



CONICET



I F I R

## TESIS DOCTORAL EN COTUTELA

**UNIVERSIDAD NACIONAL DE ROSARIO**

Facultad de Ciencias Exactas, Ingeniería y Agrimensura

Instituto de Física de Rosario CONICET

Rosario, Argentina

y

**UNIVERSITÉ DE LYON**

Université Claude Bernard Lyon 1- Physique & Astrophysique de Lyon

Lyon, Francia

Autora:

**Verónica Belén TESSARO**

# **Deposición de Energía de Radiación Ionizante sobre Sistemas de Interés Biológico. Estudio de la Estructura de Traza de Hadrones y Aplicaciones en Dosimetría para Hadronterapia**

Dirección:

**BEUVE Michaël**, Université Claude Bernard Lyon 1

**GALASSI Mariel Elisa**, Universidad Nacional de Rosario

Rosario, 19 de septiembre 2022



## ABSTRACT

El objetivo de esta tesis es el estudio de parámetros físicos de interés en la dosimetría de referencia para la hadronterapia. Siguiendo protocolos internacionales como el TRS-398 IAEA, la dosimetría de referencia proporciona una metodología para determinar la dosis absorbida en agua utilizando cámaras de ionización. Para convertir la lectura del dosímetro de aire a agua, factores de conversión son requeridos como la razón del *poder de frenado en agua-aire* y los *valores  $W$  en el aire*. Estos son los que más contribuyen a las incertezas en la determinación de la dosis física. Los datos experimentales de *valores- $W$*  son escasos y su cálculo teórico es muy complejo para iones rápidos, por lo cual, los protocolos internacionales recomiendan valores constantes independientemente de la calidad del haz (carga y energía). Para obtener este valor con la mayor precisión posible, se necesita un estudio detallado de los procesos físicos y métodos de cálculo. En los Capítulos 2 y 3 se estudian las secciones eficaces de los procesos físicos relevantes en la deposición de dosis: ionización y excitación electrónica para impacto de electrones e iones. En el Capítulo 4 se describen los códigos Monte Carlo MDM y MDM-Ion, utilizados y optimizados para calcular los parámetros físicos. En el Capítulo 5, se presentan los resultados teóricos de poderes de frenado y valores- $W$  para iones y electrones en agua y otros medios, en buen acuerdo con datos experimentales y recomendados. Los valores- $W$  resultan independientes de la calidad del haz en el rango de altas energías. A energías intermedias y bajas esto deja de ser válido, por lo cual, nuevas investigaciones y valores experimentales son requeridos.

---

**Energy deposition of ionizing radiation in biological systems of interest. Study of hadron track structure and dosimetric application for hadrontherapy**

---

by

Verónica Belén Tessaro

A thesis submitted for the degree of  
Docteur and Doctora en física

by

the Université Claude Bernarde Lyon 1  
and  
the Universidad Nacional de Rosario

19/09/2022

## RESUME

L'objectif de cette thèse est l'étude de paramètres physiques d'intérêt en dosimétrie pour l'hadronthérapie. La dosimétrie de référence fournit une méthodologie pour déterminer la dose absorbée dans l'eau à l'aide de chambres d'ionisation. Pour convertir la lecture du dosimètre de l'air à l'eau, des paramètres physiques sont nécessaires, tels que le rapport de pouvoir d'arrêt de l'eau à l'air et les valeurs  $W$  dans l'air. Actuellement, l'incertitude sur leurs valeurs sont la première source d'incertitude sur la dose. Les données expérimentales des valeurs- $W$  étant rares et son calcul théorique très complexe pour les ions rapides, les protocoles internationaux préconisent une valeur constante, quel que soit la qualité du faisceau. Pour étudier ce paramètre physique, une description détaillée des processus élémentaires et des méthodes de calcul sont nécessaires. Les chapitres 2 et 3 se focalisent sur les sections efficaces des processus inélastiques : l'ionisation simple et multiple et l'excitation électronique par l'impact des électrons et des ions. Le chapitre 4 décrit les codes de simulation Monte Carlo MDM et MDM-Ion utilisés et optimisés. Le chapitre 5 montre des valeurs théoriques des pouvoirs d'arrêt et des coefficients  $W$  des ions et électrons, en accord avec les données expérimentales ou les valeurs recommandées. A haute énergie, les valeurs  $W$  apparaissent constantes. Nous avons aussi démontré un impact significatif des processus d'excitation électronique et de l'émission Auger. L'écart observé avec les valeurs recommandées dans le domaine des basses et moyennes énergies suggère des études supplémentaires.

The aim of this thesis is the study of physical parameters of interest in reference dosimetry for ion radiation therapy, called hadrontherapy. Following international protocols as the TRS-398 IAEA, the reference dosimetry provide a methodology to determine the absorbed dose in water using ionization chambers. To convert the dosimeter lecture from air to liquid water conversion factors are required like the *stopping power ratio of water to air* and the *W-values in air*. Their study is relevance because they are the ones that contribute the most to uncertainties in physical dose determination. The *W-values* experimental data are scarce and theoretical calculations are very complex for swift ions, so international dosimetry protocols recommend constant values, regardless of the quality of the beam (charge and energy). To obtain this value with the highest accuracy, a detailed study of the physical processes and calculation methods are needed. In Chapters 2 and 3, the cross sections of all the physical processes of relevance in dose deposition are studied, this is: single and multiple ionization with post-colisional effect and electronic excitation for electron, proton and carbon ion projectiles. Chapter 4 describes the Monte Carlo codes: MDM and MDM-Ion, used and optimize to calculated the physical parameters. In Chapter 5 these parameters are calculated in detail with two methods: the Monte Carlo codes and the Continuous Slowing Down Approximation. Results show an independence with the charge, mass and energy of the projectile in the high-energy range. This behavior does not happen in the low-intermediate energy range so new research and experimental values are required.

- Hadronthérapie, Pouvoir d'Arrêt, valeurs W
- Hadrontherapy, Stopping Power, W Values
- Hadronterapia, Stopping Power, Valores W

## RESUME

Les rayonnements (radiations) ionisants s'emploient actuellement pour le traitement de différentes maladies, parmi lesquelles le cancer, qui présente une haute incidence dans le monde entier. La radiothérapie emploie des faisceaux externes de radiations ionisantes dans le but d'éliminer les cellules cancéreuses tout en réduisant au minimum les dommages aux tissus sains. On appelle "Radiothérapie conventionnelle", la radiothérapie qui utilise des faisceaux de photons ou d'électrons. Par ailleurs, l'Hadronthérapie utilise des faisceaux de hadrons rapides (particules composées de quarks) tels que des protons, des neutrons ou des ions légers. Les faisceaux d'ions rapides ont un profil de dose complètement différent de celui des photons et des électrons. En effet, il se caractérise par la présence d'un "plateau" où la dose déposée se maintient pratiquement constante jusqu'à une profondeur bien définie, appelé le "Pic de Bragg" : en aval de ce pic, la dose tombe rapidement à zéro dans le cas des protons, ou à des valeurs infimes pour les particules alpha ou ions carbone. Cette particularité, associée à la faible diffusion latérale, permet d'obtenir une balistique très précise. Ces caractéristiques associées aux propriétés radiobiologiques et physiques du rayonnement utilisé, constituent le principal avantage de l'hadronthérapie par rapport à la radiothérapie conventionnelle pour certains traitements déterminés.

Il existe de nombreux centres dans le monde qui utilisent des faisceaux de protons et d'ions légers, aux États-Unis, en Europe, en Asie et en Afrique. Plus particulièrement, la France a été un pays précurseur de l'Hadronthérapie par faisceaux de protons. En effet, de nombreuses équipes de recherche françaises participent à son développement et son implantation via des projets nationaux et internationaux. Par ailleurs, en Argentine, le Centre Argentin de Protonthérapie, en cours de construction, disposera de technologies d'avant-garde en protonthérapie et radiochirurgie ainsi qu'en imagerie de diagnostique. Ce centre disposera à la fois d'un secteur spécialisé en recherche fondamentale et appliquée et d'un secteur dédié au développement technologique.

Afin d'obtenir une prévision correcte des résultats cliniques en radiothérapie, il est nécessaire d'avoir une connaissance précise de la dose absorbée par le tissu biologique. Des erreurs de calcul représentent des risques sérieux pour la santé du patient. En accord avec les recommandations du ICRU et d'autres protocoles internationaux de l'Agence internationale de l'Energie Atomique (IAEA), les imprécisions en dosimétrie clinique ne doivent pas excéder 3%. La détermination de la dose selon des protocoles de références est très importante dans le domaine clinique afin de garantir une dose physique (énergie absorbée par unité de masse) précise et uniforme. Les appareils utilisés (dosimètre) sont calibrés dans des laboratoires de catégories primaires ou secondaires. Ensuite, ceux-ci sont transférés aux cliniques de radiothérapie possédant des faisceaux de même qualité (type de particule et énergie). Actuellement, les laboratoires d'étanottage nationaux ou internationaux ne produisent pas de faisceaux de calibrage de protons et d'ions pour l'Hadronthérapie. Etant donnée cette limitation, des méthodes alternatives ont été développées comme le étanottage des dosimètres en conditions de référence en utilisant des faisceaux de photons et en appliquant ensuite un facteur correctif prenant en compte les différences entre les faisceaux.

Conformément au formalisme prévu par le protocole utilisé actuellement dans les cliniques d'hadronthérapie (TRS-398 IAEA 2000), la dosimétrie de référence doit se

réaliser dans de l'eau liquide en utilisant des chambres d'ionisations avec de l'air à l'intérieur et un électromètre pour recueillir des électrons. Pour convertir en dose dans l'eau liquide, la mesure du courant par l'électromètre, on applique des facteurs de conversion qui dépendent des propriétés physiques de l'interaction de la radiation avec les molécules du milieu. Les facteurs les plus pertinents sont le *quotient de pouvoir d'arrêt eau/air* et la *valeur W*, car ils peuvent être liés à la dose par modélisation. Par conséquent, une incertitude sur leur valeur se traduit en incertitude sur la dose estimée. La IAEA estime qu'une incertitude générale de la dose d'environ 2 % pour les faisceaux de protons et de 3% pour les faisceaux d'ions carbone, sont élevées en comparaison avec l'incertitude de 1 % pour les faisceaux de photons.

**L'objectif principal de cette thèse est d'étudier les paramètres physiques dont la mésestimation conduit à des incertitudes de dosimétrie de référence en Hadronthérapie.**

Pour aborder cette tâche complexe, il est nécessaire d'étudier la trace des ions dans des milieux d'intérêt en appliquant des méthodes qui prennent en compte la nature aléatoire de l'interaction radiation-matière, telles que les simulations Monte Carlo. Le calcul de ces paramètres nécessite une connaissance profonde et détaillée des sections efficaces de toutes les interactions inélastiques des particules chargées avec la matière. Les différents modèles théoriques qui décrivent les processus d'ionisation direct (simple et multiple) et d'excitation électronique sont présentés aux chapitres 2 et 3 pour, respectivement, l'impact d'électrons et d'ions. Les milieux d'intérêt pour cette Thèse sont: l'eau à l'état liquide et gazeux, ainsi que le diazote et le dioxygène, car ils sont les principaux composants de l'air. Aussi bien pour les ions que pour les électrons, l'ionisation est le processus inélastique dominant aux énergies d'impacts considérées ici. Dans le cas d'impact d'électrons, nous avons utilisé le modèle développé par Kim et Rudd pour calculer la section efficace d'ionisation, connu comme le modèle Binary-Encounter-Bethe (BEB) (Kim, Rudd (1994) étant donné qu'il s'agit d'un modèle très simple et largement utilisé (Incerti et al. (2018)). On a proposé une extension de ce modèle à des énergies relativistes, le modèle RBEB (Kim et al. (2000)), et étudié une approximation d'énergie cinétique du projectile comme proposé par Plante, Cucinotta (2008). Nous avons observé un très bon accord entre le modèle théorique relativiste et l'approximation. Ces courbes se séparent des courbes non relativistes à partir des 20 keV comme on pouvait s'y attendre. Dans le cas des sections efficaces d'excitations électroniques il y a très peu de modèles théoriques décrits dans la littérature et encore moins de données expérimentales. Nous avons appliqué le modèle semi-empirique de Green et Stolarsky pour tous les milieux et nous l'avons comparé avec d'autres pour l'eau liquide et la vapeur, en extrapolant aux énergies d'impact plus hautes via une étude de comportement asymptotique. Au chapitre 2 nous analysons aussi l'émission multiélectronique résultante du processus d'émission Auger, comme conséquence de l'ionisation directe d'un électron de l'orbitale K des atomes qui composent les molécules à l'étude.

Dans le chapitre 3, nous étudions les sections efficaces pour l'impact de protons et d'ions carbone. Dans le cas d'une ionisation simple, nous utilisons deux modèles: celui développé par Rudd et al. (1992) pour l'impact des protons et le modèle mécanique quantique d'onde distordue CDW-EIS (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997)). Ce dernier est un modèle à deux centres coulombiens (l'ion et la molécule ionisée), qui permet d'étudier les sections efficaces simplement différentielles comme l'autre modèle,

mais aussi les sections efficaces doublement différentielles en fonction de l'angle et de l'énergie de l'électron émis. Nous l'avons également étendu au domaine relativiste, manifeste au-delà de 50 MeV/u, via la correction de l'énergie cinétique. Ainsi, le modèle peut s'appliquer à l'Hadronthérapie jusqu'à 250 MeV pour les protons et 400 MeV/u pour les ions carbone). Dans le cas de l'excitation électronique, il n'existe pas de données expérimentales ni de modèles théoriques développés pour le cas d'impact d'ions rapides sur l'eau ou sur l'air. Dans ce cas, nous avons utilisé les sections efficaces élaborées grâce à des données expérimentales obtenues par l'impact de photons et d'électrons, après un recalage sur la vitesse des ions incidents. Cette application est valable dans le cas des énergies intermédiaires et hautes. Finalement, les sections efficaces d'excitations électroniques apparaissent comme une source importante d'incertitude, en particulier, pour les ions de la zone distale des tumeurs.

Dans le cas d'impact de protons et d'ions légers, les processus d'ionisation multiples directes et post-collisionnels (émission d'électrons suite au processus Auger, Coster-Kronig ou shake-off) doivent être considérés. Dans le chapitre 3 sont présentés deux modèles théoriques simples développés dans le cadre du Modèle d'Électron Indépendant. Nous avons utilisé une statistique multinomiale avec des probabilités d'ionisation simple modélisées par des fonctions exponentielles décroissantes. Ces dernières sont des fonctions du paramètre d'impact de l'ion et leurs paramètres sont ajustés pour retrouver les sections efficaces d'ionisation simple calculées théoriquement pour chaque orbital atomique ou moléculaire. Nous l'avons d'abord appliqué à l'atome de néon (10 électrons). En effet, comme le néon, la molécule d'eau est fortement monocentrique et contient 10 électrons [Galassi PRA 2007, Galassi soumis 2022]. La deuxième modélisation concerne le monoxyde de carbone et le diazote, pour lesquels les états moléculaires sont considérés pour l'ionisation multiple [Tessaro SHIM 2018]. Les résultats obtenus pour double ionisation sont en accord avec les données expérimentales.

Dans le chapitre 4, sont décrits en détail les codes de transport Monte Carlo MDM (Tessaro et al. (2019); Poignant, et al. (2020)) et MDM-Ion MDM-Ion (Tessaro et al. p(2021)) utilisés et optimisés pour le calcul des paramètres physiques étudiés dans cette Thèse. Le code MDM considère des électrons et des photons comme projectiles pour une diverse gamme d'éléments: H<sub>2</sub>O, SiO<sub>2</sub>, Au. Ce code a la capacité de simuler événement par événement l'histoire de la particule initiale incidente et des électrons générés dans les différents processus lors de l'interaction avec le milieu. Nous avons étendu ce code dans le cadre de cette Thèse afin d'étudier d'autres cibles d'intérêt pour le domaine médical, comme l'eau gazeuse et les molécules qui composent l'air, le diazote et le dioxygène), à partir des sections efficaces étudiées au chapitre 2. Nous avons également étendu ce code (MDM-Ion) pour des impacts d'ions, tel que les protons et les ions carbone, à partir des sections efficaces décrites au chapitre 3. Ceci permet de simuler des traces d'ions dans le domaine des moyennes et hautes énergies.

Le chapitre 5 présente l'étude des paramètres physiques pertinents dans la dosimétrie de référence (les pouvoirs d'arrêt et les valeurs W), pour des impacts d'électrons et d'ions. Nous avons calculé les pouvoirs d'arrêt massiques selon deux méthodes: d'une part via l'Approximation du Ralentissement Continu (Continuous Slowing Down Approximation CSDA). D'autre part, via la version MDM-Ion de la simulation Monte-Carlo. Les résultats obtenus montrent un bon accord entre les deux méthodes de calcul utilisées et les valeurs recommandées par NIST, ICRU REPORT 37

(1984); ICRU REPORT 49 (2015) et ICRU REPORT 90 (2016) pour la dosimétrie clinique.

La valeur  $W$  est le ratio moyen entre le nombre d'ionisations créées par un projectile (électron ou ion) jusqu'à arrêt de ce dernier et l'énergie de ce projectile. Il a été observé expérimentalement que cette valeur présente un comportement asymptotique constant à hautes énergies (IAEA TRS-398 (2000)). Cependant, ces données expérimentales sont très limitées en particulier pour le cas d'impact de protons et d'ions lourds. Les protocoles internationaux recommandent des valeurs constantes, indépendamment de la qualité du faisceau (charge et énergie). Cependant, ces recommandations sont basées sur un nombre restreint de valeurs expérimentales mesurées en gaz noble par collision d'électrons et d'ions légers. C'est pour cela qu'il est nécessaire d'étudier plus en détails et en profondeur son comportement dans toute la gamme d'énergie.

Dans le chapitre 5 nous avons calculé les valeurs  $W$  pour des électrons incidents. Pour les ions incidents, nous avons calculé le  $w$  différentiel ( $w$ ) correspondant au dérivé du nombre d'ionisations par rapport à l'énergie perdue par le projectile. Pour les hautes énergies,  $W$  et  $w$  présentent une valeur constante. Les résultats obtenus par Monte Carlo pour les deux projectiles, électrons et protons, sont en accord dans ce domaine avec la méthode CSDA. Nous avons constaté que  $W$  et  $w$  sont très sensibles aux sections efficaces et notamment aux sections efficaces d'excitation. De plus, nous avons constaté un écart atteignant 4% si l'on prend en compte ou non l'émission Auger. D'autre part, l'approximation relativiste ne modifie pas considérablement ce paramètre comme il était attendu, du fait que le rapport entre les sections efficaces d'ionisations et d'excitations ne sont pas affectées par l'extension relativiste. Les résultats obtenus pour l'eau sont proches et ils ont le même comportement asymptotique que les résultats obtenus grâce aux autres codes de simulation largement utilisés dans la littérature en dosimétrie, microdosimétrie et des recherches en radiobiologie. Les valeurs obtenues pour l'air, comme combinaison de diazote et de dioxygène, par la simulation Monte Carlo diffèrent des valeurs recommandées dans les protocoles de dosimétrie de 6% approximativement. Cette différence est élevée au regard des critères d'incertitude sur le calcul de la dose. A l'avenir, il serait pertinent d'introduire d'autres paramètres qui peuvent avoir un impact sur le protocole de calibration dosimétrique, par exemple la géométrie des chambres d'ionisations, la tension de polarisation, le débit de dose, etc.

Notons enfin que dans le domaine d'énergie étudié ici, le paramètre charge de l'ion incident n'a pas d'impact. Ceci était attendu pour les hautes énergies, en revanche, des études complémentaires seraient nécessaires à basses énergies, domaine pertinent dans la zone distale des tumeurs.

*Le dedico esta tesis a mi familia, apoyo incondicional durante todo este trayecto, desde mis inicios en la carrera de grado hasta el día de hoy. Gracias Ma por confiar siempre en mí.*

*A Santi, mi amor, mi par en este camino de la vida. Gracias por tu paciencia, tu comprensión y apoyo. Siempre empujándome hacia adelante con tus simples consejos “paso 1 .., paso 2..”.*

*También a mi hija Delfina. Su nacimiento ha coincidido con la finalización de esta tesis. Sin duda ella es lo mejor que me ha pasado, y ha llegado en el momento justo para darme el último empujón y finalizar esta etapa.*

*Por último a Mariel, más que directora una amiga, mentora y ejemplo a seguir en muchos aspectos, no solo en lo académico si no también en lo humano. Gracias por confiar en mí, por compartir tus conocimientos, por la paciencia y apoyo en mi aprendizaje.*

## ÍNDICE

Abstract.....	3
RESUME.....	5
RESUME.....	7
Índice.....	12
Índice de Figuras.....	15
Índice de Tablas.....	22
Abreviaturas.....	24
<b>CAPÍTULO 1</b> Introducción.....	25
1.1 Motivación.....	25
1.2 Caracterización de los haces de partículas cargadas.....	27
1.2.1 Mecanismos de deposición de energía de las partículas cargadas.....	27
1.2.2 Características Físicas.....	27
1.2.3 Características radiobiológicas.....	29
1.3 Dosimetría.....	31
1.3.1 Dosimetría en condiciones de referencia para haces de hadrones.....	32
1.3.2 Dosímetros.....	33
1.3.3 Cálculo de dosis física en dosimetría de referencia para hadronterapia.....	34
1.4 Propósito de la tesis.....	37
<b>CAPÍTULO 2</b> Modelos teóricos para el estudio de la interacción de electrones con la materia.....	39
2.1 Secciones eficaces de ionización (SEI).....	39
2.1.1 Modelos teóricos.....	40
2.1.1.1 Aproximación relativista.....	42
2.1.2 Resultados.....	44
2.2 Secciones Eficaces de Excitación (SEE).....	45
2.2.1 Modelos teóricos de SEE Electrónica.....	46
2.2.2 Resultados.....	50
2.2.3 Modelos teóricos de SEE Vibracional.....	56

2.3 Ionización Múltiple y emisión Auger por impacto de electrones .....	57
2.3.1 Análisis de las Secciones Eficaces Totales .....	58
Conclusiones .....	61
<b>CAPÍTULO 3 Modelos teóricos para el estudio de la interacción de iones con la materia</b> .....	62
3.1 Secciones eficaces de ionización (SEI) .....	62
3.1.1 Modelos teóricos .....	63
3.1.1.1 Aproximación relativista.....	68
3.1.2 Resultados.....	69
3.2 Secciones eficaces de excitación electrónica (SEE_e).....	72
3.2.1 Resultados.....	73
3.3 Análisis Secciones Eficaces Totales .....	74
3.4 Ionización Múltiple por impacto de iones .....	77
3.4.1 Modelo de electrón independiente (MEI) .....	78
3.4.2 Emisiones post-colisionales .....	80
3.4.3 Modelo Exponencial.....	81
3.4.4 Modelo de Neonización para H <sub>2</sub> O .....	82
3.4.4.1 Resultados.....	85
3.4.5 Aproximación en moléculas diatómicas .....	95
3.4.5.1 Resultados.....	97
Conclusiones .....	99
<b>CAPÍTULO 4 Simulación Monte Carlo para el transporte de partículas</b> .....	101
4.1 Estado del arte .....	102
4.2 Generalidades de la simulación Monte Carlo .....	105
4.3 Generación de trayectorias aleatorias .....	105
4.3.1 Longitud de camino y elección del tipo de interacción.....	106
4.3.2 Energía y dirección de dispersión.....	108
4.4 Modelización de la traza de electrones - MDM.....	110
4.5 Modelización para el transporte de iones en MDM-Ion.....	113
4.5.1 Testeos en la incorporación de SE.....	116

Conclusiones .....	118
Apéndices.....	119
<b>CAPÍTULO 5</b> Parámetros físicos relevantes en dosimetría de referencia.....	122
5.1 Poderes de Frenado.....	122
5.1.1 Modelos teóricos .....	123
5.1.1.1 Cálculo de Stopping Power aplicando la Aproximación de Frenado Continuo	124
5.1.1.2 Cálculo de Stopping Power por simulación Monte Carlo para el caso de impacto de iones .....	125
5.1.2 Resultados.....	125
5.1.2.1 Impacto de electrones .....	125
5.1.2.2 Impacto de protones e iones de carbono .....	130
5.2 Valores W .....	134
5.2.1 Estado del arte.....	136
5.2.2 Modelos teóricos: Aproximación de frenado continuo (CSDA) y Simulación Monte Carlo.....	141
5.2.2.1 Método Analítico de Fowler y Aproximación de Frenado Continuo ...	141
5.2.2.2 Método Monte Carlo.....	145
5.2.3 Resultados.....	145
5.2.3.1 Impacto de electrones .....	145
5.2.3.2 Impacto de protones e iones de carbono .....	152
Conclusiones .....	162
CONCLUSIONES GENERALES.....	164
Referencias.....	167
Trabajos presentados en congresos y jornadas .....	176
Publicaciones En Revistas Científicas .....	178
Enviado para su publicación: .....	178

## ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1.1: Dosis relativa en profundidad en agua para distintos tipos de radiación. ....	28
Figura 1.2: A la derecha: pico de Bragg extendido para un haz de protones. A la izquierda se comparan los picos de Bragg extendidos para impacto de protones y iones de carbono. ....	29
Figura 1.3: Sistema de barrido del haz-lapiz en un corte lateral del blanco tumoral. ....	29
Figura 1.4: Esquema de RBE vs LET. ....	31
Figura 1.5: Diagrama esquemático de perfiles en profundidad de dosis física, LET, RBE y BED para un haz de carbono. ....	31
Figura 1.6: Esquema de una cámara de ionización para la medición del porcentaje de ionización del gas. ....	34
Figura 1.7: Fantoma de agua con cámara de ionización en su interior para medición de dosis en profundidad. ....	35
Figura 2.1: Energía cinética del electrón para el régimen clásico y relativista en función de la velocidad del electrón normalizada con la velocidad de la luz en el vacío $c$ . ....	42
Figura 2.2: Secciones eficaces totales de ionización para agua vapor y líquida calculadas con los modelos de BEB, RBEB, BEB-AR y BEB_Gerv. Se comparan con datos experimentales de Bolorizadeh, Rudd (1986) y Schutten et al. (1966) y de referencia NIST, n.d. ....	44
Figura 2.3: Secciones eficaces totales de ionización para nitrógeno (arriba) y oxígeno (abajo) calculadas con los modelos de BEB, BEB-AR y comparadas con datos experimentales de Tate, Smith (1932), Rapp, Englander-Golden (1965) y Schram et al. (1965). ....	45
Figura 2.4: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua líquida calculadas con el modelo de Green y Stolarski a la izquierda y las propuestas por Gervais et al. (2006). ....	51
Figura 2.5: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua vapor calculadas con el modelo de Green y Stolarski a la izquierda y con el modelo de Paretzke a la derecha siguiendo el trabajo de Nikjoo et al. (2006). ....	51
Figura 2.6: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en nitrógeno. Se calcularon con el modelo de GS y se muestra el ajuste con pendiente de secciones eficaces de ionización en tres estados de excitación. ....	52
Figura 2.7: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en oxígeno. Se calcularon con el modelo de GS y se muestra el ajuste con pendiente de secciones eficaces de ionización en tres estados de excitación. ....	52
Figura 2.8: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en nitrógeno. Líneas con símbolos de A. Bantsar; líneas a trazos: modelo de GS; línea llena roja: total de estados prohibidos Porter et al. ....	54
Figura 2.9: Suma de las SEE_e de los estados prohibidos por impacto de electrones en nitrógeno. Líneas con símbolos de A. Bantsar; línea de punto y trazo: estado agregado por Bantsar como ajuste a las SE totales; líneas a trazos: modelo de GS; línea llena: Porter et al. ....	55
Figura 2.10: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua líquida calculadas con el modelo de Green y Stolarski (GS) y con aproximación relativista (GS-AR). ....	55

Figura 2.11: Secciones eficaces de excitación vibracional para impacto de electrones en agua líquida.....	56
Figura 2.12: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en agua líquida. ....	58
Figura 2.13: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en agua vapor ..	59
Figura 2.14: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en nitrógeno. ...	60
Figura 2.15: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en oxígeno. ....	60
Figura 3.1: Mecanismos de emisión de electrones de acuerdo al esquema de centros coulombianos. En el caso de <i>cero-centro</i> , el electrón inicialmente ligado, es emitido sin ser afectado por los campos coulombianos del proyectil o por el blanco residual. En la emisión de electrones de <i>un-centro</i> el electrón es desviado en el campo del centro-blanco. Y en la emisión de <i>dos-centros</i> , el electrón es desviado por los centros blanco (T) y proyectil (P).....	63
Figura 3.2: Energía cinética para el régimen clásico y relativista en función de la velocidad del electrón normalizada con la velocidad de la luz en el vacío $c$ . ....	69
Figura 3.3: SEI_SD en función de la energía del electrón emitido por impacto de protones sobre H <sub>2</sub> O vapor calculadas mediante el modelo de Rudd. Estas se comparan con datos experimentales de Bolorizadeh, Rudd (1986). ....	70
Figura 3.4: SEI_SD en función de la energía del electrón emitido por impacto de protones sobre H <sub>2</sub> O líquida calculadas con el modelo de Rudd y Rudd-AR.....	70
Figura 3.5: Secciones eficaces de ionización total por impacto de protones e iones de carbono en vapor y agua líquida. Se muestran valores calculados con el modelo de Rudd, Rudd-AR y CDW-EIS. Se compara para agua vapor con datos experimentales Rudd, Goffe, et al. (1985a). ....	71
Figura 3.6: Secciones eficaces de ionización total por impacto de protones para N <sub>2</sub> y O <sub>2</sub> calculadas con el modelo de Rudd y Rudd-AR. Además, se comparan con datos experimentales de Rudd, Kim, et al. (1985) y Knudsen et al. (1995). ....	72
Figura 3.7: Secciones eficaces de excitación electrónica para agua líquida (figura izquierda) y vapor (figura derecha) calculadas escalando las SEE_e por impacto de electrones.....	73
Figura 3.8: Secciones eficaces de excitación electrónica para nitrógeno (figura izquierda) y oxígeno (figura derecha) calculadas escalando las SEE_e por impacto de electrones con el modelo de GS. Las líneas llenas son calculadas con la pendiente de las SEI. ...	74
Figura 3.9: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en agua líquida.....	75
Figura 3.10: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en agua vapor. ....	75
Figura 3.11: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en nitrógeno. La curva GS-AR ajuste hace referencia al ajuste realizado para tener igual pendiente a las SEI. ....	76
Figura 3.12: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en oxígeno. La curva GS-AR ajuste hace referencia al ajuste realizado para tener igual pendiente a las SEI. ....	76
Figura 3.13: Probabilidad de ionización simple por electrón de una subcapa $j$ por el parámetro de impacto $b$ en función del mismo por impacto de iones de carbono de	

1MeV/u en agua líquida. Se indican los radios efectivos de los orbitales moleculares en unidades atómicas.....	82
Figura 3.14: SEI total neta y por orbital molecular para Ne por impacto de protones, en función de la energía de la partícula incidente. Modelos teóricos: line llena, CDW-EIS; línea punteada, Rudd. Valores experimentales: cuadrados DuBois et al. (1984) y círculos Cavalcanti et al. (2002).....	85
Figura 3.15: SEIM para el Ne por impacto de protones. Modelos teóricos aplicando el ME: line llena negra, ME_CDW-EIS_Post; línea de trazo y punto azul, ME_CDW-EIS_Dir ; línea de trazo roja, ME_Rudd_Post. Valores experimentales: cuadrados abiertos (DuBois et al. (1984)) y círculos (Cavalcanti et al. (2002)).....	86
Figura 3.16: SEIM de grado $q=2$ y $3$ , relativa a la ionización simple ( $q=1$ ) por impacto de protón en Ne. Líneas: resultados teóricos del presente trabajo. Valores experimentales: círculo (Cavalcanti et al., 2002); cuadrados (DuBois et al., 1984); diamantes (Andersen et al., 1987). ....	87
Figura 3.17: SEIM para Ne por impacto de protones. Teoría: línea continua negra, ME_CDW-EIS_Post; línea a trazo roja, EM_Rudd_Post; línea azul de trazo y punto punto, Spranger, Kirchner (2004); línea verde de trazos cortos, Montanari et al. (2012). Valores experimentales: círculo cerrado azul, Cavalcanti et al. (2002); cuadrados abiertos DuBois et al. (1984). ....	88
Figura 3.18: SEIM para Ne por impacto de iones de oxígeno de 1MeV/u en función del grado de ionización $q$ . Teoría: línea continua negra, EM_CDW-EIS_Post; línea de trazo y punto roja, EM_CDW-EIS_Dir. Valores experimentales: cuadrados rojos, Gray et al. (1980). ....	89
Figura 3.19: Secciones eficaces de ionización neta total del H <sub>2</sub> O vapor por impacto de protones. Modelos teóricos: líneas continuas, CDW-EIS-MO; líneas a trazo, modelo de Rudd. Valores experimentales: triángulos abiertos, Wilson et al. (1984); estrellas, Rudd, Goffe, et al. (1985a); círculos abiertos, Tavares et al. (2015). ....	90
Figura 3.20: SEIM para H <sub>2</sub> O vapor por impacto de protones. Modelos teóricos: line llena, ME_CDW-EIS_Post; línea de trazo y punto, ME_CDW-EIS_Dir; línea punteada, ME_Rudd_Post. Valores experimentales: círculos (Tavares et al. (2015)); estrellas (Rudd, Goffe, et al. (1985b)), triángulos (Luna, Montenegro (2005)). ....	91
Figura 3.21: SEIM para H <sub>2</sub> O vapor por impacto de protones. Teoría: línea continua negra, ME_CDW-EIS_Post; línea azul discontinua, ME_CDW-EIS_Dir, línea circular verde, Gulyás et al. (2016); línea triangular rosa, Murakami et al. (2012); línea cruzada roja, Oubaziz et al. (2018). Experimentos: círculos abiertos negros, Tavares et al. (2015); triángulos azules, Luna, Montenegro (2005); estrellas, Rudd, Goffe, et al. (1985b) secciones eficaces de ionización neta; cuadrados Luna et al. (2007).....	92
Figura 3.22: SEIM para H <sub>2</sub> O líquida por impacto de protones. Modelos teóricos: line llena, EM_CDW-EIS_Post; línea trazo y punto, EM_CDW-EIS_I Au.....	93
Figura 3.23: Razón de SEIM doble a simple para impacto de protones e iones de carbono en agua líquida. Modelos teóricos: line llena negra, ME_CDW-EIS_Post; línea trazo y punto azul, ME_CDW-EIS_Dir; línea con cruces (Champion (2003)); línea con círculos (Meesungnoen, Jay-Gerin (2005)). Valores experimentales: círculos abiertos (Tavares et al. (2015)). ....	95
Figura 3.24: Esquema radio efectivo moléculas diatómicas.....	96

Figura 3.25: SEIM para CO por impacto de protones. Modelos teóricos: line llena, CDW-EIS-MO post-colisión; línea trazo, CDW-EIS-MO directa. Valores experimentales: círculo (Rudd, Goffe, et al. (1985b)) y rombo con trazo (Wells et al. (2005)).	98
Figura 3.26: SEIM para CO y N <sub>2</sub> por impacto de protones. Modelos teóricos en CO: line llena, CDW-EIS-MO post-colisión; línea trazo, CDW-EIS-MO directa. En N <sub>2</sub> : línea punto y trazo CDW-EIS-MO post-colisión.	98
Figura 4.1: a) Función de distribución de probabilidad discreta de que ocurra una interacción. b) Función de distribución acumulativa discreta y selección del tipo de interacción.	108
Figura 4.2: Esquema de la traza del ion y de los electrones primarios y secundarios al atravesar el medio. Los subíndices <i>s</i> hacen referencia al electrón dispersado o scattering y los <i>e</i> se refieren al electrón nuevo generado.	109
Figura 4.3: Diagrama de flujo del código Monte Carlo MDM indicando los pasos relevantes para la simulación de la traza de electrones. Los subíndices “ <i>s</i> ” hacen referencia a la partícula dispersada o scattering, los subíndices “ <i>e</i> ” se refieren a los electrones generados. Los subíndices de las energías “ <i>inc</i> ”, “ <i>dep</i> ” y “ <i>elas</i> ” hacen referencia a la incidente, depositada y elástica.	111
Figura 4.4: Proyección en el plano ZX de un segmento de traza de electrones con energía inicial de 1keV atravesando agua vapor simulado con MDM.	113
Figura 4.5: Proyección en el plano XY de un segmento de traza de electrones con energía inicial de 1 keV atravesando agua vapor simulado con MDM.	113
Figura 4.6: Proyecciones en el plano XZ de un segmento de traza simulado para proyectiles de iones de carbono y protones de 10 MeV/u en agua líquida mediante el código MDM-Ion.	115
Figura 4.7: Traza 3D de un ion de carbono con energía de 10MeV/u atravesando agua líquida obtenida mediante el código MDM-Ion.	116
Figura 4.8: Histograma para validar la energía perdida por un electrón de 1 keV luego de una excitación.	117
Figura 4.9: Histograma para validar las SESDI por impacto de protones en nitrógeno.	117
Figura 4.10: Muestreo aleatorio de una distribución $f(x)$ a partir de la FDA $F(x)$ siendo $\xi$ un número aleatorio entre $[0, 1]$ .	120
Figura 5.1: Panel de la izquierda: Stopping másico por impacto de electrones en agua líquida calculado con el modelo CSDA. Línea llena: stopping másico total; línea de trazos y puntos: contribución del proceso de ionización; línea de trazos: contribución del proceso de excitación. Datos experimentales y recomendados: triángulos: ICRU REPORT 37 (1984); cuadrados: ICRU REPORT 16 (1970); rombos: IAEA (1995)). Panel de la derecha: contribución relativa de los procesos de ionización y excitación electrónica al stopping másico total en función de la energía del electrón incidente.	126
Figura 5.2: $S_{mas}$ por impacto de electrones en agua líquida, calculados con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados (ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 16 (1970); IAEA (1995)). A la izquierda se muestra el stopping calculado con diferentes modelos para la excitación electrónica. A la derecha se muestra la diferencia al considerar la AR en las SE utilizadas.	127

Figura 5.3: <i>Smas</i> por impacto de electrones en agua vapor calculado con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados (ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 16 (1970); IAEA (1995)).	128
Figura 5.4: <i>Smas</i> por impacto de electrones en nitrógeno y oxígeno calculado con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados.	129
Figura 5.5: <i>Smas</i> por impacto de electrones en aire. Línea llena: cálculos realizados con el modelo CSDA. Datos recomendados: cuadrados: ICRU REPORT 90 (2016), triángulos: NIST, n.d.	130
Figura 5.6: <i>Smas</i> por impacto de protones e iones de carbono en agua líquida calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR. En la figura de la izquierda se comparan los valores entre estos modelos de cálculo, con valores recomendados y datos experimentales: $\Delta$ de Siiskonen et al. (2011) y $\square, \circ$ de Shimizu et al. (2009). En la figura de la derecha se comparan valores obtenidos utilizando diferentes modelos de excitación electrónica y estados de excitación.	131
Figura 5.7: Discrepancia relativa porcentual de los valores de <i>Smas</i> calculados con los las aproximaciones CSDA y MDM-Ion, para impacto de protones e iones de carbono sobre agua vapor, relativos a los correspondientes valores recomendados por ICRU REPORT 49 (2015); ICRU REPORT 90 (2016).	132
Figura 5.8: <i>Smas</i> por impacto de protones e iones de carbono en agua vapor calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR. Se comparan además los valores obtenidos utilizando diferentes modelos de excitación electrónica.	132
Figura 5.9 <i>Smas</i> por impacto de protones en $N_2$ (izquierda) y $O_2$ (derecha) calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR.	133
Figura 5.10: <i>Smas</i> por impacto de protones en aire calculado con el modelo CSDA y MDM-Ion con aproximación relativista AR comparado con los valores de ICRU REPORT 90 (2016).	134
Figura 5.11: Valores $W$ en aire para iones de carbono y otros en función de la energía del proyectil incidente. Se comparan valores recomendados (líneas constantes) con sus incertezas marcadas como franjas sombreadas con los datos experimentales de: $\blacklozenge$ de distintos iones y $\bullet$ de iones de carbono, mostrados en Tabla 3; $\blacksquare$ Sakama et al. 2009.	140
Figura 5.12: Producción de electrones por eventos directos de colisión y post-colisión en el proceso primario y secundario.	144
Figura 5.13: Número medio de electrones calculados con el método CSDA para agua vapor incluyendo los electrones Auger. Los modelos utilizados de las secciones eficaces es el de BEB para ionización y el de GS para la excitación. Ionización primaria: línea a trazo; Ionización por electrones Auger: línea trazo corto; Ionización por los electrones secundarios: línea y punto; y Ionización luego de una excitación: línea punto punto.	146
Figura 5.14: Numero medio de electrones calculados con los métodos de CSDA y MDM para agua vapor incluyendo electrones Auger. Se muestran los valores del MDM calculados con diferentes modelos para las secciones eficaces de excitación.	147
Figura 5.15: Valor $W$ por impacto de electrones en agua vapor calculado con los métodos de CSDA y MDM. Se comparan con otros valores teóricos y recomendados y datos experimentales.	148

Figura 5.16: Valor $W$ , figura de la izquierda, y el número medio de electrones, figura de la derecha, por impacto de electrones en agua líquida calculados con el código MDM. Se muestran la diferencia al considerar los electrones Auger. Con flechas se muestran los valores experimentales. La línea llena en la figura de la derecha es un ajuste/interpolación a los valores. ....	149
Figura 5.17: Valor $W$ por impacto de electrones en nitrógeno calculado con MDM. Se comparan datos experimentales y recomendados. ....	150
Figura 5.18: Valor $W$ por impacto de electrones en oxígeno calculado con MDM. Se comparan con datos experimentales. ....	151
Figura 5.19: Valor $W$ por impacto de electrones en aire obtenido de los valores de MDM, con ajuste en las pendiente de excitación, con las proporciones de 0.76% de nitrógeno y 0.24% de oxígeno. Se comparan datos experimentales y recomendados. ....	152
Figura 5.20: Valores $w$ diferenciales calculados con MDM-Ion para impacto de protones en agua líquida. Se consideraron diferentes modelos de sección eficaces de excitación y número de estados electrónicos. ....	153
Figura 5.21: Valores $w$ diferenciales para impacto de protones en agua líquida con y sin correcciones relativistas en la velocidad del proyectil calculadas con MDM-Ion y CSDA. El modelo de SE utilizado es Rudd + Gervais et al. ....	154
Figura 5.22: Valores $w$ diferenciales para impacto de iones de carbono y protones en agua líquida con correcciones relativistas en la energía cinética del proyectil. También se tuvo en cuenta la emisión de electrones Auger. El modelo de SE utilizado es Rudd + Gervais et al. ....	155
Figura 5.23: Valores de $w$ diferenciales para impacto de protones se comparan con valores $W$ por impacto de electrones para diferentes códigos Monte Carlo y métodos de CSDA en agua líquida. Proyectil de electrones: MDM (estrella verde), GEANT4_Op2 (flecha morada), PARTRAC (cuadrado negro) y RETRACKS (triángulo naranja). Proyectil de protones: MDM-Ion (semicírculo rosa), CSDA con diferentes modelos (líneas rojas, azules y negras). Se indica con flechas los valores experimentales: 22.1 de Mozunder y Hatano y 20.8 de Jonah et al. y Sumiyoshi et al. ....	156
Figura 5.24: Valores $w$ diferenciales para impacto de protones en agua vapor con correcciones relativistas en la energía cinética del proyectil. Se consideró además la emisión de electrones Auger. El modelo de SE utilizado es Rudd + Nikjoo et al. ....	157
Figura 5.25: Valores $w$ diferenciales por impacto de protones se comparan con valores $W$ por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente. Se comparan con datos experimentales de Combecher y de Christophorou L.G. (1971) y de referencia del ICRU 31. ....	158
Figura 5.26: Valores $w$ diferenciales por impacto de protones se comparan con valores $W$ por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en nitrógeno. Se muestran las diferencias al ajustar las secciones eficaces de excitación y se comparan con datos recomendados del ICRU 31. ....	159
Figura 5.27: Valores $w$ diferenciales por impacto de protones se comparan con valores $W$ por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en oxígeno. ....	160
Figura 5.28: Valores $w$ diferenciales por impacto de protones se comparan con valores $W$ por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en aire. Se	

comparan con los valores de nitrógeno y oxígeno calculados con MDM-Ion, y con valores recomendados por la IAEA TECDOC-799, IAEA TRS-398 y ICRU 90. .... 161

## ÍNDICE DE TABLAS

Tabla 1.1: Definición de los factores de perturbación. ....	37
Tabla 1.2: Incerteza relativa porcentual estimada del factor de corrección por la calidad del haz y de sus componentes para protones y iones livianos IAEA TRS-398 (2000)..	37
Tabla 2.1: Orbitales moleculares, energía de ligadura $Bk$ en eV, energía cinética media $Uk$ en eV y número de ocupación $Nk$ para los blancos de H <sub>2</sub> O líquida y vapor, N <sub>2</sub> y O <sub>2</sub> . Todos los valores son teóricos excepto aquellos con un asterisco los cuales son experimentales. ....	41
Tabla 2.2: Parámetros para el cálculo de SEE <sub>e</sub> para agua líquida de Kutcher, Green (1976), para agua vapor de Olivero et al. (1972) a excepción de los dos estados de Rydberg tomados de Kutcher y Green, para N <sub>2</sub> y O <sub>2</sub> de Green, Stolarski (1972).....	47
Tabla 2.3: Parámetros de ajuste para el cálculo de las SEE <sub>SD</sub> <sub>e</sub> mediante el modelo de Cobut. ....	49
Tabla 2.4: Estados de excitación del modelo de Pareztke et al. ....	49
Tabla 2.5: Comparación de los estados de excitación electrónica de la molécula de nitrógeno para el cálculo de las SEE <sub>e</sub> . ....	53
Tabla 2.6: Modos de excitación vibracionales y energías de excitación para agua líquida (Gervais et al. (2006)).....	56
Tabla 3.1: Configuración electrónica del estado fundamental de las moléculas: orbitales moleculares, energía de enlace $Ik$ en eV y número de ocupación $Nk$ . Los parámetros de los blancos de H <sub>2</sub> O vapor, N <sub>2</sub> y O <sub>2</sub> son tomados del trabajo de Rudd et al. (1992). Los valores para H <sub>2</sub> O líquida son tomados del trabajo de Dingfelder et al. (2000). Entre paréntesis, en la primera columna se indica el número cuántico principal asociado al orbital molecular. ....	65
Tabla 3.2: Parámetros de ajuste de las SESDI del modelo de Rudd. Los valores tabulados para los blancos H <sub>2</sub> O vapor, N <sub>2</sub> y O <sub>2</sub> se obtienen del trabajo de Rudd et al. (1992) excepto los de H <sub>2</sub> O líquida se obtiene del ajuste realizado por Dingfelder et al. (2000). ....	65
Tabla 3.3: Población de orbitales moleculares para las fases líquida y vapor. Entre paréntesis, en la primera columna se indica el número cuántico principal asociado al orbital molecular ....	68
Tabla 3.4: Probabilidades de emisión post-colisión después de una fotoionización simple de los orbitales 1s ( $\beta_1$ ) y 2s ( $\beta_2$ ) del átomo de Ne (Carlson et al. (1966)). El caso de $\alpha = 0$ se asocia a la luminiscencia y ningún electrón es emitido en este caso. ....	84
Tabla 3.5: Estructura atómica del Ne. Energías de enlace en eV. Entre paréntesis, en la primera columna se muestra el principal número cuántico asociado a la subcapa atómica. ....	84
Tabla 3.6: Probabilidades de emisión post-colisión después de una ionización simple de los orbitales moleculares más internos para las moléculas de CO y N <sub>2</sub> . ....	96
Tabla 3.7: Configuración electrónica del estado fundamental de la molécula de CO: orbitales moleculares, población electrónica y energía de enlace en eV.....	97
Tabla 4.1: Lista de códigos de transporte de radiación Monte Carlo de historia condensada (CHMC) empleados para todos los medios (Nikjoo (2006)). ....	102
Tabla 4.2: Lista de códigos de transporte de radiación Monte Carlo de estructura de seguimiento (MCTS) adecuados para el modelado biofísico a nivel molecular. ....	104

Tabla 5.1: Valores $W$ por impacto de electrones, protones y alfa, y $w$ diferencial por impacto de iones de carbono para los gases de metano y aire (Bronić, Kimura (2007)). .....	137
Tabla 5.2: Valores $W$ y $w$ diferenciales para altas energías por impacto de electrones, protones y iones de carbono para los medio en estudio en este trabajo. ....	139
Tabla 5.3: Cuadro extraído del protocolo IAEA TRS-398 2000. Muestra los valores experimentales del valor $W$ en aire para varios iones a diferentes energías de impacto y la mediana ponderada. ....	140

## ABREVIATURAS

**CDW-EIS** Continuum Distorted Wave - Eikonal Initial State

**CHMC** Condense History Monte Carlo (Códigos de Historia Condensada)

**MCTS** Monte Carlo Track Structure (Códigos de Estructura de Seguimiento)

**CSDA** Continuous Slowing Down Approximation

**BEB** Binary-Encounter-Bethe model

**fdp** Funciones de densidad de probabilidades

**FDA** Función de Distribución Acumulativa

**LET** Transferencia Lineal de Energía

**RBE** Eficacia Biológica Relativa

$S_{mas}$  Poder de Frenado Másico

$S_{elec}$  Poder de Frenado Electrónico

**SE** Sección Eficaz

**SEE** Sección Eficaz de Excitación

**SEE\_e** Sección Eficaz de Excitación Electrónica

**SEE\_v** Sección Eficaz de Excitación Vibracional

**SEI** Sección Eficaz de Ionización

**SEIT** Sección Eficaz de Ionización Total

**SEI\_SD** Sección Eficaz Simple Diferencial

# CAPÍTULO 1 Introducción

## 1.1 Motivación

Existen diversas enfermedades que pueden ser diagnosticadas y/o tratadas mediante el uso correcto de la radiación. Las enfermedades oncológicas son algunas de estas y, a nivel mundial, presentan una alta incidencia. Según la Organización Mundial de la Salud el cáncer es una de las principales causas de muerte en todo el mundo. En el 2020 hubo casi 10 millones de fallecidos por algún tipo de cáncer ([“https://www.who.int/cancer/es/,”](https://www.who.int/cancer/es/) n.d.). En Argentina se estima que se diagnostican 125.000 nuevos casos de cáncer por año. Esta cifra lo posiciona dentro de los países del mundo con una incidencia media-alta, ubicándola a su vez en el séptimo lugar en Latinoamérica ([“https://www.argentina.gob.ar/salud/instituto-nacional-del-cancer/estadisticas/incidencia,”](https://www.argentina.gob.ar/salud/instituto-nacional-del-cancer/estadisticas/incidencia/) n.d.). Esta situación es suficiente para considerar al cáncer como un problema prioritario de Salud Pública, de ahí el creciente interés en la búsqueda incesante de mejoras en los tratamientos para combatir esta enfermedad.

