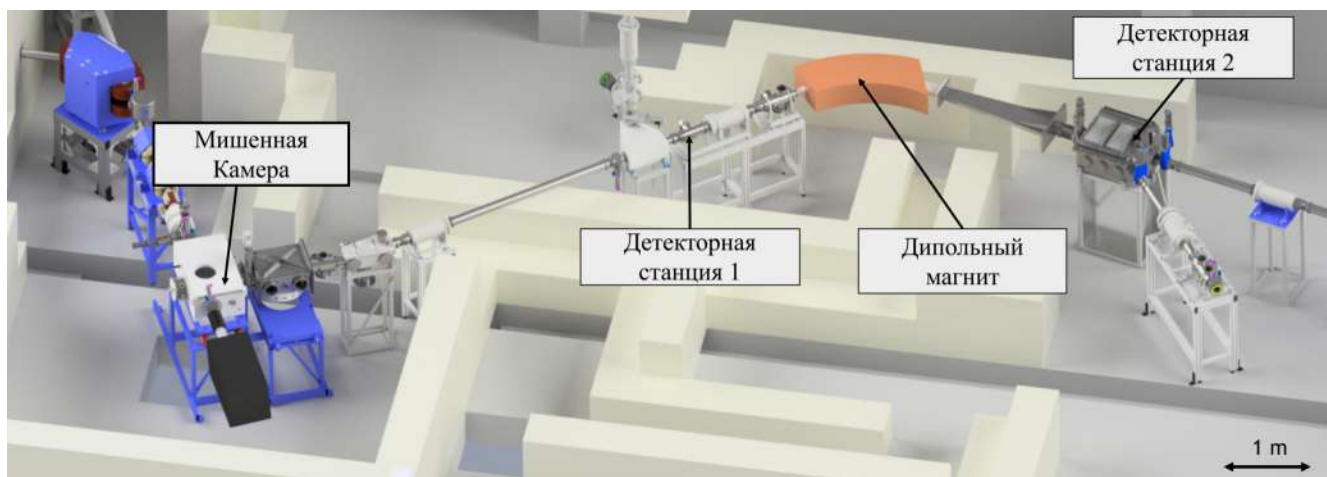


Рисунок 3.1: Начальная часть установки IGISOL, использованная для получения экспериментальных данных, представленных в настоящем исследовании. Газовая ячейка, была установлена в позиции с названием мишенная камера. Дипольный магнит используется для массового разделения изучаемых ионов экзотических ядер. Измерения проводились на детекторных станциях 1 (кремниевый детектор) и 2 (кремниевый и MCP-детекторы). (Рисунок заимствован и модифицирован из работы [16])

3.1 Исследования газовой ячейки MARA-LEB на установке IGISOL

Установка IGISOL-4 в Университете Ювяскюля (Финляндия) используется для изучения различных экспериментальных задач, связанных с высокоточной масс-спектрометрией, в основном для определения массы экзотических нуклидов. Основные компоненты установки последней версии IGISOL-4 включают в себя мишенную камеру, куда помещается газовая ячейка, дипольный магнит, электростатическое распределительное устройство, радиочастотный квадрупольный (RFQ) охладитель/группировщик, коллинеарную лазерную линию и ловушки Пеннинга. На установке IGISOL-4 с целью высокоточного измерения масс нуклидов установлена ловушка Пеннинга (JYFLTRAP) и многоотражательный времяпролетный масс-спектрометр (MR-TOF). IGISOL-4 используется для широкого спектра применений, таких как удаление нежелательных изобарных примесей в экспериментах, измерение атомной массы и спектроскопия ядерного распада [53].

Экспериментальное изучение метода газовой транспортировки в новой газовой ячейке MARA-LEB проводилось на установке IGISOL-4 (см. рис. 3.1).

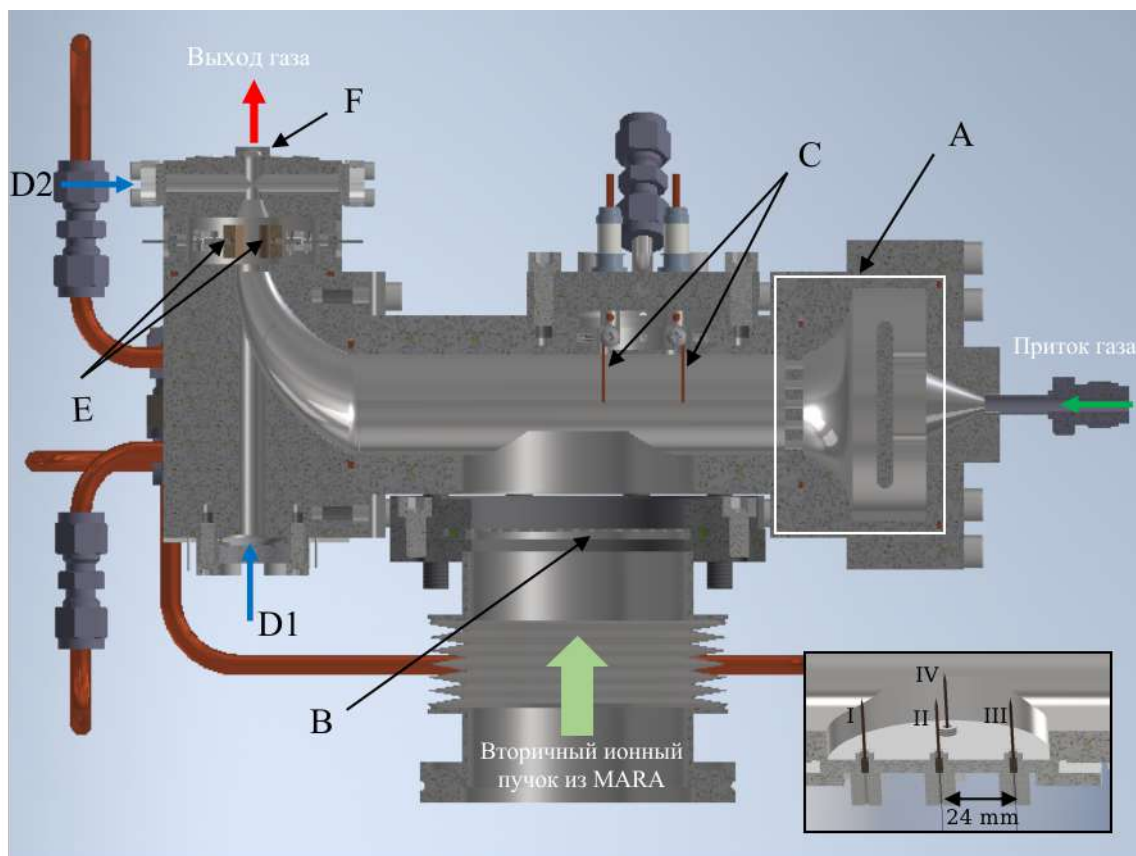


Рисунок 3.2: Составные части газовой ячейки MARA-LEB: А — предкамера газового потока, В — входное окно, С — проходные отверстия для филамента, D1 и D2 — лазерные окна для коллинеарной и поперечно-резонансной лазерной ионизации соответственно, Е — электроды, коллектирующие ионы, F — выходное сопло Лавали. Входное окно можно заменить фланцем, к которому можно прикрепить источник отдачи $^{223}_{88}\text{Ra}$ в различных положениях, как показано на маленьком рисунке справа внизу. (Рисунок заимствован и модифицирован из работы [16])

Газовая ячейка MARA-LEB представлена на рисунке 3.2. Газ вкачивается через трубку в предкамеру газового потока, где формируется газовый поток, который протекает через всю газовую ячейку до выходного сопла. В онлайн-режиме сфокусированный ионный пучок из масс-сепаратора MARA поступает через входное окошко, сделанное обычно в виде тонкой фольги Майлара, в газовую ячейку. Помимо приведённых на рисунке частей ячейки, в ней также находятся гнезда, используемые для размещения нагревательных картриджей, чтобы они могли «пропечь» - нагреть и очистить газовую ячейку до очередных экспериментов от разных примесей и загрязнений на её стенках. Для охлаждения нагретой газовой ячейки до комнатной температуры в ней установлена система охлаждения (на рисунке 3.2 обозначена бордовым цветом),

которая соединяется через металлические трубки со внешним трубопроводом, в результате чего охлаждение реализуется пропусканием через вышеописанную систему воды. Отличительным моментом является тот факт, что эта газовая ячейка, в отличие от мишенной камеры TRIGA, имеет изгиб, который используется для направления лазера параллельно или перпендикулярно выходному соплу для ступенчатой ионизации необходимых интересующих атомов. При выходе также установлены ионные коллекторы, которые являются электродами, для отделения транспортируемых ионов из газовой ячейки от ионов полученных при ступенчатой ионизации атомов.

В режиме оффлайн экспериментов и испытаний, проведенных с использованием газовой ячейки MARA-LEB, вместо входного окна использовались металлическая подставка с радиоактивным источником $^{223}_{88}\text{Ra}$, который нанесён на верхнюю часть металлической иголки, в результате чего источник можно установить в четырех разных положениях, как показано в нижнем правом углу на рисунке 3.2. Первое положение иголки находилось ближе всего к выходу газовой камеры, второе — в центральной позиции, третье — дальше всего от выхода, четвертое — в центральной позиции, но близко к стенкам газовой ячейки. Эти четыре положения должны примерно охватывать пространственное распределение интересующих элементов, поступающих в газовую среду через входное окно, которое для онлайн-экспериментов будет установлено в положении В (см. рис. 3.2) вместо иглодержателя.

3.2 Экспериментальные изучения метода газовой транспортировки в ячейке MARA-LEB

3.2.1 Измерение эффективности транспортировки

До проведения экспериментальной сессии ионы $^{223}_{88}\text{Ra}$ накапливались на кончике заряженной иглы в генераторе альфа-отдачи, где $^{227}_{89}\text{Ac}$ использовался в качестве первоисточника. Цепочка радиоактивного распада $^{223}_{88}\text{Ra}$, дочерние нуклиды которого наблюдались в экспериментах, показана на рисунке 3.3.

При измерениях основных параметров транспортировки отслеживались и наблюдались спектры альфа-распада ядер отдачи радиоактивного источника $^{223}_{88}\text{Ra}$, которые и использовались в качестве сравнительного эталона для

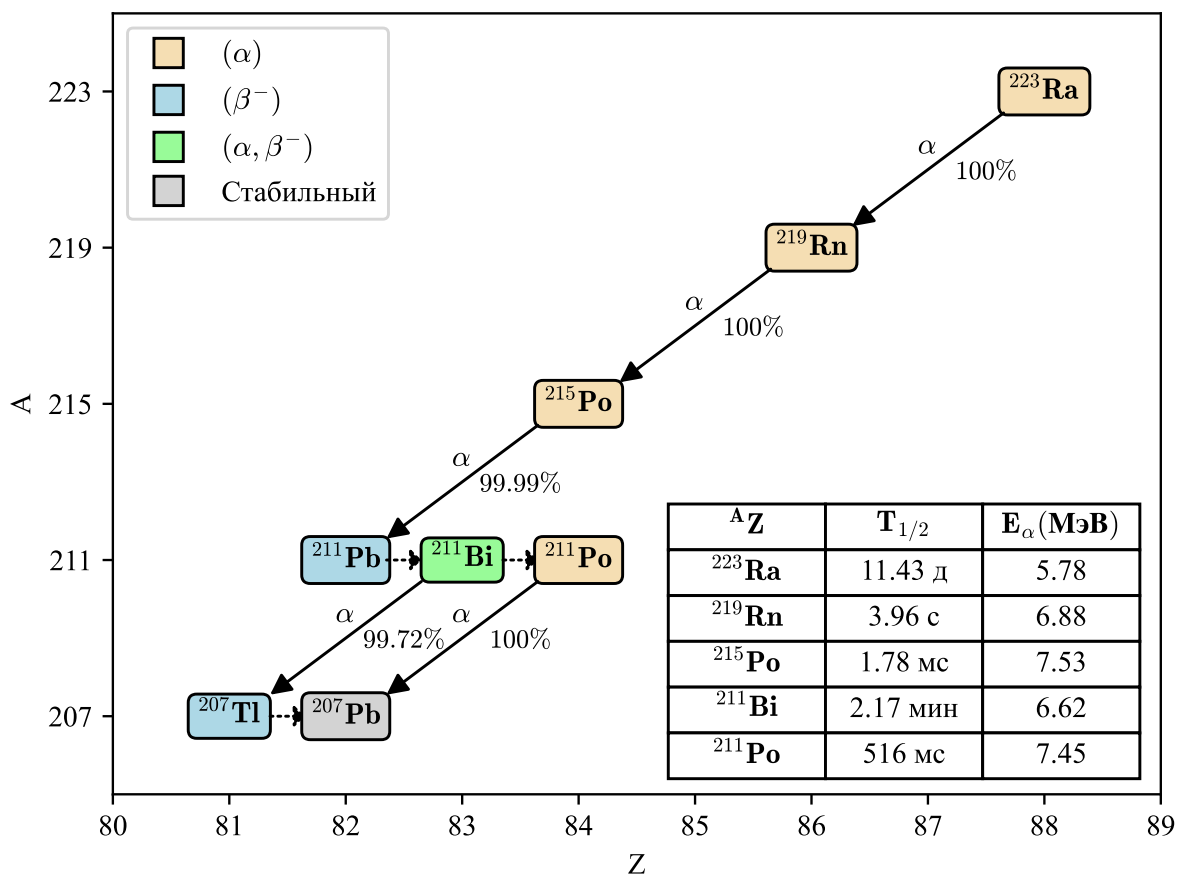


Рисунок 3.3: Цепочка радиоактивного распада $^{223}_{88}\text{Ra}$

оценки эффективности транспортировки и времени эвакуации на установке IGISOL-4. Очень полезным оказался выбор использовать такой радиоактивный источник, поскольку его дочерние продукты первого поколения представляют собой химически инертные атомы благородного газа $^{219}_{86}\text{Rn}$, которые обладают удобным периодом полураспада в данных экспериментальных исследованиях.3.3.

Процедура эксперимента заключалась в следующем. Во-первых, был измерен спектр игольчатого радиоактивного источника, чтобы оценить активность источника. После того, как игла была установлена в определенном положении в газовой ячейке в IGISOL-4, и кремниевый детектор был установлен в определенное положение установки, проводились оптимизации наблюдаемой активности на детекторе до максимально возможного путём настройки напряжений на SPIG электродах. Лишь после этого проводились измерения спектра транспортируемой активности, которая являлась регистрацией α -частиц последующего распада имплантированных и осажденных $^{219}_{86}\text{Rn}$ в

защитном слое на поверхности кремниевого детектора.

Измерение активности источника

Активность источника $^{223}_{88}\text{Ra}$ измерялась в отдельной вакуумной камере. Металлическая игла геометрически состоит из двух частей: цилиндрической части диаметром 1 мм и усеченного конуса высотой 3 мм, большого диаметра 1 мм и малого диаметра 0.001 мм. Расстояние между кончиком иглы и поверхностью кремниевого детектора составляло 100.5 мм. Кремниевый детектор имел площадь поверхности 300 мм². Кончик иглы, на котором накапливались ионы $^{223}_{88}\text{Ra}$, можно приблизительно рассматривать как точечный источник по отношению к размеру Si-детектора в данной геометрической конфигурации.

В спектре на рисунке 3.4 наиболее интенсивные α -линии принадлежат радиоактивным дочерним нуклидам $^{223}_{88}\text{Ra}$, $^{219}_{86}\text{Rn}$, $^{215}_{84}\text{Po}$ и $^{211}_{83}\text{Bi}$. Обнаружены длинные низкоэнергетические хвосты энергетических пиков, обусловленные процессами рассеяния внутри вакуумной камеры. Активность источника была рассчитана с помощью формулы

$$A(^{223}_{88}\text{Ra}) = \frac{N(^{223}_{88}\text{Ra})}{\nu(^{223}_{88}\text{Ra}) \omega T}, \quad (3.1)$$

где $N(^{223}_{88}\text{Ra})$ — количество отсчётов для данного пика, $\nu(^{223}_{88}\text{Ra})$ — коэффициент ветвления распада для данного энергетического пика, ω — относительный пространственный угол, а T — время измерения. Активность источника оказалась равной $(4.14 \pm 0,17)$ кБк.

Результаты эффективности транспортировки

Измерения эффективности транспорта проводились путём установки Si-детектора в двух основных точках вдоль линии пучка, до и после дипольного магнита (детекторная станция 1 и 2 на рисунке 3.1), при давлениях газа в диапазоне от 50 до 300 мбар и от 100 до 200 мбар соответственно, и в четырёх разных положениях иглы с радиоактивным источником. Основным референтным пиком, по которым определялась эффективность транспортировки нуклидов $^{219}_{86}\text{Rn}$, был выбран самый большой и изолированный

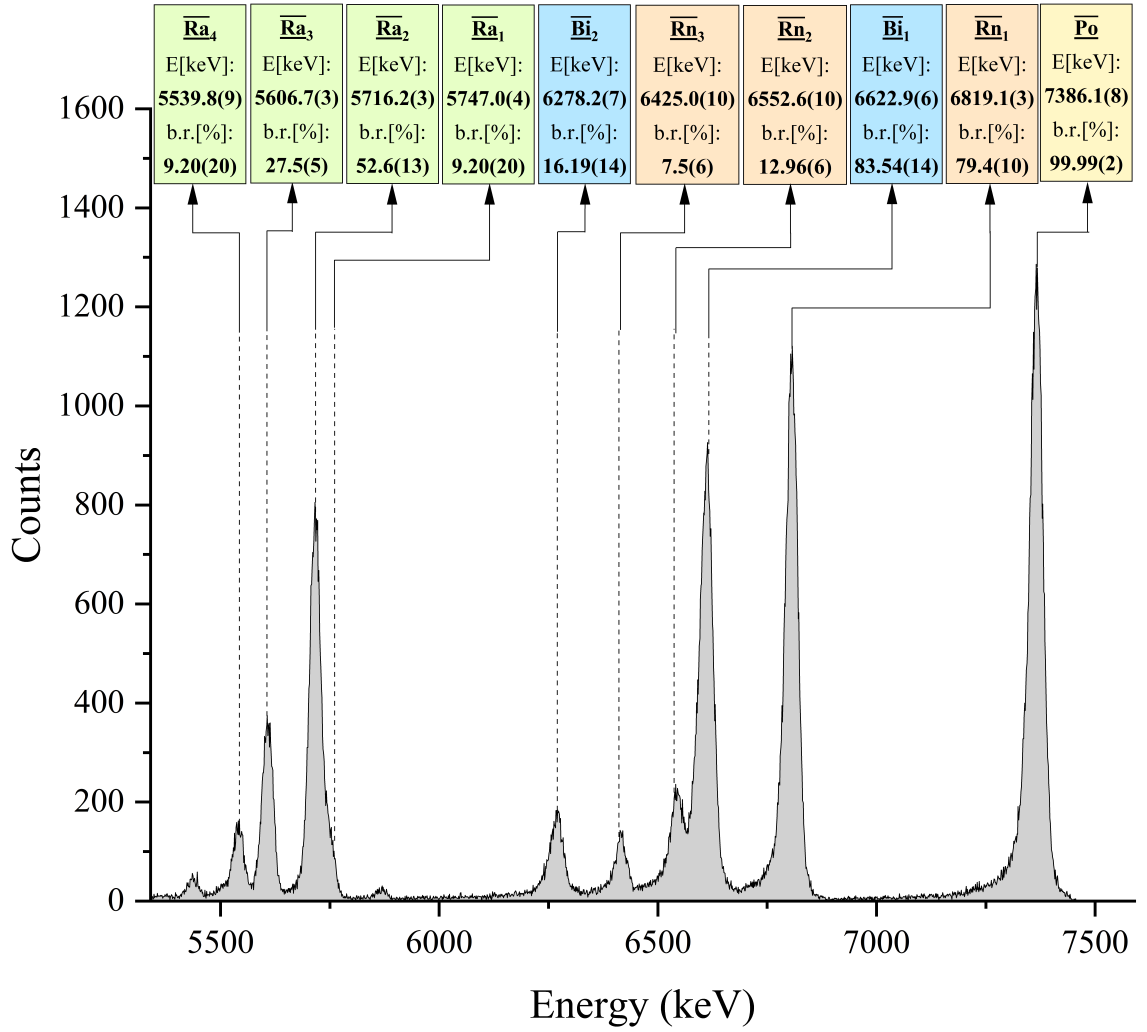


Рисунок 3.4: Спектр альфа-распада $^{223}_{88}\text{Ra}$, полученный во время измерения активности игл. Временной интервал получения спектра составлял 4100 с.

пик с энергией, составляющей около 6.8 МэВ (см. рисунок 3.5). Функция подгонки $f(x)$, использованная для оценки количества отсчетов под самым большим пиком $^{219}_{86}\text{Rn}$, представляла собой композицию функции распределения Гаусса и экспоненциальной функции, чтобы соответствовать длинному левому хвосту пика

$$f(x) = \begin{cases} I \cdot \exp\left(\frac{\Delta x}{2} \left(\frac{2(x - x_0) + \Delta x}{s^2}\right)\right), & x \leq x_0 - \Delta x \\ I \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{x - x_0}{s}\right)^2\right), & x > x_0 - \Delta x \end{cases}, \quad (3.2)$$

где x_0 — центр максимума пика, Δx — расстояние с левой стороны относительно максимума пика x_0 , где соединяются обе функции, s — характеризует ширину

пика и I — максимум пика [54]. Таким образом, число отсчётов для данного пика N было определено как интеграл функции подгонки $f(x)$.

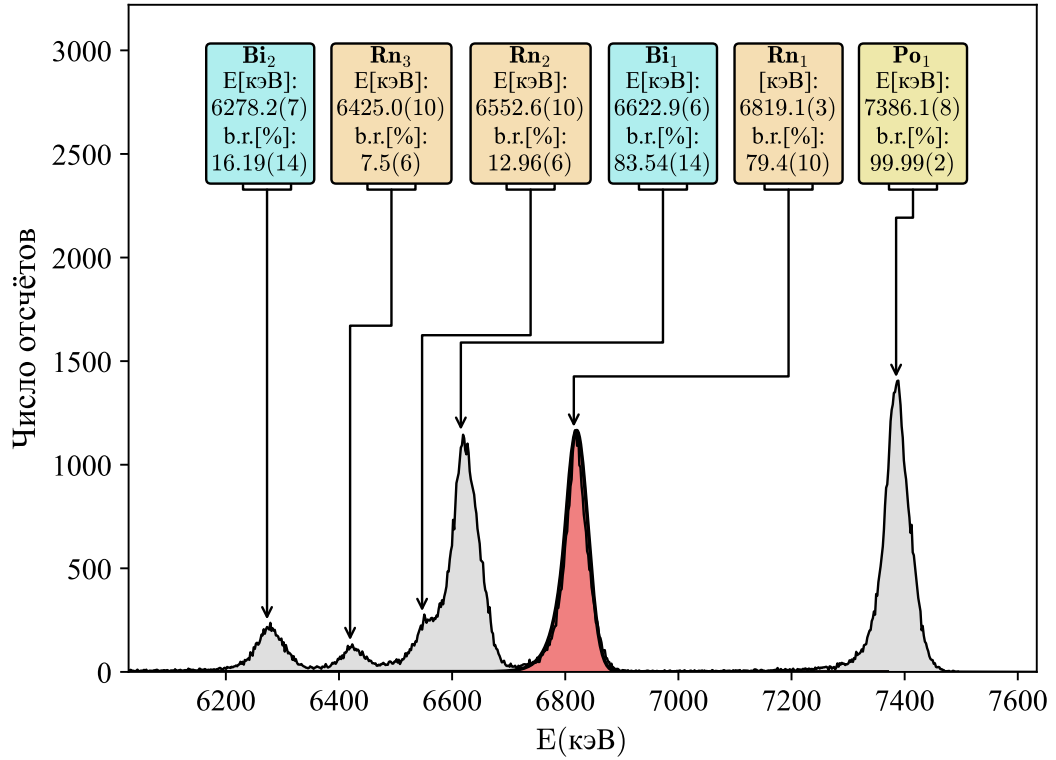


Рисунок 3.5: Фитирование пика $^{219}_{86}\text{Rn}$ с формулой (3.2), используемой для оценки эффективности транспортировки. Данный спектр был получен перед дипольным магнитом для первого положения иглы за 1021 с.

Имея в виду вышесказанное, формула для определения эффективности транспортировки при имплантации частиц глубоко в детекторе будет иметь следующий вид

$$\eta = \frac{N(^{219}_{86}\text{Rn})}{\nu(^{219}_{86}\text{Rn}) A(^{223}_{88}\text{Ra}) \omega e^{-\lambda_{Ra} t_m} \Delta t_m},$$

где $N(^{219}_{86}\text{Rn})$ — число отсчётов для данного пика $^{219}_{86}\text{Rn}$, $\nu(^{219}_{86}\text{Rn})$ — коэффициент ветвления распада для данного энергетического пика, λ_{Ra} — постоянная распада $^{223}_{88}\text{Ra}$, ω — относительный пространственный угол, t_m — момент времени начала измерения относительно момента времени начала измерения активности источника $^{223}_{88}\text{Ra}$, Δt_m — время измерения. Если предположить, что ионы $^{219}_{86}\text{Rn}$ осаждаются или имплантируются в защитном слое кремниевого детектора, тогда измеренное число отсчётов в детекторе будут относиться только к половине изотропно испускаемых альфа-частиц распавшихся нуклидов $^{219}_{86}\text{Rn}$ и направленных к поверхности детектора, и

поэтому в дальнейших расчётах относительный пространственный угол будет принимать значение $\omega = 0.5$. Также, в данной формуле для η не учитывается коррекция для количества распавшихся изотопов $^{219}_{86}\text{Rn}$ при их транспортировке до детекторной станции, которые альфа-радиоактивны с периодом полураспада 3.96 с, так как, как будет показано в разделе по определению времени эвакуации, при их транспортировке во временном интервале от 100 мс до 300 мс число транспортированных частиц незначительно уменьшится в интервале примерно с 2% до 5% соответственно.

В течение проведения экспериментов возникло несколько проблем, о которых необходимо упомянуть: царапина иглы и неисправность детектора. При изменении со второго на третье положение иглы на поверхности иглы возникла царапина, из-за чего в дальнейших измерениях наблюдалась гораздо более низкая активность, чем ожидалось. По этой причине после того, как все измерения были выполнены, активность источника снова измерялась в вакуумной камере, которая была определена как (311 ± 29) Бк, и нужно было определить активность источника в прошедшем времени с использованием формулы распада до момента времени, когда возникла царапина, для третьей и четвёртой позиции иголки. Таким образом удалось восстановить значения только в случае измерений до биполярного магнита, так как в альфа-спектрах для этих двух позиций иголки после магнита наблюдались очень неясные размытые пики, трудноотделимые от фона, которые вносили бы значительные ошибки в статистику определения параметров транспортировки.

Вторая проблема заключалась в неисправности детектора в то время, когда электроды настраивались для оптимизации обнаружения максимальной активности при переходе на экспериментальную сессию с использованием Ar. После этого момента Si-детектором были обнаружены очень низкие скорости счёта, и их было практически невозможно использовать для обнаружения какой-либо активности $^{219}_{86}\text{Rn}$, особенно после того момента, как возникла царапина на игле. По этой же причине не проводились измерения в случае использования Ar, которые давали бы ещё меньшие значения, чем в случае с использованием He.

