

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Теоретические представления о формировании и эволюции треков заряженных частиц

А.М. Митерев

Изложены теоретические представления о формировании и эволюции треков заряженных частиц в конденсированной среде. Дан краткий исторический обзор развития представлений о треках заряженных частиц. Рассмотрены распределения энергии заряженной частицы по квантовым состояниям, по объему поглощающей среды и условия образования различных трековых структур (сущностей). Приведено сравнение структур протяженных треков тяжелых ионов при равенстве отдельных параметров ионов и характеристик трека. Дан анализ релаксационных процессов в треках многозарядных ионов. Рассмотрены трековые эффекты и возможные механизмы образования химически активных дефектов в латентном треке.

PACS numbers: 07.77.-n, 34.50.-s, 82.55.+e

Содержание

1. Введение (1131).
 2. Исторический обзор развития представлений о треках заряженных частиц (1133).
 - 2.1. Ранние модели треков. 2.2. Треки частиц с низкими значениями ЛПЭ. 2.3. Треки частиц с промежуточными значениями ЛПЭ. 2.4. Треки частиц с высокими значениями ЛПЭ.
 3. Вероятность перехода из одного состояния в другое под влиянием возмущения, зависящего от времени. Принцип адиабатических столкновений и его следствия (1137).
 - 3.1. Процессы взаимодействия заряженной частицы со средой и их роль в радиационных превращениях. 3.2. Возбуждение атомов и молекул. 3.3. Возбуждение в конденсированной среде.
 4. Природа и спектр квантовых состояний, индуцируемых заряженной частицей (1140).
 - 4.1. Квантовые состояния, возбуждаемые заряженной частицей.
 - 4.2. Спектр квантовых состояний, образуемых первичной частицей.
 - 4.3. Роль фазового состояния среды в распределении энергии по квантовым состояниям.
 - 4.4. Роль вторичных электронов в распределении переданной среде энергии.
 5. Пространственное распределение актов потерь. Трековые формы быстрых заряженных частиц (1142).
 - 5.1. Распределение актов потерь энергии вдоль траектории первичной частицы.
 - 5.2. Трековые формы, образуемые быстрой первичной частицей, и их пространственные распределения.
 6. Структура протяженных треков тяжелых ионов различной природы (1145).
 - 6.1. Общие представления о треках ионов.
 - 6.2. Зависимость характеристик треков от параметров ионов.
 - 6.3. Отличия в треках ионов при равенстве Z и v .
 - 6.4. Отличия в треках ионов при равенстве Z и E_0 .
- 6.5. Отличия в треках ионов при равенстве начальных значений ЛПЭ.
- 6.6. Особенности строения трека многозарядного иона.
7. Представления о процессах релаксации в треке многозарядного иона (1153).
 - 7.1. Процессы с участием заряженных частиц.
 - 7.2. Диссипация энергии электронно-возбужденных молекул.
 - 7.3. Обмен энергией между различными степенями свободы.
 - 7.4. Процессы выноса энергии из трека.
8. Особенности радиационно-химических реакций в треках частиц различной природы (1156).
 - 8.1. Влияние фазового состояния и роль ЛПЭ в радиолизе.
 - 8.2. Влияние структуры трека на радиационно-химические процессы в жидкостях.
 - 8.3. О термохимическом действии ионизирующих частиц.
 - 8.4. О гидродинамическом воздействии излучения.
 - 8.5. О проблеме эквивалентности радиационного воздействия различных видов ионизирующего излучения.
9. Модели образования латентных треков (1160).
 - 9.1. Модель теплового электронного пика.
 - 9.2. Модель ионного взрывного клина.
 - 9.3. Модели ударных и акустических волн.
10. Заключение (1162).
- Список литературы (1162).

1. Введение

Минуло 90 лет с тех пор, как впервые в камере Вильсона был сфотографирован след α -частицы [1]. Первые наблюдения трека подтвердили представление о том, что заряженные частицы инициируют изменения в физических и химических свойствах среды, и показали, что этим изменениям подвергаются лишь отдельные микробъемы вещества, располагаемые вблизи траектории частицы. Наблюдения треков с помощью камер Вильсона стали хорошим методом изучения ядерных процессов с участием элементарных частиц. Потребности в устройствах, позволяющих исследовать ядерные процессы с участием элементарных частиц, способствовали появлению затем пузырьковых камер [2], фотоэмультсий

А.М. Митерев. ГНЦ РФ "Научно-исследовательский физико-химический институт им. Л.Я. Карпова", Обнинский филиал 249033 Обнинск, Калужская обл., Российской Федерации
Тел. (08439) 9-49-91

Статья поступила 15 февраля 2002 г., после доработки 5 июня 2002 г.

[3], с помощью которых также возможно наблюдать треки.

В 1959 г. с использованием электронного микроскопа в слюде, облученной осколками деления урана, были обнаружены поврежденные тонкие (диаметром ~ 3 нм) протяженные участки, получившие название "скрытые" (латентные) треки [4]. Эти наблюдения стимулировали повышенный интерес к исследованиям треков тяжелых ионов в твердых телах. Непосредственные наблюдения латентных треков затруднялись тем обстоятельством, что под электронным микроскопом в большинстве материалов они быстро исчезали. С этой досадной особенностью удалось справиться посредством применения химического травления облученного материала. Оказалось, что в слюде после травления ее химическими реагентами латентные треки осколков деления урана увеличиваются до размеров, при которых они становятся видимыми в оптическом микроскопе [5].

Класс веществ, в которых образуются протравленные треки, весьма широк (стекла, минералы, полимеры и некоторые полупроводники) [4–6]. Многочисленные исследования свидетельствуют о том, что травимые треки могут быть обнаружены во многих кристаллах с ионной связью (щелочно-галоидные кристаллы, слюды), в некоторых кристаллах с ковалентной связью, в полимерах, но только тогда, когда параметры иона превышают некоторые пороговые значения [6]. В металлических образцах, отличающихся совершенной структурой и высокой электропроводностью, треки от ионов, обладающих даже высоким зарядом, как правило, не обнаруживаются. Они появляются, однако, в случае, если структура решетки металла дефектна. В металлической пленке, состоящей из множества мозаичных блоков, формируется прерывистый трек. В мелких блоках трек выявляется, а в блоках крупного размера нет [7].

Каждый материал, в котором могут образовываться травимые треки, имеет свой порог регистрации, определяемый свойствами травящего раствора. Конфигурация образующихся после химического травления пор в облученных ионами диэлектрических материалах зависит от вида и параметров иона. Эта корреляция и была вначале использована при разработке твердотельных трековых детекторов (ТТД) для идентификации заряженных частиц [5, 6]. Для достижения такой цели необходимо проводить прямые калибровки, облучая материал известными частицами, с последующим сопоставлением параметров выявленных треков с параметрами частиц. Получаемые в результате этого калибровочные зависимости позволяют идентифицировать параметры неизвестных частиц.

Эффект образования после химического травления сквозных пустотелых каналов в облученной тяжелыми ионами полимерной пленке нашел и практическое применение — в производстве полимерных мембранных с применением пучков тяжелых ионов [8] и осколков деления ядерного топлива. Трековым методом создаются печатные структуры на твердом теле, производятся сепарационные материалы для фильтров тонкой очистки [8, 9]. При выборе параметров иона для получения после травления каналов заданного размера и профиля необходимо также иметь калибровочные кривые.

Для осуществления прямых калибровок необходимы ускорители широкого класса возможностей. К тому же сам процесс калибровки и трудоемок, и дорог. Поэтому

было бы желательно этой процедурой пользоваться в исключительных случаях, а прогнозировать параметры треков на основе знания совокупности процессов формирования и развития треков. Задача эта, к сожалению, весьма трудновыполнимая. Формирование и развитие трека происходят быстро и трудно поддаются экспериментальному наблюдению.

Многие явления, происходящие в облученной заряженными частицами конденсированной среде, обусловлены протекающими в треке процессами. В первую очередь к таким явлениям следует отнести радиационные превращения в воде и в водных растворах биологически важных веществ. Именно в этих областях знаний с привлечением представлений о процессах, происходящих в треках заряженных частиц, удалось объяснить так называемые *трековые эффекты* (track effects) — зависимости радиационных эффектов от вида ионизирующего излучения [10–16]. Представления о процессах формирования и эволюции треков заряженных частиц использовались для объяснения образования латентных треков в твердых телах (см., например, [4–6]). Исходя из экспериментальных данных по пороговым значениям энергии ионов, при которых из латентного трека образуется травимый трек, были сформулированы различные критерии образования треков. Несмотря на некоторые отличия, большинство из них формулировалось в предположении, что нарушения, производимые ионом в веществе, зависят от одной из характеристик трека, а именно от линейной передачи энергии [6]. Предпринимались попытки применить представления о треках для объяснения неупругого распыления твердых тел ионами [17].

Трек становится наблюдаемым благодаря изменениям в свойствах, структуре либо в фазовом состоянии вещества вблизи траектории заряженной частицы. Эти изменения — результат реакции среды на возмущение, вносимое заряженной частицей. Начальным этапом этого возмущения является передача энергии среде заряженной частицей. На начальной (*физической*) стадии переданная среде энергия распределяется по квантовым состояниям поглощающей системы. В результате образуется *первичный трек*. Нахождение пространственных размеров этого трека и спектра первичных частиц, образовавшихся в результате физических процессов взаимодействия заряженной частицы с веществом, и есть цель исследования структуры первичного трека.

Время формирования полного трека определяется временем замедления заряженной частицы в среде. Время замедления иона с начальной энергией $4 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ в конденсированной среде составляет 2–3 пс. Однако на отдельных достаточно протяженных по сравнению с радиальными размерами участках трека процессы формирования заканчиваются за более короткие времена. Так, на участке трека длиной 2 мкм, на котором ион имел энергию $4 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$, распределение переданной среде энергии в объеме этого участка заканчивается за 75 фс. Процессы, происходящие за такие времена, недоступны прямому экспериментальному исследованию. Единственным путем изучения структуры первичного трека остается теоретическое исследование с привлечением методов математического моделирования.

Теоретическое исследование структуры треков заряженных частиц и процессов, протекающих в них, нача-

лось с момента первого наблюдения треков. Наиболее интенсивное развитие эти исследования получили в радиационной химии и радиобиологии. В настоящем обзоре изложены теоретические представления о процессах формирования первичных треков заряженных частиц в конденсированной среде молекулярного состава. Вначале дан краткий исторический очерк развития представлений о треках заряженных частиц. Затем, исходя из физических основ взаимодействия заряженных частиц с молекулами среды, последовательно рассмотрены распределение энергии заряженной частицы по квантовым состояниям поглощающей среды, распределения образующихся первичных активных частиц по объему среды, классификация трековых сущностей (entities) (форм, структур) и условия их образования. Наибольшее внимание уделено формированию структур первичных треков тяжелых ионов. С отдельными вопросами, относящимися к обсуждаемой здесь теме, детально можно ознакомиться в обзора [10–16] и цитируемой по ходу изложения литературе.

2. Исторический обзор развития представлений о треках заряженных частиц

2.1. Ранние модели треков

Наиболее ранней моделью трека следует считать сформулированное Яффе в 1913 г. представление о треках α -частиц в камере Вильсона как о цилиндрических ионных колоннах [18]. Используя гауссово распределение ионов каждого знака в такой колонне, Яффе рассмотрел диффузию ионов из трека с учетом рекомбинации. Этот диффузионно-рекомбинационный процесс описывается нелинейным дифференциальным уравнением, которое аналитическими методами не решается. Приближенное решение такой задачи было получено в предположении, что на уменьшение концентрации ионов в колонне больше влияет диффузия ионов из нее, чем их рекомбинация. При таком допущении можно полагать, что, хотя концентрация ионов уменьшается во времени, форма распределения ионов остается гауссовой. Такое допущение, известное как *приближение предписанной диффузии*, широко использовалось в последующем при расчетах величин, характеризующих химические превращения в среде после воздействия на нее заряженных частиц.

В 1934 г. Ли [19] представил трек в ионизационной камере в виде набора изолированных *роев* (*cluster*). Используя подход, развитый Яффе, Ли рассмотрел рекомбинацию ионов в различных роях с учетом их перекрывания. Эти представления о треках в ионизационных камерах затем использовались для определения коэффициентов рекомбинации ионов в газах [20], а также для измерения линейной передачи энергии и коэффициента качества излучений [21].

Работы в области ядерной энергетики в середине прошлого века стимулировали интенсивное развитие радиационной химии и радиобиологии. Для успешного решения ряда проблем в области реакторостроения необходимо было выяснить радиационную стойкость воды, некоторых водных растворов, полимеров, углеводородов и многих других материалов. Изучение закономерностей радиационных превращений в воде и в водных растворах биологически важных веществ было

необходимо для оценки действия ионизирующего излучения на живые объекты. Поэтому наиболее интенсивно исследовались радиационно-химические процессы в воде и в водных растворах.

Основы теории взаимодействия ионизирующих излучений с веществом были уже сформулированы [22, 23]. Для характеристики качества излучения была введена линейная передача энергии (ЛПЭ). В зависимости от величины ЛПЭ ионизирующие излучения были разделены на три вида, а именно на излучения с низкими значениями ЛПЭ (менее 1 эВ nm^{-1} в воде), промежуточными (1–100 эВ nm^{-1}) и с высокими (более 100 эВ nm^{-1}). Объяснение экспериментальных зависимостей выходов продуктов радиолиза водных систем от величины ЛПЭ связывалось с проявлением так называемых *трековых эффектов*, поскольку степень негомогенности в распределении активных частиц в треке существенно влияет на конечные химические эффекты. Для количественного описания химических превращений в треках методами диффузионной кинетики требовались более детальные представления о начальном распределении реагирующих частиц в треке. Построение моделей треков базировалось на концепции ЛПЭ и неразрывно было связано с исследованием механизмов превращений первичных частиц (ионов, электронов и электронно-возбужденных молекул).

Ли первым ясно сформулировал и применил диффузионную кинетику для треков заряженных частиц [19, 24]. Согласно Ли [19, 24, 25] и Грею [26] при неупругих процессах взаимодействия заряженной частицы с молекулами воды переданная среде энергия идет на образование не только отдельных электронно-возбужденных молекул либо ион-электронных пар, но и локальных областей ионизации и возбуждения, содержащих от двух и более ионных пар. Такие области Ли и Грей и называли *роями* (*гроздьями*).

Согласно [26] относительная частота появления роев с двумя, тремя и более ионными парами слабо зависит от скорости заряженной частицы и природы среды. Однако природа среды оказывает воздействие на отношение числа роев к числу единичных ионных пар. По данным [26] частоты появления роев из 2, 3, 4 и 8 пар ионов в воде равны 0,22, 0,11, 0,10 и 0,07 соответственно. Частота появления единичной пары составляет 0,45. В рое положительные ионы разделены расстоянием 3 нм, в то время как среднее расстояние между ионами разного знака составляет 15 нм. Под отрицательным в данном случае понимался ион, образованный в результате захвата молекулой воды выбитого при ионизации электрона после его термализации.

В треке быстрого электрона среднее расстояние между положительными первичными ионами значительно превышает 15 нм и, следовательно, рои изолированы друг от друга. Когда энергия электрона становится менее 1,5 кэВ, наступает перекрывание роев. Трек преобразуется в ионную колонну. Треки в виде ионных колонн образуют протоны с энергией ниже 3 МэВ, а α -частица — при энергии менее 12 МэВ. Форма распределений ионов в колонне полагалась следующего вида. Вблизи траектории тяжелого иона расположены положительные ионы, тогда как отрицательные ионы занимают цилиндр радиусом 15 нм. Платцман [27] развил эти представления, полагая, что электрон в процессе термализации удаляется на значительное расстояние от материнского

иона и не сразу нейтрализуется, а становится как бы свободным. Вследствие поляризации среды он оказывается в окружении ориентированных молекул жидкости. Это явилось предсказанием существования в облученной воде гидратированного электрона, который был открыт впоследствии.

Иначе трактовалась судьба ионизованных состояний Самюэлем и Маги [28]. Они считали, что выбитый из молекулы воды при ионизации электрон не может преодолеть кулоновское поле материнского иона и после термализации притягивается ионом. В результате рекомбинации образуется возбужденная молекула воды, которая распадается на Н и ОН. Группу ионизации из одной и более ионных пар, расположенных вблизи единичного акта первичной ионизации, они назвали *шпора* (*spur*).

К началу химической стадии шпора представлялась как сферически-симметричное образование, в котором радикалы Н и ОН распределены по нормальному закону относительно центра шпоры с одинаковыми значениями ширины. Начальные объемы шпор и, следовательно, ширины начального распределения радикалов принимались пропорциональными числу радикалов в шпоре N_R . Распределение шпор по размерам характеризовалось аналитическим выражением вида

$$f(N_R) = 0,65 \exp\left(-\frac{N_R}{4}\right).$$

Средний размер шпоры из этого распределения соответствует 2,54 радикальной пары на одну первичную ионизацию. Согласно [28] трек быстрого электрона представлялся как набор из неперекрывающихся шпор. При этом не принималось во внимание замедление первичной частицы и не делалось различия между треками первичного электрона и вторичного. Трек α -частицы рассматривался в виде цилиндрической колонны, состоящей из перекрывающихся шпор.

2.2. Треки частиц с низкими значениями ЛПЭ

Модель трека быстрого электрона Самюэла – Маги [28] подверглась строгой проверке на пригодность для объяснения зависимостей выходов продуктов радиолиза от условий облучения. Уже ее создатели, используя реакцию одного вида радикалов, рассчитали отношения молекулярного выхода к общему выходу разложения воды для шпор различных размеров и получили значения, близкие к экспериментально наблюдаемым. Однако использование в модели специально подобранных параметров не убеждало в ее правильности. Вместе с тем модель шпоры с некоторыми модификациями применялась многими исследователями для количественной обработки более сложных реакционных схем (присутствие в шпоре нескольких радикалов, акцептора) (см. обзор в [10]).

Купперман и Белфорд [29] с использованием ЭВМ провели тщательный анализ применимости различных параметров и приближений в расчетах и пришли к следующим выводам. В течение периода времени от 10 до 100 пс в сферической шпоре доминирует рекомбинация радикалов. Любое начальное распределение радикалов становится гауссовым при времени 1 нс, и с этого момента времени приближение предписанной диффузии становится вполне применимым. Величины выходов продуктов радиолиза существенно зависят от ширины

начального распределения, диффузии и скоростей реакций.

При рассмотрении зависимости молекулярных выходов от ЛПЭ, значение которой возрастает по мере замедления электрона, модель трека электрона пришлось модифицировать. Гангули и Маги [30] рассмотрели модель трека электрона, состоящего из одинаковых по размеру шпор, расстояние между которыми сокращается экспоненциально с уменьшением остаточного пробега электрона. Приняв во внимание рекомбинацию радикалов из соседних шпор, они тем самым исследовали влияние степени перекрытия шпор в результате увеличения ЛПЭ электрона к концу пробега.

В работе Мозумдера и Маги [31] эта проблема решена иначе. Необходимость учета перекрывания шпор они упразднили посредством введения дополнительных трековых образований (track entities). В зависимости от энергии, передаваемой электроном в отдельном акте взаимодействия, образуемая при этом трековая структура относилась к тому или иному классу. Согласно этой классификации энергия, передаваемая электроном среде, идет на образование шпор с энергией от 6 до 100 эВ, так называемых *блобов* (*blobs*) с энергией в диапазоне 100–500 эВ и *коротких треков* (*short tracks*) при передаче среде энергии от 500 до 5000 эВ. Блоб определяется как образование, генерированное вторичным электроном, энергия которого превышает 100 эВ, но недостаточна, чтобы электрон преодолел поле притяжения родительского иона. По оценке авторов в воде при комнатной температуре избежать рекомбинации с родительским ионом может электрон с энергией более 625 эВ. Исходя из этой оценки, в качестве верхней границы блоба было принято значение 500 эВ. Позднее Маги и Чаттержи [32] в качестве верхней энергетической границы блоба предложили значение 1,6 кэВ. Они считали, что ниже этой энергии на замедление электрона существенное влияние оказывают процессы упругого рассеяния, которые способствуют перекрыванию шпор. По форме блоб напоминает грушевидную каплю. Однако при расчетах реакций в нем блоб рассматривался как большая шпора сферической формы [31] либо в виде эллипсоида [32].

В [31] предполагалось, что начальные размеры шпор и блобов пропорциональны числу первичных частиц или, что одно и то же, что начальный радиус шпоры $r_0 \approx \varepsilon^{1/3}$. При этом для шпоры с $\varepsilon = 100$ эВ начальный радиус принимался равным 1,7 нм. Маги и Чаттержи в работе [33] предложили иную трактовку зависимости размера шпоры от числа частиц в ней, а именно с увеличением числа частиц размер шпоры уменьшается. К этому заключению они пришли, исходя из представления об электрон-ионной паре как о ридберговском состоянии молекулы. Размер электронной орбиты в этом состоянии не превышает 3–3,5 нм перед началом гидратации. Когда в шпоре содержится несколько ионных пар, электрон движется в поле нескольких ионных центров и, следовательно, размер его орбиты уменьшается. По оценкам авторов [33] начальный радиус шпоры с одной электрон-ионной парой порядка 3 нм, тогда как размер шпоры из шести ионных пар (100 эВ) соответствует начальному радиусу 2 нм.

Короткий трек представляет образование из перекрытых шпор. Значение верхней границы энергии электрона, образующего короткий трек, выбрано из следующих соображений [31]. Перекрывание шпор влияет на ход

реакций в шпорах в том случае, когда среднее расстояние между ними не превышает $10r_0$. Этому условию отвечает электрон с энергией 5 кэВ, у которого средний свободный путь между актами потери энергии с образованием шпор составляет ~ 10 нм. Вторичный электрон, обладающий энергией более 5 кэВ, образует уже *трек-ответвление* (branch track), по структуре подобный основному. Как правило, предполагают, что короткий трек имеет цилиндрическую геометрию, хотя это не совсем отвечает действительной форме. Из-за влияния процессов упругого рассеяния при энергии электрона менее 1,6 кэВ траектория электрона искривляется. В энергетических границах, отведенных для короткого трека в работе [32], форма короткого трека близка к цилиндрической.

Распределение энергии первичного электрона между трековыми структурами, составляющими основной трек и его ответвления, вычислено в работе [31] методом Монте-Карло. Результаты расчетов показывают, что с увеличением энергии первичного электрона доля энергии, расходуемая на образование изолированных шпор, растет в основном за счет уменьшения энергии, расходуемой на образование коротких треков. Если для электрона с энергией 10 кэВ относительное распределение энергии на образование шпор, блобов и коротких треков отвечает отношению (в процентах) 25 : 10 : 65, то для электрона с энергией 1 МэВ оно уже составляет 67 : 11 : 22.

Сантар и Беднардж [34] детализировали расчет распределения энергии по трековым структурам электрона. В своих расчетах они учли, что электрон, образующий короткий трек, обладает достаточной энергией, чтобы генерировать дополнительно короткие треки и блобы. Кроме этого было учтено также, что каждый трек-ответвление заканчивается коротким треком, а каждый короткий трек — блобом. Учет всех этих факторов осуществлялся посредством расчета полного спектра деградации электронов (первичного и вторичных). В полном спектре деградации электронов доля шпор несколько меньше, и приведенное выше относительное распределение энергии для электрона с энергией 1 МэВ отвечает отношению 64,7 : 11,9 : 23,4.

Спектр деградации заряженных частиц является важной характеристикой ионизирующего излучения. Он представляет собой энергетический спектр заряженных частиц, действительно присутствующих в облучаемой среде. Теория спектра деградации электронов была разработана Спенсером и Фано [35]. Они показали, что спектральную интенсивность удобно представить величиной $Y(T, E_0)$, имеющей размерность длины на единицу энергии. При таком представлении $Y(T, E_0) dT$ есть полное расстояние, пройденное в среде всеми электронами (первичным, имеющим начальную энергию E_0 , вторичными и электронами всех последующих поколений) с энергиями в диапазоне от T до $T + dT$. С помощью спектра деградации $Y(T, E_0)$ можно определить полное число первичных частиц различного вида, образуемых в облучаемой среде на начальной стадии радиолиза [36–38]. Для нахождения пространственного распределения первичных частиц необходимо, чтобы спектральная интенсивность еще зависела от пространственной переменной. Вычисления такой характеристики также предпринимались [39].

Нахождение спектральной интенсивности $Y(T, E_0)$ посредством решения уравнения Спенсера–Фано —

довольно сложная математическая задача. Поэтому в ряде работ для нахождения распределения электронов по энергиям использовался метод статистических испытаний — метод Монте-Карло [31, 34, 40]. В работе Каплана с соавторами [40] методом Монте-Карло рассчитан спектр деградации в водеmonoэнергетического пучка электронов с энергией 10 кэВ с использованием классических сечений взаимодействия. Согласно результатам расчета, прежде чем первичный электрон деградирует до $T < I$ (I — энергия ионизации молекулы воды), он испытывает 386 актов неупругих столкновений, теряя в среднем на один акт ~ 25 эВ. В процессе деградации первичный электрон выбивает ~ 150 вторичных электронов, более половины из которых ($\sim 81,5$) приходится на энергетический интервал 0–10 эВ. Вторичные электроны в свою очередь создают $\sim 376,5$ третичных электронов и электронов всех последующих поколений.

Моделирование деградации быстрого электрона в цитированных работах [31, 34, 40] фактически проводилось в представлении конденсированной среды моделью плотного газа, при котором игнорировалось существующее в конденсированной фазе взаимодействие между молекулами (атомами). Экспериментально было установлено, что при переходе от газовой фазы к жидкости, впервые, как правило, понижается потенциал ионизации на $\Delta I \sim 1–2,5$ эВ [15]. Еще более существенно при этом меняется вид функции энергетических потерь быстрого электрона $\text{Im}[-1/\epsilon(\omega)]$, где $\epsilon(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость среды [41, 42].

С появлением экспериментальных данных по функции $\text{Im}[-1/\epsilon(\omega)]$ для жидкой воды [41] открылась возможность моделирования первичной стадии радиолиза воды с учетом специфики конденсированной фазы. Такое моделирование методом Монте-Карло было выполнено сначала в работах [43, 44], а затем в [45–48]. В работе [44] моделировались радиационные превращения в треке электрона с начальной энергией 5 кэВ. Сначала были вычислены координаты актов ионизации и возбуждения. На основе выбранного механизма превращения первичных частиц (H_2O^+ , H_2O^* и e^-) затем была прослежена эволюция трека до начала химической стадии радиолиза, т.е. за период времени до 10 пс. Получив таким образом распределение химически активных частиц (H_3O^+ , OH , H и e_{aq}), далее исследовали превращения последних вследствие диффузионно-контролированных реакций до времени 0,28 мкс.

В работах [45, 46] при исследовании треков электронов применен подход, названный авторами "стохастическим", в котором с использованием метода Монте-Карло фиксируется мгновенная картина пространственного распределения актов возбуждений и ионизаций. В этом случае треки представляют собой набор точек пространства, где произошли акты неупругого рассеяния. Имея наборы таких треков, можно вычислить спектр поглощенной энергии в чувствительных объемах облучаемого вещества [46] либо рассчитать формы линий и спад сигналов электронного спина [47].

В работах [48–51] выполнено моделирование первичной стадии радиолиза в жидкой воде и водяном паре при облучении быстрыми электронами. Рассчитаны выходы первичных возбужденных и ионизованных состояний, рассмотрена эволюция этих состояний и оценены выходы продуктов радиолиза. Основные результаты этих работ представлены в разделе 4.

