

V. M. ビャーコフ・S. V. ステパノフ 放射線化学の基礎 –放射線分解初期過程– 第3回

産業技術総合研究所
大阪大学

小林 慶規*
岡 壽崇

Contents of the lecture note by Prof. V. M. Byakov and Dr. S. V. Stepanov (Institute of Theoretical and Experimental Physics, Russia) are described in a series of articles. The third article concerns the track structure of fast electrons. Translation into the Japanese language is based on the arrangement between the Japanese Society of Radiation Chemistry and National Research Nuclear University “MEPhI”, The Russian Federation.

Keywords: radiation chemistry, radiolysis, early process

ロシア連邦理論実験物理学研究所の V. M. ビャーコフ教授, S. V. ステパノフ博士の講義録を連載講座として紹介する。連載第3回は, 高速電子のトラック構造について説明する。(全5回の連載を予定)

1 高速電子のトラック構造

1.1 スパー, プロップ, イオン化円柱構造

前回導いた以下の式

$$\frac{(dW/dx)|_{\delta}}{dW/dx} = \frac{\ln(2m_e v^2 / \epsilon_{\delta})}{\ln(2m_e v^2 / \langle I \rangle)} \approx \frac{1}{2}$$

から, 媒質に入射した高速電子は, 自身がもつ初期運動エネルギーの約半分を比較的小さい正面衝突によって失い, 1 keV 以上の非常に大きなエネルギーの電子をたたき出す。δ 電子と呼ばれるこれらの二次電子は,

一次電子から分かれた「枝状」の軌跡を描く。電子の運動エネルギーの残りの半分は, 分子との非常に多くのすべるような衝突に使われる。このとき, 1 回の衝突で失われるエネルギーの平均は, $W_{sp} \approx K \approx 30\text{--}100\text{ eV}$ であり, その内部に数個(1–5 個)のイオン・電子対を含む複数の球状のナノ領域が生成する。これらのコンパクトなナノ領域は, スパーと呼ばれている。スパーの半径 a_{sp} は, 熱化過程が終了した後の「スパー電子」の空間分布の分散の平方根で与えられ, その大きさは非電離電子のエネルギー損失から見積もることができる。液体の水では, $a_{sp} \approx 30\text{ \AA}$ である。一次粒子エネルギー W が大きい場合(より正確には, $W > W_{cyl}$ の場合。 W_{cyl} はイオン化による円柱構造の形成が始まるエネルギーで, $W_{cyl} \approx 3\text{ keV}$), 2 つの連続的なイオン化事象の間の平均距離 $l_i(W)$ はスパーの大きさ $2a_{sp}$ より大きくなる(図1)。このため, 互いに十分離れたスパー群が形成される。また, $l_i(W)$ が電子の輸送距離 $l_{tr}(W)$ より小さいことから, 高エネルギー電子の運動はほぼ直線的となる。輸送距離 $l_{tr}(W)$ は, 電子がその速度ベクトルの方向を 90° 変えるまでに行うある特定の向きの平均的な変位である。

より低い電子エネルギー ($W_{bl} < W < W_{cyl}$) では, $l_i(W) < 2a_{sp} < l_{tr}(W)$ となり, スパーは円柱形のトラックを形成して, 重なるようになる。さらに電子のエネルギーが低下して, プロップの形成エネルギー W_{bl} ($\sim 500\text{ eV}$) より低くなると, 電子の運動は拡散的になる(定量的な考察はあとで行う)。トラックの末端部分であるプロップでは, 弾性衝突および周囲の分子のイオン化により頻りに電子の運動量の向きが変化し, イオン化密度が最も高くなる。一つのイオン・電子対の形成のための平均エネルギーを $W_{iep} \approx 16\text{--}22\text{ eV}$ とすれば, プロップの形成エネルギー $W_{bl} \sim 500\text{ eV}$ をこの値で割ることにより, プロップの中の一般的なイオン・電子対の数 n_0 が $n_0 = W_{bl}/W_{iep} \approx 30$ と求められ