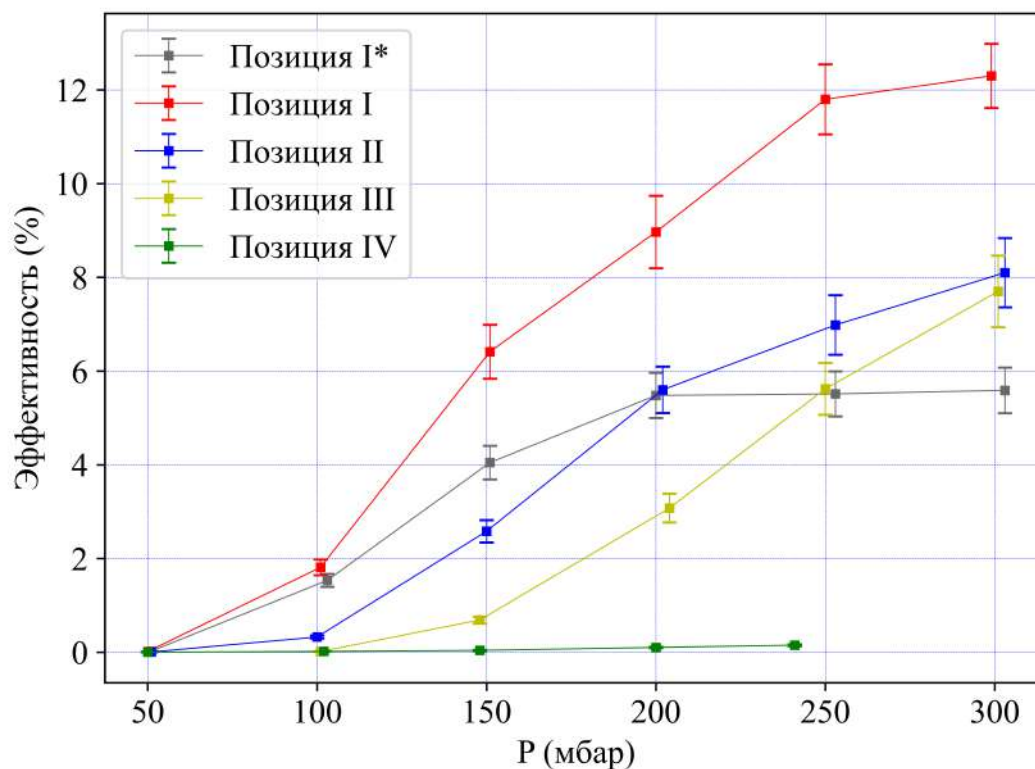


Рисунок 3.6: Эффективность транспортировки, измеренная с помощью радиоактивного альфа-источника отдачи $^{223}_{88}\text{Ra}$ для газовой ячейки MARA-LEB. Измерения проводились с помощью кремниевого детектора, установленного перед дипольным магнитом. Были протестированы четыре положения иглы. В качестве буферного газа использовался He.

На рисунках 3.6 и 3.7 представлены результаты измерения эффективности транспортировки до и после дипольного магнита соответственно. Так как изменение позиции иглки в газовой ячейке нужно было проводить в открытой части установки IGISOL-4 в атмосферных условиях лаборатории, нужно было после каждого изменения позиции очищать газовую ячейку от примесей и загрязнений в воздухе, поддерживая температуру ячейки выше 100°C в течение ночи установкой картриджей в газовой ячейке с помощью поддержания газового потока He при давлении, равном 50 мбар. Чтобы показать влияние очищения газовой ячейки на измеряемую эффективность транспортировки, дополнительно были сделаны измерения для первой позиции иглки с радиоактивным источником без проведения очищения, которые позволили показать снижение эффективности транспортировки (серая линия на графиках). Максимальная эффективность транспорта, измеренная с помощью кремниевого детектора перед дипольным магнитом, составила 12%

для He при давлении внутри газовой ячейки, равному 300 мбар [16]. Все остальные положения иглы демонстрируют снижение эффективности по мере увеличения расстояния установки иглы дальше от первого положения или при установке вблизи стенок газовой ячейки. В результатах измерений после дипольного магнита также прослеживаются те же самые закономерности, как и в измерениях до магнита, где максимальная эффективность транспортировки около 6% была получена для первой позиции иголки при давлении, равному 200 мбар. .

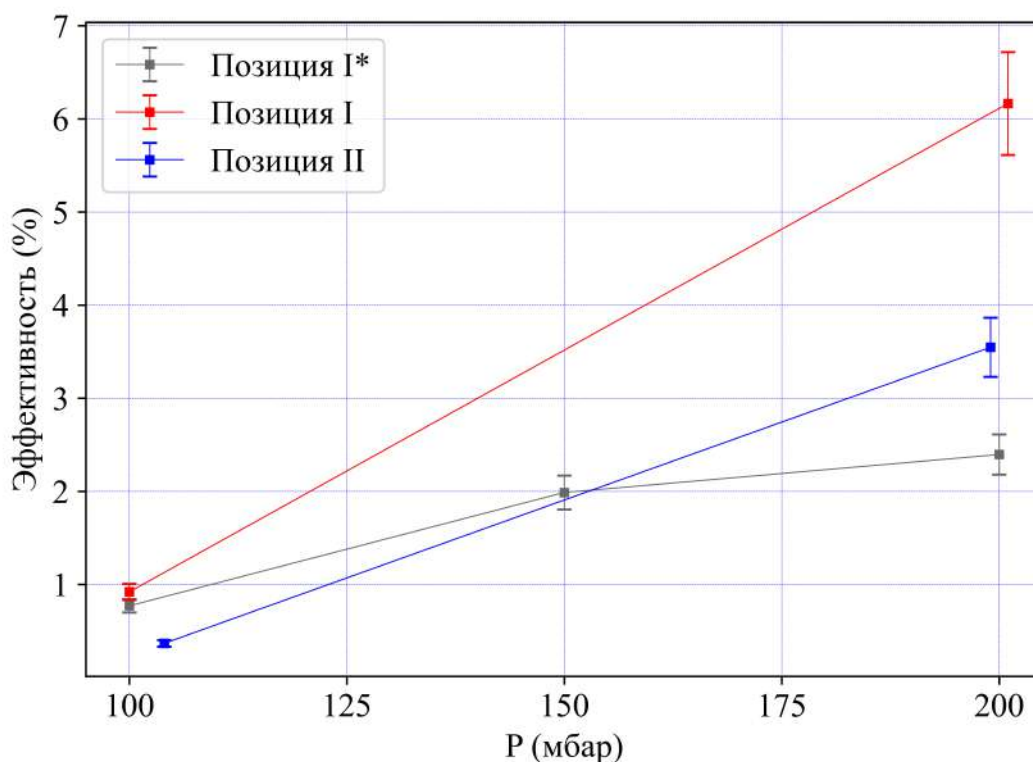


Рисунок 3.7: Эффективность транспортировки, измеренная с помощью радиоактивного альфа-источника отдачи $^{223}_{88}\text{Ra}$ для газовой ячейки MARA-LEB. Измерения проводились с помощью кремниевого детектора, установленного на распределительном устройстве (после дипольного магнита). Были протестированы четыре положения иглы. В качестве буферного газа использовался He.

3.2.2 Измерение времени эвакуации

Второй тип проведенных на установке измерений был направлен на определение времени эвакуации ионов из газовой ячейки, которое по определению представляет собой временной интервал от момента вылета

ионов из поверхности радиоактивной иглы до их обнаружения далее по ионнопроводу на IGISOL-4 с помощью MCP детектора (детекторная станция 2 на рисунке 3.1). Таким образом, время эвакуации складывается не только из времени эвакуации ионов из газовой ячейки, но и из времени транспортировки через ионную оптику по каналу IGISOL-4. Основным набор ионов, которые разделялись биполярным магнитом и наблюдались после него, состоял из $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ в гелии и $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ar^+ в Ar. Время полёта ионов по линии пучка до детектора MCP, установленного на распределительной станции после биполярного магнита, составляет около нескольких десятков миллисекунд, а поскольку время эвакуации выражается в сотнях миллисекунд, время полёта не считается значимым. Чтобы иметь возможность проводить такие измерения, иглу подключали к источнику напряжения, который был запрограммирован на изменение приложенного к игле напряжения в определенный период времени. Пульсация иглы осуществлялась путём постоянного поддержания напряжения на игле на уровне -30 В , за исключением небольших интервалов в 50 или 150 мс, когда напряжение иглы было установлено на 0 В. В момент отсутствия на игле напряжения производилась эмиссия ионов, которые с помощью газового потока и электромагнитной оптики направлялись к MCP детектору, где производилось их обнаружение. Такая процедура регистрации автоматически повторялась, и все спектры регистрации впоследствии суммировались в один спектр. Измерения проводились для Ne при давлениях около 200 мбар для всех четырех положений иглы и для Ar при давлениях около 100 мбар только для первого положения иглы. Длина импульса для всех измерений с использованием Ne составляла 50 мс, за исключением некоторых измерений $^{219}_{86}\text{Rn}^+$, где длительность импульса была увеличена до 150 мс, чтобы улучшить полученный сигнал и сравнить результаты. Для всех измерений параметров времени эвакуации, выполненных с использованием Ar в качестве буферного газа, длительность импульса составляла 150 мс.

С целью получения основных характерных параметров транспортировки из временных профилей были сделаны два важных теоретических вывода. Первый из них — это формула распределения ионов из изотропного точечного источника (см. формулу (A.15) в приложении A.2.3), которая дает вероятность обнаружения термализованного иона внутри окружающей среды, изотропно

облученной точечным источником. Эту формулу можно использовать довольно часто, поскольку все процессы распада в ядерной физике обычно изотропны и не редки случаи, когда радиоактивный источник аппроксимируется точечным, например, источник, который имеет малые размеры относительно размеров детектора. После получения функции распределения, генерируемой из изотропного точечного источника, на её основе была получена функция подгонки времени эвакуации путём решения уравнения диффузии с конвекцией (см. формулу A.22 в приложении A.3 для подробного объяснения функции). Все временные профили были сначала сглажены с помощью фильтра SG (Savitzky–Golay), сглаженный спектр был фитирован с помощью функции заданной формулы A.22, а затем полученные значения для параметров функции были использованы в качестве начальных значений параметров при фитировании начального временного профиля. Хотя с помощью этой функции получались значения для характерных параметров транспортировки (t_0 , Δt , t_{max}) с очень высокой точностью $R^2 > 0.97$, нужно было очень длительное время подбирать правильные начальные значения для подгонки и делать аппроксимации, чтобы получить определённые значения для параметров транспорта. Чтобы обойти эту сложность, были отдельно сделаны два дополнительных вывода более упрощённых формул подгонки, в случае функции с отсутствием и наличием длинного плато, которые смогут более просто выразить параметры транспортировки и уменьшить число параметров функции подгонки.

Первая математически модифицированная и полученная формула (3.3) из формулы A.22 оказалась очень подходящей для фитирования временных профилей, в особенности тех, которые имеют длинное плато $\Delta t \gg 0$ (см. временные профили 3.12, 3.13, 3.14 с временем испускания ионов 150 мс) и приблизительно симметричное распределение относительно параметра t_{max}

$$F(t) = y_0 + F_{max} \left(\operatorname{erf} \left[\frac{a_1(t - t_0)}{\sqrt{t + c_1}} \right] - \operatorname{erf} \left[\frac{a_2(t - (t_0 + \Delta t))}{\sqrt{t + c_2}} \right] \right), \quad (3.3)$$

где y_0 — уровень фона, F_{max} — амплитуда, a_1 и a_2 — общая скорость роста функции, c_1 и c_2 — скорость роста функции при асимптотическом сгибе и t_0 и $t_0 + \Delta t$ — времена при полувысоте амплитуды профиля $F(t) = y_0 + F_{max}/2$. В этих случаях из-за очень больших получаемых значениях при фитинге для

коэффициентов $c_1 \gg t$ и $c_2 \gg t$ было сделано упрощение формулы (3.3) с пренебрежением выражения в знаменателе $\sqrt{t + c_1} \rightarrow \text{const}$ и $\sqrt{t + c_2} \rightarrow \text{const}$, после которого удалось получить выражения для определения транспортного параметра t_{max} из остальных параметров фитинга.

$$t_{max} = \frac{1}{a_1^2 - a_2^2} \left(a_1^2 t_0 - a_2^2 (t_0 + \Delta t) + \sqrt{a_1^2 a_2^2 \Delta t^2 + (a_1^2 - a_2^2) \ln \left(\frac{a_1}{a_2} \right)} \right),$$

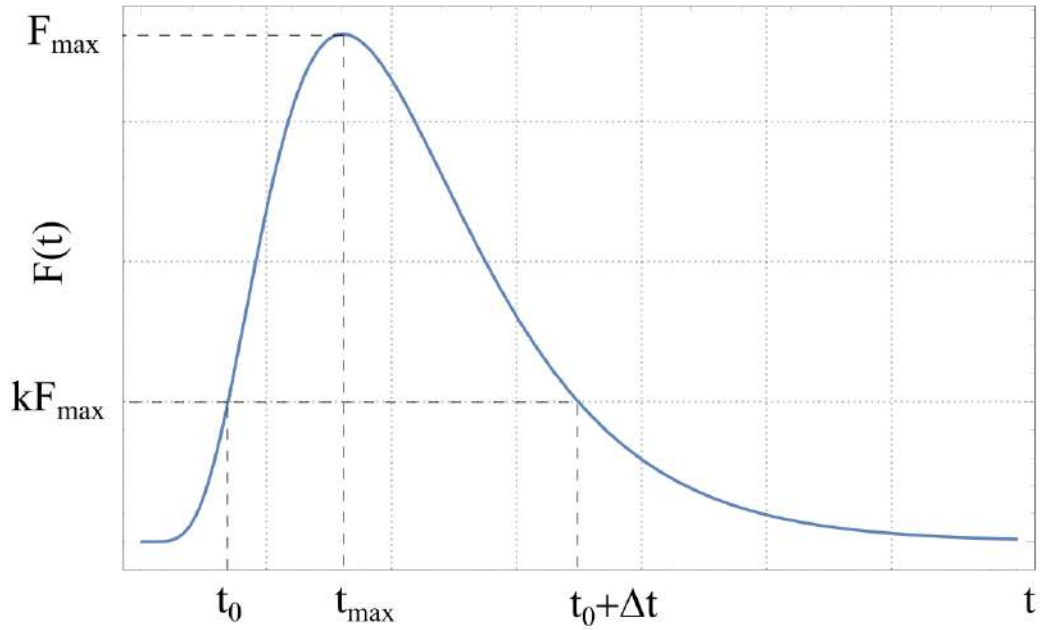


Рисунок 3.8: Функция подгонки $F(t)$ и параметр $k = 0.5$, используемые при процессе фитинга временных спектров эвакуации, заданных формулой А.22

В остальных случаях с временными профилями без длинного плато из-за сильного перекрытия двух $\text{erf}(\circ)$ функций удалось только приблизительно выразить параметры транспортировки, которые из-за аппроксимации и сложной зависимости от всех параметров фитинга получались с недостаточно высокой точностью, несмотря на высокую точность $R^2 > 0.95$ фитинга сглаженных временных профилей. Чтобы обойти эту проблему и дополнительно снизить большое число параметров, а так же явно выразить $F(t)$ через определяемые параметры транспортировки, было сделано упрощение формулы (3.3) в виде формулы (3.4)

$$F(t) = y_0 + F_{max} \left\{ 1 - \text{erf} \left[a \left(\frac{t - t_{max}}{t} \right)^2 \right] \right\}, \quad (3.4)$$

где $\Delta t = 2t_{max} \sqrt{a \cdot \operatorname{erf}^{-1}(0.5) / (a - \operatorname{erf}^{-1}(0.5))}$, которое и рекомендуется для более точных фитингов асимметричных временных профилей с отсутствием плато, а в случае второго типа профилей (симметричных с длинным плато) рекомендуется пользоваться формулой (3.3). Все полученные результаты фитингов для He и Ar, представленные в этой работе, были получены с помощью формул подгонки (3.3) и (3.4) для определения всех характерных параметров транспортировки и были сравнены с результатами работы [16], которые подтвердили справедливость выведенных формул в рамках пределов погрешности фитинга.

Результаты измерения характерных времён эвакуации

На рисунках 3.9 и 3.10 представлены результаты характерных времён эвакуации путём фиттирования кривых, полученных от начального сглаживания спектров измерений (см. рисунки 3.12, 3.13, 3.14, 3.15, 3.16), и использования формул подгонки (3.4) и (3.3). Также в этих рисунках дополнительно представлены численные решения уравнения диффузии-конвекции для определения тех же параметров транспортировки, математически моделируемых и полученных в результате решения задания в трёх последовательных этапах:

1. Этап задержки ионов, который в зависимости от эксперимента составлял около 600 мс и 1200 мс в случае использования He и Ar соответственно и представляет собой интервал времени, при котором к радиоактивной иглке был приложен потенциал -30 В,
2. Этап испускания ионов, который в зависимости от эксперимента составлял либо 50 мс либо 150 мс, представляет собой интервал времени, при котором к радиоактивной иглке был приложен потенциал 0 В,
3. Этап газовой транспортировки ионов до выходного отверстия газовой ячейки.

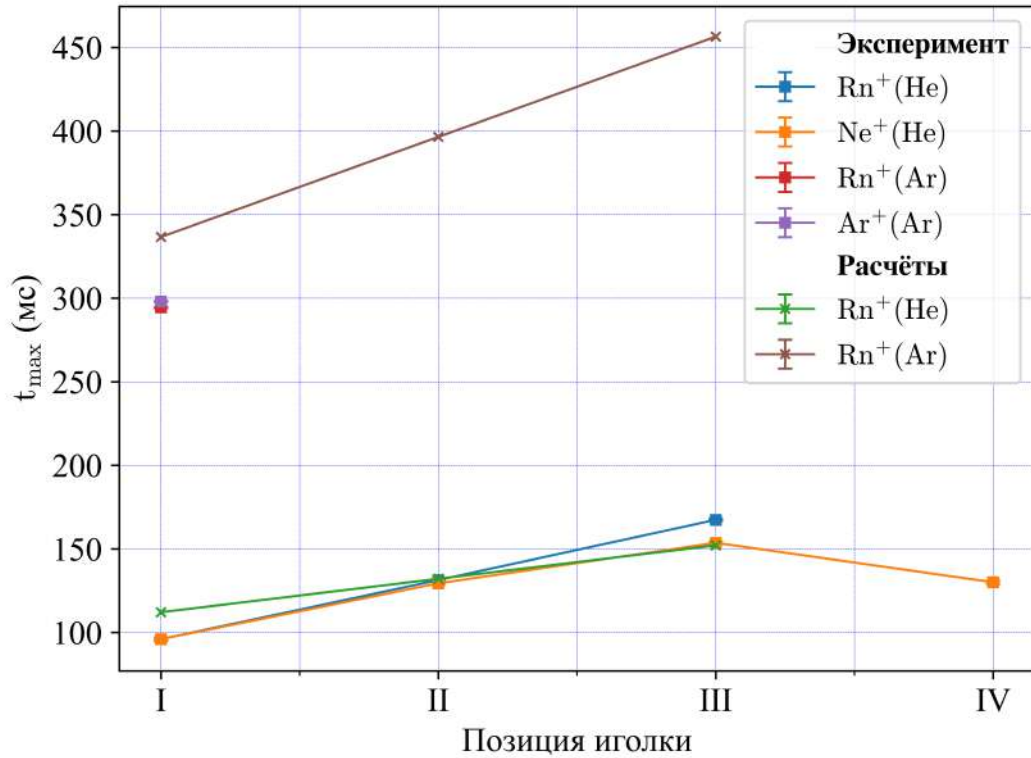


Рисунок 3.9: Результаты измерения характерного времени эвакуации t_{max} с использованием He и Ar в качестве буферного газа

Как видно из рисунков 3.9, 3.10 и 3.11, проведённые численные расчёты достаточно точно описывают характерные параметры транспортировки временных профилей по отношению к экспериментально измеренным. При этом сделаны допущения определённого рода ошибок в расчётах, которые влияют на форму распределения транспортируемых ионов в газовой ячейке, к которым относятся: сильное упрощение задания в виде одномерного случая ламинарного газового потока, аппроксимация при получении коэффициентов диффузии с помощью формулы (1.12), упрощённое одномерное начальное распределение ионов $g(z, 0)$ из формулы (A.18) и отсутствие рассмотрения диффузионных потерь ионов на стенках газовой ячейки.

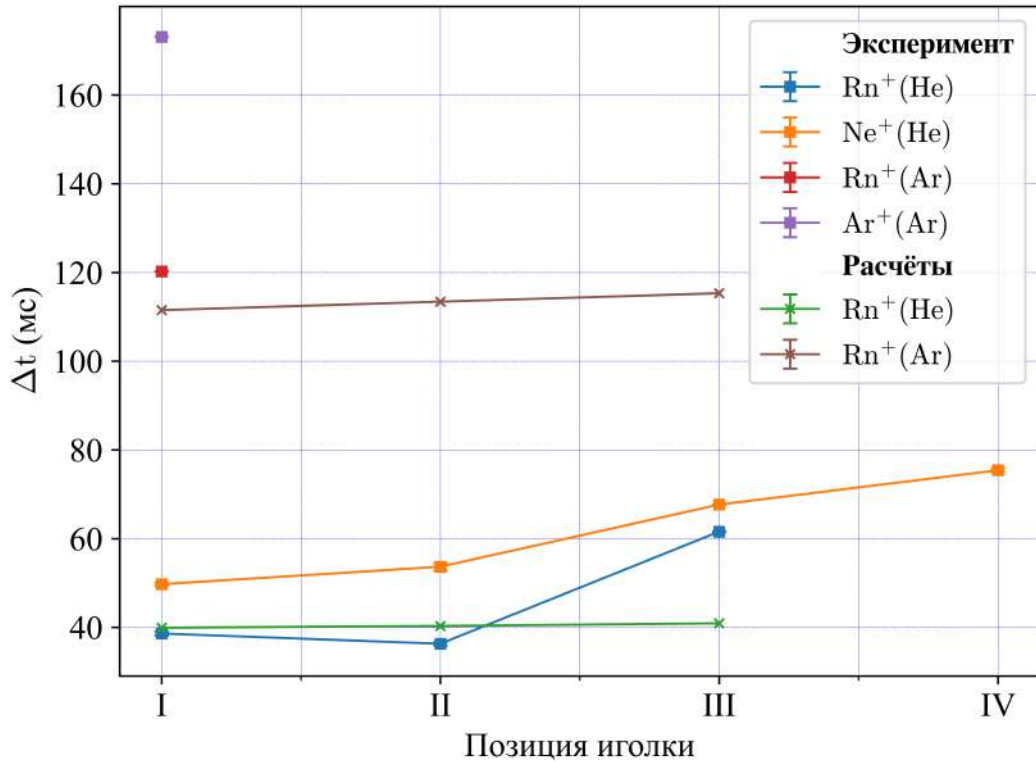


Рисунок 3.10: Результаты измерения характерного времени эвакуации Δt с использованием He и Ar в качестве буферного газа

Как видно из рисунков 3.11 и 3.9, характерные времена эвакуации для $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ увеличиваются по мере удаления положения иглы от выхода газовой камеры или по мере приближения к стенкам газовой камеры. Разницу в значении t_{max} при длительности времени испускания 50 и 150 мс для $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ можно объяснить тем, что t_{max} фактически представляет собой время, необходимое для извлечения половины активности из газовой ячейки в случае симметричного профиля времени эвакуации, что имеет место для $^{219}_{86}\text{Rn}^+$. В таких случаях исходное время эвакуации можно приблизительно оценить как $t_0 \approx t_{max} - \frac{\Delta t}{2}$, что, если это принять во внимание, даст очень похожие результаты в диапазоне от примерно 80 до 180 мс для первого и четвертого положения иглы соответственно. Значения t_0 , которые имеют одинаковый смысл со значениями $t_{1/2}$ в предыдущем разделе, показали, что их можно определять практически независимо от длительности временного интервала испускания ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$, так как максимальная разница между ними, определенная при длительности интервала 50 и 150 мс, составляет около 10%. Значения Δt показывают очень небольшие изменения в случае $^{219}_{86}\text{Rn}^+$,

что, как показано на рисунке 3.10, варьируется в пределах 50 и 150 мс при длительности импульса 50 и 150 мс соответственно в первых трех положениях иглы. Пропорционально более широкое Δt в случае длительности импульса 150 мс можно объяснить тем фактом, что пространственное распределение $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ становится шире по мере увеличения интервала испускания ионов в условиях течения газа.

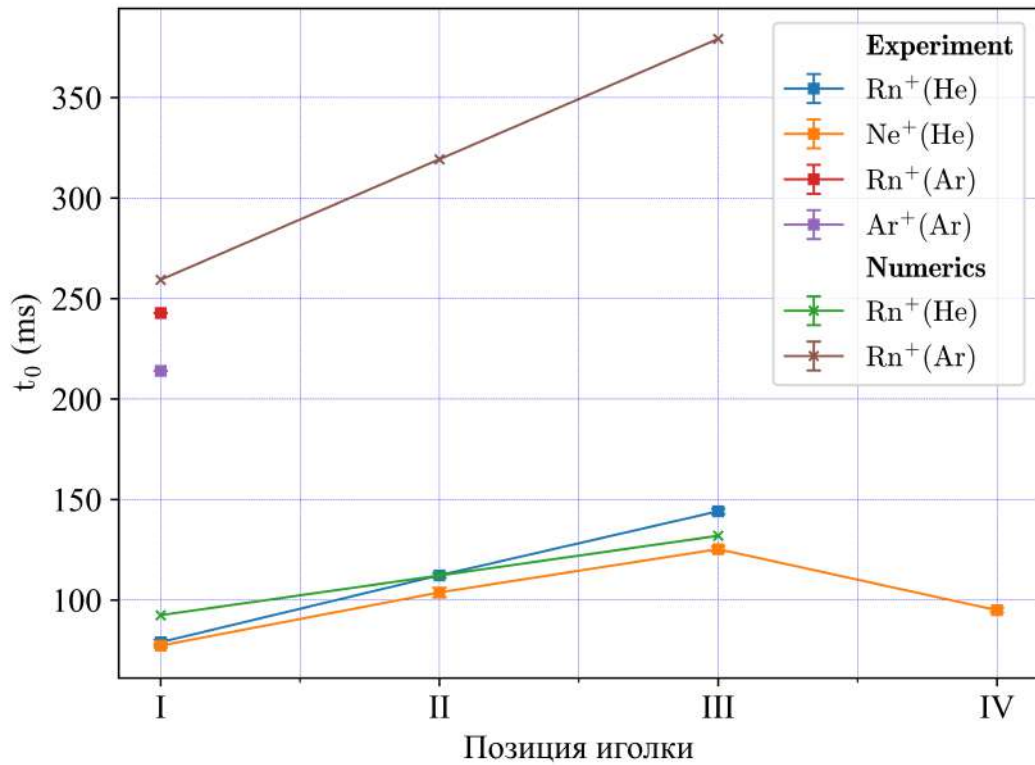


Рисунок 3.11: Результаты измерения характерного времени эвакуации t_0 с использованием He и Ar в качестве буферного газа

Принимая во внимание все рассматриваемые ионы, пары ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ показывают очень похожее поведение практически во всех положениях иглы. В четвертом положении иглы, несмотря на увеличение длительности импульса с 50 мс до 150 мс, в случае $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ сигнал был очень слабым и трудноотличимым от фонового шума. Чтобы обойти такого рода проблемы со слабым измеряемым сигналом, возникающим из-за низкой эффективности транспортировки для $^{219}_{86}\text{Rn}^+$, описанного подробно в конце настоящего раздела, было предложено оценивать параметры времени эвакуации по гораздо более интенсивному сигналу временных профилей Ne^+ , измеренных для одного и того же положения иглы и длительности временного интервала испускания (см.

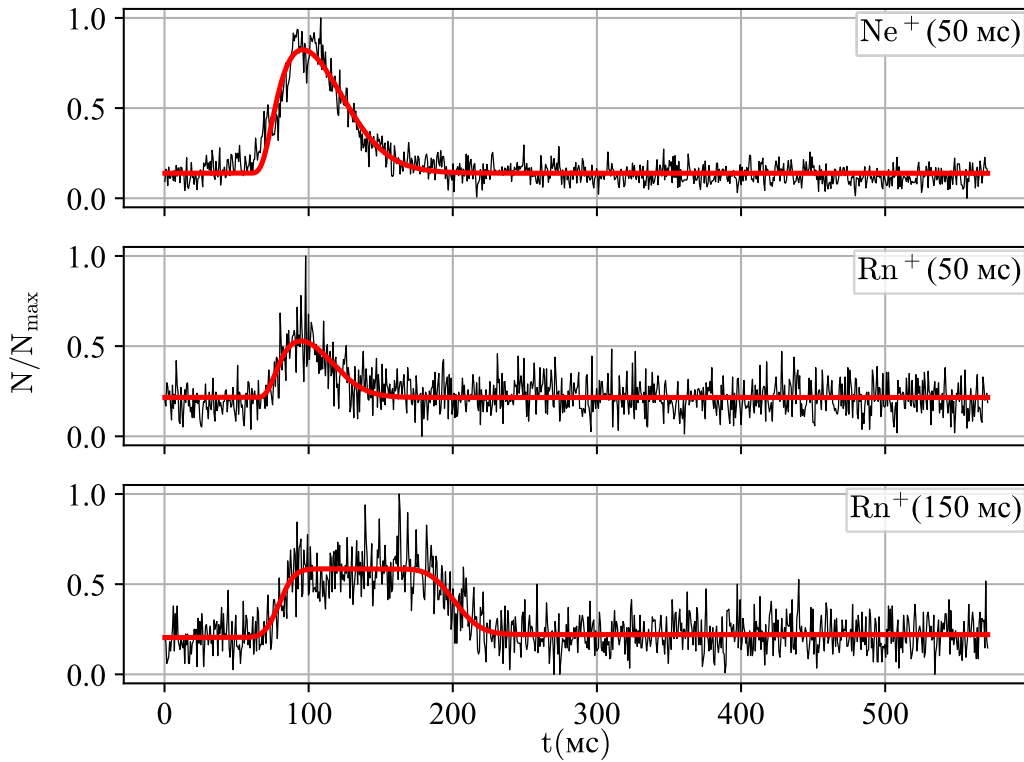


Рисунок 3.12: Временные профили эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ из первого положения радиоактивной иголки, полученные с использованием He.