Los tumores malignos se caracterizan por tener un crecimiento descontrolado de sus células, invaden los tejidos circundantes y se diseminan por todo el cuerpo. Los tratamientos contra esta enfermedad tienen como principal objetivo eliminar todas las células malignas, minimizando a su vez, el daño a los tejidos sanos circundantes. Los tres pilares del tratamiento del cáncer son la cirugía, la quimioterapia (incluida la inmunoterapia) y la radioterapia. Esta última se subdivide en radioterapia interna y externa. A diferencia de la radioterapia interna o braquiterapia, que utiliza fuentes radiactivas en el interior del paciente, la radioterapia externa se refiere a la irradiación seleccionada con haces de radiación ionizante en el cuerpo del paciente. Tradicionalmente, las modalidades de haz más comunes utilizadas para la radioterapia externa son fotones y haces de electrones. Estas modalidades se denominarán "radioterapia convencional". Otro tipo de radioterapia emplea haces de hadrones rápidos (partículas compuestas por quarks) como los protones, neutrones o iones, la cual se denomina "hadronterapia". Los haces más empleados en las clínicas utilizan protones e iones de carbono. El empleo de estas partículas cargadas permite una distribución de dosis en los tejidos completamente diferente a la generada por los haces de fotones y electrones. Pueden penetrar el tejido con muy poca dispersión, tienen excelente conformación balística, y liberan su máxima energía al detenerse. Estas características asociadas a sus propiedades radiobiológicas y físicas, constituyen su principal ventaja frente a la radioterapia convencional en determinados tratamientos

Actualmente, existen múltiples centros en todo el mundo que emplean tanto haces de protones como de iones livianos esto es en Estados Unidos, Europa, Asia y África. Las últimas actualizaciones de los centros en todo el mundo se pueden encontrar en el sitio web del Particle Therapy Co-Operative Group (PTCOG) PTCOG, n.d.. Particularmente Francia ha sido pionera en la implementación de la hadronterapia. En el año 1992 se creó el Centro de Protonterapia del Instituto Curie (Orsay), desarrollando los primeros tratamientos en Europa. A partir de entonces se generaron numerables proyectos

científicos para el desarrollo de la hadronterapia en Francia y en Europa (Etoile, Archade, France-Hadron). Actualmente Francia cuenta con tres centros de Protonterapia localizados en Orsay, Niza y Caen.

Argentina es el primer país en América del Sur en contar con los recursos humanos y tecnológicos para el desarrollo de la Terapia por Captura Neutrónica en Boro (BNCT por sus siglas en inglés) y de la Protonterapia. Los proyectos para la implementación de BNCT se iniciaron en la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) en el año 1996 ([www.argentina.gob.ar/cnea/terapia-por-captura-neutronica-en-boro](http://www.argentina.gob.ar/cnea/terapia-por-captura-neutronica-en-boro)). Actualmente, se cuenta con una facilidad de irradiación en el reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche (CAB), y se está desarrollando un acelerador de protones para BNCT que será instalado en un nuevo edificio en el Centro Atómico Constituyentes (Cartelli et al. (2020)). En el año 2010 se comenzó a evaluar la factibilidad para la instalación de un centro de Protonterapia, concretándose en 2015 su aprobación por parte del Poder Ejecutivo Nacional. El *Centro Argentino de Protonterapia* se encuentra actualmente en construcción y se estima que estará operativo en 2023. Este Proyecto Nacional es el resultado del trabajo colaborativo entre la CNEA, la Universidad de Buenos Aires (Instituto de Oncología Dr. Angel Roffo) e INVAP, junto a otros actores, entre ellos investigadores de la Universidad Nacional de Rosario. En el *Centro Argentino de Protonterapia* no sólo se realizarán tratamientos oncológicos, una línea del acelerador estará dedicada exclusivamente a la investigación: clínica, básica y aplicada (en física, radiobiología y biofísica) y tecnológica.

Investigaciones clínicas a lo largo de los años han conducido a la demostración de que la terapia con haces de hadrones puede alcanzar porcentajes de curación superiores a las de la radioterapia convencional en determinados tratamientos (Yuan et al. (2019)). Sin embargo, se siguen investigando posibles aplicaciones de esta técnica para diferentes tipos y localizaciones de tumores, muchos de ellos localizados en zonas inaccesible para la cirugía y rodeados de tejidos vitales. Nuevos sincrotrones, sistemas de distribución activa de haces y nuevas instalaciones permiten hoy en día obtener una distribución de dosis óptima sobre todo el volumen del tumor. Por otra parte, al ser una terapia con alta conformidad de dosis las incertezas generan un mayor riesgo en los tratamientos.

En este contexto, el desarrollo de investigaciones relacionadas a estos tratamientos oncológicos de vanguardia a nivel internacional resulta prioritario. En particular, en la presente Tesis se abordan investigaciones que pretenden avanzar en la comprensión de los procesos de deposición de energía de los haces de hadrones para avanzar en el cálculo de parámetros físicos relevantes en dosimetría de referencia.

A continuación, se describen las características principales de los haces de partículas cargadas, haciendo hincapié en la forma en la que estas depositan su energía en la materia. Luego, se introducen los conceptos fundamentales de la dosimetría de referencia que permite caracterizar al haz de radiación. Finalmente, se plantea la necesidad de obtener ciertos parámetros físicos relevantes aplicando diferentes modelos teóricos y simulaciones Monte Carlo.

## 1.2 Caracterización de los haces de partículas cargadas

### 1.2.1 Mecanismos de deposición de energía de las partículas cargadas

Las partículas cargadas como electrones, protones e iones se clasifican como *radiación directamente ionizante*. Este tipo de radiación deposita energía en el medio a través de interacciones coulombianas con los electrones orbitales de los átomos y moléculas del medio. Por el contrario, la *radiación indirectamente ionizante* compuesta por partículas eléctricamente neutras como fotones (Rayos X, Rayos gamma) y neutrones, depositan su energía en dos pasos: inicialmente transmiten su energía a las partículas cargadas del medio y luego éstas la depositan a través de interacciones coulombianas.

Generalmente, la partícula cargada experimenta una gran cantidad de interacciones a lo largo de su recorrido en el medio antes de depositar toda su energía cinética. Luego de cada interacción su trayectoria puede verse alterada de acuerdo a si experimenta una *dispersión elástica*, donde tanto momento como energía cinética se conservan, o una *dispersión inelástica*, donde su energía cinética disminuye. Esta energía transferida al medio puede darse por colisión o por pérdida radiativa a través del bremsstrahlung (en el caso de electrones rápidos).

En este trabajo se estudiarán los principales procesos inelásticos por medio de los cuales la partícula cargada deposita su energía en el medio a través de interacciones coulombianas, estos son los de *ionización* (simple y múltiple) y de *excitación electrónica*. Las dispersiones elásticas tienen relevancia en el caso de proyectiles cargados livianos como los electrones o protones. Estos mecanismos de interacción mencionados, de las partículas cargadas con el medio, son los que caracterizan su distribución de dosis. A continuación, se detallan las características físicas y radiobiológicas de las mismas.

### 1.2.2 Características Físicas

La dosis se define como la energía impartida por unidad de masa del material irradiado, su unidad es el Gray (Joule/kg). La dosis en profundidad tiene un perfil característico para cada tipo de partícula al atravesar la materia. El medio comúnmente estudiado es el agua al ser el principal componente del tejido biológico.

En la Figura 1.1 se presentan las distribuciones de dosis relativa (normalizadas al máximo) para haces monoenergéticos de fotones, neutrones, electrones e iones en función de la profundidad en agua. En el caso de haces de fotones (rayos X y gamma), se observa que la curva de dosis tiene un comportamiento exponencial decreciente. Los neutrones, al ser partículas sin carga, presentan un comportamiento similar. Los haces de electrones presentan un máximo cerca de la superficie y luego decaen a cero, esto es, tienen un rango finito. Si bien este comportamiento hace difícil aproximarse a la situación ideal donde ningún tejido sano es irradiado, se han desarrollado técnicas de alta precisión consiguiendo distribuciones de dosis altamente satisfactorias.

Protones e iones pesados poseen un perfil de dosis con características totalmente diferentes a las mencionadas. El perfil de dosis en profundidad se caracteriza por un canal de entrada llamado *plateau*, donde la dosis depositada se mantiene constante hasta cierta profundidad donde se produce un pico máximo agudo y estrecho llamado *Pico de Bragg*, que culmina con una caída abrupta a valores despreciables. La profundidad a la cual se produce el pico depende tanto de la carga y energía inicial de los iones, como del medio que atraviesa. Esta distribución de dosis se debe a la forma en que estas partículas interactúan con el medio. Al atravesar la materia, su pérdida de energía por unidad de longitud, llamada *poder de frenado*, es inversamente proporcional al cuadrado de su velocidad (Bethe (1930)). Esta dependencia hace que la máxima pérdida de energía, y mayor densidad de ionización, se produzca al final del recorrido de la partícula, cuando su velocidad es próxima a cero, generando el pico observado.

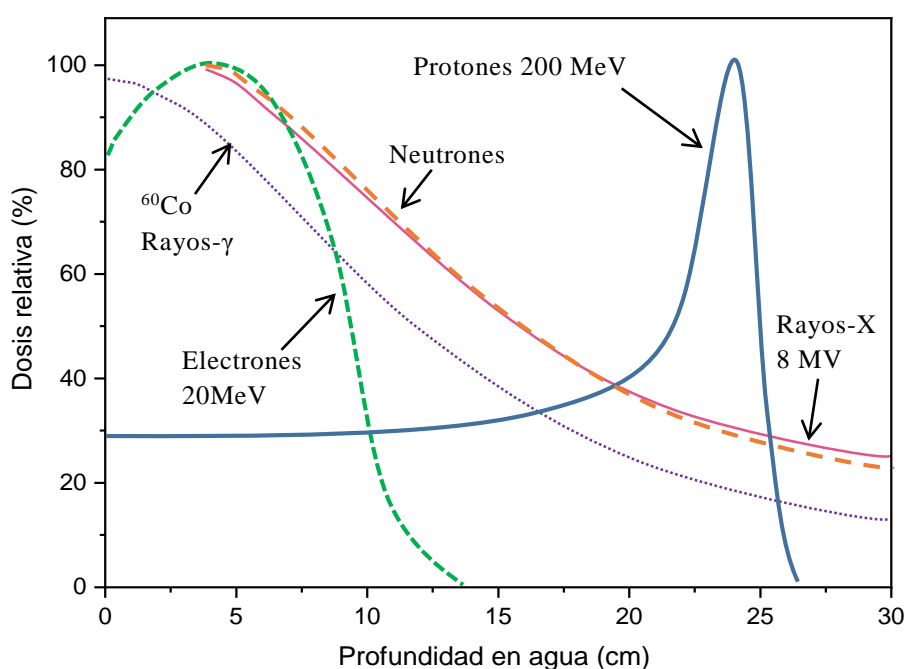


Figura 1.1: Dosis relativa en profundidad en agua para distintos tipos de radiación.

Las aplicaciones clínicas requieren que se cubra toda la extensión volumétrica del tumor a tratar y con una dosis relativamente uniforme. Con este propósito, el haz de iones debe “extenderse” tanto lateralmente como en profundidad. Esto se consigue modulando las energías de incidencia de los haces, de esta forma la superposición de los picos genera el Pico de Bragg Extendido o en inglés Spread-Out Bragg Peak (SOBP) como se muestra en la Figura 1.2. Si bien en los tejidos más profundos (posteriores al tumor), la dosis recibida es prácticamente nula, se puede observar cómo en la región anterior al tumor la superposición de los haces eleva la dosis en el tejido sano. Como muestra la Figura 1.2. de la derecha este aumento es mayor para iones más pesados como el carbono. Este efecto se puede reducir aplicando múltiples incidencias de un haz-lápiz o en inglés pencil-beam scanning (PBS) para haces de protones de intensidad modulada (IMPT).

En la Figura 1.3 se observa un esquema que representa el barrido lateral del haz (deflectado mediante un sistema de cuadrupolos magnéticos) en un corte transversal del tumor. Los volúmenes tumorales son escaneados en profundidad cambiando activamente la energía del haz. En los centros donde se dispone de esta tecnología, se puede lograr una alta conformidad y precisión de dosis. Sin embargo, el tratamiento de los tumores en movimiento (como aquellos ubicados en pulmón) es más complejo con estas técnicas.

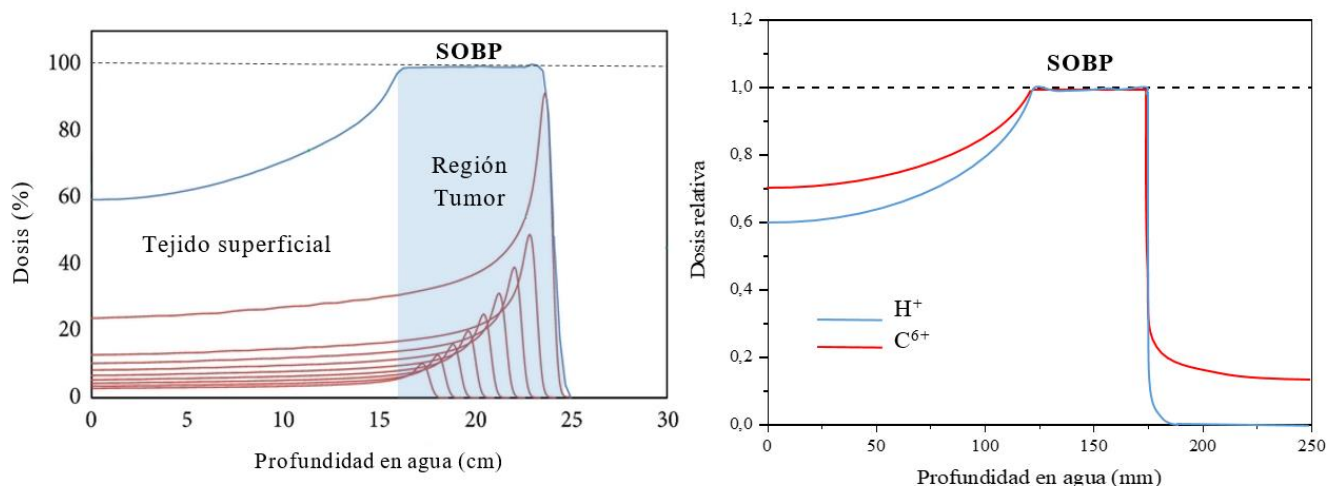


Figura 1.2: A la derecha: pico de Bragg extendido para un haz de protones. A la izquierda se comparan los picos de Bragg extendidos para impacto de protones e iones de carbono.

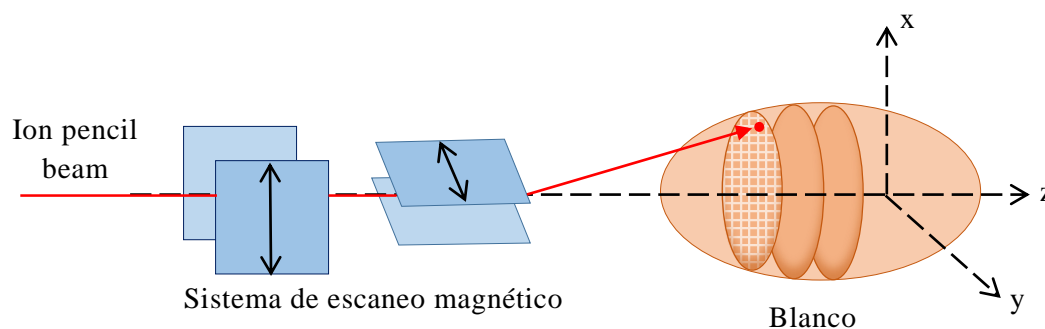


Figura 1.3: Sistema de barrido del haz-lapiz en un corte lateral del blanco tumoral.

### 1.2.3 Características radiobiológicas

En cualquier tipo de radioterapia uno de los factores más importantes es la eficacia de la radiación sobre los tejidos involucrados en el tratamiento. Esta respuesta biológica del tejido biológico a la radiación depende del tipo de partícula y, además, de factores físicos, químicos y biológicos. Para poder aprovechar los conocimientos clínicos recabados a lo largo de los años sobre los efectos de la radioterapia convencional con haces de fotones, se introduce un parámetro llamado *Eficacia Biológica Relativa* (RBE), que permite correlacionar los efectos biológicos de los haces de iones y electrones con los observados para haces de fotones. La RBE se define como el cociente entre la dosis en

Gray para una fuente de radiación de cobalto 60 (referencia), y la dosis en Gray de la radiación de interés, necesaria para producir el mismo efecto biológico.

$$RBE = \frac{\text{Dosis de una fuente de Co}^{60}}{\text{Dosis de la radiación que produce el mismo efecto biológico}}$$

La RBE es un factor muy complejo ya que depende de una combinación de factores físicos y biológicos. Físicamente depende de la densidad de ionización, la cual está asociada al número atómico del ion Z y su energía de incidencia. A medida que la densidad de ionización aumenta, el ADN tiene menos probabilidades de repararse y la RBE aumenta. Biológicamente depende del tipo de célula y de su capacidad de repararse, así como también de la radiosensibilidad de las células tumorales y la oxigenación, entre otros factores.

La RBE para fotones y electrones es 1, esto es, se requiere la misma dosis que un haz de fotones para lograr el mismo efecto biológico. Para protones, se considera que asume un valor constante y aproximadamente igual a 1.1; sin embargo, hoy se sabe que en la región distal del pico de Bragg este valor puede ser mayor y se sigue investigando su dependencia con la velocidad de la partícula (Paganetti et al. (2002); Giovannini et al. (2016)). Para iones de carbono en el pico de Bragg, este valor es  $> 2$  y es su principal ventaja frente las otras partículas.

Otra magnitud relevante relacionada a la RBE, es el *Poder de frenado Restringido* o *Transferencia Lineal de Energía* (LET), el cual se define como la energía promedio depositada por unidad de longitud de la trayectoria en el medio, con unidades keV/ $\mu\text{m}$ . Los protones rápidos, fotones y electrones son partículas de baja LET, mientras que los neutrones y iones son de alta LET. En el caso de los iones, a medida que disminuyen su velocidad al atravesar un medio la LET aumenta. Esto se debe a que se incrementa la densidad de ionización, los electrones emitidos tienen baja energía y forman una nube electrónica en torno a la trayectoria. De esta forma, la efectividad biológica aumenta hasta un máximo donde la densidad de ionización excede la necesaria para dañar el ADN. Así la RBE aumenta con la LET hasta un punto de saturación y luego disminuye (ver esquema en Figura 1.4).

La RBE, junto con la dosis física mencionada anteriormente, se utilizan para determinar la dosis clínica que interviene en la planificación de los tratamientos. Esta dosis biológica efectiva (BED) se obtiene como el producto de la *dosis física* y la RBE (IAEA TRS-398 (2000)). La determinación de esta dosis para haces de iones es más compleja que para el caso de protones o fotones debido a la fuerte dependencia de la respuesta biológica con la energía de los iones. En la Figura 1.5, se muestran perfiles de dosis física, LET, RBE y BED, utilizadas para estimar la dosis clínica, en profundidad para un haz de carbono. En este caso la dosis física (línea rosa) se modeliza para compensar el incremento de la LET y por lo tanto de la RBE, dando como resultado la BED con una dosis uniforme en la región tumoral a tratar.

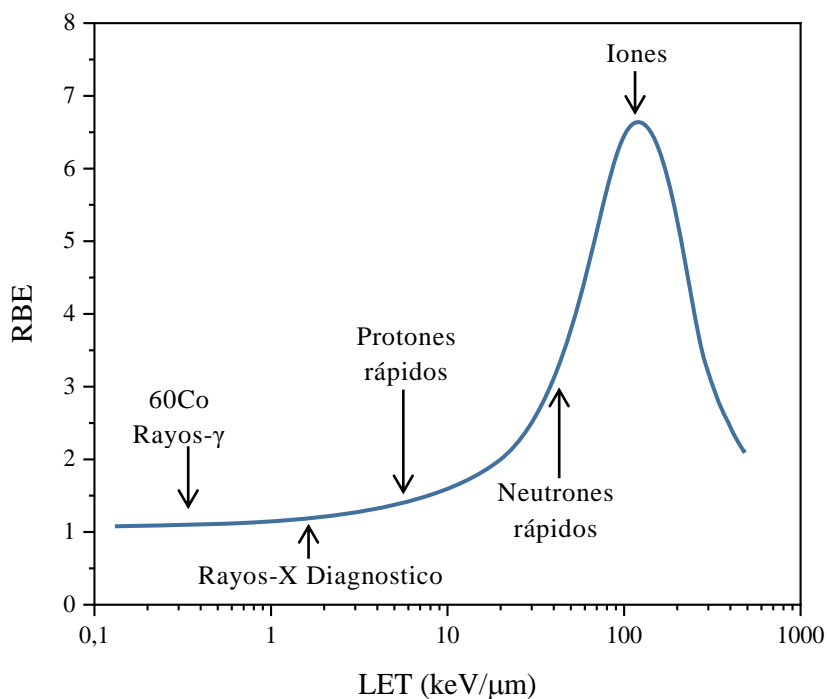


Figura 1.4: Esquema de RBE vs LET.

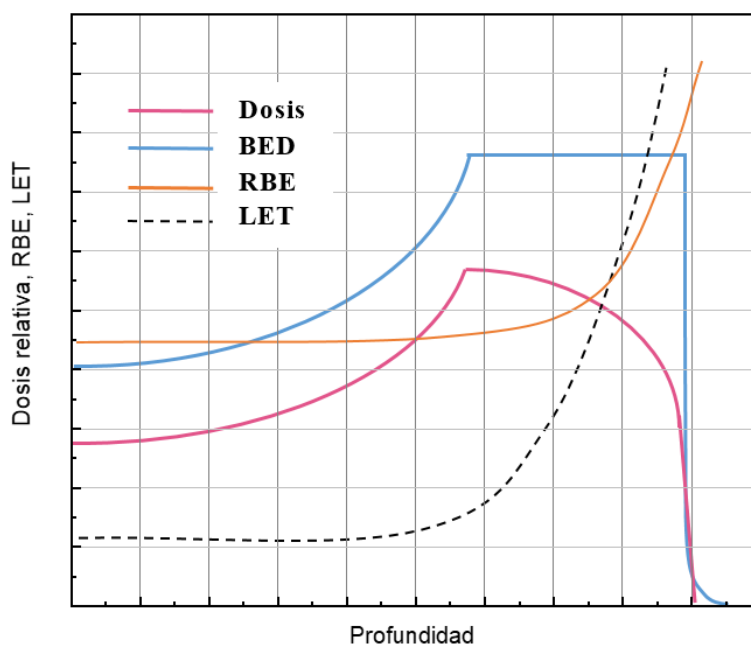


Figura 1.5: Diagrama esquemático de perfiles en profundidad de dosis física, LET, RBE y BED para un haz de carbono.

### 1.3 Dosimetría

La dosimetría es la determinación de la dosis absorbida en el medio como resultado de la exposición a la radiación ionizante. Se considera no solo el efecto del haz primario, sino también el de las partículas secundarias generadas. En el campo de la radioterapia se requiere un conocimiento preciso de la dosis absorbida en tejido biológico para una

correcta predicción de los resultados clínicos. Errores en su cálculo representan serios riesgos para la salud del paciente, siendo este un tema de gran interés en el ámbito de la física médica. De acuerdo a recomendaciones del ICRU y otros protocolos internacionales de la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA), las incertezas en dosimetría clínica no deben superar el 3%.

### **1.3.1 Dosimetría en condiciones de referencia para haces de hadrones**

La determinación de la dosis absorbida se puede realizar de dos maneras, en condiciones de referencia o fuera de dichas condiciones. La dosimetría en condiciones de referencia se refiere a la determinación de una cantidad dosimétrica (generalmente, la dosis absorbida en agua) siguiendo protocolos establecidos, con el fin de lograr resultados comparables entre diferentes instalaciones con una precisión determinada. Cuando las condiciones de referencia son inviables o desfavorables la dosimetría realizada no es de referencia. Esto incluye dosimetría con materiales de tejido equivalentes, la puesta en servicio y el control de calidad, entre otros.

La dosimetría de referencia es muy importante en el ámbito clínico a fin de garantizar una determinación de dosis física precisa y uniforme. Esto permite que las investigaciones clínicas y protocolos de tratamientos de determinadas patologías se puedan implementar en todos los centros que cuenten con los mismos tipos de facilidades (equipamiento y calidades de radiación). La dosimetría de referencia se establece utilizando dosímetros calibrados inicialmente en un laboratorio de estándares primarios o secundarios, donde utilizan generalmente haces de fotones. Luego, estos dosímetros se transfieren a clínicas radioterapéuticas donde habitualmente poseen haces de radiación de la misma calidad. Para minimizar los errores sistemáticos introducidos en este proceso de transferencia, ambas irradiaciones se realizan con el mismo dosímetro y en condiciones de referencia idénticas (o muy similares). Por tanto, estas condiciones de referencia deben ser reproducibles y clínicamente relevantes.

Actualmente los laboratorios de calibración nacionales o internacionales no producen haces de calibración de protones e iones de relevancia para la hadronterapia (presumiblemente debido a costos prohibitivamente altos, baja demanda y recursos limitados). Debido a esta limitación, se desarrollaron otros métodos alternativos para la dosimetría de referencia de hadrones. Estos métodos consisten en calibrar los dosímetros en condiciones de referencia utilizando haces de fotones (es decir, campos de radiación de  $^{60}\text{Co}$  que están ampliamente disponibles en los laboratorios de calibración), luego se aplica un factor de corrección que corrige las diferencias en la respuesta de la cámara a los haces de  $^{60}\text{Co}$  e iones. Los dosímetros más utilizados en dosimetría de referencia son las cámaras de ionización, ya que son de bajo costo, robustas, y de uso habitual en clínicas de radioterapia. A continuación, se detallan éstos y otros tipos de dosímetros empleados en dosimetría de referencia.

### 1.3.2 Dosímetros

Entre los diversos detectores o dosímetros que se utilizan actualmente en dosimetría, se encuentran aquellos que miden directamente la cantidad de dosis absorbida (dosimetría absoluta), y aquellos que miden la ionización del medio (Practical Course in Reference Dosimetry, National Physical Laboratory. Overview of Dosimetry, National Physical Laboratory (NPL), <http://www.npl.co.uk>).

- Los calorímetros permiten la obtención de la dosis absoluta absorbida por medio del aumento de temperatura. Este aumento se genera cuando la radiación ionizante atraviesa el medio y genera partículas secundarias como cargas e iones que al recombinarse liberan energía la cual se mide en forma de calor. Los calorímetros utilizados son de agua o grafito. Debido a la baja difusividad calorífica de estos materiales, la distribución espacial de la dosis debido a la irradiación permanece estable durante un período de tiempo, que es suficientemente largo como para permitir una medición precisa de la elevación de temperatura. En principio se debe considerar esta calorimetría como el método preferido para la dosimetría de referencia, ya que es la forma más directa y precisa para determinar la cantidad de interés, dosis absorbida en agua. Sin embargo, es un método lento y no muy adecuado para la dosimetría periódica en un entorno clínico. Además, su implementación es costosa y requieren de configuraciones experimentales muy complejas.
- Los métodos indirectos de medición de dosis son mayormente de uso clínico al ser más simple su implementación y menos costosos. Entre ellos están los de densitometría de films, termo luminiscencia, semiconducción, ionometría, etc. Los más precisos y utilizados hoy en día son los métodos ionométricos, los cuales miden la ionización en el medio empleando *cámaras de ionización*. Estas consisten en una pequeña cavidad que contiene aire y un electrodo donde se aplica una diferencia de potencial. Los iones generados por la ionización del medio son colectados produciendo una señal eléctrica. La corriente eléctrica producida es generalmente pequeña (una fracción de nanoamperios), pero es al menos un orden de magnitud más fácil de medir que el miligrado de aumento de temperatura en los calorímetros. La lectura de dichas cámaras provee un “porcentaje de ionización” que está directamente asociado con la dosis (ver Figura 1.6). Las cámaras de ionización se construyen con diferentes geometrías dependiendo de su aplicación, las más utilizadas son las cilíndricas o también llamadas dedal, y las plano paralelas.
  - Cámara de ionización plano paralela: Estas cámaras también son utilizadas para la dosimetría de referencia, pero su aplicación principal es el registro de distribuciones de dosis en profundidad. Tiene forma de disco, con una ventana circular de 1 mm de espesor, que constituye la ventana de entrada. La parte interna de ésta es uno de los electrodos. El otro es un disco conductor situado en paralelo a una distancia igual o inferior a los 2 mm.
  - Cámara de ionización cilíndrica o dedal: La forma del volumen activo recuerda un dedal ya que la punta es semiesférica. Se utilizan para la dosimetría de referencia.



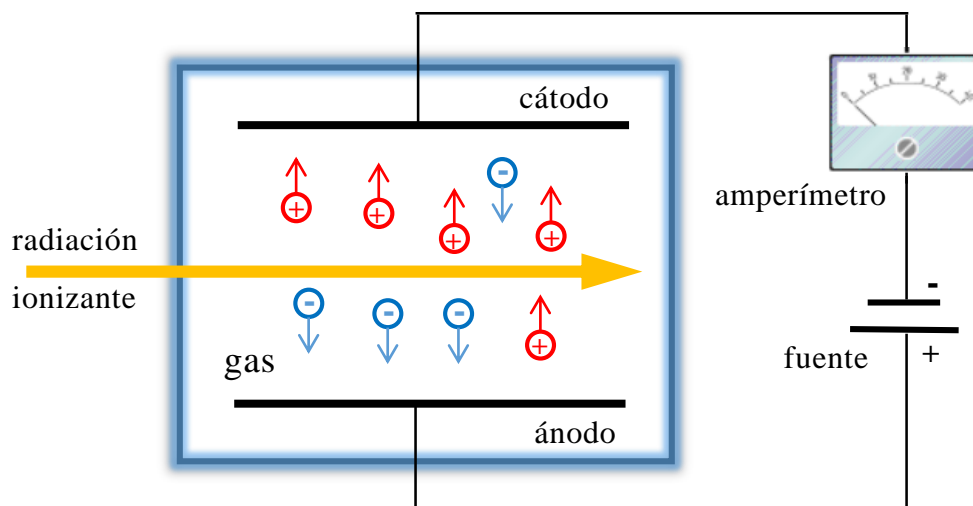


Figura 1.6: Esquema de una cámara de ionización para la medición del porcentaje de ionización del gas.

### 1.3.3 Cálculo de dosis física en dosimetría de referencia para hadronterapia

Una vez calibrado el dosímetro se procede a obtener la dosis física absorbida. Para ello existen diversos protocolos nacionales e internacionales que proveen una metodología para calcular la dosis absorbida en diferentes medios y para distintas calidades del haz de radiación bajo condiciones de referencia. Algunos de los organismos asesores que han publicado protocolos dosimétricos son: la Asociación Estadounidense de Físicos en Medicina (AAPM 1986), el Grupo Clínico Europeo de Dosimetría de Partículas Pesadas (ECHED) (Vynckier et al 1991, 1994), la Comisión Internacional de Unidades de Radiológicas (ICRU 1998, 2007) y la IAEA; entre otros.

En este trabajo seguiremos el formalismo provisto por el protocolo TRS-398 IAEA 2000 para la dosimetría de referencia con haces de iones. Este protocolo establece un procedimiento para obtener la dosis absorbida en agua líquida utilizando cámaras de ionización. Estas cámaras son introducidas en fantasmas de agua a distintas profundidades de referencia a fin de caracterizar el haz de radiación disponible en la clínica, ver Figura 1.7. Para convertir la lectura del electrómetro a dosis en agua líquida, se requieren factores de conversión que dependen de las propiedades físicas de la interacción de la radiación con las moléculas del medio. A continuación, se detalla el formalismo de este protocolo y la relación directa entre la dosis absorbida y los parámetros de estudio en este trabajo.



Figura 1.7: Fantoma de agua con cámara de ionización en su interior para medición de dosis en profundidad.

### Formalismo TRS-398 IAEA

La dosis absorbida en agua a una profundidad de referencia  $z_{ref}$ , para un haz de referencia de calidad  $Q_0$  con que se ha calibrado el dosímetro (usualmente radiación gamma de una fuente de Cobalto 60 ( $^{60}\text{Co}$ ), y en ausencia de la cámara, se define como:

$$D_{w,Q_0} = M_{Q_0} N_{D,w,Q_0} \quad (1.1)$$

siendo  $M_{Q_0}$  la lectura del dosímetro en las condiciones de referencia usadas en el laboratorio de calibración, y  $N_{D,w,Q_0}$  el factor de calibración del dosímetro en términos de dosis absorbida en agua ( $D,w$ ), para un haz de referencia con calidad  $Q_0$ . El subíndice  $w$  hace referencia al agua (primera sigla en inglés).

Cuando el dosímetro se utiliza con un haz de calidad  $Q$ , diferente a la calidad  $Q_0$  empleada para su calibración, la dosis absorbida en agua viene dada por:

$$D_{w,Q} = M_Q N_{D,w,Q_0} k_{Q,Q_0} \quad (1.2)$$

donde la lectura del dosímetro  $M_Q$  se ha corregido a los valores de referencia de las otras magnitudes de influencia (diferentes a las de la calidad del haz) para las que el factor de calibración es válido. El factor  $k_{Q,Q_0}$  corrige los efectos dados por la diferencia entre las calidades de los haces  $Q$  y  $Q_0$ . Este último se puede expresar como el cociente entre los factores de calibración del dosímetro:

$$k_{Q,Q_0} = \frac{N_{D,w,Q}}{N_{D,w,Q_0}} = \frac{D_{w,Q}/M_Q}{D_{w,Q_0}/M_{Q_0}} \quad (1.3)$$

Cuando no es posible obtener este factor a través de mediciones directas para cada cámara, en la misma calidad que el haz del usuario, se procede al cálculo teórico. Para todos los tipos de haces de alta energía vale:

$$k_{Q,Q_0} = \frac{(S_{w/a})_Q}{(S_{w/a})_{Q_0}} \cdot \frac{(W_a)_Q}{(W_a)_{Q_0}} \cdot \frac{p_Q}{p_{Q_0}} \quad (1.4)$$

siendo  $p$  la corrección por las perturbaciones que genera la presencia de la cámara de ionización en el interior del fantoma de agua,  $W_a$  la energía media necesaria para generar un par iónico en aire y el cociente de poderes de frenado en agua/aire  $S_{w/a}$ .

Los valores de las cantidades que componen el factor  $k_{Q,Q_0}$  para un haz de referencia de  $^{60}\text{Co}$  ( $Q_0$ ) se conocen con suficiente precisión a partir de la experiencia con la radioterapia convencional. Por el contrario, la determinación de estas cantidades para un haz arbitrario de calidad  $Q$  en haces de protones y iones ligeros está sujeta a una mayor incertidumbre. En particular, para los haces de iones ligeros, la fragmentación de las partículas primarias hace que la evaluación de los factores sea sensiblemente más difícil, ya que se necesita hacer un cálculo riguroso para promediar sobre el espectro completo de energía y partículas primarias y fragmentos.

Este protocolo proporciona valores de  $S_{w/a}$ ,  $W_a$  y  $p$  para haces de protones e iones livianos. En el caso del  $S_{w/a}$  se adopta un valor fijo de 1.13 ( $\pm 2\%$ ) para iones ligeros, despreciando cualquier dependencia con el rango residual, al no haber datos experimentales. Para el  $W_a$  el protocolo realiza un análisis en la literatura donde estima un valor constante calculado como una mediana ponderada de valores experimentales. En el caso de los protones, se adopta un valor de 34.23 J/C, con una incertidumbre del 0.4%. Para los iones ligeros, la mediana ponderada se calcula a partir de un conjunto de valores para las especies de iones desde el helio hasta el argón, obteniendo 34.5 J/C, con una incertidumbre estándar del 1.5%. El factor de corrección  $p_Q$  se define como  $p_Q = p_{cav} p_{cel} p_{dis} p_{wall}$ , donde cada elemento se describe en la Tabla 1.1. Debido a la falta de datos experimentales este producto de los factores de perturbación  $p_Q$  se toma como unidad para ambos haces, protones y iones livianos.

En la Tabla 1.2 se muestran las incertezas de estos valores para protones e iones ligeros con cámaras de ionización cilíndricas y plano paralelas. Además, se muestra la incertidumbre en el factor de calidad  $k_{Q,Q_0}$ , definida por la propagación cuadrática de las incertidumbres individuales de sus componentes. Se puede observar para las cámaras cilíndricas, que tanto el cociente de poderes de frenado como los valores  $W$  representan la mayor fuente de incerteza en los iones. En el caso de protones la mayor incerteza está dada por el cociente. Las incertezas de las cámaras plano paralelas son un poco mayor a las cilíndricas debido a un mayor error en la determinación de los efectos de las paredes.

Tabla 1.1: Definición de los factores de perturbación.

$p_{cav}$	Corrige los efectos relacionados con la cavidad de aire, predominantemente la dispersión de electrones en el lado interno, lo que hace que la fluencia de electrones en la cavidad sea diferente a la del medio en ausencia de la cavidad.
$p_{cel}$	Corrige la respuesta de una cámara de ionización por el efecto del electrodo central.
$p_{dis}$	Tiene en cuenta el efecto de reemplazar un volumen de agua por la cavidad del detector, cuando el punto de referencia de la cámara se toma en el centro de la misma.
$p_{wall}$	Corrige la respuesta de una cámara de ionización por la falta de equivalencia al medio de la pared de la cámara y de cualquier material impermeable

Tabla 1.2: Incerteza relativa porcentual estimada del factor de corrección por la calidad del haz y de sus componentes para protones y iones livianos IAEA TRS-398 (2000).

Protones	Cámara cilíndrica		Cámara plano-paralela	
	protones	$^{60}\text{Co}$ +protones	protones	$^{60}\text{Co}$ +protones
$S_{w/a}$	1.0	1.2	1.0	1.2
$W_a$	0.4	0.5	0.4	0.5
$p_Q$ (combinado)	0.8	1.1	0.7	1.7
<b>Incerteza total</b> $k_{Q,Q_0}$	-	<b>1.7</b>	-	<b>2.1</b>

Iones livianos	Cámara cilíndrica		Cámara plano-paralela	
	iones	$^{60}\text{Co}$ +iones	iones	$^{60}\text{Co}$ +iones
$S_{w/a}$	2.0	2.1	2.0	2.1
$W_a$	1.5	1.5	1.5	1.5
$p_Q$ (combinado)	1.0	1.0	1.0	1.8
<b>Incerteza total</b> $k_{Q,Q_0}$	-	<b>2.8</b>	-	<b>3.2</b>

## 1.4 Propósito de la tesis

El objetivo principal de este trabajo es de reducir las incertezas en la dosimetría de referencia para hadronterapia. La IAEA estima una incertidumbre general de

aproximadamente 2% de la dosis para los haces de protones y del 3% para los haces de iones de carbono, los cuales son altos en comparación con el 1% de los haces de fotones. La incertidumbre en hadronterapia se puede reducir mediante una comprensión más profunda y detallada de los componentes del factor de corrección por la calidad del haz para la dosimetría de referencia. En el formalismo TRS-398 se presentaron estos parámetros para la determinación de dosis en agua utilizando cámaras de ionización. Este trabajo se centra en el estudio del *poder de frenado* y el *valor W*, al ser los responsables en aportar una gran incerteza al cálculo de dosis. Una de las principales dificultades en la determinación del *valor W* es la falta de datos experimentales para iones. Los protocolos internacionales recomiendan valores constantes e independientemente de la calidad del haz (carga y energía), basados en pocos valores experimentales en gases nobles por impacto de electrones e iones livianos. Es por ello, que se necesita un estudio detallado, desde los procesos físicos y modelos de secciones eficaces hasta los métodos de cálculo, para poder obtener este valor de forma teórica con la mayor precisión posible.

Se estudió inicialmente todas interacciones de las partículas con la materia relevantes en la deposición de dosis, no solo la de los iones proyectiles, sino también la de los todos electrones generados por la ionización del medio. En los capítulos 2 y 3 se estudian estos procesos físicos por medio de las de secciones eficaces. La elección de los modelos para describir estas secciones eficaces es un tema muy delicado, ya que afectan notablemente los resultados. Estas secciones eficaces se introducen luego, en dos métodos de cálculo para determinar los parámetros, estos son: la simulación Monte Carlo y la Aproximación de Frenado Continuo, o por sus siglas en inglés CSDA, los cuales se detallarán en los capítulos finales 4 y 5.

Si bien el objetivo principal del estudio de las estos parámetros físicos está abocado a la corrección de factores para la calidad del haz en la dosimetría absoluta con cámaras de ionización, los resultados pueden utilizarse también para mejorar la precisión en la dosimetría fuera de las condiciones de referencia. Las cámaras de ionización llenas de aire de diferentes tipos se utilizan en varios procedimientos de control de calidad y dosimetría, desde la determinación de las distribuciones de dosis en profundidad hasta la verificación del plan de tratamiento para el paciente.

Por todo lo expuesto, se espera que los resultados obtenidos en esta tesis proporcionen nuevos conocimientos y que ayuden a una mayor comprensión y determinación de estos parámetros, para mejorar tanto la calidad y precisión de los procedimientos de control de calidad, como también el cálculo de dosis clínica con haces de iones rápidos.

## CAPÍTULO 2 Modelos teóricos para el estudio de la interacción de electrones con la materia

Cuando un haz de partículas cargadas atraviesa un medio se producen diversos procesos físicos. Aquellos procesos en los que se produce una transferencia de energía y momento desde el proyectil al medio se consideran *inelásticos*. En el caso de partículas cargadas los procesos inelásticos más relevantes, que dan lugar a la deposición de dosis, son los de ionización y excitación electrónica. Otros procesos inelásticos incluyen excitación de fonones y de estados vibracionales o rotacionales. Sin embargo, la energía transferida en estos procesos es considerablemente menor al compararla con la ionización y excitación electrónica. Es por ello que nos enfocaremos principalmente en estos procesos.

Las interacciones en las que se produce una transferencia de momento, pero no de energía, se consideran *elásticas*. Esto lleva a un cambio en la dirección de la partícula incidente (proyectil) pero sin pérdida de energía. El ángulo de dispersión depende fuertemente de la masa de las partículas interactuantes en la colisión. Los electrones como proyectiles pueden ser dispersados un gran ángulo (hasta  $180^\circ$ ). Sin embargo, es más probable una dispersión hacia adelante de ángulo pequeño respecto a la dirección de incidencia. La dispersión elástica entre un protón proyectil y los electrones del medio conduce normalmente a una dispersión del primero en ángulos muy pequeños (típicamente del orden de los miliradianes), debido a la gran diferencia de masa entre las dos partículas. Por lo tanto, es una buena aproximación considerar que los iones viajan en línea recta. Además, dado que para el cálculo de los parámetros físicos en estudio en esta Tesis la dispersión elástica no afecta al resultado, no se presentan los modelos teóricos para describir la dispersión elástica de electrones como proyectiles.

### Interacciones inelásticas por impacto de electrones

Las secciones eficaces (SE) permiten cuantificar las interacciones entre el proyectil y los átomos o moléculas del medio. Proveen información sobre la probabilidad de ocurrencia de un determinado proceso físico y se pueden obtener a partir de experimentos típicos de colisión donde se estudian los espectros de absorción óptica o de pérdida de energía de la partícula incidente y los cambios producidos en el blanco. Los modelos teóricos de secciones eficaces inelásticas estudiados en este capítulo se introducirán luego en los métodos de cálculo de los parámetros físicos relevantes en la dosimetría de referencia. Es por ello, que se estudiarán los siguientes medios: agua líquida y vapor, nitrógeno y oxígeno (principales componentes del aire). Los procesos físicos estudiados son los de ionización y excitación electrónica y vibracional al ser los más relevantes en la deposición de energía en el medio.

### 2.1 Secciones eficaces de ionización (SEI)

Las secciones eficaces de ionización por impacto de electrones son muy importantes en el estudio de la deposición de energía de la radiación ionizante. En la

interacción de cualquier tipo de radiación ionizante incidente con la materia, sean haces de fotones, electrones o hadrones, se genera una cascada de electrones secundarios con energías suficientes como para producir sucesivas ionizaciones hasta la termalización de los mismos. Es por ello que se deben estudiar en detalle todos los mecanismos a través de los cuales depositan su energía en el medio.

### 2.1.1 Modelos teóricos

Para el cálculo de las SEI por impacto de electrones se eligió el modelo desarrollado por Kim y Rudd, conocido como Binary-Encounter-Bethe model (BEB) (Kim, Rudd (1994)), ya que es un modelo muy simple y es ampliamente utilizado para estudiar la deposición de energía en el medio biológico (Incerti et al. (2018)). Existen muchos otros modelos en la literatura (por ejemplo, Dingfelder et al. (1998)) pero su precisión a menudo es difícil de establecer debido a la falta de datos experimentales en hielo o agua líquida.

El desarrollo de esta teoría se basó en combinar las secciones eficaces de Mott, modificadas por la teoría de encuentro binario para bajas energías del proyectil, con la teoría de Bethe para altas energías. Así obtuvieron el modelo de Encuentro-Binario-Dipolar o BED model (Binary-Encounter-Dipol model), el cual no depende de ningún parámetro empírico o de ajuste, pero sí de datos experimentales y teóricos precisos para determinar las energías de enlace o ligadura  $B_k$ , las energías cinéticas medias  $U_k$  y el número de ocupación  $N_k$  de cada subnivel. Un elemento importante de esta teoría es la fuerza dipolar oscilatoria diferencial que se obtiene de forma teórica o experimental. Muchas veces no se tiene un conocimiento explícito de esta función, que depende del medio blanco y del proyectil. Es por ello que los autores del trabajo realizaron una versión simplificada del modelo BED para afrontar esta carencia y así obtuvieron el modelo BEB (Binary-Encounter-Bethe) que se presenta a continuación.

El modelo BEB da una expresión para las *secciones eficaces de ionización simple diferenciales* (SEI\_SD) en función de la energía cinética del electrón incidente (proyectil)  $T$  y del electrón eyectado  $E$  para cada orbital  $k$  de la molécula en estudio, ecuación (2.1). Al integrarla en función de la energía  $E$  y sumando sobre todos los orbitales moleculares se obtiene la *sección eficaz de ionización total* (SEIT), ecuación (2.2).

$$\frac{d\sigma_{BEB}^k(e, t)}{dE} = \frac{S}{B_k(t+u+1)} \left[ \frac{-1}{t+1} \left( \frac{1}{(e+1)} + \frac{1}{(t-e)} \right) + \left( \frac{1}{(e+1)^2} + \frac{1}{(t-e)^2} \right) + \ln t \left( \frac{1}{(e+1)^3} + \frac{1}{(t-e)^3} \right) \right] \quad [cm^2/eV] \quad (2.1)$$

Las cantidades escaladas son:  $t = T/B_k$ ,  $e = E/B_k$ ,  $u = U_k/B_k$ ,  $S = 4\pi a_0^2 N_k R^2 / B_k^2$ ,  $a_0 = 0.5292 \cdot 10^{-8}$  cm el radio de Bohr y  $R = 13.61$  eV la energía de Rydberg.

$$\sigma_{BEB}(T) = \sum_k \sigma^k = \sum_k \left[ \int_0^{(T-B_k)/2} \frac{d\sigma_{BEB}^k}{dE} dE \right] \quad (2.2)$$

$$= \frac{S}{t+u+1} \left[ \frac{\ln t}{2} \left( 1 - \frac{1}{t^2} \right) + 1 - \frac{1}{t} - \frac{\ln t}{t+1} \right] \quad [cm^2]$$

Los valores de las energías  $B_k$  y  $U_k$ , y el número de ocupación  $N_k$  para los diferentes medios en estudio se muestran en la siguiente Tabla 2.1. Estos parámetros para agua vapor, nitrógeno y oxígeno molecular se obtuvieron del trabajo de Hwang et al. (1996). Este trabajo no incluía los orbitales moleculares más internos, por lo cual fueron tomados del trabajo de Rudd, Goffe, et al. (1985a), en el que se estudia la emisión de electrones por impacto de protones. Para agua líquida las energías de ligaduras se tomaron del trabajo Dingfelder et al. (1998) y las energías cinéticas del modelo de Kim publicado en el trabajo de Rudd et al. (1992).

Tabla 2.1: Orbitales moleculares, energía de ligadura  $B_k$  en eV, energía cinética media  $U_k$  en eV y número de ocupación  $N_k$  para los blancos de H<sub>2</sub>O líquida y vapor, N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub>. Todos los valores son teóricos excepto aquellos con un asterisco los cuales son experimentales.

