

钚气溶胶 α 反冲迁移的蒙特卡模拟

李传龙, 郭金森, 汪传高, 庞洪超, 刘森林

中国原子能科学研究院, 北京 100023

摘要: **目的** 评估钚气溶胶 α 反冲导致的迁移能力。**方法** 本文用蒙特卡罗方法对含钚纳米气溶胶的反冲沉降和布朗运动进行了模拟。首先抽样了反冲角度和沉降过程中的布朗运动纵向落地首达时, 然后抽样出横向布朗运动位移来确定气溶胶最终沉降位置。**结果** 对于粒径 10-50 nm 的气溶胶单次反冲沉降作用最大的迁移距离为 1.39 μm , 布朗运动会使其迁移能力增大, 大概率沉降至 100 μm 以内, 仍有小概率长时间滞空悬浮。**结论** α 反冲是钚气溶胶迁移的机制之一。纳米气溶胶长距离迁移的重要机制是反冲后的布朗运动可能使其长时间悬浮。

关键词: 钚; 气溶胶; α 反冲; 蒙特卡罗

中图分类号: X591 文献标识码: A 文章编号: 1004-714X(2023)04-0398-04

Monte Carlo simulation of α recoil migration of plutonium aerosol

LI Chuanlong, GUO Jinsen, WANG Chuangao, PANG Hongchao, LIU Senlin

China Institute of Atomic Energy, Beijing 100023 China

Abstract: **Objective** To evaluate the migration of plutonium aerosol caused by α recoil. **Methods** In this paper, the recoil deposition and Brownian motion of plutonium-containing nanoaerosols were simulated by Monte Carlo method. The recoil angle and the vertical first landing time of Brownian motion in the process of settling were sampled, and then the lateral displacements of Brownian motion were sampled to determine the final settling position of aerosol. **Results** For aerosols with particle sizes of 10-50 nm, the maximum migration distance of a single recoil settling was 1.39 μm . Brownian motion increased the migration capacity. Although there was a high likelihood that aerosols settled within 100 μm , there remained a slight probability of long-term suspension in the air. **Conclusion** The α recoil is one of the mechanisms of plutonium aerosol migration. An important mechanism for long-distance migration of nanoaerosols is that Brownian motion after recoil may cause them to suspend for a long time.

Keywords: Plutonium; Aerosol; α recoil; Monte Carlo

钚的同位素具有极高的放射性毒性^[1], 钚气溶胶的内照射问题是钚处理设施辐射防护的关键问题。根据 SRS 钚燃料制造设施的经验^[2], 载有高比活度 ^{238}Pu 的粉末具有高迁移性, 可以在空气中“飞行”或者沿着管道“行走”, 其行为表现得更像气体而非固体; 如果手套失效破损, 放射性气溶胶一旦逃出容器会迁移到很远, 而非直接沉降。钚气溶胶由于 α 衰变导致的气溶胶反冲是钚元素迁移的作用之一, 反冲作用使已经沉降的气溶胶再次悬浮, 迁移距离分布是钚气溶胶转移规律的关键参数。本文用蒙特卡方法定量分析纳米气溶胶在 α 反冲作用下的迁移能力, 考虑的作用包括反冲本身的沉降和气溶胶布朗运动。

1 材料与方法

1.1 反冲沉降作用 假设气溶胶是一个球形的颗

粒, 粒径为 d_p , 密度^[3] 为 $\rho_p = 3\,000\text{ kg/m}^3$, 静止于水平地面, 由于反冲作用获得初速度 v_0 而飞离地面, 进而由于空气阻力和重力作用最终沉降于地面。初速度与垂直方向夹角为 θ 。以 α 衰变能量为 5.5 MeV 计算, 反冲动量大约为 $1.08 \times 10^{-19}\text{ kg} \cdot \text{m/s}$ 。假设反冲动量全部被气溶胶带走, 气溶胶粒径越大质量越大, 反冲速度越小。根据斯托克斯定律^[4] 球形颗粒的空气阻力与速度成正比, 在重力和阻力的作用下气溶胶反冲的轨迹参数方程为

$$\begin{cases} S_x(t) = v_0 \tau \sin\theta (1 - e^{-t/\tau}) \\ S_z(t) = (v_0 \cos\theta + v_s) \tau (1 - e^{-t/\tau}) - v_s t \end{cases} \quad (1)$$