рисунок 3.15).

Как и ожидалось в случае использования Ar в качестве буферного газа (см. рисунок 3.16), t_{max} иона $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ увеличивается в результате замедления подвижности газа в используемых условиях, при этом Δt практически не менялось. Это приводит примерно к трехкратному увеличению времени эвакуации t_0 из первого положения иглы в случае использования Ar в качестве буферного газа. В этом случае все ионы также имеют почти одинаковые значения t_{max} и могут быть использованы для приблизительной оценки t_{max} $^{219}_{86}\text{Rn}^+$, но ввиду отсутствия измерений для остальных положений иглы этот вывод не может быть обобщён на все случаи.

Из-за особенно похожего поведения временных профилей эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ в He и $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ar^+ в Ar и очень близких значений их параметров транспортировки t_{max} и t_0 была сделана проверка на предмет возможной корреляции между этими парами ионов. Для сравнения были изучены эффекты ионизации $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и сопутствующих альфа-частиц в He и Ar, так как не была известна точная концентрация Ne в буферном газе He.

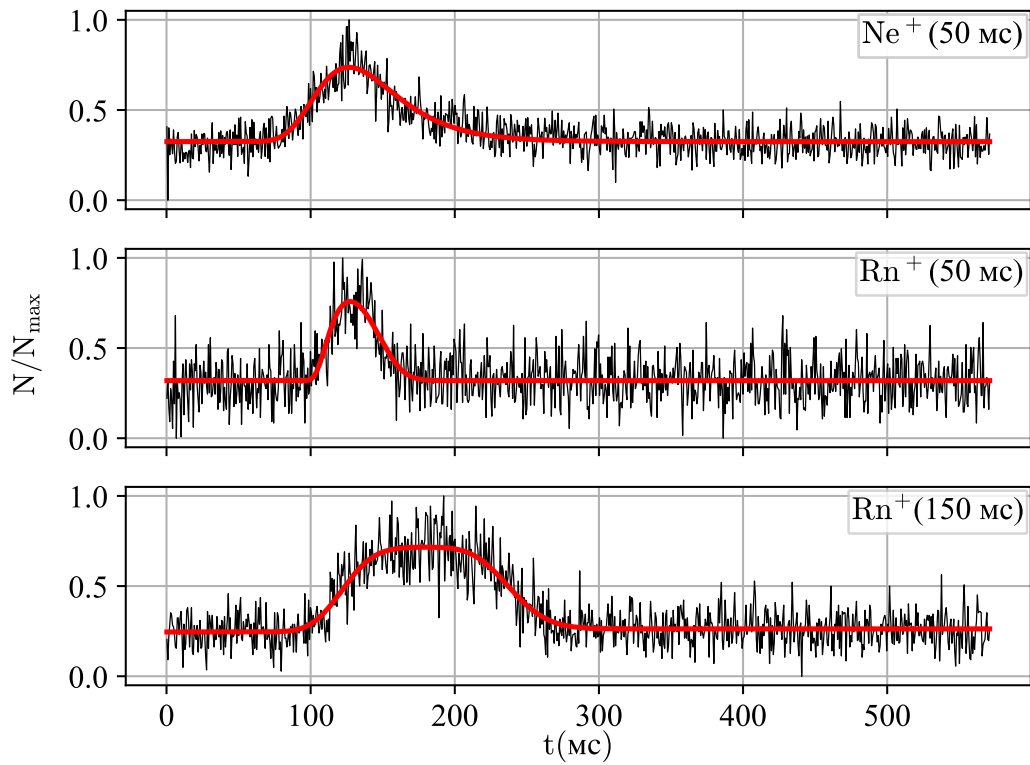


Рисунок 3.13: Временные профили эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ из второго положения радиоактивной иглки, полученные с использованием He.

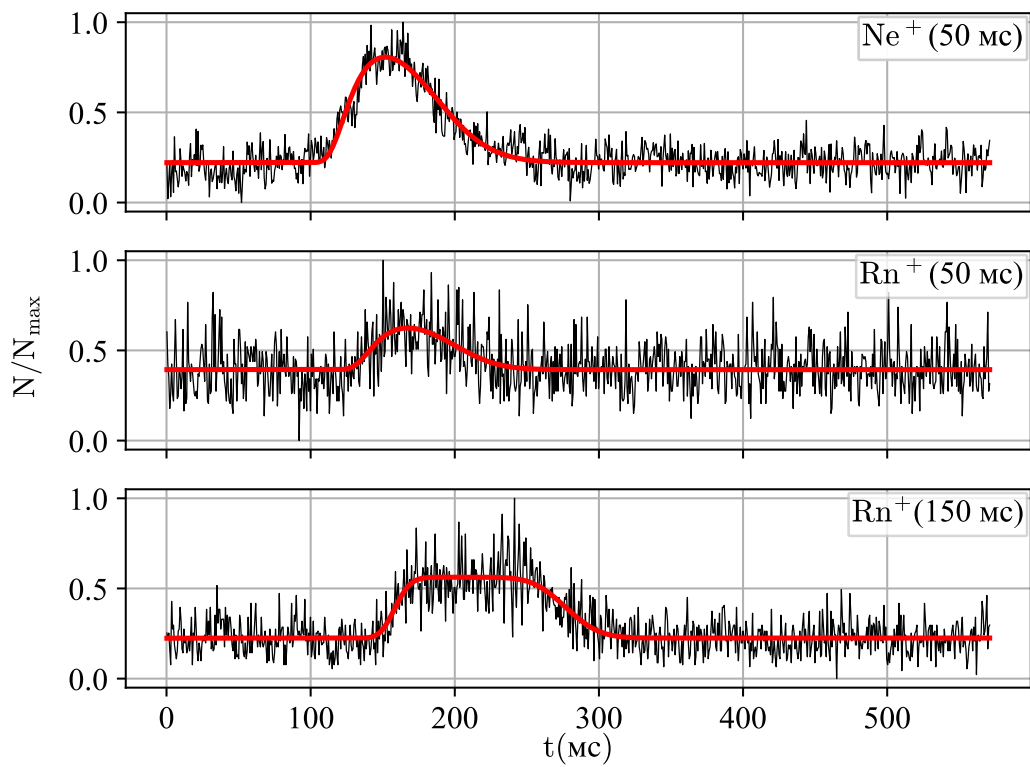


Рисунок 3.14: Временные профили эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ из третьего положения радиоактивной иглки, полученные с использованием He.

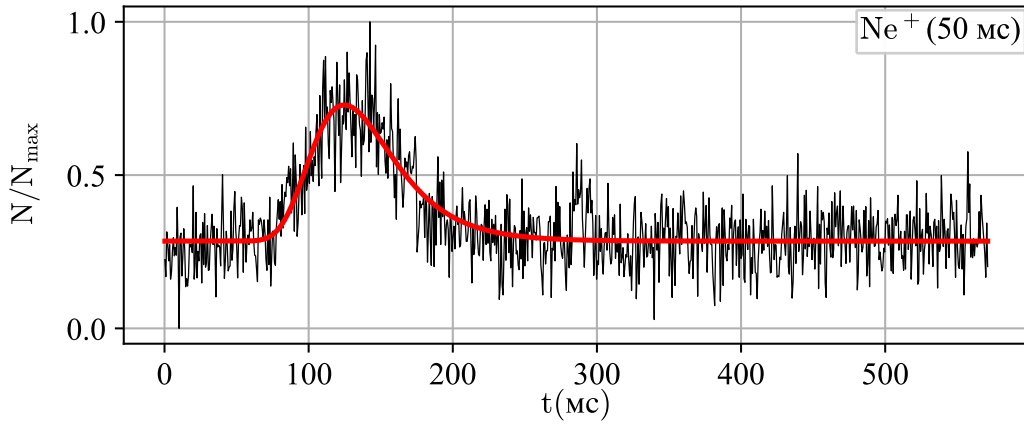


Рисунок 3.15: Временные профили эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ из четвёртого положения радиоактивной иголки, полученные с использованием Ne .

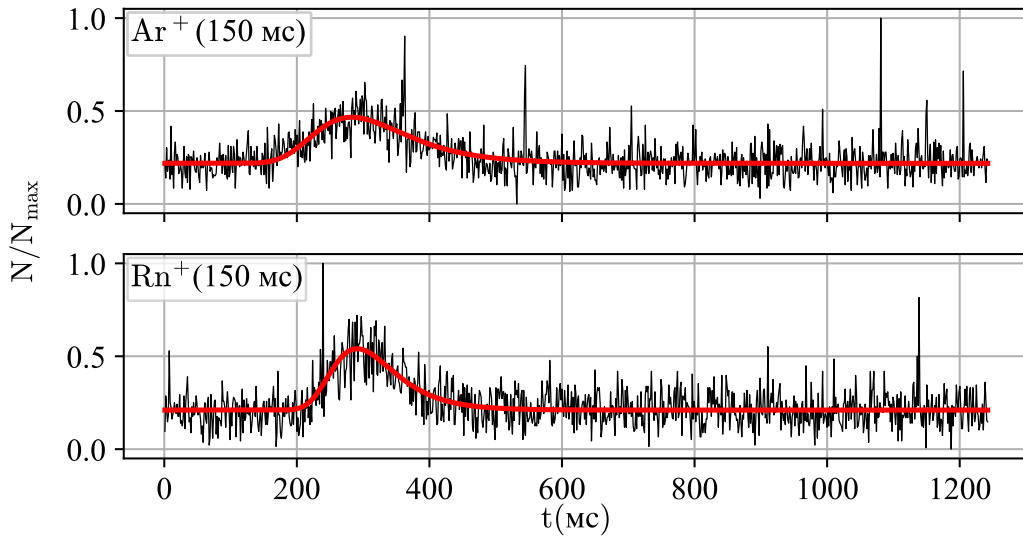


Рисунок 3.16: Временные профили эвакуации ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ar^+ из первого положения радиоактивной иголки, полученные с использованием Ar .

Суть данного исследования заключается в том, чтобы определить возможность корреляции плотности генерируемых ионов Ne^+ и Ar^+ в единице времени с $^{219}_{86}\text{Rn}^+$, и исключить корреляцию с одновременно генерируемыми ионами из-за альфа-частиц, вылетающих при альфа-распаде $^{223}_{88}\text{Ra}$. Используя формулу из работы [55] для скорости образования ионно-электронных пар в единице объёма

$$w = \frac{n}{V} = \frac{A\Delta E}{VW}, \quad (3.5)$$

где n —скорость образования ионно-электронной пары, V —облучаемый объем, A —активность источника, создающего ионный пучок ($A = 4.14 \text{ кБк}$), ΔE —энергия, выделяемая электронам газовой мишени и W —среднее значение

Таблица 3.1: Скорость плотности генерации ионно-электронных пар и параметры торможения ионов в Ne и Ar

Газ	Ион	ΔE (кэВ)	w (см ⁻³ с ⁻¹)	$\langle R_{\parallel} \rangle$ (мм)	$\sigma_{\parallel}$ (мм)	l (мм)
Ne	$^{219}_{86}\text{Rn}^+$	9.13	$2.83 \cdot 10^8$	0.63	0.11	0.96
	α_{max} - частицы	1440	$6.70 \cdot 10^5$	385	6.25	130
Ar	$^{219}_{86}\text{Rn}^+$	7.34	$1.04 \cdot 10^8$	0.79	0.20	1.39
	α_{max} - частицы	1090	$6.97 \cdot 10^5$	482	7.8	130

энергия ионизации буферного газа (в случае Ne 36 эВ и в случае Ar 26 эВ) [56], были рассчитаны значения, которые изложены в таблице (3.1).

Значения для облучаемого объёма V в случае ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ представлял собой сферу с радиусом, равным $l = \langle R_{\parallel} \rangle + 3\sigma_{\parallel}$, так как в приближении изотропно излучающего точечного источника в этой сфере термализуются более 99% изотропно испускаемых ионов. Из-за очень большой длины пробега в случае альфа-частиц (см. таблицу 3.1), которая превышает на порядок максимальный размер газовой ячейки, нужно было использовать весь доступный объём газовой ячейки в качестве облучаемого объёма. В этом случае, из-за сложностей, связанных с геометрией газовой ячейки, предполагалось, что энергосодержание ΔE всех альфа-частиц, излучаемых во всех направлениях, равно максимальному энергосодержанию альфа-частиц, проходящих самый длинный путь внутри газовой ячейки при их перемещении от предполагаемого точечного источника (от кончика иглы) до самой удалённой точки на внутренней поверхности стенок газовой ячейки на расстоянии $l = 13$ см. Таким образом, можно быть абсолютно уверенными, что действительное значение для энергосодержания α -частиц, а с этим и значение для скорости образования ионно-электронных пар имеет значение ниже рассчитанного числа, и в таблице (3.1) этот столбец называется α_{max} -частицы.

Расчёты для пробегов при давлении 200 мбар Ne и 100 мбар Ar были выполнены в SRIM, а в TRIM были рассчитаны таблицы энергии ионизационных (электронных) потерь ионов. Начальная кинетическая энергия ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и сопровождающих их α -частиц была усреднена и взвешена в

соответствии с их коэффициентами ветвления при распаде $^{223}_{88}\text{Ra}$, что привело к значениям 102 кэВ и 5.63 МэВ соответственно. В результате в таблице 3.1 представлены энерговыделения иона электронам окружающей газовой среды ΔE , скорость образования ионно-электронных пар w , средний проекционный продольный пробег $\langle R_{\parallel} \rangle$, продольное рассеяние $\sigma_{\parallel}$ и характерная длина пути l . Глядя на значения в таблице 3.1, легко можно сделать заключение, что значения для скоростей образования ионных пар в единице объёма в Ne и Ar при облучении газа ионами $^{219}_{86}\text{Rn}^{+}$ как минимум на три порядка превышают значения в случае ионизации альфа-частицами. Эти выводы согласуются с утверждением, что основным источником ионизации атомов Ne и Ar являются ионы $^{219}_{86}\text{Rn}^{+}$, так-как легко можно будет выделить в спектре очень сосредоточенное локализованное распределение ионов генерируемых $^{219}_{86}\text{Rn}^{+}$ на фоне практически равномерно распределённых ионов по всей газовой ячейке, генерируемых альфа-частицами.

ГЛАВА 4

Метод газовой транспортировки сверхтяжёлых нуклидов в институте GSI

4.1 Исследование сверхтяжёлых элементов в институте GSI

Центр по изучению тяжёлых ионов общества Гельмгольца, известный как институт GSI в Дармштадте, Германия, основанный в 1969 году, является ведущим в мире международным ускорительным центром, специализирующимся на исследованиях в области физики ядра, адронов и элементарных частиц. Используя мощные ускорители и накопители частиц, ученые GSI проводят эксперименты, чтобы понять фундаментальные силы, связывающие атомные ядра, синтезировать новые сверхтяжелые элементы и исследовать природу состояния материи, существовавшей в первые микросекунды после Большого взрыва.

GSI использует комплекс ускорителей, включающий линейный ускоритель UNILAC и строящуюся в настоящее время установку для исследования антипротонов и ионов (FAIR). Эти ускорители запускают пучки как лёгких, так и тяжёлых ионов, с протона вплоть до урана, почти со скоростью света, создавая столкновения, которые воссоздают условия ранней Вселенной и позволяют изучать экзотические ядерные явления. Одним из основных направлений исследований GSI является исследование сверхтяжёлых элементов – элементов, не встречающихся в природе в таблице Менделеева. Эти элементы крайне нестабильны и существуют лишь доли секунды, прежде чем распадутся. Тщательно измеряя свойства распада полученных сверхтяжёлых ядер, учёные могут идентифицировать новые элементы и понять их структуру и стабильность [57, 58].

Таким образом, одним из ключевых инструментов в исследованиях

сверхтяжёлых элементов является масс-сепаратор TASCA, используемый для предварительной масс-сепарации заряженных продуктов реакции слияния по пути их транспортировки из мишенной камеры до газовой ячейки или камеры отдачи (RTC). TASCA представляет собой газонаполненный масс-сепаратор, оптимизированный для производства и выделения нейтронно-богатых изотопов элементов с $Z \in (112, 120)$ в реакциях горячего слияния, обычно индуцированных $^{48}_{20}\text{Ca}$ и $^{50}_{22}\text{Ti}$, с актинидными мишенями. Мишенная система состоит из вращающегося колеса диаметром 100 мм и четырех отдельных сегментов мишени, которые позволяют облучение всех доступных элементов, включая высокорadioактивные изотопы трансурановых элементов. Магнитная система сепаратора состоит из дипольного и квадрупольного магнита для пространственного разделения и фокусировки ионов с двумя ионно-оптическими режимами: режимом высокого пропускания и режимом очень малого размера изображения. TASCA обладает высокой эффективностью около 60% для направления ядер сверхтяжелых элементов, образующихся в мишени, в фокальную плоскость, находящуюся в внутреннем объеме газовой ячейки [59].

В этой главе будут рассмотрены конструктивные особенности и результаты теоретического исследования процесса газовой транспортировки для двух типов газовой ячейки, запланированных для экспериментальной эксплуатации в сопряжении с масс-сепаратором TASCA: высокоплотная газовая ячейка UniCell и аксиально-симметричная камера отдачи (RTC).

4.2 Газовая ячейка UniCell

UniCell — это новая универсальная высокоплотная газовая ячейка, предложенная исследователями из института GSI [60]. Она предназначена для изучения газофазной химии и ядерных свойств сверхтяжёлых элементов для прецизионной масс-спектрометрии, лазерной спектроскопии и спектроскопии радиоактивного распада. Газовая ячейка UniCell состоит из входного окошка из Майлара, через которое фокусированный пучок из масс-сепаратора TASCA попадает в газовый объем внутри ячейки. Далее следует клетка постоянного тока, состоящей из сеточного электрода и около семи кольцевых

электродов для ускорения термализующихся ионов сверхтяжёлых элементов к радиочастотной воронке. Новая компактная радиочастотная воронка, состоящая из около 175 электродов, установлена для высокоэффективной и быстрой транспортировки ускоренных частиц до выходного отверстия газовой ячейки (см. рисунок 4.1). В случае использования универсальной газовой ячейки планируется сопряжение с дополнительной системой из трёх радиочастотных-воронок, расположенных после выхода газовой ячейки, для фокусировки ионного пучка до измерительной установки. Во внутреннем объёме UniCell должны осуществляться физические условия для реализации ламинарного потока гелия, который играет роль буферного газа для компактной термализации ионного пучка. Основную роль для сверхбыстрой транспортировки частиц осуществляется играют электромагнитные поля, генерируемые электродами постоянного тока и радиочастотной воронки. UniCell предлагает ряд преимуществ, в том числе высокую эффективность более 90% для определённого типа сверхтяжёлого нуклида, быструю экстракцию в районе нескольких мс и небольшой поперечный и продольный эмиттанс ионного пучка заряженных сверхтяжёлых элементов [60, 61].

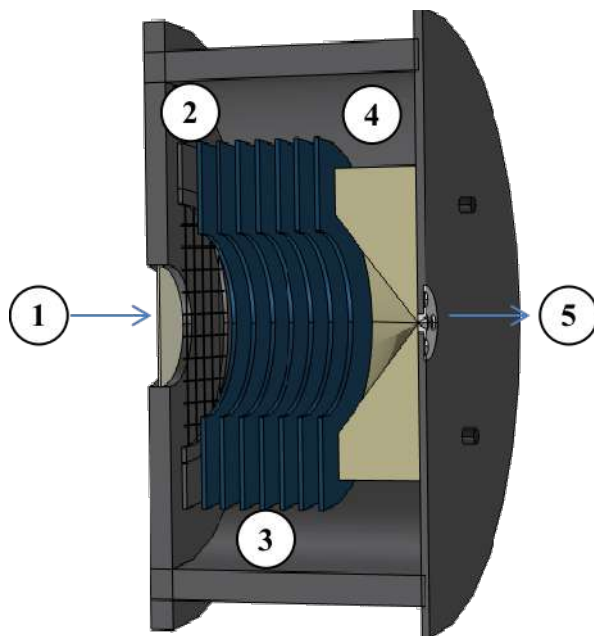


Рисунок 4.1: Основные части газовой ячейки UniCell: 1 – входное окошко, 2 – сеточный электрод, 3 – клетка постоянного тока, 4 – радиочастотная воронка, 5 – выходное отверстие.

4.2.1 Исследования конструкции клетки постоянного тока

Как показано на рисунке 4.1, клетка постоянного тока состоит из кольцевидного сеточного электрода для обеспечения равномерного распределения градиента электрического потенциала, исключая появление седловых точек потенциала в газовом объёме в клетке, и из 7 кольцевых электродов постоянного тока, которые друг от друга разделены изолятором из ZrO_2 . Основная задача данной части газовой ячейки, помимо очень компактной термализации ионов в буферном газе, состоит в быстрой и эффективной транспортировке ионов сверхтяжёлых элементов, которая зависит от пространственного распределения электрического потенциала в клетке постоянного тока. Поэтому в данном разделе представляются результаты исследования электрического потенциала в клетке постоянного тока, которые могут быть полезными для определения толщины электродов постоянного тока и минимального числа металлических струн сетчатого электрода.

Определение толщины электродов постоянного тока

Толщина электродов постоянного тока d_{DC} напрямую зависит от пробойного напряжения V_B между двумя соседними электродами и ограничивается расстоянием между ними Δ_{DC} , так как в конструкции газовой ячейки фиксировано расстояние $d_{DC} + \Delta_{DC} = 10$ мм, которое может занимать один электрод и изолятор из ZrO_2 , разделяющий соседние электроды. Таким образом, чтобы исследовать возможные разрешённые толщины электродов $d_{DC} = 10 \text{ мм} - \Delta_{DC}$ необходимо по закону Пашена определить расстояние между двумя электродами Δ_{DC} , при котором разность в потенциале между двумя соседними электродами постоянного тока, которая в работе [60] принимает значение до 300 В, будет меньше, чем пробойное напряжение в гелии при комнатной температуре. Таким образом, при использовании формул и данных из работ [62, 63, 64] были определены значения пробойных напряжений в гелии между соседними электродами в случае давлении гелия в диапазоне от 0.1 бар до 2 бар и при расстоянии между соседними электродами до 9 мм. Исходя из приведенных в таблице 4.1 данных можно сделать вывод, что в случае, когда

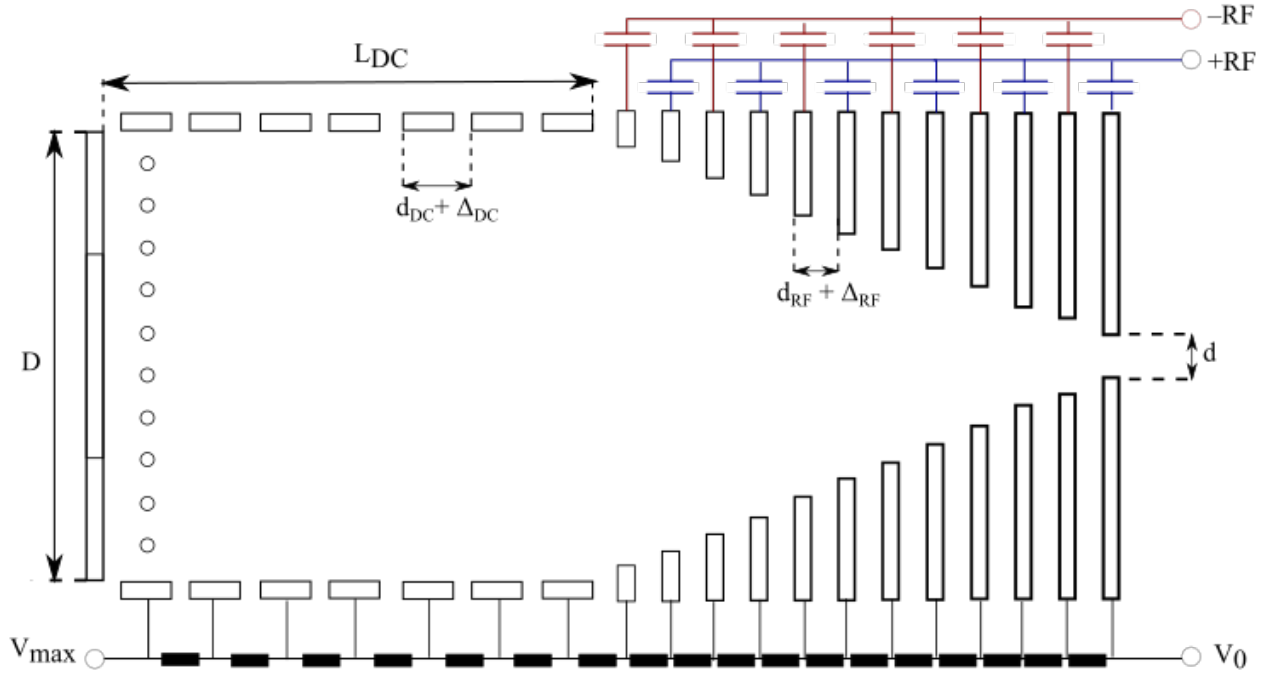
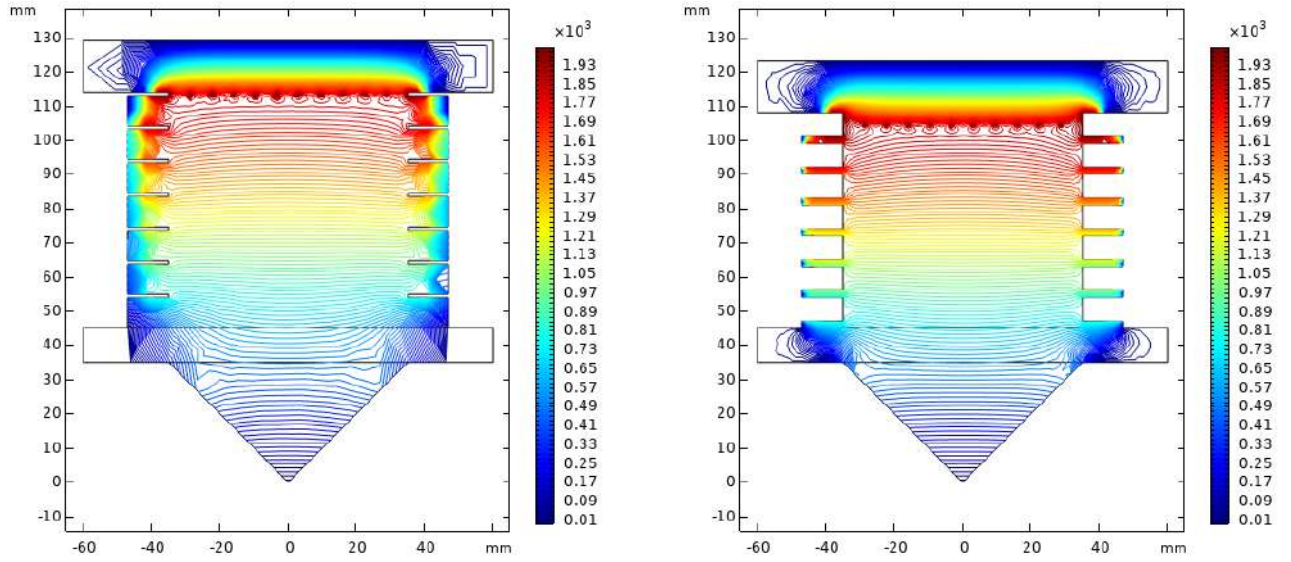


Рисунок 4.2: Схема поперечного сечения газовой ячейки UniCell, сопряженной с электрическими цепочками постоянного и переменного тока. Белые прямоугольники представляют собой поперечное сечение кольцевых электродов постоянного тока и радиочастотной воронки, а чёрные прямоугольники обозначают электрические резисторы. Белыми кругами схематически изображено поперечное сечение вертикальных металлических струн на сеточном электроде. Обозначения на схеме представляют: d_{DC} и Δ_{DC} - толщина электрода постоянного тока и изолятора между соседними электродами постоянного тока, d_{RF} и Δ_{RF} - толщина электрода радиочастотной воронки и изолятора между соседними электродами, V_{max} и V_0 - напряжения постоянного тока, $L_{DC} = 70$ мм и $D = 70$ мм - длина и диаметр клетки постоянного тока, $d \sim 0.4$ мм - диаметр выходного отверстия.

