

Спектр неупругих столкновений медленных протонов в области молекулярных возбуждений воды

А. В. Багуля⁺¹⁾, В. М. Гришин⁺, И. Н. Завестовская^{+,*}, В. А. Рябов⁺

⁺Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{*}Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 июля 2024 г.

После переработки 20 августа 2024 г.

Принята к публикации 20 августа 2024 г.

Спектр неупругих столкновений медленных протонов в области молекулярных возбуждений воды построен на основе комплексного показателя преломления воды, определяемого из оптических измерений в инфракрасном, видимом и ультрафиолетовом диапазонах. В области атомных частот (энергий) спектр неупругих столкновений определялся по интегральному сечению поглощения рентгеновского и гамма излучений. Полученные спектры позволят расширить интервал применимости модели фотоионизации, что представляет интерес для улучшения дозиметрического планирования облучения пациентов при протонной (ионной) терапии.

DOI: 10.31857/S0370274X24090233, EDN: HWLQFM

1. Введение. Протонная терапия онкологических заболеваний [1] требует точного моделирования ионизации биологических сред в области пика Брэгга, отвечающей кинетической энергии протона меньше примерно 20 МэВ. Вода является основной составляющей биологических материалов человеческого тела, поэтому ионизационные эффекты медленных заряженных частиц в воде обсуждались в ряде статей, см. обзор [2] и указанные там ссылки.

В рамках программного пакета [3–5] развивается отдельный проект GEANT4-DNA [6–9], задачей которого является развитие электромагнитной физики низких энергий для моделирования прохождения излучений через биоматериалы, прежде всего через воду, которую часто используют для оценки дозиметрического планирования.

На рисунке 1 показана кривая Брэгга для поглощения протонов с начальной энергией 110 МэВ в воде. Кривая отвечает моделированию, выполненному с использованием предназначенного для медицинских исследований набора физических моделей QBVC-opt_4 [5] пакета GEANT4. Точки на рисунке соответствуют экспериментальным данным [10, 11]. Кривая и точки нормированы на максимум пика Брэгга на рис. 1. Видно, что кривая качественно описывает данные, однако пик Брэгга, особенно его ниспадающая часть, отвечающая самым медленным протонам, смещен. Приведенный χ^2 , отвечающий об-

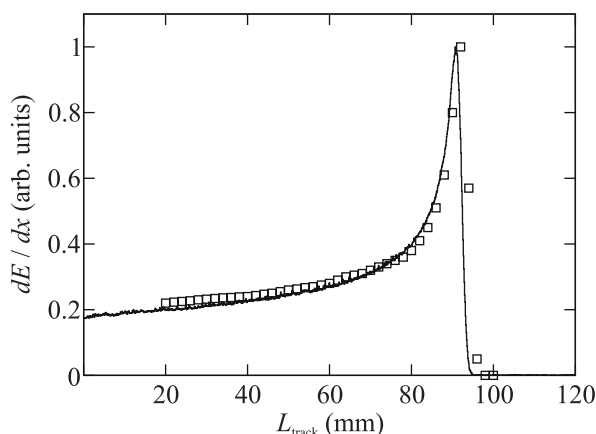


Рис. 1. Кривая Брэгга для поглощения протонов с начальной энергией 110 МэВ в воде. Кривая отвечает моделированию с использованием предназначенного для медицинских исследований набора физических моделей QBVC-opt_4 пакета GEANT4. Точки – эксперимент [10, 11]

ласти пика Брэгга 70–96 мм, равен примерно 170, что нельзя назвать удовлетворительным результатом моделирования.

В рамках пакета GEANT4 была разработана и реализована программно модель фотоионизации (МФИ, photo-absorption ionisation (PAI) model) [12], которую несмотря на относительную медленность можно модифицировать для расчетов дозиметрического планирования облучения пациентов в рамках протонной (ионной) терапии.

¹⁾e-mail: bagulyaav@lebedev.ru

Целью настоящей работы является определение спектра неупругих столкновений медленных заряженных частиц (протонов, электронов) для широкой области передач энергии от молекулярных возбуждений до атомных частот (энергий), в рамках МФИ.