其中, $S_x(t)$ 为水平位移, $S_z(t)$ 为垂直位移, v_0 为气

溶胶反冲初速度; $\tau = \frac{d_p^2 \rho_p}{18 \mu_g} C$ 为张弛时间, μ_g 为空气动

力学粘性系数; 肯宁汉修正系数 $C = 1 + 2 \frac{\lambda}{d_p} (1.257 + 0.400e^{-0.55d_p/\lambda})$, λ 为空气分子平均自由程; 沉降速度 $v_s = \tau g$ 。

考虑到气溶胶沉降速度远小于初速度的垂直分量, 因此垂直方向上在重力和阻力作用下在极短时间内减速到 0, 水平方向上也同步减速到 0, 接着开始重力沉降过程。因此气溶胶反冲后的轨迹如图 1 所示。落点的水平位移为 $S_x = v_0 \tau \sin \theta$ 。水平位移与气溶胶粒径相比是否足够大反映其反冲作用是否可以使气溶胶产生迁移。经计算当气溶胶粒径为 10~50 nm 时, 气溶胶反冲才可以使其发生水平迁移。10~50 nm 粒径气溶胶不计反冲角度的 $S = v_0 \tau$ 值如表 1 所示。在反冲沉降作用下, S 值就是气溶胶的最大迁移距离。

表 1 各粒径气溶胶反冲参数值

Table 1 Recoil parameters of aerosols with various particle sizes

粒径	10 nm	20 nm	30 nm	40 nm	50 nm
S 值/ μm	1.390	0.357	0.163	0.094	0.062
初速度/(m/s)	68.80	8.60	2.55	1.07	0.55
沉降速度/($\mu\text{m/s}$)	0.198	0.407	0.627	0.860	1.100
张弛时间/ns	20.2	41.5	64.0	87.7	113.0

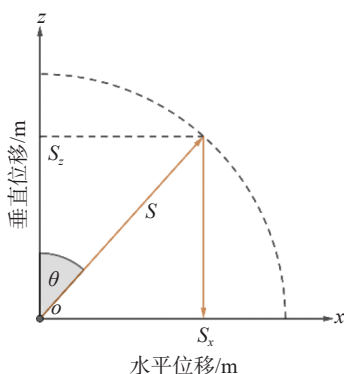


图 1 气溶胶反冲沉降轨迹

Figure 1 Aerosol recoil and deposition trajectories

1.2 布朗运动作用 当气溶胶的粒径与空气分子平均自由程相当时, 气溶胶在空气中的布朗运动作用即为气溶胶运动的主导作用。气溶胶在空气中的布朗运动在 3 个方向上相互独立^[5]。对于任意时间间隔 t , 一维布朗运动位移服从正态分布, 均方位移^[6]为 $\sigma^2 = 2Dt$, 即 $B(t) \sim N(0, \sigma^2 t)$ 。其中 D 是气溶胶扩散系数, 考虑到肯宁汉滑动修正^[7]

$$D = \frac{k_B T C}{3\pi\mu_g d_p} \quad (2)$$

式中, k_B 为玻尔兹曼常数; T 为温度。

纳米气溶胶发生 α 反冲后在重力沉降的匀速直线运动中叠加布朗运动, 在垂直方向上气溶胶的运动可以看作是一维的线性边界 $C(t) = at + b$ 的布朗运动。研究布朗运动首次达时将布朗运动标准化后 $a = -v_s/\sigma$, $b = v_0 \tau \cos \theta / \sigma$ 。假设气溶胶在第一次触及地面时沉降静止, 不再运动。线性边界的标准布朗运动的首达时概率密度函数^[8]为

$$f_c(t) = \frac{b}{\sqrt{2\pi t^3}} \exp\left[-\frac{(at+b)^2}{2t}\right] \quad (3)$$

当 $a = 0$ 时, 即为固定边界 $C(t) = b$ 的标准布朗运动概率密度函数以及分布函数为

$$f_c(t) = \frac{b}{\sqrt{2\pi t^3}} \exp\left[-\frac{b^2}{2t}\right] \quad (4)$$

$$F_c(t) = 2\left(1 - \Phi\left(\frac{b}{\sqrt{t}}\right)\right) \quad (5)$$

其中 Φ 为标准正态分布函数。

固定边界的布朗运动首次达时可以用直接抽样法^[9] 抽样得到

$$t = \left(\frac{b}{\Phi^{-1}\left(1 - \frac{\xi}{2}\right)}\right)^2 \quad (6)$$

其中 ξ 为随机数。由于布朗运动具有常返性^[10], 也就是对于任意的固定边界, 布朗运动以概率 1 会到达该边界, 首次达时 t 几乎必然是有限的, 但 t 有无穷的期望, 也就是平均首次达时是无穷的。这表明抽样出来的首次达时 t 有小概率很大, 导致气溶胶由于布朗运动长时间滞空而不沉降。