давление $p = 0.1$ бар расстояние между электродами должно быть $d_{DC} > 3$ мм т.е. толщина электродов должна быть $d_{DC} < 7$ мм, а во всех остальных случаях при $p \geq 0.5$ бар толщина электродов может быть $d_{DC} < 10$ мм.

Если дополнительно исследовать результаты проведённых физических симуляции в COMSOL Multiphysics для электрического потенциала в газовом объёме в газовой ячейке, представленные на рисунках 4.3, можно сделать заключение, что более выгодно выбирать электроды постоянного тока с более высокой толщиной, так как градиент потенциала не будет сильно нарушаться в пространстве между концами электродов. Таким образом, можно сделать заключение, что наиболее благоприятно использование более высокого давления в газовой ячейке $p \geq 0.5$ бар, так как это позволяет выбрать большие



(а) Толщина электродов постоянного тока $d_{DC} = 1$ мм (б) Толщина электродов постоянного тока $d_{DC} = 7$ мм

Рисунок 4.3: Физические симуляции электрического потенциала в газовой среде в газовой ячейке UniCell при разнице в потенциале между соседними электродами постоянного тока $\Delta V = 200$ В и напряжения сеточного электрода $V_{max} = 2$ кВ в случае толщины электродов постоянного тока $d_{DC} = 1$ мм и $d_{DC} = 7$ мм.

толщины для электродов постоянного тока.

Таблица 4.1: Пробойное напряжение в газе Не между соседними электродами постоянного тока при комнатной температуре [62, 63, 64]

Пробойное напряжение V_B (В) в Не									
Δ_{DC} (мм) \ p (бар)	1	2	3	4	5	6	7	8	9
0.1	149	214	276	334	390	444	496	547	598
0.5	390	647	882	1105	1319	1527	1730	1929	2124
1.0	647	1105	1527	1929	2316	2693	3061	3422	3778
1.5	882	1527	2124	2693	3243	3778	4301	4816	5322
2.0	1105	1929	2693	3422	4128	4816	5489	6150	6802

Оптимизация сеточного электрода

Основное задание оптимизации сеточного электрода заключается в выборе минимального числа вертикальных и горизонтальных металлических струн на сеточном электроде, которого достаточно для обеспечения отсутствия седловых точек электрического потенциала в клетке постоянного тока, которые, в свою очередь, негативно влияют на транспортировку ионов и приводят к расходимости траекторий термализованных ионов, направляя их к электродам газовой ячейки. Минимизация числа металлических струн N на сеточном электроде является оптимальным условием для уменьшения вероятности столкновения с сверхтяжёлыми частицами, попадающими в газовую ячейку из масс-сепаратора TASCА. Для этой цели были проведены симуляции электрического потенциала в газовом объёме в газовой ячейке UniCell с числом металлических струн в интервале $N \in [2, 10]$ в COMSOL Multiphysics, результаты которых представлены на рисунках 4.4 и 4.5 в случаях разницы потенциала между соседними электродами постоянного тока $\Delta V = 100$ В и $\Delta V = 200$ В и напряжения сеточного электрода $V_{max} = 1$ кВ и $V_{max} = 2$ кВ соответственно. Как видно из рисунков минимальное число металлических струн в случаях $\Delta V = 100$ В и $\Delta V = 200$ В представляет $N = 10$ и $N = 6$.

4.2.2 Исследования конструкции радиочастотной воронки

Радиочастотная воронка находится в процессе изготовления, и она состоит из около 175 кольцевых электродов, изолированных друг от друга с помощью кольцеобразных изоляторов из ZrO_2 . Толщина электрода радиочастотной воронки и изолятора между соседними электродами составляет $d_{RF} = 0.1$ мм и $\Delta_{RF} = 0.1$ мм. Радиус круга холостой части i -го кольцевого электрода и изолятора можно приблизительно представить формулами $R(i) = r_1 - (i - 1) d_e$ и $R_{ZrO_2}(i) = r_1 + d_{He} + d_{ZrO_2} - (i - 1) d_e$ соответственно, где $r_1 = 35$ мм представляет собой радиус холостой части первого электрода, $d_e = d_{RF} + \Delta_{RF} = 0.2$ мм представляет расстояние между двумя соседними электродами, $d_{He} = 1$ мм представляет собой часть радиуса холостой части кольцевого изолятора, заполненной гелием, которая перекрывается двумя соседними электродами, а $d_{ZrO_2} = 0.9$ мм является длиной части кольцевого изолятора из ZrO_2 , которая

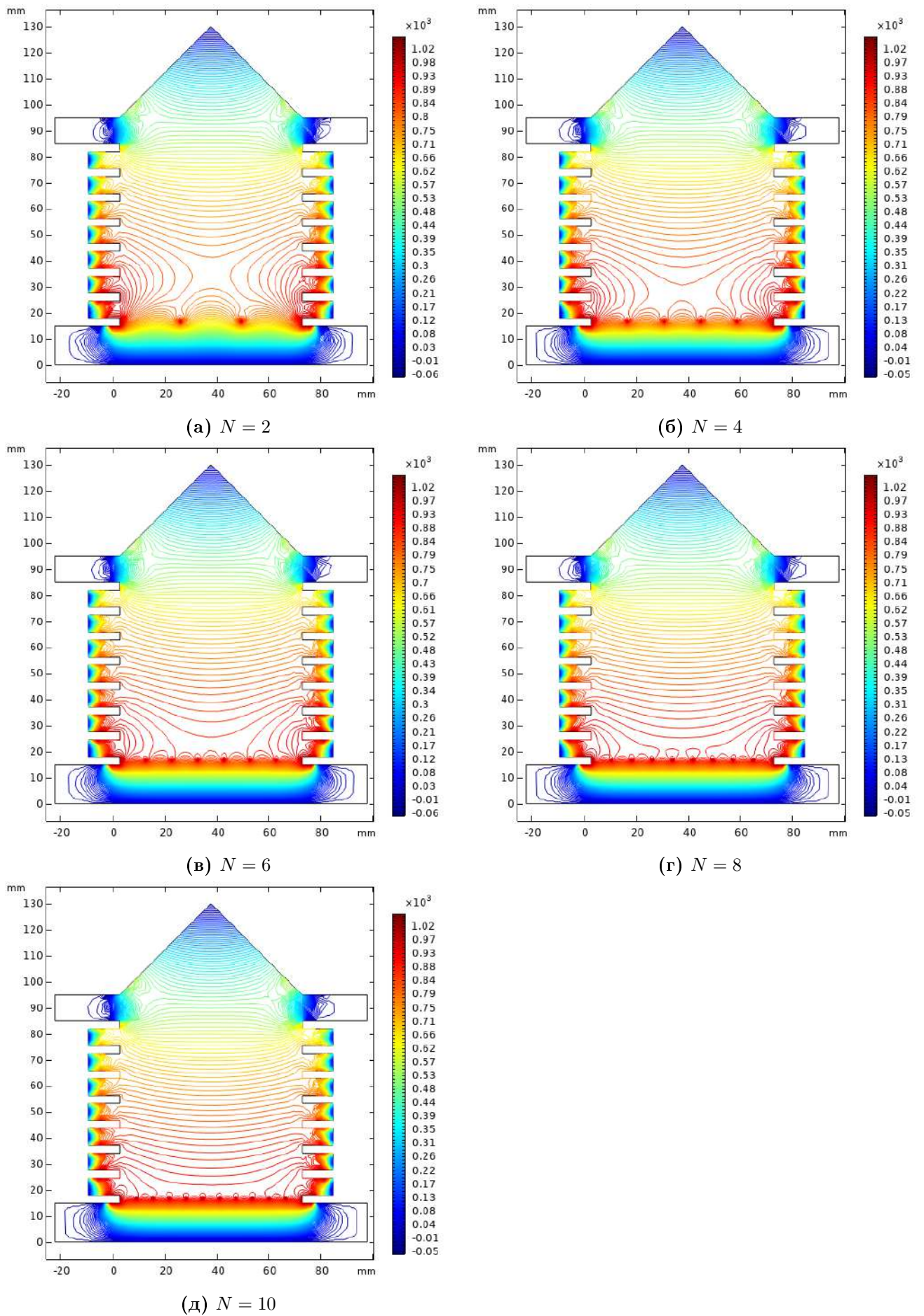


Рисунок 4.4: Физические симуляции электрического потенциала сеточного электрода с $N \in [2, 10]$ в газовой среде в газовой ячейке UniCell при $\Delta V = 100$ В и $V_{max} = 1$ кВ.

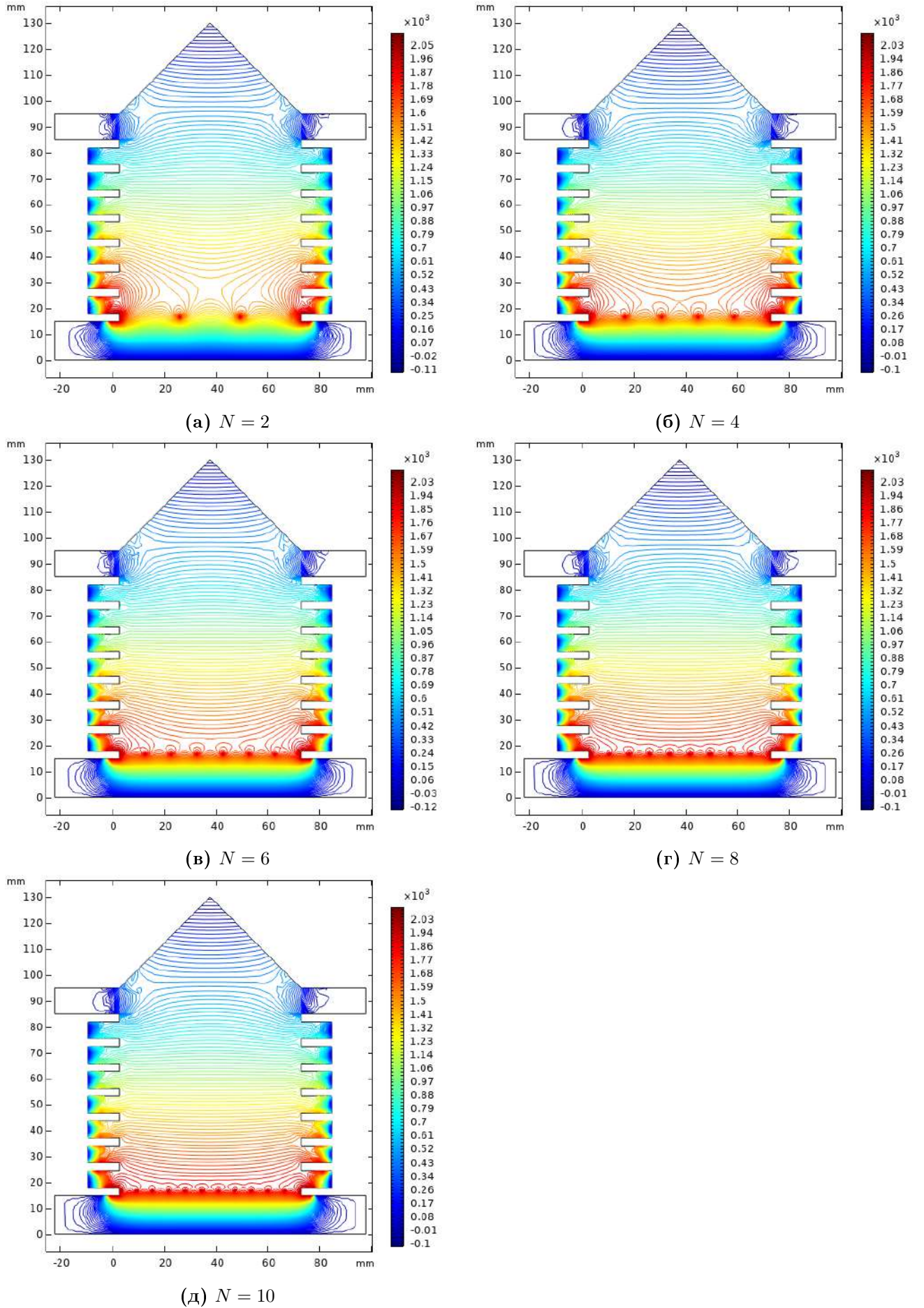


Рисунок 4.5: Физические симуляции электрического потенциала сеточного электрода с $N \in [2, 10]$ в газовой среде в газовой ячейке UniCell при $\Delta V = 200$ В и $V_{max} = 2$ кВ.

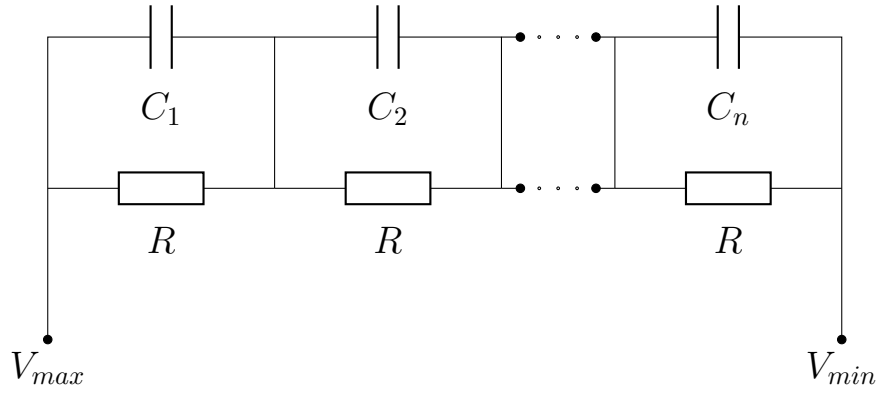


Рисунок 4.6: Упрощённая электрическая схема радиочастотной воронки для определения электрической ёмкости

перекрывается двумя соседними электродами. Использование радиочастотной воронки требует предварительного измерения её основных характеристик. В результате одной из задач являлось определение её электрической ёмкости.

Определение электрической ёмкости радиочастотной воронки

Для определения электрической ёмкости радиочастотной воронки существует возможность упрощения электрической схемы, изображенной на рисунке 4.2, убрав источник переменного тока и привести схему к виду, представленному на рисунке 4.6, где каждая пара соседних электродов заменена электрическим конденсатором. Таким образом, эквивалентную электрическую ёмкость можно рассчитать с учётом того факта, что конденсаторы последовательно соединены, а каждый из этих конденсаторов состоит из параллельно соединенных конденсаторов, состоящих из двух диэлектриков (гелий и диоксид циркония) между двумя соседними электродами.

$$C_{eq}^{-1} = \sum_{i=1}^N (C_{He}(i) + C_{ZrO_2}(i))^{-1} \quad (4.1)$$

Учитывая ранее упомянутые формулы для $R(i)$ и $R_{ZrO_2}(i)$, и аналогично для удобства вводя формулу $R_{He}(i) = r_1 + d_{He} - (i - 1)d_e$, можно записать формулу (4.1) с учётом площадей перекрытия между разными диэлектрическими средами.

$$C_{eq}^{-1} = \frac{\pi \epsilon_0}{\Delta_{RF}} \sum_{i=1}^{N-1} \{ R_{He}^2(i+1) - R^2(i) + \epsilon_r(ZrO_2) (R_{ZrO_2}^2(i+1) - R_{He}^2(i)) \}^{-1} \quad (4.2)$$

Пользуясь значением для диэлектрической проницаемости диоксида циркония $\varepsilon_r(\text{ZrO}_2) = 19.7$ из таблицы 4.2 было рассчитано значение для эквивалентной электрической ёмкости радиочастотной воронки $C_{eq} = 1.98$ пФ. Для сопоставления с аналитически полученным результатом были проведены физические симуляции в COMSOL Multiphysics для определения электрической ёмкости радиочастотной воронки, которая в итоге составила $C_{eq} = 1.72$ пФ из-за более точного геометрического определения площадей перекрытия между соседними электродами.

Таблица 4.2: Диэлектрическая проницаемость диоксида циркония $\varepsilon_r(\text{ZrO}_2)$

Структура кристалла	ZrO_2	
	T (°C)	$\varepsilon_r(\text{ZrO}_2)$
Моноклинная	$T \lesssim 1170$ °C	19.7 [65, 66, 67]
Тетрагональная	1170 °C $\gtrsim T \gtrsim 2370$ °C	46.6 [65, 66, 67], 34.5.2 – 39.8 [68]
Кубическая	2370 °C $\gtrsim T \gtrsim 2680$ °C	36.8 [65, 66, 67], 27.2 – 29.3 [68]

4.2.3 Минимальное время транспортировки сверхтяжёлых элементов

В работе [60] было проведено достаточно большое количество исследований и стимуляций с целью определения эффективности транспортировки сверхтяжёлых элементов и оценки времени транспортировки, которое в случае $E_z = -dV/dz = -300$ В/см должно приблизительно составлять около 2 мс. Обычно такие симуляции, проведённые в программе SIMION[69] или COMSOL Multiphysics могут длиться очень большое количество времени, учитывая сложные геометрические особенности, связанные с огромным количеством электродов, присутствия переменного тока в радиочастотной воронке с частотой в районе 5 МГц и трения ионов с газовой средой при их ускорении электрическими полями. Таким образом, чтобы определить минимальное время транспортировки, которое нужно, чтобы ион переместился с входного окошка до выходного сопла, двигаясь по центральной оси симметрии z газовой

ячейки, в первом приближении достаточно учесть только электрическую силу, созданную постоянного электрического тока $F_E = qE_z = -q(dV/dz)$ и силы диссипативного трения F_S при столкновении сильно ускоренного иона электрическими полями с атомами газа [70, 71]. Таким образом, по второму закону Ньютона можно расписать в одномерном случае формулу $F = F_E - F_S$ в виде

$$m \frac{dv_z}{dt} = qE_z - m\sigma n (\langle v_z \rangle - v_z)^2, \quad (4.3)$$

где m представляет собой массу сверхтяжёлого элемента, q представляет собой заряд иона сверхтяжёлого элемента, $\sigma = \pi(r_1 + r_2)^2$ является эффективным сечением столкновения сверхтяжёлого элемента и атома газа и r_1 и r_2 их атомные радиусы [44] соответственно, $n = p/(k_B T)$ плотность частиц газовой среды, $\langle v_z \rangle$ средняя проекция z скорости ламинарного течения газового потока, E_z представляет собой проекцию z электрического поля, генерируемого электродами постоянного тока. Средняя проекция скорости газового потока в газовой ячейке при экспериментально ожидаемом объёмном расходе 3 л/с в клетке постоянного тока составляет около $\langle v_z \rangle = 0.8$ м/с, а в конце радиочастотной воронки в непосредственной близости выходного сопла достигает значения около $\langle v_z \rangle = 10^3$ м/с. С другой стороны, усреднённая скорость частицы при её ускорении в газовой ячейке исключительно электрическими полями составляет около 50 м/с, которая соответствует скорости газового потока в 3 мм от выходного сопла. Если предположить, что $z(0) = 0$ и $v_z(0) = 0$ и учесть ранее изложенный факт, что в подавляющей части газовой ячейки $\langle v_z \rangle \ll v_z$, кроме непосредственной близости к выходному отверстию, можно предположить, что во всей газовой ячейке $\langle v_z \rangle \rightarrow 0$ и решить дифференциальное уравнение, данного формулой (4.3). Если в решении уравнения заменить $z = L = 100$ мм и выразить t , то можно записать формулу для минимального времени транспортировки t_{min} как

$$t_{min} = \sqrt{\frac{m}{\sigma n q E_z}} \operatorname{arcosh}(e^{\sigma n L}),$$

где $\operatorname{arcosh}(\bullet)$ - обратная функция гиперболического косинуса. С помощью данной формулы были получены достаточно реалистичные предсказания (см. работу [60]) для минимального времени транспортировки $t_{min} \in (1.63 \text{ мс}, 2.83 \text{ мс})$ и $t_{min} \in (1.54 \text{ мс}, 2.67 \text{ мс})$ для будущих планируемых для

экспериментального исследования сверхтяжёлых элементов ${}_{116}^{293}\text{Lv}^+$ и ${}_{117}^{293}\text{Ts}^+$ соответственно, в случае однозарядных ионов $q = e$, $E_z \in (100 \text{ В/см}, 300 \text{ В/см})$ при условиях $p = 1 \text{ бар}$ и $T = 300 \text{ К}$.

4.3 Осесимметричная газовая камера отдачи

Второе задание, решения и исследования которого излагаются в этом подразделе, касалось определения оценки времени и эффективности транспортировки сверхтяжёлых частиц из новой осесимметричной газовой камеры отдачи, которая должна быть сопряжённой с массовым сепаратором TASCA. Решение использования более симметричной камеры отдачи, в отличие от призмoidalной [72], связано с получением аксиально симметричного распределения газового потока во внутреннем объёме камеры отдачи, которое, в свою очередь, может обеспечить более упорядоченное и упрощённое поведение траекторий транспортируемых частиц, независимо от азимутального угла, при их транспортировке до выходного сопла. Такой вариант камеры отдачи планируется для использования в экспериментах с ${}_{102}^{252}\text{No}$ в сочетании с параллельно расположенными плоскими матрицами последовательно сопряжённых кремниевых детекторов, одной из основных заданий которых является исследование массового и энергетического распределения осколков деления осаждённых сверхтяжёлых нуклидов на детекторных пластинках [73]. Также с целью сравнения результатов были проведены одинаковые физические симуляции с использованием изотопа актиния ${}_{89}^{220}\text{Ac}$ в качестве эталона для сравнения сверхтяжёлого элемента с самым лёгким элементом среди актиноидов.

Физические симуляции газовой транспортировки частиц в COMSOL Multipysics

В COMSOL Multiphysics решалась задача численной оценки медианного времени эвакуации τ_{50} и эффективности транспортировки η термализованных частиц в газовом потоке в осесимметричной камере отдачи с использованием сочетания системы уравнений Навье-Стокса и уравнения диффузии с конвекцией, заданной формулами (1.8) и (1.7). Такой подход имеет ряд

преимуществ по сравнению с моделированием газодинамических процессов столкновений каждого транспортируемого атома и атомов газовой среды в отдельности. Во втором случае очевидно, что для каждой транспортируемой частицы в данном начальном объёме столкновительную газовую динамику пришлось бы моделировать индивидуально для каждого транспортируемого атома, что потребовало бы огромного времени вычислений не только из-за большого числа столкновений, которые атом будет испытывать во время транспортировки, но также и из-за статистической потребности в большом количестве отдельных физических симуляции атомов из разных точек исходного объёма. Этой проблемы можно легко избежать, если рассматривать объёмное распределение транспортируемых частиц вместе со связанными уравнениями Навье-Стокса и уравнением диффузии с конвекцией вместо индивидуального подхода с использованием моделирования газовой динамики. Даже если бы мы использовали подход индивидуального газодинамического моделирования, чем большее количество моделируемых атомов мы должны были иметь в нашей статистике, тем больше статистический результат приближался бы к результату, полученному путём решения уравнений Навье-Стокса и диффузии с конвекцией для эволюции начального распределения транспортируемых частиц.

Такое сочетание уравнений решалось, учитывая два граничных условия для объёмного расхода $Q(r(x, y, z) \in S_{inlet}) = 3 \text{ л/мин}$ на поверхности выходного отверстия S_{inlet} и для среднего давления $\langle p \rangle = 1,09 \text{ бар}$ внутри объёма камеры отдачи, и для начального условия

$$c(x, y, z, 0) = c_0 H(R^2 - y^2 - x^2) \left\{ H\left(z - \left(z_0 - \frac{h}{2}\right)\right) - H\left(z - \left(z_0 + \frac{h}{2}\right)\right) \right\},$$

где c_0 представляет собой общую начальную концентрацию транспортируемых частиц, R - радиус 20 мм и h - высоту цилиндра 1 мм, который представляет собой начальные координаты заселённого объёма термализованными частицами, z_0 - положение центральной точки на оси цилиндра вдоль оси z , а $H(\bullet)$ — функция Хевисайда. Начальное положение частиц $^{252}_{102}\text{No}$ последовательно должно быть изучено по следующим параметрам: $z_0 \in [3 \text{ мм}, 10 \text{ мм}, 17 \text{ мм}]$ во всех случаях идеальной газовой смеси, состоящей из He и Ar для каждой из заданных мольных долей гелия $y(\text{He}) \in [0.5, 0.7, 1.0]$.

Геометрия камеры отдачи

Геометрию газовой камеры отдачи можно разделить на три части, как показано на рисунке 4.7:

1. Вход газовой ячейки (осесимметричный);
2. Корпус газовой ячейки (осесимметричный);
3. Выходное сопло газовой камеры (неосесимметричное).

Трудность получения численного решения дополнительно усложняется тем, что геометрическая симметрия выходного сопла газовой ячейки не соответствует симметрии двух предыдущих частей. В идеальном случае, если бы все части газовой ячейки имели одну и ту же геометрическую симметрию, то решение для профиля скорости потока газа можно было бы получить гораздо быстрее, так как решение не зависело бы от некоторых пространственных переменных согласно заданным симметрии, что привело бы к уменьшению независимых переменных и сокращению времени расчета. Например, в этом случае, если бы выходное сопло имело осевую симметрию, решение было бы гораздо легче получить в цилиндрических координатах, просто пренебрегая азимутальным углом φ .

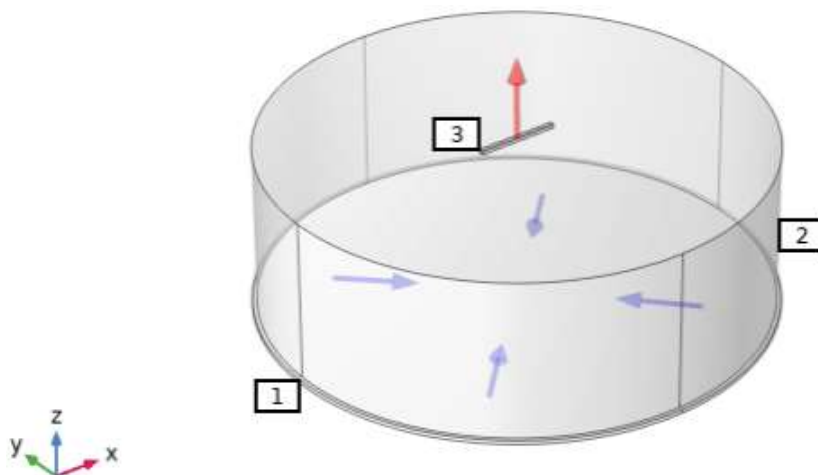


Рисунок 4.7: Изображение геометрии газовой ячейки и её частей: 1) Входное отверстие для вкачивания газа, 2) Корпус газовой камеры, 3) Выходное сопло. Синие стрелки показывают направление потока газа через входное отверстие, а красная стрелка показывает направление потока газа через выходное отверстие.

В таблице 4.3 представлены детали газовой ячейки с соответствующими размерами, которые использовались для построения геометрии газовой ячейки в COMSOL Multiphysical. Согласно рисунку 4.7 и таблице 4.3 ясно видно, что вход и корпус газовой ячейки представляют собой короткий и высокий цилиндр, тогда как выходное сопло газовой ячейки представляет собой призму.

Таблица 4.3: Размеры газовой камеры отдачи

Часть газовой камеры	Размеры		Часть газовой камеры	Размеры	
1.Входное отверстие	Ширина	0.5 мм	3.Выходное сопло	Длина	10 мм
2.Корпус	Радиус	30 мм		Ширина	0.5 мм
	Высота	20 мм		Глубина	0.5 мм

4.3.1 Скоростной профиль ламинарного потока в камере отдачи

Для наглядности для изучения полученных результатов были введены две характерные плоскости поперечных сечений камеры отдачи (как показано на рисунке 4.8), чтобы получить более чёткое представление о полученных результатах профиля скорости потока газа, поскольку трёхмерное представление результатов будет перегружено слишком большим количеством деталей. Первая плоскость поперечного сечения (красная на рисунке 4.8) была выбрана для разделения газовой ячейки по самому длинному размеру выходного сопла, а плоскость сечения 2 (синяя на рисунке 4.8) была выбрана перпендикулярно последнему, что одновременно разделяет газовую ячейку по кратчайшему размеру выходного сопла.