Molécula	Orbital Molecular	$B_k$		$U_k$		$N_k$
		líquida	Vapor	líquida	vapor	
H <sub>2</sub> O	1a <sub>1</sub>	540.0	539.7	794.75	794.75	2
	2a <sub>1</sub>	33.30	36.88	71.0	71.71	2
	1b <sub>2</sub>	16.60	19.83	48.695	48.36	2
	3a <sub>1</sub>	14.70	15.57	59.20	59.52	2
	1b <sub>1</sub>	11.95	12.61*	61.45	61.91	2
N <sub>2</sub>	1σ <sub>g</sub>	409.9		602.68		2
	1σ <sub>u</sub>	409.9		601.78		2
	2σ <sub>g</sub>	41.72		71.13		2
	2σ <sub>u</sub>	21.00		63.18		2
	1π <sub>u</sub>	17.07		44.3		4
	3σ <sub>g</sub>	15.58*		54.91		2
O <sub>2</sub>	1σ <sub>g</sub>	543.5		795.06		2
	1σ <sub>u</sub>	543.5		784.84		2
	2σ <sub>g</sub>	46.19		79.73		2
	2σ <sub>u</sub>	29.82		90.92		2
	1π <sub>u</sub>	19.64		59.89		4
	3σ <sub>g</sub>	19.79		71.84		2
	1π <sub>g</sub>	12.07*		84.88		2

Particularmente, para el caso de agua líquida se utilizaron las SEI\_SD del trabajo de Gervais et al. (2006). En el rango de bajas energías, combina la formulación de BEB con una distribución de las energías de ligadura siguiendo el trabajo de Dingfelder et al.

(1998), con el fin de imitar la banda de energía en la materia condensada. Se hará referencia a estas SEI como BEB\_Gerv.

### 2.1.1.1 Aproximación relativista

La expresión de la energía cinética de una partícula en el régimen relativista se define como  $T = T^{total} - T_0$ , donde  $T^{total} = mc^2$  es la energía total de la partícula,  $T_0 = m_0c^2$  es su energía en reposo,  $m_0$  su masa en reposo y  $c$  la velocidad de la luz en el vacío (Podgorsak (2006)). Podemos escribir la masa en función del factor de Lorentz ( $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$ ) como  $m = \gamma m_0$ , y así obtener la expresión de la energía cinética de la forma:

$$T = m_0c^2(\gamma - 1) = m_0c^2 \left( \frac{1}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} - 1 \right) \quad (2.3)$$

Para un electrón proyectil graficamos esta expresión junto a la expresión de la energía cinética para el régimen clásico  $v \ll c$ , esto es  $T = m_0v^2$ , en función de la velocidad normalizada con la velocidad de la luz, (Figura 2.1). Podemos observar la separación de las curvas a partir de los 20 keV.

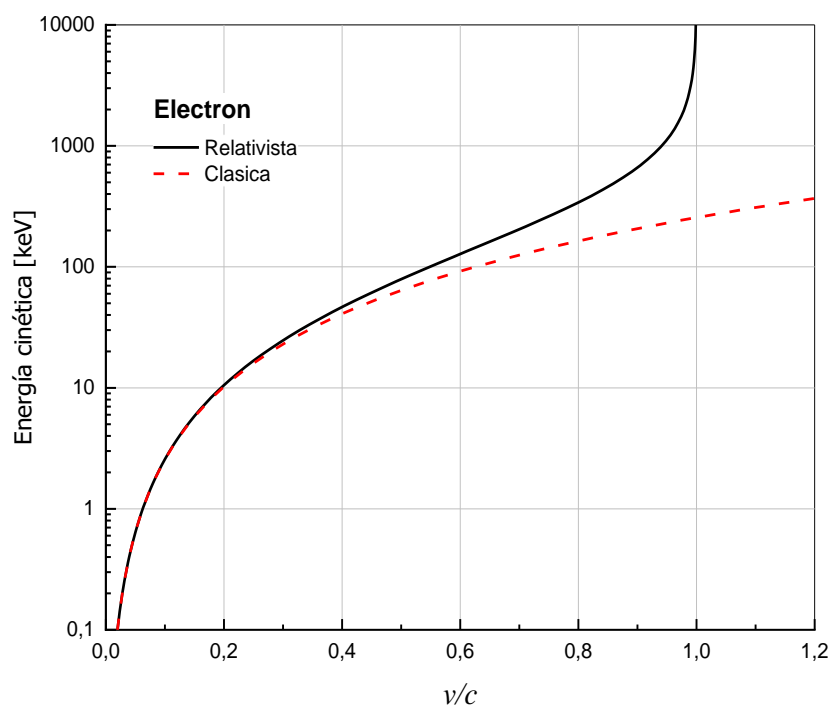


Figura 2.1: Energía cinética del electrón para el régimen clásico y relativista en función de la velocidad del electrón normalizada con la velocidad de la luz en el vacío  $c$ .

Kim, Santos y Parente (Kim et al. (2000)) realizaron un desarrollo teórico para extender las SEI\_SD de BEB al régimen relativista (ver ecuación(2.4)). Las velocidades contempladas ahora están normalizadas con la velocidad de la luz en el vacío. Este modelo teórico tiene un muy buen acuerdo con datos experimentales para carbón y argón (Tawara

et al. (1973)) entre otros, y con otros desarrollos teóricos (Scofield (1978)). De aquí en adelante se expresarán los resultados de este modelo teórico con la sigla RBEB.

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{RBEB}^k}{dE}(e, t) = & \frac{4\pi\alpha_0^2\alpha^4 N_k}{(\beta_t^2 + \beta_b^2 + \beta_u^2)2b'B_k} \left[ \frac{-1}{t+1} \left( \frac{1}{(w+1)} + \frac{1}{(t-w)} \right) \frac{1+2t'}{(1+t'/2)^2} \right. \\ & + \frac{1}{(w+1)^2} + \frac{1}{(t-w)^2} + \frac{b'^2}{(1+t'/2)^2} \\ & \left. + \left( \ln \left( \frac{\beta_t^2}{1-\beta_t^2} \right) - \beta_t^2 - \ln(2b') \right) \left( \frac{1}{(w+1)^3} + \frac{1}{(t-w)^3} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.4)$$

siendo  $\alpha = 1/137$  la constante de estructura fina y

$$\begin{aligned} \beta_t^2 = v_t/c, \quad \beta_t^2 = 1 - \frac{1}{(1+t')^2}, \quad t' = T/mc^2 \\ \beta_b^2 = v_b/c, \quad \beta_b^2 = 1 - \frac{1}{(1+b')^2}, \quad b' = B_k/mc^2 \\ \beta_u^2 = v_u/c, \quad \beta_u^2 = 1 - \frac{1}{(1+u')^2}, \quad u' = U_k/mc^2 \end{aligned} \quad (2.5)$$

donde  $v_t$  la velocidad de un electrón con energía cinética  $T$ ,  $v_b$  la velocidad de un electrón con energía cinética  $B_k$ ,  $v_u$  la velocidad de un electrón con energía cinética  $U_k$  y  $m$  la masa en reposo del electrón incidente.

Una forma sencilla de incluir los efectos relativistas en las secciones eficaces es utilizando una expresión aproximada de la energía cinética del proyectil como lo proponen Plante, Cucinotta (2008). Teniendo en cuenta que las expresiones analíticas de las secciones eficaces dependen de la energía cinética del proyectil, se despeja la velocidad de la expresión 2.3:

$$v = c \sqrt{1 - \frac{1}{(1 + T/m_0c^2)^2}} \quad (2.6)$$

para luego utilizarla en la expresión clásica de energía cinética y así obtener una “energía cinética con aproximación relativista”,  $T^{AR}$ :

$$T^{AR} = \frac{1}{2} m_0 v^2 = \frac{1}{2} m_0 c^2 \left( 1 - \frac{1}{\left( 1 + \frac{T}{m_0 c^2} \right)^2} \right) \quad (2.7)$$

Esta nueva expresión de la energía cinética es utilizada ahora para calcular las SEI simple diferenciales y totales con el modelo de BEB,  $\sigma_{BEB}(T^{RA})$ , que será expresada utilizando la sigla BEB-AR. Para ello, se debe reemplazar a  $m_0c^2$  en la expresión anterior por  $m_{0e}c^2=511$  keV.

## 2.1.2 Resultados

En general, las SE de ionización presentan un máximo para velocidades de incidencia comparables a las de los electrones ligados. A energías de incidencia mayores las SE presentan un decrecimiento monótono, dando cuenta de una disminución en la probabilidad de ionización. Esto se puede comprender considerando que al incidir con mayor velocidad los tiempos característicos de la interacción proyectil-blanco son menores.

En la Figura 2.2, se muestran las SEIT para agua vapor (arriba) y agua líquida (abajo) calculadas con el modelo de BEB, la extensión relativista RBEB y con la aproximación relativista BEB-AR. Se observa en ambos medios una separación entre las curvas relativistas y con el modelo de BEB a partir de los 20 keV como era de esperar según nuestro análisis previo (figura 2.1). La aproximación propuesta tiene un buen acuerdo con el modelo relativista RBEB hasta los 200 keV donde comienza a tomar valores menores.

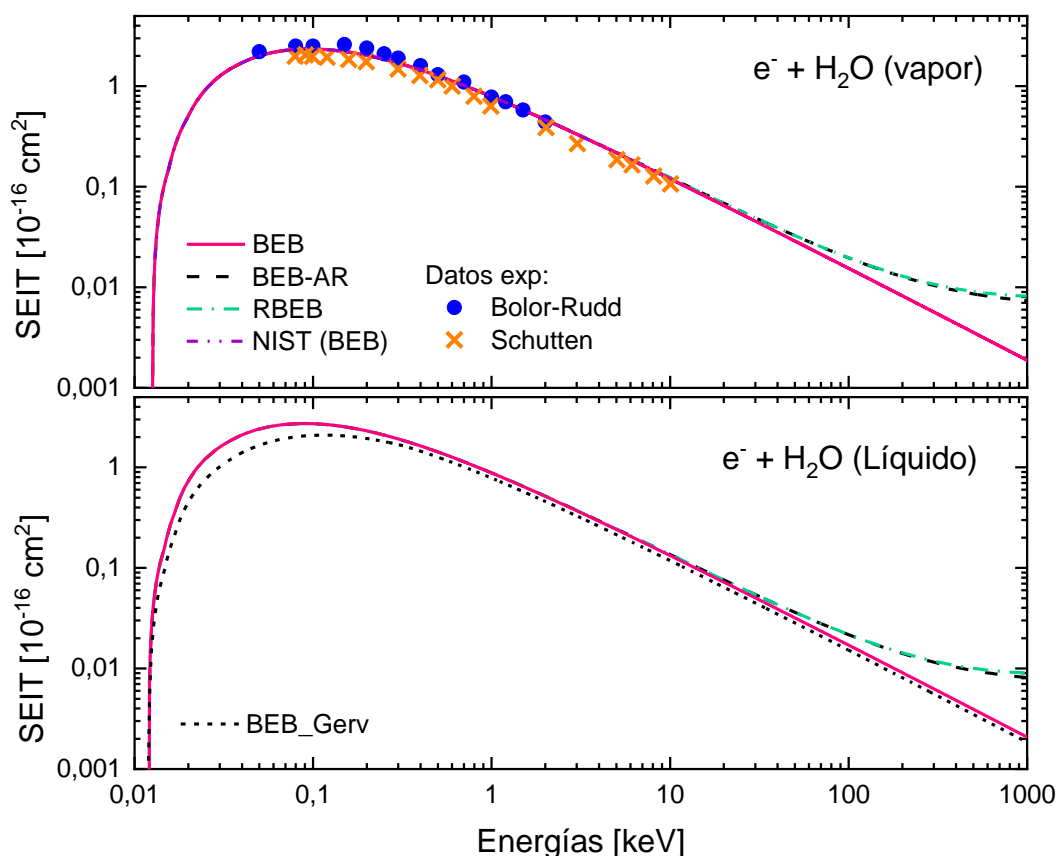


Figura 2.2: Secciones eficaces totales de ionización para agua vapor y líquida calculadas con los modelos de BEB, RBEB, BEB-AR y BEB\_Gerv. Se comparan con datos experimentales de Bolorizadeh, Rudd (1986) y Schutten et al. (1966) y de referencia NIST, n.d.

Las secciones eficaces en agua vapor se comparan con datos experimentales de Bolorizadeh, Rudd (1986) y Schutten et al. (1966) en el rango de energías intermedias donde presentan un buen acuerdo. Además, se comparan con los valores de referencia del

Instituto Nacional de Estándares y Tecnología (NIST), el cual utiliza el mismo formalismo de BEB para el cálculo de las SEI (es por ello que las curvas coinciden exactamente con los cálculos realizados).

En agua líquida se incorporan las SEIT calculadas con el modelo propuesto por Gervais et al. (2006), BEB\_Gerv. Como se puede observar, las SEIT BEB\_Gerv toman valores menores a las obtenidas con los modelos de BEB. Esto se debe a diferencias en la función distribución utilizada para las energías de ligadura  $B_k$ .

En la Figura 2.3 se muestran las SEIT calculadas con los modelos de BEB y BEB-AR para nitrógeno y oxígeno, en comparación con datos experimentales de Tate y Smith 1932, Rapp, Englander-Golden (1965) y Schram et al. (1965), en el rango de energías bajas e intermedias. Como se observa en la figura, existe un buen acuerdo entre los valores experimentales y los resultados teóricos en este rango de energías. No se encontraron en la literatura datos experimentales a altas energías.

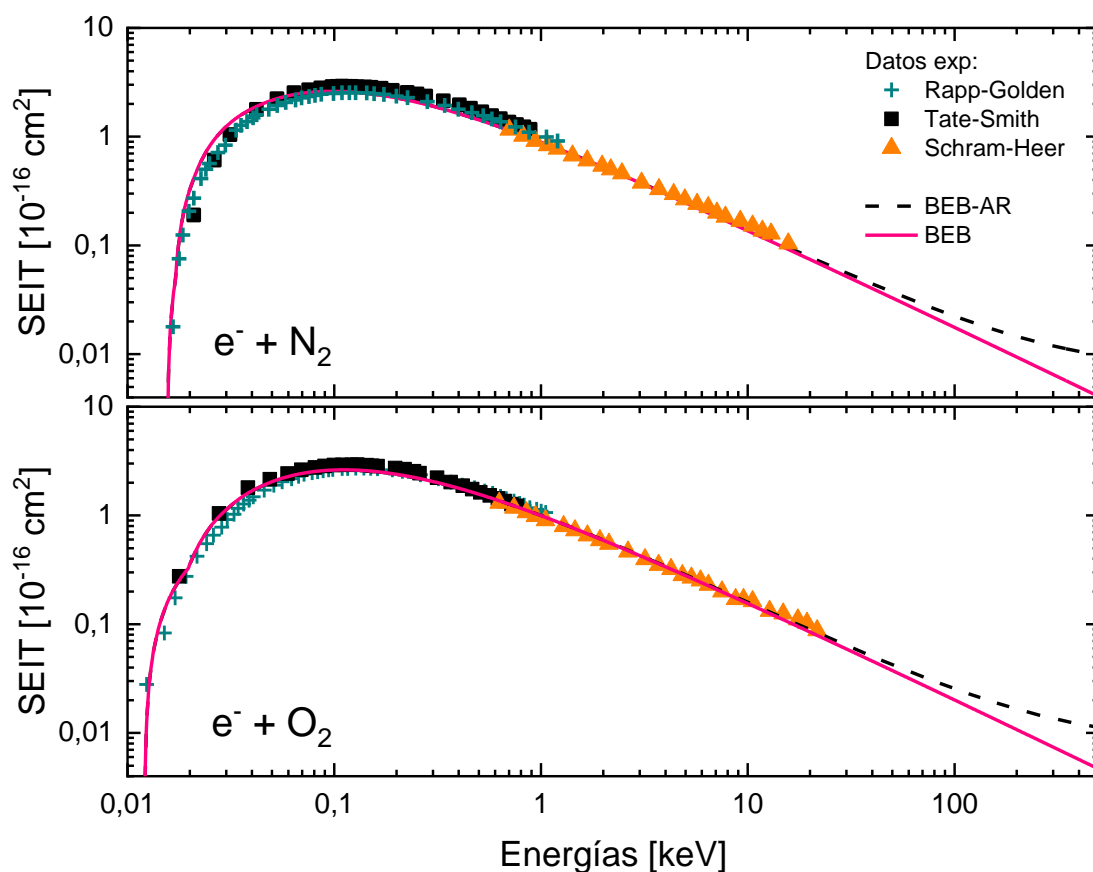


Figura 2.3: Secciones eficaces totales de ionización para nitrógeno (arriba) y oxígeno (abajo) calculadas con los modelos de BEB, BEB-AR y comparadas con datos experimentales de Tate, Smith (1932), Rapp, Englander-Golden (1965) y Schram et al. (1965).

## 2.2 Secciones Eficaces de Excitación (SEE)

Los procesos de excitación electrónica se estudian experimentalmente por medio de diversas técnicas espectroscópicas, entre ellas las más conocidas son las de

fotoabsorción y por pérdida de energía del electrón proyectil. En la espectroscopía por fotoabsorción se mide la absorción de la radiación electromagnética incidente en la muestra, en función de la frecuencia o longitud de onda. Luego, al comparar la atenuación de la luz transmitida con la intensidad incidente en el detector, se obtiene el espectro de absorción de la muestra. Este espectro está determinado principalmente por la composición atómica o molecular del material y cada línea representa una transición entre dos estados del compuesto. Las líneas de rotación, por ejemplo, ocurren cuando se cambia el estado rotacional de la molécula y se da típicamente en la región espectral de las microondas. Las líneas asociadas a excitaciones de estados vibracionales de la molécula se producen típicamente en la región del infrarrojo. En el caso de una excitación electrónica la transferencia de energía es mayor y las líneas espectrales se encuentran en la región visible y ultravioleta. Las líneas de absorción (o emisión) de rayos X están asociadas con la excitación de los electrones de las capas internas.

A partir de los datos experimentales obtenidos se han desarrollado diferentes métodos empíricos y semiempíricos para determinar las secciones eficaces de excitación. Estos datos son muy escasos, especialmente para medios condensados como el agua líquida (Heller et al. (1974)). Es por ello que las secciones eficaces calculadas con diferentes modelos difieren considerablemente uno del otro. En la sección siguiente se presentan los modelos que permiten calcular las SEE electrónica y vibracional para los medios en estudio.

## 2.2.1 Modelos teóricos de SEE Electrónica

Las secciones eficaces de excitación electrónica (SEE<sub>e</sub>) se calcularon mediante diferentes modelos teóricos y semiempíricos de acuerdo al medio en estudio y lo recomendado hasta la fecha. La aproximación relativista AR aplicada al cálculo de la energía cinética del proyectil, tal como fue presentada en la sección anterior 2.1.1, se utilizó también para extender las SEE<sub>e</sub> al caso de altas velocidades de incidencia.

### *Modelo de Green-Stolarski*

Para todos los blancos en estudio (H<sub>2</sub>O líquida y vapor, N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub>) se calcularon inicialmente las secciones eficaces electrónicas con el modelo semiempírico de Green, Stolarski (1972). Este modelo satisface el requisito de aproximarse asintóticamente al término dipolar de Bethe para energías de impacto suficientemente altas. La expresión permite obtener *secciones eficaces de excitación electrónica* para cada nivel de excitación molecular  $k$  en función de la energía cinética del electrón proyectil  $T$ . Además, depende de la energía de transición al  $k$ -ésimo nivel  $E_k$  y de ciertos parámetros que ajustan a datos experimentales (ver ecuación (2.8)). Se utilizará la sigla GS para hacer referencia a estas secciones eficaces.

$$\sigma_{GS}^k(T) = \frac{Aq_0}{E_k^2} \left(\frac{E_k}{T}\right)^\omega \left[1 - \left(\frac{E_k}{T}\right)^\gamma\right]^\nu \quad [cm^2] \quad (2.8)$$

donde  $q_0 = 4\pi a_0^2 R^2 = 6.51410^{-14} [eV^2 cm^2]$ , con  $a_0$  el radio de Bohr y  $R$  la constante de Rydberg.  $A, \omega, \gamma$  y  $\nu$  son parámetros de ajuste.

Estos parámetros, junto a los estados excitados y las energías de transición  $E_k$ , se tomaron de diferentes autores, ver Tabla 2.2. Para agua líquida se tomaron del trabajo de Kutcher y Green 1976 donde se ajustaron los mismos a datos experimentales obtenidos de radiación ultravioleta. En el caso de agua vapor los parámetros se tomaron del trabajo de Olivero et al. (1972) a excepción de los dos estados de Rydberg que fueron tomados del trabajo de Kutcher y Green para agua líquida. Esta elección se realizó siguiendo el trabajo de Emfietzoglou et al. (2000). Los parámetros para nitrógeno y oxígeno se tomaron del trabajo de Green y Stolarski.

Tabla 2.2: Parámetros para el cálculo de SEE\_e para agua líquida de Kutcher, Green (1976), para agua vapor de Olivero et al. (1972) a excepción de los dos estados de Rydberg tomados de Kutcher y Green, para N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> de Green, Stolarski (1972).

Molécula	Estado Excitado	$E_k$	$A$	$\omega$	$\nu$	$\gamma$
H <sub>2</sub> O líquida	$A^1B_1$	8.4	0.0302	0.6537	3.0	1.561
	$B^1A_1$	10.10	0.0617	0.6447	3.0	1.537
	<i>Rydberg A+B</i>	11.26	0.0142	0.6670	3.0	1.415
	<i>Rydberg C+D</i>	11.93	0.0590	0.5796	3.0	1.813
	<i>Bandas Difusas</i>	14.10	0.086	0.4535	3.0	3.0
H <sub>2</sub> O vapor	$A^1B_1$	7.4	0.063	0.75	3.	1.
	$B^1A_1$	9.67	0.138	0.8	3.	1.
	<i>Rydberg A + B</i>	10.0	0.0142	0.667	3.0	1.415
	<i>Rydberg C + D</i>	11.06	0.059	0.5796	3.0	1.813
	<i>Bandas difusas</i>	13.32	0.626	0.75	3.0	1.0
	<i>H* Lyman <math>\alpha</math></i>	17.0	3.49	1	1	0.3
	<i>H* H<math>\alpha</math> Balmer <math>\alpha</math></i>	19.0	0.735	1	1	0.3
	<i>OH*, 3064 A</i>	10.0	0.0537	1	1.	5.35
N <sub>2</sub>	$A^3\Sigma_u^+$	6.14	0.226	3	1	1
	$B^3\Pi_g$	7.3	0.178	3	1	3
	$C^3\Pi_u$	11.03	0.28	3	1	3
	$a^1\Pi_g$	9.10	0.136	1	1	1
	$b^1\Pi_u$	12.85	0.67	0.75	3	1
	$b'^1\Sigma_u^+$	14.00	0.33	0.75	3	1
	$\Sigma$ Rydberg	13.75	2.66	0.75	3	1
O <sub>2</sub>	$a^1\Delta_g$	0.98	0.0005	3	1	3
	$b^1\Sigma_g$	1.64	0.0005	3	1	3
	$A^3\Sigma_u^+$	4.5	0.021	0.9	1	3
	$B^3\Sigma_u^-$	8.4	0.23	0.75	2	1
	9.9	9.9	0.08	0.75	3	1
	$\Sigma$ Rydberg	13.5	2.77	0.75	3	1

Se observó que las pendientes de las curvas de SEE\_e en nitrógeno y oxígeno cruzan las curvas de SEI a altas energías. Este comportamiento tiene un fuerte impacto en el cálculo de los valores W. Por ello, se realizaron aproximaciones en las SEE\_e calculadas con este modelo de GS, para así obtener una pendiente paralela a las de SEI.

Inicialmente se modelizó la SEI total a partir de la expresión asintótica de Bethe (1930), la cual tiene validez para “electrones rápidos”, esto es para energías de impacto mayores a la energía transferida,  $T \gg E_{transf}$  (Dingfelder et al. (1998)). Esta teoría provee

un método muy sencillo para expresar las SE de ionización o excitación, en la Primera Aproximación de Born (PBA), para proyectiles cargados en función de solo algunos parámetros. La forma asintótica para altas energías del proyectil incidente  $T$  es (Kim, Inokuti (1971)):

$$\sigma(T) = \frac{a}{T} \ln T + \frac{b}{T} + \frac{c}{T^2} + \dots \quad (2.9)$$

donde  $a$ ,  $b$  y  $c$  son constantes características del blanco en estudio.

A partir de esta expresión, se tomó el primer término como una primera aproximación para ajustar la pendiente de la SEI total obtenida del modelo de BEB,

$$\sigma_{ABethe}(T) = A \frac{\ln(T.B)}{T.B} \quad (2.10)$$

donde  $A$  y  $B$  son parámetros de ajuste.

Luego, utilizando un factor de escala se ajustó esta expresión a ciertas curvas de excitación electrónica, las cuales se detallan en la sección de resultados. La aplicación de esta aproximación se hizo a partir de los 2 keV, ya que de esta forma cumplía con la validez de aplicación de la ley asintótica de Bethe, y además, permitió obtener como resultado una curva continua en el punto de empalme. Si bien esto se realizó para diferentes estados de excitación para ambos medios, en un futuro se pretende realizar este ajuste con mayor detalle para cada estado en particular.

#### *Modelo de Cobut*

En agua líquida se utilizaron además las SEE<sub>e</sub> propuestas en el trabajo de Gervais et al. (2006), que considera solo dos estados de excitación para este medio: el  $A^1B_1$  y el  $B^1A_1$ . Allí calcula las secciones eficaces simple diferenciales de excitación electrónica (SEE<sub>SD\_e</sub>) aplicando el modelo propuesto por Cobut et al. (1998), el cual utiliza la función de pérdida de energía (ELS) o densidad de fuerza de oscilador dipolar, medida por Heller et al. (1974). En el rango de bajas energías este modelo es modificado con el método de Kim (2001). De esta forma se evita la sobreestimación de los valores proveniente de la Primera Aproximación de Born para energías cercanas al umbral de excitación. La expresión de las SEE<sub>SD\_e</sub> están dadas en función de la energía cinética del electrón proyectil  $T$ , y la energía perdida  $W$  del mismo, ver las ecuaciones (2.11) y (2.12). Se hará referencia a éstas utilizando la sigla Gerv.

Para un electrón con energía cinética  $T$  y una energía transferida de excitación  $E_k$ , se define la energía cinética reducida  $t = T/E_k$  y el momento transferido reducido mínimo y máximo como:

$$\begin{aligned} q_{min} &= 2t - 1 - 2\sqrt{1 - 1/t}, \\ q_{max} &= 2t - 1 + 2\sqrt{1 - 1/t} \quad \text{si } q_{max} < 1 \\ q_{max} &= 1 \quad \text{si } q_{max} \geq 1 \end{aligned} \quad (2.11)$$

$$\frac{d\sigma_{Gerv}^k}{dE_k} = \frac{\pi f_{0k}}{(T + E_k + A)} e^{-\alpha_k(E_k - E_{0k})^2} \ln\left(\frac{q_{max}}{q_{min}}\right) \quad (2.12)$$

donde  $A=8.6$  eV es el umbral de energía de ionización,  $E_{0k}$  es la energía media de excitación para el nivel  $k$ ,  $\alpha_k$  es la energía distribuida alrededor de la energía perdida media  $W_{0k}$  y  $f_{0k}$  la fuerza del oscilador para la transición. En la siguiente Tabla 2.3 se muestran los valores de los parámetros utilizados.

Tabla 2.3: Parámetros de ajuste para el cálculo de las SEE\_SD\_e mediante el modelo de Cobut.

Estado Excitado	$W_{0k}$ (eV)	$\alpha_k$ (eV <sup>-2</sup> )	$f_{0k}$
$A^1B_1$	8.4	3	0.0187
$B^1A_1$	10.10	1	0.0157

### Modelo de Paretzke

En agua vapor también se utilizó otro modelo semiempírico siguiendo el trabajo de Nikjoo et al. (2006). En él utiliza el modelo desarrollado por Paretzke et al. (1986) el cual da una expresión de las SEE\_e para cada estado de excitación  $k$ , en función de la energía cinética del proyectil  $T$ , de la energía de excitación  $E_k$  y de parámetros de ajuste a datos experimentales.

$$\sigma_{Paret}^k(T) = \Phi_3(T) \frac{4\pi a_0^2 R}{T} M_a^2 \ln\left(\frac{4c_s T}{R}\right) \quad (2.13)$$

$\Phi_3$  es un factor de corrección empírico de la forma,

$$\Phi_3(T) = 1 - e^{-0.25(T/E_a - 1)} \quad (2.14)$$

$a_0=5.29 \cdot 10^{-9}$  cm es el radio de Bohr y  $R=13.6$  eV la constante de Rydberg.  $M_a$  y  $c_s$  son parámetros de ajuste y  $E_a$  la energía de excitación. Los estados de excitación considerados son los mismo que aquellos en el modelo de Green y Stolarski; sin embargo, difieren en valor. En la Tabla 2.4 se muestran los estados de excitación y parámetros para el cálculo.

Tabla 2.4: Estados de excitación del modelo de Paretzke et al.

Molécula	Estado Excitado	$E_a$ (eV)	$M_a^2$	$c_s$
H <sub>2</sub> O vapor	$A^1B_1$	7.4	0.099	1.25
	$B^1A_1$	9.7	0.098	1.25
	Rydberg A + B	10.0	0.041	1.25
	Rydberg C + D	11.0	0.072	1.25
	Bandas difusas	13.3	0.363	1.25
	$H^*$ Lyman $\alpha$	21.0	0.088	115.0
	$H^*$ H $\alpha$ (Balmer $\alpha$ )	21.0	0.0206	1.0

En la publicación Nikjoo agrega a estos estados el estado OH\* 3064, calculado con el modelo GS con parámetros ajustados por Paretzke. Se hará referencia a estas SEE\_e como Nikjoo.

## 2.2.2 Resultados

En la Figura 2.4 se muestran las SEE\_e para agua líquida para cada estado de excitación calculadas con el modelo de Green y Stolarski (figura izquierda) y las propuestas por Gervais et al. (figura derecha). Las curvas de los estados  $A^1B_1$  y  $B^1A_1$  para los dos modelos teóricos son muy diferentes, lo cual tiene un importante impacto en los parámetros físicos que describiremos más adelante.

En la Figura 2.5 se muestran las SEE\_e para agua vapor para cada estado de excitación calculadas con el modelo de Green y Stolarski (figura de la izquierda) y las propuestas por Nikjoo et al. (figura de la derecha). Los estados tomados para ambos modelos son los mismos, cinco de excitación electrónica y tres asociados a excitación disociativa. Sin embargo, se pueden observar importantes diferencias entre las curvas calculadas con cada modelo.

En el caso de nitrógeno y oxígeno, Figura 2.6 y Figura 2.7, se presentan también los estados de excitación de cada molécula con el modelo de Green y Stolarski. Se puede observar que los estados:  $A^3\Sigma_u^+$ ,  $B^3\Pi_g$  y  $C^3\Pi_u$  del nitrógeno y  $a^1\Delta_g$  y  $b^1\Sigma_g$  para el oxígeno caen abruptamente. Estos corresponden a excitación por intercambio de carga, por el cual sólo pueden ser excitados por impacto de electrones. A una energía de 10 eV los estados mencionados del oxígeno son entre dos y tres órdenes de magnitud menores al resto, por lo tanto, sus contribuciones a la SEE totales en ese rango de energías no es apreciable.

Para los últimos tres estados de excitación de cada molécula, esto es  $b^1\Pi_u$ ,  $b'^1\Sigma_u^+$  y  $\Sigma$ Rydberg para nitrógeno y  $B^3\Sigma_u^-$ , 9.9 y  $\Sigma$ Rydberg para oxígeno, se realizó un ajuste de las curvas de forma tal que adopten la pendiente de la SEI total calculada con el modelo de BEB de cada medio. Estas se muestran con líneas de trazo lleno a partir de una energía del proyectil de 2 keV.

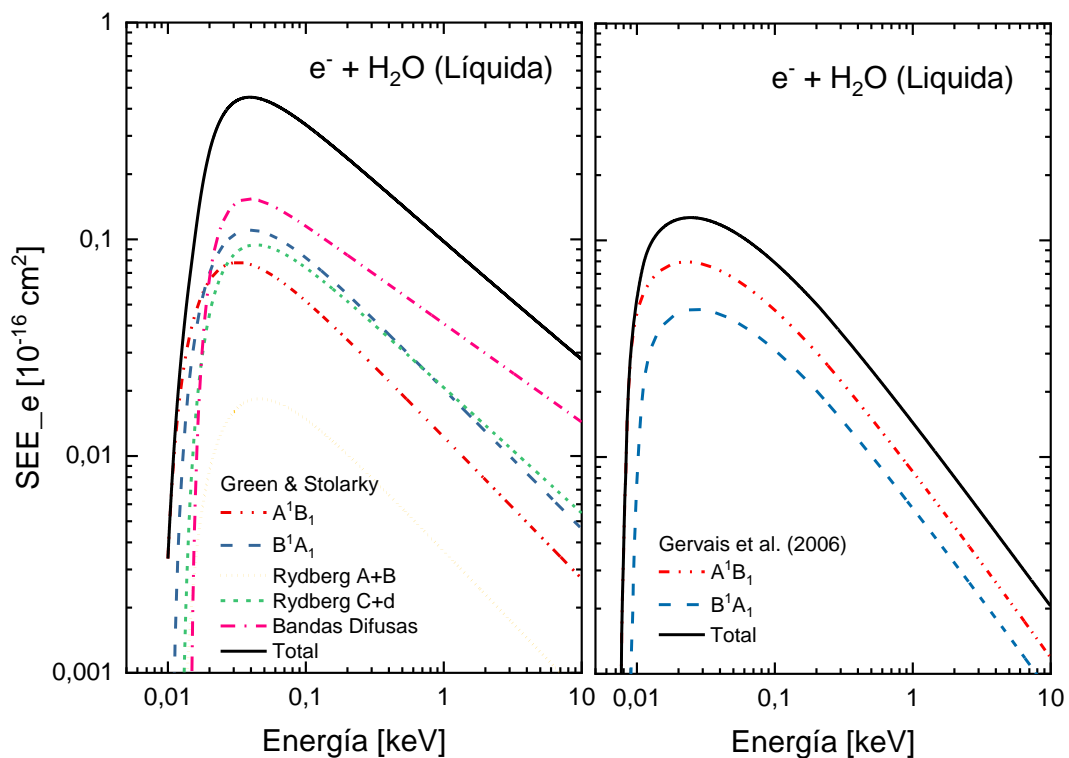


Figura 2.4: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua líquida calculadas con el modelo de Green y Stolarski a la izquierda y las propuestas por Gervais et al. (2006).

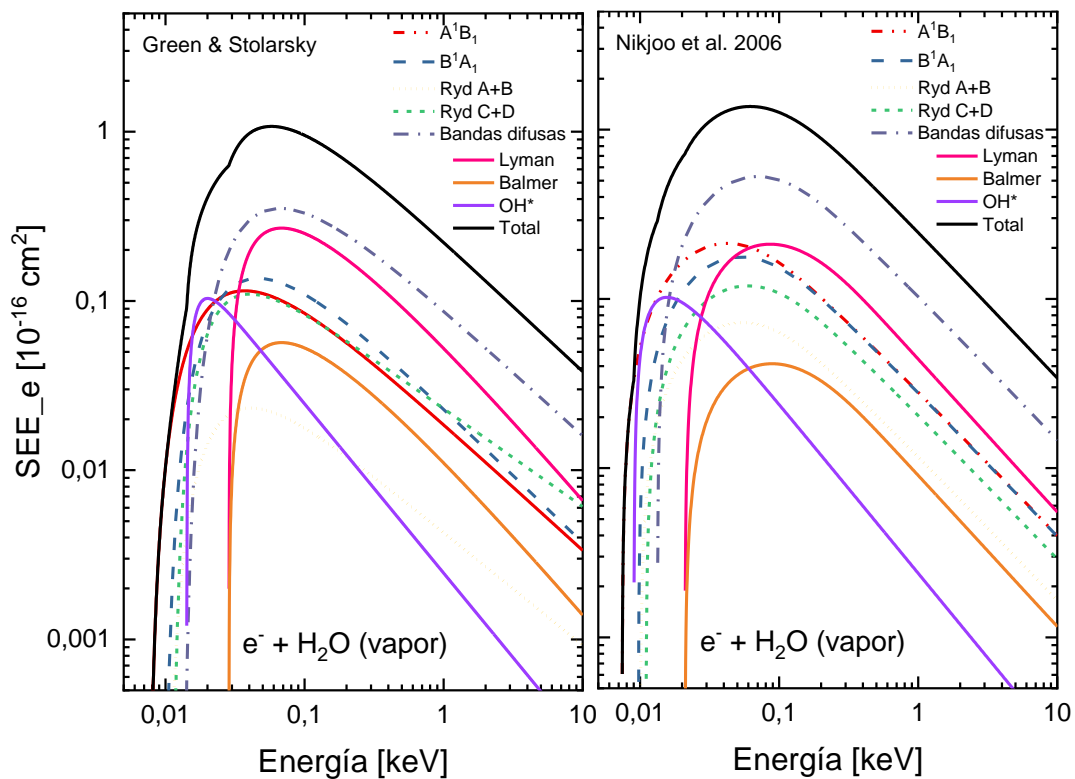


Figura 2.5: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua vapor calculadas con el modelo de Green y Stolarski a la izquierda y con el modelo de Paretzke a la derecha siguiendo el trabajo de Nikjoo et al. (2006).

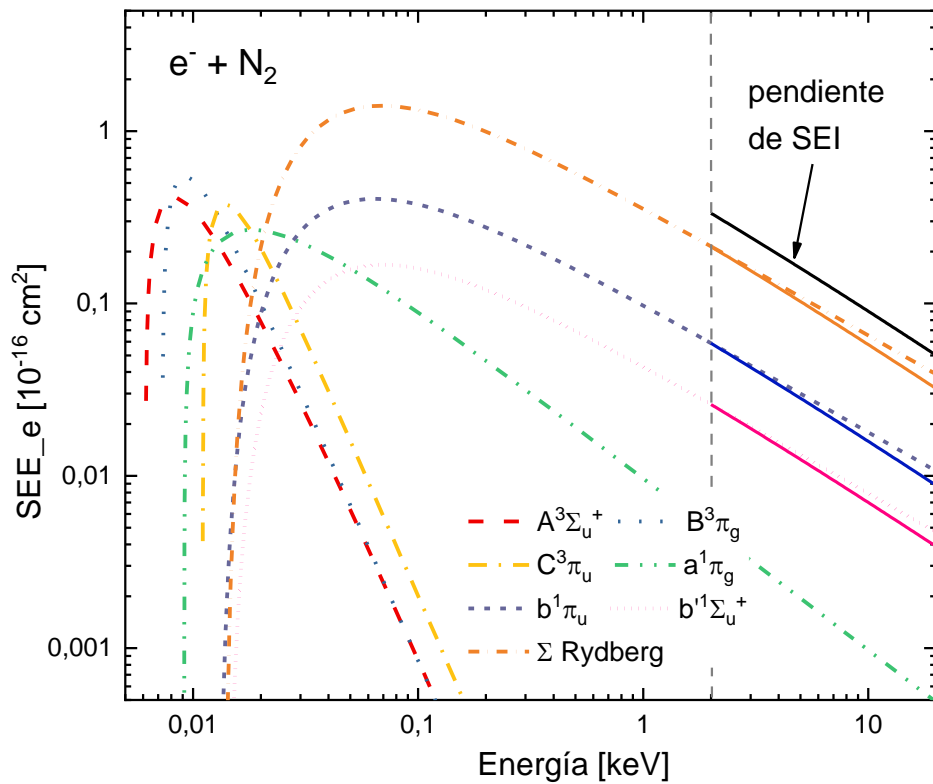


Figura 2.6: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en nitrógeno. Se calcularon con el modelo de GS y se muestra el ajuste con pendiente de secciones eficaces de ionización en tres estados de excitación.

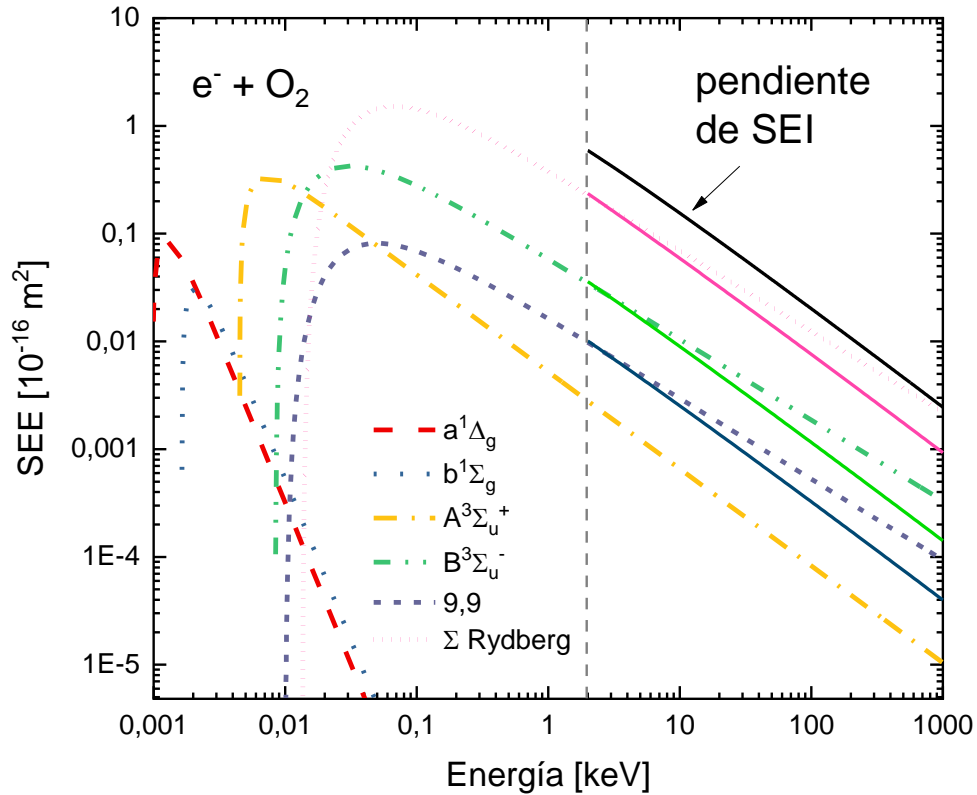


Figura 2.7: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en oxígeno. Se calcularon con el modelo de GS y se muestra el ajuste con pendiente de secciones eficaces de ionización en tres estados de excitación.

Al estudiar otros trabajos donde se calculan secciones eficaces en nitrógeno para el cálculo de los valores  $W$ , se encontraron diferencias respecto de las  $SEE_e$  obtenidas con el modelo de GS. En particular se analizó la tesis de A. Bantsar del Instituto De Estudios Nucleares Andrzej Sołtan en Polonia. Para el cálculo de las SE de excitación siguió el trabajo de Porter et al. (1976), donde obtiene secciones eficaces relativistas por impacto de electrones y protones en nitrógeno y oxígeno. Para ello, utiliza la formulación relativista de la fuerza oscilatoria generalizada desarrollada por Bethe (Mitio Inokuti (1971)). Los estados de excitación considerados en este artículo contemplan algunos de los considerados en el modelo de GS, los cuales se clasifican en ópticamente prohibidos, permitidos y de Rydberg. La tesis de Bantsar incluye todos estos estados y agrega uno más, asociado a los estados prohibidos, a modo de poder ajustar mejor las secciones eficaces totales medidas por Grosswendt et al. 1999. En la Tabla 2.5 se muestran los estados de excitación considerados en la tesis y las diferencias en las energías de excitación  $E_k$  con los considerados por el modelo de GS. Vale aclarar que la expresión utilizada por Bantsar, deducida de formulación de Bethe, se reduce a la de GS (ver los parámetros de cálculo en las referencias).

Tabla 2.5: Comparación de los estados de excitación electrónica de la molécula de nitrógeno para el cálculo de las  $SEE_e$ .

Molécula	Estados	Estado Excitado	$E_k$ Porter et al.	$E_k$ modelo GS
N <sub>2</sub>	ópticamente prohibidos	$A^3\Sigma_u^+$	8.0	6.14
		$B^3\Pi_g$	8.5	7.3
		$C^3\Pi_u$	11.05	11.03
		$E^3\Sigma_g^+$	11.9	-
		$a^1\Pi_g$	8.6	9.10
		$a'^1\Sigma_g^+$	12.25	-
		$vib\ v\ 1\rightarrow 3$	1.85	-
		$vib\ v\ 4\rightarrow 8$	2.15	-
	ópticamente permitidos	$b^1\Pi_u$	12.5	12.85
		$b'^1\Sigma_u^+$	13.3	14.00
Suma Rydberg	$\Sigma$ Rydberg	suma 6 estados	13.75	

En la Figura 2.8 se comparan las  $SEE_e$  del modelo de GS con las consideradas en la tesis de A. Bantsar para nitrógeno por impacto de electrones. Se muestran la suma de los estados ópticamente prohibidos, la suma de los ópticamente permitidos, la suma de los estados de Rydberg y el total contemplando todos estos estados de excitación. Los estados permitidos del modelo de GS subestiman los de Bantsar. En contraposición, la suma de Rydberg de GS sobreestima los de Bantsar. En el caso de los estados prohibidos la curva de GS subestima a la de Bantsar en todo el rango de energías. Particularmente, se observa que la curva de Bantsar presenta un pico a 20 eV aproximadamente, separándose de la del modelo GS. Al comparar estas curvas con los estados prohibidos de Porter et al. se observa que se ajustan muy bien a la de GS, por lo cual se concluye que este máximo está asociado al estado generado por Bantsar para poder ajustar mejor a los datos experimentales de

sección eficaz total de Grosswendt et al. 1999. Este estado en particular se muestra en la Figura 2.9 junto a los estados prohibidos de los tres autores mencionados.

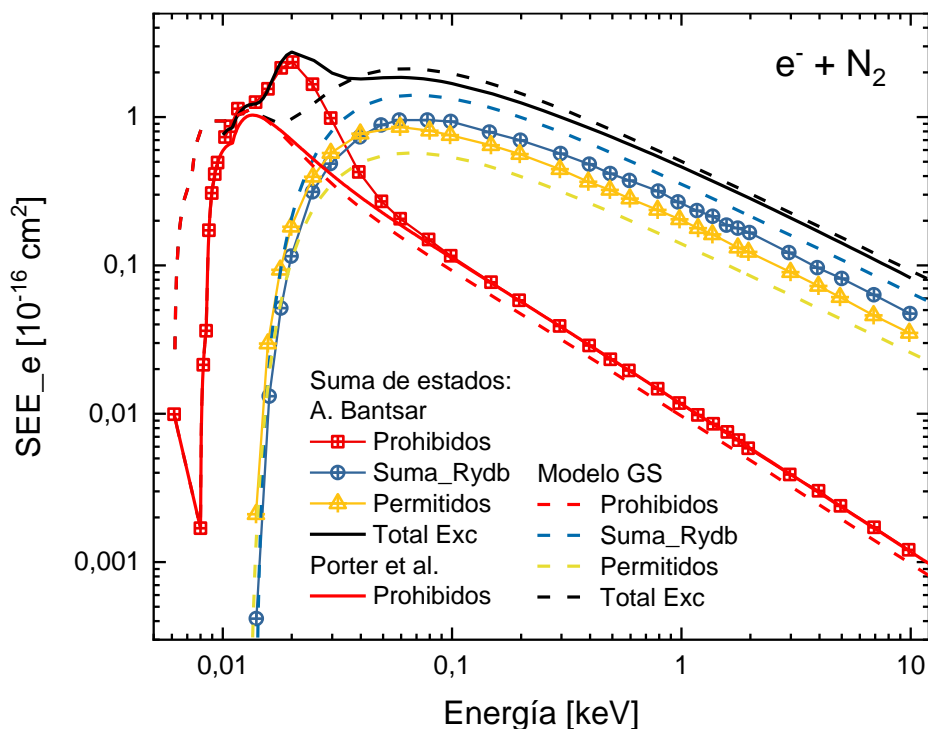


Figura 2.8: Secciones eficaces de excitación electrónica por impacto de electrones en nitrógeno. Líneas con símbolos de A. Bantsar; líneas a trazos: modelo de GS; línea llena roja: total de estados prohibidos Porter et al.

En la Figura 2.10 se muestran las  $SEE_e$  calculadas utilizando la aproximación relativista en comparación con la curva no relativista en el modelo de GS para el caso de agua líquida. Se puede observar como a partir de 50 keV las curvas comienzan a separarse como era de esperar. Esta aproximación se realizó para todos los blancos en estudio.

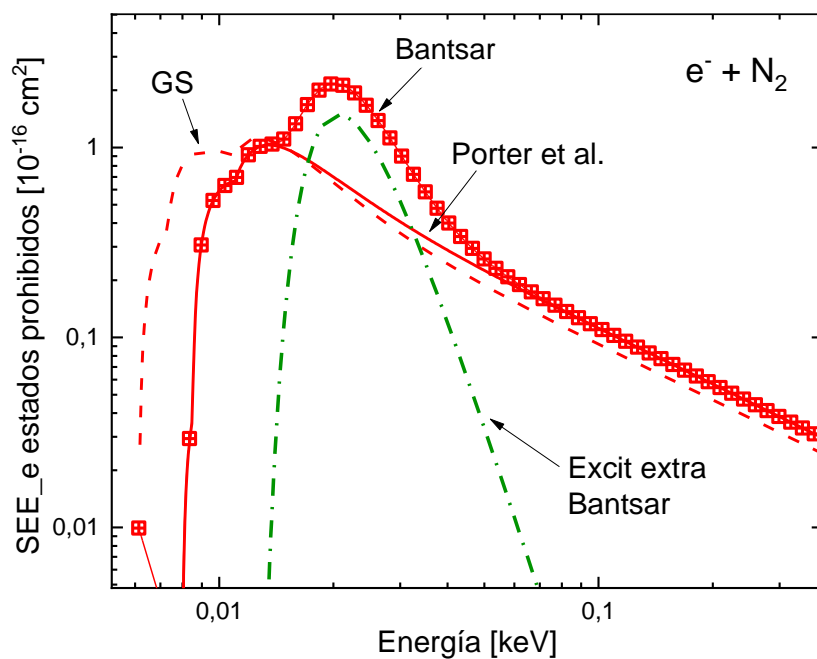


Figura 2.9: Suma de las  $SEE_e$  de los estados prohibidos por impacto de electrones en nitrógeno. Líneas con símbolos de A. Bantsar; línea de punto y trazo: estado agregado por Bantsar como ajuste a las SE totales; líneas a trazos: modelo de GS; línea llena: Porter et al.