2.3. Треки частиц с промежуточными значениями ЛПЭ

Промежуточные значения ЛПЭ от 1 до 100 эВ нм⁻¹ в воде могут иметь как электроны низких энергий, так и ионы легких элементов (протоны, α -частицы). Поэтому треки ионов в ранних моделях рассматривались по аналогии с треками электронов низких энергий [26, 28]. Полагали, что в треке иона шпоры перекрываются так плотно, что в результате образуется цилиндрическая колонна. При этом не учитывалось, что взаимодействие тяжелых заряженных частиц с веществом отличается от взаимодействия электронов. Эти отличия проявляются, прежде всего, в энергетическом и угловом распределении вторичных электронов. Кроме того, на торможение тяжелой заряженной частицы в среде оказывают влияние процессы перезарядки.

Обратив внимание на эти отличия, Мозумдер, Чаттержи и Маги [52] предложили модель трека тяжелой нерелятивистской частицы, состоящего из двух областей. Область в виде цилиндрической колонны с высоким значением ЛПЭ, расположенную вблизи траектории иона, они назвали *сердцевиной* (core). Сердцевина образуется вследствие перекрывания шпор, образуемых первичным ионом, и трековых форм (шпор, блобов и коротких треков), образуемых вторичными электронами при прохождении ими сердцевины. При этом электроны низкоэнергетической части спектра могут полностью потерять свою энергию в пределах сердцевины. Высокоэнергетические вторичные электроны частично теряют энергию в сердцевине, а оставшуюся часть выносят за ее пределы, образуя вторую область трека с низким значением ЛПЭ.

Для ионов нерелятивистских скоростей размер сердцевины выбирался из следующих соображений. При скорости иона $v \leq v_0 = 2,28 \times 10^9$ см с⁻¹ радиус сердцевины принимался равным пробегу электрона с энергией $E = 100$ эВ, а именно $r_c = 1,5$ нм. Для ионов, у которых скорость $v \geq v_0$, радиус сердцевины предложено определять из выражения $r_c = v/2\omega_{01}$, где $\hbar\omega_{01}$ — наименьшая энергия перехода. Это выражение было получено на основе принципа адиабатических столкновений Бора. Согласно этому принципу при прицельном параметре $b \geq r_c$ относительно электронного возбуждения с энергией перехода $\hbar\omega_{01}$ столкновение иона с молекулой, находящейся на расстоянии b от траектории иона, является адиабатическим и возбуждение молекулы не происходит. Маги и Чаттержи [53] рассчитали радиус сердцевины по формуле $r_c = v/\omega_{pl}$, в которой ω_{pl} — плазменная частота. Каплан, Митерев [14, 54] для расчета радиуса сердцевины предложили выражение $r_c = \pi v/\omega_{01}$, которое было получено из формулы, описывающей зависимость вероятности возбуждения молекулы от прицельного параметра.

Эти формулы не учитывают ослабление поля, создаваемого движущимся зарядом вследствие поляризации среды. Поэтому при релятивистских скоростях рассчитанные по ним с учетом лоренц-фактора радиусы сердцевины оказались слишком большими. В пределе $v \rightarrow c$ радиус сердцевины стремился к бесконечности ($r_c \rightarrow \infty$). С целью получения конечных значений радиуса сердцевины при $v = c$ Мозумдер [55] ввел дополнительное ограничение на размер сердцевины, связанное с поляризацией среды. В работах автора [56, 57] эта проблема решена следующим путем. Сначала получено выражение, определяющее вероятность возбуждения в конден-

сированной среде в зависимости от прицельного параметра. Далее с использованием принципа адиабатических столкновений из этого выражения выведена формула для расчета радиуса сердцевины с учетом диэлектрических свойств среды.

Область трека, окружающую сердцевину, сначала называли *оболочкой* (sheath). Затем Маги и Чаттержи [53] предложили для этой части трека название *пинамбра* (pinumbra). Пинамбра состоит, как правило, из неперекрывающихся трековых форм, образуемых вторичными электронами, и, следовательно, в отличие от сердцевины представляет область трека с негомогенным распределением активных частиц. Однако в работах, посвященных расчету радиального распределения энергии в треке иона, последнее обстоятельство игнорировалось.

Впервые оценка распределения энергии в треке иона применительно к описанию инициирования видимых треков в пузырьковых камерах была дана Каганом [58]. Распределение энергии вторичных электронов рассчитывалось по модели непрерывного замедления в предположении, что они испускаются с оси трека под прямым углом к ней. Подобные допущения использовались в работах Катца с соавторами [59, 60]. Учет углового распределения вторичных электронов относительно оси трека иона проведен в работах [61, 62]. Расчет радиального распределения энергии в треках ионов выполнен также в работах [63–67]. В [67] для этой цели применен метод Монте-Карло.

Исследование радиального распределения энергии в треках ионов посвящено много работ, в том числе и экспериментальных [68, 69]. Для понимания детальной структуры трека иона важно знать не только радиальное распределение энергии, но и распределение образующихся при этом первичных активных частиц по объему трека и по квантовым состояниям. Для этого в работе [70] методом Монте-Карло исследованы радиальное распределение энергетических потерь, распределение концентрации образованных ионов, возбужденных молекул, а также энергетическое распределение электронов деградации на различных расстояниях от оси трека иона. Как уже отмечалось, если известен спектр деградации электронов, то с его помощью можно найти распределение первичных активных частиц по квантовым состояниям.

2.4. Треки частиц с высокими значениями ЛПЭ

Тормозную способность в воде более 100 эВ нм⁻¹ имеют, как правило, многозарядные ионы. Интерес к исследованию треков таких ионов первоначально возник применительно к осколкам деления ядерного топлива. Развитие ядерной энергетики стимулировало поиск различных способов использования ядерной энергии в энергоемких отраслях производства. В одном из них непосредственно используется кинетическая энергия осколков, составляющая свыше 80 % энергии деления, для химического синтеза веществ в эндотермических процессах. Радиационно-химические процессы, протекающие в веществе под действием кинетической энергии осколков, получили специальное название *хемоядерных* (chemonuclear) [71].

Исследуя радиолиз метанола под действием осколков деления, Буланов с соавторами [72] установили, что при воздействии осколков, с одной стороны, выход низкомолекулярных продуктов радиолиза увеличивается, а с другой — выход этиленгликоля растет не с повышением ЛПЭ осколка, как ожидалось, а, напротив, с ее пониже-

нием. Эти результаты объяснить в рамках существовавших моделей треков ионов не удавалось. Лишь после того как было показано, что структура трека многозарядного иона отличается от структуры треков протонов, α -частиц и ионов легких элементов, объяснение этих результатов стало возможным [73, 74].

В силу высокой ионизирующей способности осколок деления образует на единице длины трека большое число вторичных электронов. В результате оказывается, что треки электронов перекрываются не только в сердцевине, но и за ее пределами, т.е. пиннамбра превращается также в сплошную оболочку. С учетом этих особенностей Мозумдер, Чаттержи и Маги [52] представили трек осколка деления в виде цилиндрической сердцевины радиусом $r_c = 1,5$ нм, окруженной цилиндрической же оболочкой радиусом $r_{sh} = 6$ нм. Уточнение этой модели было дано в работах [73, 74] и в последующих работах автора.

Завершая исторический обзор, отметим, что значительное количество работ посвящено изучению треков в твердых диэлектриках. Исследования в этой области протекали по следующей схеме. Экспериментально было установлено, что в диэлектриках, облученных частицами с различной ионизирующей способностью, не всегда образуются протравленные треки. Для количественной интерпретации этого факта сначала был сформулирован критерий образования треков, а затем были предложены различные механизмы, ответственные за формирование латентных треков. На основе предложенных моделей формирования латентных треков апробировались различные параметры частицы в качестве критерия, определяющего скорость травления трека (см. [5]). В модели ионного взрывного клина, например, предполагается, что только первичные ионизации и возбуждения создают те химически активные дефекты, которые определяют повышенную скорость травления [6].

Однако ясного понимания совокупности процессов и природы дефектов, образующихся при формировании трека, из этих исследований достичь не удалось. Это вызвано тем обстоятельством, что большинство исследований было нацелено на скорейшее использование эффекта образования травимых треков на практике. Для идентификации частиц по геометрическим размерам протравленных треков оказалось достаточным установить связь скорости травления трека с выбранным критерием. Наиболее важный результат этих исследований — установление факта, что треки образуются ионами в области энергий, при которых преобладающими процессами взаимодействия заряженной частицы со средой являются неупругие столкновения [5].

3. Вероятность перехода из одного состояния в другое под влиянием возмущения, зависящего от времени. Принцип адиабатических столкновений и его следствия

3.1. Процессы взаимодействия заряженной частицы со средой и их роль в радиационных превращениях

При прохождении через среду заряженная частица теряет энергию в результате столкновений с электронами и ядрами атомов, а также вследствие сопутствующих процессов образования различного типа излучений (тормозного, переходного, излучения Вавилова — Черен-

кова). Анализ процессов взаимодействия заряженной частицы со средой показывает, что радиационно-химические превращения в основном протекают за счет энергии заряженной частицы, переданной среде в результате неупругих столкновений. В радиационной физике, напротив, изучаются дефекты, первопричиной образования которых являются *упругие* процессы. Роль излучений полагается пренебрежимо малой не только вследствие малости коэффициента конверсии энергии заряженной частицы в излучения, но и вследствие того факта, что энергия этих излучений, как правило, слабо поглощается средой и выносится за пределы облучаемого объема.

Анализ энергетических зависимостей сечений упругого и неупротого рассеяния заряженных частиц на молекуле воды, показывает, что полные сечения упругого рассеяния становятся сравнимыми с сечениями полного неупротого рассеяния и ионизации при энергии ионов менее 1 МэВ (а.е.м.)⁻¹. Однако упругие столкновения, приводящие к разрыву молекулярных связей либо к образованию первичных атомов, имеют малую вероятность (на два и более порядка меньшую) по сравнению с процессами неупротого рассеяния вплоть до значений энергий ~ 10 кэВ (а.е.м.)⁻¹, ниже которых возбуждение электронных состояний невозможно. Поэтому при энергии заряженной частицы, при которой возможны столкновения с возбуждением электронных уровней, вклад процессов упругого рассеяния в формирование трека, вообще говоря, можно не учитывать. Лишь при энергии иона менее 10 кэВ (а.е.м.)⁻¹ формирование трека обусловлено упругими столкновениями.

В подтверждение сказанного на рис. 1 представлены энергетические зависимости различных сечений взаимодействия ионов кислорода с молекулой воды. Полное сечение упругого рассеяния рассчитано в соответствии с правилом аддитивности и представляет собой сумму сечений рассеяния на отдельных атомах, полученных в приближении экранированного кулоновского потенциала (см. [23]). В качестве параметра экранирования принимался радиус экранирования, применяемый для потенциала Томаса — Ферми — Фирсова. Сечение разрыва связи H—OH в молекуле воды есть удвоенное сечение упругих столкновений иона на атоме H, при которых атому передается энергия, превышающая энергию связи H—OH, а именно 5 эВ. Расчет сечений ионизации и неупротого рассеяния (сумма полного сечения возбуждения и ионизации) проводился по формулам, представленным в обзоре [15].

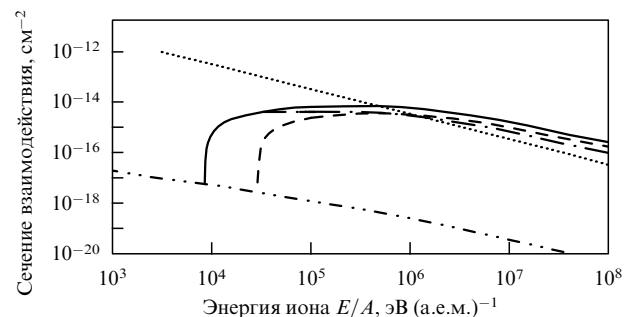


Рис. 1. Полные сечения упругого (……) и неупротого (—) рассеяния, сечение ионизации (— · —), сечение возбуждения (— · —) и сечение разрыва связи H—OH (— · —) при взаимодействии ионов кислорода с молекулой воды.

3.2. Возбуждение атомов и молекул

При неупругих процессах заряженная частица взаимодействует с электронной подсистемой среды. Результатом такого взаимодействия становится возбуждение или ионизация атома (молекулы). В приближении теории возмущений первого порядка вероятность перехода квантовой системы из первоначального (обозначим его индексом 0) в j -е возбужденное состояние равна [75]

$$w_{0j} = \left| \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \langle 0 | V(t) | j \rangle \exp(i\omega_{0j}t) dt \right|^2, \quad (1)$$

где $\langle 0 | V(t) | j \rangle = \int \varphi_j^* V(t) \varphi_0 d\xi$ — матричный элемент оператора возмущения $V(t)$, определенный с помощью невозмущенных функций, а $\hbar\omega_{0j}$ — энергия перехода.

Из формулы (1) следует, что если возмущение $V(t)$ на протяжении периода осцилляций

$$\tau_{qu} = \frac{2\pi}{\omega_{0j}}, \quad (2)$$

характеризующего квантовую систему, меняется незначительно, то подынтегральное выражение в (1) многократно осциллирует за время взаимодействия и значение интеграла в (1) близко к нулю. Взаимодействия такого рода называются *адиабатическими*. При достаточно медленном (адиабатическом) изменении приложенного возмущения система, находившаяся в некотором невырожденном стационарном состоянии, остается в том же состоянии. Электронная подсистема приспособливается к действующему возмущению, и вероятность всякого перехода с отличной от нуля частотой равна нулю. В этом заключается суть *принципа адабатических столкновений*.

При изучении эффектов воздействия заряженных частиц на вещество и, в частности, при изучении формирования пространственной структуры треков необходимо знать не только вероятность, определенную формулой (1), но и вероятность $P_{0j}(b)$ возбуждения или ионизации молекулы в зависимости от расстояния до траектории частицы (т.е. в функции прицельного параметра b). Вероятность $P_{0j}(b)$ находится методом квазиклассического приближения. Задачи такого плана решались в ряде работ для частиц, движущихся как с нерелятивистскими (см. [75, 76]), так и с ультрарелятивистскими скоростями (например, [77]).

В квазиклассическом приближении полагается, что заряженная частица движется вдоль определенной траектории и действует на i -й электрон молекулы с силой $\mathbf{F}_i(\mathbf{R}_i) = e\mathbf{E}_i(\mathbf{R}_i)$, где $\mathbf{E}_i(\mathbf{R}_i)$ — напряженность электрического поля частицы, $\mathbf{R}_i(t) = \mathbf{R}_0(t) + \mathbf{r}_i$ — радиус-вектор от заряда до электрона, $\mathbf{R}_0(t)$ — радиус-вектор от заряда до центра молекулы в момент времени t , а \mathbf{r}_i — радиус-вектор i -го электрона относительно центра молекулы. При прямолинейном движении заряженной частицы $\mathbf{R}_0(t) = \mathbf{b} + \mathbf{v}t$. В момент максимального сближения ($t = 0$) вектор \mathbf{R} имеет координаты $(b, 0, 0)$. Компоненты вектора напряженности электрического поля частицы $\mathbf{E}(\mathbf{R})$ вдоль направлений \mathbf{b} (поперечное) и \mathbf{v} (продольное) описываются формулами [78]

$$E_b = (\gamma Z e b) [b^2 + (\gamma v t)^2]^{-3/2}, \quad (3)$$

$$E_v = (\gamma Z e v t) [b^2 + (\gamma v t)^2]^{-3/2},$$

где $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$ — поренц-фактор. После подстановки (3) в (1) и последующего интегрирования для вероятности перехода получается выражение

$$P_{0j}(b) = \left(\frac{2Z e^2 \omega_{0j}}{\hbar v^2 \gamma^2} \right)^2 \left[|M_{0j}^v|^2 K_0^2(\lambda_{0j} b) + |M_{0j}^b|^2 \gamma^2 K_1^2(\lambda_{0j} b) \right], \quad (4)$$

в котором M_{0j}^v, M_{0j}^b — компоненты матричных элементов, $\lambda_{0j} = \gamma \omega_{0j} / v$, $K_0(\lambda_{0j} b)$, $K_1(\lambda_{0j} b)$ — модифицированные функции Бесселя.

В изотропной среде $|M_{0j}^v|^2 = |M_{0j}^b|^2 = |M_{0j}|^2$. После введения вместо $|M_{0j}|^2$ оптической силы осциллятора согласно формуле $f_{0j} = (2m\omega_{0j}/\hbar)|M_{0j}|^2$ выражение (4) приобретает вид

$$P_{0j}(b) = \frac{2Z^2 e^4 \omega_{0j} f_{0j}}{\hbar m v^4 \gamma^4} [K_0^2(\lambda_{0j} b) + \gamma^2 K_1^2(\lambda_{0j} b)]. \quad (5)$$

При значениях аргумента $\lambda_{0j} b > 1$ функции $K_0(\lambda_{0j} b)$, $K_1(\lambda_{0j} b) \approx (\pi/2\lambda_{0j} b)^{1/2} \exp(-\lambda_{0j} b)$, и вероятность $P_{0j}(b)$ с ростом b экспоненциально затухает. В противоположном случае при $\lambda_{0j} b < 0,4$ функция $K_0(\lambda_{0j} b) \sim -\ln(\lambda_{0j} b)$, а $K_1(\lambda_{0j} b) \sim (\lambda_{0j} b)^{-1}$. В этом случае $P_{0j}(b) \sim b^{-2}$.

В приближении классической динамики столкновений изменение импульса электрона после столкновения определяется интегралом по времени от действующей силы. Продольное электрическое поле E_v в момент времени $t = 0$ меняет свой знак. Интеграл по времени от E_v равен нулю. Следовательно, изменения импульса и энергии электрона составят [78, 79]

$$\Delta p = F_b^{\max} \tau_{coll} = \int_{-\infty}^{\infty} e E(t) dt = \frac{2Ze^2}{bv}, \quad (6)$$

$$\delta E = \frac{(\Delta p)^2}{2m} = \frac{2Z^2 e^4}{mv^2 b^2}.$$

Поскольку $F_b^{\max} = eE_b^{\max} = \gamma Ze^2/b^2$, эффективное время взаимодействия

$$\tau_{coll} = \frac{2b}{\gamma v}. \quad (7)$$

Для перехода в новое энергетическое состояние дискретного либо непрерывного спектра молекуле (как квантовой системе) должна быть передана энергия $\varepsilon_{0j} = \hbar\omega_{0j} = E_j - E_0$ либо $\hbar\omega_{0v}$. В соответствии с принципом *адиабатических столкновений* переход квантовой системы в j -е состояние может осуществляться лишь при прицельных параметрах, удовлетворяющих условию

$$b \leq b_{\text{eff}}(\omega_{0j}) = \frac{\pi \gamma v}{\omega_{0j}}. \quad (8)$$

Из сравнения правой части выражения (8) с аргументом функций Бесселя следует, что возмущение становится адабатическим при аргументе функций Бесселя $\lambda_{0j} b = \pi$. Действительно, при $\lambda_{0j} b = \pi$ значения $K_0^2(\pi) = (0,0296)^2, K_1^2(\pi) = (0,034)^2$ практически близки к нулю и, следовательно, вероятность $P_{0j}(b = b_{\text{eff}}) \approx 0$. Из формулы (8) (как следствие принципа адабатических столкновений) вытекает, что возбуждения, обусловленные переходами валентных электронов ($\hbar\omega_{0j} \leq 10$ эВ, $\tau_{qu} \approx 0,413$ фс), могут осуществляться на значительном удалении от траектории заряженной частицы. Переходы с переносом электронов с внутренних оболочек возможны только для молекул, находящихся вблизи траек-

тории частицы. Для состояний непрерывного спектра разность энергий между соседними уровнями (и ω_{vv1}) может быть бесконечно малой величиной, и, следовательно, адиабатическое условие не выполняется.

3.3. Возбуждение в конденсированной среде

В конденсированной среде из-за межмолекулярных взаимодействий спектр энергетических состояний становится непрерывным. Для непрерывного спектра аналогом $P_{0j}(b)$ является функция $P(\omega, b)$, представляющая плотность вероятности передачи среде энергии $\hbar\omega = \epsilon$ на расстоянии b от пути частицы. Для ее нахождения требуется учитывать следующие обстоятельства. В силу высокой плотности молекул во взаимодействие с заряженной частицей вовлекается коллектив молекул. Вследствие поляризации среды поле заряженной частицы, действующее на молекулу, удаленную от траектории частицы, ослабляется. Поэтому для определения действующих на молекулярный электрон характеристик поля движущегося заряда необходимо использовать представления электродинамики сплошной среды. В работах автора эта задача решена двумя методами, а именно чисто классическим [56] и полуклассическим с использованием представлений квантовой механики [57].

В классическом методе плотность вероятности $P(\omega, b)$ получали на основе связи потерь энергии заряженной частицы $\Delta E(b)$ с $P(\omega, b)$. При этом сами потери $\Delta E(b)$ определялись как изменение внутренней энергии диэлектрика при воздействии поля движущегося заряда. Компоненты напряженностей электрических полей находились из решения уравнений Максвелла [72]. В полуклассическом методе теории возмущений первого порядка исходным выражением служила формула для вероятности переходов в непрерывном спектре в аналогичной выражению (1) форме. Далее полагалось, что электроны в молекуле описываются уравнением Дирака. Оператор взаимодействия электрона с заряженной частицей строился с использованием потенциалов электромагнитного поля, создаваемого движущимся зарядом. Потенциалы определялись из решения уравнений Максвелла. После соответствующих преобразований, детали которых изложены в [57], для $P(\omega, b)$ получено выражение, которое точно совпадает с формулой, полученной в приближении классической электродинамики, и имеет вид

$$P(\omega, b) = \frac{Z^2 e^2 \omega^2}{\pi^2 N \hbar v^4} \operatorname{Im} \left[-\frac{1}{\epsilon(\omega)} \right] \times \times \left(\left| \frac{K_0(\lambda_\omega b)}{\gamma_\omega^2} \right|^2 + \left| \frac{K_1(\lambda_\omega b)}{\gamma_\omega} \right|^2 \right), \quad (9)$$

где $\operatorname{Im} [-1/\epsilon(\omega)] = \epsilon_2(\omega)/[\epsilon_1^2(\omega) + \epsilon_2^2(\omega)]$ — функция энергетических потерь, $\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость среды без пространственной дисперсии, $\gamma_\omega = [1 - \beta^2 \epsilon(\omega)]^{-1/2}$, $\lambda_\omega = \omega/\gamma_\omega v$, а $K_0(\lambda_\omega b)$, $K_1(\lambda_\omega b)$ — как и прежде, модифицированные функции Бесселя.

Для конденсированного состояния по аналогии с возбуждением отдельных атомов (молекул) вводятся "макроскопические" силы осциллятора, такие как спектральная плотность сил осцилляторов

$$F(\omega) = \frac{m\omega}{2\pi^2 e^2 N} \operatorname{Im} \left[-\frac{1}{\epsilon(\omega)} \right] \quad (10)$$

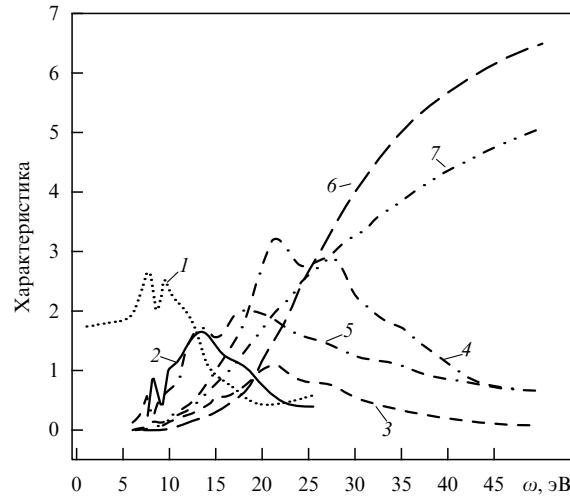


Рис. 2. Зависимости от энергии диэлектрических характеристик воды $\epsilon_1(\omega)$ (1), $\epsilon_2(\omega)$ (2), $\operatorname{Im} [-\epsilon^{-1}(\omega)]$ (3), спектральных плотностей сил осцилляторов $F(\omega)$ (4), $f(\omega)$ (5) и эффективного числа электронов $N_{\text{eff}}^L(\omega)$ (6) и $N_{\text{eff}}^G(\omega)$ (7) воды в конденсированном и газообразном состояниях.

и сила осциллятора перехода молекулы из основного состояния в j -е состояние дискретного либо непрерывного спектра (при ионизации) согласно выражению

$$F_{0j} = \frac{m}{2\pi^2 e^2 N} \int_{\omega_{0j} - \Delta\omega_{0j}}^{\omega_{0j} + \Delta\omega_{0j}} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[-\frac{1}{\epsilon(\omega)} \right], \quad (11)$$

где $\Delta\omega_{0j}$ — полуширина пика функции $\operatorname{Im} [-\epsilon^{-1}(\omega)]$ либо $\epsilon_2(\omega)$. На рисунке 2 показаны энергетические зависимости диэлектрических характеристик воды, спектральной плотности сил осцилляторов $F(\omega)$, определенной по формуле (10), и $f(\omega) = (m\omega/2\pi^2 e^2 N) \epsilon_2(\omega)$. На рисунке приведены также эффективные числа электронов, описываемые выражениями

$$N_{\text{eff}}^L(\omega) = \int_0^\omega F(\omega') d\omega', \quad N_{\text{eff}}^G(\omega) = \int_0^\omega f(\omega') d\omega'.$$

Заметим, что для спектральных сил осцилляторов справедливы условия нормировки

$$N_e = \int_0^\infty F(\omega') d\omega', \quad N_e = \int_0^\infty f(\omega') d\omega',$$

где N_e — число электронов в молекуле.

Для узких пиков функции $\epsilon_2(\omega)$ либо функции $\operatorname{Im} [-\epsilon^{-1}(\omega)]$ с максимумами при частотах ω_{0j} , отвечающих энергиям перехода молекулы из основного состояния в j -е возбужденное, вероятность перехода $P_{0j}(b)$ можно приближенно представить как

$$P_{0j}(b) = \frac{2Z^2 e^4 \omega_{0j}}{mv^4} F_{0j} \left(\left| \frac{K_0(\lambda_{0j} b)}{\gamma_{0j}^2} \right|^2 + \left| \frac{K_1(\lambda_{0j} b)}{\gamma_{0j}} \right|^2 \right), \quad (12)$$

где $\lambda_{0j} = (\omega_{0j}/\gamma_{0j} v)$, $\gamma_{0j} = [1 - \beta^2 \epsilon(\omega_{0j})]^{-1/2}$. Вероятности переходов в непрерывный спектр (при ионизации) рассчитываются интегрированием $P(\omega, b)$ по спектру энергетических потерь в пределах от I до $\hbar\omega$. При выполнении этой процедуры из спектра необходимо вычесть значения, отвечающие переходам в дискретные состояния.

Столкновения в конденсированной среде становятся адиабатическими, когда $\text{Re}(\lambda_{0j}) b_{\text{eff}} = \pi$. В соответствии с этим ограничением формула, определяющая эффективный размер области распределения j -го возбужденного состояния в конденсированной среде в зависимости от энергии перехода $\hbar\omega_{0j}$, имеет вид [56, 57]

$$b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j}) = \frac{\pi \gamma_{0j} v}{\omega_{0j}}, \quad (13)$$

где множитель

$$\gamma_{0j} = \sqrt{2} \left\{ \left[|1 - \beta^2 \epsilon_1(\omega_{0j})|^2 + \beta^4 \epsilon_2^2(\omega_{0j}) \right]^{1/2} + |1 - \beta^2 \epsilon_1(\omega_{0j})| \right\}^{-1/2} \quad (14)$$

выполняет роль *лоренц-фактора в конденсированной среде*. Действительно, при переходе к вакууму он становится равным $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$. При $\epsilon_1(\omega) = 1$ и $\beta^2 \epsilon_2(\omega_{0j}) \ll |1 - \beta^2|$ выражение (12) переходит в (5), а формула (13) — в (8).

