

CALCULO AB-INITIO DEL PODER DE FRENAMIENTO ELECTRONICO DE VAPOR DE AGUA POR IMPACTO DE PROTONES Y DESVIACIONES EN LA REGLA DE ADITIVIDAD DE BRAGG.

G.H. OLIVERA*, A.E. MARTINEZ y R.D. RIVAROLA.

Grupo de Colisiones Atómicas, Instituto de Física Rosario (CONICET-UNR), Av. Pellegrini 250, (2000) Rosario, Argentina.

e-mail: olivera@unrctu.edu.ar, colision@ifir.edu.ar

P.D. FAINSTEIN

Laboratoire de Chimie -Physique, Matière et Rayonnement, Université Pierre et Marie Curie, 11 Rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris, Francia.

Resumen: La pérdida de energía de haces de protones en vapor de agua es estudiada usando una aproximación de estado de carga por el método de onda distorsionada, dentro de un tratamiento totalmente mecánico cuántico. Este modelo tiene en cuenta el efecto debido a la distorsión del potencial Coulombiano. Se consideran energías de impacto entre 10keV/amu a 1 MeV/amu. Se calcula el poder de frenamiento electrónico medio y las fracciones de carga en el equilibrio, comparándolo con resultados experimentales. El cálculo utiliza diferentes aproximaciones para describir la molécula de agua. Encontramos que con una buena descripción del canal de ionización por protones, es posible obtener una excelente descripción del poder de frenamiento electrónico en todo el rango de energía considerado, aun cuando se aplique aditividad de Bragg en los otros canales de reacción.

Introducción

Uno de los constituyentes más abundantes de las células es el agua. El cálculo del poder de frenamiento de agua por impacto de protones no sólo es de interés desde el punto de vista teórico, sino también por su aplicación en áreas como Física de Radiaciones, Efectos Biológicos de Radiaciones, y Radioterapia. Resulta de primordial importancia en áreas de la Física Médica como terapia con protones y neutrones [1]. Inokuti and Berger remarcan el hecho que a menos que uno conozca el poder de frenamiento correctamente, no puede esperarse discutir la deposición de energía en gran detalle [2]. Por esta razón en este trabajo analizamos la posible aplicación de la aproximación de onda distorsionada (DW) en la deposición de energía. Extendemos el método al estudio de vapor de agua en el caso de proyectiles con una energía de impacto entre 10 keV/amu y 1 MeV/amu.

Teoría

El método de onda distorsionada:

Describiremos brevemente el método DW. Una explicación más detallada puede verse en Fainstein et al [3].

El método computa el poder de frenamiento electrónico (S_e) a partir de las secciones eficaces relevantes. Usando estas secciones eficaces se puede obtener no sólo la contribución de los diferentes canales de reacción, sino también obtenemos las fracciones de carga en el equilibrio y el poder de frenamiento electrónico. No se tiene en cuenta el acople entre los diferentes canales de reacción.

Los pasos del cálculo son:

sección eficaz -> fracciones de carga en el equilibrio -> poder de frenamiento electrónico

La colisión entre el proyectil desnudo (protón) y el blanco se describe usando la aproximación Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State (CDW-EIS). El largo alcance del potencial coulombiano es tenido en cuenta dentro del marco de esta teoría. Cuando el proyectil es un átomo de hidrógeno la colisión es evaluada con la aproximación de Born (B1).

A partir de las secciones eficaces el poder de frenamiento electrónico medio se calcula como:

* Autor a quien debe enviarse la correspondencia

$$S_e = f(H^+)S_e^+ + f(H^0)S_e^0 \quad (1)$$

donde $f(H^+)$ y $f(H^0)$ son las fracciones de carga en el equilibrio y

$$S_e^\alpha = \sum_f \Delta E_{if} \sigma_{if}^\alpha \quad \text{con } \alpha = +, 0 \quad (2)$$

el poder de frenamiento correspondiente al protón o al hidrógeno respectivamente.