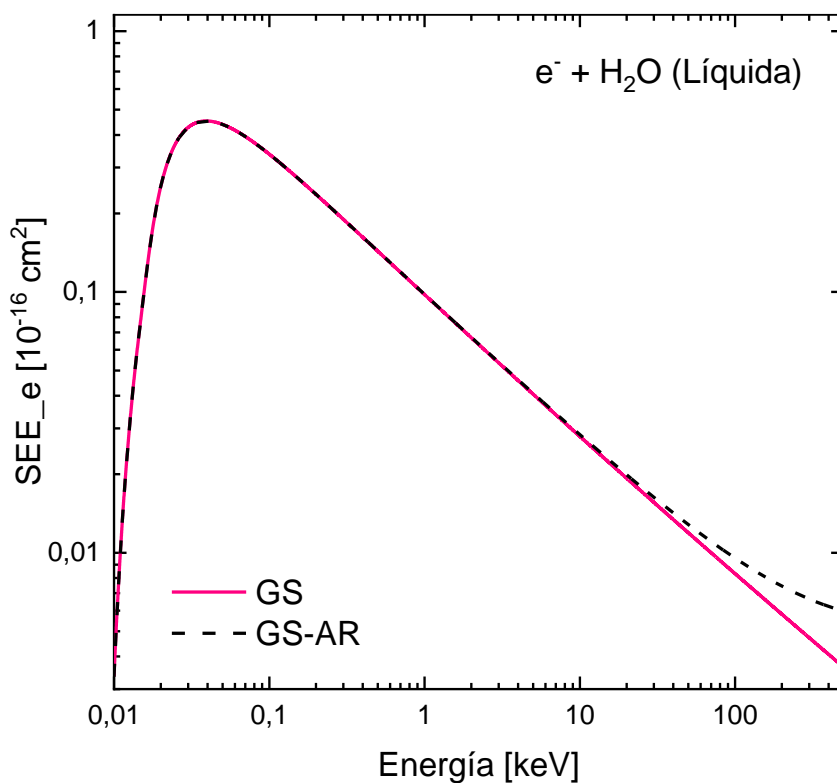


Figura 2.10: Secciones eficaces de excitación electrónica en agua líquida calculadas con el modelo de Green y Stolarski (GS) y con aproximación relativista (GS-AR).

### 2.2.3 Modelos teóricos de SEE Vibracional

Cuando la energía cinética de los electrones es inferior al umbral de excitación electrónica más bajo, los mecanismos de pérdida de energía están dominados por las excitaciones vibracionales de las moléculas del medio.

Para el caso de agua líquida se consideraron en este trabajo las secciones eficaces de excitación vibracional (SEE<sub>v</sub>) propuestas en el trabajo de Gervais et al. (2006). Estas corresponden a las secciones eficaces medidas por Michaud y Sanche (1987) para hielo amorfo a bajas temperaturas en el rango de 1 a 18 eV (Cobut et al. (1998)). Para mejorar la comparación de la simulación con el decaimiento experimental de los electrones solvatados (Bartels et al., 2000; Muroya et al., 2002), se corrigieron las SEE<sub>v</sub> aumentando los valores experimentales en un 15%. Los valores por encima de 100 eV y por debajo de 3 eV fueron extrapolados aplicando la formulación propuesta por Neff et al. (1980) escalada para igualar los resultados de Michaud y Sanche. En la Tabla 2.6 se muestran los modos y energías de vibración y en la Figura 2.11 se muestran las SEE<sub>v</sub> para cada estado y la total.

Tabla 2.6: Modos de excitación vibracionales y energías de excitación para agua líquida (Gervais et al. (2006)).

Modos de Excitación	$\nu_2$	$\nu_{13}$	$\nu_3$	$\nu_{13}+\nu_L$	$2\nu_{13}$	$\nu_{T1}$	$\nu_{T2}$	$\nu_{L1}$	$\nu_{L2}$
$E_k$ (eV)	0.205	0.422	0.460	0.500	0.840	0.010	0.025	0.062	0.095

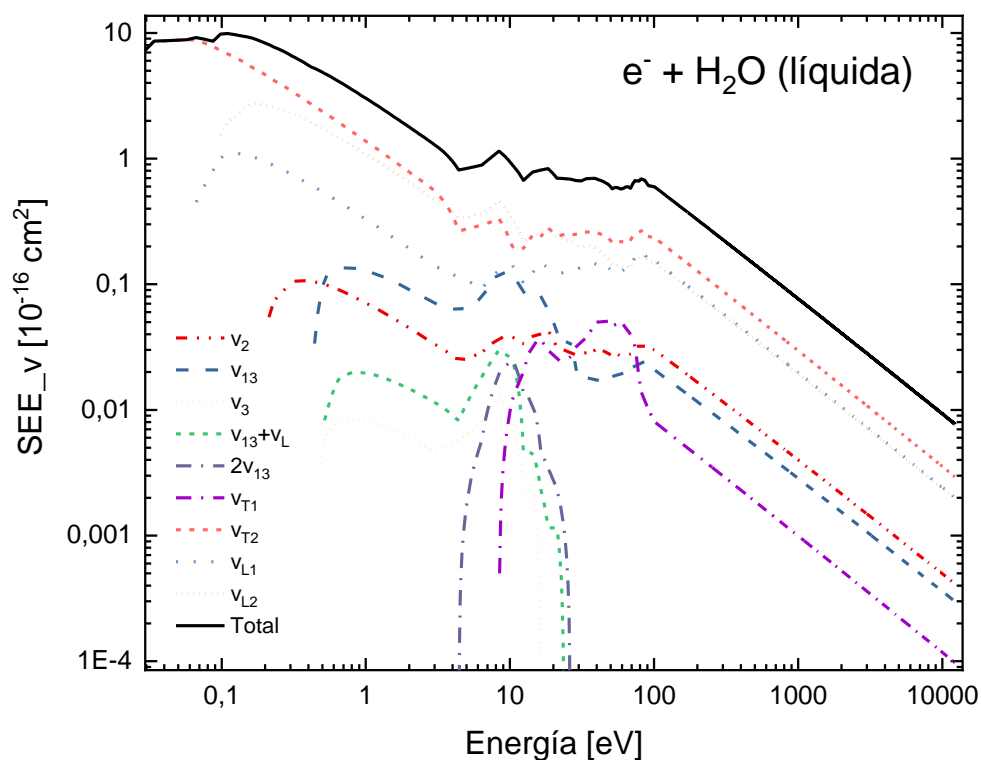


Figura 2.11: Secciones eficaces de excitación vibracional para impacto de electrones en agua líquida.

En el rango de bajas energías, menores los 10 eV, las pérdidas de energías se dan además a través de las excitaciones rotacionales. Las secciones eficaces de estas transiciones son muy difíciles de detectar y hay muy pocos datos experimentales y teóricos para poder representarlas. Itikawa (Itikawa et al. (1989); Itikawa, Mason (2005); Itikawa (2006)) realizó un estudio detallado de todas las SE por impacto de electrones en agua, nitrógeno y oxígeno. Allí recopila las SE rotacionales obtenidas por diferentes autores, siendo éstas relevantes en el rango de bajas energías, menos a 1 eV para nitrógeno y oxígeno, con una energía de excitación muy baja. Por ejemplo, para el caso del nitrógeno muestra el estado rotacional de transición  $J=0 \rightarrow 2$  con una energía de  $1.48 \cdot 10^{-3}$  eV. Debido a esta baja transferencia de energía al medio en el rango de bajas energías no se han considerado estas SE rotacionales para el cálculo de los parámetros físicos estudiados en esta tesis.

### 2.3 Ionización Múltiple y emisión Auger por impacto de electrones

Los procesos de ionización múltiple han sido objeto de una activa investigación durante las últimas décadas. Este proceso puede ocurrir mediante dos mecanismos: ionización directa y emisión de electrones post-colisión. En el primer caso, la interacción directa entre el proyectil y los electrones blancos produce la emisión al continuo de uno o más de ellos. En consecuencia, el blanco residual queda en un estado excitado con vacancias en sus orbitales. Cuando el proyectil se supone lejos, se produce el segundo mecanismo de emisión. Las vacantes creadas en las capas internas por ionización son ocupadas por otros electrones de las capas más externas. En esta transición, una cantidad de energía puede ser liberada en forma de fotones o puede ser absorbida produciendo una autoionización de los electrones enlazados restantes a través de una emisión de tipo Auger. Este efecto post-colisión puede ocurrir entre diferentes capas, llamándose emisión Auger y / o dentro de una misma capa, emisión Coster-Kronig.

En este trabajo estudiaremos solamente la emisión de tipo Auger. Se analizó por impacto de electrones al considerar una probabilidad del 100% de emisión Auger cuando un electrón de la capa molecular más interna se ioniza. En esta situación un electrón de la capa molecular superior se desexcita y ocupa esta vacancia dando lugar a la emisión de un electrón Auger del mismo nivel con energía cinética bien definida. Esta característica fue implementada en los métodos de cálculos utilizados para obtener los parámetros físicos en estudio, esto en un código Monte Carlo y un método de Aproximación de Frenado Continuo (CSDA), los cuales se presentarán en los capítulos siguientes.

La energía cinética del electrón Auger puede obtenerse fácilmente. Para el caso de la molécula de agua, por ejemplo, esta energía se obtiene como:

$$E_{Auger} = (B_{2a1} - B_{1a1}) - B_{2a1} \quad (2.15)$$

donde los valores de las energías de ligadura  $B_k$  se muestran en la sección 2.1.

### 2.3.1 Análisis de las Secciones Eficaces Totales

En las siguientes figuras se muestran las secciones eficaces totales por impacto de electrones para los procesos de ionización, excitación electrónica y vibracional de los medios estudiados. Esta comparación facilitará el análisis de resultados en el estudio de los parámetros físicos que serán presentados más adelante.

En la Figura 2.12 se muestran las SE totales para agua líquida. Se observan diferencias en las pendientes de las asíntotas a altas energías al comparar la curva de ionización con las curvas de excitación de los diferentes modelos estudiados. La  $SEE_e$  de Gerv presenta una pendiente paralela a la SEI calculada con el modelo de BEB y BEB\_Gerv. Por otro lado, las  $SEE_e$  calculadas con el modelo de GS presentan una diferencia apreciable en sus pendientes en comparación con la de ionización. Se ha encontrado que esta relación entre las pendientes de las asíntotas es una característica muy importante ya que influye fuertemente en el comportamiento del valor-W como se verá más adelante. Las  $SEE_v$  toman valores entre las SEI y las  $SEE_e$  para energías intermedias y bajas. Si bien la energía perdida por el proyectil en los procesos de excitación vibracional es pequeña (menor a 1 eV) comparada con la excitación electrónica, este proceso influye en la distribución de las interacciones entre el proyectil y el medio cuando se simula la traza de electrones.

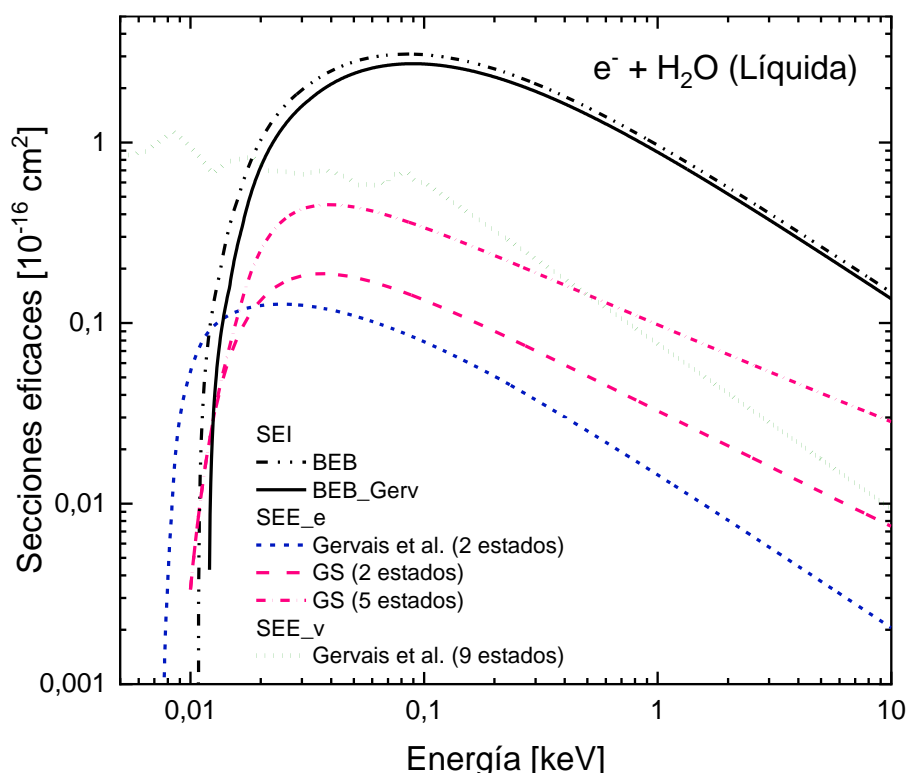


Figura 2.12: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en agua líquida.

En la Figura 2.13 se muestran las SE totales para impacto de electrones en agua vapor, para el proceso de ionización con el modelo de BEB y para la excitación electrónica con los modelos de GS y el propuesto por Nikjoo. Este último muestra el mismo

comportamiento que las SE de ionización a altas energías. La SEE\_e de GS, sin embargo, cruza a la de Nikjoo en 3 keV aproximadamente, por lo cual va tomando valores cada vez más cercanos a la ionización.

Para los medios de nitrógeno y oxígeno se muestran en las Figura 2.14 y Figura 2.15 las SE de ionización con los modelos BEB y BEB -AR, y de excitación electrónica con los modelos de GS y GS-AR. Como era de esperar, alrededor de los 20 keV se observa que las curvas con aproximación relativista se separan de las no relativistas. También se observa cómo las curvas de ionización y excitación tienden a juntarse para altas energías debido al modelo de excitación utilizado. Es por ello que se decidió realizar un ajuste al modelo de GS de forma tal que a partir de los 2 keV sigan las pendientes de las SEI. En ambas figuras este ajuste se representa con línea de punto y trazo. Para el caso de nitrógeno se muestra además las SEE\_e utilizadas por Bantsar en su tesis, donde se observa una diferencia apreciable a bajas energía con un máximo entre los 10 eV y 20 eV.

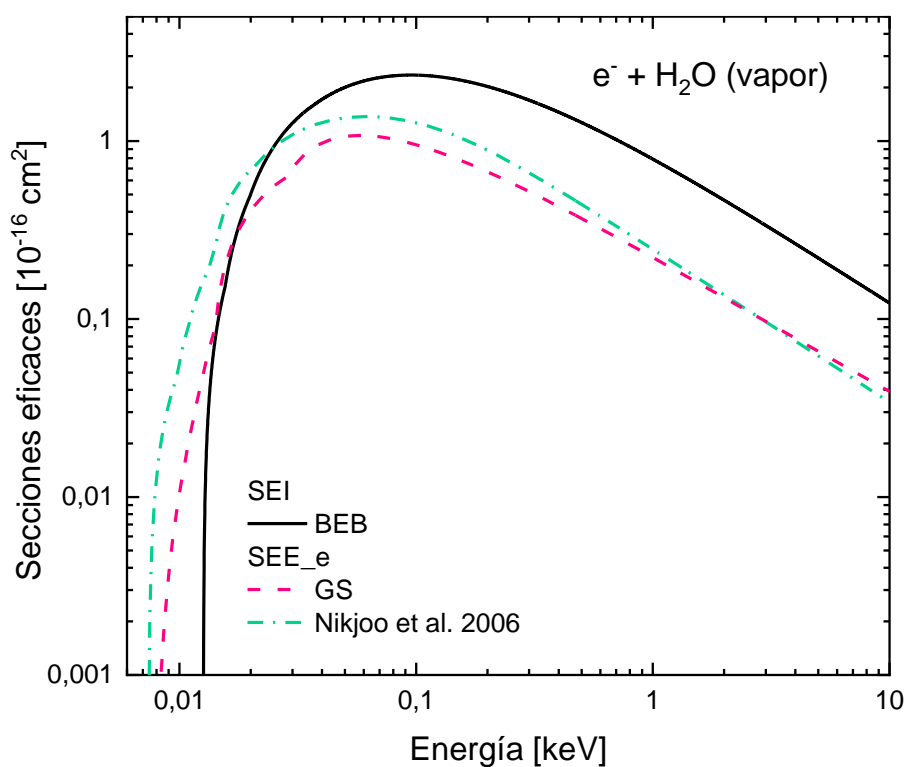


Figura 2.13: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en agua vapor

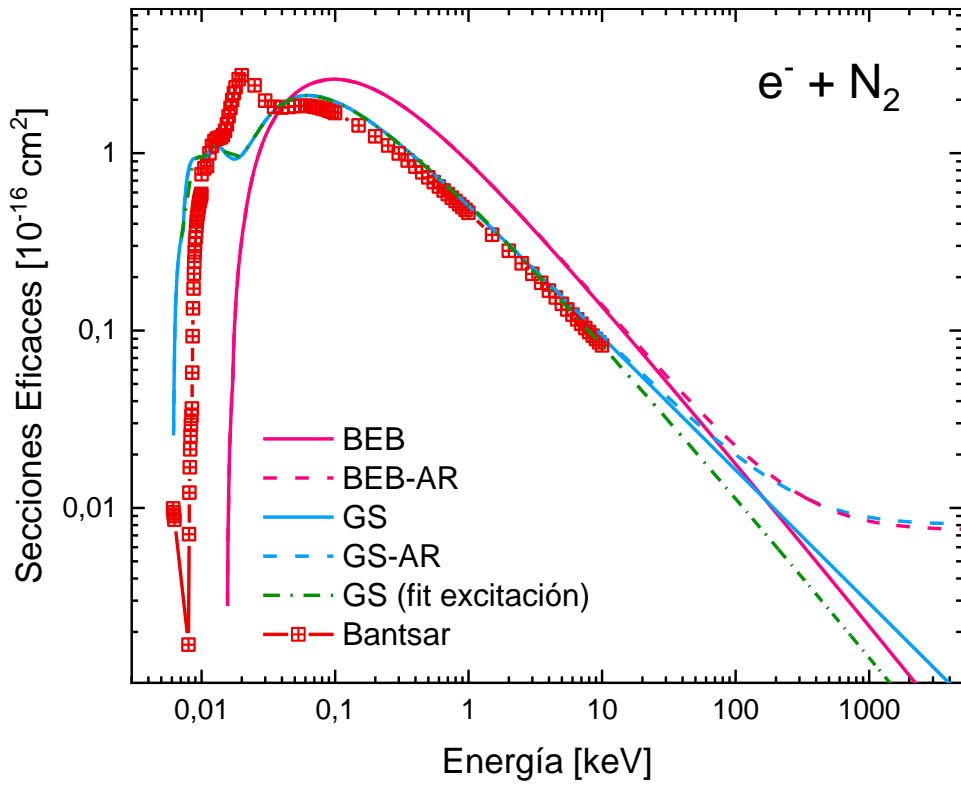


Figura 2.14: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en nitrógeno.

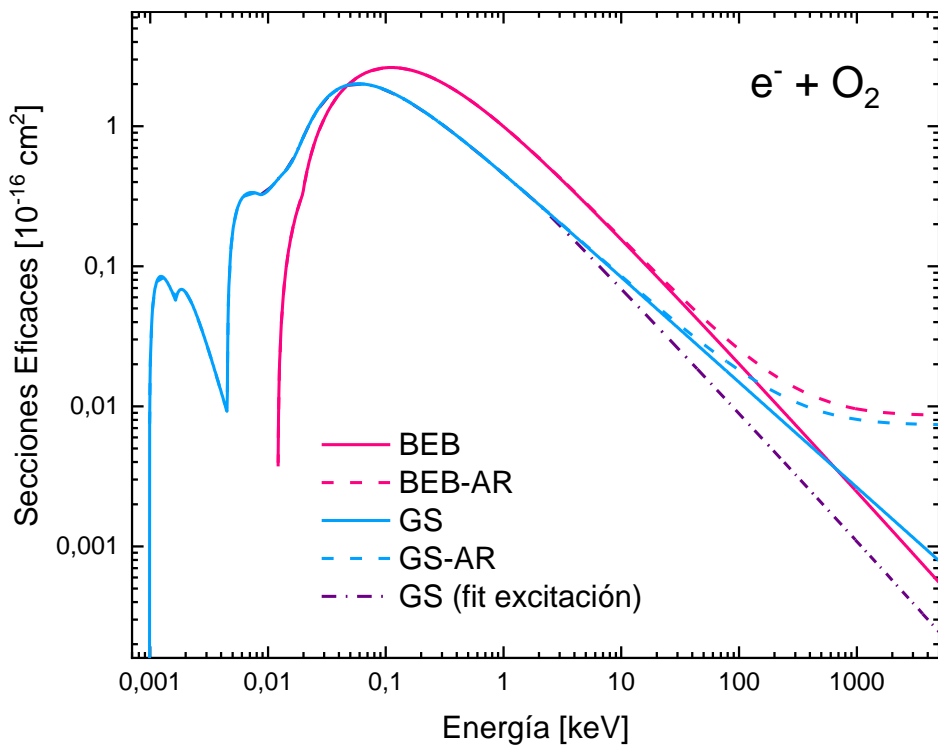


Figura 2.15: Secciones eficaces inelásticas para impacto de electrones en oxígeno.

## CONCLUSIONES

En el presente capítulo se calcularon las secciones eficaces de ionización y excitación electrónica y vibracional por impacto de electrones. Estas formulaciones son muy utilizadas en códigos computacionales de dosimetría, micro y nano-dosimetría debido a su fácil implementación. Para el proceso de ionización se utilizó el modelo desarrollado por Kim y Rudd, conocido como Binary-Encounter-Bethe model (BEB) (Kim, Rudd (1994)), al ser un modelo muy simple. Se estudió la extensión de este modelo a energías relativistas, el RBEB model ((Kim et al. (2000)), y también una aproximación relativista de la energía cinética del proyectil propuesta por Plante, Cucinotta (2008). Se observó muy buen acuerdo entre el modelo teórico relativista y la aproximación. Las secciones eficaces de excitación electrónica se obtuvieron de la expresión semi-empírica de Green y Stolarsky para todos los medios y se comparó con otros modelos teóricos, el de Cobut y Paretzke para agua líquida y vapor respectivamente. Para el caso de nitrógeno y oxígeno se observó que las pendientes de las curvas de estas secciones eficaces de excitación cruzan las curvas de ionización a altas energías. Siendo que este comportamiento tiene un fuerte impacto en el cálculo de los parámetros físicos, se realizaron aproximaciones con el fin de obtener curvas de excitación paralelas a las de ionización en estos dos medios. Al analizar la contribución de cada proceso físico se observó que la ionización es dominante frente a la excitación (electrónica y vibracional), en casi todo el rango de energías estudiadas. En general hay un muy buen acuerdo entre los valores calculados y experimentales para secciones eficaces totales de ionización en el rango de energías intermedias y altas. Las curvas con la aproximación relativista en la energía cinética del proyectil se separan de los no relativistas a partir de los 20 keV como se esperaba.

Se consideró además el proceso de ionización múltiple post-colisión de emisión Auger, que da lugar a la emisión de al menos un electrón de energía considerable con la capacidad de ionizar y excitar a las moléculas del medio hasta su energía de sub-excitación. Esta consideración se implementó en los métodos de cálculos utilizados en el último capítulo para calcular los parámetros físicos de gran relevancia en física médica y dosimetría: poderes de frenado y valores  $W$ .

## CAPÍTULO 3 Modelos teóricos para el estudio de la interacción de iones con la materia

Cuando un ion rápido colisiona con un átomo o molécula pueden ocurrir diversos procesos inelásticos. Los más relevantes son los procesos de ionización (simple y múltiple), excitación electrónica del blanco y captura electrónica. Entre ellos el proceso de ionización es el más probable para velocidades de impacto del proyectil mayores a las del electrón orbital. Por lo tanto, su estudio como mecanismo de deposición de energía es muy importante para la Hadronterapia y se abordará en esta sección. Además, se estudiará el proceso de excitación electrónica. El proceso de captura electrónica resulta relevante a energías intermedias y bajas. Sin embargo, teniendo en cuenta que en el marco de esta Tesis se estudiarán parámetros físicos a energías superiores al MeV, no se tendrá en cuenta este proceso u otro que implique el intercambio de carga entre el proyectil y el blanco.

### 3.1 Secciones eficaces de ionización (SEI)

El proceso de colisión entre el proyectil ion y el blanco es un problema muy complejo ya que involucra muchos cuerpos. Para poder abordar esta interacción existen diversos métodos teóricos con diferentes aproximaciones y también modelos semiempíricos más sencillos que utilizan datos experimentales para ajustar los parámetros involucrados en las formulaciones. En esta sección presentaremos dos modelos teóricos para el cálculo de secciones eficaces simple diferenciales de ionización, el modelo semiempírico de Rudd y el método cuántico Continuum Distorted Wave - Eikonal Initial State (CDW-EIS). Para comprender las aproximaciones realizadas en estos modelos se realiza una breve introducción teórica.

Siguiendo el trabajo de Stolterfohd, DuBois y Rivarola (Stolterfoht et al. (1997)), los mecanismos de producción de electrones se pueden discutir en términos de “centros Coulombianos”, los cuales están asociados a los núcleos pesados de los interactuantes en la colisión, esto es el proyectil y el blanco. La formación de un centro implica una fuerte interacción del núcleo con el electrón activo, por lo cual requiere una descripción más allá de la teoría de perturbaciones de primer orden.

Formalmente, los centros se pueden definir en términos del “estado final de la interacción”, esto es entre los participantes de la colisión (blanco u objetivo y proyectil) y el electrón activo. De esta forma se define el *centro-blanco*, cuando se considera la interacción electrón-blanco en el estado final. Un ejemplo de este es la Primera Aproximación de Born (PAB), donde las funciones de onda del electrón activo se describen mediante un estado ligado al blanco en el canal inicial y en una función del continuo del blanco luego de la colisión. La inclusión de la interacción electrón-proyectil de orden superior en el estado final corresponde al caso del *centro-proyectil*. La teoría clásica de Encuentro Binario trata a la interacción de esta forma.

De acuerdo al modo en el que se consideren las interacciones en la descripción teórica de la colisión, los centros se pueden clasificar en cero, uno y dos. En la figura 3.1 se representa esquemáticamente este concepto, donde un electrón es removido del átomo por una interacción perturbativa con el ion proyectil. Los casos corresponden a una colisión binaria sin centro, emisión de electrones que involucra un centro de un solo objetivo y emisión de electrones que involucra dos centros, respectivamente.

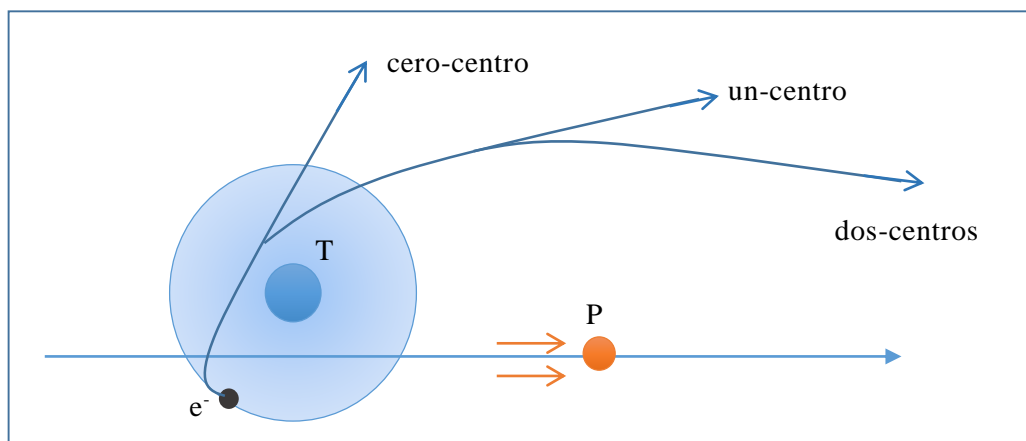


Figura 3.1: Mecanismos de emisión de electrones de acuerdo al esquema de centros coulombianos. En el caso de *cero-centro*, el electrón inicialmente ligado, es emitido sin ser afectado por los campos coulombianos del proyectil o por el blanco residual. En la emisión de electrones de *un-centro* el electrón es desviado en el campo del centro-blanco. Y en la emisión de *dos-centros*, el electrón es desviado por los centros blanco (T) y proyectil (P).

El concepto de centro en términos de interacciones del estado final es conveniente para los tratamientos de mecánica cuántica. La aproximación de Born de electrón libre es una teoría de cero-centro, ya que describe al electrón en su estado final con una simple onda plana sin interacción del blanco ni del proyectil. En una colisión de tres cuerpos la aproximación de Born describe muy bien la interacción con dos-centros para un proyectil desnudo. Por el contrario, para proyectiles vestidos esta aproximación no es suficiente, por lo cual es necesario aplicar una teoría que involucre un centro de proyectiles, como la teoría del encuentro binario. El método cuántico CDW-EIS que usaremos en esta sección, trata al problema de emisión de electrones como de dos-centros (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997); Galassi et al. (2000)).

### 3.1.1 Modelos teóricos

En el marco de esta Tesis se aplicaron dos modelos teóricos para describir las secciones eficaces de ionización de blancos moleculares: la expresión semiempírica desarrollada por Rudd et al. (1992) para impacto de protones en blancos moleculares (Modelo de Rudd) y el modelo mecánico cuántico de onda distorsionada CDW-EIS (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997)). A continuación, se describen las generalidades de ambos modelos.

### Modelo de Rudd

Este modelo es ampliamente utilizado en diversos códigos de transporte, entre ellos el GEANT4 (código más completo y mundialmente utilizado de simulación de interacciones de partículas elementales con la materia) (<http://geant4-dna.org/>, Incerti et al. (2018)). Se basa en la Primera Aproximación de Born (PBA), y ofrece una expresión analítica de las SEI\_SD, en una amplia gama de energías primarias y secundarias. La ecuación 3.1 muestra esta expresión analítica en función de la energía cinética del electrón eyectado  $E$ ,

$$\frac{d\sigma_{Rudd}^k(T, E)}{dE} = \frac{S (F_1 + F_2 e)}{I_k (1 + e)^3} \left( \frac{1}{1 + \exp[\alpha(e - w_c)/v]} \right) \quad (3.1)$$

siendo  $I_k$  la energía de ligadura del electrón en la capa  $k$  con ocupación  $N_k$ ,  $e=E/I_k$  la energía cinética escalada,  $w_c = 4v^2 - 2v - R/4I_k$  la energía de cutoff escalada, con  $v=(T/I_k)^{1/2}$  la velocidad escalada del ion proyectil y  $T$  la energía cinética de un electrón con la misma velocidad que el ion proyectil; la relación entre ambas es de la forma:

$$v_e = v_{ion} \rightarrow T = \frac{m_{0e}}{m_{0ion}} T_{ion} \quad (3.2)$$

donde  $T_{ion}$  es la energía cinética del ion proyectil,  $m_{0ion}$  y  $m_{0e}$  las masas en reposo del ion y electrón respectivamente. Las energías de enlace y los números de ocupación se muestran en la Tabla 3.1.

Las magnitudes  $F_1(v)$ ,  $F_2(v)$  y  $\alpha$  son parámetros de ajuste; los dos primeros están asociados a la velocidad escalada  $v$  de la partícula primaria mediante las siguientes expresiones (3.3) y sus valores se encuentran en el Tabla 3.2 para los distintos medios en estudio.

$$\begin{aligned} F_1 &= L_1 + H_1 \\ F_2 &= L_2 H_2 / (L_2 + H_2) \\ H_1 &= A_1 \ln(1 + v^2) / (v^2 + B_1/v^2) \\ L_1 &= C_1 v^{D1} / [1 + E_1 v^{(D1+4)}] \\ H_2 &= A_2/v^2 + B_2/v^4 \\ L_2 &= C_2 v^{D2} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Como se puede observar en esta Tabla 3.2 un conjunto de parámetros diferentes, pero comunes a todos los gases, es utilizado para el caso de orbitales internos, es decir, aquellos cuya energía de ligadura es mucho mayor a la del orbital de valencia.

Tabla 3.1: Configuración electrónica del estado fundamental de las moléculas: orbitales moleculares, energía de enlace  $I_k$  en eV y número de ocupación  $N_k$ . Los parámetros de los blancos de H<sub>2</sub>O vapor, N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> son tomados del trabajo de Rudd et al. (1992). Los valores para H<sub>2</sub>O líquida son tomados del trabajo de Dingfelder et al. (2000). Entre paréntesis, en la primera columna se indica el número cuántico principal asociado al orbital molecular.

Molécula	Orbital Molecular	$I_k$		$N_k$
		Líquido	Vapor	
H <sub>2</sub> O	1a <sub>1</sub> (1)	539.0	539.7*	2
	2a <sub>1</sub> (2)	32.30	32.2*	2
	1b <sub>2</sub> (2)	16.05	18.55*	2
	3a <sub>1</sub> (2)	13.39	14.73*	2
	1b <sub>1</sub> (2)	10.79	12.61*	2
N <sub>2</sub>	1σ <sub>g</sub> (1)	409.9		2
	1σ <sub>u</sub> (1)	409.9		2
	2σ <sub>g</sub> (2)	37.3		2
	2σ <sub>u</sub> (2)	18.78		2
	1π <sub>u</sub> (2)	16.96		4
	3σ <sub>g</sub> (2)	15.59		2
O <sub>2</sub>	1σ <sub>g</sub> (1)	543.5		2
	1σ <sub>u</sub> (1)	543.5		2
	2σ <sub>g</sub> (2)	40.3		2
	2σ <sub>u</sub> (2)	25.69		2
	1π <sub>u</sub> (2)	18.88		4
	3σ <sub>g</sub> (2)	16.42		2
	1π <sub>g</sub> (2)	12.07*		2

Tabla 3.2: Parámetros de ajuste de las SESDI del modelo de Rudd. Los valores tabulados para los blancos H<sub>2</sub>O vapor, N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> se obtienen del trabajo de Rudd et al. (1992) excepto los de H<sub>2</sub>O líquida se obtiene del ajuste realizado por Dingfelder et al. (2000).

Parámetros	H <sub>2</sub> O líquido	H <sub>2</sub> O vapor	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	Orbitales internos
A <sub>1</sub>	1.02	0.97	1.05	1.02	1.25
B <sub>1</sub>	82	82	12.0	50	0.5
C <sub>1</sub>	0.45	0.4	0.74	0.40	1.0
D <sub>1</sub>	-0.8	-0.30	-0.39	0.12	1.0
E <sub>1</sub>	0.38	0.38	0.80	0.30	3.0
A <sub>2</sub>	1.07	1.04	0.95	1.0	1.1
B <sub>2</sub>	14.6	17.3	1.20	5.0	1.3
C <sub>2</sub>	0.6	0.76	1.0	0.55	1.0
D <sub>2</sub>	0.04	0.04	1.30	0	0
α	0.064	0.64	0.70	0.59	0.66

Las secciones eficaces de ionización totales (SEIT) se calculan integrando en función de la energía cinética del electrón emitido, esto es, la expresión dada en la ecuación (3.1) para cada orbital molecular y sumando sus contribuciones. La energía máxima que puede adquirir el electrón emitido se calcula aplicando un razonamiento clásico. En las determinaciones experimentales de secciones eficaces de ionización doble diferenciales (sección eficaz en función de la energía y ángulo sólido del electrón emitido), se observa que la distribución angular de los electrones emitidos exhibe un prominente pico, en un determinado ángulo, llamado *pico binario*. Una forma de predecir este ángulo  $\theta_b$ , es considerando la interacción entre el proyectil-blanco como una colisión clásica, donde el electrón orbital del blanco se encuentra inicialmente en reposo (válida para velocidades del proyectil superiores a la del electrón orbital). Considerando la conservación de energía y momento se llega a una relación entre la energía cinética del protón incidente, del electrón emitido y su ángulo de dispersión de la siguiente forma:

$$E = 4 \frac{m_{0e}}{m_{0p}} T_p \cos^2 \theta_b \quad (3.4)$$

pudiendo así despejar la posición angular del pico. Reemplazando en esta la relación anterior de las energías, ecuación (3.2), obtenemos una nueva expresión en función de  $T$

$$E = 4T \cos^2 \theta_b \quad (3.5)$$

De aquí, es fácil ver que la máxima energía cinética del electrón emitido será a ángulo cero, es decir saldrá hacia adelante con  $E_{max}=4T$ . Este límite es independiente de la masa de la partícula incidente y se aplica a todos los proyectiles pesados (iones). En términos de velocidades vemos entonces que la velocidad máxima del electrón emitido será 2 veces la del protón incidente,  $v_{e,max} = 2v_p$ . En realidad, un electrón emitido puede exceder este límite, ya que el núcleo del ion, luego de la colisión, puede retroceder impartiendo un momento adicional y por lo tanto una energía cinética mayor al electrón eyectado.

#### *Aproximación CDW-EIS*

Se utiliza además la aproximación CDW-EIS para determinar las SEI, la cual incluye aproximaciones relativistas. Este modelo de onda distorsionada involucra simultáneamente la acción de dos-centros Coulombianos, el del electrón con el proyectil y el del electrón con el blanco (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997)), a diferencia de la PAB de un-centro. Las interacciones de Coulomb de dos partículas están contenidas explícitamente en las funciones de onda del estado inicial y final. El estado inicial del electrón activo se describe como un estado ligado al blanco. Además, considera la presencia del campo Coulombiano del proyectil introduciendo fase eikonal (Eikonal Initial State en inglés), la cual dio lugar al nombre final CDW-EIS (Fainstein 1989, Crothers and McCan 1993), ver ecuación (3.6). El estado final se representa como un producto de estados continuos asociados con las interacciones electrón activo-blanco residual y electrón activo-proyectil (aproximación de dos centros), ver ecuación (3.7).

Las funciones de onda de los estados iniciales y finales son de la forma,

$$\chi_i^{+EIS} = \phi_i(\bar{x}) \exp(-i\varepsilon_i t) \exp[-iv \ln(vs + \bar{v} \cdot \bar{s})] \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} \chi_f^{+CDW} &= (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp[i(\bar{k} \cdot \bar{x} - E_k t)] \\ &\times N^*(\xi) {}_1F_1(-i\xi; 1; -ikx - i\bar{k} \cdot \bar{x}) \\ &\times N^*(\zeta) {}_1F_1(-i\zeta; 1; -ipx - i\bar{p} \cdot \bar{x}) \end{aligned} \quad (3.7)$$

donde  $\bar{x}$  y  $\bar{s}$  son los vectores posición del electrón activo relativo al blanco y al proyectil respectivamente,  $\phi_i(\bar{x})$  es el estado inicial ligado del electrón activo,  $\varepsilon_i$  es la energía del orbital correspondiente, y  $\bar{v}$  es la velocidad de colisión. En la ecuación (3.7)  $\bar{k}$  y  $\bar{p}$  son los momentos del electrón eyectado en el proceso de ionización, relativos al núcleo blanco y al proyectil, respectivamente,  $E_k = k^2/2$  es la energía del electrón,  $\zeta = Z_P/p$  y  $\xi = Z_T^*/k$  y  $Z_T^* = \sqrt{-2n\varepsilon_i}$  la carga efectiva del blanco en el estado final, con  $n$  el número cuántico principal correspondiente a cada suborbital atómico.

Este modelo mecano-cuántico de dos-centros describe muy bien el proceso de ionización, no sólo a altas energías de impacto donde incluye una aproximación relativista, sino también a energías intermedias (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997)). Se pueden obtener secciones eficaces simples y doble diferenciales de ionización en función de la energía y ángulo del electrón emitido para blancos multielectrónicos y haces de iones desnudos.

Las SE de los blancos moleculares pueden obtenerse realizando diversas aproximaciones. Una muy utilizada es la *Regla de aditividad de Bragg*, que consiste en calcular la SE molecular como suma de las SE correspondiente a cada átomo que la constituye. Esta simple aproximación permite buenos resultados para el cálculo de SEIT para altas energías de impacto (Galassi et al. (2000)). Sin embargo, esta aproximación no permite incorporar el concepto de orbitales moleculares, ni tener en cuenta la energía de ligadura de los electrones en cada uno de ellos. Una aproximación más apropiada, que permite obtener muy buen acuerdo con datos experimentales en casi todo el rango de energías incidentes es el método Complete Neglect of Differential Overlap (CNDO). En la aproximación CNDO, las secciones eficaces de ionización correspondientes a cada orbital molecular se calculan mediante una combinación lineal de secciones eficaces atómicas, cuyos coeficientes se obtienen de un análisis espectral. En este caso nos referiremos a este modelo como CDW-EIS-MO (Galassi et al. (2000)).

El método CNDO se utiliza para obtener las poblaciones electrónicas para los blancos de agua líquida y vapor, presentadas en la Tabla 3.3, y tomando las energías de enlace de la Tabla 3.1. El análisis poblacional para cada orbital fue realizado por Senger (1988) y aplicado para calcular la SEI directa simple y múltiple para agua líquida (Gervais et al. (2005); (2006)) y vapor (Rivarola et al. (2013)). Para nitrógeno y oxígeno se toman las energías de enlace y las poblaciones electrónicas presentadas en la Tabla 3.1.

Tabla 3.3: Población de orbitales moleculares para las fases líquida y vapor. Entre paréntesis, en la primera columna se indica el número cuántico principal asociado al orbital molecular

Orbital Molecular	Población Electrónica
1a <sub>1</sub> (1)	2.00 (O1s)
2a <sub>1</sub> (2)	1.48 (O2s)+0.52 (H1s)
1b <sub>2</sub> (2)	1.18 (O2p) +0.82 (H1s)
3a <sub>1</sub> (2)	0.22 (O2s) +1.44 (O2p)+ 0.34 (H1s)
1b <sub>1</sub> (2)	2.00 (O2p)

### 3.1.1.1 Aproximación relativista

Tal como se presentó en el capítulo anterior, la aproximación relativista aplicada al modelo BEB para impacto de electrones da muy buenos resultados, por lo que se utilizará también en el caso de impacto de iones. Siendo el proyectil un protón, se puede reescribir la expresión 2.7 del capítulo 2 en función de su energía cinética  $T_p$ , obteniendo:

$$v_e = v_p \rightarrow T^{AR} = \frac{m_{0e}v_p^2}{2} = \frac{1}{2}m_{0e}c^2 \left[ 1 - \frac{1}{\left(1 + \frac{T_p}{m_{0p}c^2}\right)^2} \right] \quad (3.8)$$

donde  $m_{0p}c^2 = 938,26$  MeV y  $m_{0e}c^2 = 0.511$  MeV. De esta forma, la sección eficaz diferencial de ionización y la total calculadas con estas correcciones relativistas se referenciarán de ahora en más como Rudd-AR para el modelo de Rudd, mientras que las mismas se incluyen en todos los resultados del modelo CDW-EIS que se presentarán en este y en los próximos capítulos.

En la Figura 3.2 se muestra la energía cinética para el régimen clásico y relativista en función de la velocidad del ion normalizada con la velocidad de luz en vacío. Se puede observar la separación entre las curvas a partir de una energía de 50 MeV/u.

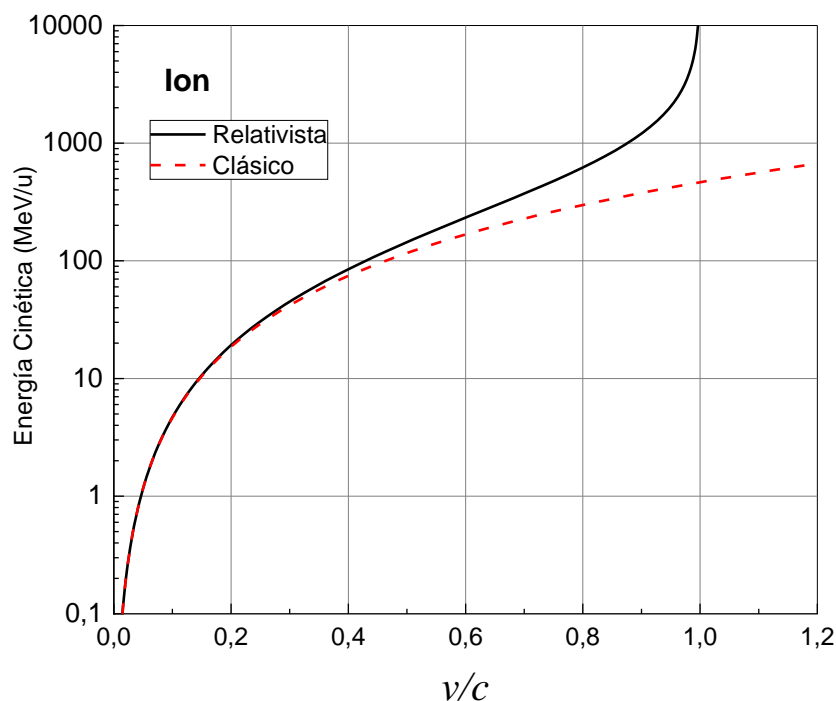


Figura 3.2: Energía cinética para el régimen clásico y relativista en función de la velocidad del electrón normalizada con la velocidad de la luz en el vacío  $c$ .

### 3.1.2 Resultados

En la Figura 3.3 se muestran las SEI\_SD para agua vapor en función de la energía del electrón emitido  $E$  calculadas con Rudd, para tres energías de impacto del protón 15, 50 y 100 keV. Se comparan con datos experimentales provistos por Bolorizadeh, Rudd (1986). En casi todo el rango de energías presentan un buen acuerdo con los valores medidos.

En la Figura 3.4 se muestran las SEI\_SD calculadas con Rudd y Rudd-AR en función de la energía cinética del electrón eyectado en agua líquida para dos energías de impacto del protón de 100 MeV y 400 MeV. Al comparar las curvas se puede apreciar que la probabilidad de generar electrones más rápidos es mayor al considerar las velocidades relativistas. Por otro lado, encontramos que, para energías de alto impacto del proyectil, la probabilidad de generar un electrón con energía cinética superior a 10 keV es menor al 0.1, y la energía media de los electrones emitidos es  $\sim 45$  eV. En este rango de energías, la corrección de velocidades relativistas en las secciones eficaces utilizadas para describir la traza de los electrones primarios (emitidos luego de la colisión del ion con el blanco) comienza a ser relevante. Sin embargo, al ser tan baja la probabilidad de generar estos electrones delta, no se considerará la aproximación relativista en las SE por impacto de electrones para el cálculo de parámetros físicos por impacto de iones (ver capítulo 5).

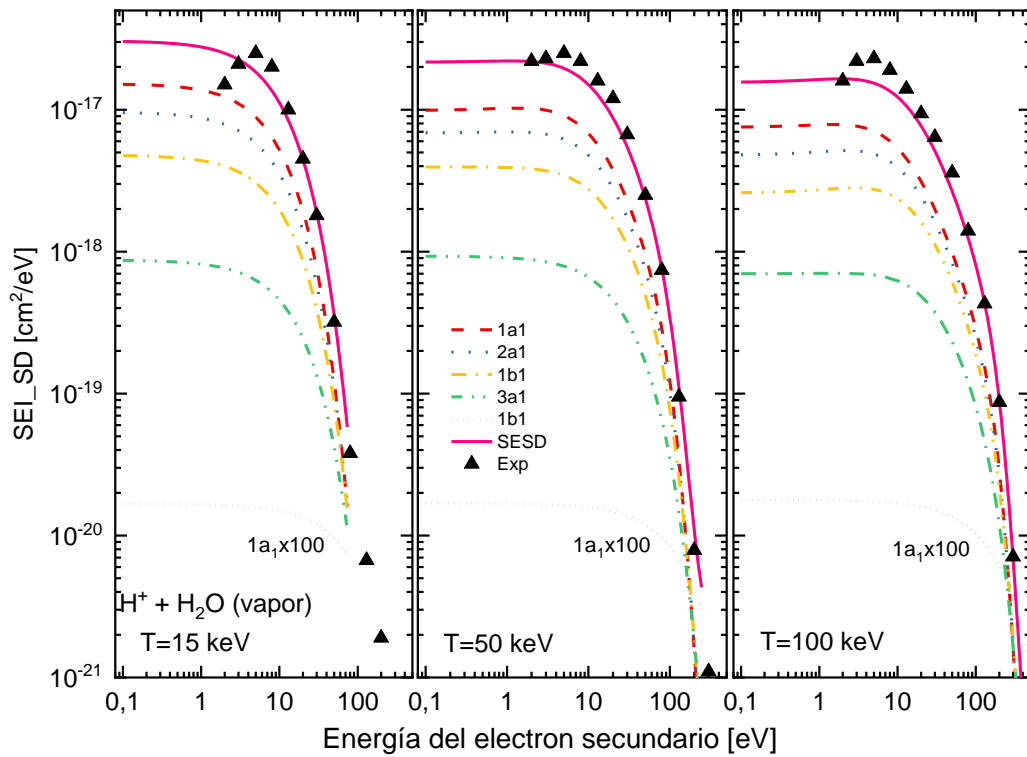


Figura 3.3: SEI\_SD en función de la energía del electrón emitido por impacto de protones sobre H<sub>2</sub>O vapor calculadas mediante el modelo de Rudd. Estas se comparan con datos experimentales de Bolorizadeh, Rudd (1986).