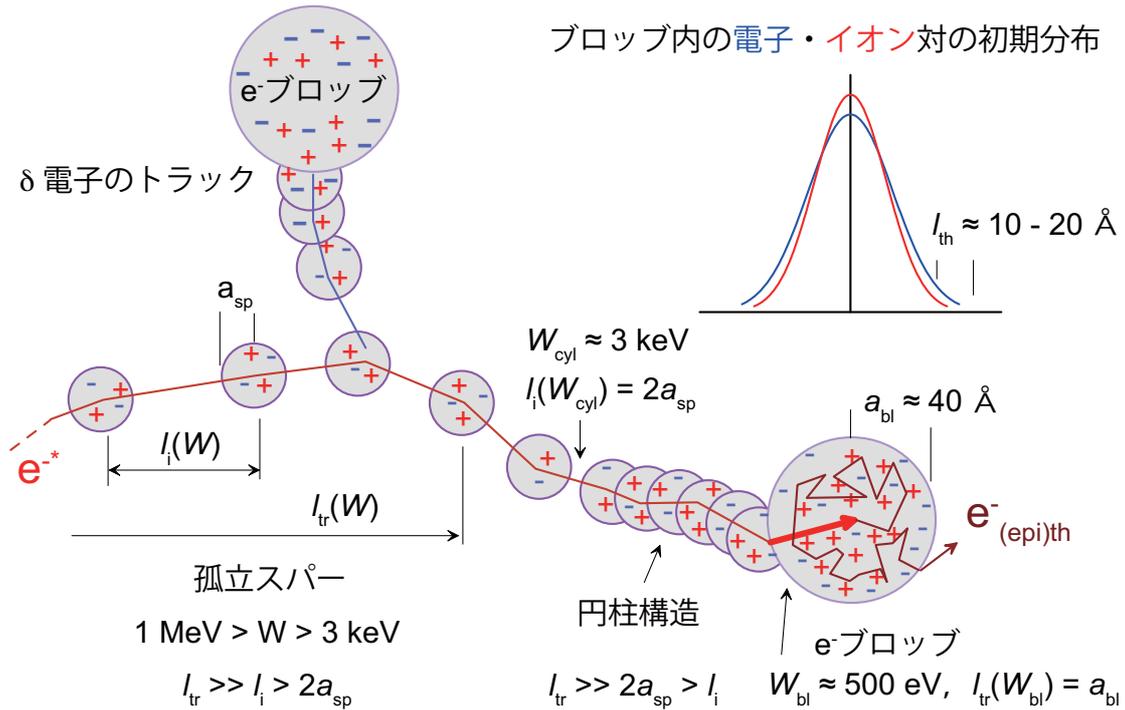


図1 高速電子トラックの模式図．水中での初期エネルギー 1 MeV 程度の電子の典型的な飛跡は約 1 mm であるが，トラックの形成時間は大体 10 ps である．

る．ブロップの中のイオン・電子対は，半径 a_{bl} の球に含まれていると考えることができる．最終的に電子のエネルギーがイオン化のしきい値より低くなると，エネルギー損失速度は二けた低下する．関連するパラメータの典型的な数値を得るために，次のセクションで我々は $l_i(W)$ と $l_{tr}(W)$ の見積もりを行う．

いろいろなタイプの放射線に対して，スパー，ブロップ，短いトラックの形成に使われるエネルギーの相対的な分布は異なっている． ^{60}Co の γ 線照射の場合（電子の生成に使われる平均エネルギーは 0.44 MeV である），24% のエネルギーが短い円柱形トラックの形成で失われ，スパーとブロップの形成には，それぞれ，64% および 12% のエネルギーが消費される（図 2）．このように，50 keV 以上のエネルギーをもつ電子によって作られるイオンの大部分は，円柱形トラックではなく，孤立した球状のスパーとブロップ内で生成する．

重い粒子（反跳陽子， α 粒子，分裂片）のトラックは，高速電子のトラックと同様の構造的な要素で特徴づけられる．重い粒子の衝突で失われる平均エネルギーは，ずっと大きなイオン化能力をもつ高速電子の場合とほぼ同じである．このため，重い粒子のトラッ

クの円柱形部分に生じるイオンの量は球状のスパーとブロップ内の陽イオンの数よりずっと多くなる．約 1 MeV の高速電子のトラックでは大部分（80%）のイオンがスパー内で生成するが， α 粒子のトラックでは状況は逆になる．十分によい近似で， α 粒子と分裂片のトラックは連続的な「円柱」とみなすことができ，これに沿って，イオンの密度はゆるやかに変化する．

計算結果によれば，重い粒子のトラックは，正イオンで形成された半径約 1.5 nm のコアとその周りを取りまく二次電子で形成された密度のずっと低い殻で構成されている．非常にイオン化を起こしやすい粒子の全エネルギーの約 70% はトラックのコアで吸収される．分裂片のトラックは同軸円筒（コアと殻）を思い出させるが，イオン化能力の小さい粒子のトラックは，非常に複雑な形状となる．

1.2 分子との弾性散乱および輸送距離

質量 m の荷電粒子が質量 M の分子からなる媒質中を高速で運動していて，分子と弾性散乱衝突するとしよう．一回の衝突で荷電粒子が失うエネルギーは，散

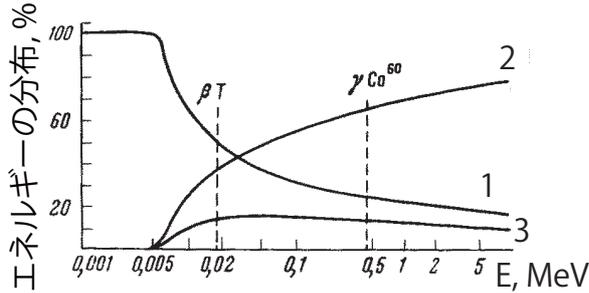


図2 短いトラック(1), スパー(2), プロップ(3)に与えられるエネルギーの割合(パーセント).¹⁾

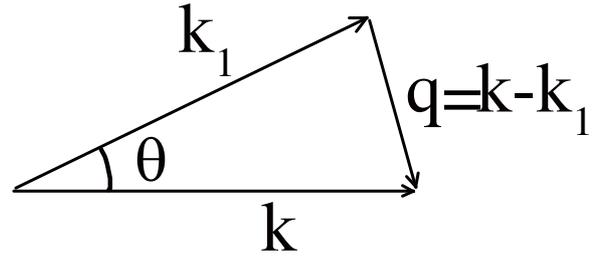


図3 粒子の衝突過程の運動学. $\hbar\mathbf{k}$ と $\hbar\mathbf{k}_1$ は衝突前と衝突後の粒子の運動量. $\hbar\mathbf{k} - \hbar\mathbf{k}_1$ は渡される運動量. θ は散乱角.