2. Потери энергии медленных заряженных частиц в среде. В наиболее общей форме, следующей из квантовой механики [13] и квантовой электродинамики в среде [14], среднее число ионизирующих столкновений, $d^3\bar{N}_{||}/dxdkd\omega$, на единицу пути заряженной частицы, x , в единицу потерь энергии, ω , и в единицу потерь импульса, k , описывается следующим соотношением [14]:

$$\frac{d^3\bar{N}_{||}}{dxdkd\omega} = \frac{2\alpha}{\pi\hbar c} \frac{1}{k\beta^2} \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\epsilon(\omega, k)} \right\}, \quad (1)$$

где α – постоянная тонкой структуры, $\hbar$ – постоянная Планка, а $\beta = v/c$ – отношение скорости частицы, v , к скорости света в вакууме, c . Множитель, $\text{Im}\{-1/\epsilon(\omega, k)\}$, называется функцией потерь энергии (ФПЭ, energy loss function – ELF). Она связана с диэлектрической проницаемостью среды, $\epsilon(\omega, k)$, являющейся комплексной величиной, что отражает поглощение электромагнитных волн в широком диапазоне энергий (частот). Соотношение (1) отвечает продольным потерям энергии ($||$) из-за кулоновского взаимодействия и является основным механизмом потерь энергии медленных частиц.

Определение зависимости диэлектрической проницаемости от k , пространственной дисперсии, является сложной проблемой и обычно описывается с помощью приближенных эмпирических моделей. Например, в проекте GEANT4-DNA используется модель Лоренца–Друда для набора гармонических осцилляторов с затуханием, требующая однако относительно большого числа настраиваемых эмпирических параметров (например, 27 параметров, отмеченных в [2]).

Другой подход основан на модели фотоионизации МФИ [15, 16]:

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\epsilon(\omega, k)} \right\} = \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\epsilon(\omega)} \right\} H\left(\omega - \frac{k^2}{2m}\right) + \delta\left(\omega - \frac{k^2}{2m}\right) \frac{1}{\omega} \int_{\omega_{\min}}^{\omega} \omega' \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\epsilon(\omega')} \right\} d\omega', \quad (2)$$

где m – масса электрона, H – ступенчатая функция Хевисайда, а δ – дельта-функция Дирака. В таком виде ФПЭ приблизительно описывает поверхность Бете для обобщенных сил осцилляторов [16, 17]. Величина $\omega_{\min}$ определяется нижней границей рассматриваемого спектра передач энергии в одном неупругом столкновении.

В оптическом приближении диэлектрическая проницаемость, $\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$, приводит к следующей ФПЭ:

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\epsilon(\omega)} \right\} = \frac{\epsilon_2(\omega)}{|\epsilon(\omega)|^2} = \frac{\epsilon_2(\omega)}{\epsilon_1^2(\omega) + \epsilon_2^2(\omega)}, \quad (3)$$

которая будет использована для построения спектра неупругих столкновений медленных заряженных частиц в рамках МФИ в воде.

3. Диэлектрическая проницаемость воды в области молекулярных возбуждений. Диэлектрическая проницаемость среды в общем виде связана с комплексным показателем преломления следующим соотношением [18]:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) = (n(\omega) + i\kappa(\omega))^2, \quad (4)$$

где n – показатель преломления среды, а κ – коэффициент поглощения электромагнитных волн.

В инфракрасной, видимой и ультрафиолетовой областях спектра удобно воспользоваться данными оптических измерений в воде для комплексного показателя преломления [19, 20]. В области передач энергий, отвечающих атомным оболочкам, выше первого потенциала ионизации можно связать мнимую часть диэлектрической проницаемости с сечением фотопоглощения, а для реальной ее части воспользоваться приближением высоких энергий:

$$\epsilon_2(\omega) \simeq \frac{\hbar c}{\omega} N_{at} \sigma_{\gamma}(\omega), \quad \epsilon_1(\omega) \simeq 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \lesssim 1, \quad (5)$$

где $\sigma_{\gamma}(\omega)$ – сечение поглощения рентгеновских и гамма-квантов в воде, N_{at} – число молекул воды в единице объема, а ω_p – плазменная энергия воды (21.46 эВ). Сечение поглощения воды в рентгеновской и гамма-областях хорошо известно экспериментально и подробно табулировано [21]. Данные [19] и [21] перекрываются и могут быть плавно соединены в области 40–50 эВ.