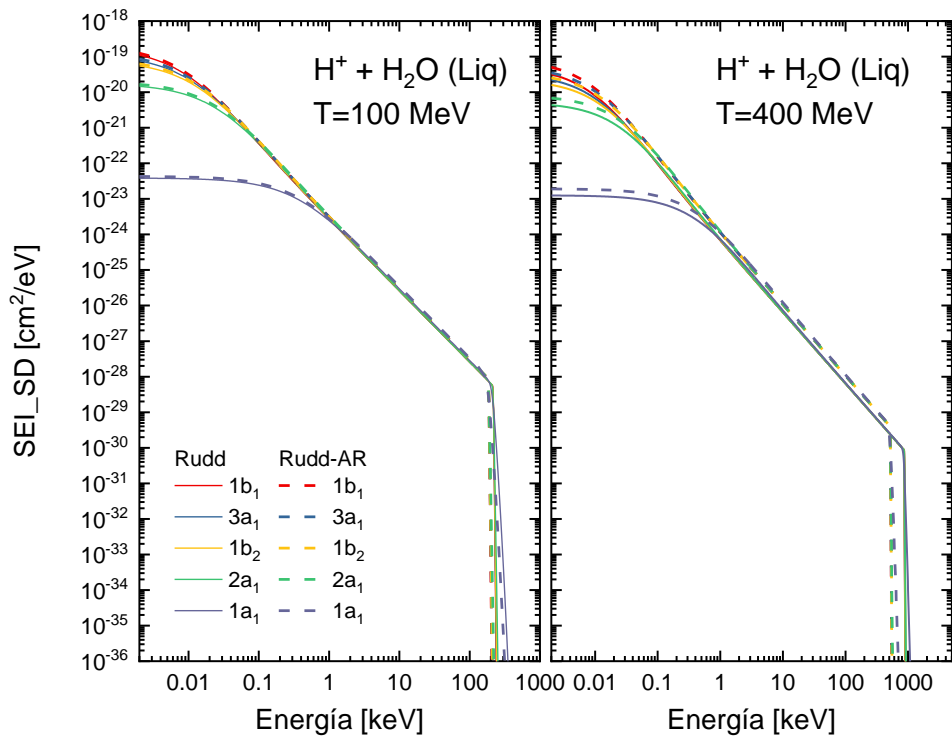


Figura 3.4: SEI\_SD en función de la energía del electrón emitido por impacto de protones sobre H<sub>2</sub>O líquida calculadas con el modelo de Rudd y Rudd-AR.

En la Figura 3.5 se muestran SEIT obtenidas aplicando los modelos de Rudd, Rudd-AR y CDW-EIS para agua vapor (a la izquierda) y agua líquida (a la derecha). Se comparan con datos experimentales de Rudd, Goffe, et al. (1985a) en agua vapor. Se puede observar una diferencia apreciable en el rango de bajas energías entre los modelos, ya que el modelo CDW-EIS no es adecuado para describir las SEIT en ese rango. El buen acuerdo entre el modelo semiempírico propuesto por Rudd y los datos medidos para energías menores a 100 keV se debe a que los parámetros de ajuste han sido elegidos de modo tal que las SEIT presenten este comportamiento.

La Primera Aproximación de Born predice que, tanto las secciones eficaces de ionización como de excitación, son proporcionales al cuadrado de la carga del proyectil  $Zp^2$ . En la región de altas energías esta aproximación es válida y no depende de la masa del proyectil, sólo la velocidad de la partícula incidente es relevante. Sin embargo, en el rango de energías intermedias a bajas, debe considerarse la dependencia de las SE con de la masa y signo de la partícula incidente. La aproximación CDW-EIS permite un mejor acuerdo con datos experimentales para iones de carga mayor a 1 que el modelo de Rudd. En lo que sigue se presentará el caso del ion de carbono  $C^{6+}$ , ya que es uno de los iones livianos más implementados en hadronterapia.

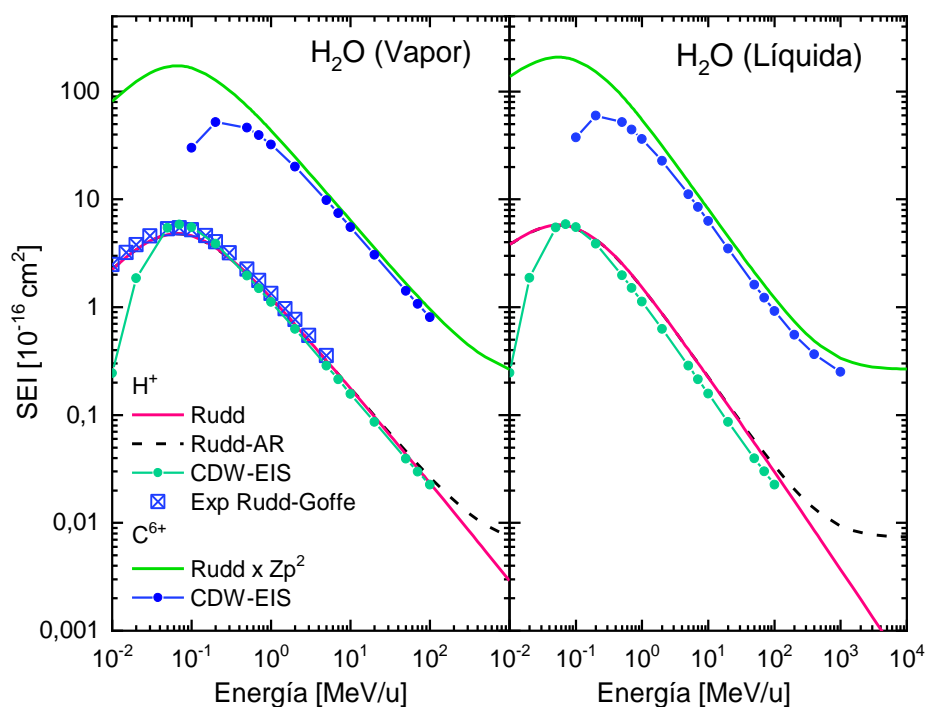


Figura 3.5: Secciones eficaces de ionización total por impacto de protones e iones de carbono en vapor y agua líquida. Se muestran valores calculados con el modelo de Rudd, Rudd-AR y CDW-EIS. Se compara para agua vapor con datos experimentales Rudd, Goffe, et al. (1985a).

En la Figura 3.6 se muestran valores calculados con el modelo de Rudd, Rudd-AR y CDW-EIS para nitrógeno (a la izquierda) y oxígeno (a la derecha). Se comparan con datos experimentales de Rudd, Kim, et al. (1985) y Knudsen et al. (1995). Los primeros

tienen un buen acuerdo en todo el rango de energía en ambos proyectiles. Los valores medidos por Knudsen difieren de los calculados a bajas energías. Se observa además una diferencia entre el modelo de Rudd y la aproximación CDW-EIS como se comentó anteriormente para agua.

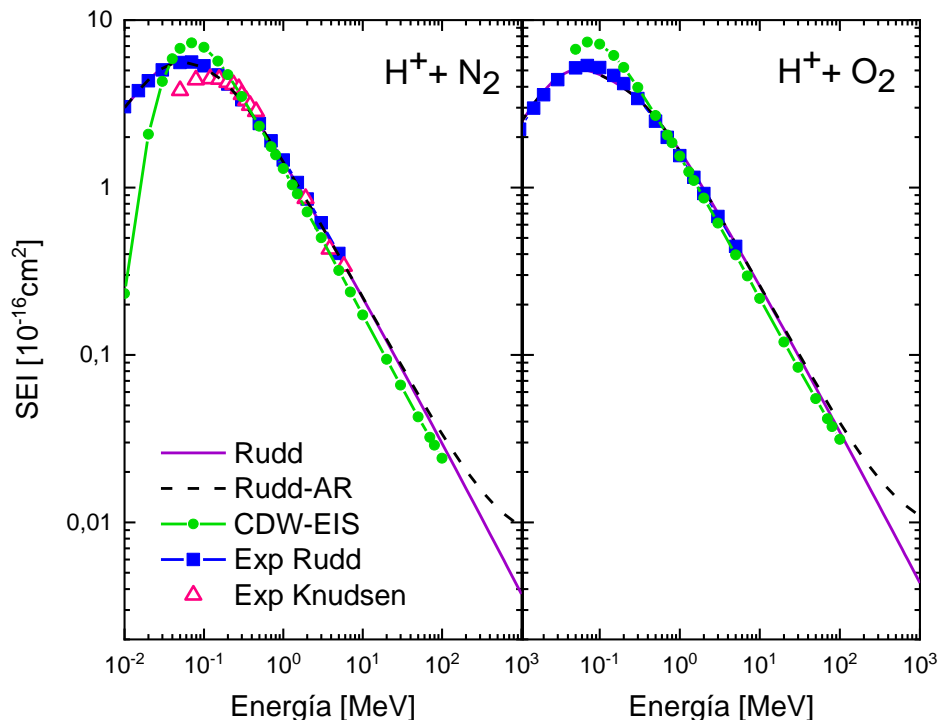


Figura 3.6: Secciones eficaces de ionización total por impacto de protones para  $N_2$  y  $O_2$  calculadas con el modelo de Rudd y Rudd-AR. Además, se comparan con datos experimentales de Rudd, Kim, et al. (1985) y Knudsen et al. (1995).

### 3.2 Secciones eficaces de excitación electrónica (SEE<sub>e</sub>)

Hasta la fecha no existen experimentos que puedan proveer secciones eficaces de excitación por impacto de iones. Por lo cual, éstas se determinan escalando las secciones eficaces de excitación por impacto de electrones. Este método es plausible en el rango de altas energías  $> 500$  keV/u donde las SE por impacto de electrones y protones a igual velocidades coinciden como lo indica la PAB, esto es:

$$\sigma_{exc}^{proton}(T_p) = \sigma_{exc}^{electron}(T)$$

donde la energía cinética del protón y la del electrón están relacionadas de la forma  $T = m_{0e}/m_{0p}T_p$ .

Para cubrir el rango de bajas energías se deben hacer correcciones a estas expresiones o tomar otros parámetros de ajuste. El modelo semiempírico de Miller, Green (1973), utilizado en agua líquida y vapor, tiene en cuenta esta discrepancia a bajas energías y obtiene los parámetros de ajuste mediante un procedimiento complejo de escala

desarrollado por Green, McNeal (1971). Siendo que este trabajo estudia el rango de energías intermedias y altas, mayores a 500 keV, no es necesario realizar estas correcciones a las SEE\_e.

### 3.2.1 Resultados

En la Figura 3.7 y Figura 3.8 se muestran las SEE\_e por impacto de protones en agua líquida y vapor, nitrógeno y oxígeno molecular, respectivamente. Las curvas para agua son las mismas que por impacto de electrones escaladas a energías de protones, esto es, el modelo de Green y Stolarsky: GS y GS-AR y el modelo de Gervais: Gerv y Gerv-AR en agua líquida y el de Nikjoo en vapor. En el caso de nitrógeno y oxígeno, Figura 3.8, solo se consideraron aquellos estados de excitación que no provienen del intercambio de cargas, por lo cual solo se muestran cuatro estados de excitación. Las curvas llenas muestran además los mismos estados de excitación ajustadas de forma tal que tengan la misma pendiente de las SEI total calculadas con el modelo de Rudd.

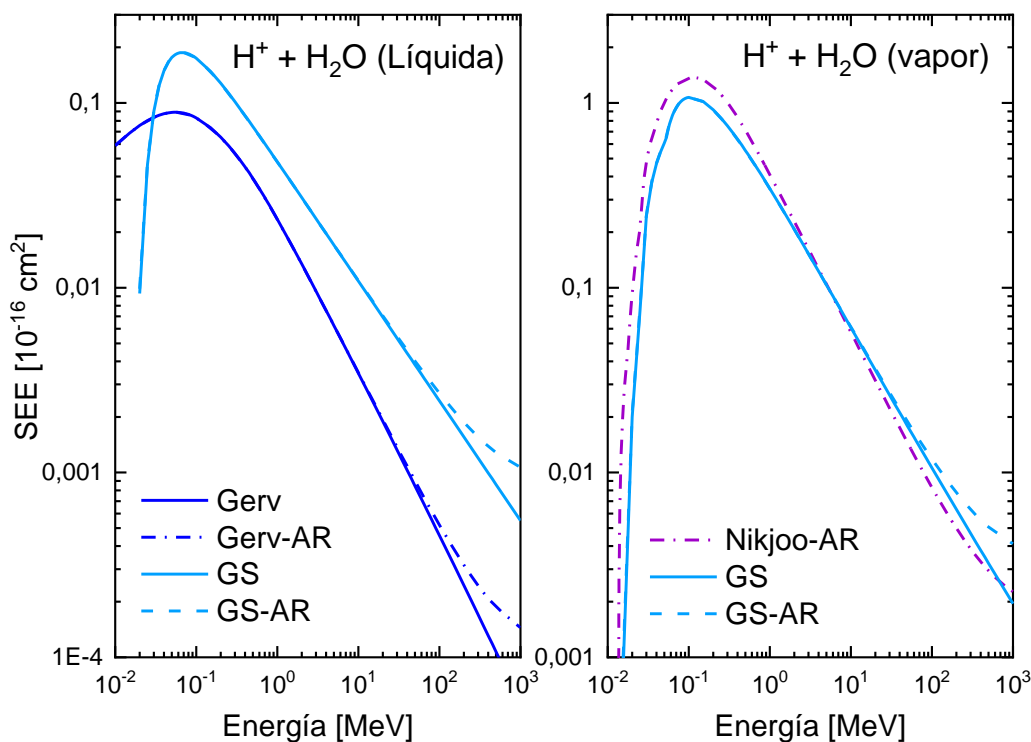


Figura 3.7: Secciones eficaces de excitación electrónica para agua líquida (figura izquierda) y vapor (figura derecha) calculadas escalando las SEE\_e por impacto de electrones

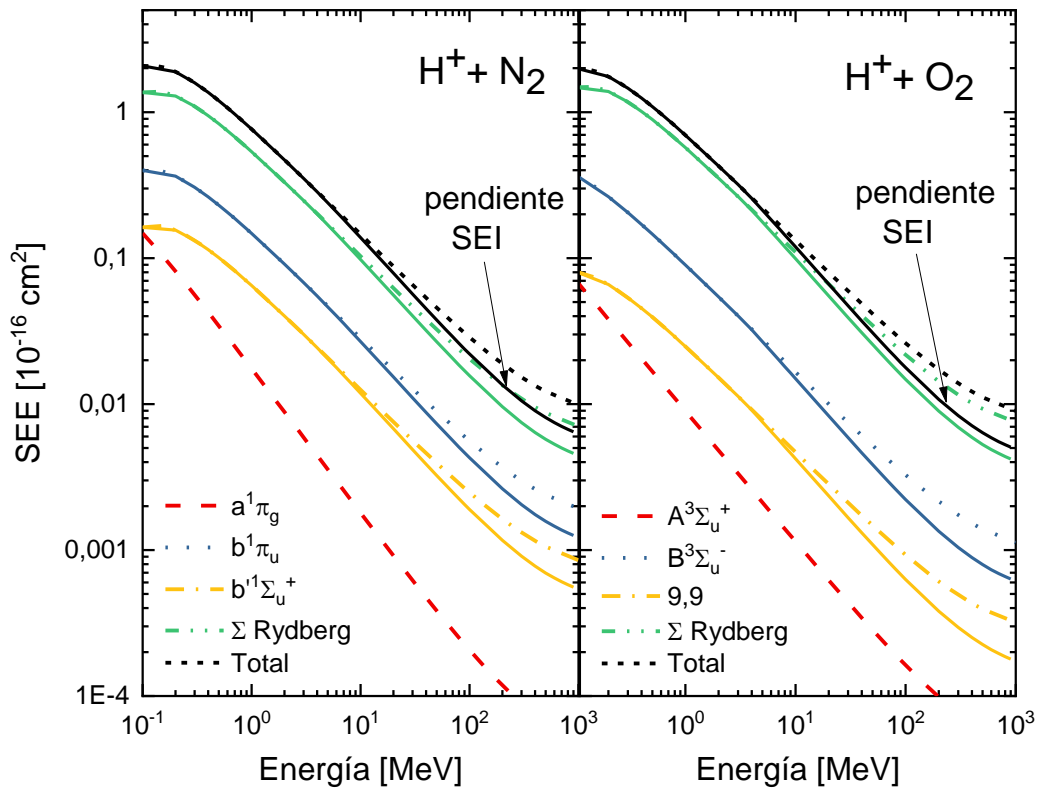


Figura 3.8: Secciones eficaces de excitación electrónica para nitrógeno (figura izquierda) y oxígeno (figura derecha) calculadas escalando las SEE\_e por impacto de electrones con el modelo de GS. Las líneas llenas son calculadas con la pendiente de las SEI.

### 3.3 Análisis Secciones Eficaces Totales

En las figuras Figura 3.9, Figura 3.10, Figura 3.11 y Figura 3.12, se comparan las SE totales de ionización y excitación calculadas con los modelos presentados por impacto de electrones y protones para los medios estudiados: agua líquida, agua vapor, nitrógeno y oxígeno, respectivamente. Se muestran las curvas de los modelos utilizados con la aproximación relativista (AR). El modelo CDW-EIS incluye la aproximación relativista en la energía del proyectil. Solamente el modelo de BEB\_Gerv para la SEI no ha considerado esta aproximación. En general, se puede observar un buen acuerdo entre las curvas de ionización por impacto de electrones y protones.

Estas secciones eficaces presentadas se utilizarán luego para el cálculo de los parámetros físicos: los poderes de frenado y valores W.

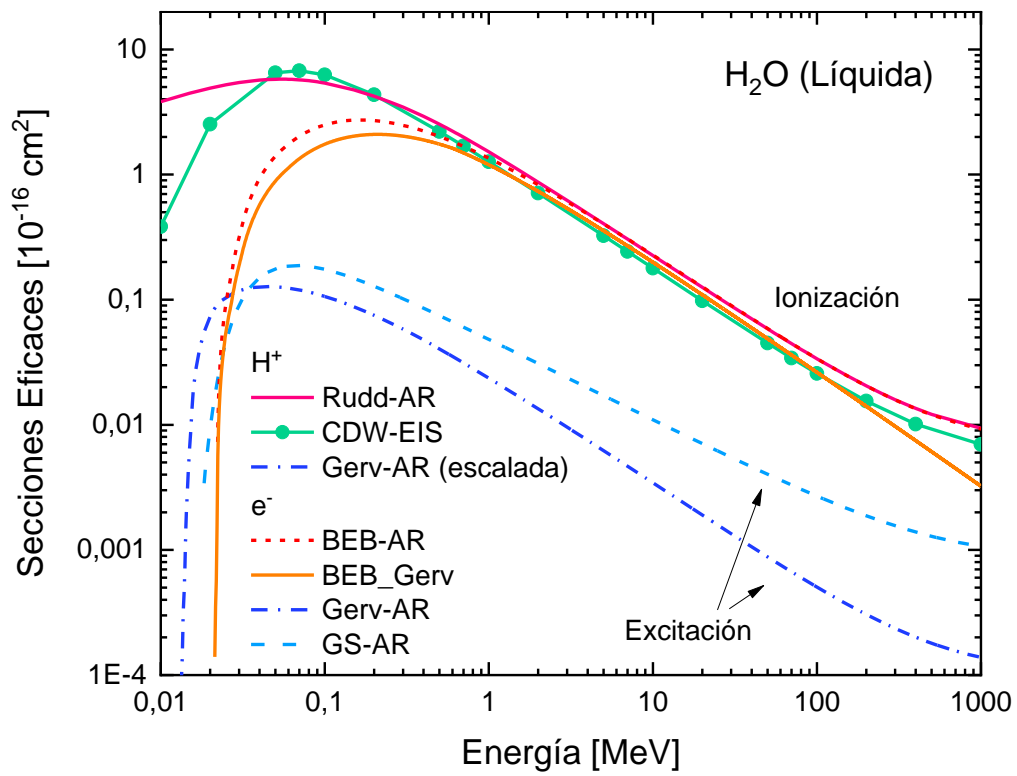


Figura 3.9: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en agua líquida.

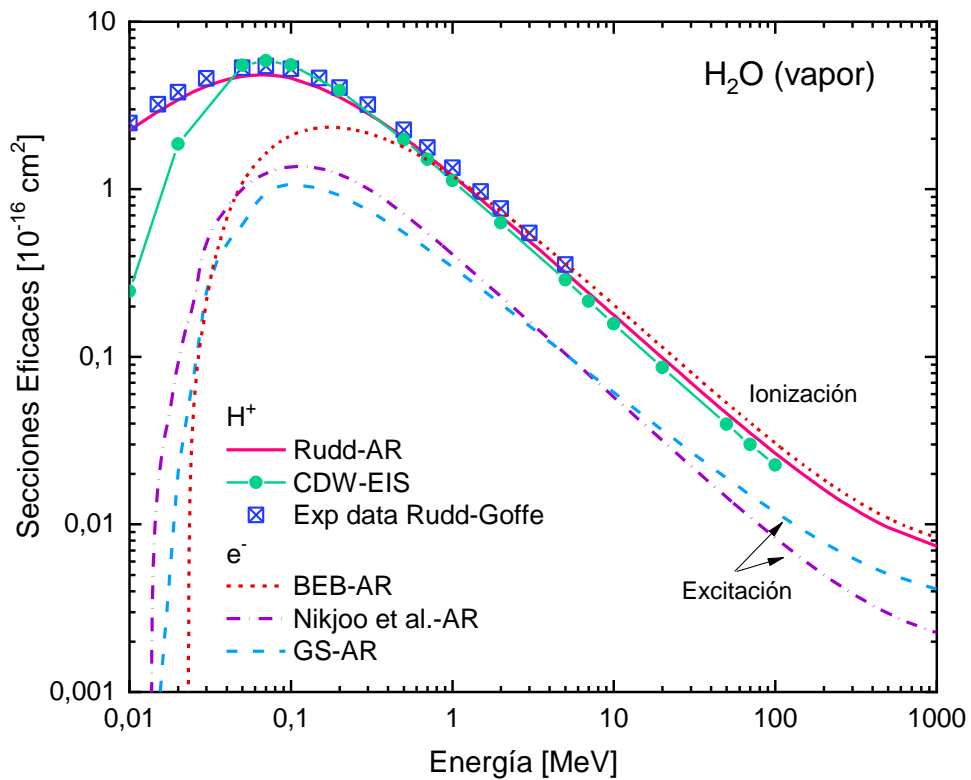


Figura 3.10: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en agua vapor.

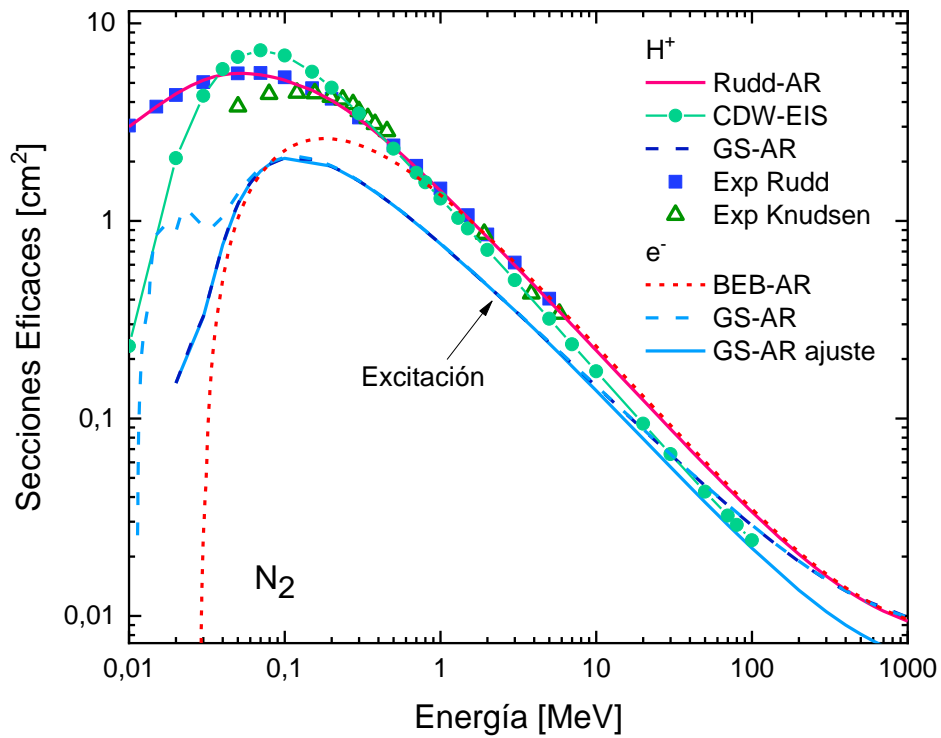


Figura 3.11: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en nitrógeno. La curva GS-AR ajuste hace referencia al ajuste realizado para tener igual pendiente a las SEI.

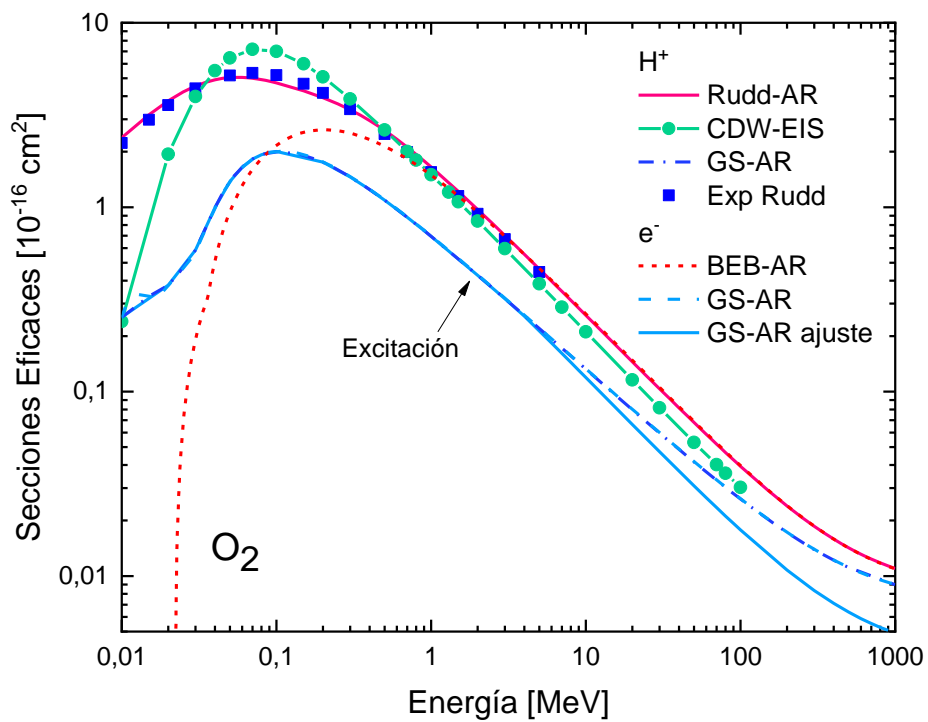


Figura 3.12: SE totales de ionización y excitación por impacto de electrones y protones en oxígeno. La curva GS-AR ajuste hace referencia al ajuste realizado para tener igual pendiente a las SEI.

### 3.4 Ionización Múltiple por impacto de iones

En esta sección se estudia la sección eficaz de ionización múltiple (SEIM) en la molécula de Ne y de tipo Ne, como el agua, y en moléculas diatómicas por impacto de protones e iones teniendo en cuenta la emisión directa y post-colisión de los electrones orbitales. Para ello, se desarrolla un modelo muy simple en el marco del Modelo de Electrones Independientes (IEM), donde se considera que cada electrón evoluciona independientemente de los demás, despreciándose de esta manera los efectos de correlación electrónica. Se utiliza una estadística multinomial donde las probabilidades de partícula simple se calculan como funciones exponenciales decrecientes en función del parámetro de impacto y con parámetros obtenidos de las secciones eficaces de ionización neta total de cada orbital atómico o molecular presentadas en la sección anterior 3.1.

Las probabilidades de partícula simple se pueden obtener mediante dos aproximaciones, el modelo CDW-EIS y el modelo exponencial (ME). Estos modelos ya se han utilizado en diversos trabajos científicos. El modelo CDW-EIS demostró ser adecuado para describir la ionización única de moléculas de agua vapor (Rivarola et al. (2013); Olivera et al. (1995); (1996)), donde los valores de SE mostraron un muy buen acuerdo con los datos experimentales y con las mediciones de poderes de frenado. El modelo ME, desarrollado para blancos atómicos, es más simple y también se ha utilizado para calcular las SEIM en diversos medios como los átomos Ne y Ar por impacto de protones (Galassi et al. (2007)), las moléculas de CO, O<sub>2</sub> y N<sub>2</sub> (Tachino et al. (2008); (2009)) y blancos de He (Galassi et al. (2010)) por impacto de protones e iones pesados. Debido a la simplicidad y la buena concordancia con las mediciones existentes, en este trabajo utilizamos este modelo para calcular las probabilidades de partícula simple.

El primer modelo se desarrolla para moléculas similares al Ne, esto es: H<sub>2</sub>O, NH<sub>3</sub> y CH<sub>4</sub>, y lo llamaremos “*neonización*”. Estas moléculas tienen el mismo número de electrones que el Ne (10 electrones), y un fuerte carácter monocéntrico, el cual permite desarrollar un modelo “atómico” de un-centro para describir las funciones de onda de los electrones en los orbitales moleculares, aplicado al ME. En esta sección se presentan los resultados solo para la molécula de agua, los de los demás medios están siendo analizados. El enfoque monocéntrico se ha aplicado previamente para hallar SEI\_SD en moléculas tipo Ne, obteniendo una muy buena concordancia con los datos experimentales (Montanari, Miraglia (2014), Olivera et al. (1995), Rivarola et al. (2013)). Para nuestros cálculos solo se requiere el conocimiento de las SEI por orbital atómico o molecular y las probabilidades de emisión post-colisión del Ne. Por tanto, el modelo propuesto puede considerarse como un modelo Ne a escala.

Además, se presenta un modelo muy simple para moléculas diatómicas como el CO y N<sub>2</sub>. Ya se ha desarrollado un modelo para estos blancos donde se describe a la molécula como dos átomos independientes y separados por su distancia internuclear de equilibrio (Tachino et al. (2008); (2009)). De esta forma, se aplica el ME a cada átomo por separado considerando sus orbitales atómicos. El carácter molecular está contemplado en la probabilidad exclusiva

de ionización de grado  $q$ , al desarrollarse en función de las probabilidades de cada átomo. En esta tesis se propone un modelo simple, donde se contemplan las energías de ligadura de los electrones en los orbitales moleculares, permitiendo así hallar la SEIM considerando la emisión desde los diferentes orbitales moleculares.

### 3.4.1 Modelo de electrón independiente (MEI)

Al estudiar las múltiples transiciones utilizando el MEI, se considera que cada electrón evoluciona de forma independientemente en un potencial efectivo creado por los otros electrones. Para obtener las secciones eficaces de los procesos múltiples, este método requiere el cálculo de probabilidades de una sola partícula en función del parámetro de impacto (Ludde, Dreizler (1985)). Utilizando una distribución binomial se expresa la probabilidad  $P_q$  de remover  $q$  electrones de una capa particular con  $N$  electrones equivalentes de la forma:

$$P_q(b) = C_q^N p(b)^q [1 - p(b)]^{N-q} \quad (3.9)$$

donde  $q=0,1,2,\dots,N$  es el número de electrones en esa capa,  $b$  el parámetro de impacto,  $C_q^N = \frac{N!}{q!(N-q)!}$  un coeficiente binomial y  $p(b)$  la probabilidad de emisión de un electrón de la capa en estudio. La sección eficaz de ionización directa de  $q$  electrones es:

$$\sigma_q = 2\pi \int_0^\infty b P_q(b) db = 2\pi \int_0^\infty b C_q^N p(b)^q [1 - p(b)]^{N-q} db \quad (3.10)$$

Esta expresión nos da información no solo de los  $q$  electrones con igual probabilidad de ser ionizados, sino también de los restantes electrones del orbital a partir de la expresión:  $[1 - p(b)]^{N-q}$  la cual indica la probabilidad de no ser ionizados los restantes  $N - q$  electrones del orbital, es decir, tienen un rol pasivo en la colisión. Por lo tanto, al contemplar todos los electrones del orbital esta expresión de SEIM se llama *exclusiva* Sant'Anna et al. (1998).

La *sección eficaz de ionización total neta* de  $N$  electrones se expresa de la forma:

$$\sigma_{neta} = \sum_{q=1}^N q \sigma_q \quad (3.11)$$

Si contemplamos ahora la posibilidad de tener ionizaciones directas desde diferentes subcapas del blanco se debe tener presente las siguientes consideraciones:

- Los electrones se distinguen de acuerdo a la subcapa  $j$  que fueron emitidos por la ionización directa del blanco, esto es " $q_j$ ", con  $j = 1, 2, \dots, K$ .
- El número total de electrones emitidos por la ionización del blanco  $n$  debe satisfacer la relación:  $n = \sum_{j=1} q_j = q_1 + q_2 + \dots$

Por lo tanto, debemos reescribir la expresión anterior como:

$$P_{q_j}(b) = C_{q_j}^{N_j} p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{N_j - q_j} \quad (3.12)$$

donde  $P_{q_j}$  es la *probabilidad exclusiva* de remover  $q_j$  electrones de la subcapa  $j$  con  $N_j$  electrones equivalentes.

Hablando en términos probabilísticos, consideramos que las ionizaciones en las diferentes subcapas son “eventos independientes”. Por lo cual, las probabilidades se deben multiplicar, esto es la probabilidad de emitir  $q_1$  electrones de la capa 1 por la probabilidad de emitir  $q_2$  electrones de la capa 2, etc.

$$\prod_{j=1}^K P_{q_j}(b) = P_{q_1}(b) \cdot P_{q_2}(b) \dots \quad (3.13)$$

siendo  $K$  el número total de orbitales del blanco.

Por otro lado, la cantidad de electrones emitidos  $n$  se puede dar de distintas maneras o “combinaciones”. En este sentido cada combinación es “excluyente”, por la cual las mismas se deben sumar y así obtenemos la *probabilidad total de ionización directa* de  $n$  electrones de distintas capas:

$$\begin{aligned} P_n(b) &= \sum_{q_1+q_2+\dots=n} \left( \prod_{j=1}^K P_{q_j}(b) \right) \\ &= \{P_{q_1}(b) \cdot P_{q_2}(b) \dots\} + \{P_{q'_1}(b) \cdot P_{q'_2}(b) \dots\} + \dots \end{aligned} \quad (3.14)$$

con cada  $q_j = 0, 1, \dots, N_j$  en la sumatoria.

Finalmente, la *sección eficaz de ionización directa exclusiva* de  $n$  electrones desde diferentes capas es de la forma:

$$\begin{aligned} \sigma_n &= 2\pi \int_0^\infty P_n(b) b db = 2\pi \int_0^\infty \sum_{q_1+q_2+\dots=n} \left( \prod_{j=1}^K P_{q_j}(b) \right) b db \\ &= 2\pi \int_0^\infty \sum_{q_1+q_2+\dots=n} \left( \prod_{j=1}^K C_{q_j}^{N_j} p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{N_j - q_j} \right) b db \end{aligned} \quad (3.15)$$

Y la total neta:

$$\sigma_{neta} = 1 \sigma_{n=1} + 2 \sigma_{n=2} + \dots \quad (3.16)$$

con suma hasta el número total de electrones del blanco.

### 3.4.2 Emisiones post-colisionales

Luego de ocurrir ionización directa en los orbitales internos, pueden tener lugar la emisión Auger o Coster-Kronig, llamados procesos post-colisionales. En este trabajo se tiene en cuenta la emisión Auger tras la ionización de los dos orbitales más internos para el modelo de Ne (Galassi et al. (2007)) y la del más interno para la aproximación en moléculas diatómicas.

Para abordar la formulación se debe tener en cuenta que:

- No se distinguen los orbitales de donde provienen los electrones Auger. El número total de ellos generados es  $\alpha$ .
- El número total de electrones generados por la ionización del blanco ahora debe satisfacer:  $n = \sum_{j=1} q_j + \alpha = q_1 + q_2 + \dots + \alpha$

Siguiendo las ideas anteriores, incluimos la emisión de electrones post-colisión a la SEIM agregando un nuevo factor en la probabilidad total de ionización de  $n$  electrones, ahora llamada  $P_{n,Post}(b)$ . La expresión final queda de la forma:

$$P_{n,Post}(b) = \sum_{q_1+q_2+\dots+q_K+\alpha=n} \left( \prod_{j=1}^K P_{q_j}(b) \right) \mathcal{P}(q_1, q_2, \dots, q_K, \alpha) \quad (3.17)$$

siendo  $\mathcal{P}(q_1, q_2, \dots, q_K, \alpha)$  la probabilidad de emisión post-colisión de  $\alpha$  electrones luego de la creación de  $q_j$  vacancias u ionizaciones en cada una de las subcapas  $j$  causados por la configuración  $(q_1, q_2, \dots, q_K)$  de la ionización directa.

De acuerdo al trabajo de Spranger y Kirchner 2004, esta probabilidad se puede hallar usando la expresión:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(q_1, \dots, q_K, \alpha) = & \sum_{\alpha_i=0}^{\alpha} \left( \prod_{i=1}^{q_1} \mathcal{M}_1(q_2, \dots, q_K, \alpha_i) \times \prod_{i=1+q_1}^{q_1+q_2} \mathcal{M}_2(q_3, \dots, q_K, \alpha_i) \times \dots \right. \\ & \left. \times \prod_{i=1+q_1+q_2+\dots+q_{K-2}}^{q_1+q_2+\dots+q_{K-1}} \mathcal{M}_{K-1}(q_K, \alpha_i) \right) \end{aligned} \quad (3.18)$$

Las funciones  $\mathcal{M}_j(q_{j+1}, \dots, q_K, \alpha_i)$  representan la probabilidad de producción post-colisión de  $\alpha_i$  electrones provocados por *una sola* vacancia en la subcapa  $j$  y acompañado por ionizaciones directas de las capas más externas  $(q_{j+1}, \dots, q_K)$ .

### 3.4.3 Modelo Exponencial

A partir de aquí es necesario determinar las probabilidades  $p_j(b)$  que describen el proceso de ionización simple, las cuales calcularemos a través del ME. Este modelo fue desarrollado por DuBois y Manson (1987) donde la probabilidad de ionización simple por electrón de una determinada subcapa  $j$  viene dada con la expresión:

$$p_j(b) = p_j(0) e^{-b/r_j} \quad (3.19)$$

$p_j(0)$  es la probabilidad de ionizar la subcapa  $j$  a parámetro de impacto 0 y  $r_j$  el radio medio, es decir, la distancia media de interacción de cada electrón orbital. Estas dos cantidades puede ser tomadas a veces como parámetros de ajuste para obtener secciones eficaces que reproduzcan los datos experimentales. En el presente trabajo se calculan los radios usando el modelo atómico de Bohr donde  $r_j = n_j / \sqrt{-2\varepsilon_j}$ , en unidades atómicas (ua), siendo  $\varepsilon_j$  la energía de enlace del orbital atómico en ua y  $n_j$  el número cuántico principal asociado.

El parámetro  $p_j(0)$  se halla utilizando la definición de SEI total del orbital  $j$ , es decir:

$$\sigma_{T_j} = 2\pi N_j \int_0^\infty p_j(b) b db = 2\pi N_j \int_0^\infty p_j(0) e^{-b/r_j} b db \quad (3.20)$$

Se ha agregado  $N_j$  al ser  $p_j(b)$  una probabilidad por electrón. Despejando  $p_j(0)$  de la ecuación anterior se obtiene:

$$p_j(0) = \sigma_{T_j} / 2\pi N_j \int_0^\infty e^{-b/r_j} b db = \frac{\sigma_{T_j}}{2\pi N_j r_j^2} \quad (3.21)$$

En la Figura 3.13 se muestran las probabilidades de ionización simple por electrón por el parámetro de impacto  $b$  de cada subcapa de la molécula de agua líquida por impacto de iones de carbono de 1 MeV/u. Se puede observar cómo los máximos de las curvas coinciden con los radios efectivos  $r_j$  propuestos.

Las SEI totales por orbital  $\sigma_{T_j}$  se pueden obtener a partir de cualquier método de cálculo de SEI. En este trabajo hemos utilizado los dos modelos mencionados en este capítulo, el modelo semiempírico de Rudd y el modelo CDW-EIS. Para discriminar los resultados respecto de ellos los notaremos como: “ME\_CDW” y “ME\_Rudd”. A su vez, agregaremos las sílabas “Dir” y “Post” para indicar ionización directa o post-colisional.

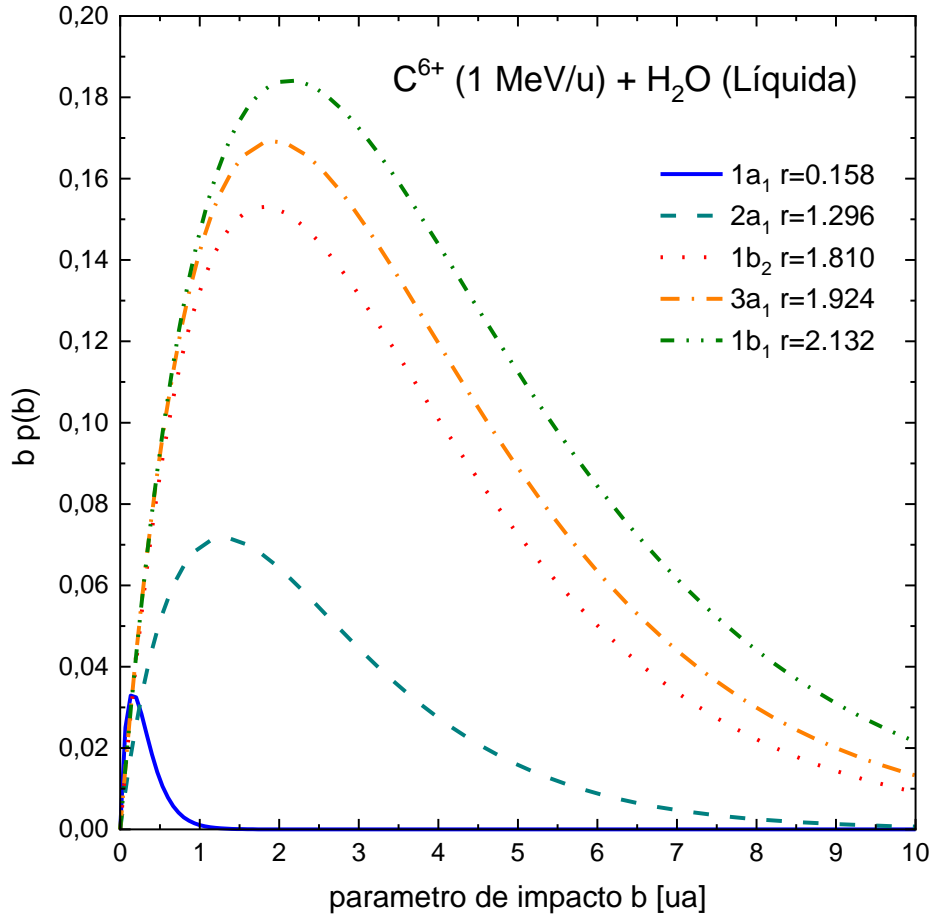


Figura 3.13: Probabilidad de ionización simple por electrón de una subcapa  $j$  por el parámetro de impacto  $b$  en función del mismo por impacto de iones de carbono de 1MeV/u en agua líquida. Se indican los radios efectivos de los orbitales moleculares en unidades atómicas.

### 3.4.4 Modelo de Neonización para H<sub>2</sub>O

En esta sección se estudia la SEIM y la emisión post-colisión en la molécula de agua a partir del estudio del átomo de Ne. La molécula de agua tiene el mismo número de electrones ligados, 10. Se considera  $K=5$  orbitales con  $N_j=2$  electrones en cada uno. Por ejemplo, en el caso del Ne que contiene 6 electrones en la subcapa 2p se ha considerado 3 orbitales con 2 electrones en cada uno con la misma energía de ligadura. Siguiendo esta idea, la probabilidad de ionización total directa de  $n$  ( $\leq 10$ ) electrones queda de la forma:

$$P_n(b) = \sum_{q_1+q_2+\dots+q_5=n} \left( \prod_{j=1}^{K=5} C_{q_j}^2 p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{2-q_j} \right) \quad (3.22)$$

siendo  $q_j=0,1,2$ .

Las probabilidades de ionización simple por orbital se obtienen del modelo exponencial, sección 3.4.3., donde se toma un radio efectivo para cada orbital molecular representado por el radio atómico de Born gracias al carácter monocéntrico de las moléculas.

Para el caso de ionización con emisión post-colisión tenemos que:

$$P_{n,Post}(b) = \sum_{q_1+\dots+q_5+\alpha=n} \left( \prod_{j=1}^{K=5} C_{q_j}^2 p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{2-q_j} \right) \mathcal{P}(q_1, \dots, q_5, \alpha) \quad (3.23)$$

Se considera solamente la emisión tipo Auger de las 2 subcapas más internas de las moléculas. Esta aproximación ya se ha estudiado para el caso del átomo de Ne (Galassi et al. (2007)) y su aplicación a la molécula de agua está respaldada por la similitud entre sus Espectros Auger (Kolorenč, Averbukh (2011); Inhester et al. (2014)). De esta forma, la probabilidad de emisión post-colisión de  $\alpha$  electrones queda de la forma:

$$\mathcal{P}(q_1, q_2, \dots, q_5, \alpha) = \sum_{\alpha_i=0}^{\alpha} \left( \prod_{i=1}^{q_1} \mathcal{M}_1(q_2, q', \alpha_i) \times \prod_{i=1+q_1}^{q_1+q_2} \mathcal{M}_2(q', \alpha_i) \right) \quad (3.24)$$

siendo  $q' = q_3 + q_4 + q_5$  el grado de ionización de los 6 electrones más externos del blanco. Las  $\mathcal{M}_1(\dots, \alpha_i)$  y  $\mathcal{M}_2(\dots, \alpha_i)$  son las probabilidades de producir  $\alpha_i$  electrones provocados por *una sola vacancia* en los orbitales internos 1s y 2s de las moléculas. Este proceso va acompañado con la ionización directa de los orbitales externos.

Siguiendo como referencia el trabajo de Galassi et al. (2007) se utilizaron las probabilidades experimentales de fotoionización del Ne,  $\beta_1(\alpha_i)$  y  $\beta_2(\alpha_i)$  para la producción de  $\alpha_i$  electrones post-colisión si solamente un electrón es removido de los orbitales atómicos 1s y 2s, considerando que los demás electrones permanecen ligados a la molécula (Carlson et al. (1966)), ver Tabla 3.4. Estas probabilidades incluyen los siguientes procesos de emisión post-colisión: la cascada Auger (si ocurre una ionización directa de un orbital interno), Coster-Kronig (relacionado con transiciones en el mismo orbital donde ocurre la ionización directa) y contribuciones secundarias como el shake-off (se da a partir de un proceso de relajación por el cambio repentino del potencial del blanco) y la correlación electrónica.

Teniendo en cuenta entonces el hecho de que más de un electrón puede ionizarse directamente, reduciendo así el número de electrones que pueden ser expulsados tras la colisión, obtenemos expresiones para las probabilidades de la forma:

$$\mathcal{M}_1(q_2, q', \alpha_i) = \begin{cases} 1 - \frac{8 - (q_2 + q')}{8} (1 - \beta_1(\alpha_i)) & \alpha_i = 0 \\ \frac{8 - (q_2 + q')}{8} \beta_1(\alpha_i) & \alpha_i \neq 0 \end{cases} \quad (3.25)$$

$$\mathcal{M}_2(q', \alpha_i) = \begin{cases} 1 - \frac{6 - q'}{6} (1 - \beta_2(\alpha_i)) & \alpha_i = 0 \\ \frac{6 - q'}{6} \beta_2(\alpha_i) & \alpha_i \neq 0 \end{cases}$$

Tabla 3.4: Probabilidades de emisión post-colisión después de una fotoionización simple de los orbitales 1s ( $\beta_1$ ) y 2s ( $\beta_2$ ) del átomo de Ne (Carlson et al. (1966)). El caso de  $\alpha = 0$  se asocia a la luminiscencia y ningún electrón es emitido en este caso.

$\alpha$	$\beta_1(\alpha)$	$\beta_2(\alpha)$
0	0.010	0.873
1	0.736	0.119
2	0.220	0.008
3	0.031	0.00
4	0.003	0.00

Como se puede observar en la Tabla 3.4, la probabilidad de emisión sin post-colisión ( $\alpha=0$ ) después de la ionización del orbital (1s) del Ne es despreciable (0.01). Entonces, una aproximación muy simple para tener en cuenta esta emisión, es considerar la probabilidad de emisión de un electrón Auger igual a 1 cuando un electrón de la capa más interna 1s ha sido emitido por ionización. Esta simplificación es muy útil para ser introducida en los códigos Monte Carlo en el transporte de iones. En el presente trabajo se llama a esta aproximación *IAug*.

En la Tabla 3.5 se presentan los parámetros del Ne para calcular la probabilidad de ionización simple por electrón  $p_j(b)$  y la SEI total por orbital  $\sigma_{T-j}$  con el modelo de Rudd y modelo CDW-EIS-MO. Las energías de enlace se extrajeron a través de cálculos de Roothaan-Hartree-Fock (Galassi et al. (2007)). Los parámetros para agua líquida y vapor se presentaron en la sección anterior 3.1 para los dos modelos .

Tabla 3.5: Estructura atómica del Ne. Energías de enlace en eV. Entre paréntesis, en la primera columna se muestra el principal número cuántico asociado a la subcapa atómica.