乱角について平均すれば, $2mW/M$ となる^{*2}. さらに, 弾性衝突による線エネルギー損失は,

$$-\frac{dW}{dx}\Big|_{\text{el}} = \frac{2m}{M} W \sigma_{\text{tr}}(W) n_0 \quad (1)$$

となる. ここで, $\sigma_{\text{tr}}(W)$ は, 運動量移行断面積, すなわち, 輸送断面積である. σ_{tr} は分子の大きさより大きくなることはないので, 弾性損失の大きさはたかだか $\approx \frac{m}{M} \frac{W}{R_{\text{WS}}}$ である.

$$-\frac{dW}{dx}\Big|_{\text{el}} \leq \frac{m}{M} \frac{W}{R_{\text{WS}}}$$

ここで, R_{WS} は分子のウィグナー・サイツセル半径(水では, $R_{\text{WS}}=1.92 \text{ \AA}$) で, 相当する体積 $1/n = 4\pi R_{\text{WS}}^3/3$ は一つの分子が占める平均体積を与える.

$\frac{dW}{dx}\Big|_{\text{el}}$ を計算するためには, 最初に輸送距離 $l_{\text{tr}}(W) = 1/n\sigma_{\text{tr}}(W)$ を求める必要がある. 分子に対する散乱粒子の輸送断面積 σ_{tr} のエネルギー依存性を求めるために, 分子を同じ Z 個の電子を含む原子とみなして, ボルン近似を使うことにする.

エネルギー $W = \hbar^2 k^2/2m$ と運動量 $\hbar\mathbf{k}$ をもつ粒子の運動量が, 弾性散乱によって, $-\hbar\mathbf{k}_1 = -\hbar\mathbf{k} + \hbar\mathbf{q}$ になったとすれば, $\mathbf{k} = \mathbf{k}_1$ であるので, 分子に与えられた運動量は $\mathbf{q} = 2\mathbf{k} \sin(\theta/2)$ である(図3). ボルン近似では, 散乱強度は飛行する粒子と媒質原子の間の相互作用エネルギー $U(\mathbf{r})$ のフーリエ変換で与えられる.

^{*2} 散乱角 θ で平均化する前のエネルギー損失は, $\frac{4mW}{M}(1 - \cos \theta)$ で与えられる.

$$f_{\text{B}}(\mathbf{q}) = -\frac{m_e}{2\pi\hbar^2} \int U(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} d^3r, \quad U(\mathbf{r}) = \int \frac{e\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^3r' \quad (2)$$

ここで, $\rho(\mathbf{r}) = Ze\delta(\mathbf{r}') - \rho_e(\mathbf{r}')$ は原子内の電荷密度分布, $\rho_e(\mathbf{r}')$ は原子内の電子密度である. ポテンシャル $U(\mathbf{r})$ を振幅の式に代入すると, 次の関係を使うことにより, \mathbf{r} についての積分ができる.

$$\int \frac{\exp[-i\mathbf{q}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')] }{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^3r = \frac{4\pi}{q^2}$$

こうすると, $f_{\text{B}}(\mathbf{q})$ を原子の電荷密度のフーリエ変換を使って次のように表すことができる.

$$f_{\text{B}}(\mathbf{q}) = -\frac{2m_e}{\hbar^2} \frac{\rho(\mathbf{q})}{q^2}, \quad \rho(\mathbf{q}) = \int e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \rho(\mathbf{r}) d^3r \quad (3)$$

a を原子の特徴的な大きさとしよう. q の大きい場合と小さい場合の f_{B} の漸近式は, それぞれ, e^{-iqr} を $\mathbf{q}\mathbf{r}$ の級数で展開した式および速く振動する積分 $\int e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \rho_e(\mathbf{r}) d^3r$ を無視した式から得られる.

$$\begin{aligned} f_{\text{B}}(q \ll 1/a) &= -\frac{m}{m_e} \frac{\langle r^2 \rangle}{3a_{\text{B}}} \left(1 - \frac{q^2 \langle r^4 \rangle}{20 \langle r^2 \rangle} \right) \\ f_{\text{B}}(q \gg 1/a) &= \frac{m}{m_e} \frac{2Z}{q^2 a_{\text{B}}} = \frac{Z a_{\text{B}} R_{\text{y}}}{2W \sin^2(\theta/2)} \end{aligned} \quad (4)$$

ここで, $\langle r^n \rangle = \int d^3r \cdot r^n \rho(\mathbf{r})$ である.

角度 θ_* = $\frac{1}{k} \sqrt{\frac{20 \langle r^2 \rangle}{\langle r^4 \rangle}}$ の大きさによって, 二つの場合が生じる. $\theta < \theta_*$ では, 一次粒子は, 基本的に電子によって散乱され, 大きな角度 $\theta > \theta_*$ では, 原子核によりラザフォード散乱される. ボルン近似が適用できるためには, 角度 $\theta_* \propto (ka)^{-1}$ が小さい必要がある. こ

での目的には、大きな角度と小さな角度での散乱式の和をとれば十分である。

$$\begin{aligned} \sigma_{tr}(W) &= \int |f_B(\theta)|^2 (1 - \cos \theta) 2\pi \sin \theta d\theta \\ &\approx \int_0^{\theta_*} |f_B(\theta)|^2 (1 - \cos \theta) 2\pi \sin \theta d\theta \\ &\quad + \int_{\theta_*}^{\pi} |f_B(\theta)|^2 (1 - \cos \theta) 2\pi \sin \theta d\theta \\ &= \pi |f_B(0)|^2 (1 - 2 \cos \theta_* + \cos^2 \theta_*) \\ &\quad - 4\pi \left(\frac{Z a_B R y}{W} \right)^2 \ln \sin \frac{\theta_*}{2} \end{aligned} \quad (5)$$