На рисунках 2, 3 показаны зависимости реальной и мнимой частей диэлектрической проницаемости воды от энергии фотонов в области 10^{-3} – $5 \cdot 10^5$ эВ. На этих рисунках приняты следующие обозначения: пунктирная кривая отвечает данным [19], штриховая – данным [21], а сплошная является их объединением. Для такого же энергетического диапазона на рис. 4 приведена зависимость ФПЭ воды от энергии фотонов. Пунктирная кривая соответствует данным [21], а сплошная является объединением данных [19] и [21]. Точки отвечают экспериментальным измерениями в пучках синхротронного излучения:

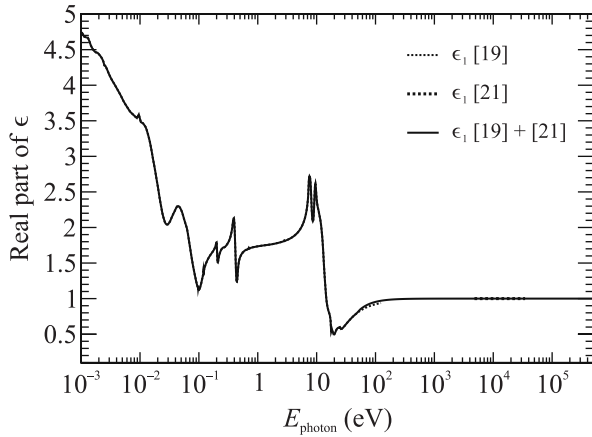


Рис. 2. Реальная часть диэлектрической проницаемости воды в зависимости от энергии фотонов. Пунктирная кривая отвечает оптическим данным [19], штриховая – данным фотоионизации [21], сплошная – их объединению

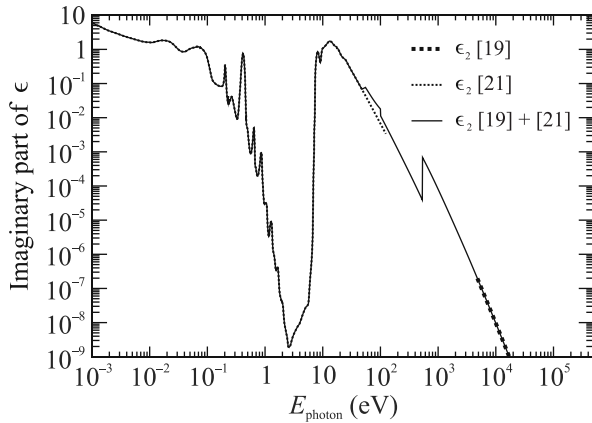


Рис. 3. Мнимая часть диэлектрической проницаемости воды в зависимости от энергии фотонов. Пунктирная кривая отвечает оптическим данным [19], штриховая – данным фотоионизации [21], сплошная – их объединению

открытые кружки [22], открытые квадраты [23]. Отметим, что данные на рис. 4 заметно отличаются, тогда как сплошная кривая проходит посередине между ними.

4. Обсуждение. Используя оптические данные для воды в инфракрасном, видимом и ультрафиолетовом диапазонах, можно расширить описание ФПЭ из области атомных частот в широкую область молекулярных возбуждений. Нижняя граница ФПЭ около 10^{-3} эВ соответствует примерно длине волны электромагнитного излучения 100 микрон. Это характерный максимальный размер клетки человека, линейный размер которой распределен в интервале до примерно 100 микрон с максимумом поряд-

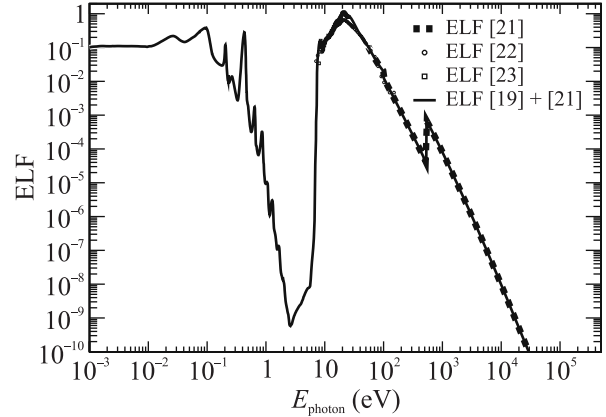


Рис. 4. Функция потерь энергии воды в зависимости от энергии фотонов. Пунктирная кривая отвечает оптическим данным фотоионизации [21], сплошная – их объединению с данными [19]. Точки: открытые кружки – эксперимент [22], открытые квадраты – данные [23]

ка 10 микрон [24]. Таким образом можно перекрыть широкий диапазон передач энергии при неупругих столкновениях медленной заряженной частицы с водой, включая характерные размеры молекул и клеток человека.