4. Природа и спектр квантовых состояний, индуцируемых заряженной частицей

4.1. Квантовые состояния, возбуждаемые заряженной частицей

Переданная среде энергия в отдельном акте взаимодействия — случайная величина, распределенная в диапазоне от ε_{\min} до ε_{\max} . За ε_{\min} принимается энергия, необходимая для перехода молекулы в первое, разрешенное электронно-возбужденное состояние. У большинства веществ это состояние является синглетным. Максимальная энергия ε_{\max} , которую может передать заряженная частица электронной подсистеме, определяется видом заряженной частицы и ее скоростью v . Для тяжелой нерелятивистской частицы $\varepsilon_{\max} = 2mv^2$, где m — масса электрона. В случае электрон-электронных столкновений в качестве ε_{\max} принимается энергия, равная половине энергии электрона: $\varepsilon_{\max} = E_e/2$.

Природа и спектр образующихся квантовых состояний зависят от структуры поглощающей среды, вида заряженной частицы и ее энергии. У заряженной частицы с высокой скоростью величина ε_{\max} может быть значительно больше первого потенциала ионизации молекулы I . Такая частица способна возбуждать не только состояния, природу которых обусловлена переходами валентных электронов на высоколежащие дискретные энергетические уровни, но и состояния, обусловленные переходами электронов внутренних оболочек. В результате последних процессов могут образоваться как дискретные высокоэнергетические состояния в автоионизационной области спектра (так называемые сверхвозбужденные состояния) [80], так и состояния в области непрерывного спектра, которые возникают за счет электронов ионизации внутренних оболочек молекулы и сопровождаются появлением соответствующих вакансий (дырок). Природа высоковозбужденных молекулярных состояний и возможные каналы распада подробно изложены в обзорах [13–15].

В конденсированной среде к обычным возбужденным состояниям одиночных молекул либо фрагментов полимерной цепочки добавляются возбужденные состояния,

которые характеризуются тем, что в возбуждение вовлекается коллектив молекул. К таким коллективным возбужденным состояниям относятся *плазмоны*. Плазмоны представляют собой кванты колебаний электронной плотности плазмы. Для собственных частот плазменных колебаний справедливо уравнение

$$\epsilon(\omega) = 0, \quad (15)$$

которое выполняется для электронов проводимости в металлах. При частотах ω_{pl} (при $\hbar\omega_{\text{pl}} \approx 15–20$ эВ), удовлетворяющих равенству (15), в функции $\text{Im}[-1/\epsilon(\omega)]$ наблюдается широкий максимум.

В среде из связанных электронов коллективные колебания проявляются не в чистом виде, а всегда в сочетании с внутримолекулярными переходами. Поэтому в молекулярных средах коллективные возбуждения плазмонного типа проявляются в виде *продольных поляризационных волн*. Энергия возбуждения таких коллективных состояний находится, как правило, в диапазоне $\hbar\omega_{\text{pl}} \approx 15–25$ эВ. В конденсированной среде энергия, необходимая для переноса электрона в зону проводимости (энергия ионизации), как правило, ниже энергии ионизации молекулы. Вследствие этого большинство возбужденных молекулярных состояний и тем более плазменных лежат выше порога ионизации.

4.2. Спектр квантовых состояний, образуемых первичной частицей

Вероятность появления j -го возбужденного состояния определяется отношением $p_{0j} = \sigma_{0j}/\sigma_{\text{tot}}$, в котором σ_{0j} — сечение возбуждения j -го состояния, а σ_{tot} — полное сечение неупругого рассеяния, равное сумме полного сечения возбуждения $\sigma_{\text{ex}} = \sum_j \sigma_{0j}$ и сечения ионизации $\sigma_i = \int_{\varepsilon_{\min}}^{\varepsilon_{\max}} d\sigma_{0\omega}$. Аналитические выражения для сечений могут быть найдены лишь при существенных допущениях. Процедура их вывода для различных видов сечений на основе формулы Бете изложена в обзорах [15, 81]. Здесь приводятся выражения, полученные автором в рамках квазиклассического приближения с использованием функций $P(\omega, b)$ и $P_{0j}(b)$ [57].

Представив дифференциальное сечение передачи энергии $d\sigma(\omega)$ в виде суммы

$$d\sigma(\omega) = d\sigma_{b>a}(\omega) + d\sigma_{b$$

в нерелятивистском приближении для составляющих сечений в [57] получили следующие формулы:

$$d\sigma_{b>a}(\omega) = 2 \frac{(Ze)^2}{\pi \hbar v^2 N} \text{Im} \left[-\frac{1}{\epsilon(\omega)} \right] \ln \frac{1,123v}{a\omega}, \quad (16)$$

$$d\sigma_{b$$

где $N_{\text{eff}}^G(\omega) = \int_0^\omega d\omega' f(\omega')$ — эффективное число электронов, принимающих участие во взаимодействии (см. рис. 2). Формула (16) применима для переходов, при которых молекулярному электрону передается малый импульс q ($qa < 1$, где a — величина порядка размера атома), т.е. для возбуждения дискретных состояний быстрыми частицами (при $Ze^2/\hbar v \ll 1$). Область применимости формулы (17) ограничена интервалом значений ω от $\omega_1 \approx \hbar/2ma^2$ до ω_{\max} , т.е. для переходов в континуум. В пределе больших ω_{\max} эта формула трансформируется в формулу Резерфорда.

Сечение возбуждения j -го состояния с энергией перехода $\hbar\omega_{0j}$ получается интегрированием по ω формулы (16) в пределах, отвечающих положению максимумов функции $\epsilon_2(\omega_{0j})$ либо $\text{Im}[-1/\epsilon(\omega_{0j})]$. В результате такой процедуры после введения сил осцилляторов для сечения имеем выражение вида

$$\sigma_{0j} = \frac{4\pi Z^2 e^4}{mv^2} \frac{F_{0j}}{\hbar\omega_{0j}} \ln \frac{1,123v}{a\omega_{0j}},$$

из которого следует, что при $v \gg a\omega_{0j}$ для всех состояний логарифмический член слабо меняется с изменением $\hbar\omega_{0j}$. В результате вероятность возбуждения j -го состояния в конденсированной среде $p_{0j} \sim F_{0j}/\omega_{0j}$, а в газообразной среде $p_{0j} \sim f_{0j}/\omega_{0j}$ (поскольку в разреженной среде $\epsilon_1(\omega) = 1$).

Таким образом, с наибольшей вероятностью будут заселяться возбужденные состояния дискретного спектра с наибольшими отношениями $(F_{0j}/\omega_{0j}), (f_{0j}/\omega_{0j})$. Таковыми могут быть не обязательно первые возбужденные состояния. В случае воды переход в паровой фазе, обозначаемый как диффузионные полосы с $\hbar\omega_0 = 13,32$ эВ (см. табл. 1 в [48]), обладает наибольшей силой осциллятора. Причем энергия этого перехода превышает первый потенциал ионизации ($I_1 = 12,6$ эВ), и, следовательно, он относится к классу переходов в сверхвозбужденное состояние (СВС).

4.3. Роль фазового состояния среды в распределении энергии по квантовым состояниям

В конденсированной среде уровень зоны проводимости, как правило, расположен ниже вакуумного уровня. Так, потенциал ионизации в водяном паре $I_g = 12,56$ эВ, тогда как в жидкой воде он равен $I_c = 8,79$ эВ. При переходе от газообразного состояния в жидкое распределение сил осцилляторов сдвигается в сторону высоких энергий (см. рис. 2). Вследствие этого оказывается, что большинство возбужденных дискретных молекулярных состояний лежит выше порога ионизации. Вследствие указанных обстоятельств в воде все состояния, за исключением первого, расположены выше порога ионизации.

Для ряда веществ, находящихся в конденсированном состоянии, высокие значения F_{0j}/ω_{0j} в спектре энергетических потерь имеют переходы в коллективные состояния плазмонного типа. В металлах возбуждение этих состояний является практически единственным каналом потерь энергии заряженной частицы на возбуждение. Время жизни коллективных возбужденных состояний $\sim 0,1$ фс. Характер распада плазмона подобен процессу распада молекулы, поглотившей фотон с энергией $\hbar\omega_{pl}$. Поскольку $\hbar\omega_{pl} \approx 2I$, то распад плазмона приводит к возникновению электрон-ионной пары. При распаде плазмона возникает электрон, который в свою очередь способен возбудить (и даже ионизовать) молекулу среды. В связи с этим роль плазмонов в радиолизе проявляется в том, что образование в конденсированной среде плазмонных состояний и последующий их распад увеличивает долю ионизации в общем спектре по сравнению с их долей, получаемой в газообразной фазе. Вследствие высокой вероятности возбуждения плазмонных состояний (в воде сила осциллятора перехода $\hbar\omega_{pl} = 21,4$ эВ составляет $F_{pl} = 2,03$, см. табл. 1 в [48]) большая доля энергии заряженной частицы затрачивается на возбуждение этих состояний, уменьшая тем самым выход низколежащих возбужденных состояний.

В результате сравнительного моделирования распределения энергии быстрых электронов по квантовым состояниям воды и водяного пара [48] было показано, что *при переходе от пара к жидкой фазе вследствие понижения потенциала ионизации и появления канала возбуждения плазмонных состояний с высокой вероятностью доля ионных пар в спектре первичных активных частиц существенно увеличивается по сравнению с возбужденными состояниями*.

Влияние агрегатного состояния среды на неупругие потери энергии заряженной частицы на примере воды рассмотрено автором в работе [82]. Сдвиг сил осцилляторов в сторону высоких энергий приводит к тому, что при энергиях заряженных частиц $E < E_b$ (для электронов $E_b = 175$ эВ, для тяжелых частиц $E_b = 320$ кэВ (а.е.м.)⁻¹) ионизационные потери в расчете на единицу массы в водяном паре выше, чем в воде ($S_\rho^v > S_\rho^w$), а при $E > E_b$ соотношение между S_ρ^v и S_ρ^w меняется на обратное ($S_\rho^v < S_\rho^w$). Однако при достижении энергии, при которой становится существенным влияние поляризации среды на уменьшение поля движущегося заряда, соотношение между S_ρ^v и S_ρ^w вновь изменится на неравенство $S_\rho^v > S_\rho^w$ (эффект плотности [15]).

4.4. Роль вторичных электронов в распределении переданной среде энергии

Для переходов в непрерывный спектр согласно (17) $d\sigma(\varepsilon) \sim \varepsilon^{-2}$ ($\varepsilon = \hbar\omega$), и наиболее вероятны переходы с участием электронов валентных оболочек. В случае быстрой частицы, когда $\varepsilon_{max} \gg I$, сечение $\sigma_i > \sigma_{ex}$ (см. рис. 1). Такие частицы с большой вероятностью генерируют ионизованные состояния, чем состояния дискретного спектра. На образование ионизованных состояний уходит значительная часть энергии, переданной среде первичной частицей. Согласно данным работ [48–51] она составляет более 90 % энергии первичного электрона.

При ионизации возникает электрон-ионная пара. Энергия образующегося при этом электрона находится в диапазоне значений $0 < \varepsilon^\delta < \varepsilon_{max} - I$. Электроны с энергией $\varepsilon^\delta > \hbar\omega_{01}$ в свою очередь могут инициировать возбужденные и ионизированные состояния. Таким образом, распределение энергии заряженной частицы по квантовым состояниям электронной подсистемы поглощающей среды осуществляется в результате процессов неупругого рассеяния как первичной частицы, так и вторичных электронов и электронов последующих поколений.

Вторичные электроны в основном образуют такие же квантовые состояния, что и первичная частица. Однако в распределении энергии вторичных электронов имеются, по крайней мере, две особенности. Первая связана с пространственным переносом энергии. Хотя вторичный электрон значительной энергии возникает вблизи следа частицы, его энергия может быть распределена в среде на значительном расстоянии от следа.

Вторая особенность обусловлена тем, что в спектре вторичных электронов $N^\delta(\varepsilon) \sim \varepsilon^{-2}$ и электронов последующих поколений преобладают электроны низких энергий. Большинство из них не может возбуждать высоковозбужденные молекулярные состояния и тем более коллективные состояния плазмонного типа. Вследствие этого в общем спектре возбужденных состояний доля состояний с наименьшей энергией возбуждения

возрастает и тем самым увеличивается доля энергии первичной частицы, затрачиваемой на возбуждение (см. табл. 1 в [50, 51]).

5. Пространственное распределение актов потерь. Трековые формы быстрых заряженных частиц

5.1. Распределение актов потерь энергии вдоль траектории первичной частицы

Между двумя последовательными актами неупругих потерь частица проходит расстояние l_{in} без взаимодействия. Это расстояние называется длиной свободного пробега относительно неупругого рассеяния. Вероятность того, что частица пройдет без взаимодействия расстояние, превышающее l_{in} , равна $P(l_{\text{in}}) = \exp(-N\sigma_{\text{tot}}l_{\text{in}})$, где σ_{tot} — полное сечение неупругого рассеяния частицы в среде. Среднее значение

$$\bar{l}_{\text{in}} = \int_0^\infty l dP(l) = \frac{1}{N\sigma_{\text{tot}}}.$$

При высоких скоростях частицы $\sigma_{\text{tot}} \sim Z_{\text{eff}}^2/v^2$ и, следовательно, $l_{\text{in}} \sim v^2/Z_{\text{eff}}^2$. Здесь и далее Z_{eff} представляет собой эффективный заряд иона. Введение Z_{eff} вместо ядерного заряда иона Z позволяет учесть процессы перезарядки, в результате которых меняется зарядовое состояние сталкивающихся частиц. Зависимость Z_{eff} иона от скорости можно представить в виде [83]

$$Z_{\text{eff}} = Z \left[1 - \exp \left(-\frac{v}{v_0 Z^{3/4}} \right) \right], \quad (18)$$

где v_0 — скорость электрона на первой боровской орбите.

Зависимость \bar{l}_{in} от скорости частицы выглядит следующим образом. Когда начальная скорость иона $v > 5v_0 Z^{3/4}$, то по мере замедления иона \bar{l}_{in} уменьшается, достигает минимального значения, а затем несколько увеличивается. Так, для электронов с энергией, превышающей 0,4 МэВ, средняя длина свободного пробега в воде находится в диапазоне 200–300 нм. По мере замедления электрона до энергии $E_e = 10$ кэВ величина \bar{l}_{in} уменьшается на порядок. При энергии электрона $E_e = 1$ кэВ значение $\bar{l}_{\text{in}} \leq 6$ нм. Ход зависимостей \bar{l}_{in} у протонов и ионов ^{16}O в воде от удельной энергии частицы показывает, что минимальное значение $\bar{l}_{\text{in}} = 0,5$ нм, сравнимое с размером молекулы, у протона наблюдается при энергии $E_p \sim 100$ кэВ, а у иона ^{16}O — при энергии порядка 20 МэВ (а.е.м.)⁻¹. Следовательно, ниже этого значения энергии процесс неупругих потерь у иона ^{16}O вдоль траектории иона является практически непрерывным.

Процедура оценки \bar{l}_{in} с использованием σ_{tot} весьма трудоемка и не всегда может быть реализована, поскольку данные по сечениям σ_{tot} для многих веществ отсутствуют. Поэтому для определения \bar{l}_{in} более удобно воспользоваться средними величинами, характеризующими замедление заряженной частицы, а именно $\bar{\epsilon}_{\text{in}}$ и S_{in} . Первая из этих характеристик

$$\bar{\epsilon}_{\text{in}} = \frac{1}{\sigma_{\text{tot}}} \left[\sum_j \hbar\omega_{0j} \sigma_{0j} + \int_I^{\bar{\epsilon}_{\text{max}}} \hbar\omega \sigma(\omega) d(\hbar\omega) \right]$$

представляет собой энергию, теряемую частицей в среднем в одном акте неупругих потерь, а вторая

$$S_{\text{in}} = N \left[\sum_j \hbar\omega_{0j} \sigma_{0j} + \int_I^{\bar{\epsilon}_{\text{max}}} \hbar\omega \sigma(\omega) d(\hbar\omega) \right]$$

— средние потери энергии на единице длины пути частицы при неупругом рассеянии. Если $\bar{\epsilon}_{\text{in}}$ и S_{in} известны, то средняя длина свободного пробега может быть определена как отношение $\bar{l}_{\text{in}} = \bar{\epsilon}_{\text{in}}/S_{\text{in}}$.

Значения S_{in} для многих веществ известны, а величина $\bar{\epsilon}_{\text{in}}$ для быстрых частиц обычно порядка 40–60 эВ. Если вместо $\bar{\epsilon}_{\text{in}}$ воспользоваться значением наиболее вероятной потери энергии в одном акте $\bar{\epsilon}$, то в результате такой замены отношение $\bar{l}_{\text{in}} = \bar{\epsilon}/S_{\text{in}}$ будет представлять наиболее вероятную длину свободного пробега. Наиболее вероятное значение энергетических потерь соответствует энергии, при которой функция $\text{Im}[-\epsilon^{-1}(\omega)]$ максимальна, т.е. отвечает энергии возбуждения плазмонных состояний ($\bar{\epsilon} \approx \hbar\omega_{\text{pl}} \approx 15–25$ эВ). Используя эти данные, можно более точно определить диапазон значений энергии заряженной частицы, в котором распределение актов потерь можно считать непрерывным.

5.2. Трековые формы, образуемые быстрой первичной частицей, и их пространственные распределения

При высоких скоростях акты потерь энергии изолированы друг от друга. Следовательно, последующие процессы будут протекать в отдельных микрообластях среды, которые в зависимости от размера и формы принято называть либо *трековыми структурами* (формами), либо непосредственно *треками*. Передачи энергии $\hbar\omega \leq 2I$ (где I — энергия ионизации среды) приводят к образованию в среде электронно-возбужденных молекулярных состояний, электрон-ионных пар либо плазмонных состояний. В первых двух случаях переданная среде энергия локализуется на отдельной молекуле (фрагменте полимерной цепи). При возбуждении плазмонного состояния поглощенная средой энергия делокализована по ансамблю молекул. Размер области такой делокализации относительно расстояния от следа первичной частицы определяется формулой $b_{\text{pl}} = \pi v/\omega_{\text{pl}}$ (см. формулу (13)). Образованные при малых передачах энергии, изолированные друг от друга электронно-возбужденные состояния, электрон-ионные пары являются фактически *простейшими трековыми формами*.

Электрон-ионная пара разделена расстоянием r_{th} , которое равно длине термализации электрона с энергией $E_e \leq \hbar\omega_{01}$. Длина термализации зависит от структуры среды. Диапазон изменений значений r_{th} весьма широк — от нескольких единиц до нескольких сотен нанометров [10]. Примем величину r_{th} равной 7 нм. Это значение часто используется в моделях, описывающих диффузионно-контролируемые реакции в треках [10].

Когда $\bar{l}_{\text{in}} \leq r_{\text{th}}$, пары нельзя считать независимыми. При энергии электрона $E_e < 1$ кэВ величина \bar{l}_{in} становится меньше длины термализации r_{th} . Следовательно, при актах потерь энергии $2I < \hbar\omega < 1$ кэВ образуются трековые формы, содержащие несколько первичных активных частиц. В соответствии с классификацией Мозумдера и Маги [10, 31] формы, содержащие от 2 до 10 первичных активных частиц, будем называть *шпорами*, полагая, что шпора имеет сферическую конфигу-

рацию с гауссовым распределением первичных активных частиц в ней. За верхнюю энергетическую границу образования шпоры примем, как и в [31], значение 100 эВ.

В результате перекрытия нескольких шпор возникают трековые формы более сложной конфигурации — от каплеобразной формы (блёбы с энергией образования от 100–500 эВ [28]) до вытянутых вдоль следа первичной частицы форм с симметрией, близкой к цилиндрической (треки), называемых *короткими треками*. Принимая во внимание перекрытие шпор уже на физической стадии, энергетическую границу формирования коротких треков определим в диапазоне значений E_e от 0,5 до 1 кэВ. При энергии, превышающей 1 кэВ, образуется трек-ответвление.

Таким образом, вокруг следа быстрой заряженной частицы в среде рождается спектр трековых форм от простейших (отдельных возбужденных молекул, электрон-ионных пар) до форм более сложной конфигурации. Процентное содержание трековых форм разной конфигурации, образуемых первичной частицей, зависит от начальной энергии последней. Однако эта зависимость для быстрых частиц слабая. Об этом свидетельствуют результаты математического моделирования первичной стадии радиолиза воды электронами, представленные в работах [50, 51].

Согласно результатам работ [50, 51] в процессе деградации первичный электрон с энергией 10 кэВ создает 9,24 одночастичных возбужденных состояний, 34,34 коллективных (плазмонных), 154,33 ионизованных. Из общего числа актов ионизаций в 54,86 актах рождаются вторичные электроны с энергией менее 8,4 эВ. Такие электроны называются *электронами предвозбуждения* [11, 48] или *недовозбуждения* [84] (subexcitation electrons). Поскольку электроны недовозбуждения не способны генерировать электронно-возбужденные состояния, то в таких актах ионизации образуются одиночные электрон-ионные пары.

Как уже отмечалось, коллективные состояния живут короткое время и распадаются с локализацией энергии на какой-либо из молекул. Подобная локализация эквивалентна поглощению молекулой фотона с энергией $\sim 21,4$ эВ. Возбужденная вследствие фотопоглощения такой энергии молекула воды через 0,1–1 фс распадается по каналу ионизации с квантовым выходом, равным 1 [85]. При ионизации образуется электрон с энергией $e' = 21,4 - 8,76 = 12,64$ эВ. Электрон с такой энергией способен инициировать ионизованные либо возбужденные состояния. Таким образом, в результате распада коллективного возбужденного состояния образуется трековая форма, содержащая несколько активных частиц, т.е. шпора.

Часть возбужденных состояний имеют энергию выше, чем потенциал ионизации. Для таких СВС-состояний имеет место конкуренция процессов ионизации и диссоциации. Появляющийся при распаде СВС по каналу ионизации электрон относится к электронам недовозбуждения. Следовательно, при распаде электронно-возбужденных молекул возникают простейшие трековые формы, состоящие из отдельных электрон-ионных пар и пар типа молекула – радикал.

Согласно [48] из общего числа актов возбуждений и ионизаций (197,91), производимых первичным электроном с энергией 10 кэВ, в 98,44 случаях наблюдаются простейшие трековые формы, что составляет 49,74 %

общего числа актов. Учитывая относительно высокий выход простейших трековых форм, необходимо выделить их в отдельную группу, а нижнюю границу формирования шпоры определить равной энергии $E_s = \hbar\omega_{01} + I_c$ вместо принятого значения 6 эВ. Для воды это значение равно 17,16 эВ.

Спектр энергетических потерь определяется структурой вещества и не зависит от вида заряженной частицы. Относительная вероятность потерь энергии заряженной частицы на возбуждение и ионизацию среды ($p_{0j} = \sigma_{0j}/\sigma_{tot}$) зависит от скорости заряженной частицы. Поэтому при равных скоростях заряженные частицы различной природы образуют идентичные трековые формы. Однако распределение трековых форм вдоль траектории первичной частицы будет зависеть от вида частицы, а именно от Z и m_1 . Распределение трековых форм, обусловленных первичной частицей, вдоль траектории определяется стохастическим характером потерь. Это распределение можно характеризовать средней длиной свободного пробега \bar{l}_{in} либо наиболее вероятной длиной свободного пробега $\tilde{l}_{in} = \tilde{e}/S_{in}$. Поскольку $\bar{l}_{in} \sim (v^2/Z_{eff}^2)$, то при одной и той же скорости частица, обладающая большим ядерным зарядом Z (и, следовательно, большим Z_{eff}), проходит меньшее расстояние между актами потерь. Перекрытие трековых структур у такой частицы наступает при более высоком значении скорости.

Влияние массы на распределение актов потерь энергии заряженной частицы проявляется следующим образом. В сечениях неупругих потерь отсутствует в явном виде зависимость от массы. Однако от массы зависит длина замедления частицы. При равных начальных скоростях тяжелая частица обладает большей начальной энергией, чем легкая. В случае идентичных спектров энергетических потерь одинаковая потеря энергии в отдельном акте взаимодействия для легкой частицы составляет значительную часть ее энергии, в то время как для тяжелой частицы эта потеря является малой по сравнению с ее энергией до взаимодействия. Для замедления более тяжелой частицы потребуется и большее число актов потерь. Образующийся в результате перекрытия простейших трековых форм сплошной трек тяжелого иона будет более протяженным, чем трек легкого иона и, тем более, короткий трек электрона.

Вероятность образования трековой формы энергии $\hbar\omega_{0j}$ на расстоянии b от траектории первичной частицы описывается функцией $P_{0j}(b)$. Максимальное значение параметра b не превышает $b_{eff}^c(\omega_{0j})$. Функция $b_{eff}^c(\omega_{0j})$ характеризует ширину распределения трековой формы с энергией образования $\hbar\omega_{0j}$ относительно прямолинейного участка траектории. Если траектория первичной частицы отличается от прямолинейной, распределение трековых форм относительно первоначального направления частицы имеет сложный характер.

Представленные на рис. 3 распределения различных возбужденных состояний ($\hbar\omega_{0j} = 8,4; 11,96; 14,1; 21,4$ эВ) в воде в зависимости от b при скорости частицы $\beta = 0,65$ иллюстрируют изменение соотношения между различными возбужденными состояниями, инициируемыми первичной частицей, относительно расстояния от траектории частицы. Возбуждение первых трех состояний приводит к образованию простейших трековых форм, и, следовательно, их распределения характеризуют плотность таких форм на различных расстояниях от траекто-

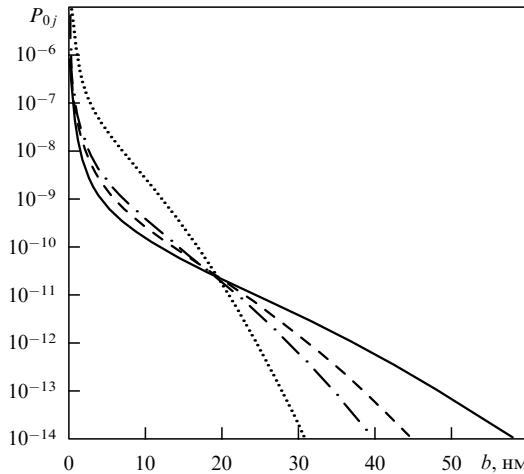


Рис. 3. Зависимость от прицельного параметра вероятности возбуждения состояний с энергиями переходов $\hbar\omega_{0j} = 8,4$ эВ (сплошная линия), 11,96 эВ (штриховая линия), 14,1 эВ (штрихпунктирная линия) и 21,4 эВ (пунктирная линия), образуемых заряженной частицей единичного заряда, движущейся со скоростью $v/c = 0,65$.

рии первичной частицы. Распределение плазмонных состояний характеризует распределение шпор из двух частиц.

По мере замедления частицы ширина распределения состояний сужается в соответствии с изменением $b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j})$. Анализ зависимостей $b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j})$ от v показывает, что для частот ω_{0j} , при которых $\epsilon_1(\omega_{0j}) > 1$, $b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j})$ в конденсированной среде ведет себя следующим образом. С увеличением энергии значение $b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j})$ растет, достигает максимума и затем падает. Максимум имеет место при энергии, при которой $\beta = \epsilon_1^{-1/2}$, т.е. когда возникает излучение Вавилова – Черенкова. Если к тому же на этой частоте $\epsilon_2(\omega_{0j}) < 2[\epsilon_1(\omega_{0j}) - 1]$, реальные значения $b_{\text{eff}}^c(\omega_{0j})$ превышают значения b_{eff}^v , получаемые на этой частоте в вакууме с учетом релятивистского сокращения длины, т.е. по формуле (8). Именно такая ситуация наблюдается в воде для перехода с $\hbar\omega_{01} = 8,4$ эВ, в полиэтилене для перехода $\hbar\omega_{01} = 9$ эВ, а в полиметилметакрилате для переходов $\hbar\omega_{01} = 5,74$ эВ и $\hbar\omega_{02} = 6,23$ эВ. Максимум $b_{\text{eff}}^c(\omega_{01})$ для этих переходов имеет место при $\beta \approx 0,6$, что отвечает энергии иона 300 МэВ (а.е.м.)⁻¹.