体積 $4\pi a^3/3$ の原子内で電子の密度分布が均一であると考えれば、 $\langle r^2 \rangle = 3Za^2/5$, $\langle r^4 \rangle = 3Za^4/7$ なので、

$$|f_B(0)|^2 = \frac{Z^2 a^4 m^2}{25 a_B^2 m_e^2} \quad \text{ただし,} \quad \theta_* = \frac{a_B}{a} \sqrt{\frac{28 R y m_e}{W m}}$$

となる。角度 θ_* が小さいことを考慮して、 θ_* の展開式で主要項だけを残すと、

$$\sigma_{tr}(W) \approx 2\pi a_B^2 Z^2 \left(\frac{R y}{W} \right)^2 \left[\frac{98}{25} + \ln \left(\frac{a^2 W m}{7 a_B^2 R y m_e} \right) \right] \quad (6)$$

を得る^{*3}。

l_{tr} の W 依存性は、1 keV 以下では、主として電子による小角弾性散乱によって決められる。より高いエネルギーでは、原子核によるラザフォード散乱が優勢となる。輸送断面積がわかれば、弾性衝突の線エネルギー損失と輸送距離

$$l_{tr}(W) = \frac{1}{n\sigma_{tr}(W)} \quad (7)$$

を求めることができる。

l_{tr} のエネルギー依存性が図4に示されている。低エネルギー領域 (< 100 eV) では、 σ_{tr} は分子の幾何学的な大きさよりわずかに大きいだけである。この場合、輸送距離は大きさ R_{WS} に制限される(図4)。粒子波のドブロイ波長 $\lambda = \hbar/p = \hbar/\sqrt{2mW} = a_B \sqrt{Ry/W}$ が R_{WS} より大きくなると思われるさらに低いエネルギー (< 1 eV) では、 l_{tr} は λ に等しいとみなせる。

1.3 ブロップパラメータの決定

電子は、エネルギーが低下して 1 keV を下回るようになると、より強く散乱されるようになり、その運動

^{*3} トーマス・フェルミのモデルによれば $\langle r^n \rangle \propto Z^{1-n/3}$ となるが、これを用いても、 σ_{tr} の主要項は $\sigma_{tr} \propto Z^2$ で変わらない。

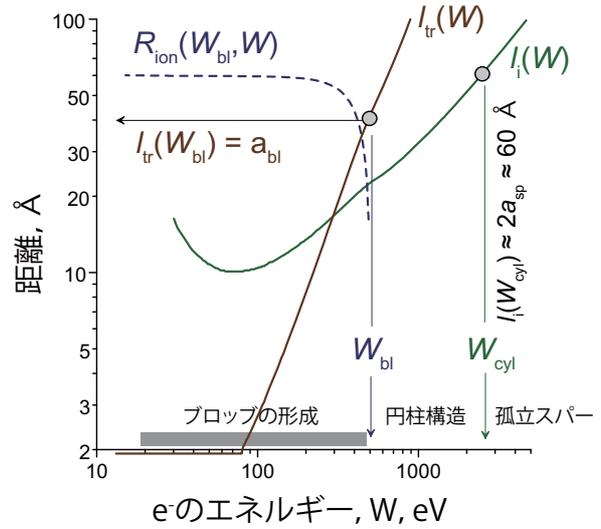


図4 液体の水におけるスパー形成に導くイオン化事象間の $l_i(W) = \frac{W_{sp}}{|-dW/dx|_{ion}}$, 輸送距離 $l_{tr}(W)$, 減速過程における陽電子の空間変位 $R_{ion}(W_{bl}, W)$ の散乱電子エネルギー W 依存性。ここでは、 $W_{sp} = 40$ eV であり、これは二つのイオン・電子対の形成に相当する。この図は、ブロップパラメータ W_{bl} と a_{bl} の関係 $l_{tr}(W_{bl}) = a_{bl}$, $R_{ion}^2 = 2a_{bl}^2$ での方程式の解を示している。

は拡散の特徴をもつようになる。このような状況は、電子がイオン化を起こしてから次のイオン化までに運動する平均距離が輸送距離 l_{tr} より小さくなったときに出現する。

今後のために、自由走行距離 $l_S = 1/n\sigma_S$ を導く必要がある。ここで、 σ_S は電子の原子による散乱の全断面積である。(5)の結果を用いて、 σ_S を近似的に計算すると

$$\begin{aligned} \sigma_S(W) &= 2\pi |f_B(0)|^2 (1 - \cos \theta_*) \\ &\quad + \pi \left(\frac{Z a_B R y}{W} \right)^2 \left(\frac{1}{\sin^2(\theta_*/2)} - 1 \right) \end{aligned} \quad (8)$$

となる。定義から、 l_{tr} と l_S の間には、 $l_{tr} = l_S \sigma_S / \sigma_{tr}$ という関係がある。しかし、この関係を純粋に幾何学的な考察から得ることは、非等方的な散乱における輸送距離の物理的な意味をはっきりさせる上で有益である。

粒子が軸 z に沿って運動していて、距離 l_S だけ運動したのち、角度 θ_1 および ϕ_1 で散乱されるものとしよう(図5の平面は方位角がゼロになるように選ばれている)。散乱角が θ_2 および ϕ_2 である二回目の