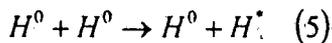
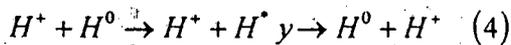
Canales de reacción:

Tres aproximaciones diferentes se usan para obtener el poder de frenamiento electrónico medio de vapor de agua $S_e(H_2O)$. Ahora presentamos los canales de reacción y los pasos para realizar el cálculo.

i) Usamos aditividad de Bragg, es decir sumamos los poderes de frenamiento de hidrógeno $S_e(H)$ y oxígeno $S_e(O)$:

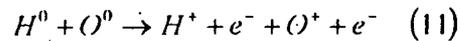
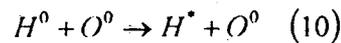
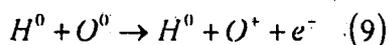
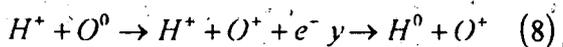
$$S_e(H_2O) = 2S_e(H) + S_e(O) \quad (3)$$

En el caso del poder de frenamiento de hidrógeno atómico los canales de reacción son:



donde el asterisco incluye ionizaciones y excitaciones.

En el caso del oxígeno atómico los canales son:



Procesos que producen excitación del oxígeno no son tenidos en cuenta pero sus influencias en la determinación del $S_e(H_2O)$ se esperan que sean despreciables [4].

ii) Golser y Semrad [5] mostraron diferencias en la aditividad de Bragg en mezclas de gases no interactuantes. Estas diferencias son debidas a que las fracciones de carga en el estado de equilibrio dependen de la presencia de todos sus constituyentes. Además ellos sugieren que esta consideración debe ser tenida en cuenta en el caso de compuestos. Siguiendo esta indicación se calculó el poder de frenamiento usando la expresión:

$$S_e^0(H_2O) = 2S_e^0(H) + S_e^0(O) \quad (12)$$

$$S_e^+(H_2O) = 2S_e^+(H) + S_e^+(O) \quad (13)$$

donde $S_e^0(H_2O)$ ($S_e^+(H_2O)$) es la contribución al poder de frenamiento electrónico del parte neutra (cargada) obtenida a partir la aditividad de los poderes de frenamiento de la parte neutra ($S_e^0(H)$, $S_e^0(O)$) y cargada ($S_e^+(H)$, $S_e^+(O)$) del hidrógeno (H) y del oxígeno (O).

Las correspondientes fracciones de carga de vapor de agua en el equilibrio son:

$$f_{H^+,O}(H^+) = \frac{\sigma^+(H_2O)}{\sigma^+(H_2O) + \sigma^0(H_2O)} \quad (14)$$

$$f_{H^+,O}(H^0) = \frac{\sigma^0(H_2O)}{\sigma^+(H_2O) + \sigma^0(H_2O)} \quad (15)$$

con

$$\sigma^e(H_2O) = 2\sigma^e(H) + \sigma^e(O) \quad (16)$$

$$\sigma^e(H_2O) = 2\sigma^e(H) + \sigma^e(O) \quad (17)$$

donde $\sigma^e(J)$ con $J = H_2O, H$ y O representa la sección eficaz de captura electrónica $\sigma^e(J)$ con $J = H_2O, H$ y O representa la sección eficaz de pérdida electrónica de agua, hidrógeno y oxígeno respectivamente.

Finalmente el poder de frenamiento electrónico medio se calcula como:

$$S_e(H_2O) = f(H^+)S_e^+(H_2O) + f(H^0)S_e^0(H_2O) \quad (18)$$

iii) la tercera aproximación es idéntica a la descrita en ii) excepto que la ionización de H_2O por impacto de protones se representa por una descripción molecular. Básicamente de cada orbital molecular se tiene en cuenta el peso de cada orbital atómico a través de método CNDO (complete neglected differential orbital). La sección eficaz de cada orbital molecular será la suma de las correspondientes atómicas pesadas por los coeficientes dados por el CNDO [6].