Orbital Atómico ( $n_j$ )	Población Electrónica	Energías de enlace RHF
1s (1)	2.00 Ne1s	891.4
2s (2)	2.00 Ne2s	52.5
2p (2)	6.00 Ne2p	23.13

### 3.4.4.1 Resultados

Los resultados obtenidos para los blancos de neón y de agua son presentados de manera consecutiva a fin de lograr una mayor claridad en el análisis de los mismos.

#### Resultados para Ne

La Figura 3.14 muestra las SEI total neta  $\sigma_{net}$  para impacto de protones en Ne calculadas usando los modelos CDW-EIS y Rudd, y comparadas con valores experimentales. Se discrimina la contribución de cada orbital atómico. Hacemos hincapié en que  $\sigma_{net}$  no es más que la SE de emisión electrónica, independientemente del estado final del blanco, y es directamente comparable a la emisión de electrones registrada en un experimento. A pesar de algunas diferencias observables con respecto a la ionización de los orbitales 1s y 2s, ambos modelos utilizados presentan buen acuerdo entre ellos y con los valores experimentales. Observar que en la figura se ha escalado cada orbital por un factor de 1/10 para una mayor claridad para evitar superposiciones entre las contribuciones del orbital 2p y  $\sigma_{net}$ .

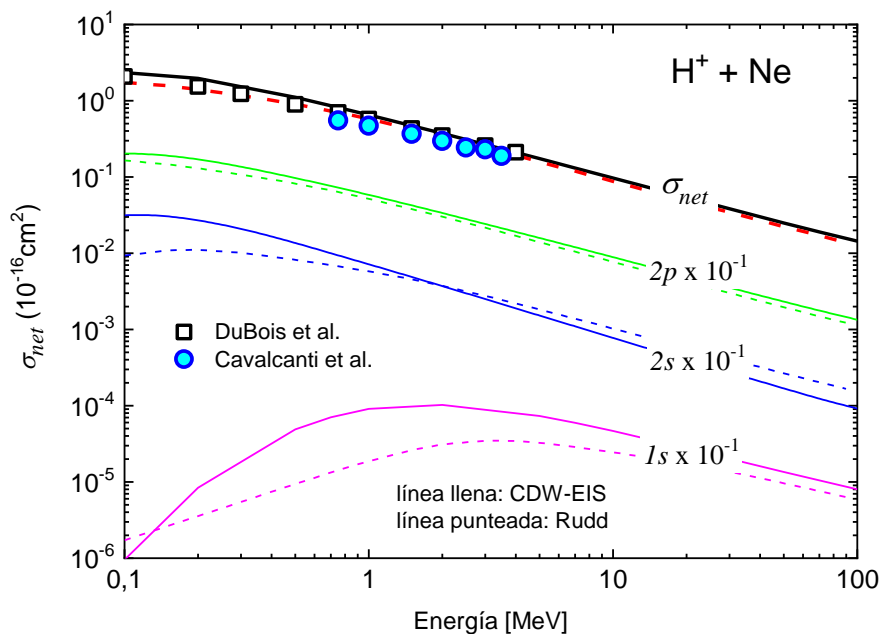


Figura 3.14: SEI total neta y por orbital molecular para Ne por impacto de protones, en función de la energía de la partícula incidente. Modelos teóricos: línea llena, CDW-EIS; línea punteada, Rudd. Valores experimentales: cuadrados DuBois et al. (1984) y círculos Cavalcanti et al. (2002).

En la Figura 3.15, comparamos las SEIM de Ne calculadas por impacto de protones con valores experimentales, para ionización simple, doble y triple. Las curvas de ME\_CDW-EIS\_Post y ME-Rudd\_Post muestran muy buen acuerdo con los datos experimentales. Sin embargo, EM\_Dir (para los modelos CDW-EIS y Rudd) no está de acuerdo con los datos experimentales para energías superiores a 1 MeV para ionización doble y triple. Este resultado concuerda con las conclusiones del trabajo de Tachino et al. (2009), donde postula que el *parámetro de Bohr*,  $Zp/v$  (con  $Zp$  la carga del proyectil y  $v$  su velocidad en au), es

apropiado para determinar la región donde los mecanismos de post-colisión comienzan a dominar la SEIM. La separación entre curvas correspondiente a incluir o no las contribuciones de tipo Auger, se produce en la región donde  $Zp/v \leq 0,2$  para  $q=2$  (ver eje superior de la figura). A medida que el grado de ionización aumenta este valor toma valores superiores. Por ejemplo, para el impacto de un protón de 1 MeV, el parámetro de Bohr es 0.157 y para esta energía es evidente que  $ME\_Post$  y  $ME\_Dir$  comienzan a separarse.

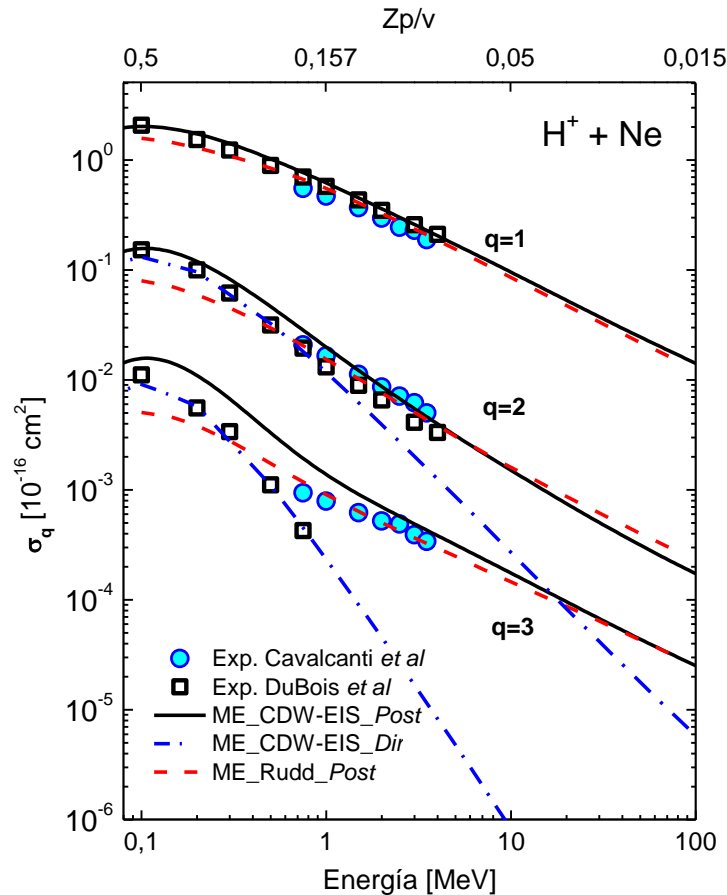


Figura 3.15: SEIM para el Ne por impacto de protones. Modelos teóricos aplicando el ME: línea llena negra,  $ME\_CDW-EIS\_Post$ ; línea de trazo y punto azul,  $ME\_CDW-EIS\_Dir$ ; línea de trazo roja,  $ME\_Rudd\_Post$ . Valores experimentales: cuadrados abiertos (DuBois et al. (1984)) y círculos (Cavalcanti et al. (2002)).

En la Figura 3.16, se compara la razón entre las SEI simple y múltiple de Ne por impacto de protones con valores experimentales. En esta figura se incluyen los resultados de  $ME\_CDW-EIS\_IAu$ , donde se considera la emisión post-colisión solo cuando un electrón del core (orbital 1s) está ionizado. Como se puede observar, esta aproximación da un mejor acuerdo con los valores experimentales que  $ME\_Dir$ . Sin embargo, para la doble ionización esta aproximación subestima los valores experimentales, por un factor 2 para  $ME\_CDW-EIS\_Post$  y por 3 para  $ME\_Rudd\_Post$ . Claramente, el efecto post-colisión asociado a la ionización del orbital 2s es significativo para el caso del Ne. Como se observa en la Tabla 3.4, la probabilidad de emisión post-colisión después de la ionización del orbital 2s en Ne es de 13%

aproximadamente. Combinando esto con el hecho de que la probabilidad de ionización del orbital 2s es mucho mayor al del 1s (típicamente por un factor 10 a altas energías de impacto). Entonces, en la ionización triple, observamos que la contribución real de la ionización 2s a la emisión Auger es más importante que la obtenida después de la del 1s. Por lo tanto, considerar solo la emisión post-colisión luego de la ionización del orbital 1s no es suficiente para reproducir los resultados experimentales.

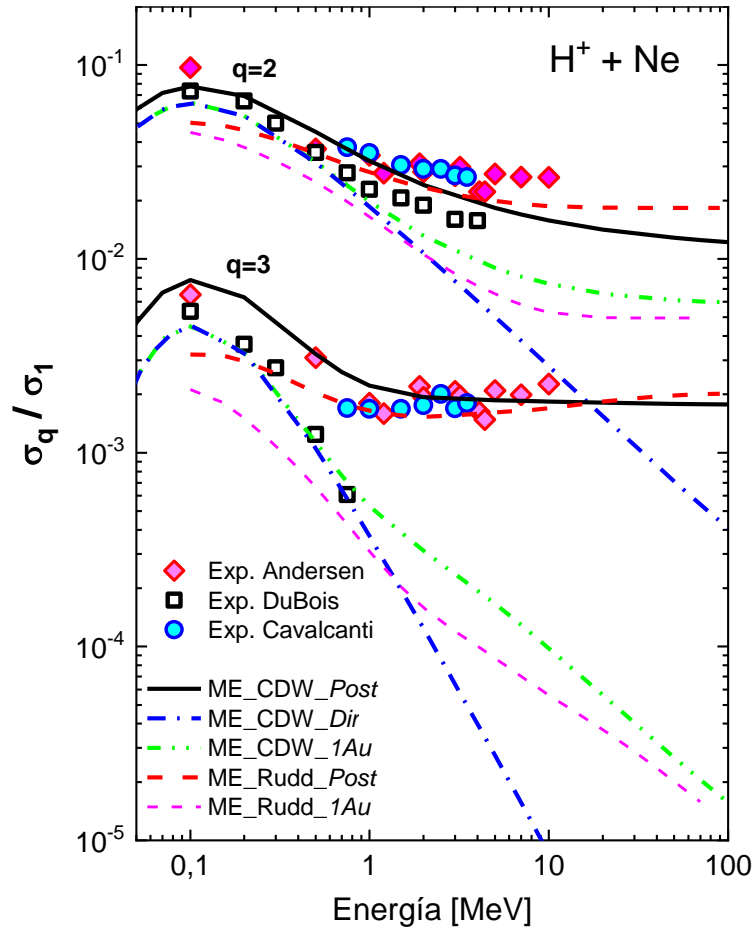


Figura 3.16: SEIM de grado  $q=2$  y  $3$ , relativa a la ionización simple ( $q=1$ ) por impacto de protón en Ne. Líneas: resultados teóricos del presente trabajo. Valores experimentales: círculo (Cavalcanti et al., 2002); cuadrados (DuBois et al., 1984); diamantes (Andersen et al., 1987).

En la Figura 3.17 se presentan los resultados  $ME\_CDW\_EIS\_Post$  y  $ME\_Rudd\_Post$  junto con los obtenidos por Spranger and Kirchner (2004) y por Montanari et al. (Montanari et al. (2012); Montanari, Miraglia (2014)). El primero se realiza para  $H^+$  en Ne, resolviendo numéricamente la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo usando el Método Basis Generator Method (BGM) e introduciendo la emisión Auger post-colisión como en el presente trabajo. En los trabajos de Montanari et al. Se utiliza la aproximación CDW-EIS para calcular las probabilidades de una sola partícula requeridas por el MEI, con funciones de onda iniciales (ligadas) y finales (del continuo) expresadas como productos de armónicos esféricos y funciones de onda radiales, obtenidas a través de la solución numérica de la ecuación radial de Schrödinger. Para el caso de Ne, consideran que la emisión tipo Auger

ocurre solo después de la ionización de la capa K. Podemos observar que para la ionización simple todos los modelos concuerdan bien con los datos experimentales. En el caso de los resultados de BGM para la SEIM, la teoría muestra un buen acuerdo con los experimentos para energías a partir de 1 MeV. Las discrepancias a energías más pequeñas podrían estar relacionadas con el uso del MEI y también con la contribución de los procesos de captura que dominan la pérdida de electrones a energías inferiores a los 100 keV para el impacto de protones [40]. Los resultados de Montanari et al. para a ionización doble y triple subestiman los datos experimentales en el rango de energías donde la emisión de electrones está dominada por la de tipo. Para corregir esto, introdujeron la probabilidad de los procesos shake-off, la cual describe la contribución post-colisión de la ionización doble luego de generarse una vacancia inicial en los orbitales 2s o 2p. Esta inclusión produce un incremento de la sección eficaz en todo el rango de energías de impacto, reproduciendo muy bien la tendencia experimental (línea indicada en la figura con una flecha). Sin embargo, este tratamiento no se puede extender a los otros grados de ionización, y la sección eficaz de triple ionización subestima los datos experimentales para energías a partir de 1 MeV.

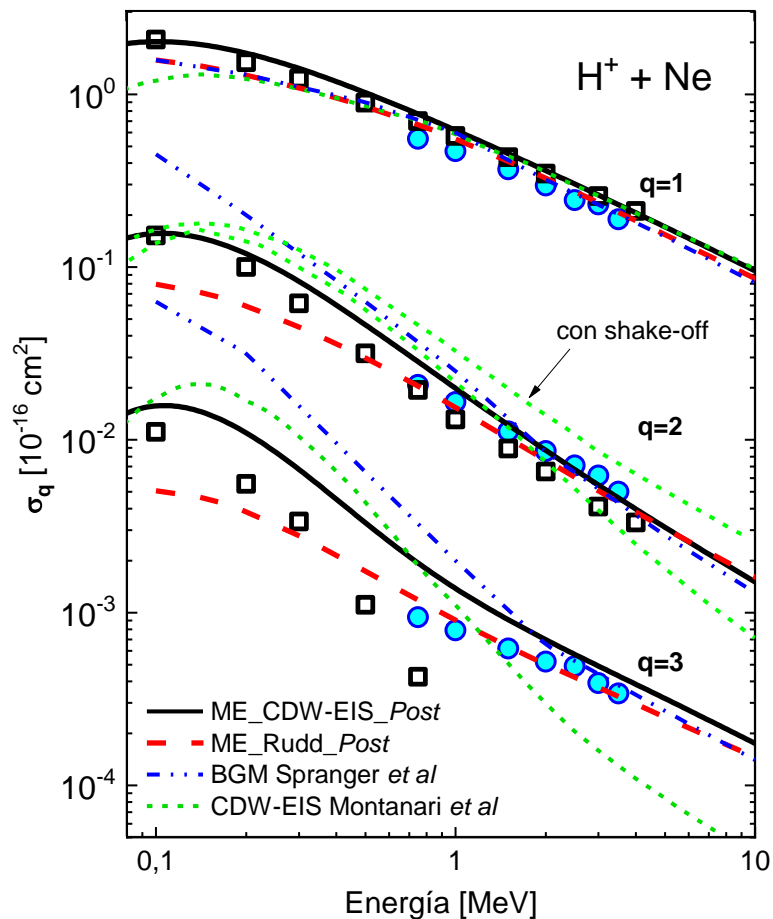


Figura 3.17: SEIM para Ne por impacto de protones. Teoría: línea continua negra, ME\_CDW-EIS\_Post; línea a trazo roja, EM\_Rudd\_Post; línea azul de trazo y punto punto, Spranger, Kirchner (2004); línea verde de trazos cortos, Montanari et al. (2012). Valores experimentales: círculo cerrado azul, Cavalcanti et al. (2002); cuadrados abiertos DuBois et al. (1984).

En la Figura 3.18 se comparan las SEIM para el impacto de  $O^{8+}$  (1 MeV/u) sobre Ne en función del grado de ionización  $q$ , con valores experimentales de Gray et al. (1980). Como se observa, el ME permite una excelente concordancia con los datos experimentales. En particular, en este caso, el parámetro de Bohr es igual a 1.28 y no se observa diferencia entre EM\_CDW-EIS\_Dir y EM\_CDW-EIS\_Post para los grados de ionización mostrados (hasta  $q=5$ ). Claramente, el efecto post-colisión es un efecto de alta velocidad asociado con la ionización de los orbitales internos (1s, 2s). Es importante remarcar, además, que se observa que la doble ionización representa aproximadamente un 35% de la ionización neta.

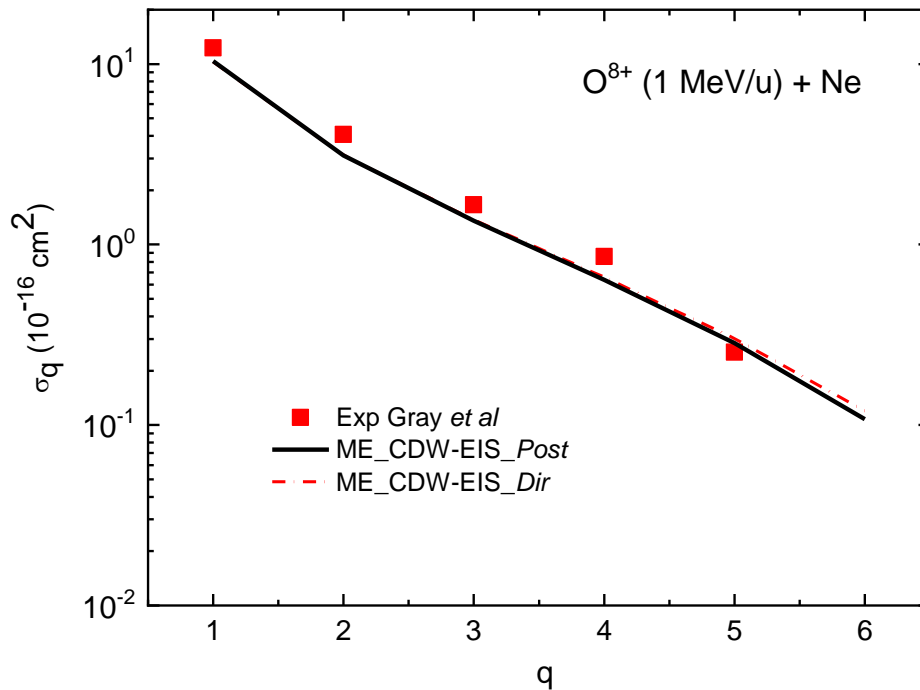


Figura 3.18: SEIM para Ne por impacto de iones de oxígeno de 1MeV/u en función del grado de ionización  $q$ . Teoría: línea continua negra, EM\_CDW-EIS\_Post; línea de trazo y punto roja, EM\_CDW-EIS\_Dir. Valores experimentales: cuadrados rojos, Gray et al. (1980).

## Resultados para H<sub>2</sub>O

En la Figura 3.19 se muestran las secciones eficaces de ionización neta (requeridas por el ME) para el impacto de protones en vapor de agua, calculadas usando los modelos CDW-EIS-MO y Rudd. Ambos modelos concuerdan bien con los datos experimentales Tavares et al. (2015), Wilson et al. (1984) y Rudd, Goffe, et al. (1985a). Sin embargo, se observan diferencias entre los modelos para los orbitales  $1a_1$  y  $2a_1$ . Estas diferencias afectarán luego las contribuciones post-colisión a las SEIM.

La Figura 3.20 muestra las SEIM para impacto de protones en vapor de agua calculadas con los modelos ME\_CDW-EIS, y ME\_Rudd para los grados de ionización  $q=1, 2$  y  $3$  en comparación con valores experimentales (Tavares et al., 2015). Para  $q=1$  y  $2$ , ambos resultados teóricos considerando la emisión post-colisión presentan muy buen acuerdo con los datos experimentales. Para  $q=2$ , se observan algunas diferencias a altas energías entre

ME\_CDW-EIS\_Post y ME\_Rudd\_Post, las cuales están relacionadas con la SEI simple del orbital  $2a_1$  calculadas dentro de los modelos CDW-EIS y Rudd (ver figura 3.19). En el caso del modelo, ME\_CDW-EIS\_Dir se observa que subestima los datos experimentales y no sigue la misma tendencia extrapolada.

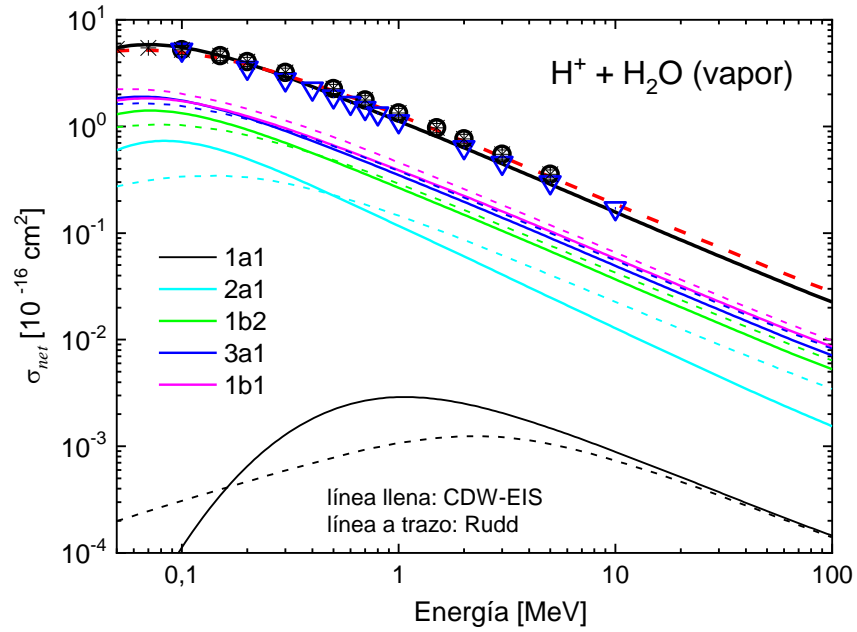


Figura 3.19: Secciones eficaces de ionización neta total del  $H_2O$  vapor por impacto de protones. Modelos teóricos: líneas continuas, CDW-EIS-MO; líneas a trazo, modelo de Rudd. Valores experimentales: triángulos abiertos, Wilson et al. (1984); estrellas, Rudd, Goffe, et al. (1985a); círculos abiertos, Tavares et al. (2015).

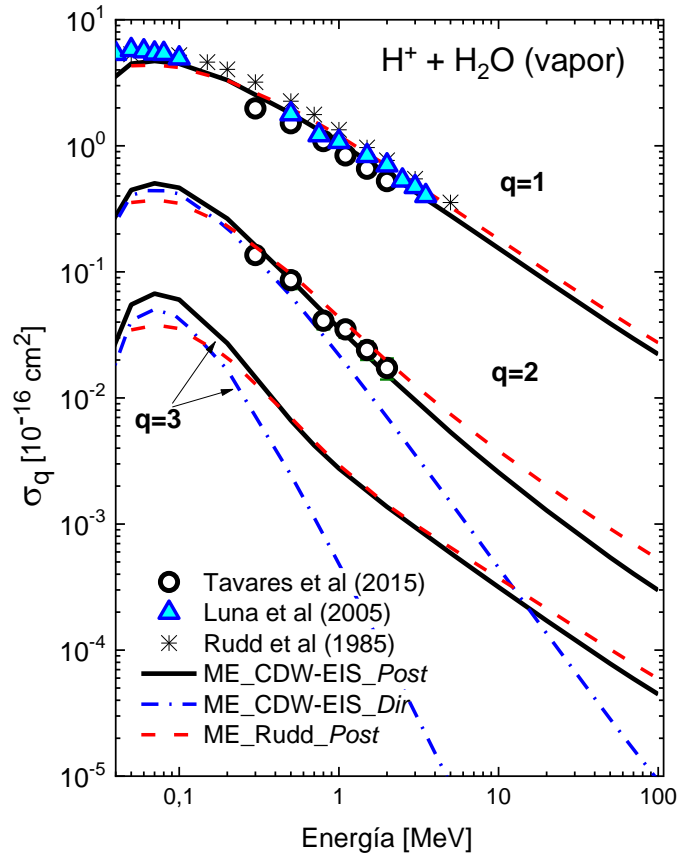


Figura 3.20: SEIM para H<sub>2</sub>O vapor por impacto de protones. Modelos teóricos: línea llena, ME\_CDW-EIS\_Post; línea de trazo y punto, ME\_CDW-EIS\_Dir; línea punteada, ME\_Rudd\_Post. Valores experimentales: círculos (Tavares et al. (2015)); estrellas (Rudd, Goffe, et al. (1985b)), triángulos (Luna, Montenegro (2005)).

En la Figura 3.21 se compara el ME con otros cálculos teóricos más complejos para el impacto de protones. Uno de ellos es el modelo desarrollado por Gulyás et al. (2016) el cual permite el cálculo de las SEIM directas en el Modelo de Electrón Independiente usando probabilidades CDW-EIS y considerando la configuración de la geometría molecular durante la colisión. Este modelo también permite el cálculo de secciones eficaces de captura electrónica. Sin embargo, las emisiones Auger post-colisión no fueron incluidas. Como se observa, los resultados para la doble ionización concuerdan bien con nuestros resultados de ME\_CDW-EIS\_Dir. Otros cálculos se realizaron utilizando el Método Generador de Base no perturbativo (BGM) (Murakami et al. (2012)) para calcular las secciones eficaces correlacionadas del estado de carga en los procesos de eliminación de uno y varios electrones (captura e ionización) en las colisiones protón-H<sub>2</sub>O. Los resultados de este modelo para q = 1 y 2 concuerdan bien con los datos experimentales y con los resultados teóricos de EM y CDW-EIS. Sin embargo, dado que no incorpora emisión post-colisión, se espera que a altas energías la SEIM siga la tendencia del modelo EM\_Dir

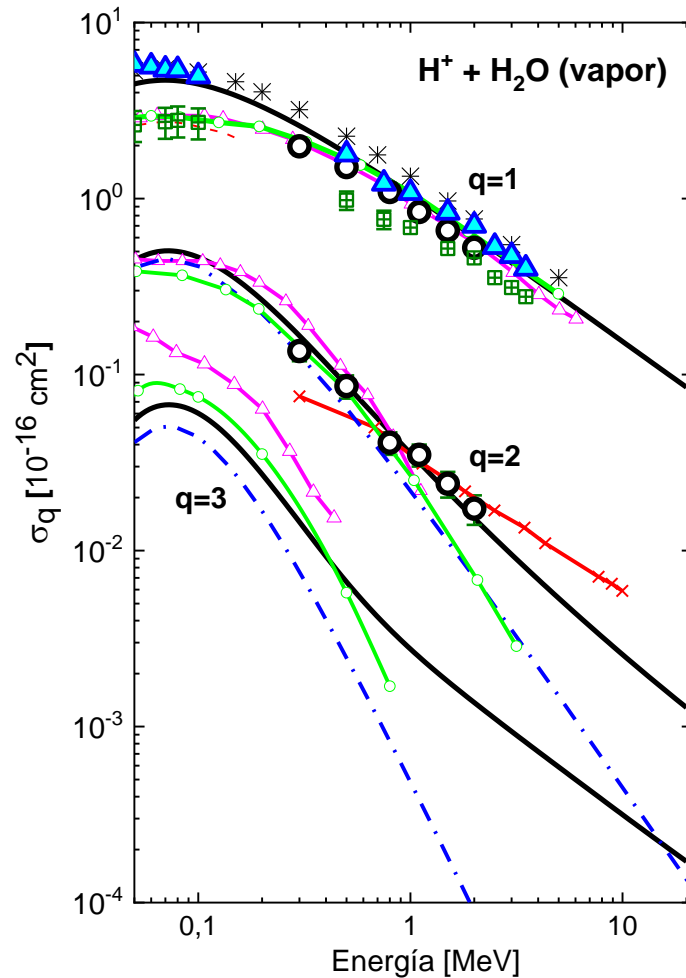


Figura 3.21: SEIM para  $\text{H}_2\text{O}$  vapor por impacto de protones. Teoría: línea continua negra, ME\_CDW-EIS\_Post; línea azul discontinua, ME\_CDW-EIS\_Dir, línea circular verde, Gulyás et al. (2016); línea triangular rosa, Murakami et al. (2012); línea cruzada roja, Oubaziz et al. (2018). Experimentos: círculos abiertos negros, Tavares et al. (2015); triángulos azules, Luna, Montenegro (2005); estrellas, Rudd, Goffe, et al. (1985b) secciones eficaces de ionización neta; cuadrados Luna et al. (2007).

Las secciones eficaces de doble ionización calculadas utilizando la aproximación de First Born perturbativa (Oubaziz et al. (2018)) también se incluyen en esta Figura 3.21. Este modelo teórico contempla información sobre la geometría molecular y la energía de los electrones emitidos. La ionización doble se describe como un mecanismo shake-off, donde luego de una ionización simple, se emite un segundo electrón a partir de un proceso de relajación por el cambio repentino del potencial del blanco. Según los autores, esta aproximación es equivalente a la emisión Auger. Sin embargo, la ionización directa de los electrones del núcleo (orbital  $1a_1$ ) no se tuvo en cuenta en los cálculos. Como podemos ver, los resultados de este método no siguen la tendencia experimental. Otro punto a destacar es que la complejidad de este desarrollo teórico evita la posibilidad de extender el modelo para calcular grados de ionización múltiple superiores.

En la Figura 3.22, se comparan el modelo *ME\_CDW-EIS\_Post* con el *ME\_CDW-EIS\_1Au* para impacto de protones en agua líquida. Como se observa, el *ME\_CDW-EIS\_1Au* subestima las SEI dobles en un factor menor que 2 para energías de hasta 100 MeV, mientras que si no consideramos la emisión post-colisión, las diferencias son mayores a un orden de magnitud para energías superiores a 10 MeV, ver Figura 3.21. Por lo tanto, considerar la emisión de un electrón Auger después de la ionización del orbital  $1a_1$  es una buena aproximación para implementar en los códigos Monte Carlo utilizados para el estudio de los efectos biológicos por impacto de protones. En el caso de iones de mayor carga, se debe considerar la contribución de la emisión Auger post-colisión después de ionizar el orbital  $2a_1$ .

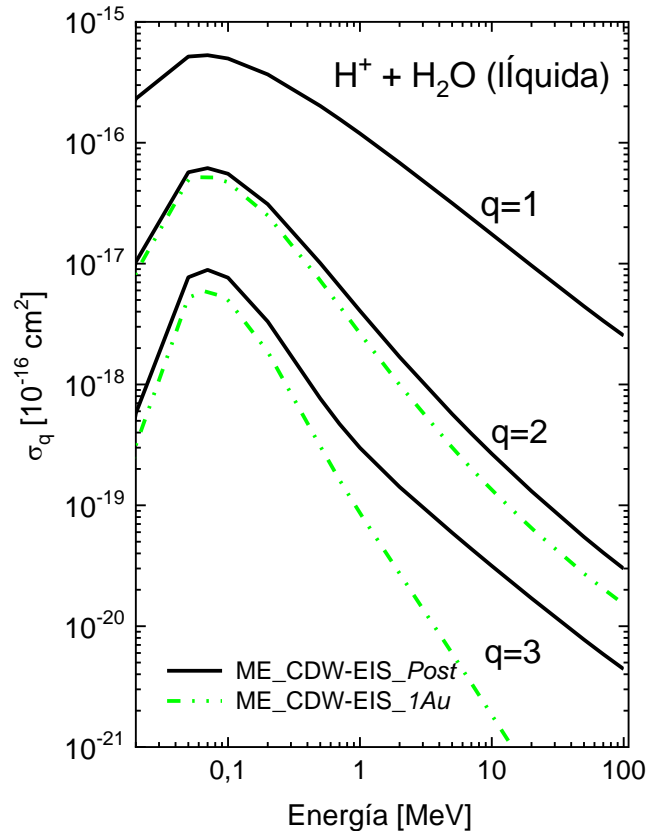


Figura 3.22: SEIM para  $H_2O$  líquida por impacto de protones. Modelos teóricos: línea llena, *EM\_CDW-EIS\_Post*; línea trazo y punto, *EM\_CDW-EIS\_1Au*.

En la Figura 3.23, se presenta el cociente de SEI doble a simple para impacto de protones e iones de carbono en agua líquida. Los resultados de *EM\_CDW-EIS\_Post* muestran una excelente concordancia con los valores experimentales para impacto de protones en agua vapor (Tavares et al. (2015)). Sin embargo, los resultados de *EM\_CDW-EIS\_Dir* subestiman los valores experimentales tal como se esperaba que ocurriera por los resultados obtenidos previamente en Ne. En la misma figura se incluyen otros resultados teóricos. En el trabajo de Champion (2003), las SEIM para agua líquida se calcularon utilizando un modelo semi-empírico, basado en una combinación de la aproximación estadística semiclásica, el modelo estadístico de deposición de energía y la aproximación de densidad local. En dicha descripción, fue necesario introducir un parámetro de ajuste cuyo valor se determina

extrapolando las relaciones experimentales de SEI doble a simple de otros medios como Ne, CO y Ar (ya que no se disponía de resultados correspondientes al agua). En ese trabajo, el autor concluye que la relación de SEI doble a simple (en función de la energía del proyectil (en MeV/amu) dividida por la carga del proyectil), es independiente del medio y de la carga del ion proyectil. Los resultados muestran un buen acuerdo con el presente EM\_CDW-EIS\_*Post* para el caso de impacto de iones de carbono a energías de hasta 10 MeV/amu. Sin embargo, para el caso del impacto de protones sobrestiman en un factor de 3 los datos experimentales.

En otro trabajo Meesungnoem & Jay-Gerin, (2005) desarrollaron un código Monte Carlo de transporte de partículas para investigar los efectos de la ionización múltiple de moléculas de agua en la formación de radicales libres y especies moleculares, en la radiólisis de agua líquida por impacto de iones. Incluyeron las SEIM como parámetros de ajuste en el código Monte Carlo para reproducir valores experimentales de rendimientos radiolíticos de oxígeno molecular. Dicho código Monte Carlo realizaba también otras aproximaciones, como la energía de los electrones emitidos después de fijar los eventos de ionización múltiple directa. Esto también podría afectar los resultados de los rendimientos radiolíticos, contribuyendo a las incertidumbres en las SEIM obtenidas. La emisión Auger post-colisión se introdujo como en la aproximación 1Au descrita anteriormente; entonces, los resultados presentados por los autores corresponden a secciones eficaces de ionización múltiple directa. Como se observa, para el impacto de protones los resultados subestiman los valores experimentales y las predicciones ME\_CDW-EIS\_*Post*, especialmente en el rango de altas energías consideradas. Para los iones de carbono, los resultados muestran una tendencia diferente en comparación con las presentes predicciones teóricas EM\_CDW-EIS\_*Dir*. Sin embargo, la conclusión de que la SEIM depende de la carga del ion, enunciada en el trabajo, también se observa aquí. Para el caso del impacto de protones en agua líquida, la doble ionización representa el 1% de los procesos de ionización a energías superiores a 1 MeV. Sin embargo, cuando aumenta la carga del proyectil, la contribución de las SEIM a la emisión de electrones también aumenta, alcanzando valores superiores al 20% para energías en la región de máxima dosis de deposición para los iones de carbono. Por lo tanto, una buena descripción de estas secciones eficaces es relevante para los estudios de los efectos radiobiológicos.

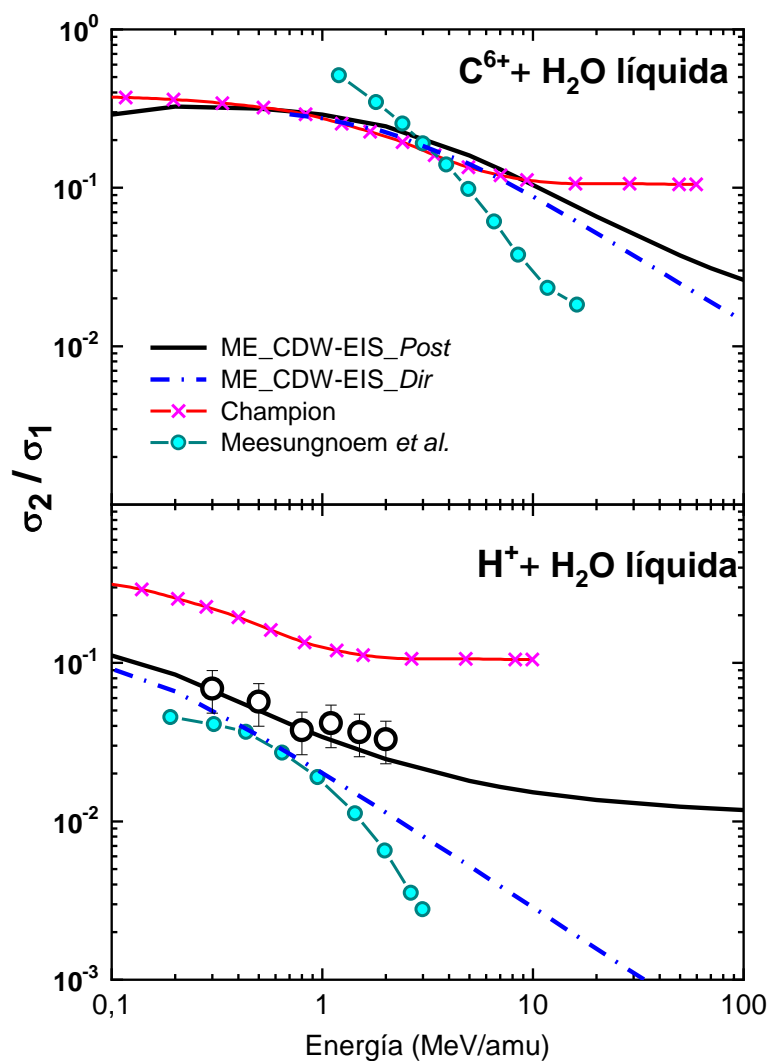


Figura 3.23: Razón de SEIM doble a simple para impacto de protones e iones de carbono en agua líquida. Modelos teóricos: línea llena negra, ME\_CDW-EIS\_Post; línea trazo y punto azul, ME\_CDW-EIS\_Dir; línea con cruces (Champion (2003)); línea con círculos (Meesungnoem, Jay-Gerin (2005)). Valores experimentales: círculos abiertos (Tavares et al. (2015)).

### 3.4.5 Aproximación en moléculas diatómicas

En esta sección se estudia la SEIM y la emisión post-colisión en moléculas diatómicas como las moléculas de CO y N<sub>2</sub>. Las probabilidades de ionización simple por orbital se calculan utilizando el modelo exponencial, sección 3.4.3., y se realiza una aproximación al describir los orbitales moleculares desde el punto medio de la distancia interatómica, ver Figura 3.24. Para ello, para cada orbital molecular se toma un radio efectivo representado por el radio atómico de Born.

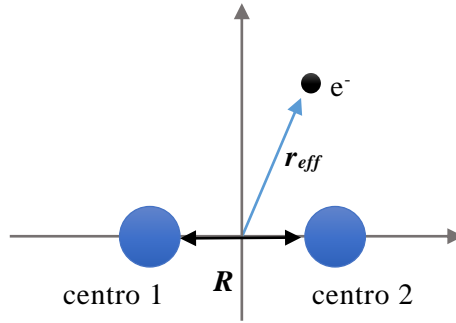


Figura 3.24: Esquema radio efectivo moléculas diatómicas

Para ambas moléculas en estudio se consideraron  $K=7$  orbitales moleculares con 2 ( $N_j$ ) electrones en cada uno. Por lo cual, algunos orbitales moleculares fueron desdoblados. De esta forma, la probabilidad de ionización total directa de  $n$  ( $\leq 14$ ) electrones es:

$$P_n(b) = \sum_{q_1+q_2+\dots+q_7=n} \left( \prod_{j=1}^{K=7} C_{q_j}^2 p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{2-q_j} \right) \quad (3.26)$$

siendo  $q_j=0,1,2$ .

Para el caso de ionización con emisión post-colisión tenemos que:

$$P_{n,Post}(b) = \sum_{q_1+\dots+q_7+\alpha=n} \left( \prod_{j=1}^{K=7} C_{q_j}^2 p_j(b)^{q_j} [1 - p_j(b)]^{2-q_j} \right) \mathcal{P}(q_1, \dots, q_7, \alpha) \quad (3.27)$$

En el tratamiento de moléculas diatómicas estudiadas se considera la emisión de un *solo electrón Auger* cuando se emite un electrón por ionización directa de los electrones del core (capa más interna de la molécula). Como se vio anteriormente para los blancos de agua y de Ne, esta aproximación subestima la ionización múltiple para energías de impacto altas. Sin embargo, para el caso de impacto de protones permite una buena aproximación al cálculo de la doble ionización y puede ser fácilmente introducida en los códigos Monte Carlo de transporte de partículas. Para el caso de estas moléculas en estudio, se considera la emisión de un electrón Auger al generarse una vacancia en los orbitales  $1s$  (O) o  $1s$  (C) para CO, y en los orbitales  $1\sigma_g$  o  $1\sigma_u$  del  $N_2$ . En la tabla 3.6 se muestran los coeficientes  $\beta_j(\alpha)$  utilizados.

Tabla 3.6: Probabilidades de emisión post-colisión después de una ionización simple de los orbitales moleculares más internos para las moléculas de CO y  $N_2$ .

	CO		$N_2$	
$\alpha$	$\beta_{1s(O)}(\alpha)$	$\beta_{1s(C)}(\alpha)$	$\beta_{1\sigma_g}(\alpha)$	$\beta_{1\sigma_u}(\alpha)$
0	0	0	0	0
1	1	1	1	1
2	0	0	0	0

Como se puede observar en la Tabla 3.6, la probabilidad de “no emitir” electrones Auger ( $\alpha=0$ ) es 0, por lo cual toda la probabilidad está en la emisión de un solo Auger ( $\alpha=1$ ) al ionizarse la capa más interna de la molécula. Haremos referencia a esta aproximación como *1Aug*.

En la Tabla 3.7 se muestra la configuración electrónica en el estado fundamental de la molécula de CO, la población electrónica y las energías de enlace. Los valores para la molécula de N<sub>2</sub> se muestran en la Tabla 3.1.

Tabla 3.7: Configuración electrónica del estado fundamental de la molécula de CO: orbitales moleculares, población electrónica y energía de enlace en eV.

Orbital Molecular (nj)	Población Electrónica	Energías de enlace
O (1)	2.00 (O1s)	542.1
C (1)	2.00 (C1s)	295.9
1 $\sigma$ (2)	1.207 (O2s)+0.178 (O2p)+0.333(C2s)+0.282(C2p)	38.3
2 $\sigma$ (2)	0.627 (O2s)+0.985 (O2p)+0.386(C2s)+0.002(C2p)	20.1
1 $\pi$ (2)	2.98 (O2p)+ 1.02(C2p)	17.2
3 $\sigma$ (2)	1.207 (O2s)+0.178 (O2p)+0.333(C2s)+0.282(C2p)	14.5

### 3.4.5.1 Resultados

En la Figura 3.25 comparamos las SEIM calculadas de CO por impacto de protones con valores experimentales, para la ionización simple, doble y triple. Las curvas de ME\_CDW\_1Aug muestran muy buena concordancia con los datos experimentales para el caso de simple y doble ionización. Los resultados de triple ionización subestiman los resultados experimentales a partir de los 2 MeV. A energías cercanas al 1 MeV la ME\_CDW\_Dir decae para la ionización doble y a energías menores para la ionización triple. Esto concuerda con el *parámetro de Bohr*,  $Zp/v$ , mostrado en el eje superior, donde se observa que esta separación se produce para  $Zp/v \leq 0,2$  en el caso de q=2, y para valores menores en el caso e q=3.

También se comparan nuestros cálculos con los resultados de Tachino et al. (2008) donde también utilizó el ME para las probabilidades de ionización por orbital y el modelo CDW-EIS para las secciones eficaces de ionización. Se muestran los resultados al considerar los efectos post-colisión y sin estos, los cuales nombramos ME\_Aug y ME\_Dir respectivamente. En la ionización simple estas curvas dan muy cercanas a las nuestras y a los datos experimentales. En la doble y triple ionización sus resultados con efectos post-colisión tienen un mejor acuerdo con los valores experimentales. Esto se debe a que ha considerado no solo la emisión Auger al ionizarse la capa más interna de la molécula, sino también al ionizarse el orbital 2s empleando las probabilidades de Carlson et al. (1966).

En la Figura 3.26 se comparan las SEIM calculadas para CO y N<sub>2</sub> por impacto de protones, para ionización simple, doble y triple. Para ambos medios se puede observar un

muy buen acuerdo al considerar la emisión post-colisión de 1 electrón Auger. Nuevamente la ionización directa ME\_CDW\_Dir subestima los resultados con post-colisión.

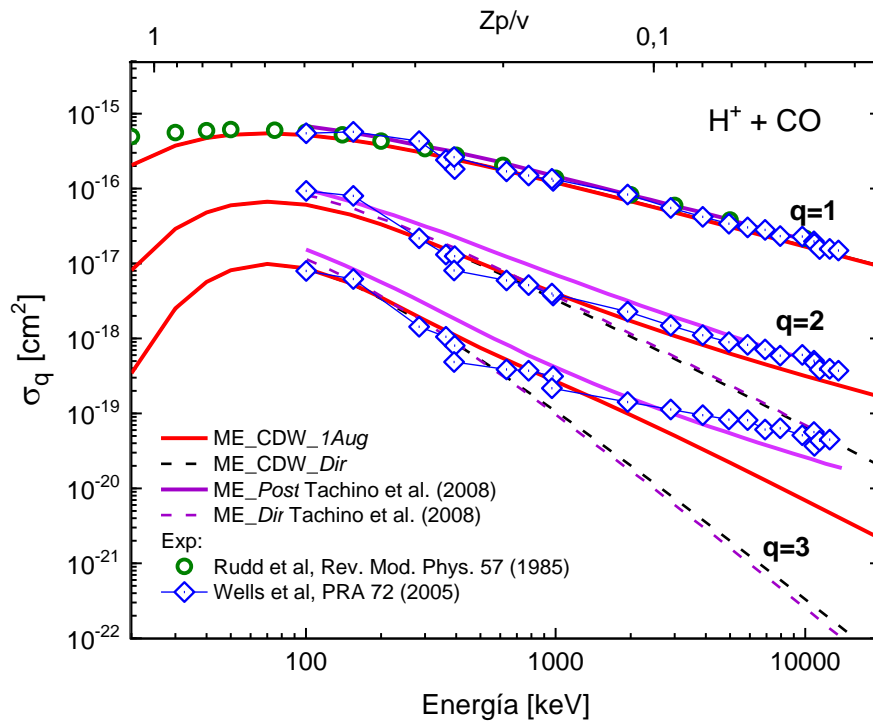


Figura 3.25: SEIM para CO por impacto de protones. Modelos teóricos: línea llena, CDW-EIS-MO post-colisión; línea trazo, CDW-EIS-MO directa. Valores experimentales: círculo (Rudd, Goffe, et al. (1985b)) y rombo con trazo (Wells et al. (2005)).

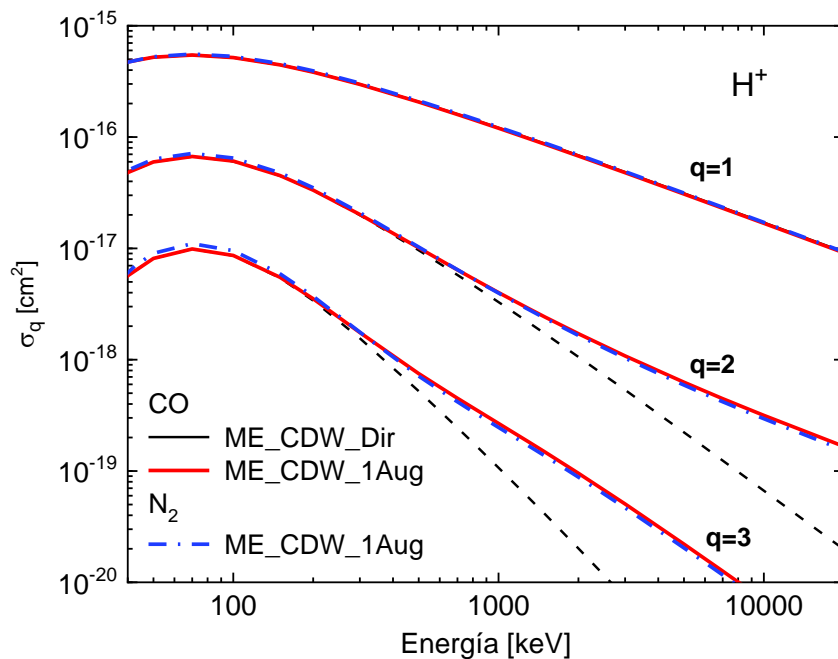


Figura 3.26: SEIM para CO y N<sub>2</sub> por impacto de protones. Modelos teóricos en CO: línea llena, CDW-EIS-MO post-colisión; línea trazo, CDW-EIS-MO directa. En N<sub>2</sub>: línea punto y trazo CDW-EIS-MO post-colisión.

## CONCLUSIONES

En este capítulo se estudiaron las SE simple diferencial y total por impacto de iones (protones y iones de carbono) en blancos moleculares necesarios para el cálculo de la dosis física, esto es en agua líquida y vapor, nitrógeno y oxígeno. Para obtener las SE de ionización se utilizaron dos modelos: el desarrollado por Rudd et al. (1992) para impacto de protones y el modelo mecánico cuántico de onda distorsionada CDW-EIS (Rivarola et al. (2013); Stolterfoht et al. (1997)). Este último es un modelo de dos centros coulombianos, por lo cual no solo permite estudiar las secciones simple diferenciales, como el otro modelo, sino también las doble diferenciales en función del ángulo y la energía del electrón emitido. Las SEI calculadas con estos modelos tiene un buen acuerdo entre sí en el rango de energías intermedias y altas, y con los datos experimentales. Se aplica la aproximación relativista a la energía cinética del proyectil, que influye en el rango de energías superiores a los 50 MeV/u. De esta forma, se pudo abarcar el rango de altas energías relevante en Hadronterapia, esto es, de 250 MeV para impacto de protones y de 400 MeV/u para impacto de iones de carbono. En el caso de la excitación electrónica no existen hasta la fecha datos experimentales ni modelos teóricos desarrollados para iones. Al ser elaborados en base a datos experimentales por impacto de fotones y electrones se utilizan estas secciones eficaces escaladas a igual velocidad para los iones. Esta aplicación tiene validez en el rango de energías intermedias y altas. Por todo ello, las secciones eficaces de excitación son las más difíciles de aproximar y aportan incertezas significativas al cálculo de los parámetros físicos estudiados, especialmente en el rango de energías que poseen los iones en la región distal del pico de Bragg.