Проиллюстрируем применение ФПЭ воды в расширенном диапазоне передач энергии на примере спектра передач энергии протона (электрона) в воде в рамках МФИ. Соотношение (2) позволяет проинтегрировать (1) по переданному импульсу от нижнего предела, $k_{\min} \simeq \omega/v$, определяемого кинематикой неупругого столкновения до максимального значения $k_{\max} = \sqrt{2m\omega}$, отвечающего аргументу ступенчатой функции. Тогда спектр передач энергии в неупругих столкновениях, $d^2\bar{N}_{\parallel}/dx d\omega$, имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\bar{N}_{\parallel}}{dx d\omega} &= \int_{k_{\min}}^{k_{\max}} \frac{d^3\bar{N}}{dx dk d\omega} dk = \\ &= \frac{1}{\pi\beta^2} \frac{\alpha}{\hbar c} \left[\frac{\epsilon_2(\omega)}{|\epsilon(\omega)|^2} \ln \left(\frac{2m\omega^2}{\omega} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\omega^2} \int_{\omega_{\min}}^{\omega} \omega' \frac{\epsilon_2(\omega')}{|\epsilon(\omega')|^2} d\omega' \right]. \end{aligned} \quad (6)$$

На рисунке 5 показан расширенный спектр передач энергии протона с кинетической энергией 50 кэВ в воде в рамках МФИ. Спектр по форме в целом повторяет ФПЭ в области кинематически допустимых передач энергии. В области 0.4–0.5 эВ наблюдаются пики, связанные с колебаниями структуры молекулы воды (расстояние между атомами или угол между атомами водорода). Пик около 8 эВ отвечает процессам присоединения электрона к молекуле воды с образованием отрицательных ионов, H^- ,

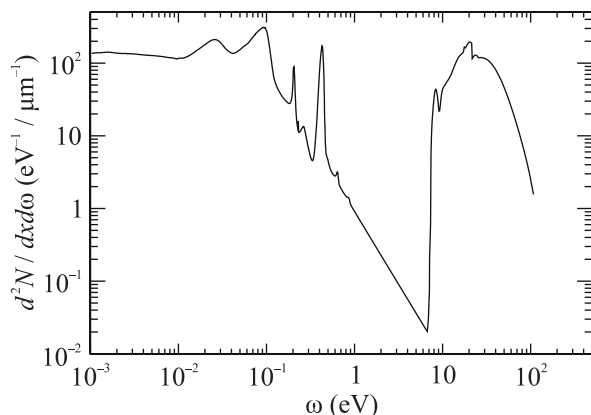


Рис. 5. Спектр передач энергии протонов с кинетической энергией 50 кэВ в воде

O^- или OH^- [25]. На краю кинематически возможных передач энергий для 50 кэВ-го протона находится широкий максимум (≈ 20 –50 эВ), который связан с возбуждениями внешних оболочек атомов водорода и кислорода, а также с возникновением продольных колебаний, отвечающих плазменной частоте воды. Отметим наличие высокого и широкого плато передач энергии ниже 0.1 эВ, хотя его вклад в общий спектр неупругих столкновений мал из-за узости соответствующего интервала энергий. Результатом неупругих столкновений медленных протонов является появление вторичных электронов с кинетическими энергиями, отвечающими максимуму спектра на рис. 5. Их спектр, показанный для примера на рис. 6 для вторичного электрона с кинетической энергией 50 эВ, уже более смещен в область молекулярных возбуждений.

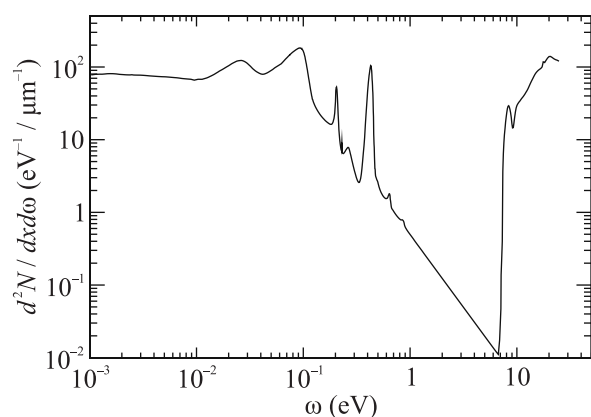


Рис. 6. Спектр передач энергии электронов с кинетической энергией 50 эВ в воде

Таким образом, впервые построен спектр неупругих передач энергии медленных заряженных частиц (протоны, электроны) в области молекулярных возбуждений воды в рамках МФИ (используемой здесь