散乱ののち、粒子は図の平面外に飛び出す。粒子自身の最初の運動方向における平均変位 l_{tr} を計算しよう。この変位が、点 0 と 1 の間では、 l_s に等しく、区間 1-2 では、 $l_s \cos \theta_1$ に等しいことは明らかである。区間 2-3 では、 $l_s \cos \alpha$ となる。 $\cos \alpha$ は、立体幾何学で知られた三角角の余弦定理から求めることができ $l_s \cos \alpha = l_s(\cos \theta_1 \cos \theta_2 - \sin \theta_2 \cos \phi_2 \sin \theta_1)$ となる。二番目の項の前の符号は角度 ϕ_2 をどこからとるかによってのみ決まる。等方的な媒質でそれぞれの散乱が先行する散乱に影響されないこととみなせば、方位角 (ϕ_1, ϕ_2, \dots) の分布は一様となるはずである。したがって、 ϕ_2 についての平均化により、 $\cos \phi_2$ を含む二番目の項はなくなる。こうして、二回の「衝突」後の ϕ_1 と ϕ_2 について平均化された z 軸方向の変位は

$$l_s + l_s \cos \theta_1 + l_s \cos \theta_1 \cos \theta_2 \quad (9)$$

となる。

区間 3-4 の l_{tr} への寄与を計算するには、軸 z を点 2 を通るように平行移動し、さらに、 z 軸の回りに図を回転させ、区間 2-3 が図の平面上にくるようにする必要がある。こうして得られる区間 3-4 の l_{tr} に対する寄与を ϕ_3 について平均化すると、 $l_s \cos \alpha \cos \theta_3$ になり、さらに、 α を角度 θ_1 と θ_2 に変換し θ_3 について平均化すると、 $l_s \cos \theta_1 \cos \theta_2 \cos \theta_3$ となるのが容易にわかる。

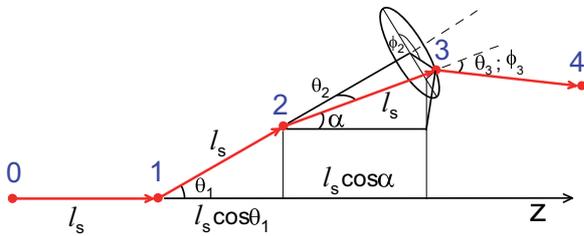


図 5 最初の散乱事象後の粒子の運動の軌跡。

このようにして得られる式において、すべての衝突が等価であるとみなして (つまり、 $\overline{\cos \theta_i} \equiv \overline{\cos \theta}$ 。上につけた線は角度の重み関数 $|f_B(\theta)|^2$ による平均を意味する。(5) 参照)), すべての角 θ_i について平均化すると

$$l_{tr} = l_s(1 + \overline{\cos \theta} + \overline{(\cos \theta)^2} + \dots) = \frac{l_s}{1 - \overline{\cos \theta}} \equiv l_s \cdot \frac{\sigma_S}{\sigma_{tr}} \quad (10)$$

となる。これから、輸送距離は無限回の散乱後の粒子の最初の速度方向に沿った変位であることがわかる。しかしながら、粒子の速度ベクトルの方向の無秩序化

は、最初の n 回程度の衝突で事実上達成されている^{*4}。

こうして、もし粒子が数回の散乱の結果およそ l_{tr} だけ変位したならば、その速度の方向はばらばらになる。つまり、 l_{tr} は粒子の拡散係数に関する有効自由走行距離である。実際 k 回のこのような一連の衝突ののち、平均自乗変位は kl_{tr}^2 となる。粒子の運動を通常の拡散の式で書き表すことができるとすれば、平均自乗変位は、 $6Dt$ となる。ここで、 $t = k\tau \approx kl_{tr}/v$ で、 τ は減速中の粒子の速度 v の方向をばらばらにする二つの連続した「衝突」の間の平均時間である。したがって、

$$D(W) \approx l_{tr}v/6$$

これから得られる次の式

$$d(r^2) = 6Ddt = l_{tr}vdt = l_{tr}dx = l_{tr} \frac{dW}{|dW/dx|_{ion}} \quad (11)$$

を最初のエネルギー W_i から最後のエネルギー W_f まで積分すれば、粒子がエネルギー W_i から W_f まで減速される際の平均自乗空間変位 (R_{ion}^2) が次のように表せる。

$$R_{ion}^2(W_i, W_f) = \int_{W_f}^{W_i} l_{tr}(W) \frac{dW}{|dW/dx|_{ion}} \quad (12)$$

この段階で、我々はより厳密に末端ブロップを定義し、それによって、ブロップ形成に使われるエネルギー W_{bl} とその「半径」 a_{bl} を見積もることができる。ブロップがイオン化の円柱構造のあとで始まるトラックの末端部分の構造的な要素であることを思い出そう (図 6)。ブロップは球対称なイオン・電子対の空間分布で特徴づけられ、その特徴的な大きさは (13)–(16) で決定される (ブロップ形成前の電離粒子の熱化段階は関係しない)。ブロップを形成する電子のエネルギーを W_{bl} としよう。このとき、電子はブロップの境界にあって、その運動量はブロップの中心を向いている。この瞬間 ($W_i = W_{bl}$) からイオン化による減速の終わ