На рисунке 4 приведены зависимости размеров эффективных областей возбуждения различных электронных состояний в воде от скорости заряженной частицы, а также зависимость кинетической энергии частицы (в единицах МэВ (а.е.м.)⁻¹) от скорости и изменение b_{eff}^v для первого перехода, рассчитанного по формуле (8). Область распределения трековых форм с ростом энергии, необходимой для ее генерации (от шпоры к блобу и короткому треку), сужается. Так, короткие треки будут находиться вблизи траектории первичной частицы. На значительном удалении от траектории первичной частицы могут располагаться только простейшие трековые формы. Из представленных зависимостей также следует, что релятивистские эффекты в значениях $b_{\text{eff}}^c(\omega_{01})$ начинают проявляться при $\beta = v/c > 0,3$, т.е. при удельной энергии более 50 МэВ (а.е.м.)⁻¹.

В разреженной среде $\epsilon_1(\omega) = 1$, а $\epsilon_2(\omega)$ имеет хотя и малые, но ненулевые значения. Из формул (13) и (14) следует, что при релятивистских скоростях частицы,

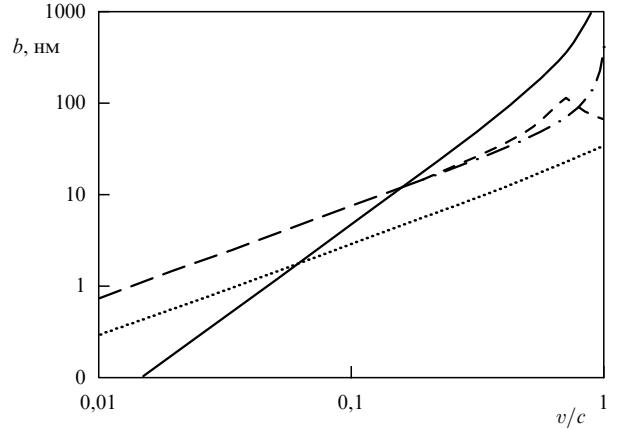


Рис. 4. Зависимости от скорости эффективных размеров областей распределения возбужденных состояний с энергией перехода $\hbar\omega_{01} = 8,4$ эВ (штриховая линия), 21,4 эВ (пунктирная линия), образуемых заряженной частицей. Штрихпунктирной линией на рисунке показан размер области возбуждения для состояния $\hbar\omega_{01} = 8,4$ эВ без учета диэлектрических свойств среды, а сплошной линией — удельная энергия заряженной частицы в единицах МэВ (а.е.м.)⁻¹.

когда становится справедливым неравенство

$$\beta^2 \epsilon_2(\omega_{0j}) \gg |1 - \beta^2|,$$

b_{eff}^g в отличие от b_{eff}^v в вакууме линейно стремится к конечному значению ($\beta \approx 1$)

$$b_{\text{eff}}^g(\omega_{0j}) = \frac{2\pi c}{\omega_{0j} \sqrt{2\epsilon_2(\omega_{0j})}}. \quad (19)$$

Используя связь оптической силы осциллятора, с одной стороны, с мнимой частью диэлектрической проницаемости среды $\epsilon_2(\omega)$ (в расчете на одну молекулу), а с другой стороны, с сечением фотопоглощения, а именно

$$f(\omega) = \frac{m}{2\pi^2 e^2 N} \omega \epsilon_2(\omega) = \frac{mc}{2\pi^2 e^2} \sigma_{\text{ph}}(\omega),$$

формулу (19) можно представить в следующем виде:

$$b_{\text{eff}}^g(\omega_{0j}) = \pi a_0 \left[\frac{4 \text{Ry}}{\hbar \omega_{0j} \alpha a_0 N \sigma_{\text{ph}}(\omega_{0j})} \right]^{1/2}. \quad (20)$$

Из формулы (20) следует, что эффективный размер распределения возбужденных состояний в разреженной среде с ростом энергии частицы стремится к конечному пределу, значение которого зависит от плотности среды и сечения фотопоглощения.

Трековые формы образуются как непосредственно первичной частицей, так и ее δ -электронами. Трековые формы от δ -электронов могут располагаться на значительном удалении от следа первичной частицы. Спектр вторичных электронов, инициируемых быстрым электроном, простирается до энергии $\epsilon_{\text{max}}^\delta = (E_e/2) - I_c$. Максимальная энергия вторичного электрона, образуемого тяжелой частицей, обладающей такой же скоростью, что и электрон, значительно выше. Для нерелятивистских скоростей она почти в 8 раз выше, поскольку при $I_c \ll E_e/2$

$$\frac{2mv^2 - I_c}{mv^2/4 - I_c} \approx 8.$$

Согласно [50, 51] выходы первичных активных частиц слабо зависят от энергии первичного электрона. Поэтому можно ожидать, что увеличение энергетического диапазона вторичных электронов, инициируемых тяжелой частицей, не окажет существенного влияния на соотношения между трековыми формами, полученные в результате математического моделирования для электронов в работе [51]. Однако следует заметить, что различия в спектрах вторичных электронов скажутся на распределении трековых форм относительно траектории первичной частицы. Более высоконергетические вторичные электроны способны образовывать трековые формы на значительном удалении от траектории тяжелой частицы.

По результатам работ [50, 51] в процессе деградации вторичные электроны, инициируемые электроном с энергией 10 кэВ, создают 113 одночастичных возбужденных состояний, 71,7 коллективных (плазмонных) и 297,3 ионизованных. Из общего числа актов ионизации в 209,4 актах появляются вторичные электроны с энергией менее 8,4 эВ. В общем числе актов одночастичных возбуждений значительная часть (53,2) приводит к первому возбужденному состоянию. Сдвиг распределений в сторону преимущественного образования простейших трековых форм обусловлен значительным содержанием низкоэнергетических электронов в спектре вторичных электронов.

Пространственное распределение трековых форм от вторичных электронов имеет сложный характер. Деградация энергии вторичных электронов в среде происходит в результате каскада столкновений с участием электронов, инициируемых непосредственно первичной частицей, а также электронов последующих поколений. Продолжить такой каскад можно лишь методами математического моделирования. Однако качественно распределение трековых форм от вторичных электронов можно представить следующим образом. Низкоэнергетические электроны деградируют вблизи траектории первичной частицы. Следовательно, простейшие трековые формы, образуемые ими, расположены вблизи следа первичной частицы. Электроны высоких энергий, напротив, способны сформировать сложные трековые формы на значительном удалении от траектории первичной частицы. Такой характер распределения трековых форм от вторичных электронов сглаживает асимметрию в пространственном распределении первичных активных частиц (и трековых форм) разной природы, созданную первичной частицей.

6. Структура протяженных треков тяжелых ионов различной природы

6.1. Общие представления о треках ионов

Условия формирования протяженных треков тяжелых ионов четко не определены. В качестве граничной энергии, ниже которой протон образует трек в виде ионной колонны, Грэй [26] предложил значение 3 МэВ. Если исходить из верхней энергетической границы 5 кэВ, определенной для короткого трека электрона в [31], протяженный трек протона должен формироваться при энергии порядка 10 МэВ. При этой энергии среднее расстояние между актами неупругих потерь в воде составляет 10 нм. Это значение превышает размер

шпоры, и шпоры перекрываются лишь на химической стадии радиолитических превращений.

Перекрывание шпор на физической стадии имеет место, когда средняя длина свободного пробега заряженной частицы относительно неупругого рассеяния \bar{l}_{in} становится меньше размера шпоры. Примем за радиус средней шпоры на физической стадии величину $r_s \approx 2-3$ нм. Средняя длина свободного пробега, равная 2–3 нм, наблюдается у протона в воде при энергии 1–2 МэВ. Исходя из этих соображений, трек протона можно рассматривать сплошным при энергии протона $E_p \leq 2$ МэВ. Из предыдущих оценок величин \bar{l}_{in} следует, что сплошной трек у иона с ядерным зарядом Z (при $Z > 1$) будет наблюдаться при энергии $E_Z \leq 2Z_{\text{eff}}^2$ МэВ (а.е.м.)⁻¹.

Вследствие стохастичности процессов взаимодействия треки отдельных частиц, вообще говоря, непохожи друг на друга, и радиационные превращения в каждом треке носят индивидуальный характер. Следовательно, при облучении среды малым флюенсом частиц возможны флуктуации радиационных эффектов. При облучении большим флюенсом частиц можно полагать, что радиационный эффект, усредненный по числу частиц, будет равным эффекту от отдельного трека, сформированного в модели непрерывного замедления.

По современным представлениям тяжелый ион формирует сплошной трек конусообразной формы, состоящий из сердцевины и окружающей сердцевину оболочки. Сердцевина заполняется трековыми формами, образованными как непосредственно первичным ионом, так и его вторичными электронами. В силу азимутальной симметрии и высокой концентрации трековые формы перекрываются и теряют индивидуальность. В результате этого сердцевину можно рассматривать как область однородного распределения первичных активных частиц. Поскольку траектория тяжелого иона практически прямолинейна, распределение активных частиц в сердцевине можно характеризовать радиальной функцией распределения.

Общепринятое определения размера сердцевины трека не существует. В радиационной химии за радиус сердцевины трека принимается эффективное значение прицельного параметра, получаемое исходя из принципа адиабатических возмущений для перехода системы в наименее электронно-возбужденное состояние с энергией возбуждения $\hbar\omega_{01}$, а именно:

$$r_c = b_{\text{eff}}(\omega_{01}) = \frac{\pi\gamma_{01}v}{\omega_{01}}. \quad (21)$$

Выделение в треке сердцевины радиусом, определенным формулой (21), имеет смысл для тех ионов, для которых за пределами r_c первичные активации локализованы в отдельных треках δ -электронов. При этом концентрация первичных активаций в самой сердцевине не превышает величины, при достижении которой меняется качественный состав сердцевины и начинают проявляться кооперативные эффекты. Если треки δ -электронов перекрываются на расстоянии $r_0 > r_c$, то разумно за радиус сердцевины принять значение r_0 . Такая ситуация может наступить в конце треков тяжелых ионов. Если же некоторый объем трека, как будет показано далее для многозарядных ионов типа осколков деления, качественно отличается от остальной части трека, то в основу

выбора размера сердцевины должны быть положены другие принципы.

Согласно рис. 4 размер сердцевины трека в воде, определенный формулой (21) для первого перехода в синглетное состояние ($\hbar\omega_0 = 8,4$ эВ), с увеличением скорости ведет себя следующим образом. В области нерелятивистских энергий радиус сердцевины растет монотонно ($r_c \approx \pi v/\omega_0$), а затем после достижения максимума при $\beta = 0,693$ уменьшается, т.е. происходит *релятивистское сжатие сердцевины*.

Спектр первичных активных частиц, образуемых первичным ионом, и их радиальные распределения $N_{0j}^p(r)$ определяются с помощью функции $P_{0j}(b)$ согласно выражению $N_{0j}^p(r) = NP_{0j}(r)$ (при $r \equiv b$). Для нерелятивистской частицы в хорошем приближении $N_{0j}^p(r)$ аппроксимируется формулой

$$N_{0j}^p(r) = \frac{2Z_{\text{eff}}^2 e^4 F_{0j} N}{mv^2 \omega_{0j} r^2} \exp\left(-\frac{\omega_{0j}^2 r^2}{2v^2}\right), \quad (22)$$

которая получается из (13) при $\gamma_{0j} \approx 1$, если использовать приближенное равенство [73, 86]

$$x^2 [K_0^2(x) + K_1^2(x)] \approx \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right).$$

Спектр первичных активных частиц, образуемых вторичными электронами в сердцевине, и распределение их по объему сердцевины могут быть определены лишь с помощью математического моделирования либо из спектра деградации электронов согласно выражению

$$N_{0j}^\delta(r) = N \int_{\epsilon_0}^{\epsilon_{\max}(r)} d\sigma_{0j}(\epsilon) Y(\epsilon^\delta, r).$$

Но нахождение спектра деградации — не менее сложная задача, которая также может быть решена математическим моделированием [67]. Даже при грубом приближении, основанном на предположении, что энергетическое распределение вторичных электронов по мере удаления от оси трека не меняется, все равно остается сложной задача нахождения зависимости $\epsilon_{\max}(r)$.

Для приближенных оценок распределения активных частиц в сердцевине можно воспользоваться соображением, что в результате воздействия вторичных электронов асимметрия в распределении активных частиц разной природы, созданная первичным ионом, сглаживается. Используя это обстоятельство, радиальное распределение можно представить как

$$N_{0j}(r) = N_{0j}^p(r) + N_{0j}^\delta(r) = \frac{D(r)}{g_j},$$

где $D(r)$ — радиальное распределение энергии, которое равно сумме радиального распределения от первичной частицы и от вторичных электронов: $D(r) = D^p(r) + D^\delta(r)$. Величина g_j — выход первичной активной частицы j -го типа. В качестве значений g_j для воды можно воспользоваться данными, полученными методом машинного моделирования в работах [48–51].

Распределение $D^p(r)$ равно интегралу по энергии от функции $P(\omega, b)$ и для нерелятивистских частиц имеет вид

$$D^p(r) = \frac{2Z_{\text{eff}}^2 e^4 N}{mv^2 r^2} \int_{\omega_0}^{\omega_r} F(\omega) \exp\left(-\frac{\omega^2 r^2}{2v^2}\right) d\omega. \quad (23)$$

В формуле (23) верхний предел интегрирования определяется на основе принципа адиабатических столкновений и, следовательно, равен $\omega_r = \pi v/r$. Из-за сложной зависимости спектральной плотности сил осцилляторов $F(\omega)$ аналитический вид $D^p(r)$ можно получить лишь при упрощающих предположениях. Анализ $D^p(r)$ показывает, что $D^p(r) \sim r^{-k}$ с показателем $k > 2$.

Для распределения $D^\delta(r)$, напротив, имеются аналитические выражения. Обобщая полученные в [59–63, 73] выражения, распределение $D^\delta(r)$ можно представить следующей формулой:

$$D^\delta(r) = \frac{Z_{\text{eff}}^2 e^4 N N_{\text{eff}}(\epsilon_{\max})}{mv^2 r^2} \left(1 - \frac{r}{r^\delta}\right), \quad (24)$$

где $N_{\text{eff}}(\epsilon_{\max})$ — эффективное число электронов в молекуле, из которых могут быть образованы вторичные электроны, а r^δ — условный радиус оболочки. В пренебрежении угловым распределением вторичных электронов в цитируемых выше работах r^δ принимался равным линейному пробегу δ -электрона R_{\max}^δ , обладающего энергией $\epsilon_{\max}^\delta = \epsilon_{\max} - I$.

С учетом углового распределения вторичных электронов размер области распределения их энергии сужается и ограничивается радиусом $r^\delta = \eta R_{\max}^\delta$. В модели непрерывного замедления электронов значение константы η можно найти из условия экстремума зависимости $r(\epsilon) = R(\epsilon) \sin \theta$, определяемой расстоянием, на которое может удалиться от оси трека электрон с энергией ϵ , вылетающий с оси трека под углом θ . Поскольку энергия электрона ϵ и направление вылета θ связаны соотношением $\epsilon = \epsilon_{\max} \sin(\theta/2)$, то $r(\epsilon) = R(\epsilon)(1 - \epsilon/\epsilon_{\max})^{1/2}$. Полагая далее, что $R(\epsilon) = \xi \epsilon^\gamma$, из условия экстремума получаем, что на максимальное расстояние от оси трека удалится электрон с энергией $\epsilon' = 2\gamma(2\gamma + 1)^{-1}\epsilon_{\max}$. При этом значение $r(\epsilon') = r^\delta$ составит

$$r^\delta = \frac{(2\gamma)^\gamma}{(2\gamma + 1)^{\gamma+0.5}} R_{\max}^\delta.$$

Для нерелятивистских электронов показатель γ в степенной аппроксимации зависимости линейного пробега электрона от энергии $R(\epsilon) = \xi \epsilon^\gamma$ находится в диапазоне 1,5–1,75. Из последней формулы следует, что в диапазоне изменения γ от 1,5 до 1,75 значение η меняется от 0,325 до 0,3. В работе [87] предложено принять $\eta = 0,31$. При таких предположениях $r^\delta \approx 0,31 R_{\max}^\delta$.

В работе [87] разработана программа компьютерного расчета радиального распределения энергии в треке $D(r)$. На рисунке 5 для шести значений удельной энергии представлены результаты расчета радиального распределения поглощенной дозы в треке осколка деления ^{94}Y в полиметилметакрилате. Умножая значения $D(r)$, соответствующие удельной энергии иона $E_{\text{Y}}/94$, на множитель $(Z_{\text{eff}, Z}/Z_{\text{eff}, Y})^2$ при этой энергии, можно получить значения $D(r)$ для иона ядерного заряда Z , отвечающие энергии иона $E_Z/A_Z = E_{\text{Y}}/94$.

Из представленного распределения видно, во-первых, что за пределами области трека, ограниченной радиусом $r \approx 4–5$ нм, наблюдается резкий спад дозы. По мере замедления иона распределения резко уменьшается. Вместе с тем значения доз вблизи оси трека возрастают вплоть до пика Брэгга и лишь после пика падают. Таким образом, с уменьшением энергии до

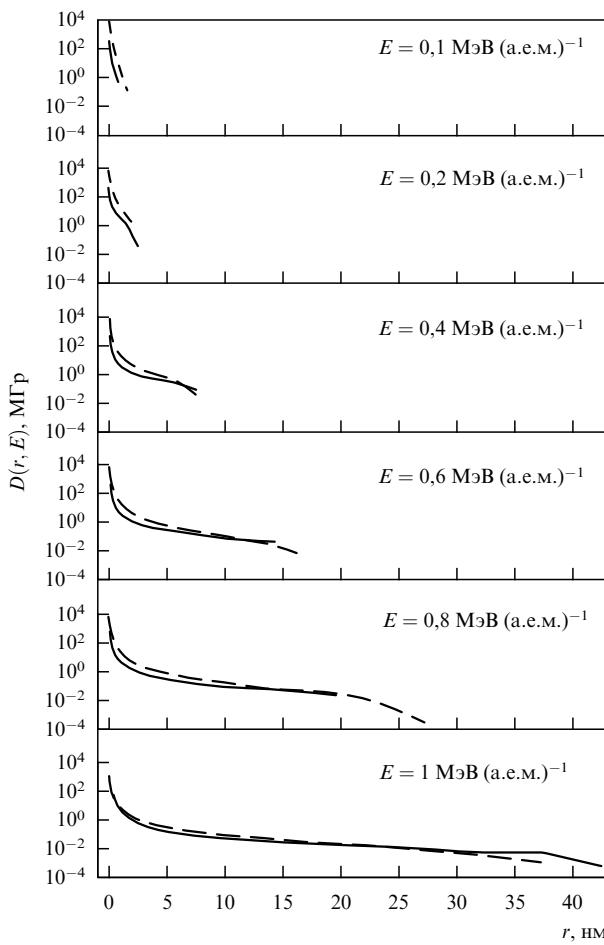


Рис. 5. Радиальные распределения поглощенной дозы в треке осколка деления ^{94}Y в полиметилметакрилате для различных значений удельной энергии. Сплошные линии — результаты расчета по программе работы [87], штриховые — результаты расчета по формуле (25).

значения, отвечающего положению пика Брэгга, плотность радиационных нарушений в области трека, примыкающей к оси, возрастает.

Распределение энергии между сердцевиной и оболочкой выглядит следующим образом. При энергии ионов $E_Z < 2 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ в легких средах в оболочке локализуется менее 25 % энергии, затраченной ионом на образование трека, и эта доля при замедлении иона уменьшается. При $E_Z \approx 0,15 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ оболочка сливается с сердцевиной ($r^\delta = r_c$), и вся энергия локализуется в сердцевине. Такое поведение обусловлено тем, что с замедлением иона оболочка сужается быстрее, чем сердцевина. Поскольку $\varepsilon_{\max}^\delta \approx 2mv^2$, то $R_{\max}^\delta \sim v^{2j}$, и, следовательно, r^δ зависит от скорости иона в степени 3–3,5, т.е. $r^\delta \sim v^{(3-3,5)}$. Зависимость же радиуса сердцевины трека, определенного формулой (21), от скорости практически линейная.

Анализ распределений $D^P(r)$ и $D^\delta(r)$ показывает, что в широком интервале значений r радиальное распределение $D(r)$ определяется $D^\delta(r)$. Поэтому для практического применения вполне пригодно представление распределения $D(r)$ приближенной формулой

$$D(r) = \frac{B}{r^2} \left(1 - \frac{r}{r'} \right), \quad (25)$$

в которой множитель B находится из условия нормировки

$$\int_a^{r'} 2\pi r D(r) dr = S_{in},$$

а именно из равенства полной энергии, поглощенной в объеме трека, ионизационным потерям. При $r' \gg a$ (a — размер молекулы)

$$B \cong \frac{S_{in}}{2\pi \ln(r'/ae)}.$$

Когда размер оболочки превышает размер сердцевины ($r^\delta > r_c$), то $r' = r^\delta \approx 0,31R_{\max}^\delta$. При энергиях иона, меньших значения, при котором оболочка сливается с сердцевиной (т.е. при $r^\delta \leq r_c$), вполне естественно за r' принимать радиус сердцевины, а именно $r' = r_c$. На рисунке 5 приведены результаты расчета $D(r)$ по формуле (25). Видно, что наилучшее согласие имеет место при высоких энергиях иона, когда $r^\delta \gg r_c$, что вполне понятно. При низких энергиях согласие хуже, но не настолько, чтобы пренебречь удобным аналитическим представлением $D(r)$ по формуле (25).

6.2. Зависимость характеристик треков от параметров ионов

Заряженная частица характеризуется тремя основными параметрами: массой покоя m_Z , скоростью v и зарядом Z . Такие характеристики, как энергия, импульс и ионный заряд, являются производными от основных. В модели непрерывного замедления процесс торможения заряженной частицы в среде характеризуется следующими величинами: средней потерей энергии частицы при прохождении единицы длины пути $-dE/dx$ и длиной замедления или линейным пробегом частицы $R(E_0)$.

Для качественной оценки воздействия различных заряженных частиц на вещество в радиационной химии и радиобиологии введена линейная передача энергии (ЛПЭ). Эта характеристика учитывает лишь потери энергии на неупругие (ионизационные потери) и на упругие процессы взаимодействия (ядерные потери). Поскольку на большей части пути частицы доминируют неупругие столкновения, то ЛПЭ иона на этом участке пути определяется энергетическими потерями на ионизацию и возбуждение молекул среды.

Представим ионизационные потери модифицированной формулой Бете (для нерелятивистских скоростей):

$$S_{in} = \left(-\frac{dE}{dx} \right)_{in} = \frac{2\pi Z_{eff}^2 e^4}{mv^2} \frac{N_0 N_c^* \rho}{M} \ln \frac{2mv^2}{I_c^*}, \quad (26)$$

где N_0 — число Авогадро, M — молекулярная масса соединения, ρ — плотность вещества, N_c^* — число электронов соединения, участвующих в торможении, а I_c^* — средний потенциал возбуждения.

Величины N_c^* и I_c^* (входящие в формулу Бете в виде констант) в (26) полагаются зависящими от энергии налетающей частицы, а если быть более точным, то от ε_{\max} . При такой модификации отпадает надобность во введении поправок, учитывающих различия в энергиях связи электронов в атомах, обусловленных распределением электронов по различным энергетическим оболочкам. В общем случае N_c^* и I_c^* определяются с помощью

сил осцилляторов. Приближенно N_c^* и I_c^* можно рассчитать с применением статистической теории атома Томаса–Ферми (см. [88]).

ЛПЭ зависит от Z косвенно через зависимость эффективного заряда Z_{eff} от Z (см. формулу (18)). Анализ показывает, что всегда с увеличением Z ЛПЭ возрастает. От скорости иона v ЛПЭ зависит не только в явной, но и в косвенной форме посредством зависимостей Z_{eff} , N_c^* , I_c^* от скорости. Ход зависимости ЛПЭ иона от скорости выглядит следующим образом. Если ион с ядерным зарядом Z имеет начальную скорость $v > 5v_0Z^{3/4}$, то с его замедлением ЛПЭ вначале растет, достигает максимума и затем уменьшается практически по логарифмическому закону. Если начальная скорость иона $v < 0,05v_0Z^{3/4}$, то сразу наблюдается спад ЛПЭ с замедлением иона.

Продольные размеры трека L в модели непрерывного замедления определяются длиной замедления или линейным пробегом частицы $R(E_0)$:

$$L = R(E_0) = \int_0^{E_0} \left(-\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE, \quad (27)$$

где E_0 — начальная кинетическая энергия иона. Поскольку $-dE/dx$ зависит от Z и v , а E_0 — от массы, то на продольные размеры трека влияют все три параметра иона. Влияние Z и v на продольные размеры проявляется через зависимость $-dE/dx$ от Z и v . Влияние массы не столь очевидно. Оно проявляется через зависимость верхнего предела интегрирования от массы.

Наиболее наглядно зависимость L от массы иона можно проиллюстрировать на примере ионов, представляющих изотопы одного и того же элемента, например водорода. При одинаковых начальных значениях v и Z у дейтрона E_0 будет в 2 раза больше, чем у протона. На большей длине пробега энергетические потери $-dE/dx$ определяются в основном потерями при неупругих столкновениях (см. [22, 23]), которые зависят от удельной энергии иона и практически не зависят от массы. Поэтому, переходя от интегрирования по кинетической энергии к интегрированию по удельной энергии, получим

$$L_Z \approx A_Z \int_0^{E_0^Z/A_Z} \left(-\frac{dE}{dx} \right)^{-1} d\left(\frac{E}{A_Z}\right).$$

Применимально к дейтрону и протону из последнего выражения следует, что $L_D \approx 2L_H$. Поэтому при одинаковых начальных значениях v и Z протон замедлится до конечной энергии на меньшей длине, чем дейтрон. С точки зрения физики атомных столкновений это означает, что при одинаковом характере потерь энергии дейтрону потребуется практически в 2 раза больше столкновений, чтобы растратить свою энергию, и пройти путь в 2 раза длиннее.

Радиальные размеры трека (сердцевины, оболочки) определяются только скоростью частицы v . По мере замедления иона размеры сердцевины и оболочки уменьшаются. Как уже отмечалось, сжатие размеров трека осуществляется так, что оболочка сжимается более резко, чем сердцевина.

Локальные концентрации первичных активных частиц от параметров ионов зависят следующим образом. Во-первых, с ростом Z они естественно увеличиваются.

Зависимость от скорости сложная. При замедлении иона область радиального распределения сужается, трансформация же распределения происходит следующим образом. Если скорость иона $v > 5v_0Z^{3/4}$, то по мере его замедления локальные концентрации вблизи оси трека сначала растут, достигают максимума и затем падают, т.е. изменяются подобно изменению ЛПЭ.

При удалении от оси трека в локальных концентрациях с замедлением иона наблюдается резкий спад к нулевым значениям на границе объема трека. Однако при такой трансформации радиального распределения локальных концентраций активных частиц оказывается, что средние концентрации как в сердцевине трека, так и в объеме трека с замедлением иона возрастают. Это означает, что с уменьшением объема сердцевины и полного объема трека интенсивность радиационного воздействия на эти объемы увеличивается.