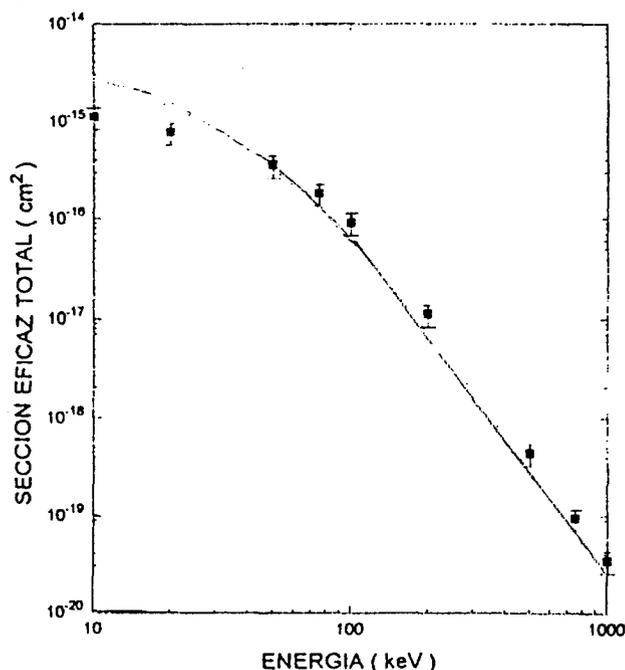


Fig 1: Sección eficaz de captura electrónica de vapor de agua por impacto de protones en función de la energía de impacto. Teoría: (—), CDW-EIS. Experimentos: (■) datos de [11].

Resultados y Discusiones

En la figura 1 se presenta la sección eficaz total de captura CDW-EIS en vapor de agua en función de la energía del protón. Estas secciones se obtienen a partir de las secciones eficaces de oxígeno e hidrógeno usando la aditividad de Bragg. La coincidencia con los datos experimentales es buena para energías intermedias y altas pero sobrestima la zona de bajas energías. Esto confirma las afirmaciones de Dagnac et al [7], que el uso de la regla de Bragg puede utilizarse para representarla captura electrónica.

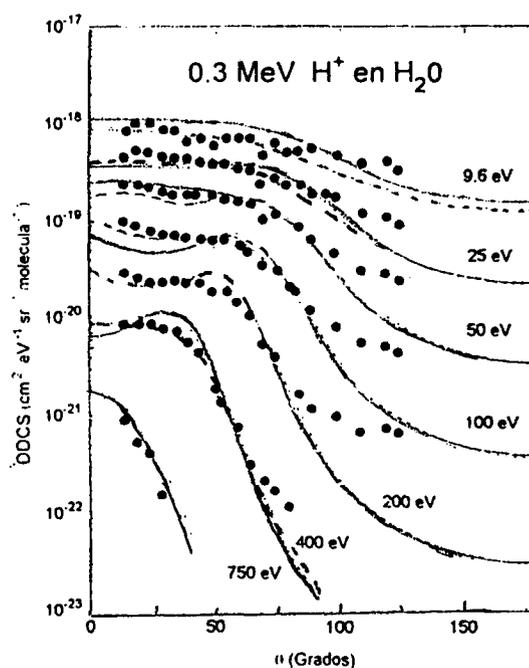


Fig 2: Sección eficaz doble diferencial de ionización de vapor de agua por impacto de protones de 300 keV para diferentes energías del electrón eyectado en función del ángulo de salida. Teoría: (—), CDW-EIS método molecular; (---), CDW-EIS 2 H(atómico) + O(atómico). Experimentos: (●), datos de L.H. Toburen y W.E. Wilson [8].