*4 n は例えば次の条件から見積もることができる。散乱角の値が独立でばらばらであるとみなせば、 n 回の衝突後に生じる不確定性 δl_{tr} (l_{tr} の分散の平方根) は、(10) によれば、 $\delta l_{tr} = l_s(1 + 2x + \dots + nx^{n-1})\delta x = l_s \frac{1 - (n+1)x^n + nx^{n+1}}{(1-x)^2} \delta x \approx l_s \frac{\delta x}{(1-x)^2}$ となる。ここで、 $x = \overline{\cos \theta}$ 、 $\delta x = \sqrt{\overline{\cos^2 \theta} - (\overline{\cos \theta})^2}$ である ($\overline{\cos^2 \theta}$ の大きさは、輸送断面積の計算と同じようにして求めることができる)。(n+1) 番目とその後のすべての衝突からの l_{tr} への寄与 δl_{tr} を同一視すれば、 $l_s x^{n+1}(1+x+\dots) = l_s \frac{x^{n+1}}{1-x}$ なので、 n についての次の関係を得ることができる。 $\frac{\delta x}{(1-x)^2} = \frac{x^{n+1}}{1-x}$ 、つまり $n = \frac{\ln[\delta x/(1-x)]}{\ln x} - 1$ 。

り ($W_f \approx Ry$) までの間の電子の空間変位 $R_{ion}(W_{bl}, Ry)$ は (12) によって与えられる。

左上: プロブ形成の開始 $W = W_{bl}$
 左下: 円柱構造 $l_{tr} > 2a_{sp} > l_i$
 中央下: 末端プロブ $a_{bl} > l_i, l_{tr}$
 右下: 非電離電子 $W < Ry$

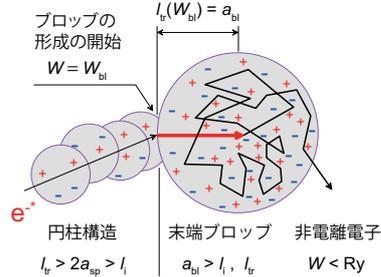


図6 プロブの模式的な表示. 一次電子の運動はエネルギーに依存する「ジャンプ」長 $l_{tr}(W)$ をもつ偶然的な迷走である. また, この図は, プロブパラメータを決定する (13) と (16) の結論を説明している.

さらに, プロブの球対称の条件を次のように利用することができる. プロブの形成の開始時には, 電子の速度はある決まった方向を向いている. このような電子の輸送距離を $l_{tr}(W_{bl})$ とすれば, $l_{tr}(W_{bl})$ だけ飛躍したのち, 電子の速度の方向はばらばらになる. このときのエネルギーを $W_{bl} - \Delta$ としよう. この時点から, 最初の電子の等方的な拡散が始まるとみなすことができる. もし, 続いて起こる (球対称の) 拡散の「にじみ」の途中でその空間分布関数が $l_{tr}(W_{bl})$ の一部をうめつくすならば, 電子の空間分布は球対称になるだろう. 最初の電子のエネルギーが十分大きい場合は, このようにならないことは明らかである. このようにならない電子の最大エネルギーを我々はプロブ形成エネルギー W_{bl} と呼ぶ. (12) を考慮して, W_{bl} を決定する条件を次のように書くことができる.

$$l_{tr}(W_{bl}) = R_{ion}(W_{bl} - \Delta, Ry) \quad (13)$$

さらに, プロブの半径は関係式 (12) で決定される輸送距離そのものとみなすことができる.

$$a_{bl} = l_{tr}(W_{bl}) = R_{ion}(W_{bl} - \Delta, Ry) \quad (14)$$

今考えている程度のエネルギーをもった電子の運動は飛躍の長さが変化していく拡散として記述できるので, $R_{ion}(W_{bl}, Ry)$ と $R_{ion}(W_{bl} - \Delta, Ry)$ は次のように互いに関連していることがわかる.

$$R_{ion}^2(W_{bl}, Ry) = l_{tr}^2(W_{bl}) + R_{ion}^2(W_{bl} - \Delta, Ry) \quad (15)$$

これから

$$R_{ion}^2(W_{bl}, Ry) = 2a_{bl}^2 \quad (16)$$

(13) と (16) の解として得られる R_{ion} , W_{bl} そして a_{bl} の数値が, 水の場合について, 図4に示されている. $W_{bl} \approx 500$ eV および $a_{bl} \approx 40$ Å が式を満足することがわかる. a_{bl}^2 の物理的意味は, イオン化による減速過程におけるエネルギー 500 eV の電子のプロブ中心からの平均自乗変位である. このため, プロブ中のイオン・電子対の初期分布をガウス分布 $\frac{\exp(-r^2/a_{bl}^2)}{\pi^{3/2}a_{bl}^3}$ で表すことは自然である*5.

その後のプロブ内電子の熱化過程における飛行は, 周囲のイオンからのクーロン引力に強く影響される. その結果, トラック電子の擬似平衡分布は実際上イオンの空間分布と同じになる (状況はプラズマの擬似中性条件と類似している). クーロン引力のもう一つの効果はプロブの拡大が両極性拡散的になるということである. これは, プロブの「にじみ出し」を特徴づける拡散係数がイオンの拡散係数の実質的に二倍になるということである. とはいっても, プロブの拡散による広がりには十分遅い過程である. これらの効果は以下で考察される.

1.4 プロブ中の電子とイオンの分布の擬似中性条件

与えられたイオンの空間分布のもとで, 電子は短時間で自分の位置を調整することができるため, プロブ内で電子とイオンの擬似平衡分布が達成される. このとき, プロブ内のイオンと電子の分布が互いにどのくらい違うか, つまり, 擬似中性条件がどの程度実現されるのか, 調べてみよう.