За меру интенсивности радиационного воздействия на объем трека, определенный размером сердцевины, можно принять среднюю поглощенную дозу в сердцевине трека D_c . Введение же средней дозы в полном объеме трека не всегда правомочно, поскольку в оболочке первичные активные частицы распределены, вообще говоря, в неперекрывающихся трековых структурах (формах), образованных электронами, т.е. в шпорах, блоках и коротких треках.

В зависимостях средней дозы D_c от параметров ионов наблюдается следующая картина. Величина D_c растет с увеличением Z и с уменьшением скорости. Зависимость D_c от массы проявляется в характере изменения D_c вдоль пробега. При прочих равных условиях (при равенстве начальных Z и v) в треке тяжелого иона D_c вдоль пробега иона растет более плавно, чем в треке легкого иона. Изменение D_c от одинаковых начальных значений до одинаковых же конечных значений в треке тяжелого иона происходит на большей длине пробега, чем в треке легкого.

Из характера радиального распределения поглощенной веществом энергии первичного иона, показанного ранее (см. также рис. 3), можно видеть, что наиболее высокое значение дозы наблюдается в центральной цилиндрической области трека, ограниченной радиусом $r \approx 4–6$ нм. За пределами этого радиуса происходит резкий спад дозового распределения (на два порядка и более). Поэтому целесообразно еще ввести среднюю дозу в области трека, ограниченной радиусом $r_0 = 4$ нм, $D(r \leq r_0)$. По мнению автора (см. [87]), вводимая характеристика $D(r \leq r_0)$ является мерой интенсивности радиационных нарушений в центральной области трека и, следовательно, эту характеристику можно принять в качестве аргумента функции, определяющей скорость травления диэлектрика по треку.

На рисунке 1 работы [89] приведены результаты расчета D_c в треках различных ионов в воде, полиэтилене и полистироле в зависимости от удельной энергии иона E_Z/A_Z , а также значения ионизационных потерь S_{in} и изменение r_c . Подобные зависимости характеристик треков ионов ^{40}Ar , ^{94}Y в полиметилметакрилате до энергии 2 МэВ (а.е.м.)⁻¹ приведены на рис. 6. Поскольку радиальные размеры трека зависят от скорости иона, то при таком представлении изменения r_c и r^δ для всех ионов будут одинаковыми. Такое представление характеристик на одном графике дает возможность наглядно анализировать отличия в харак-

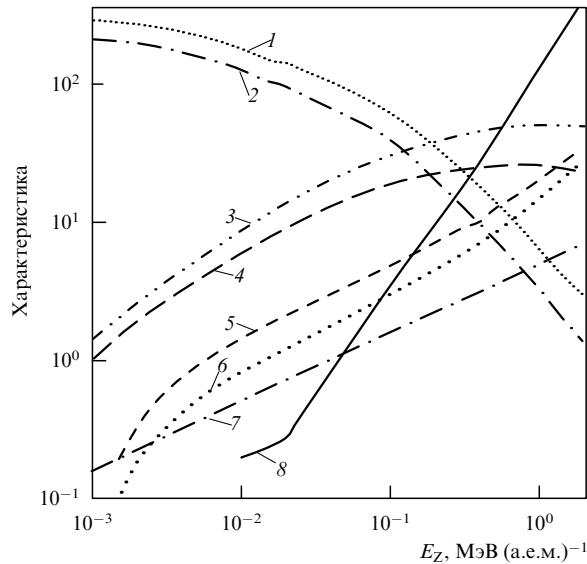


Рис. 6. Зависимость характеристик треков ионов ^{40}Ar , ^{94}Y в полиметилметакрилате от удельной энергии: 1, 2 — дозы D_c в сердцевине треков ионов ^{94}Y и ^{40}Ar соответственно, МГр, 3, 4 — ионизационные потери S_{in} ионов ^{94}Y и ^{40}Ar соответственно, ГэВ $\text{см}^2 \text{г}^{-1}$, 5, 6 — остаточные пробеги R_Z ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , мкм, 7 — радиус r_c сердцевины трека ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , нм, 8 — пробег δ -электрона R_{\max}^{δ} максимальной энергии, нм.

теристиках треков при равенстве не только удельных энергий (скоростей), но и других характеристик. Например, проецируя с кривых S_{in} одинаковое значение ЛПЭ на кривые D_c и r_c , можно получить их значения и выяснить, как D_c меняется в зависимости от заряда иона Z .

Отличия в треках нагляднее проявляются, если представлять изменение характеристик в зависимости от остаточного пробега

$$R_r(E) = \int_0^E \left(-\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE.$$

Используя такое представление, можно проследить за изменением характеристик треков вдоль пробега иона. Действительно, разность $R_r(E_0) - R_r(E_1) = X(E_0, E_1)$ представляет собой расстояние, которое проходит ион в процессе замедления от начальной энергии E_0 до энергии E_1 . На рисунке 7 приведены характеристики треков ионов ^{40}Ar , ^{94}Y с начальной энергией $E_0^H/A_Z = 2 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ в полиметилметакрилате в зависимости от R_r . Если сдвинуть зависимости характеристик ^{40}Ar вправо до совмещения с границей остаточного пробега иона ^{94}Y энергии 2 МэВ (а.е.м.) $^{-1}$, то, двигаясь затем справа налево, можно наблюдать изменение вдоль пробега характеристик треков ионов ^{40}Ar , ^{94}Y , обладающих в начальный момент одинаковыми скоростями. Представим сравнительный анализ структур треков различных ионов при равенстве отдельных характеристик частиц и треков. Рассмотрение начнем со случая равенства двух параметров ионов — Z и v .

6.3. Отличия в треках ионов при равенстве Z и v

Как уже отмечалось, такая ситуация для тяжелых ионов возможна при облучении среды изотопами одного и того же элемента. Поскольку в выражения

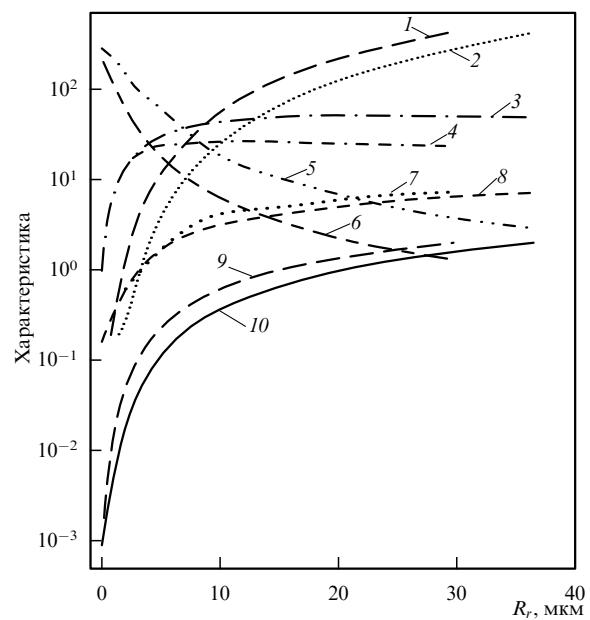


Рис. 7. Зависимость характеристик треков ионов ^{40}Ar , ^{94}Y в полиметилметакрилате от остаточного пробега: 1, 2 — пробеги δ -электронов R_{\max}^{δ} максимальной энергии, образованных ионами ^{40}Ar и ^{94}Y , нм, 3, 4 — ионизационные потери S_{in} ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , ГэВ $\text{см}^2 \text{г}^{-1}$, 5, 6 — дозы D_c в сердцевине треков ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , МГр, 7, 8 — радиусы r_c сердцевины треков ионов ^{40}Ar и ^{94}Y соответственно, нм, 9, 10 — энергии ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , МэВ (а.е.м.) $^{-1}$.

для сечений и ЛПЭ масса иона в явном виде не входит, отличия в треках при равенстве Z и v не столь прозрачно видны. В представлении характеристик треков от удельной энергии изменение всех характеристик, за исключением пробега $R(E_0)$, будут идентичными. В представлении зависимостей от остаточного пробега отличия проявляются. Продемонстрируем влияние массы иона на структуру трека на примере протона и дейтрана.

Поскольку при $E_0^H/A_H = E_0^D/A_D$ $E_0^D = 2E_0^H$, то $L_D \approx 2L_H$. Вследствие этого изменение характеристик трека дейтрана по направлению пробега будет более плавным, чем у протона. На рисунке 8 показаны зависимости характеристик протона, дейтрана и их треков в лавсане в функции $X(E_0, E) = R_r(E_0) - R_r(E)$ при $E_0^H/A_H = E_0^D/A_D = 2 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$. Из представленных данных ясно видно, что эффекты воздействия на вещество протонов и дейтранов различаются. В зависимости от толщины облучаемого слоя вещества различия проявляются в следующем. При толщине пленки $t \approx R_D$ толщина облучаемого слоя дейтранами составит $t_{rad}^D = t \approx R_D$, тогда как при облучении протонами $t_{rad}^H = t/2 \approx R_H$.

В пленке толщиной $t \approx R_H = R_D/2$ протон практически затормозится полностью. Дейтран через такую пленку пройдет, лишь частично изменив свою энергию (см. рис. 8). В результате оказывается, что усредненные по толщине пленки значения ЛПЭ, дозы в сердцевине трека протона и в цилиндрической области радиусом $r = 4$ нм выше, чем в треке дейтрана ($S_{in}^H > S_{in}^D$, $D_c^H > D_c^D$, $D^H(r \leq 4) > D^D(r \leq 4)$). Если воспользоваться концепцией ЛПЭ, то в этом случае облучение дейтранами проявляется как облучение излучением *низкой* ЛПЭ, а не протонами. Подобная ситуация будет

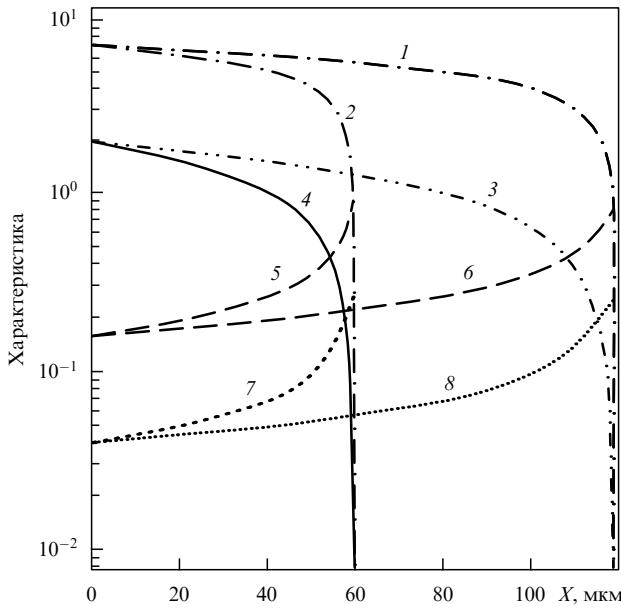


Рис. 8. Изменение вдоль пробега характеристик треков ионов Н и D с одинаковой начальной скоростью ($E_Z = 2$ МэВ (а.е.м.) $^{-1}$) в ПЭТФ: 1, 2 — радиусы сердцевины r_c ионов D и H, нм, 3, 4 — энергии E ионов D и H, МэВ (а.е.м.) $^{-1}$, 5, 6 — ионизационные потери S_{in} ионов H и D, ГэВ $\text{см}^2 \text{г}^{-1}$, 7, 8 — дозы $D(r \leq 4)$ ионов H и D, МГр.

наблюдаются при облучении пленок электронами и протонами.

6.4. Отличия в треках ионов при равенстве Z и E_0

Поскольку такая ситуация для тяжелых ионов также может осуществляться при облучении среды изотопами одного и того же элемента, то отличия в треках проиллюстрируем на примере протона и дейтрона. На рисунке 9 показаны изменения вдоль пробега характеристик частиц и треков протона и дейтрона с одинаковыми начальными кинетическими энергиями $E_0 = 2$ МэВ. Из представленных на рисунке зависимостей видно, что продольные и радиальные размеры трека дейтрона значительно ниже, чем у протона, в то время как ЛПЭ, напротив, выше. В результате оказывается, что хотя дейтрон воздействует на меньший объем среды, однако это воздействие более интенсивное ($\bar{D}^H(r \leq 4) < \bar{D}^D(r \leq 4)$), чем воздействие протона. Если снова воспользоваться концепцией ЛПЭ, то в этом случае облучение дейтронами проявляется как облучение излучением *высокой* ЛПЭ, а не протонами. Причина таких различий состоит в том, что дейтрон в данном случае является низкоскоростной частицей по сравнению с протоном, а как было показано ранее, с понижением скорости интенсивность воздействия иона на среду возрастает.

6.5. Отличия в треках ионов

при равенстве начальных значений ЛПЭ

При равенстве начальных значений ЛПЭ все параметры частиц различаются. Соотношения между характеристиками треков зависят от того, на каких участках зависимости ЛПЭ от скорости иона v (слева либо справа от максимума) расположены начальные значения ЛПЭ. При этом возможны, вообще говоря, четыре варианта соотношений между скоростями тяжелого и легкого

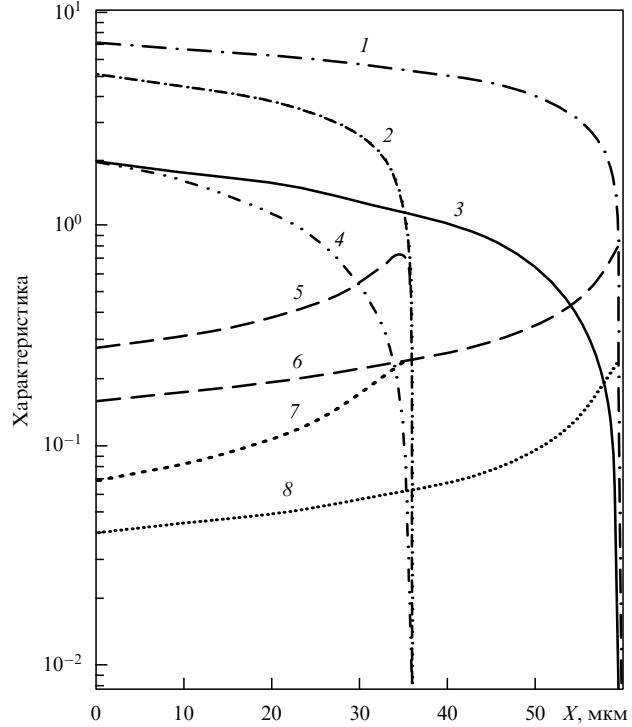


Рис. 9. Изменение характеристик треков вдоль пробега ионов Н и D одинаковой начальной энергии ($E_0 = 2$ МэВ) в ПЭТФ: 1, 2 — радиусы сердцевины r_c ионов H и D, нм, 3, 4 — энергии ионов H и D, МэВ (а.е.м.) $^{-1}$, 5, 6 — ионизационные потери S_{in} ионов D и H, ГэВ $\text{см}^2 \text{г}^{-1}$, 7, 8 — дозы $D(r \leq 4)$ ионов D и H, МГр.

иона. В первом варианте, когда $v_T, v_L > 5v_0Z^{3/4}$, значения ЛПЭ обоих ионов расположены справа от максимума. В этом случае

$$S_{in} \sim \frac{Z_{eff}^2}{v^2} \ln v^2 \sim \frac{Z^2}{v^2} \ln v^2.$$

Из равенства $S_{in}^L = S_{in}^T$ следует, что $Z_{T,eff}^2/v_T^2 \approx Z_{L,eff}^2/v_L^2$. Поскольку $Z_T > Z_L$ и масса $m_T > m_L$, то скорость $v_T > v_L$, $E_T > E_L$, $r_c^T > r_c^L$, $r_T^\delta > r_L^\delta$, $L_T > L_L$, но $D_c^T < D_c^L$. Из этих соотношений следует, что в первом варианте *легкий ион* образует плотный трек.

Во втором варианте, когда $v_T, v_L < 0,5v_0Z^{3/4}$, значения ЛПЭ расположены слева от максимума. В этом случае $S_{in} \sim Z^{1/2} \ln v^2$. Поскольку $Z_T > Z_L$, то из условия $S_{in}^L = S_{in}^T$ вытекает, что скорость $v_T < v_L$. Следовательно, $r_c^T < r_c^L$, $r_T^\delta < r_L^\delta$, но $D_c^T > D_c^L$. В этом варианте уже *тяжелый ион* образует плотный трек на всей длине пробега.

Два других варианта соответствуют смешанному расположению значений ЛПЭ. При $v_L > 5v_0Z^{3/4}$, $v_T < 0,5v_0Z^{3/4}$, значения ЛПЭ легкого иона расположены справа от максимума, а тяжелого иона — слева от максимума. Поскольку в этом случае $v_T < v_L$, то $D_c^T > D_c^L$, и *тяжелый ион* образует плотный трек на всей длине пробега. При обратном соотношении скоростей, когда $v_T > 5v_0Z^{3/4}$, $v_L < 0,5v_0Z^{3/4}$, значение ЛПЭ тяжелого иона расположено справа от максимума, а легкого — слева. В этом варианте $v_T > v_L$. Следовательно, $D_c^T < D_c^L$, и уже *легкий ион* образует плотный трек на всей длине пробега.

Заметим, что не для каждой пары ионов реализуются все четыре варианта. Так, из сопоставляемых на рис. 6 и 7

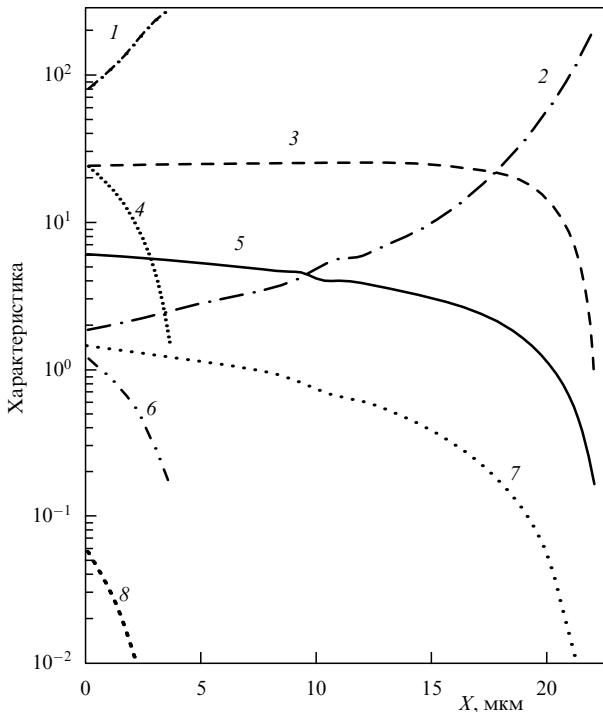


Рис. 10. Изменение вдоль пробега характеристик треков и ионов ^{40}Ar , ^{94}Y , обладающих в начальный момент одинаковыми значениями ЛПЭ ($24 \text{ ГэВ см}^2 \text{ г}^{-1}$) в полиметилметакрилате: 1, 2 — дозы в сердцевине треков D_c ионов ^{94}Y и ^{40}Ar , МГр, 3, 4 — ионизационные потери S_{in} ионов ^{40}Ar и ^{94}Y , ГэВ $\text{см}^2 \text{ г}^{-1}$, 5, 6 — радиусы r_c сердцевины треков ионов ^{40}Ar и ^{94}Y , нм, 7, 8 — энергии E ионов ^{40}Ar и ^{94}Y , МэВ (а.е.м.) $^{-1}$.

характеристик треков и ионов ^{40}Ar , ^{94}Y до удельной энергии $E_Z/A_Z = 2 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ равенство их ЛПЭ возможно только по второму и третьему вариантам. На рисунке 10 показан ход зависимостей характеристик треков и ионов при ЛПЭ = $24 \text{ ГэВ см}^2 \text{ г}^{-1}$. Такое значение ЛПЭ имеет место у ^{40}Ar при удельной энергии $1,5 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$ и расположено справа от максимума, а у ^{94}Y — при $0,06 \text{ МэВ (а.е.м.)}^{-1}$, т.е. слева от максимума. Зависимости, представленные на рис. 10, подтверждают сказанное выше, что в данной ситуации именно **тяжелый ион** образует плотный трек на всей длине пробега.

Сопоставление показывает, что отсутствует прямое соответствие между ЛПЭ и величинами, характеризующими интенсивность воздействия иона на объем трека, например D_c . Вследствие этого обстоятельства ЛПЭ не может служить универсальной характеристикой качества излучения, как полагалось в ранних моделях треков (см. раздел 2). Из-за наличия максимума в зависимости ЛПЭ от энергии даже для отдельной частицы будет наблюдаться неоднозначность в зависимостях радиационных эффектов от ЛПЭ (см. об этом более подробно в [14, 15, 89]).

6.6. Особенности строения трека многозарядного иона

Концентрация первичных активных частиц (ионизованных, электронно-возбужденных состояний) увеличивается с ростом Z_{eff}^2 . Вблизи оси трека очень высока вероятность образования ионизованных состояний, доля которых еще возрастает после последующего распада одночастичных высоковозбужденных состояний, лежащих выше порога ионизации, и состояний плазмонного типа.

Число ионов, образуемых ионом в близких столкновениях, можно оценить с помощью формулы Резерфорда [73]

$$N_i = \frac{2\pi Z_{\text{eff}}^2 e^4}{mv^2} N N_{\text{eff}}(\varepsilon_{\max})(I^{-1} - I_{\max}^{-1}). \quad (28)$$

Первичный ион, воздействуя на электрон, изменяет его энергию. Это изменение в зависимости от прицельного параметра составляет (второе выражение (6))

$$\delta E = \frac{2Z_{\text{eff}}^2 e^4}{mv^2 b^2}.$$

Из этого выражения следует, что передача энергии, равная по величине потенциалу ионизации I , возможна при прицельном параметре, не превышающем

$$b_i^c = \left(\frac{Z_{\text{eff}}^2 2e^4}{v^2 m I} \right)^{1/2} = 2a_0 \frac{Z_{\text{eff}} v_0}{v} \left(\frac{\text{Ry}}{I} \right)^{1/2}. \quad (29)$$

Следовательно, средняя концентрация ионов в цилиндрической области трека, ограниченной радиусом b_i^c ,

$$\bar{N}_i(r \leq b_i^c) = \frac{N_i}{\pi(b_i^c)^2} = N N_{\text{eff}}(\varepsilon_{\max})(1 - I\varepsilon_{\max}^{-1}). \quad (30)$$

При высокой скорости иона $\varepsilon_{\max} \gg I$ и $N_{\text{eff}} \gg 1$. Тогда из формулы (30) следует, что в указанной области трека все молекулы будут ионизованы, причем таким образом, что из них будут выбиты, по крайней мере, все валентные электроны. Об образовании многозарядных ионов в близких столкновениях свидетельствуют теоретические результаты и экспериментальные данные [90–92].

Проведем теперь оценки размера этой области. Согласно формуле (29) величина b_i^c зависит от отношения Z_{eff}/v . При $v < 0,05v_0 Z^{3/4}$ отношение Z_{eff}/v становится не зависящей от скорости величиной, равной $Z_{\text{eff}}/v = Z^{1/4}/v_0$. Подставим это значение в выражение (29). В результате получим максимальное значение параметра b_i^c , равное $b_i = 2a_0 Z^{1/4} (\text{Ry}/I)^{1/2}$. Полагая $I \approx 10 \text{ эВ}$, для иона Хе имеем величину $b_i^c \approx 0,322 \text{ нм}$.

Первичный ион способен создавать ионизованные состояния и за пределами b_i^c в результате далеких столкновений. Расстояние от оси трека, при котором ионизация возможна в далеких столкновениях, определяется из выражения $b_{\text{eff}}^i = \pi \gamma v / I$. Хотя это расстояние может значительно превышать b_i^c , однако с его увеличением вероятность ионизации резко спадает. Поэтому концентрации ионов, образуемых за пределами b_i^c , в большей степени будут определяться ионизациями, производимыми вторичными электронами. Значения концентраций на различных расстояниях от оси трека можно приближенно получить, исходя из радиального распределения дозы. На рисунке 11 представлены зависимости средних доз в треке иона ^{54}Xe в воде для пяти интервалов расстояний, полученные в результате расчета $D(r)$, выполненного по методике [87]. В диапазоне значений $0,5 \leq r \leq 1 \text{ нм}$ средняя доза $\bar{D}(0,5 < r < 1) \approx 32-45 \text{ МГр}$ при изменении энергии иона от 0,1 до 1,5 МэВ (а.е.м.) $^{-1}$.

Для оценки концентраций ионных пар примем энергию, затрачиваемую вторичными электронами на образование одной пары ионов, равной $W_i \approx 30 \text{ эВ}$. В

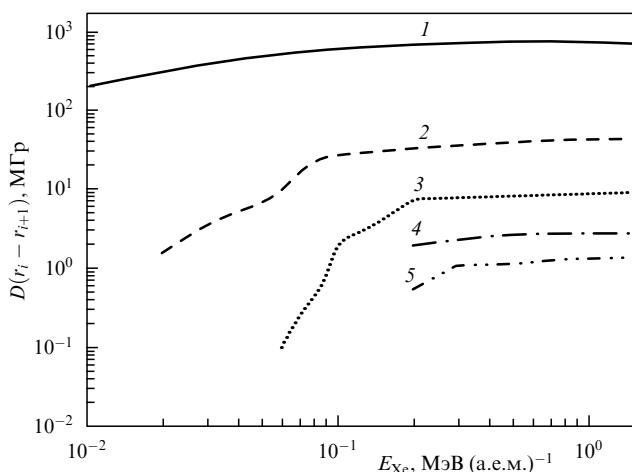


Рис. 11. Зависимости от энергии средних доз в треке иона ^{54}Xe в воде: 1 — в интервале расстояний от оси трека 0–0,5 нм; 2 — 0,5–1 нм; 3 — 1–2 нм; 4 — 2–3 нм; 5 — 3–4 нм.

результате получим, что в области трека $0,5 \leq r \leq 1$ нм средняя концентрация ионных пар $n_i \approx 8,3 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$, что соответствует степени ионизации $\zeta \approx 0,24$. Для значений r , заключенных в интервалах 1–2 нм, 2–3 нм, 3–4 нм, степени ионизации достигают значений $\zeta \approx 5,29 \times 10^{-2}$, $1,7 \times 10^{-2}$, $7,83 \times 10^{-3}$ соответственно. При $\zeta \approx 7,83 \times 10^{-3}$ концентрация ионов составляет $n_i \approx 2,62 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Центральная область трека ($r < 0,5$ нм), как уже отмечалось, не только полностью ионизирована, но содержит многократно ионизованные либо осколочные ионы.

После деградации энергии первичного иона и его вторичных электронов в треке наряду с ионами и возбужденными молекулами присутствуют медленные электроны — электроны недовозбуждения с $E_e^{\text{sub}} < \hbar\omega_0$. В воде энергия таких электронов менее 8 эВ. Образованием электронов недовозбуждения можно считать окончание физической стадии радиационных превращений. Судьба электронов недовозбуждения зависит от степени ионизации среды и, следовательно, от их концентрации. Когда концентрация электронов мала, то при соударениях электрона с молекулами его кинетическая энергия трансформируется в энергию колебательных, вращательных и поступательных степеней свободы молекулы. В результате большого числа таких столкновений энергия электрона снижается до тепловой, и электрон становится термализованным. Продолжительность термализации электронов недовозбуждения зависит от природы и агрегатного состояния среды и составляет от 0,1 пс до 1 нс [84, 93].