Se estudió además la ionización múltiple y emisión post colisional por impacto de iones. Para ello, se desarrollaron dos modelos teóricos muy simples en el marco del Modelo de Electrón Independiente, donde se utilizó una estadística multinomial con probabilidades de ionización simple calculadas como funciones exponenciales decrecientes. Los parámetros de estas funciones exponenciales se obtuvieron a partir de las secciones eficaces de ionización neta total correspondientes a cada orbital molecular o atómico, las cuales se presentaron en este capítulo. El primer modelo se aplica a moléculas de tipo Ne, 10 electrones, y con fuerte carácter monocentrico como lo es agua. El otro modelo describe la ionización múltiple en moléculas diatómicas como el monóxido de carbono y el nitrógeno, donde se tuvo en cuenta el carácter molecular al considerar los orbitales moleculares. En estos modelos de ionización múltiple se incluyó la contribución post-colisión de emisión Auger, tras la ionización de los orbitales más internos de las moléculas. Para ello, se utilizó la emisión de electrones de Ne post-fotoionización medida para la molécula de agua y probabilidades de emisión más simple para las moléculas diatómicas, donde este efecto no va acompañado de la ionización directa de los orbitales más externos. Los resultados muestran una notable concordancia con los datos experimentales y otros modelos teóricos a pesar de la simplicidad del modelo. Su implementación en los códigos Monte Carlo de transporte de partículas serían muy útil para estudiar el daño en los tejidos biológicos provocado por protones y iones más

pesados, no solo utilizados en tratamientos de hadronterapia sino también presentes durante los viajes espaciales.

## CAPÍTULO 4 Simulación Monte Carlo para el transporte de partículas

Las simulaciones Monte Carlo son utilizadas en muchos campos de investigación, como ser astrofísica, física de altas energías, física nuclear, modelos de biofísica y física médica entre otros. Estas simulaciones se basan en métodos estadísticos, a través del conocimiento de las probabilidades de diferentes procesos y del tiraje de números aleatorios, para la resolución de problemas de naturaleza estocástica. En particular, permiten abordar el transporte de partículas para el estudio de la deposición de la energía en un medio, que resulta relevante en dosimetría y microdosimetría en Física Médica. Hasta el momento se han desarrollado diversas plataformas de simulación y todavía se están ampliando para estudiar, por ejemplo, la deposición de energía en agua líquida, biomoléculas y células para estudiar los efectos biológicos de las radiaciones ionizantes (Nikjoo et al. (2006); Plante, Cucinotta (2010); Dingfelder et al. (2008); El Naqa et al. (2012), Poignant, et al. (2020); Alcocer-Ávila et al. (2019); Incerti et al. (2018)).

En este capítulo se presentarán en detalle los códigos de transporte Monte Carlo MDM (Tessaro et al. (2019); Poignant, et al. (2020)) y MDM-Ion (Tessaro et al. (2021)) utilizados y optimizados para el desarrollo de la presente Tesis. En particular, se amplió el código MDM a otros blancos de interés en el campo de la física médica, como el agua vapor y moléculas que componen el aire. Luego se lo extendió creando una nueva rama, MDM-Ion, para contemplar el caso de iones como proyectiles, tales como protones e iones de carbono, en diferentes blancos moleculares. El código de transporte original fue desarrollado por investigadores del Instituto de física nuclear de Lyon (IPNL), la Universidad de Lyon 1, y el CIMAP y ENSI Caen en Francia en colaboración con el Instituto de Física de Rosario. Este surge del código LQD (LiQuiD), el cual tiene la capacidad de transportar electrones e iones, evento a evento, en agua líquida. Fue desarrollado inicialmente para simular la producción de especies moleculares y radicales libres mediante la interacción de iones pesados rápidos con agua líquida (Gervais et al. (2005); Gervais et al. (2006)). En dichas investigaciones se estudió además la relevancia de incluir secciones eficaces de procesos multielectrónicos para describir correctamente mediante simulaciones los campos radiolíticos de especies químicas tales como  $H_2O_2/O_2$ , obteniendo excelente acuerdo con datos experimentales. Luego, fue modificado para contemplar varios dominios heterogéneos, lo que ha llevado a la creación de una versión reestructurada llamada MDM (MeDiuM) para el medio. Este código se utilizó para estudiar la radiólisis de agua confinada en sílice porosa (Ouerdane et al. (2010)), o más recientemente para estudiar la influencia de nanopartículas de oro en agua en nano dosimetría y producción de especies químicas (Poignant et al. (2020); Poignant et al. (2020)). Recientemente, como parte del trabajo de mis tesis se ha modificado para estudiar parámetros físicos de relevancia en dosimetría de referencia, como lo es el valor  $W$  (Tessaro et al. (2019), Tessaro et al. (2021)).

## 4.1 Estado del arte

En las últimas décadas, la aplicación de las simulaciones de transporte de radiación Monte Carlo en el campo de la radiobiología ha visto un cambio distintivo en la escala de aplicación: desde escala milimétrica (macroscópica-tejido) a escala micrométrica (célula) y más recientemente a escala nanométrica (daño a nivel de moléculas de ADN). Teniendo en cuenta los detalles de las simulaciones, la calidad del haz de radiación (tipo de partícula y energía) y el tamaño del objetivo a estudiar, los códigos de Monte Carlo se clasifican generalmente como “*códigos de historia condensada*”, o por sus siglas en inglés CHMC y “*códigos de estructura de seguimiento*”, o por sus siglas en inglés MCTS, (Nikjoo et al. (2006)). Los códigos CHMC se caracterizan por agrupar un gran número de interacciones físicas, utilizando teorías de dispersión múltiple y datos tabulados de parámetros físicos (tales como poderes de frenado, secciones eficaces, etc.) para así ser aplicables a diferentes materiales. De esta forma, se acelera el tiempo de simulación, pero se reduce la precisión espacial de la deposición de energía, especialmente a nivel del micrómetro y del nanómetro. Entre los códigos más utilizados que emplean esta técnica están, Geant4 (Agostinelli et al. (2003); Allison et al. (2006); (2016)), PENELOPE (Baró et al. (1995)), MCNP (Briesmeister et al. (1986)), PHITS (Sato et al. (2018)) y FLUKA (Ferrari et al. (2005)). Estos códigos presentan una gran variedad de partículas proyectiles y medios como blanco en estudio. Además, son denominados códigos Monte Carlo de “uso general” ya que pueden utilizarse para una gran variedad de aplicaciones que van desde en el campo de la física de alta energía, hasta la física médica y aplicaciones de radiación espacial. En Tabla 4.1 se presenta una lista de estos códigos CHMC, el haz y el medio que simulan.

Tabla 4.1: Lista de códigos de transporte de radiación Monte Carlo de historia condensada (CHMC) empleados para todos los medios (Nikjoo (2006)).

Código	Partícula	Rango de energía	Referencia
ETRAN	$e^-$ , fotón	10 keV–1GeV	Berger y Seltzer (1973)
EGS4	$e^-$ , fotón	10 keV–1GeV	Nelson et al. (1985)
FLUKA	p, n, mesón	1 keV–GeV	Fasso et al. (2005)
GEANT4	p, n, mesón	250 eV–GeV	Agostinelli et al. (2003)
MCEP	$e^-$ , fotón	1 keV– 30 MeV	Uehara (1986)
MCNP5	n, $e^-$ ,fotón	Ver referencia	Goorley et al. (2003)
MCNPX	n, iones livianos	Ver referencia	Hendricks et al. (2005)
PENELOPE	$e^-$ , $e^+$	100 eV–1 GeV	Salvat et al. (2003)
PHITS	HZE (*)	MeV–GeV	Iwase et al. (2002)
PEREGRINE	$e^-$ , fotón	Haces de terapia	Hartmann Siantar y Moses (1998)
PTRAN	protones	<250MeV	Berger (1993)
SRIM	todos los iones	keV – 2 GeV/u	Ziegler et al. (2003)
SHIELD-HIT	$1 < Z < 10$	1 MeV/u–1 TeV/u	Gudowska et al. (2004)

(\*) abreviación de las palabras en inglés “high atomic number energy”, esto es, incluye todas los núcleos de los elementos con Z mayor al H y He.

Los códigos de estructura de seguimiento MCTS proporcionan un tratamiento detallado de todas las interacciones (elásticas e inelásticas) utilizando modelos teóricos y semiempíricos de colisión y, por lo tanto, ofrecen la resolución espacial adecuada para pequeños objetivos biológicos. Estas simulaciones son ampliamente reconocidas como el enfoque preferido para micro y, especialmente, nano dosimetría. Se han desarrollado diversos códigos con aplicaciones radiobiológicas, siendo ejemplos notables los códigos NOREC (Dingfelder et al. (2008)) PARTRAC (Friedland et al. (2011)), KURBUC (Liamsuwan et al. (2012)), SHIELD-HIT (Gudowska et al. (2004)) y Geant4-DNA, entre otros (Nikjoo et al. (2006)). Los proyectiles empleados contemplan electrones, protones e iones más pesados, y los medios en estudio son, en general, agua vapor o líquida. En la Tabla 4.2 se muestra una lista de algunos códigos MCTS actualmente publicados y utilizados en varios centros de todo el mundo. Estos pueden ser divididos en dos grupos, para agua líquida (l) y agua vapor (v), a excepción del código SHIELD-HIT que contempla materiales de tejido-equivalente.

El código MDM-Ion es un código de transporte del tipo MCTS, el cual estudia la etapa física de la interacción del ion, y todas las partículas secundarias generadas, con el medio. Una de las diferencias frente a los códigos detallados anteriormente, es que ha sido ampliado para contemplar medios gaseosos que componen el aire, como el nitrógeno y oxígeno, al ser necesarios para estudiar los parámetros físicos en la dosimetría de referencia que se realiza empleando cámaras de ionización. Los códigos que contemplan este medio son del tipo HCMC y aquellos del tipo MCTS han sido desarrollados para simular tejido biológico (agua y bases del ADN). Otra ventaja en el desarrollo del código MDM-Ion, ha sido la posibilidad de seleccionar los modelos teóricos y semiempíricos de secciones eficaces adecuados para la describir las trazas de las partículas en el medio y así obtener los parámetros físicos de interés con la mayor precisión y exactitud posibles.

Tabla 4.2: Lista de códigos de transporte de radiación Monte Carlo de estructura de seguimiento (MCTS) adecuados para el modelado biofísico a nivel molecular.

Código	Partícula	Medio	Rango de energía	Referencia
CPA100	$e^-$	Agua (l)	$\geq 10$ eV–100 eV	Terrissol and Beaudre, (1990)
DELTA	$e^-$	Agua (v)	$\geq 10$ eV–10 keV	Zaider et al. (1983)
ETRACK	$e^-$ , p, $\alpha$	Agua (v)	$\geq 10$ eV–10 keV	Ito (1987)
KURBUC	$e^-$	Agua (v)	$\geq 10$ eV–10 MeV	Uehara et al. (1993)
LEEPS	$e^-$ , $e^+$	Varios	0.1 – 100 keV	Fernandez-Varea et al. (1996)
LEPHIST	p	Agua (v)	$\geq 1$ keV–1 MeV	Uehara et al. (1993)
LEAHIST	$\alpha$	Agua (v)	$\geq 1$ keV/u – 2 MeV/u	Uehara and Nikjoo (2002a)
MC4	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , $\geq 0.3$ MeV/u iones	Emfietzoglou et al. (2003)
NOTRE DAME	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , $\geq 0.3$ MeV/u iones	Pimblott et al. (1990)
OREC	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , $\geq 0.3$ MeV/u iones	Turner et al. (1983)
PARTRAC	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , $\geq 0.3$ MeV/u iones	Friedland et al. (2003)
SHIELD-HIT	iones	Tejido-equivalente	Ver referencia	Gudowska et al. (2004)
GEANT4-DNA	$e^-$ , p, H, $\alpha$ , iones	Agua (l), ADN y Oro	Termalización–1 MeV $e^-$ 100 eV–100 MeV p, H 1 keV–400 MeV $\alpha$ , 0.5 MeV/u– $10^6$ MeV/u iones 0.1 eV–100 MeV	Incerti et al. (2018) <a href="http://geant4-dna.in2p3.fr">http://geant4-dna.in2p3.fr</a>
RITRACKS / RETRACKS	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$e^-$ , $10^{-1}$ MeV/u– $10^4$ MeV/u iones	Plante, Cucinotta (2009)
TILDA-V	$e^-$ , p, H, iones	Agua (v,l) y ADN	$\geq 7.4$ eV $e^-$ , 10 keV/u–100 MeV/u iones	Champion et al. (2005)
PITS04	$e^-$ , iones	Agua (l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Wilson et al. (2004)
PITS99	$e^-$ , iones	Agua (v)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Wilson and Nikjoo (1999)
SHERBROOKE	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Cobut et al. (2004)
STBRGEN	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Chatterjee and Holley (1993)
TRION	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Lappa et al. (1993)
TRACEL	$e^-$ , iones	Agua (v,l)	$\geq 10$ eV $e^-$ , iones $\geq 0.3$ MeV/u	Tomita et al. (1997)

## 4.2 Generalidades de la simulación Monte Carlo

El método Monte Carlo aplicado al transporte de partículas, consiste en la generación de trazas de la partícula incidente y las generadas en procesos inelásticos con las moléculas y átomos del medio (por ejemplo, electrones secundarios), utilizando números aleatorios. Estas trayectorias son vistas como una secuencia estocástica de eventos de interacción donde la partícula puede cambiar su dirección de movimiento, perder energía y, ocasionalmente, producir partículas secundarias. Para que dicha secuencia sea representativa de las probabilidades de ocurrencia de cada proceso físico, se deben estudiar los mecanismos de interacción de las partículas con el medio, atendiendo a las funciones de densidad de probabilidad determinadas por las secciones eficaces adecuadas.

Los componentes generales de las técnicas Monte Carlo son:

- Funciones de densidad de probabilidades (fdp): contienen información relativa a los procesos físicos subyacentes.
- Generador de números aleatorios: Se debe disponer de una fuente de generación de números aleatorios uniformemente distribuidos entre 0 y 1.
- Método de muestreo: Se debe considerar una regla para muestrear las variables de las funciones de densidad de probabilidades.

Los métodos de muestreo tienen como finalidad generar valores aleatorios de una determinada variable con una fdp asociada, a partir de una variable aleatoria uniformemente distribuida entre [0,1] (ver Apéndice A para más detalle). Existen varias técnicas; entre ellas las más utilizadas son: el método de inversión, el método de rechazo y el método dicotómico. En este trabajo se necesitó de estas técnicas para poder muestrear tres variables esenciales en la simulación de las trazas, esto es:

- 1) la energía cinética de los electrones emitidos en el proceso de ionización.
- 2) el camino libre  $s$  entre sucesivas interacciones de las partículas con el medio.
- 3) la elección en el tipo de interacción proyectil-medio.

Para el muestreo de las variables mencionadas se requieren las secciones eficaces simple diferenciales y totales de los todos los procesos inelásticos en la interacción radiación-materia. En la siguiente sección se describirá brevemente cómo se obtienen cada una de ellas, a fin de obtener una descripción completa de las trazas.

## 4.3 Generación de trayectorias aleatorias

La traza de cada partícula comienza en una dada posición, energía y dirección inicial de acuerdo al tipo de fuente. El “estado” de la partícula inmediatamente después

de haber interactuado con el medio se define por sus coordenadas de posición  $\vec{r}=(x,y,z)$ , su energía  $E$  y la dirección de vuelo, esto es las componentes del vector asociado  $\hat{d}$ . De esta forma, cada traza de la simulación se caracteriza por una serie de estados compuestos por estas tres magnitudes,  $\vec{r}_n$ ,  $E_n$  y  $\hat{d}_n$ , siendo  $\vec{r}_n$  la posición del  $n$ -ésimo evento y  $E_n$  y  $\hat{d}_n$  la energía y dirección de dispersión luego de haber ocurrido tal evento. Siendo que entre evento y evento se supone que la partícula se desplaza una longitud libre  $s$ , la posición de la próxima interacción está dada por:

$$\vec{r}_{n+1} = \vec{r}_n + s \hat{d}_n \quad (4.1)$$

donde el camino libre  $s$  y el tipo de interacción a ocurrir se obtienen de acuerdo a sus fdp como se describirá a continuación.

### 4.3.1 Longitud de camino y elección del tipo de interacción

Una partícula incidente sufre dispersiones aleatorias al moverse dentro de un medio con  $N$  moléculas por unidad de volumen. La longitud de camino libre  $s$  entre dos eventos sucesivos sigue la distribución estocástica de Poisson, esto es,

$$p(s) = N\sigma \exp[-s (N\sigma)] \quad (4.2)$$

siendo  $\sigma$  la sección eficaz de interacción.  $p(s) ds$  es la probabilidad de que ocurra la próxima interacción al recorrer un intervalo  $(s, s+ds)$ .

De aquí se define el **camino libre medio**  $\lambda$  como la longitud media entre dos colisiones:

$$\lambda = \langle s \rangle = \int_0^{\infty} s p(s) ds = \frac{1}{N\sigma} \quad [cm] \quad (4.3)$$

Su inversa  $\lambda^{-1} = N\sigma$  representa la probabilidad de interacción por unidad de longitud de camino.

Al reescribir la fdp  $p(s)$ , en función del camino libre medio y aplicando el método de inversión, se obtiene un muestreo del camino libre  $s$  con la expresión,

$$s = -\lambda_t \ln \xi \quad (4.4)$$

a partir de un número aleatorio  $\xi$  uniformemente distribuido en el intervalo  $[0,1]$ .  $\lambda_t$  es el camino libre medio total al contemplar todos los procesos de interacción posibles (elásticos e inelásticos),

$$\lambda_t^{-1} = \lambda_{elast}^{-1} + \lambda_{inel}^{-1} = \sum_j \lambda_j^{-1} \quad (4.5)$$

Una vez que la partícula ha recorrido un camino  $s$  se genera un tipo de interacción o proceso físico como ser la ionización, la excitación del blanco, etc. Podemos pensar al conjunto de estas interacciones como el resultado de una variable aleatoria discreta  $X$ , esto es, los valores discretos  $x=1, 2, ..$  representarían las interacciones con sus

correspondientes distribuciones de probabilidades  $p_1, p_2, \dots$ , las cuales están asociadas a las secciones eficaces de cada proceso físico. Estas probabilidades se asumen definidas en un intervalo  $(x_{min}, x_{max})$  con  $x_{min} < 1$  y  $x_{max} > N$ , número total de procesos físicos considerados. Por lo tanto, la “*Función de Distribución Acumulativa*” (FDA)” (apéndice A), queda de la forma;

$$P(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } x < 1 \\ p_1 & \text{si } 1 \leq x < 2 \\ p_1 + p_2 & \text{si } 2 \leq x < 3 \\ \vdots & \\ \sum_{i=1}^N p_i = 1 & \text{si } N \leq x < N + 1 \end{cases} \quad (4.6)$$

Para el caso que estamos estudiando, la probabilidad relativa de que ocurra un determinado proceso  $i$  en un diferencial  $ds$ ,  $p_{si}(x)$  se define:

$$p_{si}(x) = \frac{p_i(s < X < s + ds)}{p_t(s < X < s + ds)} = \frac{\lambda_i^{-1}}{\lambda_t^{-1}} \quad (4.7)$$

Entonces, al sortear un número aleatorio  $\xi$  uniformemente distribuido en  $[0,1]$ , se observa a que intervalo de las probabilidades acumulativas corresponde  $P_1 = 0, P_2 = p_{s1}, P_3 = p_{s1} + p_{s2}, \dots$ , y de esta forma se selecciona el evento de interacción, esto es:

$$\begin{aligned} x = 1 & \quad \text{si } \xi \leq P_2 \\ x = 2 & \quad \text{si } P_2 < \xi \leq P_3 \\ & \quad \vdots \\ x = j & \quad \text{si } P_j < \xi \leq P_{j+1} \\ & \quad \vdots \end{aligned} \quad (4.8)$$

Este método de muestreo se esquematiza en la Figura 4.1 (a) y (b). La figura (a) muestra las probabilidades relativas de interacción con  $x=1, \dots, 5$  y la (b) las probabilidades acumulativas  $P_i$ . Al sortear el número aleatorio  $\xi$  da como resultado, por ejemplo, el evento  $x=3$ .

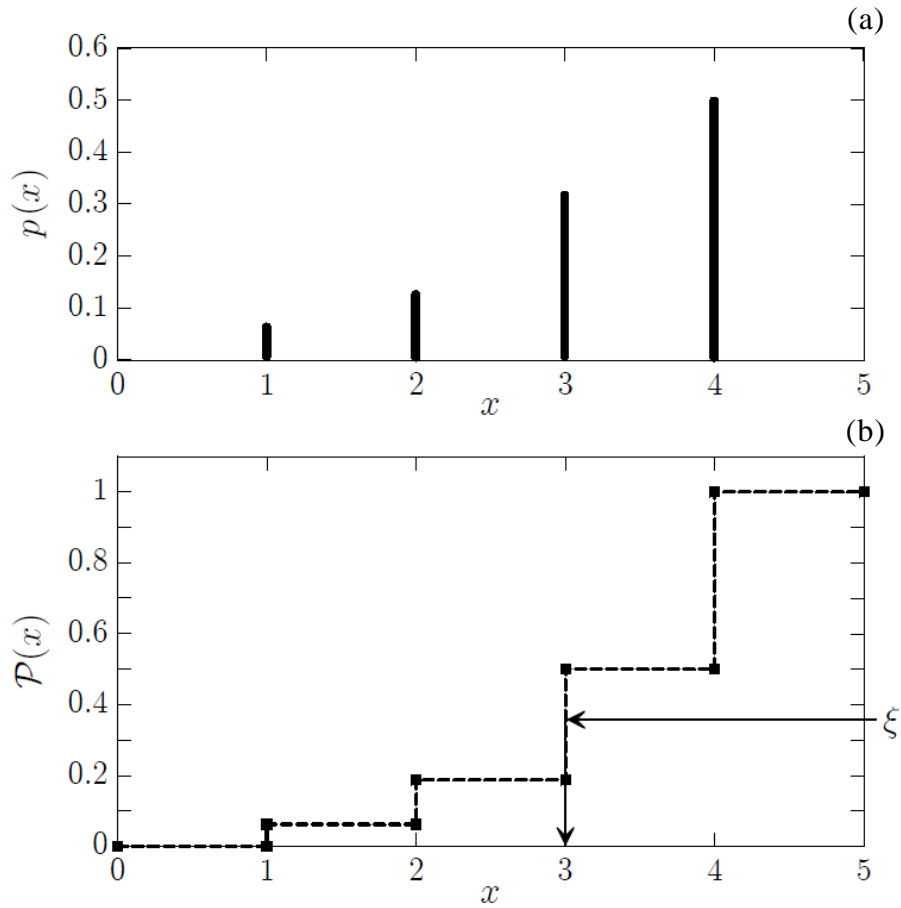


Figura 4.1: a) Función de distribución de probabilidad discreta de que ocurra una interacción. b) Función de distribución acumulativa discreta y selección del tipo de interacción.

### 4.3.2 Energía y dirección de dispersión

Hasta aquí se ha obtenido la longitud desplazada por la partícula y el tipo de interacción que ocurre al finalizar el vuelo libre. La dirección del desplazamiento descrita por el versor  $\hat{d}$ , se puede expresar en coordenadas cartesianas o polares, esto es:

$$\hat{d} = (u, v, w) = (\text{sen}\theta \cos\varphi, \text{sen}\theta \text{sen}\varphi, \cos\theta) \quad (4.9)$$

siendo el ángulo polar  $\theta \in [0, \pi]$  y el ángulo azimutal  $\varphi \in [0, 2\pi]$ .

La determinación de este versor, o distribución angular, tanto de la partícula dispersada como las nuevas generadas, se modeliza de acuerdo al proyectil, energía cinética de incidencia y el tipo de interacción con el medio. Si se considera, por ejemplo, una distribución angular isotrópica luego de un evento, la dirección de su vector unitario se puede representar como un punto de la superficie de una esfera unitaria con una distribución uniforme. De esta forma, la fdp es una función de  $\theta$  y  $\varphi$ ,

$$p(\theta, \varphi) d\theta d\varphi = \frac{1}{4\pi} \text{sen}\theta d\theta d\varphi = \left[ \frac{1}{2} \text{sen}\theta d\theta \right] \left[ \frac{1}{2\pi} d\varphi \right] \quad (4.10)$$



En el caso de una excitación electrónica la transferencia de energía se da de forma discreta, por la cual la energía final del proyectil se halla restando a su energía inicial la energía del  $k$ -ésimo estado de excitación del blanco,  $E_{n+1} = E_n - E_k$ .

En la próxima sección se especifican modelos de dispersión elegidos para los electrones e iones simulados en los códigos Monte Carlo MDM y MDM-Ion respectivamente.

#### 4.4 Modelización de la traza de electrones - MDM

El código original MDM contempla electrones y fotones como proyectiles para una amplia gama de elementos como medios: H<sub>2</sub>O, Al, Au, Fe, Cu, entre otros. Tiene la capacidad de rastrear evento a evento la historia de la partícula inicial y las generadas en los diferentes procesos. Entre ellos, el código incluye los procesos de:

- Dispersión elástica
- Ionización, simple y doble
- Excitación, electrónica y vibracional
- Attachment
- Efectos post-colisionales como fluorescencia y emisión de electrones Auger

La dispersión angular de los electrones proyectiles está asociada al tipo de fuente utilizada, esto es puntual, esférica, etc. Los subsiguientes electrones que se generen en la cascada electrónica, llamados secundarios, tendrán una dispersión isotrópica azimutal, esto es en el ángulo  $\varphi$ . La dispersión en el ángulo polar  $\theta$  se considera en función de la energía de los mismos (explicado en detalle en el Apéndice B).

En la Figura 4.3 se esquematiza con un diagrama de flujo resumiendo la secuencia del código MDM para obtener las componentes esenciales de una simulación, esto es las coordenadas de posición de todos los eventos, el tipo de interacción junto con la energía depositada por la partícula, su energía luego del proceso físico, etc. Cada electrón dispersado luego de un evento o un nuevo electrón, generado en el proceso de ionización, es considerado nuevamente como proyectil incidente y se sigue su camino hasta que su energía cinética es menor al umbral establecido o hasta que deje el volumen establecido según la geometría seleccionada.

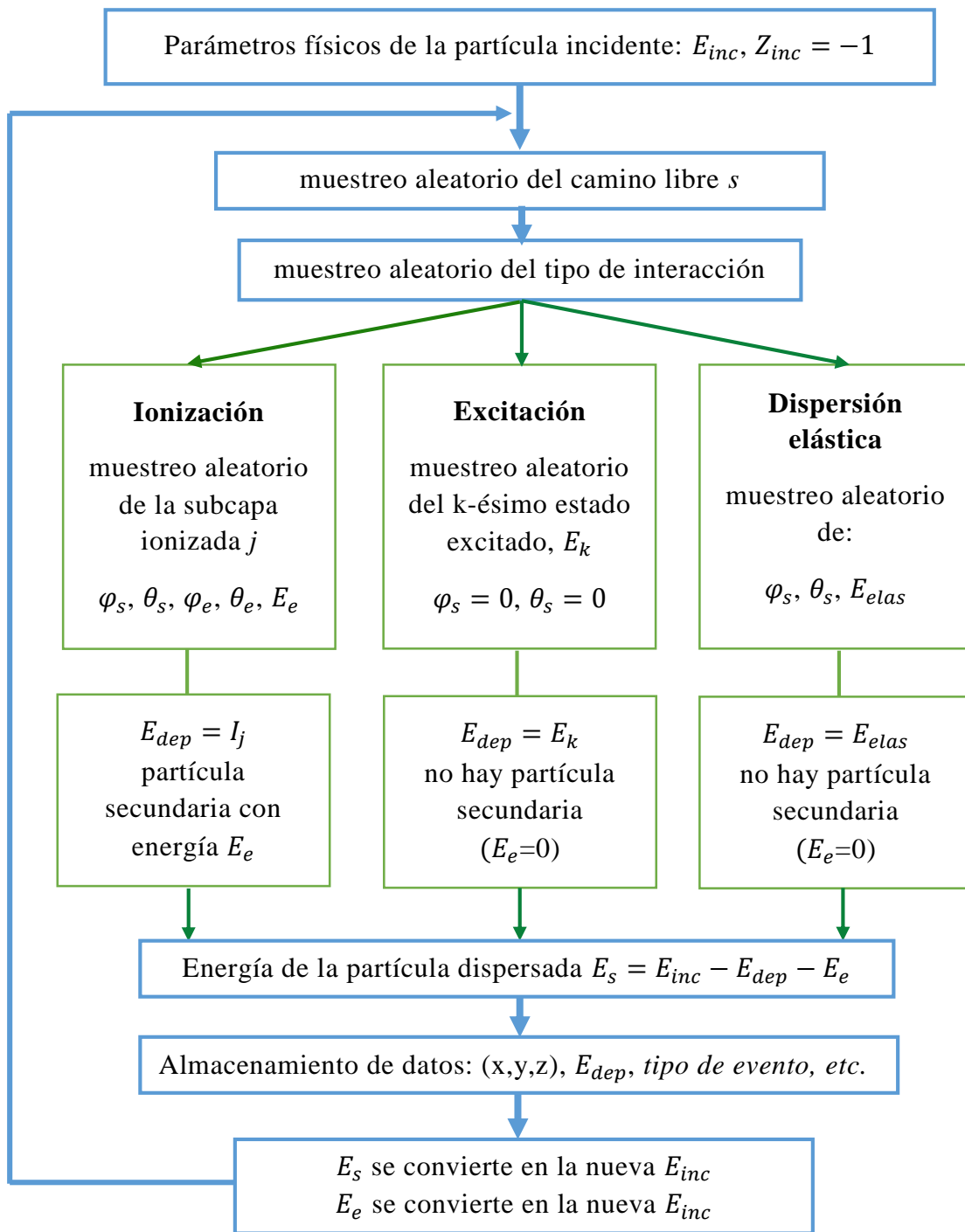


Figura 4.3: Diagrama de flujo del código Monte Carlo MDM indicando los pasos relevantes para la simulación de la traza de electrones. Los subíndices “s” hacen referencia a la partícula dispersada o scattering, los subíndices “e” se refieren a los electrones generados. Los subíndices de las energías “inc”, “dep” y “elas” hacen referencia a la incidente, depositada y elástica.

El código contempla diferentes geometrías para describir el medio que atraviesan las partículas. Se puede modelizar un medio con geometría cilíndrica, esférica, de caja y sin geometría, la cual se refiere a un volumen homogéneo sin bordes. Se pueden combinar diferentes geometrías con diferentes medios. Para ello, se necesita simular la trasmisión

de la partícula de un medio a otro a través de condiciones de contorno. La condición de contorno periódica es necesaria si se quiere preservar el equilibrio electrónico, es decir, que la pérdida de energía debida a las partículas secundarias que salen del volumen se compensa con las partículas que se producen fuera y depositan su energía dentro del mismo volumen.

Disponer de un código que permita trabajar con múltiples geometrías es fundamental para poder simular la presencia de la cámara de ionización (volumen que contiene aire) sumergida en un fantoma de agua líquida, en dosimetría de referencia. Realizar una simulación de este tipo es uno de los objetivos a futuro como continuación de esta Tesis y es por ello que se introdujeron todos los procesos físicos para los gases que componen el aire.

Las reformas realizadas al código original como parte de esta Tesis contemplaron modificar la arquitectura del código, con el fin de desarrollar nuevos módulos para introducir nuevos modelos teóricos y semiempíricos de secciones eficaces para diferentes partículas incidentes y medios. Los procesos que se introdujeron fueron los de ionización y excitación electrónica por impacto de electrones para los medios de agua vapor, oxígeno y nitrógeno, los cuales se describieron en el capítulo 2. Se definieron nuevas variables para poder calcular los parámetros físicos en estudio.

La simulación se desarrolló considerando un volumen homogéneo infinito, es decir sin geometría. En la Figura 4.4 se muestra la traza de una fuente puntual de electrones atravesando agua vapor en el plano XZ con energía inicial 1 keV. Cada punto a lo largo de ella, representa una interacción inelástica entre los electrones y el medio. La posición inicial de la fuente puntual se sitúa en el  $\vec{r}=(0,0,0)$ , la dirección inicial del proyectil es en el eje z y con sentido positivo. Es por ello, que se observa en la figura cómo la nube electrónica crece hacia las z positivas. En la Figura 4.5 se muestra la proyección sobre el plano XY donde se observa una nube electrónica con simetría circular.

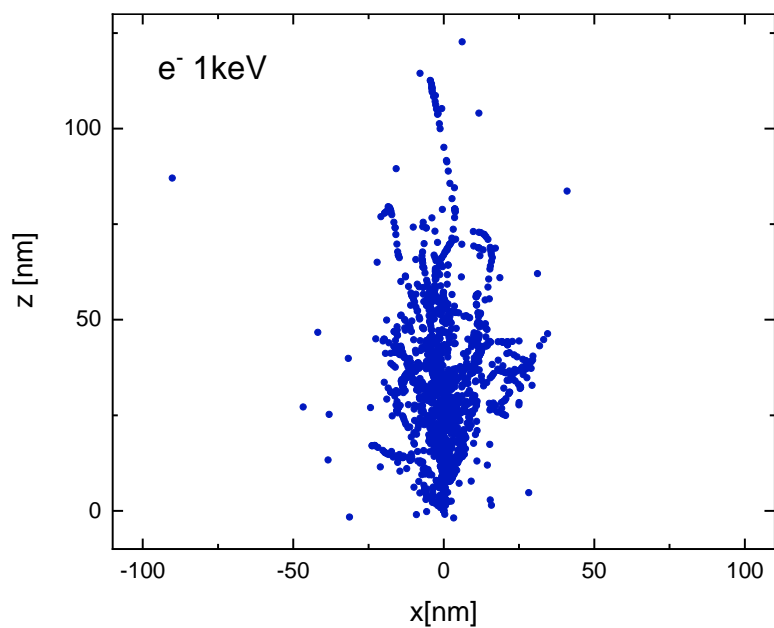


Figura 4.4: Proyección en el plano ZX de un segmento de traza de electrones con energía inicial de 1keV atravesando agua vapor simulado con MDM.

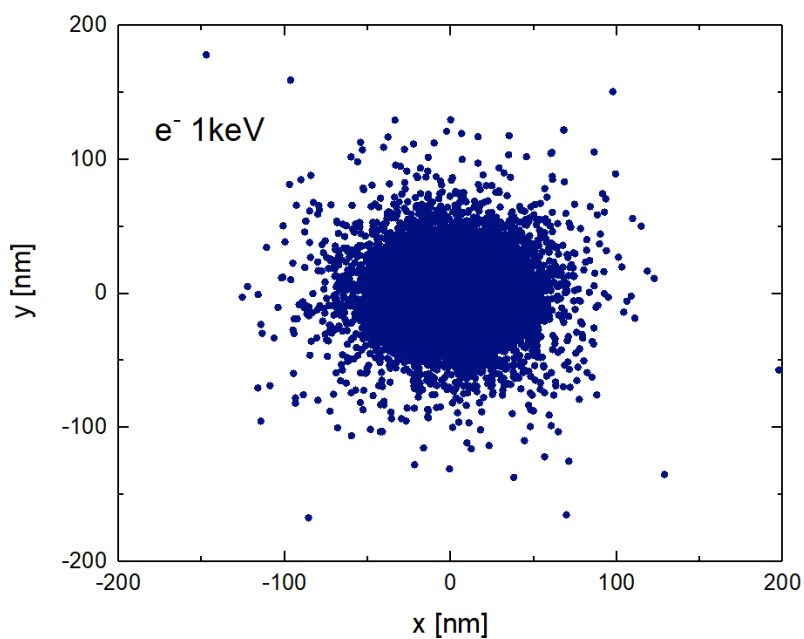


Figura 4.5: Proyección en el plano XY de un segmento de traza de electrones con energía inicial de 1 keV atravesando agua vapor simulado con MDM.

#### 4.5 Modelización para el transporte de iones en MDM-Ion

Una vez finalizado el proceso de simulación de electrones se desarrolló una nueva rama, llamada MDM-Ion para modelizar la traza de iones como protones e iones de

carbono. Se incorporaron secciones eficaces totales y simple diferenciales de ionización y excitación electrónica, los cuales se detallaron en el capítulo 3.

Se listan las principales características contempladas al desarrollar la simulación de la traza de iones rápidos en el medio:

- a) El ion sigue una trayectoria en línea recta (establecida como dirección  $z$ ). Las colisiones elásticas ion-molecular son relevantes para energías inferiores a 0.3 MeV/u (Emfietzoglou et al. (2000)).
- b) La energía cinética del ion se fija como constante en toda la longitud de la traza. La longitud de la misma se elige lo suficientemente corta para que el ion rápido pierda una pequeña cantidad de su energía cinética. La variación en las secciones eficaces del ion se consideran insignificantes, sin embargo, la pérdida de energía se obtiene para calcular los parámetros físicos como el poder de frenado y los valores  $w$ .
- c) Los procesos de captura electrónica se ignoran para las altas energías consideradas (a partir de 10 MeV/u). En consecuencia, los estados de carga de los protones e iones de carbono son 1 y 6, respectivamente.
- d) Se consideran la ionización múltiple y la emisión de electrones Auger post-colisión después de una ionización de un orbital interno.
- e) Se realizaron aproximaciones para considerar efectos relativistas en la energía cinética del proyectil debido al rango de altas energías estudiadas, el cual va desde los 10 MeV/u hasta los 700 MeV/u.
- f) La pérdida de energía se debe a las colisiones inelásticas, es decir, procesos de ionización y excitación electrónica.
- g) La emisión de electrones por impacto de iones se simula mediante una distribución isotrópica para reducir los tiempos de cálculo. De todos modos, la distribución angular de los mismos no influye en la determinación de los valores  $w$  y poderes de frenado.
- h) Según la descripción de geometría amorfa, las moléculas del medio se distribuyen en un volumen con geometría cúbica. Se aplican condiciones de contorno periódicas (Cunha, Testa, et al. (2017)) para imitar el equilibrio de partículas relacionado con los electrones delta expulsados. Las dimensiones del volumen se establecen lo suficientemente grandes para evitar cualquier correlación artificial en la dirección del haz ( $z$ ) debido a condiciones periódicas.
- i) Las moléculas blanco son tratadas como puntos y por lo tanto cualquier energía perdida por el proyectil en un evento de ionización o excitación se supone localmente depositada
- j) Todos los electrones son seguidos hasta que su energía este por debajo del umbral de excitación electrónica.

En la Figura 4.6, se presentan las proyecciones del plano XZ de las trazas de iones de carbono y protones en agua líquida. Los iones se mueven en línea recta (establecidos como eje  $z$  positivo) con una energía de 10 MeV/u a través del medio. Cada punto a lo largo de la ruta de los iones representa una interacción inelástica (como una ionización o una excitación electrónica) entre el ion primario y todas las partículas secundarias generadas

(electrones) con el medio. Se puede observar el patrón espacial de deposición de energía a nivel microscópico. La alta densidad de eventos inelásticos en la traza de iones de carbono en comparación con el haz de protones a la misma velocidad, está asociada a la dependencia de las secciones eficaces inelásticas con el cuadrado de la carga del ion: cuando las secciones eficaces son más grandes, el camino libre medio es menor ( $\lambda = (N\sigma)^{-1}$ ). Esto nos permite observar más trazas de electrones rápidos que se alejan del núcleo central de la traza de los iones de carbono en comparación con el de los protones. Esto también se puede observar en la Figura 4.7, donde se muestra una traza en 3D de un ion de carbono de 10 MeV/u atravesando agua líquida simulada con MDM-Ion.

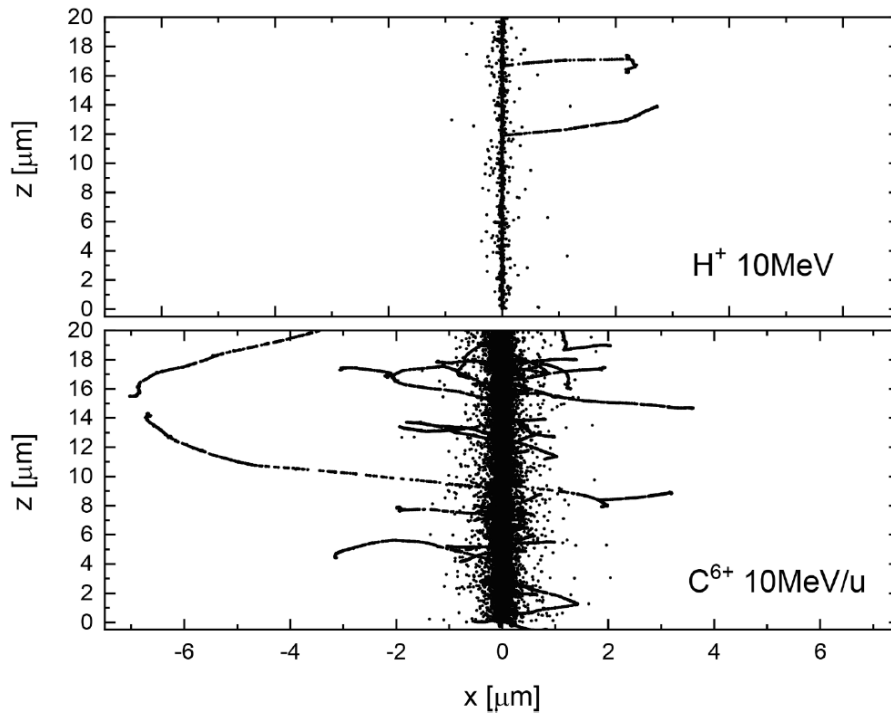


Figura 4.6: Proyecciones en el plano XZ de un segmento de traza simulado para proyectiles de iones de carbono y protones de 10 MeV/u en agua líquida mediante el código MDM-Ion.

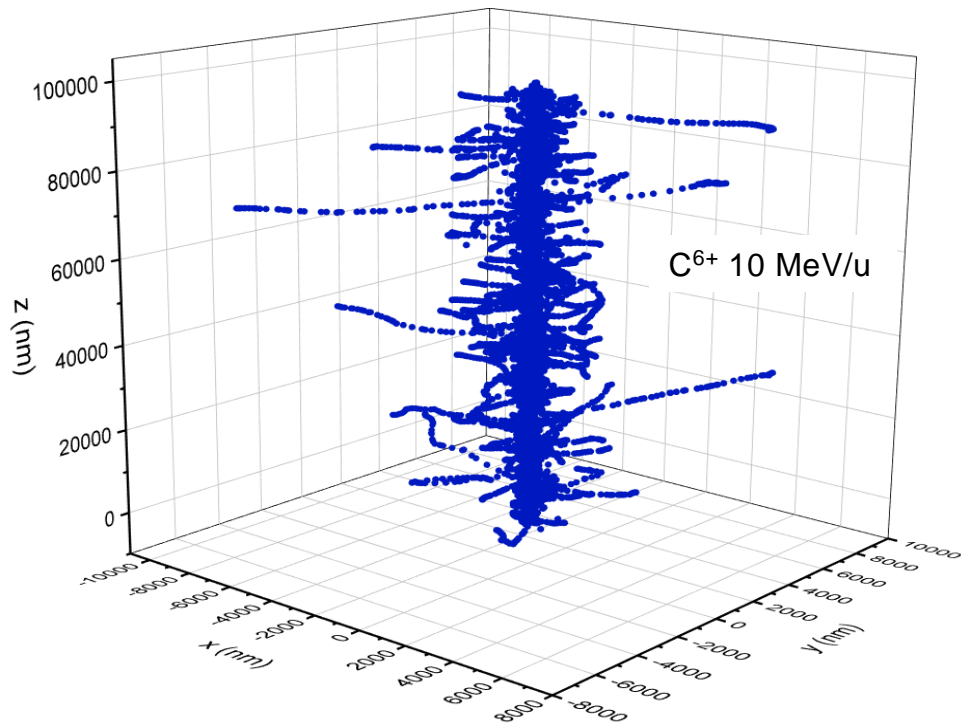


Figura 4.7: Traza 3D de un ion de carbono con energía de 10MeV/u atravesando agua líquida obtenida mediante el código MDM-Ion.

#### 4.5.1 Testeos en la incorporación de SE

Se incorporaron datos tabulados de las SE de ionización y excitación electrónica por impacto de electrones para los medios de agua vapor, nitrógeno y oxígeno. Los modelos teóricos seleccionados de SE ya se han mencionados en los capítulos anteriores. Se realizaron testeos de las SE y las energías perdidas por la partícula incidente entre otros.

En la Figura 4.8 se muestra un histograma donde se cuenta el número de electrones con energía cinética inicial de 1 keV que han sufrido un proceso de excitación electrónica sobre agua. En este caso se estaba utilizando el modelo semi-empirico de GS con los cinco estados de excitación electrónica. Por lo tanto, el conteo de estos electrones con energías finales de  $1\text{keV}-E_k$  se comparó con el cociente de la SEE del estado  $k$  con la SEE total, la cual nos daba la probabilidad de ocurrencia de este proceso. Como se puede ver el conteo da muy similar al valor teórico del cociente, lo cual nos indicaba que tanto las SEE introducidas como los parámetros en las energías de excitación estaban bien. Este mismo análisis se realizó tanto para las SEI como para los demás medios en estudio.

Los modelos de SE por impacto de iones también se testearon. En la Figura 4.9 se muestran las SESD de ionización por impacto de protones en nitrógeno. Se extrajo del código MDM-Ion tablas con la energía cinética del electrón eyectado luego de ionizarse la molécula de nitrógeno por impacto de un protón. Se realizó un histograma con estos datos tabulados y se comparó con las SESDI del modelo de Rudd para cada orbital molecular del nitrógeno. Se puede observar que los datos obtenidos del histograma

acuerdan muy bien con las curvas de SESDI de Rudd. Este testeo se realizó también para los demás blancos.

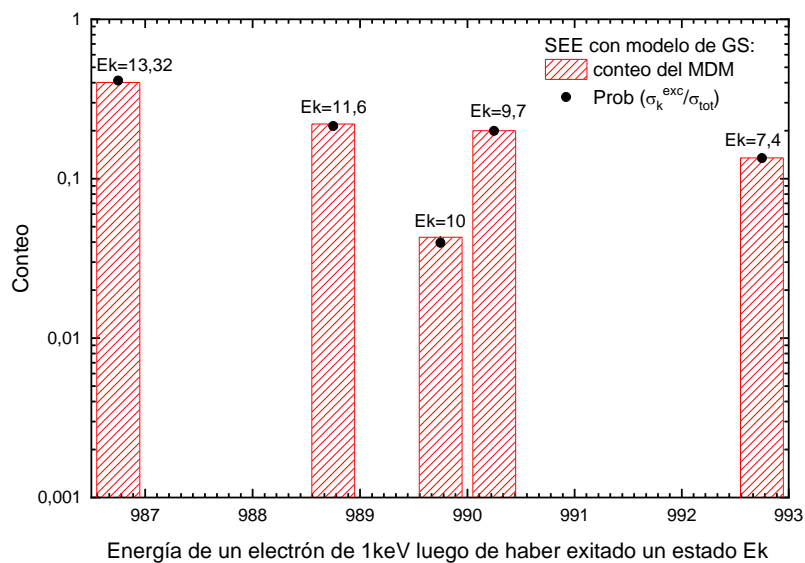


Figura 4.8: Histograma para validar la energía perdida por un electrón de 1 keV luego de una excitación.

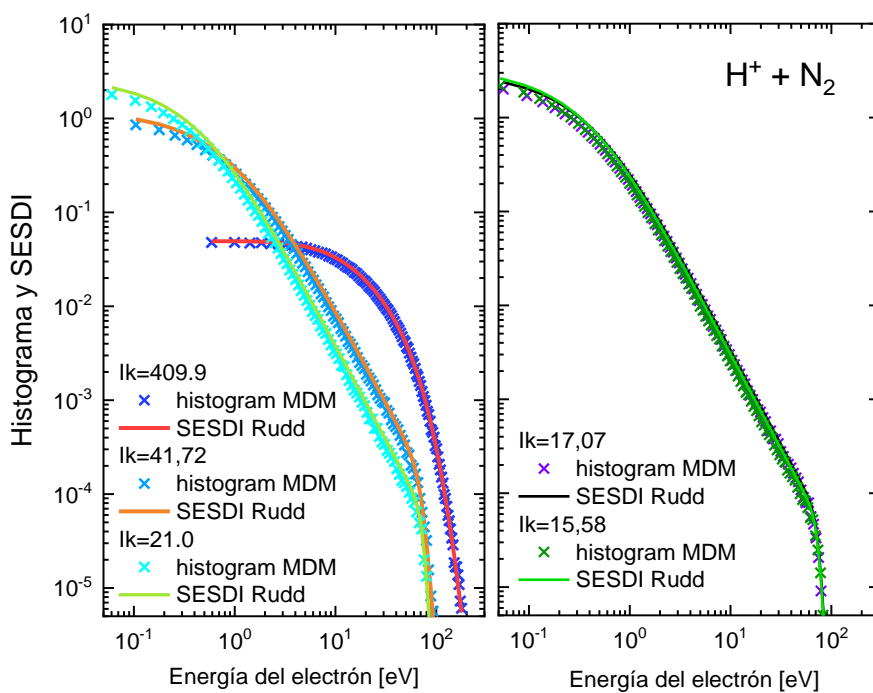


Figura 4.9: Histograma para validar las SESDI por impacto de protones en nitrógeno.