Сначала решалось уравнение Навье-Стокса, чтобы получить решение для скоростного профиля $\vec{v}(x, y, z)$ газового потока внутри газовой ячейки, используя следующие граничные условия:

1. Объемный расход газа через входную поверхность составлял $Q = 3 \text{ л/мин}$ ($\dot{m} = \rho_{mix}\dot{V}$),

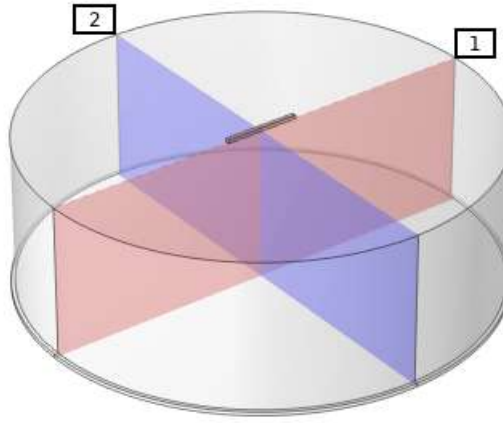


Рисунок 4.8: Внутренняя часть газовой ячейки с двумя плоскостями поперечного сечения 1 (красный) и 2 (синий). Плоскость поперечного сечения 1 разделяет газовую камеру по самому длинному размеру выходного сопла, а плоскость поперечного сечения 2 перпендикулярна плоскости 1.

2. Среднее давление газа внутри газовой камеры отдачи составляло $\langle p \rangle = 1.09$ бар,
3. Наличие поглощающих стенок $c(x, y, z, t) = 0$ для $(x, y, z) \in S_{Wall}$.

Из-за очень схожих полученных результатов симуляции для обеих плоскостей сечения, для иллюстрации приводится скоростной профиль полностью оформленного ламинарного газового потока вдоль плоскости сечения 1 в случае $y(\text{He}) = 1$. Как показано на рисунке 4.9, линии тока начинаются в нижнем левом и правом углах, где впускные отверстия для газа находятся на поперечном сечении, и заканчиваются выпускным отверстием для газа, как и должно быть. Длина векторов скорости в каждой точке преднамеренно показана одинаковой, чтобы наглядно можно было рассмотреть направления векторов скорости, поскольку существует очень большая разница в модуле скорости газа в объёме газовой ячейки и вблизи выходного сопла. Поэтому в каждой точке газовой ячейки имеется цветное представление модуля векторов скорости. По легенде в правой части легко понять, что почти во всех точках корпуса камеры отдачи модуль скорости меньше 2 м/с, где получается максимальный модуль скорости на конце выходного сопла и оценивается примерно в 15.9 м/с.

Как и ожидалось, в верхнем левом и правом углах корпуса камеры показаны потенциальные места для образования газовых карманов (спиральные или

почти замкнутые траектории), то есть места, где можно ожидать, что транспортирующие частицы будут удерживаться или задерживаться в течение довольно длительного времени или, может быть, пока они не дойдут до ближайшей стены. В остальном линии тока ведут себя довольно обычно, без каких-либо проявлений неожиданного и нежелательного локального поведения газового потока в газовой ячейке. Следует также отметить, что на рисунке 4.9 начальные положения линий тока были сгенерированы случайным образом, чтобы отобразить как можно больше траекторий с различным поведением с обеих сторон газовой камеры отдачи.

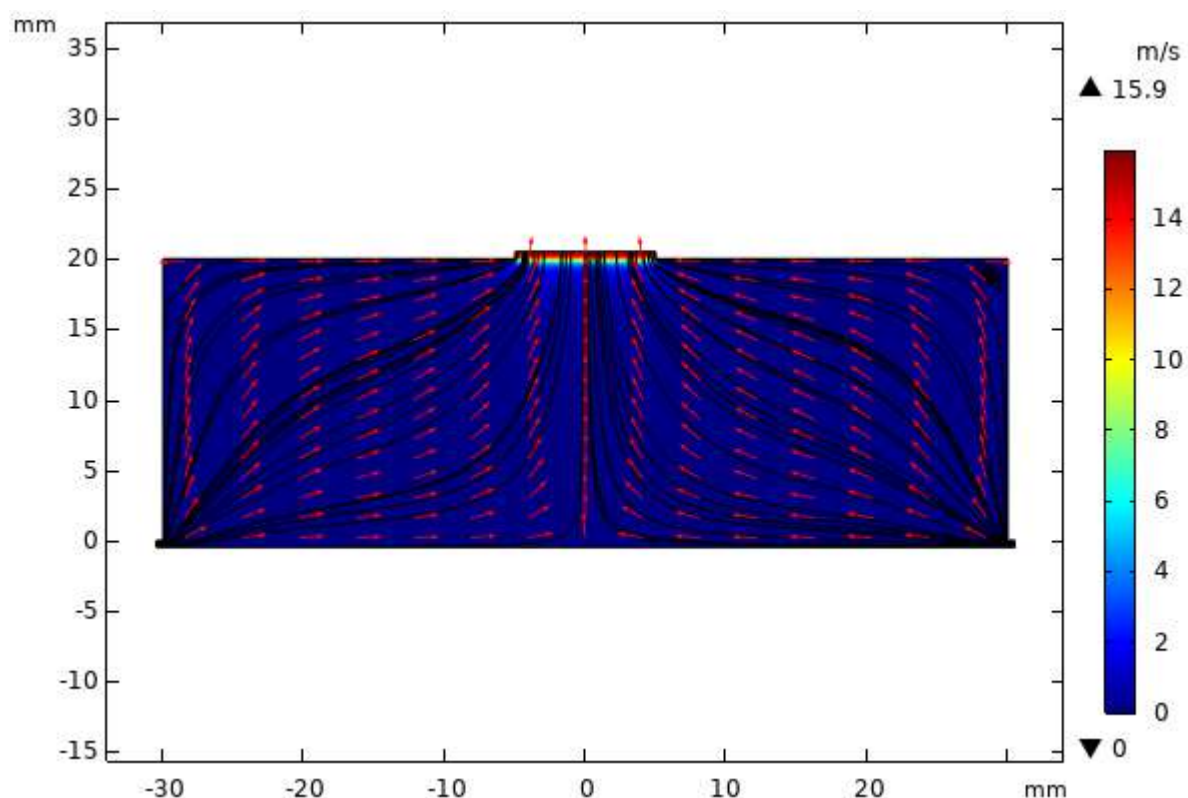


Рисунок 4.9: График линии тока и график модуля скорости потока газа внутри газовой камеры отдачи на плоскости поперечного сечения 1 в случае $y(\text{He}) = 1$, как показано на рисунке 4.8.

Чтобы узнать, какие модули необходимо использовать в COMSOL Multiphysical для решения данной задачи, необходимо было изначально сделать приблизительные оценки среднего числа Маха $\langle Ma \rangle$ и числа Рейнольдса $\langle Re \rangle$. Принимая во внимание, что общая геометрия газовой ячейки состоит из двух частей, имеющих свою особую симметрию и размерности, расчёты для $\langle Ma \rangle$ и $\langle Re \rangle$ были произведены в каждой части соответственно: внутренняя часть газовой камеры (без выходного сопла) и прямоугольная часть (выходное сопло).

Средний модуль скорости потока газа $\langle v \rangle$, который является параметром как в $\langle Ma \rangle$, так и в $\langle Re \rangle$, может быть приблизительно рассчитан как соотношение $\langle v \rangle = Q/S$ между объёмным расходом газа и площадью поперечного сечения соответствующей части геометрии газовой камеры, которое в двух рассматриваемых случаях равно $S = \pi R^2$ и $S = Lh$ соответственно. Используя результат для $\langle v \rangle$, можно оценить среднее число Маха по формуле

$$\langle Ma \rangle = \frac{\langle v \rangle}{c_{mix}} = \frac{Q}{c_{mix}S},$$

где c_{mix} представляет скорость звука в газовой смеси, заданная формулой (1.14), и среднее число Рейнольдса $\langle Re \rangle$ по представленной формуле внизу .

$$\langle Re \rangle = \frac{\rho_{mix} \langle v \rangle L}{\mu_{mix}} = \frac{\rho_{mix} Q L}{\mu_{mix} S}$$

В таблице 4.5 представлены оценки для значений $\langle Ma \rangle$ и $\langle Re \rangle$, которые были сделаны с использованием результатов таблицы 4.4 и формул из этого раздела. В результате можно прийти к выводу, что данную задачу можно рассматривать как несжимаемое или очень слабосжимаемое ламинарное течение $\langle Ma \rangle \ll 0.3$ и $\langle Re \rangle \ll 2300$. Такие газодинамические условия позволяют рассмотреть ламинарный поток бинарной газовой смеси благородных газов как ламинарного потока газа, обладающего смешанными газодинамическими физическими свойствами ρ_{mix} и μ_{mix} , заданными формулами (1.9) и (1.11).

Таблица 4.4: Термодинамические свойства газовой смеси He – Ar, $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$

$y(\text{He})$	$y(\text{Ar})$	ρ_{mix} (кг · м ³)	μ_{mix} (10 ⁻⁵ · Па · с)	c_{mix} (м · с ⁻¹)	$D_{mix} (^{220}_{89}\text{Ac})$ (см ² · с ⁻¹)	$D_{mix} (^{252}_{102}\text{No})$ (см ² · с ⁻¹)
100 %	0 %	0.178972	1.9611	1007.46	0.267289	0.358644
75 %	25 %	0.581077	2.09894	558.857	0.151355	0.196631
50 %	50 %	0.983182	2.16522	429.623	0.105566	0.135445
25 %	75 %	1.38529	2.20418	361.917	0.081047	0.103301
0 %	100 %	1.78739	2.22983	318.911	0.065771	0.083487

Таблица 4.5: Оценка среднего числа Маха $\langle Ma \rangle$ и числа Рейнольдса $\langle Re \rangle$ ламинарного потока газовой смеси He – Ar через газовую камеру и выходное сопло

y (He)	y (Ar)	Камера отдачи		Выходное сопло		
		c_{mix}	$\langle Ma \rangle$	$\langle Re \rangle$	$\langle Ma \rangle$	$\langle Re \rangle$
		($\text{м} \cdot \text{с}^{-1}$)	($\cdot 10^{-5}$)	(/)	($\cdot 10^{-2}$)	(/)
100 %	0 %	1007.46	1.75529	3.22069	0.99259	46.6304
75 %	25 %	558.857	3.16459	9.80113	1.78937	138.56
50 %	50 %	429.623	4.11614	16.0788	2.32762	220.308
25 %	75 %	361.917	4.88538	22.256	2.76262	314.636
0 %	100 %	318.911	5.54509	28.3871	3.13568	401.313

4.3.2 Медианное время транспортировки $\langle \tau \rangle$ нуклидов $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$

Чтобы установить максимальное значение t_{max} для исследования временных профилей эвакуированной концентрации сверхтяжёлых нуклидов из камеры отдачи в интервале времени $t \in [t_0 = 0, t_{max}]$ ряд предварительных приблизительных стимуляций были выполнены для случаев самого высокого и самого низкого значений коэффициента диффузии, как представлено в таблице 4.4. По результатам предварительного моделирования было подсчитано, что t_{max} должно быть выше, чем $t_{max} > 900$ мс, чтобы обеспечить приблизительно полную эвакуацию частиц из газовой камеры, и поэтому было решено использовать значение $t_{max} = 1$ с. Временной шаг для изучения транспортировки и временной эволюции распределения концентрации $^{252}_{102}\text{No}$ принималось равным $\Delta t = 1$ мс. Выбор $t_{max} = 1$ с был позже также оправдан и подтверждён дополнительными расчётами результатов физических симуляции, выполненных с гораздо более высокой точностью для τ_{99} , которое представляет время, необходимое для эвакуации 99% общего количества всех эвакуированных частиц, и эти значения представлены в таблице 4.6.

Медианное время транспортировки частиц τ_{50} было рассчитано для обоих случаев $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$ соответственно. После того, как все

физические симуляции были выполнены, поток частиц $J(x, y, z, t)$ через выходное сопло $z = z_{exit}$ был численно проинтегрирован по площади выходного сопла $\iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy}$, чтобы получить частоты частиц, покидающих поверхность выходного сопла. Умножение этого интеграла на Δt даст количество частиц $N_{exit}(t)$, выходящих из выходного сопла за временной интервал Δt . Разделив эту функцию $N_{exit}(t)$ на общее количество транспортируемых частиц $N_{exit,tot} = \int_{t_0}^{t_{max}} \iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy} dt$ мы получим функцию распределения $P(t)$, которая представляет отношение количества частиц, прошедших через выходное сопло за интервал времени $(t, t + dt)$ к полному числу эвакуированных за интервал времени $t \in [t_0 = 0, t_{max}]$.

$$P(t) = \frac{N_{exit}(t)}{N_{exit,tot}} = \frac{\iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy} \Delta t}{\int_{t_0}^{t_{max}} \iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy} dt}$$

Чтобы получить более четкое представление о времени транспортировки, был выполнен дополнительный расчет (таблица 4.6) для оценки медианного времени транспортировки τ_{50} , чтобы оценить время, необходимое для эвакуации 50% от общего числа всех эвакуированных частиц и времени транспортировки τ_{99} , необходимого для эвакуации 99% общего количества всех эвакуированных частиц.

Таблица 4.6: Медианное время транспортировки τ_{50} и τ_{99} для $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$

$^{220}_{89}\text{Ac}$					$^{252}_{102}\text{No}$					
Газовая смесь		z_0 (см)			Газовая смесь		z_0 (см)			
$y(\text{He})$	$y(\text{Ar})$	0.3	1.0	1.7	$y(\text{He})$	$y(\text{Ar})$	0.3	1.0	1.7	
100 %	0 %	240	106	25	100 %	0 %	211	101	23	τ_{50} (мс)
70 %	30 %	300	108	27	70 %	30 %	276	108	26	
50 %	50 %	325	108	27	50 %	50 %	302	108	27	
100 %	0 %	764	600	409	100 %	0 %	723	589	422	τ_{99} (мс)
70 %	30 %	827	546	317	70 %	30 %	802	579	355	
50 %	50 %	862	496	284	50 %	50 %	829	542	313	

Посмотрев на результаты в таблице 4.6, можно сделать вывод, что для любого заданного значения y (He) медианные времена τ_{50} для $^{252}_{102}\text{No}$ меньше или равны медианным временам для $^{220}_{89}\text{Ac}$ потому, что коэффициент диффузии больше в случае $^{252}_{102}\text{No}$. Также можно сделать заключение, что для заданного значения y (He) с увеличением значения z_0 уменьшаются и значения для τ_{50} и τ_{99} , что говорит о том, что время, нужное для транспортировки определённой доли эвакуированных частиц уменьшается с приближением начального распределения термализованных частиц к выходному соплу. Таким образом, самые короткие и долгие медианные времена τ_{50} были получены в пределе около пары десятков и трёх сотен миллисекунд соответственно. В таблице также видно, что самое большое значение для τ_{99} имеет значение 862 мс, которое подтверждает верность выбора $t_{max} = 1$ с. Также можно заметить, что для данного определённого рассматриваемого изотопа и любого значения z_0 значение для τ_{50} увеличивается по мере увеличения присутствия Ar в газовой смеси, так как средняя скорость смеси газового потока уменьшается с добавлением более массивных атомов аргона в гелий при одинаковых начальных газодинамических условиях. Имея ввиду, что время полураспада для $^{252}_{102}\text{No}$ составляет около 2.46 с, можно сделать вывод, что медианные времена транспортировки предостаточны для доставки термализованных нуклидов данного изотопа до выходного сопла независимо от их места термализации в газовой камере отдачи.

4.3.3 Эффективность газовой транспортировки η нуклидов $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$

Эффективность транспортировки η можно получить для обоих случаев $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$ соответственно, просуммировав раньше определённое выражение для $N_{exit}(t)$ по всему временному интервалу

$$N_{exit} = \sum_{i=0}^{\frac{t_{max}-t_0}{\Delta t}} \iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy} \Delta t$$

и разделив его на начальное число частиц $N(t_0) = \iiint_V c(x, y, z, t_0) dV$.

$$\eta = \frac{N_{exit}}{N(t_0)} = \sum_{i=0}^{\frac{t_{max}-t_0}{\Delta t}} \frac{\iint_{S_{xy}} J(x, y, z_{exit}, t) dS_{xy} \Delta t}{\iiint_V c(x, y, z, t_0) dV}$$

В таблице 4.7 представлены результаты эффективности транспортировки $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$. Посмотрев на результаты в таблице 4.7, первое и самое очевидное, что можно заключить, это то, что для любой комбинации значений $y(\text{He})$ и z_0 всегда $\eta(^{220}_{89}\text{Ac}) > \eta(^{252}_{102}\text{No})$. Этот факт говорит о том, что диффузионные потери частиц намного выше в случае $^{252}_{102}\text{No}$. Этот вывод имеет простое теоретическое объяснение того факта, что для любого заданного значения $y(\text{He})$ коэффициент диффузии $^{252}_{102}\text{No}$ больше, чем $^{220}_{89}\text{Ac}$. Отдельно для определённого рассматриваемого изотопа и данного значения $y(\text{He})$ значения η показывают максимальные значения для начального положения $z_0 = 1 \text{ cm}$, как и было ожидаемо, поскольку среднее положение находится дальше от стен наблюдения, в отличие от двух других положений. Также для данного определённого рассматриваемого изотопа и заданного значения z_0 значения η увеличиваются по мере увеличения присутствия Ar в газовой смеси, так как коэффициент диффузии транспортируемых частиц в смеси газового потока уменьшается с добавлением более массивных атомов аргона в гелий.

Таблица 4.7: Эффективность транспортировки $\eta(\%)$ для $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$

$^{220}_{89}\text{Ac}$					$^{252}_{102}\text{No}$				
Газовая смесь		z_0 (см)			Газовая смесь		z_0 (см)		
$y(\text{He})$	$y(\text{Ar})$	0.3 cm	1.0 cm	1.7 cm	$y(\text{He})$	$y(\text{Ar})$	0.3 cm	1.0 cm	1.7 cm
100 %	0 %	28.6%	57.6%	34.2%	100 %	0 %	20.9%	46.2%	29.1%
70 %	30 %	46.7%	76.3%	42.9%	70 %	30 %	39.6%	70.1%	39.8%
50 %	50 %	54.3%	81.2%	45.8%	50 %	50 %	47.6%	76.85%	43.2%

В итоге усреднённая эффективность и усреднённое характерное медианное время транспортировки в газовых смесях $y(\text{He}) \in [0.5, 0.7, 1.0]$ оказались в очень схожих интервалах значений $\eta \in (40\%, 60\%)$ и $\eta \in (32\%, 55\%)$, и

$\tau_{50} \in (123 \text{ мс}, 153 \text{ мс})$ и $\tau_{50} \in (111 \text{ мс}, 145 \text{ мс})$ для $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$ соответственно, что позволяет изучения и тестирования камеры RTC с помощью $^{220}_{89}\text{Ac}$ до экспериментов с $^{252}_{102}\text{No}$ в онлайн-режиме. Если, в таком случае, провести эксперимент с $^{252}_{102}\text{No}$, с учётом его времени полураспада 2.46 с, усреднённая эффективность и усреднённое характерное медианное время транспортировки в газовых смесях $y(\text{He}) \in [0.5, 0.7, 1.0]$ окажется в интервалах значений $\eta \in (15\%, 21\%)$ и $\tau_{50} \in (144 \text{ мс}, 185 \text{ мс})$.

ГЛАВА 5

Газовая мишенная камера на установке PITRAP

5.1 Реактор ПИК и установка PITRAP

Высокопоточный реактор ПИК — исследовательский реактор, построенный в Национальном исследовательском центре «Курчатовский институт»-ПИЯФ в России. Он был спроектирован с целью стать очень мощным источником потоков нейтронов, которые требуются и находят очень широкое применение для различных современных научных исследований. Ожидается, что максимальная плотность потока нейтронов в активной зоне реактора ПИК будет составлять около $5 \cdot 10^{15} \text{ н}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$, тогда как в нейтронном канале, где будет происходить облучение вещества делящейся мишени, ожидается плотность потока нейтронов около $3 \cdot 10^{13} \text{ н}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$. Высокий поток нейтронов по сравнению с другими исследовательскими реакторами, типа реактора TRIGA в Майнце, который для сравнения превышает плотности потоков как минимум на целых два порядка, является одной из ключевых особенностей, которая делает реактор ПИК привлекательной установкой для исследований короткоживущих экзотических нуклидов, обещая серьёзное увеличение в их скорости наработки [74].

Для этой цели был выдвинут проект PITRAP, базирующийся на реакторе ПИК, который представляет собой инициативу по измерению масс экзотических нуклидов с использованием высокоточной масс-спектрометрии с ловушкой Пеннинга. Основной целью данного проекта является получение экспериментальных данных о массах нуклидов, особенно в богатых нейтронами регионах на карте нуклидов, для осуществления важного вклада в фундаментальные физические и астрофизические исследования. Таким образом, определение массы нуклидов в начальной и средней областях

г-процесса, поможет как понять начальный путь данного экзотического астрофизического процесса, так и улучшить параметризации эмпирической формулы массы нуклидов и прогнозировать более экзотические области на карте нуклидов [15, 75].

Предполагаемый вариант установки для вывода наработанной активности из реактора ПИК методом газовой транспортировки в сочетании с сверхточной масс-спектрометрией (предложенный проект PITRAP) повторяет уже разработанное и успешно экспериментально введённое в эксплуатацию сопряжение установок TRIGA-SPEC и TRIGA-TRAP, беря их в качестве прототипа конструкции. Одной из отличающихся экспериментальных частей установки является мишенная камера, которая может быть установлена в одном из нейтронных каналов реактора ПИК, допускающего диаметр камеры до 10 см, в которую должна вместиться делящаяся мишень $^{235}_{92}\text{U}$ с массой 3 г в виде очень тонкой цилиндрической фольги.

5.2 Геометрия мишени $^{235}_{92}\text{U}$ и мишенной камеры

В мишенную камеру TRIGA-Mainz около 1 мг вещество мишени было нанесено в виде тонкого слоя $^{235}_{92}\text{U}$ на задней стенке мишенной камеры. В настоящих размерах этой мишенной камеры невозможно нанести вещество массой на три порядка больше и толщиной около 10 мкм, даже если оно будет наноситься на всех внутренних стенках камеры. Для этой цели нужно увеличить размеры мишенной камеры, учитывая тот факт, что геометрия самой мишени $^{235}_{92}\text{U}$ заранее запланирована и будет иметь вид очень тонкой фольги свёрнутой в цилиндр толщиной около $d = 10$ мкм и площадью $A = 160 \text{ см}^2$. Учитывая эти ограничения для размеров геометрии мишенной камеры, можно математически выразить зависимость длины холостого цилиндра от его радиуса R_1 , которая задаётся формулой 5.1.

$$L(R_1) = \frac{A}{2\pi R_1} \quad (5.1)$$

Чтобы исследовать самый выгодный случай с минимальными размерами мишенной камеры, можно рассмотреть вариант, когда само вещество мишени наносится на боковых стенках цилиндрической части мишенной камеры. Таким

образом выбором размеров мишени будут диктоваться одновременно и размеры самой мишенной камеры. Учитывая особенности геометрии мишенной камеры TRIGA-Mainz и ранее высказанные соображения по геометрии мишени, можно выразить зависимость длины L_{tot} обобщенной мишенной камеры TRIGA-Mainz в зависимости от площади A и радиуса R_1 цилиндрической мишени (т.е. площади боковой стенки первой части мишенной камеры) и от крайнего радиуса пересечённого конуса R_2 во второй части мишенной камеры с помощью формулы (5.2). В данной формуле радиус R_2 будет считаться постоянным, имеющим одинаковое значение как и в мишенной камере TRIGA-Mainz $R_2 = 5$ мм, и не будет подлежать увеличению его размера, так как он задан для более удобного перехода газового потока из мишенной камеры в систему капиллярных трубок.

$$L_{tot}(R_1) = \frac{A}{2\pi R_1} + R_1 - R_2 \quad (5.2)$$

На рисунке 5.1 показаны графики зависимости длины новой цилиндрической мишени $L = L(D)$ и мишенной камеры $L_{tot} = L_{tot}(D)$ от диаметра цилиндрической мишени $D = 2R_1$ и график отношения k_V объёмов прототипной мишенной камеры TRIGA-Mainz, и предполагаемый вариант мишенной камеры ПИК, на левой и правой оси соответственно. По первым двум графикам можно сделать несколько очевидных выводов, первый из которых показывает, что графики длин $L_{tot} = L_{tot}(D)$ и $L = L(D)$ имеют очень близкие значения при малых значениях для D , которое видно и по формулам 5.2 и 5.1, из-за того, что в этом случае объём цилиндрической части мишенной камеры больше, чем объём конической части. В этом случае получаются очень высокие значения для длины мишенной камеры, особенно при малых радиусах вплоть до полуметра, которые не благоприятны с точки зрения быстрой газовой транспортировки частиц из мишенной камеры.

Следующий вывод связан с тем, что при увеличении значения диаметра D длина мишенной камеры ПИК $L_{tot} = L_{tot}(D)$ становится больше, чем $L = L(D)$ и показывает приблизительное асимптотическое поведение, достигая значения около 10 см, а объём новой мишенной камеры резко будет увеличиваться вплоть до примерно в 12 раз большего по отношению к мишенной камере TRIGA-Mainz. Чтобы обойти проблему, связанную с очень непрактично большими размерами мишенной камеры с одной стороны и очень длинной мишенной

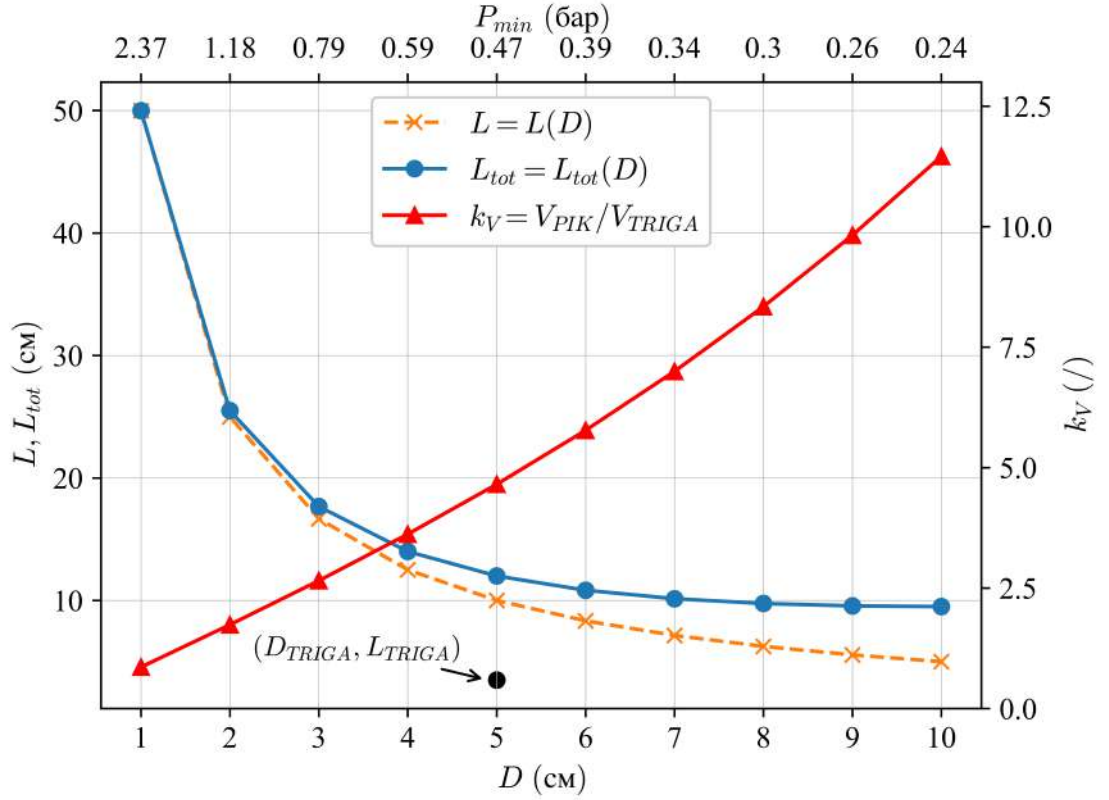


Рисунок 5.1: График зависимости длины аксиально симметричной мишени L (оранжевый цвет, L - левая ось) и длины мишенной камеры L_{tot} (синий цвет, L_{tot} - левая ось) от диаметра мишени D и отношение объёма предполагаемой мишенной камеры ПИК для разных размеров мишени (D, L) и прототипной мишенной камеры TRIGA-Mainz (красных цвет, k_V - правая ось). Верхняя ось обозначает минимальное давление гелия P_{min} , необходимого для эффективной термализации осколков деления внутри «пустой» цилиндрической мишени с диаметром D . Точка с координатами (D_{TRIGA}, L_{TRIGA}) обозначает максимальный диаметр и длину всей камеры TRIGA-Mainz.