как модель пространственной дисперсии) на основе оптических и фото-ионизационных данных, свободных от эмпирических параметров. Построение спектра передач энергии медленной заряженной частицы в рамках МФИ на основе экспериментальных данных, связанных с фотонами, вообще говоря, недооценивает вклад продольных возбуждений. Это требует дополнительного развития МФИ для описания ионизационных потерь медленных заряженных частиц, имеющих конечной целью улучшение точности дозиметрического планирования для протонной (ионной) терапии пациентов.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения # 075-15-2021-1347.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. A. V. Soloviev (editor), *Nanoscale insights into ion-beam cancer therapy*, Springer, Cham (2017).
2. D. Emfietzoglou, *Rad. Phys. Chem.* **66**, 373 (2003).
3. S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako et al. (GEANT4 collaboration), *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **506**, 250 (2003).
4. J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis et al. (GEANT4 collaboration), *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **53**, 270 (2006).
5. J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis et al. (GEANT4 collaboration), *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **835**, 186 (2016).
6. S. Incerti, G. Baldacchino, M. Bernal, R. Capra, C. Champion, Z. Francis, P. Guèye, A. Mantero, B. Mascialino, P. Moretto, P. Nieminen, C. Villagrasa, and C. Zacharatou, *Int. J. Model. Simul. Sci. Comput.* **1**, 157 (2010).
7. S. Incerti, A. Ivanchenko, M. Karamitros et al. (Collaboration), *Med. Phys.* **37**, 4692 (2010).
8. M. A. Bernal, M. C. Bordage, J. M. C. Brown et al. (Collaboration), *Phys. Med.* **31**, 861 (2015).
9. S. Incerti, I. Kyriakou, M. A. Bernal et al. (Collaboration), *Med. Phys.* **45**, 722 (2018).
10. I. Gudowska, N. Sobolevsky, P. Andreo, D. Belkić, and A. Brahme, *Phys. Med. Biol.* **49**, 1933 (2004).
11. U. Oelfke, G. K. Y. Lam, and M. S. Atkins, *Phys. Med. Biol.* **41**, 177 (1996).
12. J. Apostolakis, S. Giani, L. Urban, M. Maire, A. V. Bagulya, and V. M. Grichine, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **453**, 597 (2000).
13. U. Fano, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **13**, 1 (1963).
14. Д. А. Киржниц, В. В. Лосяков, В. А. Чечин, *ЖЭТФ* **97**, 1089 (1990). [D. A. Kirzhnits, V. V. Losyakov, and V. A. Chechin, *Sov. Phys. JETP* **70**, 609 (1990)].

15. W. W. Allison and J. H. Cobb, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **30**, 253 (1980).
16. В. С. Асосков, В. М. Гришин, Е. Л. Ермилова, Л. П. Котенко, Г. И. Мерзон, В. А. Чечин, Труды ФИАН **140**, 1 (1982) [V. S. Asoskov, V. M. Grishin, V. K. Ermilova, L. P. Kotenko, G. I. Merzon, and V. A. Chechin, *Tr. Fiz. Inst. im. P. N. Lebedeva, Akad. Nauk SSSR* **140**, 1 (1982)].
17. M. Inokuti, *Rev. Mod. Phys.* **43**, 297 (1971).
18. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика: учеб. пособ.: для вузов, в 10 т. Т. VIII. Электродинамика сплошных сред*, 2-е изд., Физматлит, М. (1982), 621 с. [L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of continuous media*, Oxford-New York-Beijing-Frankfurt (1984)].
19. D. J. Segelstein, *The complex refractive index of water*, MD, Kansas City, Missouri (1981).
20. <https://www.oceanopticsbook.info/view/optical-constituents-of-the-ocean/water>.
21. F. Biggs and R. Lighthill, *Analytical Approximation for X-ray Cross Sections*, SAND-0070, May (1990).
22. H. Hayashi, N. Watanabe, Y. Udagawa, and C.-C. Kao, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA (PNAS)* **97**, 6264 (2000).
23. J. M. Heller, R. N. Hamm, R. D. Birkhoff, and L. R. Painter, *J. Chem. Phys.* **60**, 3483 (1974).
24. I. A. Hatton, E. D. Galbraith, N. S. C. Merleau, T. P. Miettinen, B. McDonald Smith, and J. A. Shander, *PNAS* **120**, 1 (2023).
25. Y. Itikawa and N. Mason, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **34**, 1 (2005).