Если концентрация электронов n_e достаточно высока (как, например, в треке многозарядного иона), то вначале они будут очень эффективно обмениваться энергией между собой. В результате еще до термализации в них установится равновесное распределение по скоростям. Как уже отмечалось, начальное распределение электронов предвозбуждения по энергии далеко от равновесного. Согласно [94] время релаксации электронов к равновесному распределению определяется выражением

$$\tau_{ee} = \frac{5}{8} \left[\frac{m(kT_e)^3}{\pi} \right]^{1/2} (e^4 n_e \ln \Lambda)^{-1}, \quad (31)$$

в котором $\ln \Lambda \approx \ln (r_D/b_{\min})$ — кулоновский логарифм, r_D — дебаевский радиус, b_{\min} — минимальное значение прицельного параметра. Оценки по формуле (31) показывают, что при средней энергии электронов $\bar{e}_e = (3/2)kT_e \approx 6$ эВ и $n_e \approx 10^{22} \text{ см}^{-3}$ время релаксации электронов $\tau_{ee} \sim 10^{-15}$ с. При равных концентрациях ионов и электронов время релаксации ионов $\tau_{ii} = (M_i T_i^3 / m T_e^3) \tau_{ee}$, и начальное равновесное распределение ионов по скоростям восстанавливается быстрее, чем электронов, поскольку $T_i \approx 10^{-2} T_e$.

Энергию внутреннего возбуждения сложных частиц (стабильных молекул) можно представить в виде суммы энергий электронного, колебательного и вращательного возбуждений [95]. Каждую из степеней свободы молекулы (иона) можно рассматривать как изолированную подсистему. Равновесное распределение в такой подсистеме устанавливается быстрее, чем в системе в целом. Так, вероятность $V-V$ -обмена существенно выше, чем $V-T$ -обмена [95, 96]. Это позволяет степень возбуждения различных состояний характеризовать своей температурой.

При концентрации электронов $n_e > 10^{20} \text{ см}^{-3}$ после 10 фс их можно рассматривать как классический электронный газ с температурой T_e , определяемой из соотношения $\bar{e}_e = (3/2)kT_e$ (где \bar{e}_e — средняя энергия медленных электронов, k — постоянная Больцмана). Такое рассмотрение справедливо при $kT_e > 4$ эВ и концентрациях до $n_e \sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$. При превышении этого значения наступает вырождение и распределение уже подчиняется статистике Ферми–Дирака.

Таким образом, в треке тяжелой ионизирующей частицы нарушается равновесное распределение, существующее до ее прохождения. При этом понятие температуры теряет смысл. Однако можно определить температуры отдельных степеней свободы для каждого компонента, в том числе и для поступательного. Для электронов эта процедура уже выполнена. Для тяжелых частиц вполне очевидно, что T_h равна температуре среды до ионизации, поскольку большую часть своей энергии тяжелая заряженная частица теряет на ионизацию и электронное возбуждение молекул среды, не затрагивая при этом поступательную, вращательную и колебательную степени свободы. Лишь в конце пробега, когда становятся эффективными упругие столкновения, равновесное распределение тяжелых частиц нарушается. Если же распределение Максвелла тяжелых частиц нарушается, то в результате столкновения частиц между собой оно быстро восстанавливается за время $\tau_h < \tau_{ee}$ [94].

При образовании ионизованных состояний доминируют акты ионизации, при которых энергия выбитого электрона мала (что видно, например, из формулы Резерфорда). Такой электрон не может удалиться на значительное расстояние от родительского иона. Следовательно, большинство ионизованных состояний представляет собой ионные пары. В результате этого в объеме трека (за исключением области, прилегающей к оси трека) уже на первичной стадии формирования соблюдается *квазинейтральность*. Когда концентрация ионизованных состояний достигает значений, при которых *дебаевский радиус экранирования*, определяемый по формуле

$$r_D = \left(\frac{kT_e}{4\pi e^2 n_e} \right)^{1/2} \quad (32)$$

Таблица. Зависимости давлений (в единицах $P_{\text{cr}} = 218,4$ бар) и энергий (в расчете на одну молекулу) компонентов плазмы от степени ионизации (при $T_e/T_h = 10^2$)

Степень ионизации	1	0,5	10^{-1}	10^{-2}	10^{-3}	10^{-4}
P_e	101	92	28,3	3,6	0,39	0,04
P_i			$-1,4 \times 10^2$	-7,44	-0,4	-0,02
P_n	0	-3,85	-1,13	1,2	1,45	1,47
E_e	-4,4	-0,64	0,33	$6,3 \times 10^{-2}$	$7,4 \times 10^{-3}$	$7,7 \times 10^{-4}$
E_i			-5,4	-0,29	$-1,6 \times 10^{-2}$	$-6,9 \times 10^{-4}$
E_n	0	-0,162	$-8,85 \times 10^{-2}$	$-2,45 \times 10^{-2}$	$-1,8 \times 10^{-2}$	$-1,74 \times 10^{-2}$

для электронного компонента, становится меньше размера рассматриваемой области трека, то эта область представляет *низкотемпературную плазменную колонку* [97]. Отдельные компоненты такой плазмы находятся в локальных (из-за неоднородного распределения частиц) квазиравновесных состояниях. Поскольку средняя энергия электронов порядка нескольких электронвольт, а тяжелый компонент менее нагрет, то плазма к тому же еще и *неизотермична*.

Таким образом, несмотря на подобие треков различных ионов, с увеличением заряда иона происходит не только *количественное* увеличение концентрации первичных активных частиц, включая заряженные, но и *качественное* изменение структуры трека. Трек иона из частично ионизованной области трансформируется в *низкотемпературную неизотермическую плазму*. Такая трансформация происходит в тех областях трека, где *дебаевский радиус* мал по сравнению с размером области. Для воды при нормальных условиях при степени ионизации $7,83 \times 10^{-3}$, определенной для интервала расстояний от оси трека 3–4 нм, радиус Дебая r_D равен 0,98 нм, т.е. меньше размера интервала. Следовательно, в воде цилиндрическая область трека иона Хе радиусом ~ 4 нм представляет шнур из неизотермичной, неидеальной и пространственно неоднородной плазмы. Впервые на это обстоятельство было указано в [98]. Позднее к этому выводу пришли и авторы работы [99].

Представим результаты описания системы в квазигазовом приближении, полученные в работе [98]. Суть такого описания состояла в следующем. Для релаксационных процессов в треке использовалось кинетическое уравнение Климонтовича для пространственно неоднородной плазмы [100]. Далее методом моментов Грэда были получены уравнения переноса массы, момента и энергии для компонентов плазмы трека. После интегрирования выражений, представляющих собой составляющие моментов разного порядка от интегралов столкновения, были определены вызванные взаимодействием частиц поправки к давлениям и энергиям. Затем была исследована зависимость выражений для давлений P_α и энергий E_α от концентрации заряженных частиц и от соотношения температур электронов и тяжелых частиц. В качестве примера была взята вода, находящаяся до прохождения тяжелого иона в условиях, близких к критическим. Именно таким условиям соответствуют рабочие среды камер Вильсона. Плотность воды в близком к критическому состоянии в 3 раза меньше плотности жидкой фазы при нормальных условиях. Вместе с тем многозарядный ион в подобной среде способен создать высокую концентрацию заряженных частиц.

Из результатов расчета, приведенных в таблице, следует, что когда тяжелый компонент системы обладает низкой температурой (в начальный момент после ионизации), то уже при степени ионизации 10^{-2} давление и полная энергия в системе становятся отрицательными. При высокой концентрации заряженных частиц и низкой температуре T_h данные по P_i и E_i в таблице отсутствуют, поскольку параметры η и γ , характеризующие степень взаимодействия заряженных частиц плазмы, существенно больше единицы, и квазигазовое приближение неприменимо.

Для полностью ионизованной области были проведены оценки величин энергии и давления на основе двух моделей. В модели "желе" электроны рассматриваются как классический газ, в котором равномерно распределены по объему ионы, не взаимодействующие друг с другом вследствие экранирования их электронным облаком [101]. В результате расчета по такой модели для полной энергии получено значение $E = -4,48$ эВ, а для давления $P = 101P_{\text{cr}}$. По другой модели в полностью ионизованной области предполагалось, что классический газ электронов распределен по объему однородно, а распределение ионов — точечное [101]. В результате расчета по такой модели получены значения энергии $E = -6,1$ эВ и давления $P = 61,5P_{\text{cr}}$ (P_{cr} — критическое давление).

Анализ E и P в зависимости от степени ионизации свидетельствует о том, что ионизация молекулярной среды тяжелым ионом приводит после завершения физической стадии к увеличению энергии взаимодействия частиц. Это свидетельствует о том, что в системе либо возможно образование связанных состояний (например, *клusterов*) [102, 103], либо имеет место упорядочение в расположении частиц (например, образование квазиметаллической структуры в случае полной ионизации среды). Время жизни таких состояний будет определяться скоростями процессов переноса энергии электронов и энергии внутренних степеней свободы в поступательную степень свободы тяжелых частиц, т.е. процессами, протекающими на второй, *физико-химической*, стадии радиационных превращений.

7. Представления о процессах релаксации в треке многозарядного иона

7.1. Процессы с участием заряженных частиц

Об эволюции первичного трека известно слишком мало. Из общих представлений процесс развития первичного трека можно представить следующей схемой. На второй,

физико-химической, стадии радиационных превращений происходят перенос энергии на другие степени свободы и быстрые химические реакции, т.е. система стремится к некоторому равновесному состоянию, которое может существенно отличаться от первоначального состояния. Эти отличия проявляются в изменениях как физических свойств, например температуры, давления, так и химического состава среды.

В разделе 6 было показано, что по завершении физической стадии формирования область трека радиусом $\sim 4\text{--}6\text{ нм}$ многозарядного иона представляет собой многокомпонентную *низкотемпературную неизотермическую плазменную колонку*. Отдельные компоненты такой плазмы находятся в локальных (из-за неоднородного распределения частиц) квазиравновесных состояниях. При анализе процессов превращения энергии электронного возбуждения будем исходить из классических представлений о локальных квазиравновесных состояниях компонентов плазмы. Справедливость такого рассмотрения обусловлена тем, что при расстоянии от оси трека $r > 0,5\text{ нм}$ концентрация заряженных частиц уже такова, что классическое приближение вполне оправдано.

Диссипация энергии электронов может осуществляться в результате следующих процессов. Прежде всего электроны могут возбуждать электронные состояния молекул, ионов, включая ионизацию (прямую и ступенчатую). Эти процессы носят пороговый характер [104]. Приведем оценки скоростей этих процессов применительно к воде, используя выражения для сечений возбуждения и ионизации низкоэнергетическими электронами. При максвелловском распределении средняя частота столкновений электронов с возбуждением молекул при $kT_e \approx 4\text{ эВ}$ составляет $v_{en} \sim 1,7 \times 10^{-9} n_e \text{ с}^{-1}$. Если $n_e \approx 10^{22} \text{ см}^{-3}$, то скорость энергетических потерь в этом процессе $q_{ex} \sim 10^{14} \text{ эВ с}^{-1}$.

При прямой ионизации средняя частота столкновений электронов $v_{d,ion} \sim 10^{-9} n_e \text{ с}^{-1}$, и при $n_e \approx 10^{22} \text{ см}^{-3}$ скорость энергетических потерь $q_{d,ion} \sim 10^{14} \text{ эВ с}^{-1}$. При ступенчатой ионизации эти характеристики на несколько порядков выше и соответственно равны $v_{st,ion} \sim \sim 7,3 \times 10^{-7} n_e \text{ с}^{-1}$, $q_{st,ion} \sim 3,7 \times 10^{17} \text{ эВ с}^{-1}$. Максимальная передача энергии нейтральным молекулам в процессах возбуждения и ионизации происходит в той области трека, где степень ионизации $\zeta \approx 0,5$. За счет этих процессов область возбуждения и ионизации расширяется до тех пор, пока температура электронов не становится меньше энергии, необходимой для перехода связанных электронов молекулы в первое возбужденное состояние, либо ширины запрещенной зоны диэлектрика. Движение границы возбуждения, вызванное ионизацией молекул, может иметь характер волны ионизации. Параметры этой волны рассматривались в работах [105, 106].

Ионизация и возбуждение электронных состояний конкурируют с процессами переноса энергии из электронной подсистемы на другие степени свободы, такими как возбуждение колебательных и вращательных уровней и упругие столкновения. Сечения прямого возбуждения колебательных уровней находятся в диапазоне значений $\sigma(v \rightarrow v') \sim 10^{-17}\text{--}10^{-16} \text{ см}^2$, а в области резонансов они на порядок выше [107–109]. В результате этих процессов перенос энергии электронов в колебательную степень свободы может осуществляться со скоростями

$10^{11}\text{--}10^{14} \text{ эВ с}^{-1}$ при указанных выше концентрациях частиц. Возбуждение вращений и упругие столкновения — менее эффективные процессы. В них скорости переноса составляют $\sim 10^{12} \text{ эВ с}^{-1}$. Однако роль упругих столкновений весьма существенна в плазме, состоящей из несвязанных атомов, а также в твердых телах, например в металлах, в одноатомных полупроводниках и диэлектриках. Канал переноса энергии в результате упругих столкновений в этом случае является единственным процессом выравнивания температур электронов и тяжелых частиц. При скорости потерь энергии на упругие столкновения $\sim 10^{12} \text{ эВ с}^{-1}$ выравнивание температур между электронами и ионами происходит за время $\tau_{ei} \geq 10^{-12} \text{ с}$, а между электронами и нейтральными атомами за $\tau_{en} \geq 10^{-11} \text{ с}$.

Следует отметить, что в плазме с участием заряженных частиц возможно протекание различных ион-молекулярных реакций (см. обширную библиографию в обзоре [110]). Наиболее быстрые среди них реакции переноса протона. Хотя ион-молекулярные реакции могут радикально изменить состав ионов в плазме, но большинство из них, во-первых, не меняют степень ионизации в плазме, а во-вторых, слабо способствуют переносу энергии из электронной подсистемы на другие степени свободы. Важной с точки зрения переноса энергии электронов в поступательную энергию тяжелых частиц является диссоциативная рекомбинация электронов со сложными молекулярными ионами. Коэффициент такого процесса может достигать значений $k_{d,r} \sim \sim 10^{-7} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ [108, 110, 111], обеспечивая скорость переноса энергии в поступательную степень свободы до $10^{15} \text{ эВ с}^{-1}$ при $n_e = n_i \approx 10^{22} \text{ см}^{-3}$.

Следовательно, значительная часть энергии электронов уходит во внутренние степени свободы и частично в поступательную энергию тяжелых частиц в результате диссоциативной рекомбинации. Доля энергии, расходуемой на поступательное движение осколков диссоциации, зависит от вида молекулярного иона. При рекомбинации малоатомных ионов она может достигать нескольких электронвольт.

7.2. Диссипация энергии электронно-возбужденных молекул

Диссипация энергии электронно-возбужденных молекул также протекает по нескольким каналам. В спектре электронно-возбужденных молекул высока доля сверхвозбужденных состояний (СВС). Распад таких молекул может идти наиболее эффективно посредством автономизации ($k_{a,i} \sim 10^{13}\text{--}10^{15} \text{ с}^{-1}$), диссоциации ($k_d \sim \sim 10^{10}\text{--}10^{13} \text{ с}^{-1}$) и процессов внутренней конверсии [112, 113]. При этом в результате диссоциации часть внутренней энергии непосредственно переходит в кинетическую энергию фрагментов распавшейся молекулы. В процессах внутренней конверсии (переход из высоковозбужденного состояния в первое возбужденное) энергия электронного возбуждения переходит в колебательную. Скорость таких процессов зависит от вида молекулы. В многоатомных молекулах она может составлять $k_{i,c} \sim \sim 10^{11}\text{--}10^{13} \text{ с}^{-1}$. Внутренняя конверсия малоатомных молекул возможна только в присутствии растворителя. Интеркомбинационная конверсия (переход из первого возбужденного синглетного состояния в первое триплетное) — более медленный процесс. В ароматических углеводородах скорость такой конверсии $k_{ic,c} \sim 10^6\text{--}$

10^8 с^{-1} . В алифатических углеводородах она значительно выше ($k_{ic,c} \sim 10^{10} - 10^{11} \text{ с}^{-1}$).

Скорости переходов из первых возбужденных состояний на основной уровень зависят от энергии возбуждения этого уровня. Внутренняя деградация ($S_1 \rightarrow S_0$ -переход) в молекулах с энергией $E_{S_1} \leq 1,5 \text{ эВ}$ может протекать со скоростью $k_{i,d} \sim 10^{11} \text{ с}^{-1}$. Для молекул, у которых $E_{S_1} > 2,5 \text{ эВ}$, скорость внутренней деградации всего лишь $\sim 10^5 \text{ с}^{-1}$. Еще более медленными процессами являются интеркомбинационная деградация ($T_1 \rightarrow S_0$ -переход), предиссоциативный и неадиабатический распады и излучательные переходы [114].

7.3. Обмен энергией

между различными степенями свободы

В отсутствии равновесия, вообще говоря, все температуры различны. Обмен энергией между разными степенями свободы способствует выравниванию температур. В результате неупругих соударений быстрее всего происходит обмен энергией между поступательными и вращательными степенями свободы. Для выравнивания температур $T_h = T_\rho$ требуется от нескольких единиц до нескольких сотен соударений [104, 107–109]. Из результатов исследований колебательной релаксации в конденсированной среде следует, что ее время превышает 10^{-12} с и для небольших молекул (например, CH_3I) скорость колебательной релаксации с ростом температуры уменьшается [115].

Равновесие между поступательной и колебательной степенями свободы достигается при значительно большем числе соударений. Последнее утверждение относится и к $E-T$ -обмену. Скорость $E-V$ -обмена существенно зависит от конкретной системы. В сложных молекулах в результате конверсии скорости безызлучательных переходов молекул с высоковозбужденных электронных состояний на первое возбужденное могут достигать значений от 10^{11} до 10^{13} с^{-1} [113].

Таким образом, скорость переноса энергии электронного возбуждения (включая и энергию электронов) в тепловую обусловлена тем, насколько эффективны процессы распада молекул и как быстро протекает $V-T$ -релаксация. Оценки скорости такого процесса показывают, что переход энергии электронного возбуждения через колебательную степень свободы в тепловую достаточно длительный по времени.

7.4. Процессы выноса энергии из трека

Кроме рассмотренных процессов энергия электронного возбуждения может выноситься из трека следующим образом. Известно, что в полимерах энергия электронного возбуждения может мигрировать по алифатической цепочке. За предполагаемое время жизни возбужденного состояния $\tau \geq 10^{-12} \text{ с}$ средний пробег от места первоначального возбуждения составляет более 100 связей C–C [116]. Межмолекулярный перенос энергии также способствует выносу энергии из трека, но осуществляется со скоростью 10^9 с^{-1} . Но более существенными процессами выноса энергии из трека являются теплопроводность и перенос акустическими волнами.

Эффективность переноса тепла в среде характеризуется коэффициентом температуропроводности

$$\chi = \frac{\kappa}{\rho C_p}, \quad (33)$$

где κ — коэффициент теплопроводности, ρ — плотность среды, а C_p — удельная теплоемкость при постоянном давлении [117]. В многокомпонентной среде каждый компонент вносит свой вклад в перенос энергии, величина которого зависит от вида и фазового состояния среды. В твердых диэлектриках перенос тепловой энергии осуществляется по решетке фононным газом, в металлах — не только фононами (решеточная теплопроводность), но и электронами проводимости. Причем теплопроводность типичных чистых металлов почти полностью определяется теплопроводностью электронов проводимости. Коэффициент теплопроводности чистых металлов может достигать нескольких сотен ватт на метр-kelвин ($403 \text{ Вт (м К)}^{-1}$ для серебра, $210 \text{ Вт (м К)}^{-1}$ для алюминия) [118]. При этом коэффициенты температуропроводности металлов находятся в диапазоне значений от 0,21 (железо) до $1,71 \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ (серебро) [119].

Приведенные значения χ получены по формуле (33) для металла в целом, а именно с учетом решеточной теплоемкости ($C_V \approx 3R \approx 25 \text{ Дж (моль К)}^{-1}$) и плотности металла. Теплоемкость классического электронного газа значительно ниже ($C_V^e \approx (3/2)R$). Для вырожденного электронного газа теплоемкость составляет всего несколько процентов от решеточной. В силу этого обстоятельства значение χ_e значительно выше, чем χ . Следовательно, первоначально локализованная в цилиндре радиусом $r_0 \approx 4 \text{ нм}$ энергия электронного возбуждения эффективно распределяется по электронному газу в большом объеме среды, не успевая передать ее решетке. Эффективность переноса энергии из цилиндра радиусом r_0 характеризуется временем $\tau_t = r_0^2/\chi$. В металлах характерное время существования локально нагретого электронного газа в цилиндре радиусом $r_0 \approx 4 \text{ нм}$ составит $\tau_t < 10^{-13} \text{ с}$.

В некоторых диэлектриках с жесткой связью решеточная теплопроводность достаточно высока. В кристаллах с решеткой алмаза она сравнима с теплопроводностью металлов ($137 \text{ Вт (м К)}^{-1}$ у кремния, 54 Вт (м К)^{-1} у германия). В алмазе она даже превышает теплопроводность серебра, обладающего самым высоким коэффициентом теплопроводности среди чистых металлов ($\chi_{\text{алмаз}} = 550 \text{ Вт (м К)}^{-1}$) [118]. Коэффициент температуропроводности таких кристаллов сравним с χ металлов ($0,53 \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ у кремния). Для значения $r_0 \approx 4 \text{ нм}$ такие диэлектрики имеют $\tau_t \sim 10^{-13} \text{ с}$.

Теплопроводность жидкостей и полимеров значительно ниже. В воде коэффициент $\chi = 5,8 \text{ Вт (м К)}^{-1}$, у полимеров $\chi = 0,03 - 0,8 \text{ Вт (м К)}^{-1}$. Значения коэффициентов χ для воды и полимеров на три порядка меньше, чем у металлов ($1,38 \times 10^{-3} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ у воды, $(0,4 - 1,8) \times 10^{-3} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ у полимеров [120]). Следовательно, в таких средах характерное время существования нагретой области $r_0 \approx 4 \text{ нм}$ превышает значение $\tau_t \sim 10^{-10} \text{ с}$.

Эффективность гидродинамического механизма переноса энергии характеризуется временем $\tau_g \sim r_0/s_0$, где s_0 — скорость звука. В воде и полимерах скорость $s_0 \sim 1,5 \times 10^3 \text{ м с}^{-1}$ [120], и для $r_0 \approx 4 \text{ нм}$ время $\tau_g \sim \sim 3 \times 10^{-12} \text{ с}$. Для этих веществ перенос энергии по такому механизму эффективнее по сравнению с теплопереносом.

Итак, на физико-химической стадии в первичном треке протекают многообразные процессы. Причем их

многообразие зависит от вида среды. В чистых металлах основная часть энергии из электронной подсистемы быстро выносится из трека электронами проводимости и лишь часть ее передается решетке. В молекулярных средах эффективный перенос энергии электронного возбуждения в тепловую связан, как правило, с распадом молекул (монораспад, диссоциативная рекомбинация). Распад молекул — одна из причин увеличения выхода низкомолекулярных продуктов при радиолизе жидкостей под действием осколков деления. Кроме того, процесс радиолиза такими частицами сопровождается изменением гидродинамических характеристик среды (температуры, давления), что также может способствовать разложению молекул [121].

8. Особенности радиационно-химических реакций в треках частиц различной природы

8.1. Влияние фазового состояния и роль ЛПЭ в радиолизе

За стадией формирования первичного трека в молекулярных средах следует стадия химических превращений вещества либо структурных перестроек на фоне процессов выноса избыточной энергии из объема трека и диффузии активных промежуточных частиц. В конденсированной среде химическая стадия подразделяется на *трековый* период, в течение которого имеет место пространственная неравномерность и негомогенность в распределении химически активных частиц, и последующий период с равномерным распределением реагентов. По завершении химической стадии в среде устанавливается химическое равновесие. В твердом диэлектрике эта стадия заканчивается образованием латентного трека. В биологических системах далее следует четвертая (*биологическая*) стадия, на которой проявляется реакция организма на созданные облучением химические продукты.

В газе трековые структуры находятся на значительном расстоянии друг от друга и содержат, как правило, малое число активных частиц. Вследствие диффузии первоначальная неоднородность в распределении активных частиц быстро сглаживается, и к стадии химических реакций промежуточные частицы распределяются в облучаемом объеме практически гомогенно. Поэтому роль треков в газовой фазе пренебрежимо мала. Лишь при воздействии на газ многозарядных ионов, таких как осколки деления, пространственная неоднородность может оказывать влияние на протекание химических реакций [122, 123].

Из-за большей плотности среды в жидкости пространственная неоднородность в распределении реагентов выражена более ярко. Диффузионные процессы в жидкостях, напротив, протекают медленнее. Кроме того, фазовое состояние среды оказывает воздействие на перераспределение первичных активных частиц в сторону увеличения числа ионизованных состояний в жидкости (см. раздел 4), а также на последующие релаксационные процессы и на распад возбужденных и ионизованных состояний [124]. При переходе от газа к жидкости повышается роль обратных процессов рекомбинации электронов с материнским ионом и снижается степень распада молекул на радикалы вследствие так называемого эффекта клетки [125]. Различия в кинетике

газо- и жидкофазных реакций, зависящие от многих факторов, не позволяют в чистом виде выделить роль треков, обусловленную изменением плотности среды. Наиболее плодотворен путь исследования зависимости радиационных эффектов от структуры трека при неизменных начальных физических и химических свойствах среды.

Теоретическое исследование радиолиза жидкостей проводится, как правило, на основе решения уравнений диффузионной кинетики реакций в треках [29, 126–130] с использованием представлений о трековых структурах как о сферических либо цилиндрических образованиях. Применялся для этих целей и стохастический метод [131]. Анализ этих методов, а также детальное рассмотрение радиолиза конкретных систем не является целью настоящего обзора. Здесь лишь кратко рассматривается влияние структуры треков на радиолитические превращения.

Применение уравнений диффузионной кинетики позволило объяснить многие экспериментальные факты, наблюдающиеся при радиолизе водных растворов [127, 130], и в первую очередь зависимость выхода продуктов от ЛПЭ. Это обстоятельство привело к тому, что ЛПЭ стали считать некоторой универсальной характеристической качества излучения, ставя в прямую зависимость концентрации активных частиц в треке от ЛПЭ, без учета типа заряженной частицы, а сама зависимость эффекта от ЛПЭ получила определение *трековый эффект*.

Однако не все экспериментальные результаты нашли должное теоретическое обоснование в рамках такой интерпретации трекового эффекта. Среди таковых можно выделить следующие: резкое увеличение выхода низкомолекулярных продуктов радиолиза при высоких значениях ЛПЭ [132–134]; увеличение выхода ряда продуктов радиолиза метанола (например, этиленгликоля [72]), образование которых связывается с рекомбинацией радикалов в треках не с увеличением ЛПЭ, а напротив, с уменьшением ЛПЭ; различия в выходах водорода $G(H_2)$ при радиолизе бензола под действием протонов и α -частиц, имеющих одинаковые значения ЛПЭ [133].

Проведенные авторами работ [135, 136] более тщательные исследования радиолиза бензола, дозиметрической системы Фрикке с использованием различных ионов показали, что зависимость радиационно-химического выхода не только от ЛПЭ, но и от вида частицы, с помощью которой получено заданное значение ЛПЭ, является правилом, а не исключением. Это утверждение становится понятным, если для его объяснения привлечь представления о детальной структуре трека и ее зависимости от вида заряженной частицы, изложенные в разделах 4–6 (см. [13–15]). Наиболее четко роль структуры трека прослеживается на примере радиолиза жидкостей под действием тяжелых ионов. Именно в этом случае удается варьировать в широких пределах геометрические размеры треков и значения концентраций активных частиц в них.