在另外两个方向上分别以时间间隔 t 来抽样出布朗运动的位移即可确定本次反冲气溶胶的最终落点。以固定边界首次达时替代线性边界首次达时抽样方便, 但抽样结果会略微偏大。因为两者的概率密度函数曲线的交点在 $t = -\frac{2b}{a}$ 。当 $t < -\frac{2b}{a}$ 时, 固定边界首次达时概率密度偏小, 反之偏大。

1.3 气溶胶反冲布朗运动迁移模拟算法 气溶胶反冲迁移蒙特卡洛模拟算法主要包括 3 次抽样。第 1 次抽样气溶胶反冲方向, 由此计算出只反冲情况下气溶胶的落点坐标和反冲高度。第 2 次抽样气溶胶重力沉降过程中布朗运动的落地首次达时, 并且由该时间经过第 3 次抽样得到气溶胶横向布朗运动位移, 从而确定气溶胶最终落点坐标。该算法的伪代码如图 2 所示。

算法：气溶胶反冲布朗运动迁移模拟

输入参数：气溶胶粒径、密度、 α 能量

计算参数：气溶胶反冲初速度 v_0 ，张弛时间 τ ，布朗运动参数 σ

For 每次反冲

 抽样反冲方向 (θ, φ) :

$\theta = \cos^{-1}(2\xi - 1)$

$\varphi = 2\pi\xi$

 If $\theta \geq 90^\circ$, then 返回下一次反冲

 记录反冲沉降落点 (x, y) :

$x = v_0\tau \sin \theta \cos \varphi$

$y = v_0\tau \sin \theta \sin \varphi$

 计算参数：反冲高度 $h = v_0\tau \cos \theta$

 计算参数：标准布朗运动边界 $b = h/\sigma$

 抽样落地时间： $t = (b/\Phi^{-1}(1 - \xi/2))^2$

 抽样 t 时间横向布朗运动位移 $B_x(t), B_y(t) \sim N(0, \sigma^2 t)$

 记录反冲和布朗运动落点 (x, y) :

$x = x + B_x(t)$

$y = y + B_y(t)$

End

统计两组落点的迁移距离分布

图 2 气溶胶反冲布朗运动迁移模拟算法伪代码

Figure 2 Pseudocode of migration simulation algorithm for aerosol recoil and Brownian motion

2 结果

以粒径 10 nm 气溶胶为例，综合反冲沉降和布朗运动作用，气溶胶迁移距离分布如图 3，可以看出布朗运动作用使得气溶胶迁移距离增大。对于 10~50 nm 粒径的气溶胶，粒径越小，布朗运动最强，迁移距离累积概率分布函数如图 4 所示，气溶胶的迁移距离可以达到 100 μm 或者更远，远大于其反冲本身的最大迁移 1.39 μm 。

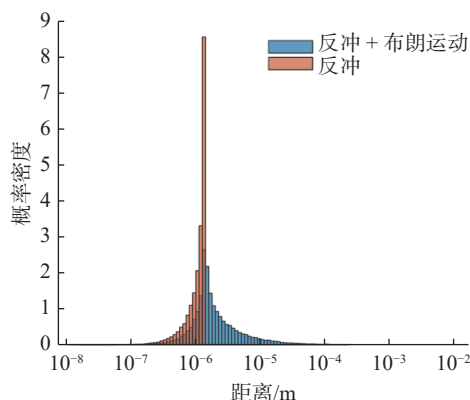


图 3 10 nm 气溶胶反冲和布朗运动迁移距离分布

Figure 3 Migration distance of 10 nm aerosol recoil and Brownian motion

3 讨论

本文用蒙特卡洛方法研究了纳米气溶胶在 α 反冲作用和布朗运动作用下的迁移能力。结果表明在不考虑强对流作用的前提下，纳米气溶胶可以在 α 反冲的

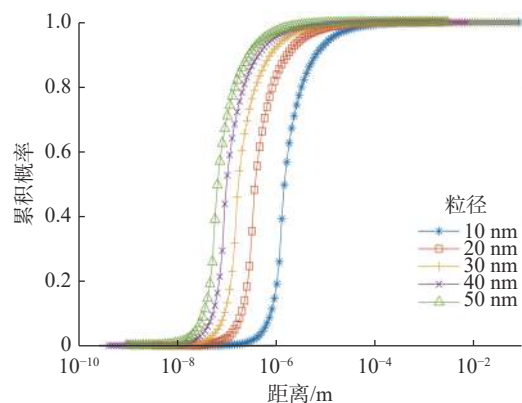


图 4 10~50 nm 气溶胶反冲和布朗运动迁移距离累积概率分布

Figure 4 Cumulative probability of migration distance of 10-50 nm aerosol recoil and Brownian motion