En la figura 2, se presenta la sección eficaz doble diferencial de ionización de vapor de agua para protones de 300 keV en función del ángulo de salida del electrón para energías fijas del electrón eyectado. La línea de trazo corresponde al uso de la aditividad de Bragg de oxígeno e hidrógeno. La línea continua corresponde al cálculo molecular como se explica en iii). Los

círculos son datos experimentales de Toburen y Wilson [8]. Se encuentra una mejor descripción de los datos experimentales con el cálculo molecular. En general la aditividad de Bragg sobrestima las mediciones en bajas energías del electrón en la región del pico de encuentro binario. Este dominio energético es el que más contribuye al poder de frenamiento.

energía cosa que es conocida para un método perturbativo, sino que también se obtiene una excelente descripción del máximo del poder de frenamiento. Se puede ver que la inclusión del canal neutro es muy importante para la posición del máximo del poder de frenamiento. Las tabulaciones en las zonas de bajas energías son proporcionales a la velocidad aunque nuestros cálculos se desvían.

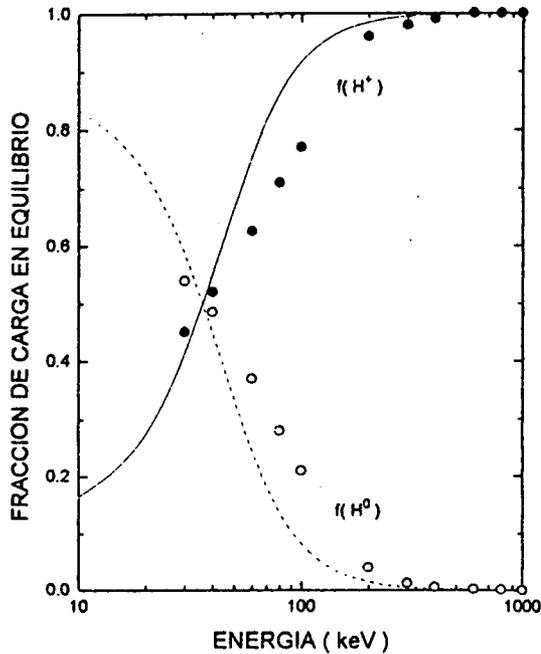


Fig 3: Fracciones de carga en el equilibrio de haces de hidrógeno en vapor de agua en función de la energía de impacto. Teoría: (—), fracción cargada; (- - -), fracción neutra; ambos en aproximación DW. Experimentos: (●) y (○) datos de [11].

En la figura 3 se muestran las fracciones de carga en el equilibrio para el vapor de agua. La coincidencia del método DW con los resultados experimentales es buena. Nuestros resultados confirman las predicciones de Dagnac et al [7] que el uso de la aditividad de Bragg da una buena descripción de los datos moleculares.

En la figura 4 se puede observar el poder de frenamiento electrónico medio (S_e) y de las

fracción cargada ($f(H^+)S_e^+$) y neutra

($f(H^0)S_e^0$). En este caso se empleó la

aproximación molecular para representar el canal de ionización como fue indicado en iii). La coincidencia de estos cálculos con los datos experimentales es muy buena no solo en alta