8.2. Влияние структуры трека

на радиационно-химические процессы в жидкостях

Влияние структуры треков ионов исследовано в работах [134–136], а также в обзорах [13–15]. Используя сравнительный анализ структур треков ионов, можно следую-

щим образом объяснить зависимость выхода продуктов от ЛПЭ. Низкие значения ЛПЭ имеют место при радиолизе жидкостей с использованием протонов высоких энергий. Трек протона в этом случае состоит из сердцевины и ответвлений — треков δ-электронов. Причем, чем выше энергия протона, тем большая часть его энергии будет выноситься за пределы сердцевины δ-электронами. Сама сердцевина, в конечном счете, трансформируется в отдельные неперекрывающиеся шпоры, т.е. трек протона, за исключением некоторых особенностей (см. раздел 6), будет напоминать трек электрона. В результате характер радиолиза будет приближаться к радиолизу под действием быстрых электронов.

По мере замедления протона его ЛПЭ и число δ-электронов увеличиваются, а размеры трека, напротив, уменьшаются, поскольку снижается максимальная энергия δ-электрона. В результате наблюдается резкий рост как локальных, так и средних концентраций вблизи оси трека. Это способствует повышению выхода продуктов рекомбинации химически активных частиц с ростом ЛПЭ, т.е. имеется прямое соответствие между плотностью активных частиц в треке и ЛПЭ. Аналогичная картина наблюдается в треке α-частицы.

Высокие значения ЛПЭ (более 1 кэВ нм⁻¹) наблюдаются при воздействии на жидкость многозарядных ионов, например осколков деления. Как уже отмечалось в предыдущем разделе, структура треков таких ионов имеет ряд особенностей. Первая из них связана с тем, что средняя концентрация активных частиц повышается при уменьшении ЛПЭ. Поэтому выходы некоторых продуктов радиолиза сначала растут с уменьшением ЛПЭ осколка, достигают максимума, а затем (когда в ходе дальнейшего замедления осколка становятся существенными потери энергии на упругие соударения) падают. Именно этим можно объяснить результат эксперимента по радиолизу метанола с использованием осколков деления с различной начальной энергией [72].

Вторая особенность структуры трека многозарядного иона (высокая концентрация осколочных ионов в сердцевине трека) проявляется в том, что в сердцевине трека образуются преимущественно низкомолекулярные продукты радиолиза, тогда как выходы продуктов более сложной структуры уменьшаются. С этим связан высокий выход H₂, CO, CH₄ при радиолизе жидких углеводородов под действием многозарядных ионов [72, 132–134].

Промежуточные значения ЛПЭ отвечают радиолизу жидкостей при их облучении ионами легких элементов, находящихся в начальной части таблицы Менделеева. В результате оказывается, что два и более иона могут обладать одинаковыми значениями ЛПЭ. Как показано в разделе 6.5, при равенстве начальных ЛПЭ все параметры ионов различаются. Соотношения между радиационно-химическими выходами для разных ионов будут зависеть от того, какой из четырех вариантов соотношения между их скоростями имеет место. Если имеет место первый вариант (значения ЛПЭ расположены справа от максимума), то легкий ион образует плотный трек. Размеры такого трека наименьшие, а локальные и средние концентрации химически активных частиц в нем, напротив, наибольшие. Следовательно, выход продуктов рекомбинации у легкого иона в этом случае будет выше, чем у более тяжелых. Радиолиз же в треке более тяжелого иона (с большим Z) по существу

соответствует процессу, который наблюдается при меньших ЛПЭ в треке легкого иона (с меньшим зарядом). Именно такое поведение и наблюдается в зависимостях G(H₂) от ЛПЭ, полученных при радиолизе бензола под воздействием различных ионов (см. рис. 5 в [135]).

8.3. О термохимическом действии ионизирующих частиц

В работе [137] впервые было указано, что в кильватере ионизирующей частицы образуются тепловые точки (point-heat). Основой концепции тепловых точек являлось допущение, что первоначально переданная заряженной частицей энергия на возбуждение электронных состояний молекул немедленно преобразуется в энергию колебаний молекул в малой области, расположенной вблизи траектории частицы. В ранних теориях химического действия ионизирующего излучения в модели *теплового пика* (thermal spike), как впоследствии стали именовать тепловые точки, делались попытки объяснить химические изменения, наблюдавшиеся в облучаемой среде [138, 139] (см. об этом в обзоре [10]). Позднее было показано, что в трековых формах (шпорах), образуемых заряженными частицами с низкими значениями ЛПЭ, подъем температуры незначительный. К тому же время существования нагретой области достаточно короткое.

По оценкам Мозумдера (см. [10]) подъем температуры внутри шпоры радиусом ~2 нм, в которой локализована энергия ~30 эВ, составляет только 30 К, а характерное время ее спада около 6×10^{-12} с. Согласно уравнению Аррениуса для реакции свободных радикалов с характерной энергией активации ~8 ккал моль⁻¹ и с предэкспоненциальным коэффициентом $\sim 10^{-11}$ см³ (моль с)⁻¹ необходимо, чтобы нагретая даже до 400 К область существовала не менее 2×10^{-6} с. Из этого анализа следует, что для таких реакций термохимическое действие γ-излучения и быстрых электронов оказывается слабым. В обзоре [140], однако, указано, что для некоторых реакций скачок температуры в шпоре может изменить направление первичных реакционных процессов. Так, если использовать нормальную удельную скорость реакции радикалов $\sim 5 \times 10^9$ дм³ (моль с)⁻¹ при 300 К, то при энергии активации ~6 ккал моль⁻¹ для некоторых реакций, например реакции сольватированного электрона с акцептором, достаточно, чтобы нагретая область существовала $\sim 10^{-10}$ с.

В случае многозарядных ионов плотность энергии, поглощенной вблизи трека (в цилиндре радиусом 4–6 нм), оказывается высокой. Если бы эта энергия адиабатически трансформировалась в тепловую, то нагрев этой области был бы существенным (более 10⁴ К). Основываясь на этом допущении, Гольданский и Каган [141] рассмотрели общие характеристики термохимического эффекта ионизирующего излучения. В ряде работ [10, 132, 142] модель теплового пика использовалась для объяснения увеличения выхода низкомолекулярных продуктов радиолиза под действием осколков деления. В [142] выполнены оценки образования низкомолекулярных продуктов при радиолизе метанола. Результаты расчета, однако, показали, что для этой среды термохимический эффект мал даже без учета времени задержки переноса энергии из электронной подсистемы на другие степени свободы (см. раздел 7). Причина

слабого влияния теплового пика на химические превращения обусловлена малостью нагретой области и коротким временем существования теплового пика.

Для оценки величины нагрева среды в тепловом пике авторы работы [143] провели следующее исследование. Газообразные пропан, а также смесь метана с аммиаком (6 %) и пропаном (4 %) облучались осколками деления при различных плотностях. Измерялись выходы изопропиловых и нормальных пропиловых радикалов. Теплоты образования изопропиловых радикалов и нормальных пропиловых радикалов отличаются на $3,6 \text{ ккал моль}^{-1}$. Поэтому изменение отношения выходов указанных радикалов, получаемых при радиолизе под действием осколков деления, по сравнению с отношением, полученным при γ -радиолизе, служило индикатором величины температурного разогрева в треке. Результаты этого эксперимента также показали, что эффект нагрева значительно меньше, чем предсказывает модель теплового пика.

8.4. О гидродинамическом воздействии излучения

Радиационный эффект по гидродинамическому механизму в стабильных жидкостях связывается с явлением возбуждения гидродинамического излучения от треков заряженных частиц. Теория такого излучения предложена в работе [144]. Она основана на предположении, что резкое движение ионных комплексов, микровзрывное возникновение зародышевых полостей при локальных нагревах, создаваемых вблизи треков частиц, сопровождаются интенсивным локальным импульсным излучением ультра- и гиперзвуковых волн, имеющих в начальной стадии характер квазимикросферных ударных волн. Для такого явления характерно, что зона сильного поля излучения значительно превосходит размеры области, охваченной первичной ионизацией. Если такое излучение действительно возникает, то оно должно привести к сильному деструктивному воздействию на вещества. Характер воздействия должен быть таким же, как при воздействии ударных волн или при облучении мощным ультразвуком.

В настоящее время нет сомнения, что быстрые заряженные частицы возбуждают в облучаемой среде акустическое излучение. На стыке акустики и радиационной физики сформировалось новое научное направление — радиационная акустика. По этому научному направлению опубликовано много работ, в которых рассматриваются различные механизмы генерации звука проникающим излучением (см. [145–147]). Их обычно связывают с различными физическими явлениями преобразования энергии проникающего излучения в акустическую [146]. Многие рассмотренные механизмы генерации звука вносят лишь небольшой вклад в звуковое поле, обусловленное действием терморадиационного механизма. По терморадиационному (термоупругому) механизму генерация звука вызывается тепловым расширением области среды, в которой произошло поглощение энергии заряженной частицы, и имеет место при умеренных плотностях поглощенной энергии, когда не происходит фазовых превращений.

Образование ударной волны в треке одиночной частицы надежно не установлено, хотя и проводились количественные оценки параметров этой волны. В работе [148] возникновение ударных волн определялось как следствие взрывообразного расширения перегретых

δ -электронами микрообластей жидкости (тепловых пиков). В результате расчета получено, что δ -электрон с энергией 1,23 кэВ способен создать такую микрообласть сферической формы радиусом 0,664 нм, давление в которой составит $8,21 \times 10^5$ атм. На основе полученных результатов далее было высказано предположение о деструктивном воздействии "гидродинамического излучения" ионизирующих частиц на ткани организма и на конструкционные материалы.

В работе [121] по модели "нитевидного" бесконечно протяженного источника с заданным энерговыделением на единицу длины "нити" выполнен расчет параметров ударной волны от осколка деления в воде при следующих допущениях. Энергия осколка мгновенно в виде тепла выделяется в цилиндрической области трека радиусом $r_0 \approx 6$ нм. В результате адиабатического нагрева в цилиндре возникает давление $P \approx 60$ кбар. Временные зависимости параметров ударной волны, фронт которой концентричен цилиндрической поверхности источника, описывались формулами макроскопической теории подводных взрывов. Скорость распространения фронта ударной волны (в единицах см с^{-1}) изменяется согласно закону $D \approx 0,34/\sqrt{t}$, а ее радиус — в соответствии с формулой $r(t) = r_0(1 + t/t_0)^{1/2}$, в которой константа $t_0 \approx 10^{-12}$ с. На основании полученных оценок величины давления прогнозируется эффект воздействия ударной волны на химические превращения в треке. Вследствие ударного сжатия вещества увеличиваются концентрации электронов, ионов и радикалов, что будет способствовать стимулированию различных химических процессов.

Мгновенное повышение давления в треке строго не обосновано. После ионизации молекул короткодействующие силы межмолекулярных взаимодействий меняются на дальнодействующее экранированное кулоновское взаимодействие. Переход в новое, плазменное состояние может сопровождаться не повышением давления, а при некоторых степенях ионизации, напротив, его понижением вследствие изменения потенциальной энергии взаимодействия. Только в результате последующих процессов преобразования энергии электронного возбуждения, связанных, в основном, с распадом молекул (монораспад, диссоциативная рекомбинация), возможен рост давления и нагрев среды, но не наоборот, как утверждается в работе [121]. Ранее было показано, что скорости отдельных процессов передачи энергии из электронной подсистемы сопоставимы со скоростью гидродинамического механизма переноса энергии, а в отдельных процессах даже меньше (например, $\tau_{ei} \approx \tau_g$, а $\tau_{en} < \tau_g$). Поэтому полученные в [121] значения следует считать завышенными. Но даже из этих зависимостей вытекает, что при времени $t \approx 5 \times 10^{-12}$ с скорость распространения фронта ударной волны сравняется со скоростью распространения звуковых волн в воде $s = 1,5 \times 10^5 \text{ см с}^{-1}$ на расстоянии $r = 14,7$ нм. Таким образом, довольно быстро ударная волна переходит в звуковую. Поэтому следует ожидать, что эффект воздействия гидродинамического механизма переноса энергии на вещество проявится как результат воздействия акустической волны в основном на значительном удалении от трека.

На это обстоятельство автор указал еще в 1980 г. (см. [98]). Однако в последнее время опубликованы работы [149, 150], в которых снова постулируется образование ударных волн в треках, а для расчета параметров

ударной волны используется макроскопическая теория подводных взрывов [151]. Метод расчета параметров ударной волны в [149] практически идентичен подходу, предложенному ранее в [121]. Поэтому все замечания, высказанные относительно результатов работы [121], в полной мере относятся и к работе [150].

В работе [149] постулируется возникновение ударной волны в шпоре от одиночной молекулы воды, находящейся в высокоэнергетическом колебательно-возбужденном состоянии. Такие молекулы образуются при геминальной (парной) рекомбинации электрон-ионных пар в шпорах (см. [50, 51]). В указанной работе полагается, что за время $\sim 10^{-12}$ с энергия колебательного возбуждения одной молекулы передается ближайшему окружению и в результате образуется сферический тепловой пик радиусом $\sim 0,75$ нм. Элементарными оценками можно показать, что допущения, принятые в работе [149], не являются строго обоснованными.

В воде при нормальных условиях концентрация молекул $n = 3,345 \times 10^{22}$ см⁻³. Объем, приходящийся на одну молекулу, и радиус сферы этого объема равны соответственно $v = 1/n = 3 \times 10^{-23}$ см³ = 3×10^{-2} нм³ и $r = (3v/4\pi)^{1/3} = 0,192$ нм. Следовательно, среднее расстояние между молекулами составит $d = 2r = 0,384$ нм, а сферический объем, занимаемый исходной молекулой и ближайшим окружением (в один слой), $V = 4\pi(3r)^3/3 = 27v$. При адиабатическом нагреве этого объема радиусом $\sim 0,576$ нм от энергии колебательно-возбужденной молекулы в 6,26 эВ температура повысится на $\Delta T \simeq 295$ К, т.е. даже при таком подходе незначительно.

Для того чтобы образовался равновесный ансамбль хотя бы из 27 молекул, необходимо $\sim 4 \times 10^{-12}$ с (при времени одного столкновения $\sim 1,5 \times 10^{-13}$ с, принятого в работе [149]). Следовательно, время колебательно-поступательной релаксации превышает значение, принятое в [149]. Характерное время распространения гидродинамического возмущения из этого объема, определенное с использованием метода оценки авторов [149], составит $t_g \approx 6r/a_0 = 0,79 \times 10^{-12}$ с. Согласно приведенным оценкам скорость гидродинамического механизма переноса энергии превышает скорость колебательно-поступательной релаксации. Поэтому вряд ли возможно резкое повышение давления и, следовательно, образование ударной волны. С точки зрения возможности образования ударной волны, по-видимому, более предпочтительным представляется канал распада колебательно-возбужденной молекулы на два фрагмента, поскольку в этом случае кинетическая энергия фрагментов быстрее распределится по ансамблю молекул, чем по предложенному в работе [149] механизму.

Экспериментальному изучению акустических волн в диапазоне частот 0,2–1,0 МГц в жидкостях (ацетон, вода, этиловый спирт, глицерин, четыреххлористый углерод) от единичных тяжелых ядер (осколков деления) посвящены работы [152, 153]. Только в четыреххлористом углероде при минимальном расстоянии ~ 1 мм между источником и гидрофоном в амплитудных спектрах шумов акустического тракта были замечены выходящие за пределы статистических погрешностей изменения, обусловленные изменением активности источника осколков деления. По мнению авторов [152], обнаруженный эффект даже в одной жидкости может служить косвенным подтверждением генерации волн давления в области гиперзвука, постулированных в [121]. Но этот

факт еще нельзя признать доказательством того, что первоисточником этой волны является ударная волна. В отличие от звуковых волн ударные волны характеризуются существенными особенностями [117]. Скорость распространения ударных волн всегда больше скорости звука в невозмущенной среде и зависит от ее интенсивности. Ударные волны сопровождаются перемещением среды в направлении распространения фронта возмущения. При этом во фронте ударной волны параметры состояния и движения среды меняются скачком. Ударная волна не имеет периодического характера, распространяется в виде одиночного скачка уплотнения.

8.5. О проблеме эквивалентности радиационного воздействия различных видов ионизирующего излучения

С проблемой эквивалентности приходится иметь дело, по крайней мере, в двух случаях. В первом, когда по известным данным радиационных превращений, полученным при облучении одним видом ионизирующего излучения, необходимо предсказать радиационный эффект от другого вида излучения. С этой проблемой тесно связана задача определения пределов применимости дозиметрических систем (особенно жидких химических дозиметров). Во втором случае проблема связана с возможностью имитации одного источника излучения (трудно реализуемого, например, космического) другим источником.

Как правило, радиационный эффект от воздействия большинства излучений является суперпозицией эффектов от прямого действия первичного излучения и вторичного (или даже третичного) излучения, в которое трансформируется часть энергии первичной ионизирующей частицы. Поэтому если определяющее воздействие на радиационный эффект оказывает вторичное излучение, то его можно принять за первичный источник. Как следует из представлений о структуре треков заряженных частиц, такая имитация корректна, если при этом обеспечивается пространственное распределение трековых структур по облучаемому объему, близкое к распределению от первичного излучения. Согласно этому основному принципу облучение рентгеновским и γ -излучением может быть заменено облучением быстрыми электронами соответствующего энергетического спектра, в то время как облучение нейтронами — облучением ионами элементов, входящих в состав среды.

Моделирование радиационных эффектов от тяжелых ионов быстрыми электронами, в принципе, возможно только для ионов высоких скоростей. При высокой скорости (см. условия образования сплошных протяженных треков) ион образует неперекрывающиеся трековые структуры, идентичные трековым структурам от быстрых электронов. Моделирование сплошных треков тяжелых ионов проблематично. Казалось бы, что с появлением сильноточных электронных ускорителей появилась возможность создавать в среде концентрации активных частиц, близкие к значениям, которые реализуются в треках тяжелых ионов (см. [154]). Однако при таком моделировании не воспроизводятся идентичные пространственные распределения активных частиц. При облучении электронами сильноточных ускорителей высокие концентрации активных частиц реализуются в макрообластях. Увеличение размера области с высокой концентрацией заряженных частиц ухудшает условия пере-

носа энергии. Вследствие этого подъем температуры в облучаемом объеме будет выше, чем в индивидуальном треке. При высоких концентрациях заряженных частиц в макрообластях появляется ряд новых эффектов, обусловленных коллективными свойствами плотной электрон-ионной системы [155].

Длительное время для качественной характеристики ионизирующего излучения использовалась ЛПЭ. Из анализа влияния структуры треков на радиационно-химические процессы следует важный вывод: прямое соответствие между величиной ЛПЭ и значениями локальных и средних концентраций активных частиц в треке отсутствует. Поэтому ЛПЭ не может служить универсальной характеристикой качества излучения вне связи с конкретной частицей.

Предпринимались попытки ввести вместо ЛПЭ другую характеристику качества излучения, например отношение Z^2/v^2 [156, 157]. Однако полного описания в терминах Z^2/v^2 получить не удалось [158], что легко объяснимо. Фактор Z^2/v^2 является некоторым приближением к ЛПЭ, и все замечания, относящиеся к использованию ЛПЭ как универсальной характеристики излучения, в полной мере относятся и к этому параметру.

В работах [89, 136] применительно к ионам исследована возможность использования в качестве параметра эквивалентности среднего удельного энергопоглощения в сердцевине трека D_c . В пользу такого выбора послужили следующие соображения. Во-первых, D_c отражает трехмерный характер энергопоглощения в микрообъеме облучаемой среды, причем в том микрообъеме, в котором локализована большая часть первичных превращений. Во-вторых, из всех величин, характеризующих структуру трека, D_c в наибольшей степени зависит от вида первичного иона. Наконец, в отличие от ЛПЭ в зависимостях D_c от скорости и от остаточного пробега нет экстремумов.

Оказалось, что с помощью представления $G(H_2)$ от D_c , проведенного в работе [136], и представления $G(Fe^{3+})$ от D_c , выполненного в работе [89], не удается полностью исключить зависимость эффекта от вида иона. Отличия в выходах для разных ионов неизбежны и связаны с тем, что они имеют одинаковые значения D_c при разных размерах сердцевины. Вследствие этого конкурирующее действие диффузионных процессов на физико-химические и химические превращения реагентов различно, что и сказывается на величине эффекта.

Попытки ввести универсальный параметр, характеризующий радиационно-химическое воздействие излучения, по-видимому, безуспешны. Характер радиационных превращений зависит от пространственного распределения активных частиц в треке. Вид последнего на большей части пробега частиц определяется всеми тремя параметрами частицы (зарядом Z , скоростью v и массой m). Однако для сравнительных оценок радиационного воздействия различных видов излучения полезны также некоторые усредненные по объему трека характеристики, например средняя плотность энергии в треке, средняя концентрация активных частиц в треке и т.п. Несмотря на различия в эффектах от разных ионов при одинаковых D_c эту характеристику можно использовать в качестве приближенного параметра эквивалентности. Как показано в [89], в зависимостях $G(Fe^{3+})$ от D_c устраняется неоднозначность выходов для ионов одного типа, тогда как в зависимостях $G(Fe^{3+})$ от ЛПЭ существует область значе-

ний ЛПЭ, где одному значению ЛПЭ соответствуют два значения $G(Fe^{3+})$. Причина этой неоднозначности — наличие максимума (пика Брэгга) в зависимостях ЛПЭ.

В заключение обратим внимание на то, что сказанное выше имеет непосредственное отношение к дозиметрии ионизирующего излучения с помощью жидкостных систем. Поскольку радиационный эффект в таких системах, вообще говоря, зависит от структуры трека заряженных частиц, то нахождение зависимости показаний жидкостных дозиметров от ЛПЭ имеет смысл лишь при использовании одного типа излучения и то только в диапазонах значений либо слева, либо справа от пика Брэгга. Применение же дозиметра, калиброванного по одному типу излучения, для измерения поглощенных доз от других типов излучения требует введения поправок на специфику трековых эффектов. Поэтому рекомендация, предложенная в монографии [84], по применению зависимостей $G(Fe^{3+})$ от ЛПЭ, полученных в работе [159], для измерения поглощенных доз от тяжелых ионов ошибочна.

9. Модели образования латентных треков

9.1. Модель теплового электронного пика

Используя представления о горячих точках работы [137], Зейтц [160] развел теорию тепловых пиков двух типов (сферической и цилиндрической симметрии) в твердом теле. Пики первого типа возникают в результате упругих столкновений. Выбитый атом, замедлившись до энергии, при которой он уже не может вызывать смещения атомов из узлов решетки, оставшуюся часть энергии перераспределяет между ближайшими соседними атомами. В результате температура решетки повышается. Однако как показывают экспериментальные исследования, латентные треки в диэлектриках при энергиях ионов, при которых доминируют процессы упругого рассеяния ионов на атомах среды, не образуются.

По классификации Зейтца образование теплового пика цилиндрической симметрии обусловлено процессами поглощения энергии электронной подсистемой. В современной литературе образование такого типа называется тепловым электронным пиком [161] (electronic thermal spike [162]). В наимпростейшей модели теплового электронного пика предполагается, что энергия, первоначально локализованная в электронной подсистеме, мгновенно передается решетке. В некоторых работах расчет температурного поля в треке (как правило, в металлах и в металлических пленках) выполнен с учетом различных времен релаксации [163, 164].

Концепция электронного теплового пика привлеклась для объяснения образования латентных треков от осколков деления в диэлектриках (см. [4–6]), в тонких пленках из кремния, германия, оксида магния различной толщины [165], в металлических пленках, состоящих из множества мозаичных блоков [7, 166]. Основной итог этих исследований можно сформулировать следующим образом. Тепловой механизм генерации дефектов в латентном треке имеет место в том случае, когда затруднены процессы выноса из трека энергии электронного возбуждения. При таком условии становится возможным нагрев решетки до температуры выше температуры плавления. В результате нагрева возникает область перекристаллизации вокруг траектории

иона. Именно этим объясняется образование треков даже в металлических тонких пленках и мозаичных блоках [7, 164, 165].

В противоположном случае из-за высокой электронной теплопроводности в металлических образцах, отличающихся совершенной структурой, либо вследствие высокой решеточной теплопроводности у кристаллов с жесткими связями (алмаз, кремний) решетка нагревается до невысоких температур. Структурные изменения в решетке не происходят, и треки от осколков деления не проявляются.

В материалах с плохой теплопроводностью вклад теплового механизма в генерацию дефектов становится существенным, а в некоторых (твердых атомарных диэлектриках в отсутствие прямых радиационных превращений) и определяющим. Иначе выглядит ситуация в полимерах. Известно, что в полимерах, облученных быстрыми электронами или γ -излучением, повышается химическая реактивность. В ряде работ показано, что образование треков коррелирует с количеством разорванных молекулярных цепочек. Вполне возможно, что генерация дефектов происходит, в основном, в результате радиационных превращений, а тепловой механизм сопутствует радиационному. За счет теплового клина может увеличиться зона распределения дефектов. Тепловой клин может быть также первопричиной возникновения акустических волн, в результате воздействия которых могут генерироваться дополнительные дефекты на значительном удалении от траектории иона.

9.2. Модель ионного взрывного клина

Механизм ионного взрывного клина предложен в работе [167]. Суть этого механизма базируется на следующей идеи. Заряженная частица создает вблизи своей траектории узкую область из положительно заряженных ионов большой концентрации. Взаимное расталкивание ионов может привести к их смещению из междуузлия кристаллической решетки и к образованию вакансий. В последующем упругая релаксация уменьшает локальные напряжения, расширяя область деформации. Возникшие значительные деформации кристаллической решетки наблюдаются с помощью просвечивающего электронного микроскопа.

Модель ионного взрывного клина является полу-количественной. На ее основе сформулированы некоторые количественные критерии образования латентного трека. Наиболее важный критерий получен из условия, согласно которому для образования трека необходимо, чтобы силы кулоновского расталкивания ионов превосходили механическую прочность вещества. Исходя из таких параметров, как постоянная решетки, диэлектрическая проницаемость и модуль упругости Юнга, был определен "коэффициент напряжения" вещества — мера относительной чувствительности различных трекообразующих веществ. Согласно этому коэффициенту наиболее легко треки должны образовываться в веществах, у которых перечисленные выше параметры малы.

Следующий критерий, названный критерием непрерывности, следовал из условия образования хотя бы одного иона в каждой атомной плоскости. Это требование более жесткое по сравнению с условием образования протяженного трека (см. соответствующий раздел). Далее, чтобы область положительных ионов существовала более 10^{-13} с, плотность электронов должна быть

низкой. Вполне очевидно, что этому условию удовлетворяют только диэлектрики. Наконец, чтобы процесс деформации кристаллической решетки смог реализоваться, подвижность вакансий не должна быть высокой. В противном случае еще до того, как расталкивание ионов осуществляется, может произойти их нейтрализация. Согласно этому условию в хороших полупроводниках треки образовываться не должны.

Модель ионного взрывного клина правильно описывает наблюдаемые закономерности для чувствительности веществ, регистрирующих треки, и объясняет отсутствие треков в металлах и хороших полупроводниках. Это обстоятельство позволило многим исследователям считать, что для кристаллических тел эта модель является вполне адекватной моделью [4]. Однако из детального анализа процессов формирования треков многозарядных ионов следует, что положенная в основу модели ионного взрывного клина идея разделения зарядов ошибочна. Ранее было показано, что в действительности центральная область первичного трека представляет собой квазинейтральный плазменный шнур [98, 99]. Разделение зарядов в плазме не превышает радиуса Дебая. Если нейтральность нарушается, то за время менее 10^{-14} с она восстанавливается [99]. Квазинейтральность может быть нарушена лишь на границах облучаемого вещества (в местах входа и выхода иона). В связи с этим модель ионного взрывного клина имеет право на существование при объяснении явления распыления веществ с облучаемых ионами поверхностей [17, 168].