熱化の最終段階におけるプロブ内のイオンと電子の空間分布は, ガウス関数で近似できる.

$$n_0 G_i(r) = n_0 \frac{\exp(-r^2/a_i^2)}{\pi^{3/2}a_i^3}, \quad n_0 G_e(r) = n_0 \frac{\exp(-r^2/a_e^2)}{\pi^{3/2}a_e^3} \quad (17)$$

ここで, n_0 は, プロブ内の電子・イオン対の数である. トラック内の電子とイオン間の強い静電引力のため, 差 $\Delta a = a_e - a_i$ はプロブの半径 $a_{bl} \approx a_i \approx a_e$ に

*5 厳密にいうと, パラメータ a_{bl} と W_{bl} は媒質によって変化するが, (イオン化による減速と散乱を決定するパラメータである) イオン化ポテンシャルと平均電子密度が種々の液体であまり変わらないならば, プロブのパラメータも大きくは変化しないとみなせる.

比べて十分小さいと考えられる。しかしながら、電子は移動度ははるかに大きいことから、その分布がイオンの分布と比べていくらか広くなることは明らかである。ここで、差 $a_e - a_i$ を求めよう。

ポアソンの方程式

$$\operatorname{div} \mathbf{E}(r) = \frac{4\pi en_0}{\epsilon} (G_i - G_e), \operatorname{div}(\dots) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \dots) \quad (18)$$

を積分して、液体中の電子とイオンによってつくられる電場の強度 $\mathbf{E}(r)$ が得られる。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(r) &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{en_0}{\epsilon r^2} \frac{\mathbf{r}}{r} \int_{(r/a_e)^2}^{(r/a_i)^2} \sqrt{x} \exp(-x) dx \\ &\xrightarrow{\Delta a \ll a_{bl}} \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{en_0}{\epsilon a_{bl}^2} \frac{\Delta a}{a_{bl}} \frac{\mathbf{r}}{a_{bl}} \exp\left(-\frac{r^2}{a_{bl}^2}\right) \end{aligned} \quad (19)$$

擬似平衡では、電流はいたるところでゼロでなくてはならない。しかし、粒子の空間分布を記述する正確な関数の代わりに近似関数（ガウス関数）を用いているため、電流ゼロの条件はある特定の r の値、たとえば、 $r = a_{bl}$ においてのみ満足させることができる。

$$c_e \mu_e \mathbf{E}(a_{bl}) + D_e \nabla c_e(a_{bl}) = 0, \quad c_e(a_{bl}) = n_0 G_e(a_{bl}) \quad (20)$$

T はボルツマン定数を乗じた絶対温度で、移動度 μ_e はアインシュタインの関係 $\mu_e = eD_e T$ により拡散係数と関係づけられる。この式から、 $a_e - a_i \ll a_{bl}$ の極限での差 $a_e - a_i$ を求めよう。(17) と (19) を用いて、

$$\begin{aligned} \nabla c_e(a_{bl}) &= -\frac{2c_e(a_{bl})}{a_{bl}} \frac{\mathbf{r}}{r} \\ \mathbf{E}(a_{bl}) &= \frac{4}{\sqrt{\pi} e} \cdot \frac{en_0 \Delta a}{\epsilon a_{bl}^3} \frac{\mathbf{r}}{r} \\ e &= 2.718 \dots \end{aligned} \quad (21)$$

が得られる。これらを (20) に代入すると、

$$\Delta a \approx \frac{2.4 a_{bl}^2}{n_0 r_c}, \quad r_c = \frac{e^2}{\epsilon T} \quad (22)$$

となる。この関係は、数値として、 $\Delta a = 1 \text{ \AA}$ を与える ($n_0 \approx 30$, $a_{bl} \approx 40 \text{ \AA}$ である。 n_0 と a_{bl} の見積もりについてはこの章の始めで述べた)。

ブロップのイオン・電子対がつくる静電ポテンシャルは、(19) の電場 $\mathbf{E}(r) = -\nabla \phi(r)$ から容易に計算することができる。

$$\phi(r) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{en_0}{\epsilon a_{bl}} \frac{\Delta a}{a_{bl}} \exp(-r^2/a_{bl}^2) = \frac{e}{\epsilon r_c} \exp(1 - r^2/a_{bl}^2) \quad (23)$$

ブロップ中の陽電子のポテンシャルエネルギーは正であり、ブロップから外へ押し出されることが明らかである。ブロップ内 ($r \leq a_{bl}$) でのポテンシャルエネルギーは、温度と同程度である。

ブロップ内電場は、(21) と (22) から見積もることができる。電場は一センチメートルあたり数十キロボルトである。このため、試料にこの程度の外部電場が加えられると、粒子の分布は数オングストローム変位する。

1.5 両極性拡散によるブロップの膨張

イオン・電子再結合を無視したとしても、ブロップ内の電子とイオンの拡散は両者の間の強い静電的な相互作用に影響される。ブロップ内の電場 ($-\nabla \phi$) は電子のブロップ外への拡散を抑制するだけでなく、同時に、陽イオンの拡散係数を二倍に増加させる。ブロップ粒子の共同拡散の方程式は以下のように書き下せる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= -\operatorname{div} \left(-D_i \nabla c_i - e c_i \frac{D_i}{T} \nabla \phi \right) \\ \frac{\partial c_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= -\operatorname{div} \left(-D_e \nabla c_e + e c_e \frac{D_e}{T} \nabla \phi \right) \end{aligned} \quad (24)$$