камерой – с другой стороны, можно воспользоваться фактом асимптотического поведения зависимости $L_{tot} = L_{tot}(D)$, при $D \gtrsim 5$ см и выбрать выгодные значения для диаметра мишени $D \ll 10$ см при этом обеспечив практически минимальную длину для мишенной камеры. Таким образом, в данной работе было решено использовать именно среднее значение в интервале значений для диаметра $D = 5$ см в качестве радиуса цилиндрической мишени, дополнительно подкрепляя данный выбор удобностью сравнения данной мишенной камеры с вариантом TRIGA-Mainz, обладающей одинаковым значением для диаметра первой (цилиндрической) части мишенной камеры.

5.3 Оптимизация метода газовой транспортировки

После оптимального выбора размеров мишенной камеры была сделана дополнительная оптимизация метода газовой транспортировки улучшением выбора размеров капиллярной трубки, от которых очень сильно зависит время транспортировки осколков деления из мишенной камеры до конца системы капиллярных трубок. Основная суть оптимизации капиллярной системы, которая изложена в работе [25], заключается в двух основных фактах, что обеспечение нужного давления газа для эффективной термализации осколков деления и быстрой газовой транспортировки из мишенной камеры зависит напрямую от размеров капиллярной трубки, сопряженной с выходом мишенной камеры. Первый факт связан с тем соображением, что из-за существенно маленького радиуса капиллярной трубки по сравнению с радиусом мишенной камеры, практически весь перепад давления ΔP при ламинарном течении газа через всю установку происходит именно в капиллярной системе, из-за чего статическое давление в мишенной камере можно определить как ΔP в капиллярной трубке. Вторым фактом, который также связан с относительно маленькими значениями радиуса капиллярной трубки, заключается в очень быстром ламинарном газовом потоке, который реализуется в капиллярной трубке, из-за чего увеличение объёмного расхода через всю газовую систему ограничивается числом Рейнольдса в капиллярной трубке.

Таким образом, чтобы получить критически минимальное время транспортировки частиц из мишенной камеры и капиллярной трубки Δt_{min} , нужно увеличить объёмный расход газа до критически максимально позволенного значения Q_{max} , при этом внимательно подбирая критическое значение для радиуса капиллярной трубки $R_{t,max}$, которое одновременно сможет обеспечить нужное давление для термализации в мишенной камере P и минимальное время транспортировки по всей газовой системе Δt_{min} . Формулы для определения критических параметров $R_{t,max}$, Q_{max} и Δt_{min} изложены в работе [25] при предположении, что в капиллярной системе число Рейнольдса $Re < 2300$, и давление в мишенной камере находится в допустимом интервале перепадов давления в капиллярной трубке $P \in [0, \Delta P_{max}]$.

Таблица 5.1: Оптимизированные значения для радиуса капиллярной системы, объёмного расхода, минимального времени транспортировки в капиллярной трубке и минимального времени транспортировки в капиллярной трубке и мишенных камерах TRIGA-Mainz и ПИК

		Длина системы капиллярных трубок (м)									
		5			7.5			10			
		P (бар)									
		1	2	3	1	2	3	1	2	3	
Мишенная камера TRIGA-Mainz	N ₂	$R_{t,max}$ (мм)	0,5	0,4	0,3	0,6	0,5	0,4	0,6	0,5	0,4
		Q_{max} (л/МИН)	1,6	1,3	1,1	1,9	1,5	1,3	2,0	1,6	1,4
		$\Delta t_{c,min}$ (МС)	72	56	50	120	95	84	184	145	126
		Δt_{min} (МС)	430	810	1030	430	760	940	460	740	900
	He	$R_{t,max}$ (мм)	1,0	0,8	0,7	1,1	0,9	0,8	1,3	1,0	0,9
		Q_{max} (л/МИН)	24	19	16	28	22	19	30	24	21
		$\Delta t_{c,min}$ (МС)	20	16	14	33	27	24	50	40	35
		Δt_{min} (МС)	44	66	80	55	71	81	69	80	87
Мишенная камера ПИК	He	$R_{t,max}$ (мм)	1,0	0,8	0,7	1,1	0,9	0,8	1,3	1,0	0,9
		Q_{max} (л/МИН)	24	19	16	28	22	19	30	24	21
		$\Delta t_{c,min}$ (МС)	20	16	14	33	27	24	50	40	35
		Δt_{min} (МС)	60	67	75	68	71	74	82	83	83

В таблице 5.1 изложены результаты оптимизации капиллярной системы в мишенной камере TRIGA-Mainz при использовании азота и гелия и в мишенной камере ПИК с учётом новых размеров мишени. Сравнивая критические минимальные времена транспортировки по всей газовой системе Δt_{min} , можно сделать вывод, что при использовании новой мишени минимальные времена транспортировки получаются одинаковые по порядку, в районе десятков миллисекунд в случае использования гелия в обеих камерах. Такого рода результат получается из-за того, что из задней стенки мишенной камеры в

варианте TRIGA-Mainz осколки деления пробегают большую часть мишенной камеры в направлении выходного отверстия при низких давлениях гелия, что в случае с цилиндрической мишенью не происходит из-за того, что объём термализации находится внутри «холостого» цилиндра мишени, и пробег частиц направлен к противоположной боковой стенке мишенной камеры, а не к выходу мишенной камеры ПИК. В случае использования азота в варианте TRIGA-Mainz получаются значения примерно на порядок выше для Δt_{min} чем в мишенной камере ПИК, но более низкие значения, чем экспериментально измеренные в таблице 2.2, чему и свидетельствует проведённая оптимизация метода газовой транспортировки. Основное исключение составляет случай с использованием гелия в мишенной камере TRIGA-Mainz, где получаются довольно близкие значения для Δt_{min} к значениям в случае мишенной камеры ПИК.

5.4 Новые доступные экзотические ядра для экспериментального изучения

Чтобы исследовать новые экзотические нуклиды, которые были бы доступны для исследования в случае мишенной камеры ПИК, нужно обобщить критерии выживания нуклидов 2.3 в случае пространственного распределения частиц в мишенной камере из-за новой расположенности вещества мишени в ней. В качестве упрощения данное задание было рассмотрено в первом приближении в одном измерении и без учёта процесса диффузии частиц. Таким образом было решено уравнение конвекции

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\langle v_z \rangle \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda c + g \quad (5.3)$$

с учётом радиоактивного распада транспортируемого осколка деления (λ -постоянная распада) и линейной плотности скорости образования осколков деления $g(z, t)$ внутри цилиндрического объёма мишени длиной L , которая задана формулой (5.4). В данной формуле вместо использования разности двух функции Хевисайда для аналитической удобства была использована разность двух параметризованных функций ошибок Гаусса, которые при $\alpha \rightarrow$

∞ стремятся к функциям Хевисайда.

$$g(z) = \frac{R_0}{L} \{ \operatorname{erf} [\alpha (z - z_0)] - \operatorname{erf} [\alpha (z - (z_0 + L))] \}, \quad (5.4)$$

Если решить уравнение конвекции, выраженное формулой (5.3), при начальном условии $c(z, 0) = 0$ и рассмотреть линейную концентрацию частиц в моменте времени намного позже начала облучения мишени $t \rightarrow \infty$

$$c(z) = \lim_{\substack{t \rightarrow \infty \\ \alpha \rightarrow \infty}} [c(z, t)]$$

можно получить нижеизложенное выражение, заданное формулой (5.5). Данное выражение состоит из трёх функций, описывающих: 1) области отсутствия нуклидов $(-\infty, z_0)$; 2) область наработки нуклидов $(z_0, z_0 + L)$; 3) область транспортировки нуклидов $(z_0 + L, \infty)$.

$$c(z) = \frac{R_0 T_{1/2}}{L \ln(2)} \begin{cases} 0, & z \leq z_0 \\ 1 - \exp \left(-\ln(2) \frac{(z - z_0)}{\langle v_z \rangle T_{1/2}} \right), & z_0 < z < z_0 + L \\ \frac{\exp \left(\frac{\ln(2) L}{\langle v_z \rangle T_{1/2}} \right) - 1}{\exp \left(\ln(2) \frac{(z - z_0)}{\langle v_z \rangle T_{1/2}} \right)}, & z \geq z_0 + L \end{cases} \quad (5.5)$$

Чтобы получить число частиц N , которые проходят через выход капиллярной трубки $z = z_{exit}$, нужно проинтегрировать последнее выражение в формуле (5.5).

$$N(z \geq z_{exit}) = \int_{z_{exit}}^{\infty} c(z) dz = \frac{R_0 \langle v_z \rangle T_{1/2}^2}{L \ln^2(2)} \left\{ \frac{\exp \left(\frac{\ln(2) L}{T_{1/2}} \right) - 1}{\exp \left(\ln(2) \frac{(z_{exit} - z_0)}{\langle v_z \rangle T_{1/2}} \right)} \right\} \quad (5.6)$$

Таким образом можно выразить обобщенное критическое условие для выживания нуклидов, используя формулу (5.6) и неравенство $N(z \geq z_{exit}) \geq 1$. Данная формула (5.6), также как и во второй главе, была дополнительно усовершенствована путём умножения её на коэффициент $\eta = \eta_t \eta_b \eta_{diff}$, и потом была использована в численных расчётах для проверки удовлетворения

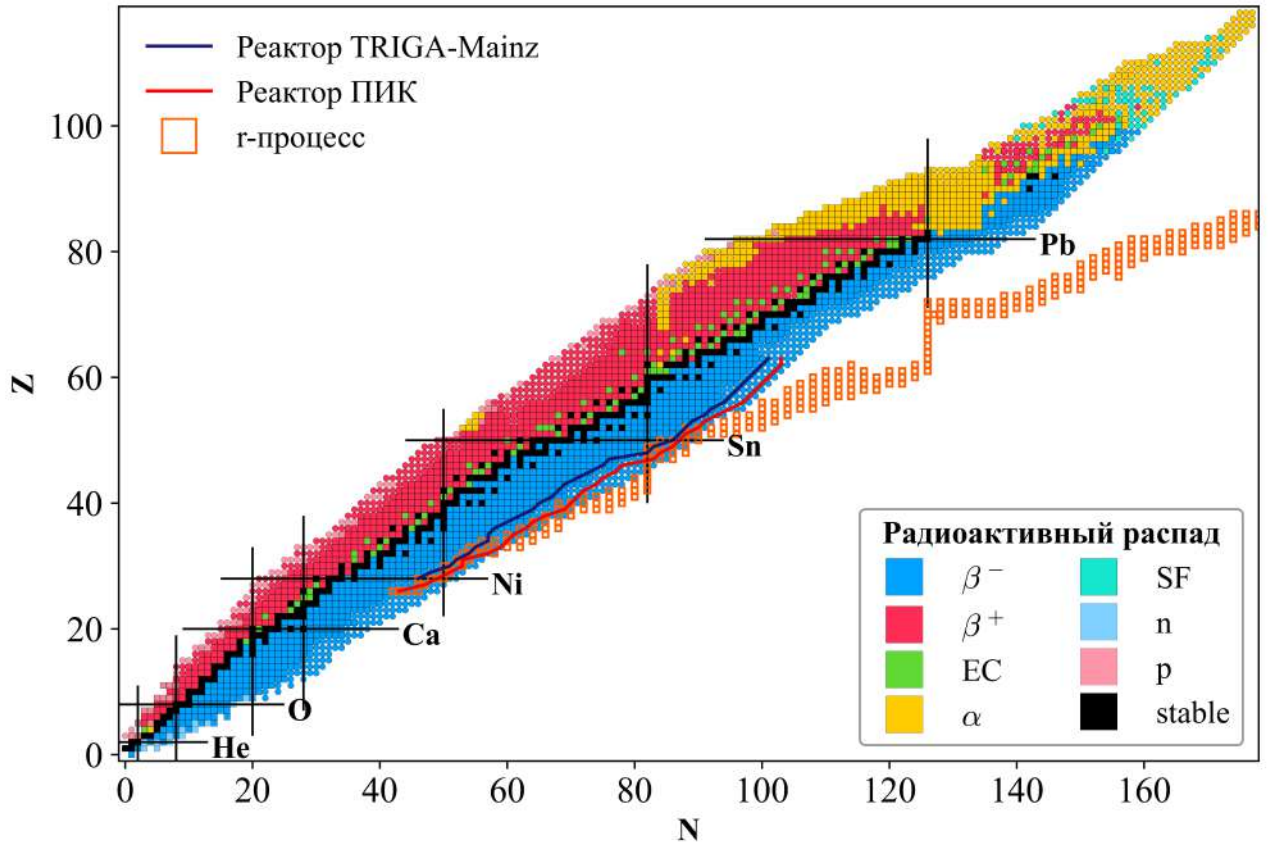


Рисунок 5.2: Самые тяжёлые нейтроноизбыточные изотопы осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ при облучении тепловыми нейтронами доступны для экспериментального изучения на реакторе TRIGA-Mainz и ПИК после оптимизированной газовой транспортировки из мишенной камеры и капиллярной системы [25, 26]. Данный рисунок был получен и модифицирован из работы [76].

условия выживания нуклидов из новой мишенной камеры ПИК, а в качестве времени транспортировки $\Delta t_{min} = \langle v_z \rangle / (z_{exit} - z_0 - L)$ было использовано минимальное оптимизированное значение из таблицы 5.1. На рисунке 5.2 представлены самые тяжёлые нейтроноизбыточные изотопы осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ при облучении тепловыми нейтронами, выжившие в процессе газовой транспортировки до выхода капиллярной системы и доступные для экспериментального изучения на реакторе TRIGA-Mainz и ПИК, и нуклиды, предполагаемо участвующие в r-процессе на карте нуклидов.

В случае реактора ПИК это представлял собой ряд нуклидов от $^{69}_{26}\text{Fe}$ до $^{170m}_{67}\text{Ho}$ и от $^{69}_{26}\text{Fe}$ до $^{166}_{63}\text{Eu}$, в случае без и с использованием коэффициента $\eta = \eta_t \eta_b \eta_{diff}$ соответственно, которые по сравнению с таблицей 2.3 оказываются более нейтронноизбыточными с разницей в массовых числах, в предельном случае, не более 4 массовых чисел. Удивительно, но точно такой же набор

нуклидов был получен при моделировании и упрощении данной задачи таким же образом, как и в случае мишенной камеры TRIGA-Mainz в главе 2, т.е. при предположении о точечном источнике $^{235}_{92}\text{U}$, размещенном на задней стенке одномерной мишенной камеры, и пренебрегая поправочным коэффициентом $\eta = \eta_t \eta_b \eta_{diff}$ [25, 26]. Посмотрев на данную картину, можно сделать вывод, что более массивная мишень, высокопоточный реактор ПИК и оптимизация метода газовой транспортировки превосходят возможности, предоставленные на реакторе TRIGA-Mainz, и могут сдвинут границу возможных изучаемых нуклидов глубже к области предполагаемых нуклидов r-процесса.

Заключение

В данной диссертации представлено исследование метода газовой транспортировки, применённого на разных мировых реакторных и ускорительных установках. Универсальность применения данного метода, независимо от наработки и экспериментального измерения, делает этот метод привлекательным для реализации в многочисленных научных лабораториях, исследующих самые фундаментальные свойства ядерной материи. Таким образом, были сделаны экспериментальные и теоретические исследования основных характерных параметров метода газовой транспортировки продуктов ядерных реакций, успешно реализованного на различных физических установках, а результаты исследований перенесены для имплементации метода на будущих планируемых установках: на реакторе TRIGA в университете Иоганн Гутенберг в Майнце (Германия), в ускорительной лаборатории университета Ювяскюля (Финляндия), в отделе Сверхтяжёлых элементов в институте GSI в Дармштадте (Германия) и на реакторе ПИК в Петербургском институте ядерной физики в Гатчине (Российская Федерация).

После проведения экспериментальных и теоретических исследований в данной диссертации были получены следующие результаты:

1. Проведён анализ экспериментальных данных, полученных с участием автора диссертации в одном из экспериментальных сеансов на установке TRIGA-SPEC по определению характерных времён транспортировки осколков деления мишени $^{235}_{92}\text{U}$ из мишенной камеры до конца капиллярной системы при краткосрочном облучении потоком тепловых нейтронов в импульсном режиме работы реактора TRIGA-Mainz. При проведённом сравнении экспериментально полученных результатов с теоретическими расчётами для определения минимального времени транспортировки, результаты оказались в удовлетворительном согласии

друг с другом, приблизительно во временном интервале от 950 мс до 1550 мс при объёмном расходе газа от 300 мл/мин до 800 мл/мин. Это позволяет надеяться на то, что произведённые расчёты на аналогичной системе доставки продуктов на других, в том числе строящихся установках, будут адекватно предсказывать ожидаемые результаты. Также в данной диссертации представлены результаты численных расчётов по определению доступных нуклидов для экспериментального исследования после выхода капиллярной системы на ректоре TRIGA-Mainz с помощью неравенства критерия выживания нуклидов и с дополнительным учётом более реалистичных физических условий, таких как: более точное определение начальных кинетических энергий осколков деления, прохождение осколков деления через вещество мишени и буферного металлического слоя и диффузионные потери в газовой камере. В итоге были определены самые тяжёлые изотопы осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ при облучении тепловыми нейтронами, доступные для экспериментального изучения после их газовой транспортировки из мишенной камеры и капиллярной системы, которые без учёта коррекций представляли изотопы от $^{74}_{28}\text{Ni}$ до $^{169}_{67}\text{Ho}$, а в более реалистичном случае с учётом коррекции состава буферного слоя и диффузии представляли изотопы от $^{74}_{28}\text{Ni}$ до $^{164}_{63}\text{Eu}$.

2. Автор диссертации впервые получены экспериментальные результаты по определению эффективности и характерных времён транспортировки (t_0 , Δt , t_{max}) для газовой ячейки MARA-LEB при экспериментальных исследованиях на установке IGISOL-4 с помощью радиоактивного источника $^{223}_{88}\text{Ra}$ с использованием He и Ar в качестве несущего газа. После проведения калибровки альфа-спектра радиоактивного источника и определения его активности были получены результаты для эффективности транспортировки дочерних радиоактивных нуклидов $^{219}_{86}\text{Rn}$ из 4-х разных позиции радиоактивного источника в газовой ячейке, максимальное значение которой достигало величины, больше 12%. С целью получения значений от экспериментальных данных для характерных времён эвакуации/транспортировки продуктов альфа распада радиоактивного источника $^{223}_{88}\text{Ra}$ из газовой ячейки был сделан

математический вывод формулы для пространственного распределения термализованных ионов излучаемых изотропно точечным радиоактивным источником, которая была использована для получения функций сглаживания экспериментальных временных профилей эвакуации ионов. Полученные значения для характерных времён, которые после фитинга были определены в интервалах $t_0 \in [78 \text{ мс}, 144 \text{ мс}]$, $t_{max} \in [95 \text{ мс}, 167 \text{ мс}]$ и $\Delta t \in [36 \text{ мс}, 61 \text{ мс}]$ из первых трёх позиций радиоактивной иголки в случае использования He и в случае первой позиции $t_0 = 242 \text{ мс}$, $t_{max} = 294 \text{ мс}$ и $\Delta t = 120 \text{ мс}$ в случае использования Ar, оказались в примерном согласии с результатами, полученными моделированием эксперимента и численными расчётами, в особенности t_0 и t_{max} , так как значения для Δt зависят от коэффициента диффузии $^{219}_{86}\text{Rn}$, отсутствующего в научной литературе. Также, из-за схожести временных профилей эвакуации пар ионов $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ne^+ в гелии и $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и Ar^+ аргоне, была проверена и определена корреляция между ними, путём изучения и сравнения скорости плотности генерации ионов неона и аргона заряженными нуклидами отдачи $^{219}_{86}\text{Rn}^+$ и альфа-частицами при распаде $^{223}_{88}\text{Ra}$ в гелии и аргоне соответственно.

3. Проведены теоретические исследования, численные расчёты и симуляции физических процессов в программе COMSOL Multiphysics для определения конструктивных особенностей первого сеточного электрода и электродов прямого потока в новой газовой ячейке UniCell. В итоге было получено, что минимальное число металлических струн для первого сеточного электрода должно составлять $N = 10$ и $N = 6$ при разнице в потенциале между соседними электродами прямого потока $\Delta V = 100 \text{ В}$ и $\Delta V = 200 \text{ В}$ соответственно. Пользуясь законом Пашена для определения пробойного напряжения между электродами прямого потока, была определена допустимая толщина электродов, которая должна быть $d_{DC} < 7 \text{ мм}$ при $p = 0.1 \text{ бар}$, а во всех остальных случаях при $p \geq 0.5 \text{ бар}$ толщина электродов может принимать любые значения $d_{DC} < 10 \text{ мм}$. Была определена аналитически эквивалентная электрическая ёмкость радиочастотной воронки $C_{eq} = 1.98 \text{ пФ}$ и численно $C_{eq} = 1.72 \text{ пФ}$ с помощью физических симуляций в COMSOL Multiphysics. Также был сделан вывод

математической формулы для предсказания минимального времени транспортировки сверхтяжёлых ионов, результаты которого в области около двух микросекунд оказались в согласии с ранее опубликованными численными расчётами. Для осесимметричной газовой камеры отдачи были получены результаты симуляций физических процессов в программе COMSOL Multiphysics по определению эффективности и характерного медианного времени транспортировки сверхтяжёлого изотопа $^{252}_{102}\text{No}$ из трёх начальных позиций транспортировки $z_0 \in (3 \text{ мм}, 10 \text{ мм}, 17 \text{ мм})$ в газовой смеси He и Ar для каждой из заданных мольных долей гелия $y(\text{He}) \in (0.5, 0.7, 1.0)$ и приведены сравнения с экспериментально доступным изотопом самого лёгкого элемента среди актиноидов $^{220}_{89}\text{Ac}$. В итоге усреднённая эффективность и усреднённое характерное медианное время транспортировки в газовых смесях $y(\text{He}) \in (0.5, 0.7, 1.0)$ оказались в интервалах $\eta \in (40\%, 60\%)$ и $\eta \in (32\%, 55\%)$, и $\tau_{50} \in (123 \text{ мс}, 153 \text{ мс})$ и $\tau_{50} \in (111 \text{ мс}, 145 \text{ мс})$ для $^{220}_{89}\text{Ac}$ и $^{252}_{102}\text{No}$ соответственно.

4. Проведено теоретическое исследование по определению оптимальных размеров мишени $^{235}_{92}\text{U}$ и газовой камеры на реакторе ПИК в рамках перспективного проекта PITRAP, в результате которого были предложены следующие размеры для диаметра и длины осесимметричной мишени (5 см, 5 см) и мишенной камеры (5 см, 7.5 см) соответственно. Осуществлена оптимизация метода газовой транспортировки и выведена формула для критерия выживания с учётом предложенной геометрии мишени, с помощью которых были сделаны предсказания для наличия самых тяжёлых доступных изотопов осколков деления $^{235}_{92}\text{U}$ при облучении потоком тепловых нейтронов в будущих возможных экспериментальных исследованиях после выхода капиллярной системы на реакторе ПИК, которые представили ряд изотопов от $^{69}_{26}\text{Fe}$ до $^{170m}_{67}\text{Ho}$, а в более реалистичном случае представляли изотопы от $^{69}_{26}\text{Fe}$ до $^{166}_{63}\text{Eu}$. Данные результаты однозначно выражают преимущество потенциальных экспериментальных условий на высокопоточном реакторе ПИК, превосходя при этом возможности, предоставленные на реакторе TRIGA-Mainz, что открывает перспективу сдвинуть границу возможных экспериментально изучаемых нуклидов глубже к области предполагаемых

нуклидов астрофизического γ -процесса.

Подводя краткий итог выполненным в диссертации исследованиям можно констатировать, что в экспериментах в немецком и финском научных центрах автором получен набор данных, позволяющих оценить основные параметры систем экспрессного газового транспорта продуктов ядерных реакций и деления. На основании этих данных построен базис аналитических и численных предсказаний основных свойств таких систем, начиная от характеристик мишени и типа газа-носителя, до длины переходного устройства и скорости доставки продуктов до детектирующих систем. Таким образом, в результате диссертационной работы создан аналитический фундамент для создания систем экспрессной доставки продуктов в будущих строящихся установках на ускорителях и реакторах, призванных изучать свойства экзотических нуклидов.

Список сокращений и условных обозначений

ARIEL – Advanced Rare Isotope Laboratory

ESS – European Spallation Source

FAIR – Facility for Antiproton and Ion Research

FRIB – Facility for Rare Isotope Beams

GANIL – Grand Accélérateur National d'Ions Lourds

GSI – Gesellschaft für Schwerionenforschung

IGISOL – Ion Guide and Isotope Separator On-Line

ILL – Institut Laue-Langevin

MARA-LEB – Mass Analysing Recoil Apparatus - Low Energy Branch

RTC – Recoil Transfer Chamber

SHE – Super Heavy Elements

TRIGA – Training, Research, Isotopes, General Atomics

TRIUMF – TRI-University Meson Facility

UniCell – Universal high-density gas stopping Cell

UNILAC – Universal Linear Accelerator

Список литературы

- [1] Meng Wang, W.J. Huang, F.G. Kondev et al.. The AME 2020 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references // *Chinese Physics C*. — 2021. — V. 45, № 3. — P. 030003.
- [2] G.G. Adamian, N.V. Antonenko, A. Diaz-Torres et al.. How to extend the chart of nuclides? // *The European Physical Journal A*. — 2020. — V. 56. — P. 1.
- [3] E.M. Burbidge, G.R. Burbidge, W.A. Fowler et al.. Synthesis of the Elements in Stars // *Rev. Mod. Phys.* — 1957. — V. 29. — P. 547–618.
- [4] C. Smorra, T. Beyer, K. Blaum et al.. High-Precision Mass Measurements At TRIGA-TRAP // *AIP Conference Proceedings*. — 2010. — V. 1224, № 1. — P. 544–551.
- [5] J. Grund, M. Asai, K. Blaum et al.. First online operation of TRIGA-TRAP // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A*. — 2020. — V. 972. — P. 1–8.
- [6] S. Chenmarev, S. Nagy, J.J.W. van de Laar et al.. First application of the phase-imaging ion-cyclotron resonance technique at TRIGA-Trap // *Eur. Phys. J. A*. — 2023. — V. 59, № 2. — P. 1–14.
- [7] I.D. Moore, T. Eronen, D. Gorelov et al.. Towards commissioning the new IGISOL-4 facility // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res B*. — 2013. — V. 317. — P. 208–213.
- [8] A. Kankainen, T. Eronen, D. Nesterenko et al.. Recent experiments at the JYFLTRAP Penning trap // *Hyperfine Interact.* — 2020. — V. 241. — P. 1–14.
- [9] O. Kaleja, B. Anđelić, O. Bezrodnova et al.. Direct high-precision mass spectrometry of superheavy elements with SHIPTRAP // *Phys. Rev. C*. — 2022. — V. 106. — P. 1–9.