9.3. Модели ударных и акустических волн

Возникновение ударной волны в треке тяжелого иона представляется различными способами. В наиболее распространенном образование ударной волны рассматривается как следствие образования теплового электронного пика, т.е. в соответствии с представлением работы [121]. Мгновенный нагрев вещества в ограниченной области трека порождает скачок давления, приводящий в движение частицы вещества. Если скорость движения частиц вещества превышает скорость звука, то в веществе распространяется ударная волна. Именно в таком представлении механизм ударной волны привлекался для объяснения образования полых каналов в поверхностных треках, образуемых тяжелыми ионами в монокристаллах гипса, LiF, в углероде и стекле [169–173].

Существенный недостаток такой модели заключается в использовании представлений классической теории теплопроводности. Положенный в основу классической теории теплопроводности закон Фурье для потока тепла применим, когда масштабы пространственно-временных неоднородностей превышают длину свободного пробега частиц и время столкновения между частицами. Формальный перенос этих представлений на быстропротекающие процессы в треке не совсем корректен. Более правильное описание неравновесных процессов должно базироваться на уравнениях релаксации либо, по крайней мере, с использованием модифицированного закона Фурье, учитывающего релаксацию теплового потока (см. [164]).

В ряде работ (см. [162]) возникновение ударной волны рассматривается как следствие кулоновского расталкивания ионов, образуемых в сердцевине трека. Вследствие квазинейтральности плазмы трека такой механизм образования ударной волны вряд ли осуществляется в

объемных треках. Наконец, в работе [174] воздействие на металл тяжелых ионов представлялось как "мгновенный удар" электронным давлением. Согласно оценкам автора в металлах с достаточно малым коэффициентом температуропроводности напряжение около траектории иона достигает предела текучести, что может повлиять на локальные изменения кристаллической структуры решетки.

Из многообразия процессов превращения и переноса энергии электронного возбуждения можно заключить, что, вообще говоря, в формирование дефектов в латентном треке вносят вклад многие механизмы. Относительная роль того или иного механизма в генерацию дефектов зависит от структуры среды и от пространственного расположения этих дефектов. Для установления механизма, ответственного за генерацию дефектов в латентном треке, необходим тщательный анализ процессов, протекающих в треке на физико-химической стадии.

10. Заключение

В обзоре основное внимание уделено стадии формирования первичного трека. Исследование процессов, происходящих на этой стадии радиационных нарушений, уделялось больше внимания, и именно теоретические исследования этой стадии оказались успешными. Это обусловлено тем обстоятельством, что для ряда задач достаточно иметь представления о характере энерговыделения вблизи траектории иона, чтобы объяснить радиационный эффект и предсказать тенденцию изменения эффекта при переходе от одного вида источника излучения к другому. Использование таких представлений применительно к радиационной химии продемонстрировано в разделе 8. К задачам этого вида, в частности, относится объяснение либо прогнозирование формы пустотелых каналов, получаемых в твердых облученных тяжелыми ионами диэлектриках после травления их химическим реагентом.

Экспериментально установлено, что скорость травления по треку определяется лишь той частью потерь энергии иона, которая локализуется вблизи оси трека в цилиндрическом объеме радиусом 4–6 нм. Именно в этой области и наблюдаются наиболее существенные нарушения в среде, производимые ионом. Исходя из этих соображений, в качестве меры интенсивности нарушений в центральной области трека и, следовательно, в качестве аргумента функции, определяющей скорость травления по треку, достаточно знать характеристику трека $D(r < 4)$ (см. [87]).

Приведенные результаты по структуре первичного трека позволяют по-иному взглянуть на работу камеры Вильсона [175] и пузырьковых камер [176] в процессе регистрации треков ионов. В камере Вильсона высокая степень ионизации уже сама по себе может быть причиной конденсации даже в неперенасыщенном паре. Увеличить время нахождения трека в конденсированной форме можно, если в качестве рабочих сред камер Вильсона использовать простые одноатомные вещества. В таких средах отсутствуют быстропротекающие каналы переноса энергии из электронной подсистемы на тяжелые компоненты.

В пузырьковой камере ситуация иная. На начальном этапе пузырьковая камера работает по ионному механизму, как камера Вильсона. По мере переноса энергии из

электронной подсистемы ионный механизм меняется на тепловой, приводящий к образованию газовых пузырьков. Для пузырьковой камеры работа среды по ионному механизму увеличивает время выхода камеры на регистрацию. Чтобы сократить это время, необходимо ускорить процессы переноса энергии из электронной подсистемы. Для этого случая предпочтительнее использовать многоатомные, плохо проводящие тепло вещества.

В заключение еще раз отметим, что для интерпретации того или иного радиационного эффекта необходим тщательный анализ распределения переданной среде энергии. Как было показано, знания ЛПЭ или ионизационных потерь для этого часто недостаточно. Если такая корреляция и имеет место, то это скорее исключение, чем правило. Ярким подтверждением сказанного являются полученные в 1960–1970 годы в ФИАНе результаты исследований ионизационных эффектов в детекторах релятивистских заряженных частиц (см. обзор [177]). Основной вывод этих работ заключается в том, что ионизационный эффект, производимый заряженными частицами релятивистских энергий, не всегда соотносится с ионизационными потерями энергии, а определяется спектром (дифференциальным сечением) неупругих потерь энергии в веществе детектора. Чрезвычайно существенным оказалось также введение функции отклика детектора (*response function*) $R(\omega)$, которая тоже зависит от энергии ω , переданной частицей в отдельном неупругом столкновении в веществе детектора, и характеризует "эффективность использования" этой энергии при формировании фрагмента трека. Такой подход позволил описать измеренный релятивистский рост плотности следов в камерах Вильсона, пропорциональных детекторах и другие ионизационные эффекты.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Калужской области (грант № 01-03-96-013).

Список литературы

1. Wilson C T R *Proc. R. Soc. London Ser. A* **85** 285 (1911)
2. Glaser D A *Phys. Rev.* **87** 665 (1952)
3. Powell C F, Fowler P H, Perkins D H *The Study of Elementary Particles by the Photographic Method* (London: Pergamon Press, 1959)
4. Fleischer R L, Price P B, Walker R M *Nuclear Tracks in Solids. Principles and Applications* (Berkeley: Univ. of California Press, 1975)
5. Доррани С А, Балл Р К *Твердотельные ядерные детекторы* (М.: Энергоатомиздат, 1990) [Durrani S A, Bull R K *Solid State Nuclear Track Detection: Principles, Methods and Applications* (Oxford: Pergamon Press, 1987)]
6. Мареный А М *Дизлектрические трековые детекторы в радиационно-физическом и радиобиологическом эксперименте* (М.: Энергоатомиздат, 1987)
7. Гегузин Я Е, Каганов М И, Лифшиц И М *ФТТ* **15** 2425 (1973)
8. Флеров Г Н, Баращенко В С *УФН* **114** 351 (1974)
9. Fischer B E, Spohr R *Rev. Mod. Phys.* **55** 907 (1983)
10. Mozumder A, in *Advances in Radiation Chemistry* Vol. 1 (Eds M Burton, J L Magee) (New York: Wiley-Interscience, 1969) p. 1
11. Каплан И Г *Химия высоких энергий* **17** 210 (1983)
12. Бяков В М, Ничипоров Ф Г *Внутритечевые химические процессы* (М.: Энергоатомиздат, 1985)
13. Каплан И Г, Митерев А М *Химия высоких энергий* **19** 208 (1985)
14. Каплан И Г, Митерев А М *Усп. химии* **55** 713 (1986)
15. Kaplan I G, Mitrev A M, in *Advances in Chemical Physics* Vol. 68 (Eds I Prigogine, S A Rice) (New York: Wiley-Interscience, 1987) p. 255
16. Митерев А М *Росс. хим. журн.* **42** (4) 40 (1998)
17. Баранов И А и др. *УФН* **156** 477 (1988)

18. Jaffe G *Ann. Phys. (Leipzig)* **42** 303 (1913)
19. Lea D E *Proc. Cambr. Philos. Soc.* **30** 80 (1934)
20. Booz J, in *Charged Particle Tracks in Solids and Liquids* (Inst. of Physics and the Phys. Soc., Conf. Series, No. 8, Eds G E Adams, D K Bewley, J W Boag) (London: Inst. of Physics & the Phys. Soc., 1970) p. 19
21. Dennis I, in *Proc. of the Symp. on Microdosimetry, Ispra, Italy, November 13–15, 1967* (Ed. H G Ebert) (Brussels: European Communities, 1968) [Денис И, в сб. *Микродозиметрия* (Пер. под ред. А Н Кронгауза, В И Иванова) (М.: Атомиздат, 1971) с. 251]
22. Bethe H A, in *Handbuch der Physik* Bd. 24. Tl. 1 (Hrgs. H Geiger, K Scheel) (Berlin: Springer, 1933) p. 273
23. Bohr N *Det. Kgl. Danske Vidensk. Selskab. Math.-Fys. Medd.* **18** 8 (1948) [Бор Н *Прохождение атомных частиц через вещества* (М.: ИЛ, 1950)]
24. Lea D E *Actions of Radiations on Living Cells* (Cambridge: Univ. Press, 1946) [Ли Д Е *Действие радиации на живые клетки* (М.: Госатомиздат, 1963)]
25. Lea D E *Br. J. Radiol. Suppl.* **1** 59 (1947)
26. Gray L H *J. Chem. Phys.* **48** 172 (1951)
27. Platzman R L, in *Basic Mechanisms in Radiobiology* Pt. 2 (National Research Council (U.S.) Publ., No. 305, Nucl. Sci. Ser., Rep. No. 15) (Washington: National Acad. of Sciences, National Research Council, 1953) p. 51
28. Samuel A H, Magee J L *J. Chem. Phys.* **21** 1080 (1953)
29. Kuppermann A, Belford G G *J. Chem. Phys.* **36** 1412, 1427 (1962)
30. Ganguly A K, Magee J L *J. Chem. Phys.* **25** 129 (1956)
31. Mozumder A, Magee J L *Radiat. Res.* **28** 203 (1966)
32. Magee J L, Chatterjee A *J. Phys. Chem.* **82** 2219 (1978)
33. Magee J L, Chatterjee A *Radiat. Phys. Chem.* **15** 125 (1980)
34. Santar I, Bednar J *Int. J. Radiat. Phys. Chem.* **1** 133 (1969)
35. Spencer L V, Fano U *Phys. Rev.* **93** 1172 (1954)
36. Platzman R L *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **10** 116 (1961)
37. Platzman R L, in *Radiation Research: Proc. of the Third Intern. Congress of Radiation Research, Cortina d'Ampezzo, Italy, June–July, 1966* (Ed. G Silini) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1967) [Платцман Р Л, в сб. *Современные проблемы радиационных исследований* (Пер. под ред. Л Х Эйдуса) (М.: Наука, 1972) с. 13]
38. Douthat D A *Radiat. Res.* **64** 141 (1975)
39. Berger M J, in *Proc. of the 4th Symp. on Microdosimetry* (Eds J Booz, H G Ebert, R Eickel, A Wacker) (Luxembourg: Commission of the European Communities, 1974) p. 695
40. Каплан И Г, Попова Л В, Хаджибекова Л М *Химия высоких энергий* **7** 241 (1973)
41. Heller J M et al. *J. Chem. Phys.* **60** 3483 (1974)
42. Kucher G J, Green A E S *Radiat. Res.* **67** 408 (1976)
43. Turner J E et al. *Radiat. Res.* **92** 47 (1982)
44. Turner J E et al. *Radiat. Res.* **96** 437 (1983)
45. Трегуб В А, Райцимлинг А М, Моралев В М, Препринт № 7, № 8 (Новосибирск: ИХКиГ СО АН СССР, 1980, 1981)
46. Питкевич В А, Дуба В В *Радиобиология* **21** 829 (1981)
47. Raitsimring A M, Tregub V V *J. Chem. Phys.* **77** 123 (1985)
48. Каплан И Г, Митерев А М, Сухоносов В Я *Химия высоких энергий* **20** 495 (1986)
49. Kaplan I G, Mitrev A M, Sukhonosov V Ya *Radiat. Phys. Chem.* **27** 83 (1986)
50. Каплан И Г, Митерев А М, Сухоносов В Я *Химия высоких энергий* **23** 392 (1989)
51. Kaplan I G, Mitrev A M, Sukhonosov V Ya *Radiat. Phys. Chem.* **36** 493 (1990)
52. Mozumder A, Chatterjee A, Magee J L, in *Radiation Chemistry* Vol. 1 (Advances in Chemistry Series, Vol. 81) (Washington: Am. Chem. Soc., 1968) p. 27
53. Magee J L, Chatterjee A *J. Phys. Chem.* **84** 3529 (1980)
54. Каплан И Г, Митерев А М *ДАН СССР* **280** 127 (1985)
55. Mozumder A *J. Chem. Phys.* **60** 1145 (1974); **62** 4585 (1975)
56. Митерев А М *Химия высоких энергий* **21** 332 (1987)
57. Митерев А М *Химия высоких энергий* **28** 17 (1994)
58. Каган Ю К *ДАН СССР* **119** 247 (1958)
59. Butts J J, Katz R *Radiat. Res.* **30** 855 (1967)
60. Kowetich E J, Katz R *Phys. Rev.* **170** 391 (1968)
61. Вайсбурд Д И, Волков Ю В, Кольчужкин А М, в сб. *Радиационные нарушения в твердых телах и жидкостях* (Отв. ред. В В Генералова, О Р Нязова) (Ташкент: ФАН, 1967) с. 83
62. Baum J W, Stone S L, Kuehner A V, in *Proc. of the Symp. on Microdosimetry, Ispra, Italy, November 13–15, 1967* (Ed. H G Ebert) (Brussels: European Communities, 1968) p. 269
63. Кудряшов Е И и др. *Космическая биология и медицина* **4** (5) 35 (1970)
64. Chatterjee A, Maccabee H D, Tobias C A *Radiat. Res.* **54** 479 (1973)
65. Miller J H, Green A E S *Radiat. Res.* **57** 9 (1974)
66. Fain J, Monnin M, Montret M *Radiat. Res.* **57** 379 (1974)
67. Paretzke H G, in *Proc. of the 4th Symp. on Microdosimetry* (Eds J Booz, H G Ebert, R Eickel, A Wacker) (Luxembourg: Commission of the European Communities, 1974) p. 141
68. Varma M N, Baum J W, Kuehner A V *Radiat. Res.* **62** 1 (1975)
69. Wingate C L, Baum J W *Radiat. Res.* **65** 1 (1976)
70. Каплан И Г, Митерев А М, Хаджибекова Л М *Химия высоких энергий* **11** 409 (1977)
71. Казазян В Т и др. *Физические основы использования кинетической энергии осколков деления в радиационной химии* (Под ред. А К Красина) (Минск: Наука и техника, 1972)
72. Буланов Л А, Стародубцева Е В, Борисов Е А *Химия высоких энергий* **6** 476 (1972)
73. Митерев А М, Каплан И Г, Борисов Е А *Химия высоких энергий* **8** 537 (1974)
74. Borisov E A, Kaplan I G, Mitrev A M, in *Proc. of the Fourth Tihany Symp. on Radiation Chemistry, Kesztely, Hungary, June 1–6, 1976* (Eds P Hedvig, R Schiller) (Budapest: Akadémiai Kiadó, 1976) p. 1043
75. Давыдов А С *Квантовая механика* (М.: Физматгиз, 1963)
76. Кабачник Н М, Кондратьев В Н, Чуманова О В, Деп. в ВИНИТИ № 5958-В86 (М.: ВИНИТИ, 1986)
77. Юдин Г Л *ЖЭТФ* **83** 908 (1982)
78. Джексон Дж *Классическая электродинамика* (М.: Мир, 1965) [Jackson J D *Classical Electrodynamics* (New York: Wiley, 1962)]
79. Ritchi R H *Nucl. Instrum. Methods* **198** 81 (1982)
80. Platzman R L *Radiat. Res.* **17** 419 (1962)
81. Inokuti M *Rev. Mod. Phys.* **43** 297 (1971)
82. Митерев А М *Химия высоких энергий* **28** 105 (1994)
83. Митерев А М, Борисов Е А *Атомная энергия* **36** 320 (1974)
84. Пикаев А К *Современная радиационная химия. Основные положения. Экспериментальная техника и методы* (М.: Наука, 1985)
85. Berkowitz J *Photoabsorption, Photoionization, and Photoelectron Spectroscopy* (New York: Academic Press, 1979)
86. Янке Е, Эмде Ф, Лёш Ф *Специальные функции* (М.: Наука, 1968)
87. Митерев А М *Химия высоких энергий* **31** 197 (1997)
88. Митерев А М *Химия высоких энергий* **30** 98 (1996)
89. Митерев А М, Мамедьяров Д Ю, Каплан И Г *Химия высоких энергий* **26** 20 (1992)
90. Юдин Г Л *ЖТФ* **57** 1714 (1987)
91. Матвеев В И, Мусаханов М М *ЖЭТФ* **105** 280 (1994)
92. Пивовар Л И, Кривоносов Г А, Тубаев В М *ЖЭТФ* **53** 1872 (1967)
93. Гарин Б М, Бяков В М *Химия высоких энергий* **22** 195 (1988)
94. Рамазашвили Р Р, Рухадзе А А, Силин В П *ЖЭТФ* **43** 1323 (1962)
95. Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Статистическая физика* Ч. 1 (М.: Наука, 1976)
96. Словецкий Д И *Механизмы химических реакций в неравновесной плазме* (М.: Наука, 1980)
97. Кудрин Л П *Статистическая физика плазмы* (М.: Атомиздат, 1974)
98. Митерев А М *Химия высоких энергий* **14** 483 (1980)
99. Ritchie G G, Claussen C *Nucl. Instrum. Methods* **198** 133 (1982)
100. Климонтович Ю Л *Кинетическая теория неидеального газа и неидеальной плазмы* (М.: Наука, 1975)
101. Киттель Ч *Квантовая теория твердых тел* (М.: Наука, 1967)
102. Кулик П П, Норман Г Э, Полак Л С *Химия высоких энергий* **10** 203 (1976)
103. Кулик П П, Норман Г Э, Полак Л С *Химия высоких энергий* **11** 195 (1977)
104. *Кинетические процессы в газах и плазме* (Под ред. А Хохштима) (М.: Мир, 1972)
105. Иванов А А, Параил В В, Соболева Т К *ЖЭТФ* **64** 1245 (1973)
106. Катин В В, Мартыненко Ю В, Явлинский Ю Н *Письма в ЖТФ* **13** 665 (1987)
107. Елецкий А В, Палкина Л А, Смирнов Б М *Явления переноса в слабоионизованной плазме* (М.: Атомиздат, 1975)

108. Митчнер М, Кругер Ч *Частично ионизованные газы* (М.: Мир, 1976) [Mitchner M, Kruger Ch H (Jr) *Partially Ionized Gases* (New York: Wiley, 1973)]
109. Гордиец Б Ф, Осипов А И, Шелепин Л А *Кинетические процессы в газах и молекулярные лазеры* (М.: Наука, 1980)
110. Smith D, Adams N G *Pure Appl. Chem.* **56** 175 (1984)
111. Смирнов Б М *ЖЭТФ* **72** 1392 (1977)
112. Макаров В И, Полак Л С *Химия высоких энергий* **4** 3 (1970)
113. Плотников В Г, Овчинников А А *Усп. химии* **47** 444 (1978)
114. Турро Н *Молекулярная фотохимия* (М.: Мир, 1967)
115. Погорелов В Е и др. *УФН* **127** 683 (1979)
116. Каплан И Г, Плотников В Г *Химия высоких энергий* **1** 507 (1967)
117. Ландau Л Д, Лишин Е М *Гидродинамика* (М.: Наука, 1988)
118. Епифанов Г И *Физика твердого тела* (М.: Высшая школа, 1977)
119. Веденов А А, Гладуш Г Г *Физические процессы при лазерной обработке материалов* (М.: Энергоатомиздат, 1985)
120. Новиченок Л Н, Шульман З П *Теплофизические свойства полимеров* (Минск: Наука и техника, 1971)
121. Гольданский В И, Ланцбург Е Я, Ямпольский П А *Письма в ЖЭТФ* **21** 365 (1975)
122. Meisels G G et al. *J. Am. Chem. Soc.* **97** 987 (1975)
123. Meisels G G et al. *J. Phys. Chem.* **82** 2231 (1978)
124. Lipsky S *Chem. Education* **58** 93 (1981)
125. Freeman G R, in *Advances in Radiation Research. Physics and Chemistry: 4th Intern. Congress of Radiation Research, Evian-les-Bains, France, 1970* Vol. 2 (Eds J F Duplan, A Chapiro) (New York: Gordon and Breach, 1973) p. 351
126. Dyne P J, Kennedy J M *Can. J. Chem.* **36** 1518 (1958); **38** 61 (1960)
127. Верещинский И В, Пикаев А К *Введение в радиационную химию* (М.: Изд-во АН СССР, 1963)
128. Freeman G R *Int. Radiat. Phys. Chem.* **4** 237 (1972)
129. Naumann W, Stiller W *Int. Radiat. Phys. Chem.* **8** 407 (1976)
130. Buxton G V, in *The Study of Fast Processes and Transient Species by Electron Pulse Radiolysis* (NATO Adv. Study Inst. Series, Ser. C, Vol. 86, Eds J H Baxendale, F Busi) (Dordrecht: D. Reidel Publ. Co., 1982) p. 241
131. Hummel A *Can. J. Phys.* **68** 859 (1990)
132. Matsui M, Imamura M *IPCR Cyclotron Prog. Rept.* **5** 93 (1971)
133. Кильчицкая С П, Петряев Е М, Калязин Е П *Химия высоких энергий* **13** 213 (1979)
134. Burns W G, in *Charged Particle Tracks in Solids and Liquids* (Inst. of Physics and the Phys. Soc., Conf. Series, No. 8, Eds G E Adams, D K Bewley, J W Boag) (London: Inst. of Physics & the Phys. Soc., 1970) p. 143
135. La Verne J A, Schuler R H *J. Phys. Chem.* **88** 1200 (1984)
136. La Verne J A, Schuler R H *J. Phys. Chem.* **91** 5770 (1987)
137. Dessauer F Z. *Phys.* **38** 12 (1923)
138. Magee J *Ann. Rev. Phys. Chem.* **12** 389 (1961)
139. Burns W G, Barker R, in *Aspects of Hydrocarbon Radiolysis* (Eds T Gäumann, J Hoigné) (New York: Academic Press, 1968) p. 33
140. Hunt J W, in *Advances in Radiation Chemistry* Vol. 5 (Eds M Burton, J Magee) (New York: Wiley-Interscience, 1976) p. 185
141. Goldanskii V I, Kagan Yu M *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **11** 1 (1961)
142. Борисов Е А, Буланов Л А, Стародубцева Е В *Химия высоких энергий* **4** 550 (1970)
143. La Verne J A, Meisels G G *Radiat. Phys. Chem.* **21** 329 (1983)
144. Аскарьян Г А *Атомная энергия* **3** 152 (1957)
145. Залюбовский И И, Калиниченко А И, Лазурик В Т *Введение в радиационную акустику* (Харьков: Выща школа, 1986)
146. Лямышев Л М, Челноков Б И, в сб. *Радиационная акустика* (Отв. ред. Л М Лямышев) (М.: Наука, 1987) с. 8
147. Лямышев Л М *УФН* **162** (4) 43 (1992)
148. Аношин А И *ЖТФ* **47** 2186 (1977)
149. Сухоносов В Я, Каплан И Г *Химия высоких энергий* **28** 214 (1994)
150. Серегин А А, Серегина Е А *Химия высоких энергий* **35** 305 (2001)
151. Яковлев Ю С *Гидродинамика взрыва* (Л.: Судпромгиз, 1961)
152. Баранов И А и др. *Атомная энергия* **52** 335 (1982)
153. Голубничий П И, Кудленко В Г, Яковлев В И, в сб. *Радиационная акустика* (Отв. ред. Л М Лямышев) (М.: Наука, 1987) с. 35
154. Вайсбурд Д И и др. *Атомная энергия* **39** 366 (1975)
155. Вайсбурд Д И и др. *Высокозергетическая электроника твердого тела* (Под ред. Д И Вайсбу尔да) (Новосибирск: Наука, 1982)
156. Katz R *Health Phys.* **18** 175 (1970)
157. Paretzke H G, in *Proc. of the 3rd Symp. on Microdosimetry, Stresa, Italy, October 18–22, 1971* (Ed. H G Ebert) (Luxembourg: Commission of the European Communities, 1972) p. 141
158. Katz R, in *Proc. of the 7th Symp. on Microdosimetry Vol. 1* (Eds J Booz, H G Ebert, H D Hartfiel) (Brussels, Luxembourg: Harwood Acad. Publ. for the Commission European Communities, 1981) p. 583
159. Bibler N E *J. Phys. Chem.* **79** 1991 (1975)
160. Seitz F, Koehler J S, in *Solid State Physics Vol. 2* (Eds F Seitz, D Turnbull) (New York: Academic Press, 1956) p. 305
161. Баранов И А, Кривохатский А С, Обнорский В В *ЖТФ* **51** 2457 (1981)
162. Thompson D A *Radiat. Eff.* **56** 105 (1981)
163. Goland A N, Paskin A J *Appl. Phys.* **35** 2188 (1964)
164. Ronchi C *J. Appl. Phys.* **44** 3575 (1973)
165. Kazuhiko I *J. Phys. Soc. Jpn* **20** 915 (1965)
166. Воробьева И В, Гегузин Я Е, Монастыренко В Е *ФТТ* **22** 2253 (1980)
167. Fleischer R L, Price P B, Walker R M *J. Appl. Phys.* **36** 3645 (1965)
168. Битенский И С, Паралис Э С *Атомная энергия* **46** 269 (1979)
169. Воробьева И В и др. *ФТТ* **26** 1964 (1984)
170. Воробьева И В, Гегузин Я Е, Монастыренко В Е *ФТТ* **28** 163, 2402 (1986)
171. Воробьева И В, Гегузин Я Е, Монастыренко В Е *ФТТ* **31** 1 (1989)
172. Воробьева И В, Тер-Ованесьян Е А *ФТТ* **34** 414 (1992)
173. Воробьева И В *ФТТ* **36** 653 (1994)
174. Борин И П *ФТТ* **30** 2222 (1978)
175. Да Гупта А, Гош С *Камера Вильсона и ее применение* (М.: ИЛ, 1947)
176. Александров Ю А и др. *Пузырьковые камеры* (Под ред. Н Б Делоне) (М.: Госатомиздат, 1963) Ч. 1
177. Асоксов В С и др. *Труды ФИАН* **140** 3 (1982)

Theoretical aspects of the formation and evolution of charged particle tracks

A.M. Miterev

Obninsk Branch of the State Research Centre "Karpov Institute of Physical Chemistry",
249033 Obninsk, Kaluga Region, Russian Federation
Tel. (7-08439) 9-49 91

Theoretical ideas on the formation and evolution of charged particle tracks in a condensed medium are discussed. The historical development of the field is briefly reviewed. The distribution of charged particle energies over quantum states and the volume of the absorbing medium are considered, and conditions for the formation of various track structures are discussed. The structures of extended heavy-ion tracks are compared for some ion parameters and track characteristics taken to be the same. Relaxation processes in the tracks of multiply charged ions are analyzed. Track effects are considered and possible mechanisms for the formation of chemically active defects in a latent track are described.

PACS numbers: 07.77.-n, 34.50.-s, 82.55.+e

Bibliography — 177 references

Received 15 February 2002, revised 5 June 2002