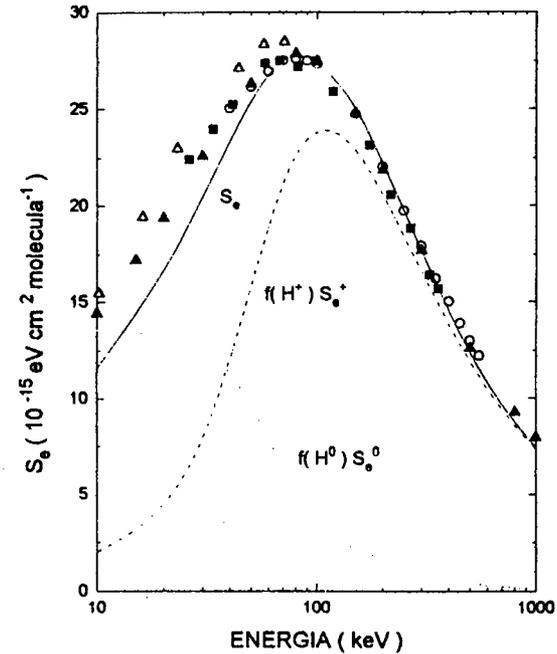


Fig 4: Poder de frenamiento electrónico medio de vapor de agua en función de la energía de impacto del proyectil (aproximación molecular). Teoría: (—), poder de frenamiento medio DW; (- - -), contribución de la fracción cargada al poder de frenamiento medio; (- · · · · -), contribución de la fracción neutra al poder de frenamiento medio. Tablas: (▲), datos de ICRU [12]. Experimentos: (△), datos de Phillips [13]; (○), datos de Reynolds et al [14]; (■), datos de C. Mitterschiffthaler y P. Bauer [15].

En la figura 5 se presenta el poder de frenamiento medio calculado con las tres aproximaciones DW. El método iii) da la mejor descripción de los resultados experimentales. Los cálculos dentro de las aproximaciones i) y ii) sobrestiman el máximo del poder de frenamiento. El buen acuerdo con las mediciones de la descripción del poder de frenamiento por la aproximación iii) respecto a la i) y ii) indica que esta sobre estimación proviene de una falla de la aditividad de Bragg

para representar el canal de ionización por impacto de protones.

Los resultados de Miller y Green [9] (también mostrados en la figura 5) subestiman las mediciones en todo el rango de energía del proyectil. Esto se puede deber al uso de algunos factores de escala de datos de electrones que pueden no ser validos en los máximos de la secciones eficaces. Los resultados de Xu et al [10] coinciden con los datos experimentales en altas energías pero sobrestiman el máximo del poder de frenamiento. También le aplicamos la ley de Bragg a los datos atómicos y moleculares de Xu et al. Se puede observar que la aditividad de Bragg sobrestiman los datos experimentales en ambos casos, pero más en el caso atómico.

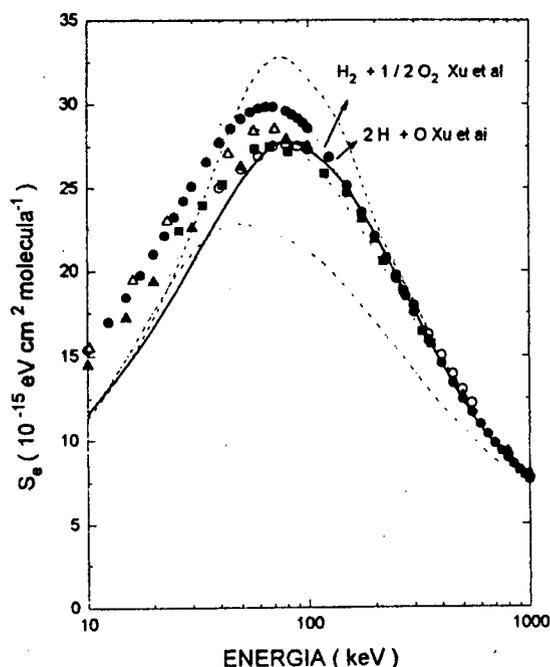


Fig. 5: Poder de frenamiento electrónico de vapor de agua en función de la energía de impacto del proyectil. Teoría: (—), poder de frenamiento medio DW (método molecular) aproximación iii; (- - - - -), poder de frenamiento medio DW aproximación i; (-·-·-·-), poder de frenamiento medio DW aproximación ii; (- - - - -), Miller y Green [9]; (-·-·-·-), agua Xu et al [10]; puntos cortos, 2 H(atómico) + O(atómico) Xu et al [10]; trazos cortos, H(molecular) + 1/2 O(molecular) Xu et al [10]. Tablas: (▲), datos de ICRU [12]; (●), datos de janni [16]. Experimentos: (Δ), datos de Phillips [13]; (○), datos de Reynolds et al [14]; (■), datos de C. Mitterschiffthaler y P. Bauer [15].