- [10] A. Yakushev, L. Lens, Ch.E. Düllmann et al.. On the adsorption and reactivity of element 114, flerovium // *Front. Chem.* — 2022. — V. 10. — P. 1–11.
- [11] R. MacFarlane, R. Gough, N. Oakey et al.. The helium-jet recoil transport method // *Nucl. Instrum. and Meth.* — 1969. — V. 73. — P. 285–291.
- [12] K. Wien, Y. Fares, R. Macfarlane. Application of the helium-jet technique for fission fragment transport from spontaneous fission sources // *Nucl. Instrum. and Meth.* — 1972. — V. 103, № 2. — P. 181–187.
- [13] H.G. Wilhelm, H. Jungclas, H. Wollnik et al.. The helium-jet technique for inaccessible sources of ^{252}Cf fission fragments and ^{228}Th decay products // *Nucl. Instrum. and Meth.* — 1974. — V. 115, № 2. — P. 419–424.
- [14] A. Mazumdar, H. Wagner, W. Walcher et al.. Performance of the on-line isotope separation facility HELIOS at the Mainz reactor // *Nucl. Instrum. and Meth.* — 1981. — V. 186, № 1. — P. 131–134.
- [15] Y.I. Gusev, V.S. Gusel'nikov, S.A. Eliseev et al.. Penning Ion Traps for High-Precision Measurements of the Mass of Neutron-Excess Nuclei in the Pik Reactor // *Atomic Energy.* — 2015. — V. 118. — P. 419–424.
- [16] A. Zadvornaya, J. Romero, T. Eronen et al.. Offline commissioning of a new gas cell for the MARA Low-Energy Branch // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res B.* — 2023. — V. 539. — P. 33–42.
- [17] H. Guyon, P. Geltenbort. The high flux research reactor at the Laue-Langevin Institute (ILL) // *Atw Internationale Zeitschrift fuer Kernenergie.* — 2012. — V. 57, № 10. — P. 607–608.
- [18] S. Gales. SPIRAL2 at GANIL: Next Generation of ISOL Facility for Intense Secondary Radioactive Ion Beams // *Nuclear Physics A.* — 2010. — V. 834, № 1. — P. 717c–723c.
- [19] P. Spiller, G. Franchetti. The FAIR accelerator project at GSI // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* — 2006. — V. 561, № 2. — P. 305–309.

- [20] H. Abele, A. Alekou, A. Algora et al.. Particle physics at the European Spallation Source // *Physics Reports*. — 2023. — V. 1023. — P. 1–84.
- [21] J.A. Bagger, R. Laxdal, Y. Bylinsky et al.. ARIEL at TRIUMF: Science and Technology. — 2018. — June. — № 9. — P. 6–11.
- [22] A.C.C. Villari, G. Bollen, A. Henriques et al.. Gas stopping and reacceleration techniques at the Facility for Rare Isotope Beams (FRIB) // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. — 2023. — V. 541. — P. 350–354.
- [23] *J.F. Ziegler*. Interactions of ions in matter. — 2013. <http://www.srim.org/>.
- [24] COMSOL Multiphysics 5.3. <https://www.comsol.com/release/5.3>.
- [25] D. Simonovski, Y.N. Novikov, Y.I. Gusev et al.. Gas Transport of Fission Products from a Target Near the Core of a High-Flux Reactor // *Atomic Energy*. — 2019. — V. 125. — P. 384–390.
- [26] D. Simonovski, S.V. Chenmarev. Transportation of exotic fission products targeted for the goals of astrophysical r-process // *J. Phys.: Conf. Ser.* — 2018. — V. 1135. — P. 1–6.
- [27] W. Demtröder. Nuclear and Particle Physics. — Springer International Publishing, 2022. — P. 156.
- [28] N.E. Holden. Handbook of Chemistry and Physics 99th Edition. — CRC Press, 2018.
- [29] B. Zohuri. Neutronic Analysis For Nuclear Reactor Systems. — Springer International Publishing, 2019. — P. 34.
- [30] H. Faust, U. Koster, T. Materna et al.. Population Characteristics for Spin and Excitation Energy of Fragments in Thermal Neutron Induced Fission // *J. Korean Phys. Soc.* — 2011. — V. 59. — P. 879–882.
- [31] R.K. Choudhury, S.S. Kapoor, D.M. Nadkarni, othes. Studies of mass and energy correlations in thermal neutron fission of U-235 accompanied by long range alpha particles // *Pramana - J Phys.* — 1976. — V. 6. — P. 64–76.

- [32] H. Bateman. Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations // *Proc. Cambridge Philos. Soc.* — 1910. — V. 15. — P. 423–427.
- [33] D. Naujoks. Plasma-Material Interaction in Controlled Fusion. — Springer, 2006. — P. 65–74.
- [34] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, M.D. Ziegler. SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter. — James Ziegler, 2008.
- [35] S. Furukawa, H. Matsumura. Theoretical and Experimental Studies on Lateral Spread of Implanted Ions, Ion Implantation in Semiconductors and Other Materials. — Springer US, 2008. — P. 193.
- [36] F.M. White. Fluid Mechanics. — McGraw-Hill Comp., 2011.
- [37] L. Trujillo, L. Di G. Sigalotti, J. Klapp. Granular Hydrodynamics // *Fluid Dynamics in Physics, Engineering and Environmental Applications.* — 2013. — P. 169–183.
- [38] R. Brun. Introduction to Reactive Gas Dynamics. — Oxford University Press, 2009. — P. 106.
- [39] B.E. Poling, J.M. Prausnitz, J.P. O’Connell. The properties of gases and liquids. — McGraw-Hill Comp., 2001.
- [40] R. Eslamloueyan, M.H. Khademi. A neural network-based method for estimation of binary gas diffusivity // *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems.* — 2010. — V. 104. — P. 195–204.
- [41] N. Melzi, L. Khaouane, Y. Ammi et al.. Comparative Study of Predicting the Molecular Diffusion Coefficient for Polar and Non-polar Binary Gas Using Neural Networks and Multiple Linear Regressions // *Kem. Ind.* — 2019. — V. 68. — P. 573–582.
- [42] D.R. Lide, H.V. Kehiaian. CRC Handbook of Thermophysical and Thermochemical Data. — CRC Press, 1994. — P. 26.

- [43] M. Guerra, P. Amaroa, J.P. Santos et al.. Relativistic calculations of screening parameters and atomic radii of neutral atoms // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. — 2017. — V. 117–118. — P. 439–457.
- [44] M. Luo, G. Min, G. Guo et al.. Theoretical study on radii of neutral atoms and singly charged negative ions // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. — 2021. — V. 138. — P. 1–18.
- [45] M. Levy. Modern Acoustical Techniques for the Measurement of Mechanical Properties. — Elsevier Science, 2001. — P. 253.
- [46] P. Kulkarni, P.A. Baron, K. Willeke. Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications. — Wiley, 2011. — P. 904.
- [47] G. Hampel, K. Eberhardt, N. Trautmann. The research reactor TRIGA Mainz // *Atomnaya Tekhnika za Rubezhom*. — 2007. — V. 3. — P. 24–26.
- [48] K. Eberhardt, C. Geppert. The research reactor TRIGA Mainz – a strong and versatile neutron source for science and education // *Radiochimica Acta*. — 2019. — V. 107. — P. 535–546.
- [49] J. Ketelaer, J. Krämer, D. Beck et al.. TRIGA-SPEC: A setup for mass spectrometry and laser spectroscopy at the research reactor TRIGA Mainz // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*. — 2008. — V. 594, № 2. — P. 162–177.
- [50] S. Kaufmann, T. Beyer, K. Blaum et al.. TRIGA-SPEC: the prototype of MATS and LaSpec // *J. Phys.: Conf. Ser.* — 2015. — V. 599. — P. 1–5.
- [51] Д. Симоновски. — Исследования свойств системы газовой доставки продуктов деления в реакторе к измерительным установкам. — Master's thesis, 2017. diploma.spbu.ru.
- [52] D. Renisch. Installation and operation of a high-temperature surface ion source for the online coupling of TRIGA-SPEC to the TRIGA Mainz research reactor and high-precision mass measurements of transuranium nuclides at TRIGA-TRAP: Ph.D. thesis. — 2016. https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:48091434.

- [53] V.S. Kolhinen, T. Eronen, D. Gorelov et al.. Recommissioning of JYFLTRAP at the new IGISOL-4 facility // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res B.* — 2013. — V. 317. — P. 506–509.
- [54] *M. Reponen*. Resonance laser ionization developments for IGISOL-4: Ph.D. thesis. — 2012. <https://jyx.jyu.fi/handle/123456789/40096>.
- [55] I.D. Moore, T. Kessler, T. Sonoda et al.. A study of on-line gas cell processes at IGISOL // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res B.* — 2010. — V. 268. — P. 657–670.
- [56] W.R. Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments.* — Springer, Berlin, 1994. — P. 127–156.
- [57] GSI Overview. https://www.gsi.de/en/about_us.
- [58] UNILAC Overview. <https://www.gsi.de/en/work/beschleunigerbetrieb/beschleuniger/unilac/unilac>.
- [59] TASCA Facility. <https://www-windows.gsi.de/tasca/facility/facility.html>.
- [60] V. Varentsov, A. Yakushev. Concept of a new Universal High-Density Gas Stopping Cell Setup for study of gas-phase chemistry and nuclear properties of Super Heavy Elements (UniCell) // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A.* — 2019. — V. 940. — P. 206–214.
- [61] V. Varentsov, A. Yakushev. Fair-wind gas cell for the UniCell setup // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A.* — 2021. — V. 1010. — P. 165487.
- [62] R. Massarczyk, P. Chu, S.R. Elliot et al.. Paschen’s law studies in cold gases // *JINST.* — 2017. — V. 12. — P. 1–12.
- [63] G. Galli, H. Hamrita, C. Jammes et al.. Paschen’s Law in Extreme Pressure and Temperature Conditions // *IEEE Transactions on Plasma Science.* — 2019. — V. 47. — P. 1641–1647.
- [64] L.F. Berzak, S.E. Dorfman, S.P. Smith. Tech. Rep.: : 2006. https://www-eng.lbl.gov/~shuman/XENON/REFERENCES&OTHER_MISC/paschen_report.pdf.

- [65] I. Kärkkäinen. Resistive Switching in ZrO₂ Based Metal-oxide-metal Structures. — Forschungszentrum Jülich, Zentralbibliothek, 2014. — P. 21–52.
- [66] A.A. Demkov, A. Navrotsky. Metal Oxides for Non-volatile Memory. — Elsevier Science, 2022. — P. 177.
- [67] X. Zhao, D. Vanderbilt. Phonons and lattice dielectric properties of zirconia // *Phys. Rev. B*. — 2002. — V. 65. — P. 1–10.
- [68] A.A. Demkov, A. Navrotsky. Materials Fundamentals of Gate Dielectrics. — Springer Dordrecht, 2005. — P. 266.
- [69] SIMION 2020. <https://simion.com/>.
- [70] M. Sommerfeld. Numerical Methods for Dispersed Multiphase Flows // *Advances in Mathematical Fluid Mechanics*. — 2017. — P. 327–396.
- [71] D. Mewes, L. Cheng. Advances in Multiphase Flow and Heat Transfer. — Bentham Science Publishers, 2012. — P. 151–187.
- [72] A. Yakushev, L. Lens, C.E. Düllmann et al.. First Study on Nihonium (Nh, Element 113) Chemistry at TASCA. // *Front. Chem.* — 2021. — V. 9. — P. 1–10.
- [73] J. Khuyagbaatar. The Virtual SHE seminar: "Island of the stability: back to the future". — 2021. <https://webmaster.ncbj.gov.pl/events/superheavy-elements/program-2021>.
- [74] M.V. Kovalchuk, V.V. Voronin, S.V. Gavrilov et al.. Research Reactor PIK: The First Experiments // *Crystallogr. Rep.* — 2022. — V. 67. — P. 729–738.
- [75] Yu.N. Novikov, Yu. I. Gusev, S.V. Chenmarev et al.. Exotic nuclides at the reactor pik: pitrap project // *Eurasian Journal of Physics and Functional Materials*. — 2019. — V. 3. — P. 63–70.
- [76] J. Karthein. Nuclear-chart-plotter. — 2019. <https://github.com/jonas-ka/nuclear-chart-plotter>.

Благодарности

Автор выражает благодарность научному руководителю, Юрию Николаевичу Новикову, а также всем сотрудникам Лаборатории физики экзотических ядер (ПИЯФ) за профессиональное руководство и неоценимую поддержку в осуществлении стажировок, в продуктивных дискуссиях и помощи в подготовке данной работы.

Автор выражает большую благодарность профессору Клаусу Блауму и профессору Михаэлю Блоку за предоставление возможности стажировки в университете Майнца, а также выражает особую благодарность Станиславу Ченмарёеу и Сциларду Наги за полезные советы и дискуссии.

Автор выражает благодарность профессору Иану Муру за предоставленную возможность стажировки в ускорительной лаборатории университета Ювяскюля и обсуждении результатов проведённых исследований. Также автор также выражает благодарность группе IGISOL, а в особенности Александре Задворной за профессиональное сотрудничество во время стажировки и ценные комментарии к данной работе.

Автор выражает благодарность профессору Александру Борисовичу Якушеву и профессору Кристофу Дюльману за возможность стажировки в институте GSI в составе группы Сверхтяжёлых Элементов (SHE), а также за искренне проявленный интерес в дискуссиях и помощь при выполнении работы. Автор также выражает большую благодарность Джадамбаа Куягбаатару за интересные задачи, долгие и терпеливые обсуждения результатов проведённой совместной работы.

Наконец, я благодарю моих родителей и брата за огромное терпение, а также за бесконечную моральную поддержку во все эти годы.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Вывод математических формул

А.1 Плотность бинарной газовой смеси ρ_{mix}

Плотность ρ_{mix} для n -компонентной газовой смеси можно рассчитать по формуле, приведенной ниже

$$\rho_{mix} = \sum_{i=1}^n \rho_i,$$

где ρ_i — плотность i -го компонента газовой смеси. В бинарной газовой смеси, состоящей из благородных газов, таких как He и Ar, мы получаем формулу, приведенную ниже.

$$\rho_{mix}(\text{He}, \text{Ar}) = \rho(\text{He}) + \rho(\text{Ar})$$

Поскольку в выражении для $\rho_{mix}(\text{He}, \text{Ar})$ должны присутствовать концентрации He и Ar, в дальнейшем выводе можно использовать физическую величину молярной доли y вместо концентрационной доли, поскольку они выражают одну и ту же физическую величину, как показано ниже в случае с $y(\text{He})$.

$$y(\text{He}) = \frac{n(\text{He})}{n(\text{He}) + n(\text{Ar})} = \frac{\frac{1}{V} \left(\frac{N(\text{He})}{N_A} \right)}{\frac{1}{V} \left(\frac{N(\text{He})}{N_A} \right) + \frac{1}{V} \left(\frac{N(\text{Ar})}{N_A} \right)} = \frac{c(\text{He})}{c(\text{He}) + c(\text{Ar})}$$

Теперь можно выразить мольную долю He как функцию плотностей компонентов газовой смеси.

$$y(\text{He}) = \frac{n(\text{He})}{n(\text{He}) + n(\text{Ar})} = \frac{\frac{\rho(\text{He})}{M(\text{He})}}{\frac{\rho(\text{He})}{M(\text{He})} + \frac{\rho(\text{Ar})}{M(\text{Ar})}}$$

Можно сделать то же самое для молярной доли Ar или просто использовать формулу $y(\text{Ar}) = 1 - y(\text{He})$.

Теперь можно использовать закон парциального давления Дальтона для случая бинарной газовой смеси идеальных газов.

$$P_1 V = N(\text{He}) k_B T \Rightarrow P_1 V = \frac{m(\text{He})}{M(\text{He})} R T \Rightarrow P_1 = \frac{\rho(\text{He})}{M(\text{He})} R T$$

$$P_2 V = N(\text{Ar}) k_B T \Rightarrow P_2 V = \frac{m(\text{Ar})}{M(\text{Ar})} R T \Rightarrow P_2 = \frac{\rho(\text{Ar})}{M(\text{Ar})} R T$$

$$P = P_1 + P_2 = \left(\frac{\rho(\text{He})}{M(\text{He})} + \frac{\rho(\text{Ar})}{M(\text{Ar})} \right) R T$$

Подставив правую часть последней формулы внутри скобок в выражение, полученное ранее в формуле для $y(\text{He})$, мы можем получить выражение для $\rho(\text{He})$.

$$\rho(\text{He}) = y(\text{He}) M(\text{He}) \frac{P}{R T}$$

Делая то же самое, используя формулу для $y(\text{Ar})$, мы можем получить выражение для $\rho(\text{Ar})$.

$$\rho(\text{Ar}) = y(\text{Ar}) M(\text{Ar}) \frac{P}{R T}$$

Подставляя выше полученные выражения для $\rho(\text{He})$ и $\rho(\text{Ar})$ в $\rho_{mix}(\text{He}, \text{Ar})$

$$\rho(\text{He}, \text{Ar}) = (y(\text{He}) M(\text{He}) + y(\text{Ar}) M(\text{Ar})) \frac{P}{R T}$$

и используя выражение $y(\text{Ar}) = 1 - y(\text{He})$ наконец, можно выразить плотность $\rho_{mix} = \rho(\text{He}, \text{Ar})$ бинарной газовой смеси, состоящей из He и Ar.

$$\rho(\text{He}, \text{Ar}) = (y(\text{He}) (M(\text{He}) - M(\text{Ar})) + M(\text{Ar})) \frac{P}{R T} \quad (\text{A.1})$$

A.2 Обобщение уравнения распределения термализованных ионов

Нормированное пространственное распределение термализованных ионов, проникших в определенный материал, определяется формулой (A.2)

$$G(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_{\perp}^2 \sigma_{\parallel}} e^{-\left(\frac{x^2 + y^2}{2\sigma_{\perp}^2}\right) - \left(\frac{z - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} \quad (\text{A.2})$$

где $\bar{R}_{\parallel}$ — средний проектированный (продольный) пробег по начальному направлению испускания ионов, и $\sigma_{\parallel}$ и $\sigma_{\perp}$ представляют продольный и поперечный разброс пробега. Данное выражение предполагает, что моноэнергетический ионный пучок излучается точечным источником в направлении z .

Задача этого приложения состоит в том, чтобы обобщить формулу (A.2) в наиболее общем случае, который представлял бы более реалистичный физический случай трехмерного пространственно распределенного источника пучка, излучающего ионный пучок с определенным угловым и энергетическим распределением. Для этого сначала приведенную выше формулу обобщим с частного случая точечного источника на линейно и потом пространственно распределенный источник.

A.2.1 Пространственно распределенный источник

Сначала будет выведен наиболее простой случай дискретно распределенных точечных источников по оси z в интервале от $[z_{s_1}, z_{s_2}]$. Чтобы упростить формулу (A.2) для одномерного случая, можно пронормировать эту формулу по переменным x и y , и в результате получится гауссово распределение, заданное формулой (A.3).

$$G(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{\parallel}} e^{-\left(\frac{z - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} \quad (\text{A.3})$$

Если преобразовать формулу (A.3), выполнив простую замену $z \rightarrow z - z_s$, тогда получится формула точечного источника $G(z - z_s)$, расположенного в координате z_s на оси z . Для простоты дальнейшего математического вывода было сделано предположение, что $n + 1$ число точечных источников, где $n = (z_{s_2} - z_{s_1}) / \Delta z_s$, эквидистантно (равномерно) распределены в интервале $z_s \in [z_{s_1}, z_{s_1} + i\Delta z_s]$, имеющие интервал Δz_s между двумя соседними точечными источниками. Чтобы вывести результирующее распределение ионов $P(z)$, создаваемое линейно дискретно распределёнными точечными источниками ионов, нужно будет просуммировать все дискретные точечные источники

$$G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s)).$$

$$P(z) = \sum_{i=0}^n G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s))$$

Теперь, чтобы получить нормированное распределение $p(z) = C \cdot P(z)$, необходимо сначала проинтегрировать по всему нормировочному интервалу, чтобы выразить нормирующую константу C .

$$\int_{-\infty}^{\infty} p(z) dz = C \sum_{i=0}^n \int_{-\infty}^{\infty} G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s)) dz = C(n+1) = 1 \Rightarrow C = \frac{1}{n+1}$$

Чтобы обобщить последний результат для нормированного распределения

$$p(z) = \sum_{i=0}^n \frac{G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s))}{n+1}$$

в случае непрерывно линейно распределенных источников вдоль оси z в интервале $z_s \in [z_{s_1}, z_{s_2}]$, нужно вычислить предел суммы в случае когда $\Delta z_s \rightarrow 0$.

$$\begin{aligned} p(z) &= \lim_{\Delta z_s \rightarrow 0} \left[\frac{1}{z_{s_2} - z_{s_1} + \Delta z_s} \right] \lim_{\Delta z_s \rightarrow 0} \left[\sum_{i=0}^n G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s)) \Delta z_s \right] = \\ &= \frac{1}{z_{s_2} - z_{s_1}} \int_{z_{s_1}}^{z_{s_2}} G(z - z_s) dz_s = \frac{\int_{z_{s_1}}^{z_{s_2}} G(z - z_s) dz_s}{\int_{z_{s_1}}^{z_{s_2}} dz_s} \end{aligned}$$

Теперь можно обобщить последний результат. В случае неравномерного пространственного распределения источников ионов $n(z_s)$ по оси z , пришлось бы в начале вывода в формуле для $P(z)$ просто заменить $G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s)) \rightarrow G(z - (z_{s_1} + i\Delta z_s)) n(z_{s_1} + i\Delta z_s)$, после чего получилось бы выражение, изложенное ниже.

$$p(z) = \frac{\int_{z_{s_1}}^{z_{s_2}} G(z - z_s) n(z_s) dz_s}{\int_{z_{s_1}}^{z_{s_2}} n(z_s) dz_s}$$

Возвращаясь к формуле (А.2) и следуя той же процедуре математического вывода для остальных переменных в случае неравномерного пространственного распределения источников ионов $n(\vec{r}_s) = n(x_s, y_s, z_s)$, можно вывести формулу, описывающую пространственное распределение термализованных

ионов, испускаемых из пространственно распределенных источников ионов внутри объема V_s

$$p(x, y, z) = \frac{\iiint_{x_s, y_s, z_s \in V_s} G(\vec{r} - \vec{r}_s) n(\vec{r}_s) dV_s}{\iiint_{x_s, y_s, z_s \in V_s} n(\vec{r}_s) dV_s},$$

где для простоты выражения введено обозначение $G(x - x_s, y - y_s, z - z_s) = G(\vec{r} - \vec{r}_s)$.

A.2.2 Точечный источник с произвольным угловым распределением испускаемых ионов

Во всех предыдущих выводах предполагалось, что все испускаемые ионы, ещё до начала их прохождения через окружающее вещество, имели одно и то же направление, параллельное направлению оси z . Другими словами, угловое распределение математически задавалось формулой $\eta(z) = \delta(z)$. В этом разделе будет сделан вывод пространственного распределения моноэнергетических ионов, испускаемых точечным источником и имеющих общее угловое распределение $\eta(\alpha, \beta)$.

Вся процедура вывода точно такая же, как и в предыдущем разделе, с той небольшой разницей, что в формуле (A.2) должна быть реализована следующая замена $\vec{r}' = R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) \cdot \vec{r}$, т.е.

$$\begin{cases} x \rightarrow x' = x'(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z) = (R_{zy}(\alpha_z, \alpha_y) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{i} \\ y \rightarrow y' = y'(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z) = (R_{zy}(\alpha_z, \alpha_y) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{j} \\ z \rightarrow z' = z'(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z) = (R_{zy}(\alpha_z, \alpha_y) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{k} \end{cases},$$

где $R_{zy}(\alpha_z, \alpha_y)$ представляет классическую матрицу вращения вокруг осей z и y , заданной выражениями

$$R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) = R_y(-\alpha_y) R_z(-\alpha_z) = \begin{bmatrix} \cos(\alpha_y) \cos(\alpha_z) & \cos(\alpha_y) \sin(\alpha_z) & -\sin(\alpha_y) \\ -\sin(\alpha_z) & \cos(\alpha_z) & 0 \\ \sin(\alpha_y) \cos(\alpha_z) & \sin(\alpha_y) \sin(\alpha_z) & \cos(\alpha_y) \end{bmatrix}$$

где

$$R_y(\alpha_y) = \begin{bmatrix} \cos(\alpha_y) & 0 & \sin(\alpha_y) \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin(\alpha_y) & 0 & \cos(\alpha_y) \end{bmatrix} \quad \text{и} \quad R_z(\alpha_z) = \begin{bmatrix} \cos(\alpha_z) & -\sin(\alpha_z) & 0 \\ \sin(\alpha_z) & \cos(\alpha_z) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

представляют классические матрицы вращения вокруг оси z и y на угол α_z и α_y соответственно, и $\vec{r} = (x, y, z)$ – это радиус-вектор. Выполняя эту замену, мы вращаем систему координат по часовой стрелке вокруг осей z и y и, таким образом, добиваемся вращения распределения в обычном направлении против часовой стрелки. Из-за такой сложной замены координат дальше в этой работе будет использовано следующее сокращённое обозначение для повернутой функции $G(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z)$ или $G(\vec{r}; \alpha_y, \alpha_z)$ вместо полного загруженного обозначения $G(x', y', z'; \alpha_y, \alpha_z) = G\left((R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{i}, (R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{j}, (R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{k}\right)$. В матрице ротации $R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z)$ конкретно такая последовательность и направление ротации были подобраны, чтобы новая формула распределения $G(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z)$ соответствовала распределению частиц, испускаемых источником в направлении, математически описанным очень простым выражением $G(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z) = (\sin(\alpha_y) \cos(\alpha_z), \sin(\alpha_y) \sin(\alpha_z), \cos(\alpha_y))$, что просто представляет ротация начального направления $\vec{r} = (0, 0, 1)$ по азимутальному и полярному углу в сферических координатах.

Повторяя ещё раз ту же процедуру математического вывода из предыдущего подраздела, начиная с равномерного разделения угловых интервалов $\alpha_y \in [\alpha_{y1}, \alpha_{y2}]$ и $\alpha_z \in [\alpha_{z1}, \alpha_{z2}]$ и выражая верхние пределы как $\alpha_{y2} = \alpha_{y1} + n\Delta\alpha_y$ и $\alpha_{z2} = \alpha_{z1} + m\Delta\alpha_z$, можно получить суммарное распределение, сгенерированное из одного точечного источника,

$$\begin{aligned} P(x, y, z) = & \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^m G(x, y, z; \alpha_{y1} + i\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + j\Delta\alpha_z) \cdot \dots \\ & \dots \cdot \{N(\alpha_{y1} + (i+1)\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + (j+1)\Delta\alpha_z) - \\ & \dots - N(\alpha_{y1} + i\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + j\Delta\alpha_z)\} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

который излучает ионы в дискретно выбранных угловых направлениях $(\alpha_{y1} + i\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + j\Delta\alpha_z)$, которые имеют в общем случае угловое распределение $\eta(\alpha_y, \alpha_z)$, определяемое выражением

$$\eta(\alpha_y, \alpha_z) = \frac{dN(\alpha_y, \alpha_z)}{d\Omega} = \frac{d^2N(\alpha_y, \alpha_z)}{\sin(\alpha_y) d\alpha_y d\alpha_z},$$

где $N(\alpha_y, \alpha_z)$ представляет количество ионов, излучаемых в заданном направлении (α_y, α_z) , а Ω представляет собой телесный угол.

Теперь, чтобы получить нормированное распределение $p(x, y, z)$ в случае непрерывного углового распределения $\eta(\alpha_y, \alpha_z)$ повторно используется та же

самая процедура, как и в предыдущем разделе. Интегрируя выражение $p(x, y, z) = C \lim_{\Delta\alpha_y \rightarrow 0} [P(x, y, z)]$ по нормировочному интервалу, можно получить выражение для нормирующей константы C .

$$\begin{aligned}
\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y, z) dx dy dz &= C \lim_{\substack{\Delta\alpha_y \rightarrow 0 \\ \Delta\alpha_z \rightarrow 0}} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} P(x, y, z) dx dy dz \right] = \\
&= C \lim_{\substack{\Delta\alpha_y \rightarrow 0 \\ \Delta\alpha_z \rightarrow 0}} \left[\sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^m \frac{N(\alpha_{y1} + (i+1)\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + (j+1)\Delta\alpha_z)}{\Delta\alpha_y \Delta\alpha_z} - \dots \right. \\
&\quad \left. \dots - \frac{N(\alpha_{y1} + i\Delta\alpha_y, \alpha_{z1} + j\Delta\alpha_z)}{\Delta\alpha_y \Delta\alpha_z} \right] \Delta\alpha_y \Delta\alpha_z = \\
&= C \int_{\alpha_{y1}}^{\alpha_{y2}} \int_{\alpha_{z1}}^{\alpha_{z2}} \frac{d^2 N(\alpha_y, \alpha_z)}{d\alpha_y d\alpha_z} \left(\frac{d\Omega}{\sin(\alpha_y)} \right) = C \int_{\alpha_{y1}}^{\alpha_{y2}} \int_{\alpha_{z1}}^{\alpha_{z2}} \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega = 1 \Rightarrow \\
&\Rightarrow C = \frac{1}{\int_{\alpha_{y1}}^{\alpha_{y2}} \int_{\alpha_{z1}}^{\alpha_{z2}} \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega}.
\end{aligned}$$

Наконец можно выразить формулу (A.5), представляющую пространственное распределение ионов, выходящих из одного точечного источника, имеющих произвольное угловое распределение $\eta(\alpha_y, \alpha_z)$.

$$p(x, y, z) = \frac{\iint_{\alpha_y, \alpha_z \in \Omega} G(x, y, z; \alpha_y, \alpha_z) \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega}{\iint_{\alpha_y, \alpha_z \in \Omega} \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega} \quad (\text{A.5})$$

Правильность формулы (A.5) можно легко оценить, если просто взять предполагаемое угловое распределение из предыдущего раздела $\eta(\alpha_y, \alpha_z) = \delta(\alpha_y) \delta(\alpha_z) / \sin(\alpha_y)$ и подставить в общую формулу (A.5), а потом сравнить полученное распределение после интегрирования $p(x, y, z) = G(x, y, z; 0, 0) = G(x, y, z)$ с распределением $G(x, y, z)$ в случае испускаемых ионов параллельно оси z .