ここで、 c_e と c_i は電子とイオンの濃度、 D_e と D_i はそれぞれの拡散係数である。前と同じように、初期条件として、ガウス分布を用いる。我々の目的は、(24) と静電ポテンシャル $\phi(r)$ に対するポアソン方程式

$$\Delta \phi = -\frac{4\pi e}{\epsilon} (c_i - c_e) \quad (25)$$

に基づいて、ブロップ膨張の速度論を見出すことにあたる。電子はきわめて動きやすく ($D_e \gg D_i$)、短時間でイオンの分布に対応した配置をとることができる。そのため、 $\partial c_e / \partial t \approx 0$ となり、これは

$$\frac{c_e e}{T} \nabla \phi \approx \nabla c_e \quad (26)$$

を与える。前と同じ理由（擬似中性化条件）により、電子とイオンの空間分布は互いに類似している ($c_i - c_e \ll c_i$)、

$$\frac{c_i e}{T} \nabla \phi \approx \leftarrow \frac{c_e e}{T} \nabla \phi \approx \nabla c_e \implies \approx \nabla c_i \quad (27)$$

となる。このため、電子に対する (24) の右辺におい

て, カッコ内の項は (符号が異なるため) 消去され, イオンに対する式の右辺においては, カッコ内の項は (符号が同じため) 二倍となる. こうして, プロップ内のイオンの運動は, 通常の拡散方程式にしたがうが, 拡散係数は二倍になる.

$$\frac{\partial c_i(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \approx 2D_i \Delta c_i \quad (28)$$

この現象は両極性拡散と呼ばれている. また, $D_{\text{amb}} = 2D_i$ は, 両極性拡散係数と呼ばれている. このうち, 半分はイオンの通常の拡散の寄与によるものであり, 残りの半分はイオンの動きを速めるイオンとプロップ内電子間の内部電場の影響による.

参考文献

- 1) A. Mozumder, "Fundamentals of Radiation Chemistry", Academic Press, San Diego (1999).

原著者プロフィール

フセヴォロド・ミハイロヴィッチ・ビャーコフ:
Vsevolod Mikhailovich Byakov. 1954年モスクワ大学 (Lomonosov Moscow State University) 卒業. 大学では, 理論物理学者テルレツキー (著書「相対性理論のパラドックス」(東京図書) で日本でも知られている) の研究室で宇宙線の起源に関する研究を行った. 大学卒業後, ESRの創始者であるザボイスキーの招きで, 理論実験物理学研究所 (Institute of Theoretical and Experimental Physics, ITEP) に入所 (母方の祖父が勤務していた化学工場でザボイスキー家の人々と一緒にいたこと). 原子炉 (均一型軽水炉) 関連の物理化学過程や排ガス中の硫黄, 窒素酸化物の放射線除去などの研究を実施. 1973年には, 水および分子性物質中において, 放射線分解による水素生成とポジトロニウム形成が共通の機構で生じることを提唱した. 地球における石炭や石油の生成における放射線の役割についての研究も行っている. 現在, ITEP 相談役, ロシア化学技術大学 (D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia) 教授. 主な研究分野は, 放射線化学, 宇宙物理学.

セルゲイ・フセヴォロドヴィッチ・ステパノフ:
Sergey Vsevolodovich Stepanov. 1983年, モスクワ金属工業大学 (Moscow Institute of Steel and Alloys) 卒

業, 1987年, "Spin dynamics of the polarized short-lived beta-active nuclei. Beta-NMR spectroscopy" の研究で ITEP から Ph. D. 取得. 2005年, "Positrons in molecular media: theoretical grounds of positron annihilation spectroscopy" の研究で, 博士学位取得. 現在, ITEP の原子スケール研究センターの副センター長. モスクワ大学主任研究員と国立核研究大学 (National Research Nuclear University "MEPhI") の准教授を兼任. 主な研究分野は, 原子核プローブによるスピンドYNAMIX, ポジトロニウム化学.

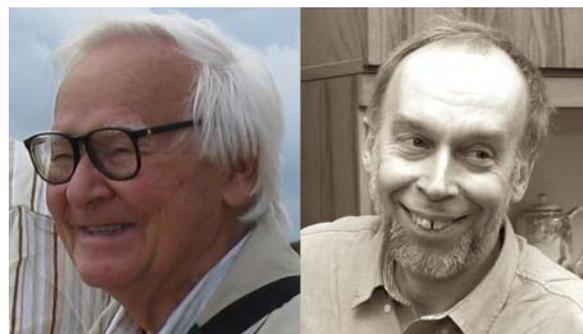


図7 原著者近影. 左: ビャーコフ氏, 右: ステパノフ氏.

著者略歴

小林 慶規: 1976年 東京大学工学部卒業, 1981年 東京大学大学院工学系研究科修了, 工学博士. 通商産業省工業技術院 化学技術研究所, 1997年 物質工学工業技術研究所 研究室長, 2001年 産業技術総合研究所 計測標準研究部門 研究室長, 現在, 産業技術総合研究所 計測標準研究部門, 計量標準管理センター室長. 専門: 材料分析, 放射線化学, 陽電子科学. 趣味: ランニング, 将棋ほか.

岡 壽崇: 1998年 早稲田大学理工学部卒業, 2003年 早稲田大学大学院理工学研究科単位取得退学, 博士 (理学). 早稲田大学, 産業技術総合研究所, 千葉大学大学院, 日本原子力研究開発機構を経て, 現在, 大阪大学 ナノテクノロジー設備供用拠点 特任助教. 専門: 高分子物性, 放射線化学, ナノテクノロジー科学. 趣味: ウィンタースポーツ, ラグビー観戦ほか.