作用下发生迁移，相对于反冲沉降，气溶胶滞空后的布朗运动是纳米气溶胶迁移的主要作用。气溶胶布朗运动落地首达时抽样有小概率会得到很大的落地时间，因此气溶胶虽然大概率在有限的时间内都会沉降，但仍有长时间滞空可能性。如果滞空期间有强对流作用^[1]，那么气溶胶可实现长距离迁移。文献^[2]中提到的放射性反冲是气溶胶脱离表面的一种作用，在脱离表面之后布朗运动导致的长时间滞空行为是放射性纳米气溶胶的一种不可忽视的迁移机制。

利益冲突 本研究由署名作者按以下贡献声明独立开展，排名无争议。文章不涉及任何利益冲突

作者贡献声明 李传龙负责公式推导、算法开发、分析结果

和撰写论文;郭金森、汪传高、庞洪超、刘森林负责审阅及提出修改意见

参考文献

- [1] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB 18871—2002 电离辐射防护与辐射源安全基本标准[S]. 北京: 中国标准出版社, 2003.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. GB 18871—2002 Basic standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources[S]. Beijing: Standard Press of China, 2003.
- [2] Icenhour AS. Transport of radioactive material by alpha recoil[R]. Oak Ridge: Oak Ridge National Lab, 2005.
- [3] International Commission on Radiological Protection. ICRP publication 88. Doses to the embryo and fetus from intakes of radionuclides by the mother[R]. Oxford: Pergamon Press, 2002.
- [4] 蒋仲安, 陈举师, 温昊峰. 气溶胶力学及应用[M]. 北京: 冶金工业出版社, 2018: 31-39.
- Jiang ZA, Chen JS, Wen HF. Aerosol mechanics and applications[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2018: 31-39.
- [5] Silverman MP, Mudvari A. Brownian motion of radioactive particles: derivation and monte carlo test of spatial and temporal distributions[J]. *World J Nucl Sci Technol*, 2018, 8 (2) : 86-119. DOI: [10.4236/wjnst.2018.82009](https://doi.org/10.4236/wjnst.2018.82009).
- [6] Xiong YH, Zhang XD, Hu LB. A method for tracking the Brownian motion to estimate the size distribution of submicron particles in seawater[J]. *Limnol Oceanogr Methods*, 2022, 20 (7) : 373-386. DOI: [10.1002/lom3.10494](https://doi.org/10.1002/lom3.10494).
- [7] Eleftheriadis K, Ioannidou A. Radioactive aerosol analysis[M]//L'Annunziata MF. Handbook of Radioactivity Analysis. 4th Ed. Amsterdam: Academic Press, 2020. DOI: [10.1016/b978-0-12-814395-7.00004-0](https://doi.org/10.1016/b978-0-12-814395-7.00004-0).
- [8] Jin ZY, Wang LQ. First passage time for brownian motion and piecewise linear boundaries[J]. *Methodol Comput Appl Probab*, 2017, 19 (1) : 237-253. DOI: [10.1007/s11009-015-9475-2](https://doi.org/10.1007/s11009-015-9475-2).
- [9] 许淑艳. 蒙特卡罗方法在实验核物理中的应用[M]. 第二版. 北京: 原子能出版社, 2006: 29-32.
- Xu SY. Application of Monte Carlo method in experimental nuclear physics[M]. 2nd Ed. Beijing: Atomic Energy Press, 2006: 29-32.
- [10] 张波, 商豪, 邓军. 应用随机过程[M]. 第五版. 北京: 中国人民大学出版社, 2020: 133-149.
- Zhang B, Shang H, Deng J. Applied stochastic processes[M]. 5th Ed. Beijing: China Renmin University Press, 2020: 133-149.
- [11] 周艳玲, 骆志平, 毕远杰, 等. 手套箱内粉末倾倒产生气溶胶的分布特性研究[J]. *中国辐射卫生*, 2021, 30 (2) : 148-153,164. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2021.02.006](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2021.02.006).
- Zhou YL, Luo ZP, Bi YJ, et al. Study on the distribution characteristics of aerosol produced by powder dumping in glove box[J]. *Chin J Radiol Health*, 2021, 30 (2) : 148-153,164. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2021.02.006](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2021.02.006).

(收稿日期:2023-02-26)