В самом обобщенном случае неравномерного пространственного распределения источников ионов $n(\vec{r}_s) = n(x_s, y_s, z_s)$ можно вывести формулу, описывающую пространственное распределение термализованных ионов, испускаемых с угловым распределением $\eta(\alpha_y, \alpha_z)$ из пространственно

распределенных источников ионов внутри объема V_s

$$p(x, y, z) = \frac{\iiint_{x_s, y_s, z_s \in V_s} \iint_{\alpha_y, \alpha_z \in \Omega} G(\vec{r}' - \vec{r}_s; \alpha_y, \alpha_z) n(\vec{r}_s) \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega dV_s}{\iiint_{x_s, y_s, z_s \in V_s} \iint_{\alpha_y, \alpha_z \in \Omega} n(\vec{r}_s) \eta(\alpha_y, \alpha_z) d\Omega dV_s},$$

где для простоты формулы было использовано выражение $\vec{r}' = R_{zy}(\alpha_y, \alpha_z) \cdot \vec{r}$.

А.2.3 Распределение ионов, испускаемых изотропным точечным источником

В этом разделе аналитически будет выведено распределение ионов, испускаемых изотропно точечным источником, которое впоследствии будет использовано в качестве начального условия в следующем разделе данного приложения. Распределение ионов, генерируемое изотропным точечным источником, может быть получено как частный случай формулы (А.5), в случае когда $\eta(\alpha_y, \alpha_z) = 1$. В качестве примера на рисунке А.1 представлены объёмы торможения ионов, в которых термализуются 99% ионов с параметрами торможения $\bar{R}_{\parallel} = 5 \text{ mm}$, $\sigma_{\parallel} = 3 \text{ mm}$ и $\sigma_{\perp} = 1 \text{ mm}$, излучаемых изотропным точечным источником, помещённым в начало системы координат, что на самом деле представляет собой график формулы (А.4) в случае $\Delta\alpha_y = \Delta\alpha_z = \pi/4$ интервалов азимутальных и полярных углов.

Подставив $\eta(\alpha_y, \alpha_z) = 1$ для углового распределения в формулу (А.5) в сферических координатах можно записать нормированное распределение как

$$p(x, y, z) = \frac{e^{-\frac{r^2}{2\sigma_{\perp}^2}}}{4\pi (2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_{\perp}^2 \sigma_{\parallel}} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} e^{\left(\frac{z(\theta, \varphi, a_y, a_z)}{\sqrt{2}\sigma_{\perp}}\right)^2 - \left(\frac{z(\theta, \varphi, a_y, a_z) - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} d\Omega, \quad (\text{А.6})$$

где $d\Omega = \sin(a_y) da_z da_y$ и новая координата $z(\theta, \varphi, a_y, a_z) = (R_{zy}(\alpha_z, \alpha_y) \cdot \vec{r})^T \cdot \vec{k}$ после поворотов в сферических координатах имеет вид, заданный ниже.

$$z(\theta, \varphi, a_y, a_z) = r \{ \cos(\theta) \cos(a_y) - \cos(\varphi + a_z) \sin(\theta) \sin(a_y) \}. \quad (\text{А.7})$$

Выбор сферического представления координат довольно очевиден, поскольку r инвариантен до и после любых вращений и не участвует в двойном интегрировании. В следующем выводе до конца этого раздела

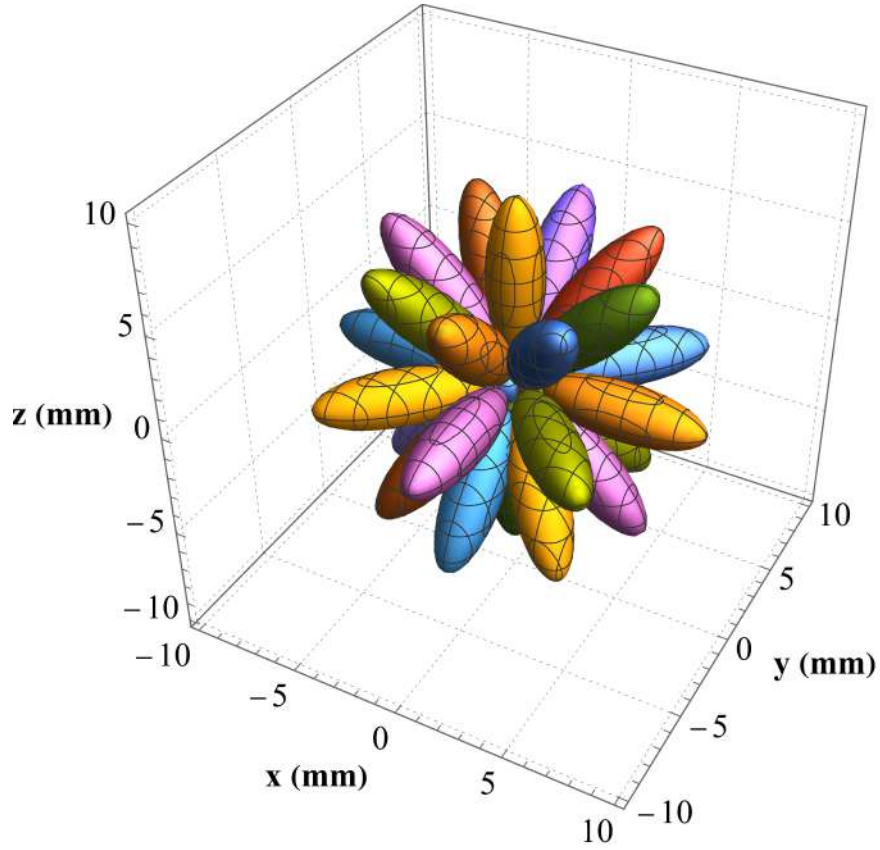


Рисунок А.1: Объёмы торможения ионов, в которых термализуются 99% ионов, излучаемых изотропным точечным источником

заменяемая координата z ($\theta, \varphi, a_y, a_z$) будет записываться просто как ζ . Взяв подынтегральное выражение $F(\zeta)$ из формулы (А.6) без синусоидальной функции, после некоторых простых алгебраических перестановок внутри экспоненциальной функции

$$F(\zeta) = e^{\left(\frac{\zeta}{\sqrt{2}\sigma_{\perp}}\right)^2 - \left(\frac{\zeta - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{2}\sigma_{\parallel}}\right)^2} = Ce^{A\zeta^2 + B\zeta} \quad (\text{А.8})$$

можно разложить функцию $F(\zeta)$ в ряд Тейлора

$$F(\zeta) = Ce^{A\zeta^2 + B\zeta} = C \sum_{i=0}^{\infty} \frac{A^i}{i!} \zeta^{2i} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{B^j}{j!} \zeta^j = C \sum_{i=0}^{\infty} \frac{A^i}{i!} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{B^j}{j!} \zeta^{2i+j},$$

где

$$\begin{cases} A = \frac{\sigma_{\parallel}^2 - \sigma_{\perp}^2}{2\sigma_{\parallel}^2\sigma_{\perp}^2} \\ B = \frac{\bar{R}_{\parallel}}{\sigma_{\parallel}^2} \\ C = e^{-\frac{\bar{R}_{\parallel}^2}{2\sigma_{\parallel}^2}} \end{cases} . \quad (\text{А.9})$$

После подстановки разложения Тейлора в формулу (А.6) и, обратив внимание на подынтегральную функцию,

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} F(\zeta) \sin(a_y) da_z da_y = C \sum_{i=0}^{\infty} \frac{A^i}{i!} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{B^j}{j!} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin(a_y) \zeta^{2i+j} da_z da_y, \quad (\text{A.10})$$

можно начать с решения двойного интеграла, начиная с переменной a_z . Выразив часть, зависящую только от переменной a_z , и используя формулу (А.7), получается

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} \zeta^{2i+j} da_z &= r^{2i+j} \int_0^{2\pi} \{\cos(\theta) \cos(a_y) - \cos(\varphi + a_z) \sin(\theta) \sin(a_y)\}^{2i+j} da_z = \\ &= r^{2i+j} \int_0^{2\pi} \{P + Q \cos(\varphi + a_z)\}^{2i+j} da_z = \\ &= r^{2i+j} \sum_{k=0}^{2i+j} \binom{2i+j}{k} P^{2i+j-k} Q^k \int_0^{2\pi} \cos^k(\varphi + a_z) da_z, \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

где

$$\begin{cases} P = \cos(\theta) \cos(a_y) \\ Q = -\sin(\theta) \sin(a_y) \end{cases}. \quad (\text{A.12})$$

Последний интеграл с косинусом в степени k

$$\int_0^{2\pi} \cos^k(\varphi + a_z) da_z = \sqrt{\pi} \frac{\left(1 + (-1)^k\right) \Gamma\left(\frac{1+k}{2}\right)}{\Gamma\left(1 + \frac{k}{2}\right)} = \left(1 + (-1)^k\right) \frac{k! \pi}{2^k \left(\frac{k}{2}\right)!^2}$$

имеет ненулевые решения только для чётных значений k . Подставляя последнее решение обратно в формулу (А.11) и посмотрев на сумму

$$\int_0^{2\pi} \zeta^{2i+j} da_z = r^{2i+j} \sum_{k=0}^{2i+j} \binom{2i+j}{k} P^{2i+j-k} Q^k \frac{k! \pi}{2^k \left(\frac{k}{2}\right)!^2} \left(1 + (-1)^k\right) \quad (\text{A.13})$$

можно сделать вывод, что все нечётные аргументы суммы будут равны нулю и не повлияют на сумму.

Чтобы подготовить выражение из формулы (А.13) для следующего интегрирования по a_y , будет произведена алгебраическая перестановка,

чтобы упростить будущую подынтегральную функцию, которая зависит от переменной a_y . Принимая во внимание, что только для четных значений k сумма имеет ненулевые аргументы, и выражая синус в Q из формулы (A.12) как косинус, а затем разлагая его с использованием биномиальной формулы

$$(\sin(a_y))^k = (1 - \cos^2(a_y))^{\frac{k}{2}} = \sum_{l=0}^{\frac{k}{2}} \binom{\frac{k}{2}}{l} (-\cos^2(a_y))^{\frac{k}{2}-l},$$

можно после подстановки обратно в формулу (A.13) начать со следующей операции интегрирования.

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} \zeta^{2i+j} da_z &= r^{2i+j} \sum_{k=0}^{2i+j} \binom{2i+j}{k} (\cos(\theta))^{2i+j-k} (-\sin(\theta))^k \dots \\ \dots \cdot \frac{k! \pi (1 + (-1)^k)}{2^k (\frac{k}{2})!^2} \sum_{l=0}^{\frac{k}{2}} \binom{\frac{k}{2}}{l} (-\cos^2(a_y))^{\frac{k}{2}-l} (\cos(a_y))^{2i+j-k} \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

Поскольку по формуле (A.10) необходимо провести ещё одно интегрирование, то, используя предыдущий результат, нужно вычислить интеграл только от двух последних аргументов, которые зависят от переменной a_y .

$$\begin{aligned} I &= \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \zeta^{2i+j} \sin(a_y) da_z da_y = \\ &= (\dots) \int_0^\pi (\cos(a_y))^{2i+j-k} (-\cos^2(a_y))^{\frac{k}{2}-l} \sin(a_y) da_y \\ &= (\dots) (-1)^{\frac{k}{2}-l+1} \int_0^\pi (\cos(a_y))^{2i+j-2l} d(\cos(a_y)) \\ &= (\dots) (-1)^{\frac{k}{2}-l+1} \frac{(-1)^{2i+j-2l+1} - 1}{2i+j-2l+1}. \end{aligned}$$

Анализируя результат последнего интегрирования, можно прийти к выводу, что только в случае чётных значений j интеграл имеет ненулевые значения.

$$\begin{aligned} I &= r^{2i+j} \sum_{k=0}^{2i+j} \binom{2i+j}{k} (\cos(\theta))^{2i+j-k} (-\sin(\theta))^k \frac{k! \pi (1 + (-1)^k)}{2^k (\frac{k}{2})!^2} \dots \\ \dots \cdot \sum_{l=0}^{\frac{k}{2}} \binom{\frac{k}{2}}{l} (-1)^{\frac{k}{2}-l+1} \frac{(-1)^{2i+j-2l+1} - 1}{2i+j-2l+1}. \end{aligned}$$

Вычисляя сумму в последней формуле

$$\begin{aligned} & \sum_{l=0}^{\frac{k}{2}} \binom{\frac{k}{2}}{l} (-1)^{\frac{k}{2}-l+1} \frac{(-1)^{2i+j-2l+1} - 1}{2i+j-2l+1} = \\ & = (-1)^{\frac{k}{2}+1} \left(\frac{k}{2}\right)! \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2} - \frac{2i+j+2}{2}\right)}{2\Gamma\left(\frac{1}{2} - \frac{2i+j-k}{2}\right)} \left(1 + (-1)^{2i+j}\right), \end{aligned}$$

и имея в виду, что

$$\Gamma\left(\frac{1}{2} - n\right) = \frac{(-4)^n n! \sqrt{\pi}}{(2n)!}$$

решение двойного интеграла принимает следующий вид.

$$I = \pi r^{2i+j} \left(\frac{1 + (-1)^{2i+j}}{2i+j+1} \right) \sum_{k=0}^{2i+j} \binom{\frac{2i+j}{2}}{\frac{k}{2}} (\cos(\theta))^{2i+j-k} (-\sin(\theta))^k \left(1 + (-1)^k\right)$$

Поскольку, как обсуждалось ранее, сумма имеет ненулевые значения для аргументов только в случае чётных значений для k и j , можно записать их как $k = 2q$ и $j = 2p$

$$\begin{aligned} \sum_{q=0}^{i+p} \binom{i+p}{q} (\cos(\theta))^{2(i+p-q)} (-\sin(\theta))^{2q} \left(1 + (-1)^{2q}\right) &= \\ &= 2 (\cos^2(\theta) + \sin^2(\theta))^{i+p} = 2, \end{aligned}$$

и, наконец, записать решение двойного интеграла как

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \zeta^{2i+j} \sin(a_y) da_z da_y = r^{2i+j} \frac{2\pi}{2i+j+1} \left(1 + (-1)^{2i+j}\right).$$

Подставив последнее решение для двойного интеграла в формулу (A.10), осталось решить только две операции суммирования.

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} F(\zeta) \sin(a_y) da_z da_y = C \sum_{i=0}^\infty \frac{A^i}{i!} \sum_{j=0}^\infty \frac{B^j}{j!} \left(\frac{2\pi}{2i+j+1} \right) \left(1 + (-1)^{2i+j}\right) r^{2i+j}$$

Для этой цели можно объединить аргумент r с постоянными A и B

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin(a_y) E(z) da_z da_y = C \sum_{i=0}^\infty \frac{(Ar^2)^i}{i!} \sum_{j=0}^\infty \frac{(Br)^j}{j!} \left(\frac{2\pi}{2i+j+1} \right) \left(1 + (-1)^{2i+j}\right)$$

и использовать формулу для неполной гамма-функции, приведенную ниже.

$$\Gamma(a, z_1, z_2) = z_2^a \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-z_2)^k}{(a+k)k!} - z_1^a \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-z_1)^k}{(a+k)k!}$$

Используя последнюю формулу, первую сумму можно выразить как $2\pi(-Br)^{-1-2i} \{\Gamma(1+2i, 0, -Br) - \Gamma(1+2i, 0, Br)\}$ и, используя интегральное определение неполной гамма-функции

$$\Gamma(a, z_1, z_2) = \int_{z_1}^{z_2} s^{a-1} e^{-s} ds$$

можно переписать решение суммы в вид показанный внизу.

$$\begin{aligned} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{(Br)^j}{j!} \left(\frac{2\pi}{2i+j+1} \right) (1 + (-1)^{2i+j}) &= -2\pi(-Br)^{-1-2i} \int_{-Br}^{Br} s^{2i} e^{-s} ds = \\ &= \frac{2\pi}{Br} \int_{-Br}^{Br} \left(-\frac{s}{Br} \right)^{2i} e^{-s} ds \end{aligned}$$

После подстановки решения первой суммы в формулу (A.10) решение для второй суммы выглядит довольно очевидным, если просто прокоммутировать сумму с интегральным оператором.

$$\begin{aligned} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} F(\zeta) \sin(a_y) da_z da_y &= C \sum_{i=0}^{\infty} \frac{(Ar^2)^i}{i!} \frac{2\pi}{Br} \int_{-Br}^{Br} \left(-\frac{s}{Br} \right)^{2i} e^{-s} ds = \\ &= C \frac{2\pi}{Br} \int_{-Br}^{Br} \left\{ \sum_{i=0}^{\infty} \frac{1}{i!} \left(-\frac{\sqrt{A}s}{B} \right)^{2i} \right\} e^{-s} ds = \\ &= C \frac{2\pi}{Br} \int_{-Br}^{Br} e^{\frac{A}{B^2}s^2} e^{-s} ds = \frac{C}{r} \sqrt{\frac{\pi^3}{A}} e^{-\frac{B^2}{4A}} \operatorname{erfi} \left(\frac{\sqrt{A}}{B}s - \frac{B}{2\sqrt{A}} \right) \Big|_{-Br}^{Br} = \\ &= \frac{C\pi^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{B^2}{4A}}}{r\sqrt{A}} \left(\operatorname{erfi} \left(\frac{2Ar+B}{2\sqrt{A}} \right) + \operatorname{erfi} \left(\frac{2Ar-B}{2\sqrt{A}} \right) \right) \end{aligned}$$

Наконец, подставив решение последней суммы обратно в исходную формулу (А.6) и используя формулы из (А.9), решение для распределения ионов изотропного точечного источника можно записать через формулу (А.15).

$$p(r) = \frac{e^{-\frac{r^2}{2\sigma_{\perp}^2} + \frac{1}{2}\left(\frac{\bar{R}_{\parallel}^2}{\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2}\right)}}{8\pi\sigma_{\perp}r\sqrt{\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2}} \cdot \dots \quad (\text{A.15})$$

$$\dots \cdot \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{(\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2)r + \sigma_{\perp}^2 \bar{R}_{\parallel}}{\sigma_{\perp}\sigma_{\parallel}\sqrt{2(\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2)}}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{(\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2)r - \sigma_{\perp}^2 \bar{R}_{\parallel}}{\sigma_{\perp}\sigma_{\parallel}\sqrt{2(\sigma_{\perp}^2 - \sigma_{\parallel}^2)}}\right) \right\}$$

Как и ожидалось, распределение, генерируемое изотропным источником, помещённым в начало системы координат, не зависит от азимутального и полярного угла. Решение сравнивалось с численным решением этого двойного интеграла в Wolfram Mathematica 12, и был сделан вывод, что они полностью согласуются.

А.3 Аналитический вывод подгоночной функции

Аналитический вывод подгоночной функции для измерения времени эвакуации требует решения уравнения диффузии с конвекцией, заданного формулой (1.7)

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\Delta c - \nabla(\vec{v}c) - \lambda c + g, \quad (\text{A.16})$$

где c — концентрация ионов, D — коэффициент диффузии, $\vec{v}$ — вектор скорости ионов, λ — постоянная распада радиоактивных ионов, а g — скорость образования ионов в единице объёма. Выражая данную задачу в цилиндрической симметрии, которая приблизительно моделирует геометрию газовой ячейки MARA-LEB, и предполагая постоянную среднюю скорость потока $\vec{v} = \langle v_z \rangle \hat{z}$ вдоль оси z , дифференциальное уравнение принимает вид, показанный ниже.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial c}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) - \langle v_z \rangle \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda c + g \quad (\text{A.17})$$

Поскольку удобно, в математическом смысле, чтобы подгоночная функция имела как можно меньше параметров и выражалась с помощью основных

известных функций, дифференциальное уравнение решалось в одномерном случае в направлении z скорости потока.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - \langle v_z \rangle \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda c + g$$

Чтобы определить скорость образования ионов в единице объёма $g(z, t)$ в одном пространственном измерении,

$$g(r, t) = A(0) e^{-\lambda_0 t} p(r),$$

где $A(0)$ и λ_0 — начальная активность источника и постоянная распада соответственно, $p(r)$ — пространственное распределение ионов из изотропного точечного источника, необходимо выразить $p(r)$ в цилиндрических координатах и нормировать функцию по координатам ρ и φ , как показано ниже.

$$g(z, t) = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} g(r, t) \rho d\varphi d\rho = A(0) e^{-\lambda_0 t} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} p(\rho, \varphi, z) \rho d\varphi d\rho \quad (\text{A.18})$$

Решение последнего интеграла по координате ρ не может быть выражено через известные аналитические функции, а только в виде бесконечного ряда, которое не полезно для использования в виде подгоночной функции. Так как в данном случае $\sigma_\perp \approx \sigma_\parallel$ при торможении ионов с средней энергии 102 кэВ в гелии при давлении 200 мбар можно использовать приблизительное выражение для $g(z, t)$, заданное формулой (A.19), которое было вычислено как предел $\sigma_\perp \rightarrow \sigma_\parallel$ формулы (A.15), нормированной по координатам ρ и φ .

$$\begin{aligned} g(z, t) &= \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{4\bar{R}_\parallel} \left(\operatorname{erf} \left[\frac{\bar{R}_\parallel - z}{\sqrt{2}\sigma_\parallel} \right] - \operatorname{erf} \left[\frac{\bar{R}_\parallel + z}{\sqrt{2}\sigma_\parallel} \right] \right) = \\ &= \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{2\sqrt{2\pi}\bar{R}_\parallel\sigma_\parallel} \int_{-\bar{R}_\parallel}^{\bar{R}_\parallel} \exp \left[-\frac{(z-s)^2}{2\sigma_\parallel^2} \right] ds. \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

Решение уравнения диффузии-конвекции даже с использованием упрощённой формулы (A.19) не дало простого аналитического решения, поскольку сначала нужно было решить дифференциальное уравнение в случае интервала времени, когда генерируются ионы, что соответствует экспериментальному времени испускания ионов в газ, а затем снова

использовать это решение в качестве начального условия в уравнении диффузии-конвекции и решить его без члена $g(z, t)$, который соответствовал бы времени переноса ионов сразу после их высвобождения. Чтобы обойти такую трудность, первый шаг был опущен и дифференциальное уравнение было решено, предполагая, что ионы образуются мгновенно и затем транспортируются к детектору. В этом случае мы можем использовать $g(z, 0)$ из формулы (A.19) в качестве начального условия при решении дифференциального уравнения.

Самый простой способ решить это уравнение — найти его преобразование Фурье

$$\mathcal{F} \left[\frac{\partial}{\partial t} c \right] = D \mathcal{F} \left[\frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right] - \langle v_z \rangle \mathcal{F} \left[\frac{\partial c}{\partial z} \right] - \lambda \mathcal{F} [c],$$

которое принимает вид

$$\frac{\partial \hat{c}}{\partial t} = \left(D (2\pi i \xi)^2 - \langle v_z \rangle (2\pi i \xi) - \lambda \right) \hat{c}, \quad (\text{A.20})$$

где $\hat{c}$ — преобразование Фурье c , определяемое формулой

$$\hat{c}(\xi, t) = \mathcal{F}[c(z, t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} c(z, t) e^{-2\pi i z \xi} d\xi.$$

Решение уравнения, выраженного формулой (A.20), имеет вид

$$\hat{c}(\xi, t) = \hat{c}(\xi, 0) \exp \left[- \left(D (2\pi \xi)^2 + \langle v_z \rangle (2\pi i \xi) + \lambda \right) t \right], \quad (\text{A.21})$$

где

$$\hat{c}(\xi, 0) = \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{2\sqrt{2\pi \bar{R}_{\parallel}} \sigma_{\parallel}} \int_{-\bar{R}_{\parallel}}^{\bar{R}_{\parallel}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{z-s}{\sqrt{2}\sigma}\right)^2} e^{-2\pi i z \xi} dz ds = \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{2\bar{R}_{\parallel}} \int_{-\bar{R}_{\parallel}}^{\bar{R}_{\parallel}} e^{-2\pi i s \xi - 2\pi^2 \sigma_{\parallel}^2 \xi^2} ds$$

задано преобразованием Фурье начального условия $\hat{c}(\xi, 0) = \mathcal{F}[c(z, 0)]$.

Подставив начальное условие в формулу (A.21)

$$\hat{c}(\xi, t) = \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{2\bar{R}_{\parallel}} \int_{-\bar{R}_{\parallel}}^{\bar{R}_{\parallel}} \exp \left[- \left(Dt + \frac{\sigma_{\parallel}^2}{2} \right) 4\pi^2 \xi^2 - (\langle v_z \rangle t + s) 2\pi i \xi - \lambda t \right] ds$$

и сделав обратное преобразование Фурье

$$c(z, t) = \mathcal{F}^{-1} [\hat{c}(\xi, t)] = \frac{A(0) e^{-\lambda_0 t}}{2\sqrt{2\pi R_{\parallel}}} \int_{-\bar{R}_{\parallel}}^{\bar{R}_{\parallel}} \frac{e^{-\lambda t - \left(\frac{s + \langle v_z \rangle t - z}{\sqrt{4Dt + 2\sigma_{\parallel}^2}} \right)^2}}{\sqrt{2Dt + \sigma_{\parallel}^2}} ds$$

можно получить решение, указанное ниже.

$$c(z, t) = \frac{A(0)}{4\bar{R}_{\parallel}} e^{-(\lambda + \lambda_0)t} \left(\operatorname{erf} \left[\frac{\langle v_z \rangle t - z + \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{4Dt + 2\sigma_{\parallel}^2}} \right] - \operatorname{erf} \left[\frac{\langle v_z \rangle t - z - \bar{R}_{\parallel}}{\sqrt{4Dt + 2\sigma_{\parallel}^2}} \right] \right)$$

Учитывая тот факт, что временной профиль эвакуированных ионов $c(z_0, t)$ будет получен в определенной позиции детектора z_0 , можно, наконец, вывести подгоночную функцию на основе последнего результата.

$$F(t) = A e^{-\lambda t} \left(\operatorname{erf} \left[\frac{at + b}{\sqrt{t + f}} \right] - \operatorname{erf} \left[\frac{at + c}{\sqrt{t + f}} \right] \right).$$

После использования этой функции для аппроксимации спектров было показано, что экспоненциальный член вносит незначительный вклад в подгоночную функцию. Чтобы упростить и избавить подгоночную функцию от присутствия экспоненты и снова ввести возможность асимметрии в подгоночную функции, она была выражена в вид, указанный ниже.

$$F(t) = A \left(\operatorname{erf} \left[\frac{a_1 t + b}{\sqrt{t + f}} \right] - \operatorname{erf} \left[\frac{a_2 t + c}{\sqrt{t + f}} \right] \right). \quad (\text{A.22})$$

В этой функции подгонки оба параметра b и c были выражены через два новых параметра t_0 и Δt , которые, как показано на рисунке 3.8, представляют момент времени, когда подгоночная функция достигает количества отсчетов kF_{max} , где $k \in (0, 1)$ — параметр, выбранный по собственному усмотрению, а Δt — время, необходимое для того, чтобы отсчёты в спектре вернулись к значению kF_{max} , которое произойдет при $t_0 + \Delta t$.