Conclusiones

El poder de frenamiento electrónico de vapor de agua es evaluado con el método mecánico cuántico DW que es totalmente ab-initio, mostrando la contribución de la parte cargada y neutra del haz. Usando la aproximación molecular, se obtiene una excelente descripción de los datos experimentales en todo el rango de energía considerado. Se analiza la contribución de cada canal de reacción y se remarca la importancia de la fracción neutra en el poder de frenamiento. Las fracciones de carga en el equilibrio están en buena coincidencia con los datos experimentales. Se muestra que si se describe bien el canal de ionización de vapor de agua por impacto de protones, y se utiliza aditividad de Bragg en los otros canales se obtiene una buena descripción de los datos experimentales. Nosotros estimamos que nuestro resultados son adecuados para energías mayores que 40 keV/amu, es decir donde la fracción de carga preponderante es protón. La aproximación CDW-EIS mostró describir bien los resultados experimentales en estas energías de proyectil. De lo aquí expuesto se puede inferir que el método DW y la aproximación CDW-EIS son excelentes teorías para describir datos básicos en el problema de deposición de energía.

Agradecimientos

Uno de nosotros (G.H.O.) quiere agradecer a H. Busnengo, C.A. Ramírez, V.H. Ponce y N. Arista por las ideas aportadas.

P.D.F. agradece la financiación del CONICET y de la European Communities International Scientific Cooperation Program. The Laboratoire de Chimie Physique Matière et Rayonnements " Unité de Recherche Associée au CNRS (URA 176)".

Referencias

- 1.- T.H. Thwaites; Nucl. Instr. and Meth. **B69** (1992), 53
- 2.- M. Inokuti and M. Berger; Nucl. Instr. and Meth. **B27** (1987), 249.
- 3.- P.D. Fainstein, V.H. Ponce and A.E. Martínez; Phys. Rev. A **47** (1993), 3055.

4.- G.H. Olivera, A.E. Martínez, R.D. Rivarola and P.D. Fainsten; Nucl. Instr. and Meth. B (enviado)

5.- R. Golser and D. Semrad; Phys. Rev. A 45 (1992), R4222.

6.- B. Senger and R.V. Rechenmann; Nucl. Instr. and Meth. B 2 (1984), 204.

7.- R. Dagnac, D. Blanc and D. Molina; J. Phys. B 3 (1970), 1239.

8.- L.H. Toburen and W.E. Wilson; J. Chem. Phys. 66 (1977), 5202.

9.- J.H. Miller and A.E.S. Green; Rad. Res. 54 (1973), 343.

10.- Y.J. Xu, G.S. Khandelwal and J.W. Wilson; Phys. Rev. A 29 (1984), 3419.

11.- C.F. Barnett, J.A. Ray, E. Ricci, M.I. Wilker, E.W. McDaniel, E.W. Thomas and H.B. Gilbody; Atomic data for controlled fusion research, Oak Ridge National Laboratory (1977).

12.- M. Berger, H.H. Andersen, H. Bischel, M. Inokuti, D. Powers, S. Seltzer, D. Thwaites and D. Watt. ICRU Report. Stopping powers of protons and alpha particles.

13.- J.A. Phillips; Phys. Rev. 90 (1953), 532.

14.- H.K. Reynolds, D.N.F. Dunbar, W.A. Wenzel and W. Whaling; Phys. Rev. 92 (1953), 742.

15.- C. Mitterschiffthaler and P. Bauer; Nucl. Instr. and Meth. B 48 (1990), 58.

16.- J.F. Janni; Atomic Data and Nuclear Data Tables 27 (1982), 147.