## CONCLUSIONES

En este capítulo se describió en detalle el código de transporte Monte Carlo MDM y su extensión, MDM-Ion (MeDiuM Ion version), utilizados en este trabajo para el cálculo de parámetros físicos relevantes en la dosimetría. Para ello, se detallaron los componentes esenciales de estos códigos necesarios para simular todos los eventos de interacción inelástica, y así obtener las trazas de todas las partículas, tanto la incidente como las generadas en las interacciones con el medio. Se especificaron las modificaciones realizadas al código MDM por impacto de electrones para contemplar otros blancos de interés en el campo de la física médica, como el agua vapor y moléculas que componen el aire. También, se describieron las modificaciones realizadas para ampliar este código al MDM-Ion y sus características más relevantes. De esta forma, se pudo simular las trazas de proyectiles de iones, como protones y iones de carbono, en diferentes blancos moleculares.

A partir de diferentes técnicas de testeo, se comprobó el correcto funcionamiento de los nuevos módulos introducidos y los modelos y datos de secciones eficaces. De esta forma se le dio confiabilidad y precisión a los resultados obtenidos. La implementación de este código para calcular los parámetros físicos, como el poder de frenado y los valores  $W$ , se verá en detalle en el próximo capítulo.

## APÉNDICES

### Apéndice A: Muestreo de una variable aleatoria

Los métodos de muestreo tienen como finalidad generar valores aleatorios  $x$  de una determinada variable  $\mathbf{X}$  con una *función de densidad de probabilidad* asociada ( $p(x)$  para el caso de variable aleatoria (v.a.) discreta y  $f(x)$  para v.a. continua), a partir de una variable aleatoria uniformemente distribuida entre  $[0,1]$ .

Sea  $\mathbf{X}$  una v.a. continúa distribuida en un intervalo  $(x_{min}, x_{max})$ , para calcular la probabilidad de obtener un valor  $x$  en un intervalo  $(a, b)$  se tiene que,

$$P(x| a < x < b) = \int_a^b f(x) dx \quad (\text{A.1})$$

Dado que los valores de densidad de probabilidad no pueden ser negativos y que el valor obtenido de  $x$  debe encontrarse en el rango  $(x_{min}, x_{max})$  la función  $f(x)$  debe ser positiva ( $f(x)>0$ ) y debe estar normalizada a uno,

$$\int_a^b f(x) dx = 1 \quad (\text{A.2})$$

Siendo que la probabilidad de obtener un valor del espacio muestral para una v.a. continua no tiene significado (la integral de un punto es cero), es útil utilizar la “*Función de Distribución Acumulativa*” (FDA) definida como la probabilidad de que el resultado de la v.a.  $\mathbf{X}$  sea menor a un valor “ $x$ ”,

$$F(x) = P(X \leq x) = \int_{-\infty}^x f(x') dx' \quad (\text{A.3})$$

Esta función tiene la propiedad de ser no decreciente y tomar valores entre  $[0,1]$  ( $P(x_{min})=0$  ,  $P(x_{max})=1$ ).

Por lo tanto, a partir de la FDA se puede obtener un muestreo de la variable aleatoria en estudio utilizando diferentes técnicas de muestreo. En la Figura 4.10 se esquematiza una fdp y su función acumulativa.

Ejemplo: Muestreo del camino libre  $s$  a partir del método de inversión.

La fdp del camino libre es,

$$p(s) = \lambda^{-1} e^{-s \lambda^{-1}} \quad , \quad s \geq 0 \quad (\text{A.4})$$

Para obtener un muestreo de la longitud de camino  $s$  que recorre la partícula antes de interactuar con el medio se utilizó el método de inversión. Este método consiste en dada la fdp  $p(s)$ , se obtiene su FDA  $F(s)$ , y se calcula su inversa  $F'(s)$ ,

$$\begin{aligned} F: S &\rightarrow [0,1] \\ s &\rightarrow F(s) = P(S \leq s) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

$$s = F'(\xi) \leftarrow \xi$$

Dado  $\xi$ , un número aleatorio uniformemente distribuido en el intervalo  $[0,1]$ , obtenemos un muestreo de  $S$  mediante la ecuación:

$$F(s) = \int_0^s \lambda_t^{-1} e^{-s \lambda_t^{-1}} ds = 1 - e^{-s \lambda_t^{-1}} \quad (\text{A.6})$$

$$\xi = 1 - e^{-s \lambda_t^{-1}} \rightarrow s = -\lambda_t \ln \xi$$

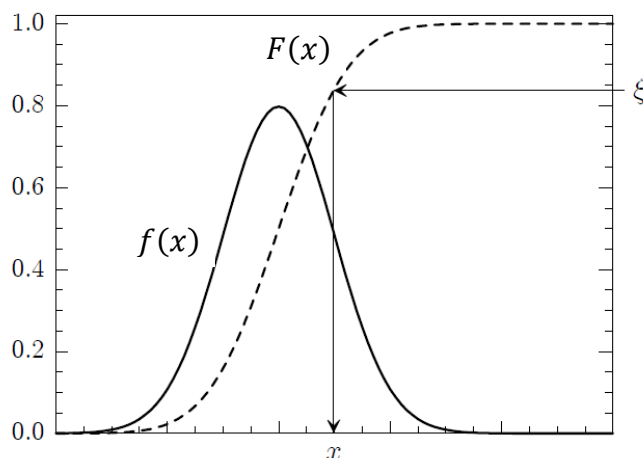


Figura 4.10: Muestreo aleatorio de una distribución  $f(x)$  a partir de la FDA  $F(x)$  siendo  $\xi$  un número aleatorio entre  $[0, 1]$ .

## Apéndice B: Distribución angular de los electrones en el proceso de ionización

Consideremos un electrón incidente con energía  $E_1$ , posición  $\mathbf{r}_0$  y velocidad  $\mathbf{v}_0$ . Luego de una ionización con la molécula se genera un electrón secundario con energía  $E_2$  y el electrón primario queda con una energía final  $E_1' = E_1 - I_k - E_2$ , siendo  $I_k$  la energía de enlace del electrón en la molécula. Luego de la colisión la dispersión azimutal es isotrópica, esto es en el ángulo  $\varphi_s$ . La dispersión en el ángulo polar depende del rango de energía del electrón incidente, esto es:

### Electrón primario luego de la colisión:

- Si  $E_1 < 100 \text{ eV}$  entonces el ángulo polar  $\theta_{p1}$  sigue una distribución uniforme entre  $[0, \pi/4]$ ,

$$\cos \theta_{p1} = \text{sen} \frac{\pi}{4} + \left(1 - \text{sen} \frac{\pi}{4}\right) \cdot \xi$$

siendo su probabilidad  $P(\theta_{p1}) = \frac{\text{sen} \theta_{p1}}{\left(1 - \text{sen} \frac{\pi}{4}\right)}$

- Caso contrario, el ángulo polar  $\theta_{p1}$  sigue una distribución de “encuentro binario” (Grosswendt, Waibel (1978)),

$$\text{sen}\theta_{p1}^2 = \frac{E_2}{E_1 \left( \frac{E_1 - E_2}{2c^2} + 1 \right)}$$

donde depende de las energías de los electrones.

Electrón secundario luego de la colisión:

- Si  $E_2 < 50 \text{ eV}$  entonces  $\theta_{p2}$  sigue una distribución isotrópica

$$\cos \theta_{p2} = 1 - 2\xi,$$

con una probabilidad  $P(\theta_{p2}) = \text{sen}\theta_{p2}/2$ .

- Si  $50 \text{ eV} < E_2 < 200 \text{ eV}$  un 90% son emitidos entre los ángulos  $[\pi/4, \pi/2]$  y un 10% restante isotrópicamente, entonces tenemos

$$\cos \theta_{p2} = 1 - 2\xi \quad \text{para el 10\%}$$

$$\cos \theta_{p2} = \text{sen}\frac{\pi}{4} \cdot \xi \quad \text{para el 90\%}$$

- Si  $E_2 > 200 \text{ eV}$  el ángulo polar  $\theta_{p2}$  sigue la distribución del “encuentro binario” (Grosswendt, Waibel (1978)),

$$\text{sen}\theta_{p2}^2 = \left( 1 - \frac{E_2}{E_1} \right) \cdot \frac{1}{\left( 1 + \frac{E_2}{2c^2} \right)}$$

Dispersión isotrópica en ambos ángulos: La dispersión isotrópica se muestrea de la función distribución,

$$p(\theta, \varphi) d\theta d\varphi = \frac{1}{4\pi} \text{sen}\theta d\theta d\varphi \quad (\text{B.1})$$

Siendo las funciones distribución

$$p(\varphi) = \frac{1}{2\pi} \quad \text{una constante} \quad (\text{B.2})$$

$$p(\theta) = \frac{1}{2} \text{sen}\theta$$

con  $\theta$  y  $\varphi$  ángulos polar y azimutal respectivamente.

Por lo tanto, el muestreo de los ángulos queda:

$$\varphi = 2\pi \xi \quad (\text{B.3})$$

$$\cos \theta = 1 - 2\xi$$

siendo  $\xi$  número aleatorio uniformemente distribuido entre 0 y 1.

## CAPÍTULO 5 Parámetros físicos relevantes en dosimetría de referencia

El Reporte Técnico TRS-398 (2000) de la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA) recomienda realizar la dosimetría de referencia para hadronterapia en términos de dosis absorbida en agua utilizando cámaras de ionización. El porcentaje de ionización del gas en el interior de la cámara (dato medido) debe ser luego convertido a dosis en agua por medio de diversos factores de conversión. Siendo que, además, esta dosimetría para protones e iones livianos se realiza con cámaras calibradas utilizando un haz de  $^{60}\text{Co}$ , se requiere de un coeficiente de corrección por la calidad del haz  $k_{Q,Q_0}$  (explicado en detalle en el capítulo 1), que depende de diversos parámetros físicos como el cociente de poderes de frenado en agua/aire  $S_{w/a}$  y los valores  $W$ . Estos parámetros representan la mayor fuente de incerteza en dosimetría de referencia (IAEA TRS-398 (2000)), que luego se traducen en incertezas en el cálculo de la dosis clínica. Resulta entonces relevante abordar investigaciones que permitan avanzar en el estudio de los poderes de frenado en agua y en aire y en valores  $W$  en agua y aire.

En el presente capítulo se presentan resultados obtenidos aplicando diferentes formalismos teóricos y simulaciones, basados en las aproximaciones de frenado continuo y Monte Carlo. En primer lugar, se aborda el cálculo del poder de frenado en agua líquida y en gases que conforman el aire para luego dar lugar a cálculos de valores  $W$  y  $w$  por impacto de electrones e iones sobre agua líquida y vapor.

### 5.1 Poderes de Frenado

La magnitud utilizada para describir la pérdida de energía de las partículas cargadas al atravesar un medio absorbente es el *Poder de Frenado*, o también llamado *Stopping Power*. Se define como la pérdida de energía de una partícula cargada con energía cinética  $T$ , al atravesar un medio, por unidad de camino

$$S = -(dT/dx) \quad (\text{MeV/cm}) \quad (5.1)$$

Al dividirlo por la densidad del medio absorbente  $\rho$ , se obtiene el poder de frenado másico:

$$S_{mas} = -\frac{1}{\rho} \left( \frac{dT}{dx} \right) \quad (\text{MeV cm}^2/\text{g}) \quad (5.2)$$

Las partículas cargadas interactúan tanto con los electrones orbitales como con los núcleos atómicos al penetrar la materia a través de fuerzas coulombianas. Dependiendo del tipo de partícula y de su energía cinética inicial, se pueden generar varias colisiones inelásticas hasta que transfiera por completo su energía cinética. De acuerdo al tipo de interacción, el poder de frenado se puede clasificar en: *electrónico*, donde la interacción se da con los electrones orbitales del medio; *radiactivo*, donde la interacción se da entre

partículas cargadas livianas y los núcleos del medio generando pérdidas radiactivas; y *nuclear*, el cual resulta de colisiones elásticas e inelásticas entre las partículas cargadas más pesadas y los núcleos del medio. El poder de frenado total se obtiene como la suma de estos términos. En este capítulo se estudiará solo el poder de frenado electrónico  $S_{elec}$ , ya que nos enfocaremos en el rango de energías donde este domina frente al de radiación para electrones y al nuclear para iones.

En esta sección se abordará el estudio del poder de frenado para los blancos: H<sub>2</sub>O, N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub>, por impacto de electrones, protones e iones livianos, utilizando dos métodos de cálculo en comparación con datos recomendados (NIST, n.d.; ICRU REPORT 49 (2015); ICRU REPORT 73 (2005); ICRU REPORT 37 (1984)) y valores experimentales. Las secciones eficaces requeridas para estos cálculos se toman de los modelos descriptos en los capítulos 2 y 3.

### 5.1.1 Modelos teóricos

Basado en la primera aproximación de Born (teoría cuántica de dispersión), en 1930 Bethe propuso la siguiente expresión para el cálculo del stopping power másico:

$$S_{elec}(T) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{mv^2} Z_T \ln\left(\frac{2mv^2}{I}\right) \quad (5.3)$$

donde:  $Z_p$  es el número atómico del proyectil,  $v$  su velocidad,  $Z_T$  el número atómico blanco (target),  $e$  y  $m$  la carga y masa del electrón respectivamente, e  $I$  el valor medio del potencial de excitación/ionización del blanco. Como puede observarse en esta fórmula, el poder de frenado presenta una dependencia con la carga del proyectil al cuadrado, independizando los resultados del signo de la carga.

La ley propuesta por Bethe fue modificada a lo largo de los años por distintos autores al considerar las distintas interacciones dependientes de las características de la partícula incidente (carga, masa y energía) y del medio. Los valores recomendados por los protocolos internacionales como ICRU REPORT 49 (2015); ICRU REPORT 73 (2005); ICRU REPORT 37 (1984), utilizan esta formulación con sus correspondientes correcciones (Ziegler et al. (2008)).

Una cantidad muy útil a la hora de describir la pérdida de energía de las partículas al atravesar un medio es la *Sección Eficaz de Stopping Electrónico*. Siguiendo la notación del ICRU REPORT 49 (2015), la denotamos  $\epsilon$  y puede evaluarse en términos de la sección eficaz diferencial por medio de:

$$\epsilon = \int E' \left(\frac{d\sigma}{dE'}\right) dE' \quad (eV \text{ cm}^2) \quad (5.4)$$

donde la integral abarca todas la posibles transferencias de energía  $E'$ , incluyendo tanto el espectro continuo como el discreto.

La relación entre la sección eficaz de stopping electrónico, con dimensiones de energía por área ( $\text{eV cm}^2$ ), y el stopping másico ( $S_{mas} = S_{elec}/\rho$ ) con unidades de  $\text{MeV cm}^2/\text{g}$  es,

$$\epsilon(T) = 10^{21} \left( \frac{M_m}{N_A} \right) \frac{S_{elec}}{\rho} \quad (10^{15} \text{ eV cm}^2) \quad (5.5)$$

siendo  $T$  la energía cinética inicial del proyectil,  $M_m$  la masa molar del medio en  $\text{g mol}^{-1}$  y  $N_A = 6,0221367 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$  el número de Avogadro.

### 5.1.1.1 Cálculo de Stopping Power aplicando la Aproximación de Frenado Continuo

En la *Aproximación de Frenado Continuo (Continuous Slowing Down Approximation CSDA)*, se asume que la partícula va perdiendo su energía de forma continua al atravesar el medio mediante colisiones inelásticas. Para el caso de impacto de partículas con carga negativa (electrones, antiprotones), la sección eficaz de stopping se obtiene por medio de la ecuación:

$$\epsilon(T) = \sum_n \sigma_n^{exc} \Delta E_n + \sum_n \sigma_n^{vib} \Delta E_n + \sum_k \left[ \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{d\sigma_k^{ion}}{dE} (E + I_k) dE \right] \quad (5.6)$$

donde los supraíndices indican el tipo de proceso inelástico,  $\Delta E_n$  y  $E + I_k$  son las energías transferidas por el proyectil con energía cinética  $T$ . Para el proceso de ionización  $E$  es la energía cinética del electrón emitido y  $I_k$  la energía de ligadura de la molécula.  $\sigma_n^{exc}$ ,  $\sigma_n^{vib}$  y  $\sigma_k^{ion}$  son las respectivas secciones eficaces.

En el caso de impacto de partículas con carga positiva también se utiliza la expresión anterior donde debería incluir el proceso de captura electrónica, lo que cambia el estado de carga del proyectil y hace más complejo el cálculo. Por ejemplo, en el caso de protones, el proceso de captura electrónica debe considerarse para energías de impacto menores a los 500 keV aproximadamente (Rivarola et al. (2013)). Una vez que el protón ha capturado un electrón, el proyectil se transforma en un átomo de hidrógeno neutro. De esta forma, el haz incidente queda integrado por partículas de dos estados de carga diferentes en equilibrio. Este efecto contribuye al poder de frenado de la siguiente manera:

$$S = f(H^+)S^+ + f(H^0)S^0 \quad (5.7)$$

donde  $f(H^+)$  y  $f(H^0)$  representan las fracciones del haz formadas por protones e hidrógenos y  $S^+$  y  $S^0$  son los correspondientes poderes de frenado. Siendo que el rango de energía en estudio en la presente Tesis supera los valores en los cuales la captura electrónica resulta relevante (por ejemplo, mayor a 500 keV para el caso de protones), la contribución de la fracción neutra puede despreciarse (Rivarola et al. (2013)).

### 5.1.1.2 Cálculo de Stopping Power por simulación Monte Carlo para el caso de impacto de iones

Los valores de  $S_{elec}$  de protones e iones de carbono se calcularon también mediante el código Monte Carlo MDM-Ion. Para ello, se simuló la traza del ion proyectil atravesando el medio en estudio, considerando una trayectoria rectilínea de longitud  $L_z$ , establecida con dirección del eje  $z$  positivo. De allí, se calculó la energía media perdida por el mismo  $E_{loss}$ , a través de colisiones inelásticas, para obtener el poder de frenado como el cociente:

$$S_{elec} = \frac{E_{loss}}{L_z} \quad (5.8)$$

Para el cálculo de secciones de stopping por impacto de iones se utilizaron las secciones eficaces de protones multiplicadas por el número atómico al cuadrado  $Z_p^2$ , como se describió en el capítulo 3. Esta aproximación, válida a altas energía de impacto, se puede trasladar directamente al cálculo del stopping multiplicando el de protones por el factor  $Z_p^2$ , esto es:

$$S_{elec}^{C^{6+}} = Z_p^2 S_{elec}^{H^+} \quad (5.9)$$

siendo en este caso  $Z_p = 6$ .

## 5.1.2 Resultados

### 5.1.2.1 Impacto de electrones

En las Figura 5.1 y Figura 5.2 se muestra el  $S_m$  para agua líquida por impacto de electrones, calculado con el modelo CSDA. En la Figura 5.1 izquierda se muestran el stopping total calculado como la suma del stopping de excitación con las SEE de Gervais et al. (2006) y de ionización con el modelo de BEB (Kim, Rudd (1994)). Allí se puede ver la diferencia en las contribuciones de ambos procesos respecto del total y además un buen acuerdo con datos recomendados en el rango de energías intermedias. En la figura a la derecha se muestra el cociente relativo al stopping total, donde se observa una contribución de la excitación menor al 10% para energías intermedias y altas. Solo en el rango de bajas energías, menores a los 15 eV, su contribución es mayor a la del proceso de ionización.

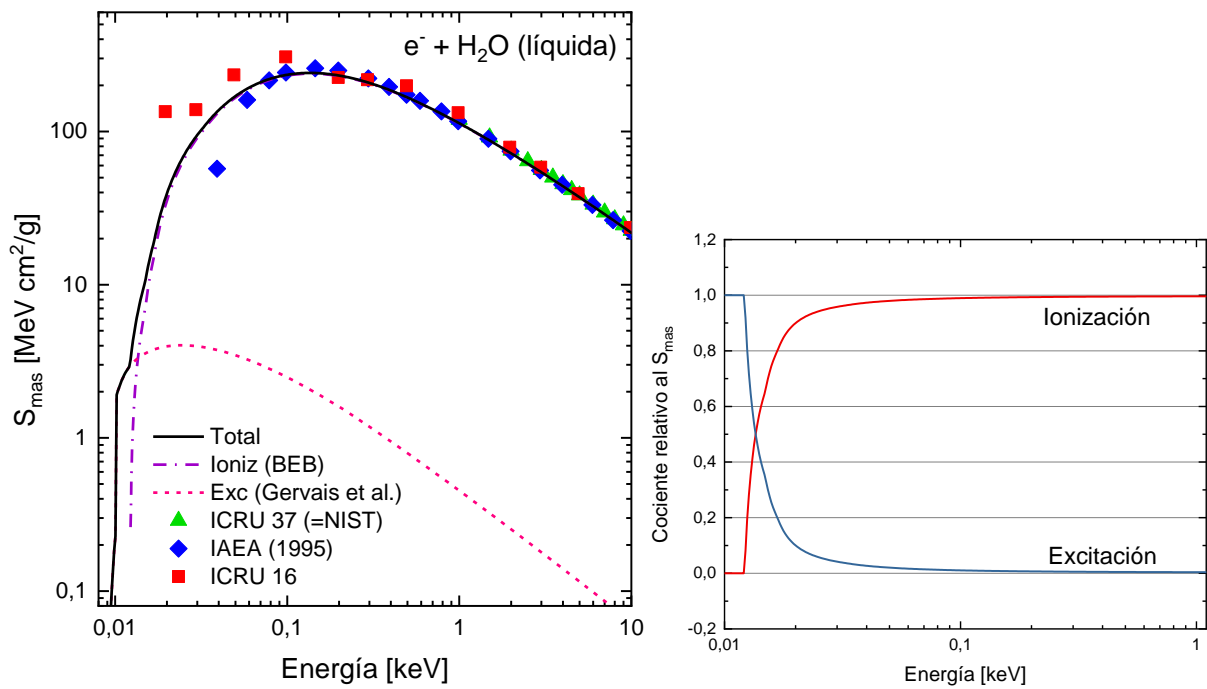


Figura 5.1: Panel de la izquierda: Stopping másico por impacto de electrones en agua líquida calculado con el modelo CSDA. Línea llena: stopping másico total; línea de trazos y puntos: contribución del proceso de ionización; línea de trazos: contribución del proceso de excitación. Datos experimentales y recomendados: triángulos: ICRU REPORT 37 (1984); cuadrados: ICRU REPORT 16 (1970); rombos: IAEA (1995)). Panel de la derecha: contribución relativa de los procesos de ionización y excitación electrónica al stopping másico total en función de la energía del electrón incidente.

En la Figura 5.2 se muestran resultados correspondientes al  $S_{mas}$ , calculados considerando diferentes modelos teóricos en la descripción de la excitación electrónica (ver Capítulo 2). En la figura de la izquierda se observa muy poca diferencia entre ellos a pesar de considerar no solo diferentes modelos semiempíricos, sino también diferentes estados de excitación. Esto se debe principalmente a la menor contribución de este proceso en la deposición de energía frente a la ionización como se mostró en la figura anterior para el caso de energías mayores a 50 eV. En la figura de la derecha se comparan estos valores calculados considerando la Aproximación Relativista (AR) y sin ella. Se puede observar un aumento de las curvas con la AR a partir de 20 keV como estaba previsto (ver Capítulo 2). Además, se observa un muy buen acuerdo de los  $S_{mas}$  con AR, con los datos recomendados del ICRU 16 y 37 en el rango de energías menores a los 100 keV. A mayores energías los cálculos subestiman estos datos, demostrando la necesidad de incorporar secciones eficaces calculadas considerando el régimen relativista.

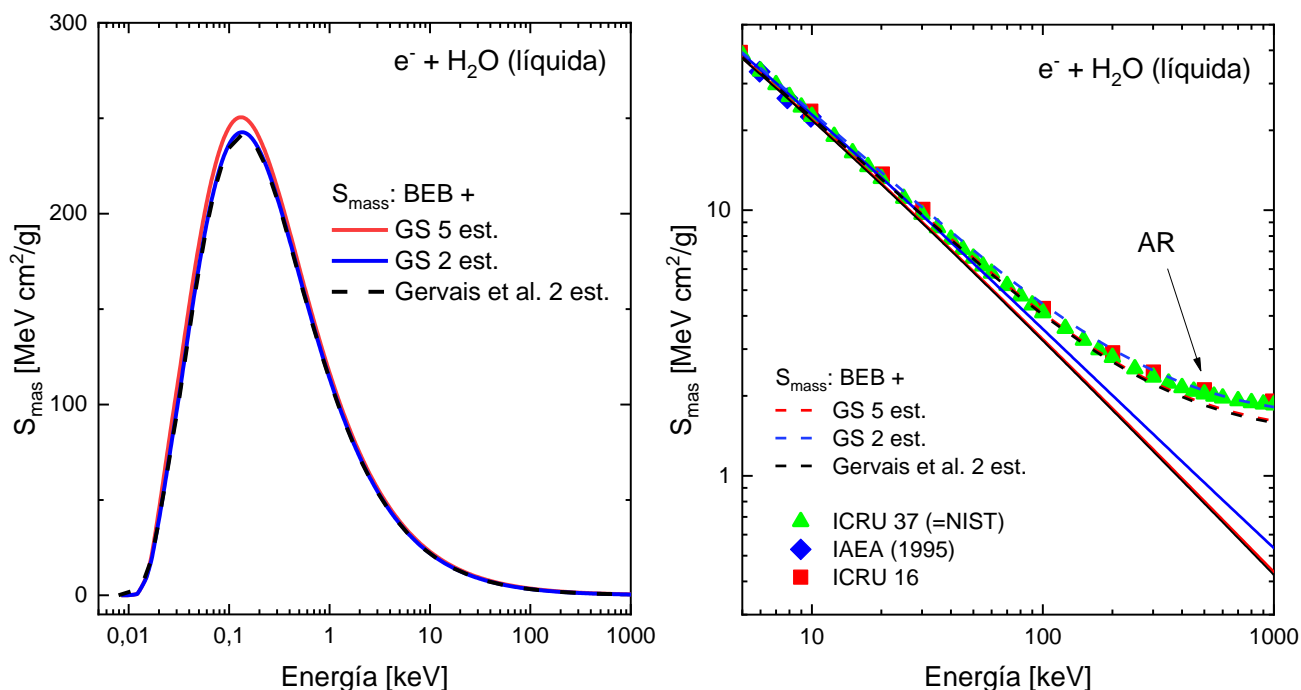


Figura 5.2:  $S_{mas}$  por impacto de electrones en agua líquida, calculados con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados (ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 16 (1970); IAEA (1995)). A la izquierda se muestra el stopping calculado con diferentes modelos para la excitación electrónica. A la derecha se muestra la diferencia al considerar la AR en las SE utilizadas.

En la Figura 5.3 se muestra el  $S_{mas}$  para agua vapor calculado con CSDA y comparado con datos recomendados (ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 16 (1970); IAEA (1995)). También se discrimina el stopping de ionización calculado con el modelo de BEB y el de excitación calculado con dos modelos: el de GS (Green, Stolarski (1972)) y el de Nikjoo (Nikjoo et al. (2006)). Si bien se observa una diferencia entre los stopping de excitación, esta no influye significativamente en el valor del  $S_{mas}$  total. Solamente a energías menores a 50 eV, se aprecia una diferencia entre estas curvas. En el rango de energías intermedias y altas se observa un buen acuerdo entre los valores de  $S_{mas}$  calculados con la AR y los datos recomendados.

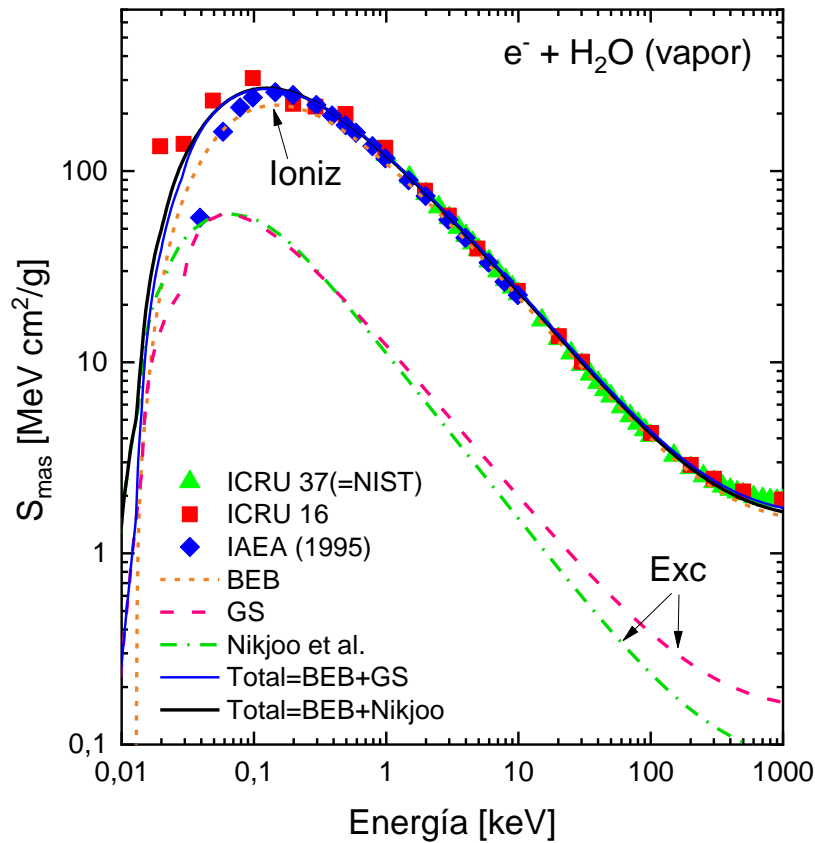


Figura 5.3:  $S_{mas}$  por impacto de electrones en agua vapor calculado con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados (ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 16 (1970); IAEA (1995)).

En la Figura 5.4 se muestra el  $S_{mas}$  para los gases de nitrógeno ( $N_2$ ) y oxígeno ( $O_2$ ) por impacto de electrones, calculados con la aproximación CSDA y comparados con datos recomendados (NIST). En la misma figura se muestra la contribución de los procesos de ionización calculados con el modelo de BEB y de excitación calculados mediante el modelo de GS. Nuevamente se observa un buen acuerdo entre cálculos y valores recomendados para energías menores a los 100 keV.

El cálculo de stopping de electrones e iones en aire resulta relevante para la dosimetría de referencia en la que se utilizan cámaras de ionización. El aire es una mezcla de gases. De acuerdo al reporte ICRU REPORT 37 (1984) el aire seco está formado por  $N_2$ ,  $O_2$ , Ar y gases que contienen carbono en la siguiente proporción:

$$\text{Aire} = 0.000124 \text{ C} + 0.755267 \text{ N}_2 + 0.231781 \text{ O}_2 + 0.012827 \text{ Ar}$$

A los fines prácticos del cálculo numérico, se puede simplificar la fórmula anterior (incerteza menor al 0,5 %) considerando las proporciones relevantes de nitrógeno y oxígeno de acuerdo a la siguiente ley:

$$\text{Aire} = 0.76 \text{ N}_2 + 0.24 \text{ O}_2$$

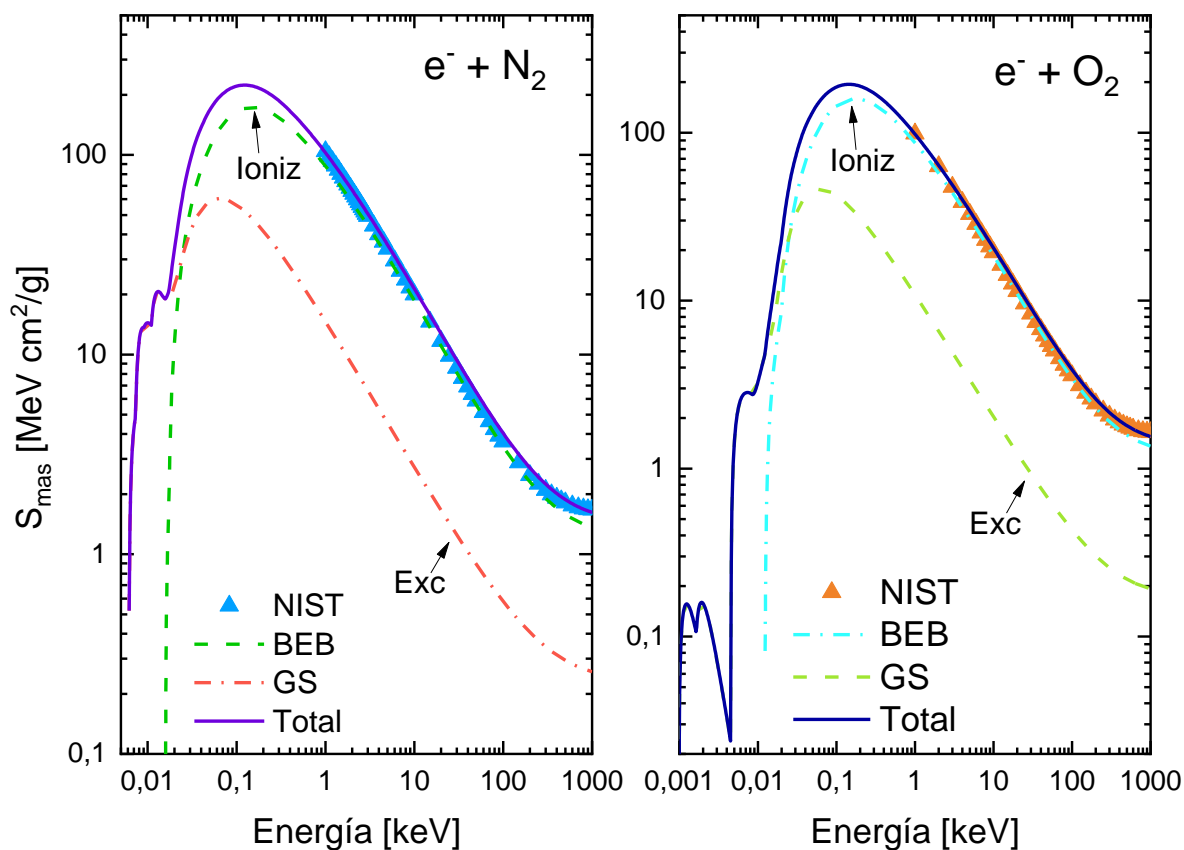


Figura 5.4:  $S_{mas}$  por impacto de electrones en nitrógeno y oxígeno calculado con el modelo CSDA. Se comparan con datos recomendados.

En la Figura 5.5 se muestra el  $S_{mas}$  del aire, calculado con estas proporciones e incluyendo la AR, en comparación con los datos recomendados por ICRU 37 y 90, los cuales fueron actualizados en este último al corregir algunos parámetros de cálculo. Se observa un muy buen acuerdo en el rango de energías intermedias y altas.

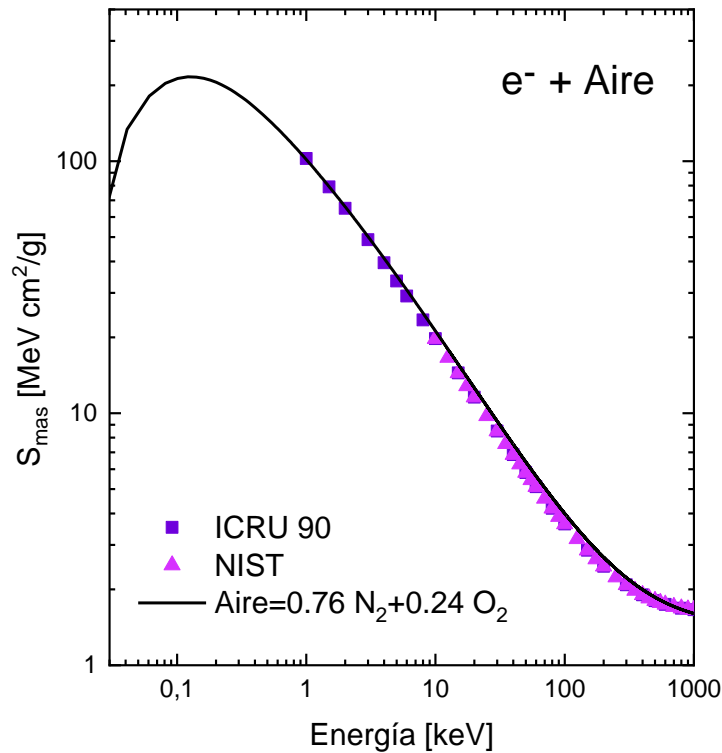


Figura 5.5:  $S_{mas}$  por impacto de electrones en aire. Línea llena: cálculos realizados con el modelo CSDA. Datos recomendados: cuadrados: ICRU REPORT 90 (2016), triángulos: NIST, n.d..

### 5.1.2.2 Impacto de protones e iones de carbono

En la Figura 5.6 imagen izquierda, se muestran los  $S_{mas}$  calculados con el modelo CSDA y MDM-Ion para impacto de protones e iones de carbono. Las secciones eficaces utilizadas son las de Rudd (Rudd et al. (1992)) para la ionización y las de Gervais et al. 2006 para la excitación electrónica (ver Capítulo 3). Se observa una buena concordancia de los valores calculados con ambos métodos, tanto con los valores experimentales (Siiskonen et al. (2011); Shimizu et al. (2009)), como con los datos recomendados por ICRU 49 y 90 en el rango de energías medias y altas. Como era de esperar, se observa una separación en las curvas más allá de 50 MeV debido a la aproximación relativista. Es importante mencionar que los valores recomendados tienen una incertidumbre estimada que van del 1% al 4% en la región de alta energía y los datos experimentales una incertidumbre de alrededor del 5%. Los cálculos realizados con el MDM-Ion se realizaron de modo tal de alcanzar incertezas inferiores al 1%, las cuales son manejadas estadísticamente.

En la Figura 5.6 panel derecho, se muestran valores calculados con el código MDM-Ion utilizando diferentes modelos en las SE de excitación. Comparando los modelos de Gervais et al. y de GS con igual número de estados de excitación se puede observar que no hay una diferencia significativa entre las curvas de  $S_{mas}$ . Sin embargo, si se las compara con el modelo de GS considerando 5 estados de excitación, se observa que éstos sobreestiman los valores recomendados por ICRU Report 49.

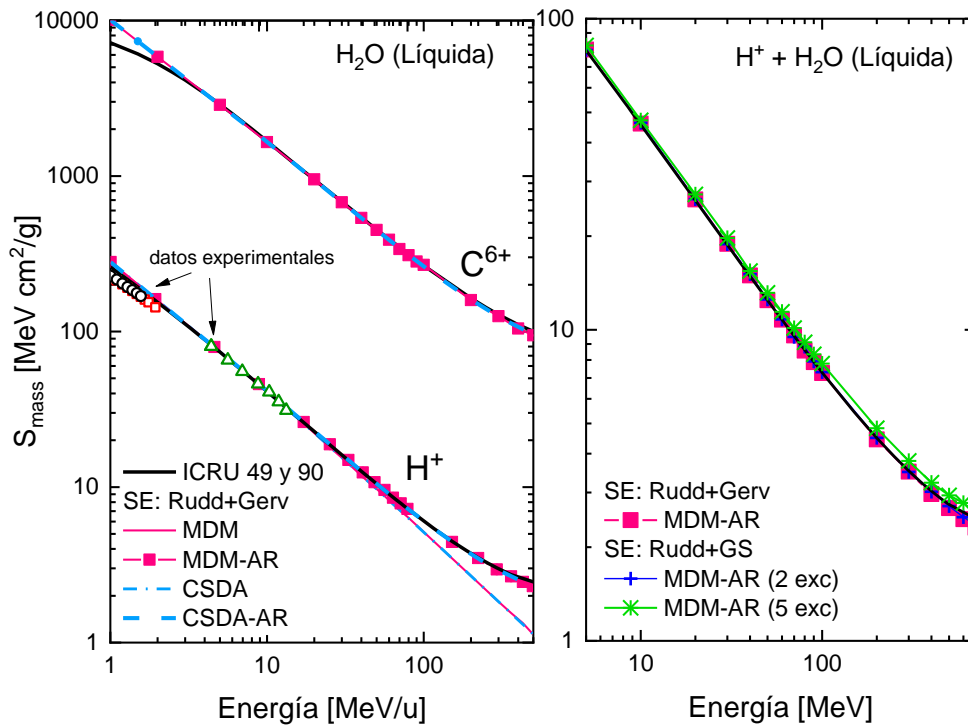


Figura 5.6:  $S_{mas}$  por impacto de protones e iones de carbono en agua líquida calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR. En la figura de la izquierda se comparan los valores entre estos modelos de cálculo, con valores recomendados y datos experimentales:  $\Delta$  de Siiskonen et al. (2011) y  $\square, \circ$  de Shimizu et al. (2009). En la figura de la derecha se comparan valores obtenidos utilizando diferentes modelos de excitación electrónica y estados de excitación.

En la Figura 5.7 se presenta la diferencia relativa porcentual entre el stopping másico calculado con CSDA y MDM-Ion y los valores recomendados por ICRU, para impacto de  $H^+$  y  $C^{6+}$  sobre agua líquida. Como se observa, para ambos proyectiles la discrepancia es inferior al 2% para energías menores a 100 MeV/u. Más allá de esta energía el porcentaje de discrepancia aumenta debido a la subestimación de las secciones eficaces de ionización y excitación que se obtiene al aplicar la AR. Las curvas de los cálculos con el MDM-Ion presentan significativas desviaciones, las cuales se asocian a fluctuaciones estadísticas.

La Figura 5.8 muestra los stopping másicos de protones en vapor de agua, calculados con el modelo CSDA y MDM-Ion utilizando dos aproximaciones para las SE de excitación electrónica. Se observa un buen acuerdo entre los valores calculados con ambos métodos y con los valores recomendados del ICRU 49 en el rango de energías intermedias y altas. Los valores obtenidos siguiendo el modelo de Nikjoo et al. (2006) para la excitación electrónica tienen un buen acuerdo con los calculados usando el modelo de GS.

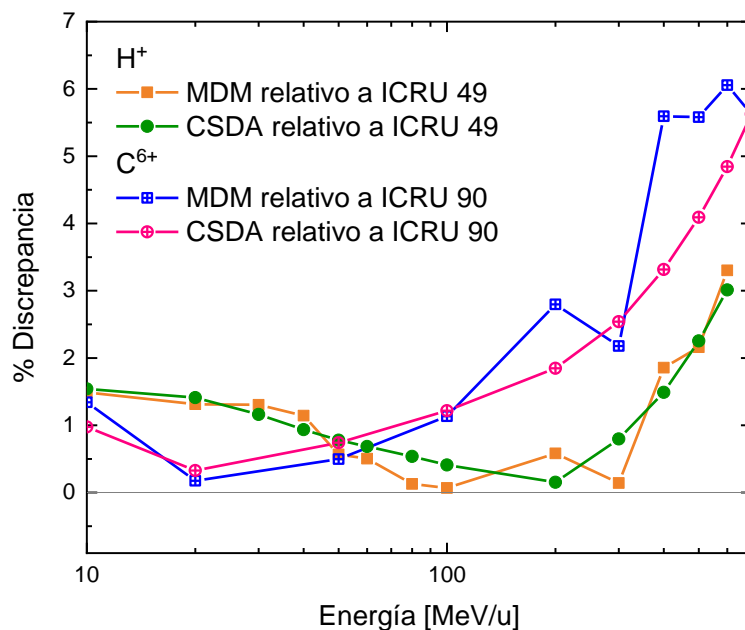


Figura 5.7: Discrepancia relativa porcentual de los valores de  $S_{mas}$  calculados con los las aproximaciones CSDA y MDM-Ion, para impacto de protones e iones de carbono sobre agua vapor, relativos a los correspondientes valores recomendados por ICRU REPORT 49 (2015); ICRU REPORT 90 (2016).

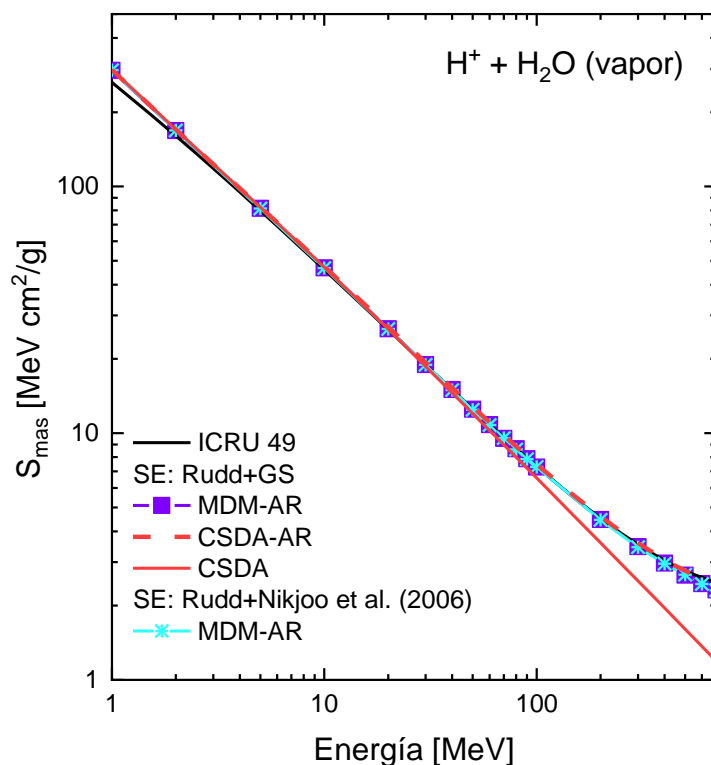


Figura 5.8:  $S_{mas}$  por impacto de protones e iones de carbono en agua vapor calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR. Se comparan además los valores obtenidos utilizando diferentes modelos de excitación electrónica.

En la Figura 5.9 se presentan los  $S_{mas}$  calculados con el modelo CSDA y MDM-Ion para impacto de protones en nitrógeno (figura izquierda) y oxígeno (figura derecha). Los valores obtenidos con el Monte Carlo se calcularon utilizando el modelo de GS de excitación, aplicando además un ajuste en la pendiente de estas secciones eficaces (explicado en capítulos 2 y 3). Comparando los  $S_{mas}$  para  $N_2$  con y sin este ajuste se observa solo una pequeña diferencia entre ellos a altas energías. Era de esperar que este ajuste no modifique considerablemente a esta magnitud ya que el stopping de excitación contribuye en un porcentaje menor al 10% al  $S_{mas}$  total.

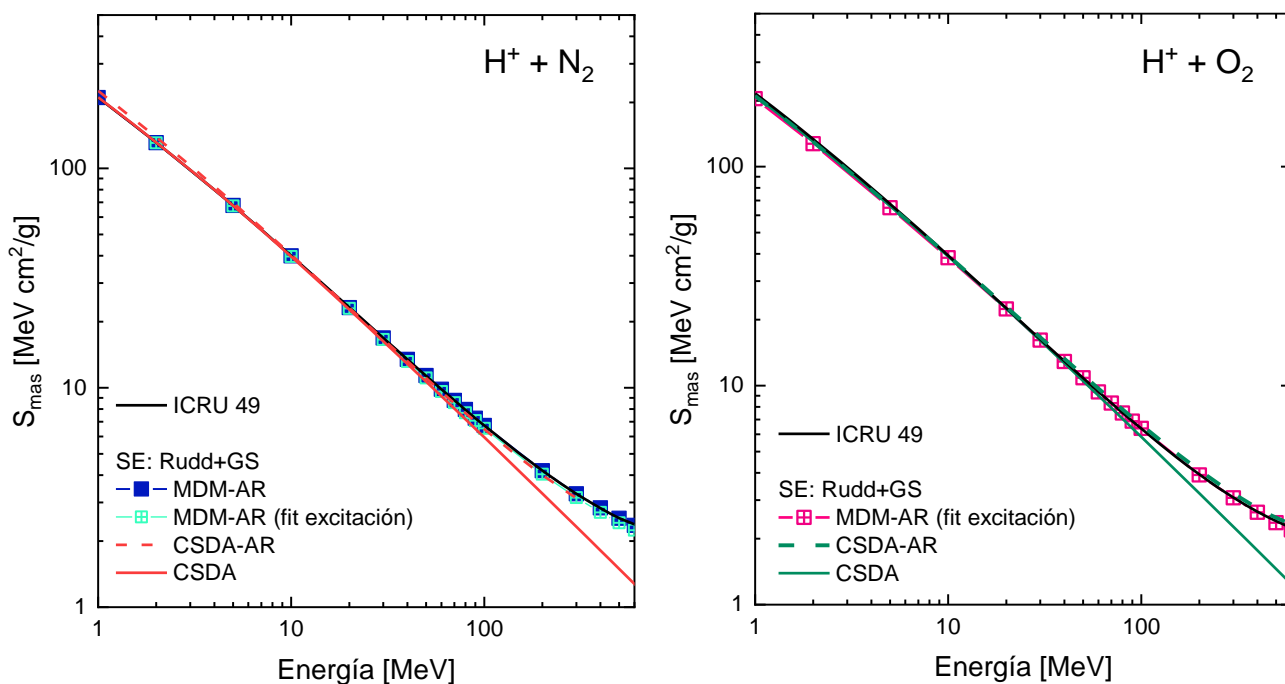


Figura 5.9  $S_{mas}$  por impacto de protones en  $N_2$  (izquierda) y  $O_2$  (derecha) calculado con el modelo CSDA y el código MDM-Ion con y sin aproximación relativista AR.

En la Figura 5.10 se muestra el  $S_{mas}$  del aire calculado con el modelo CSDA y MDM-Ion usando las proporciones de nitrógeno y oxígeno mencionadas en este capítulo. Se compara con los valores recomendados en ICRU REPORT 90 (2016), donde se observa un muy buen acuerdo en el rango de energías estudiado.

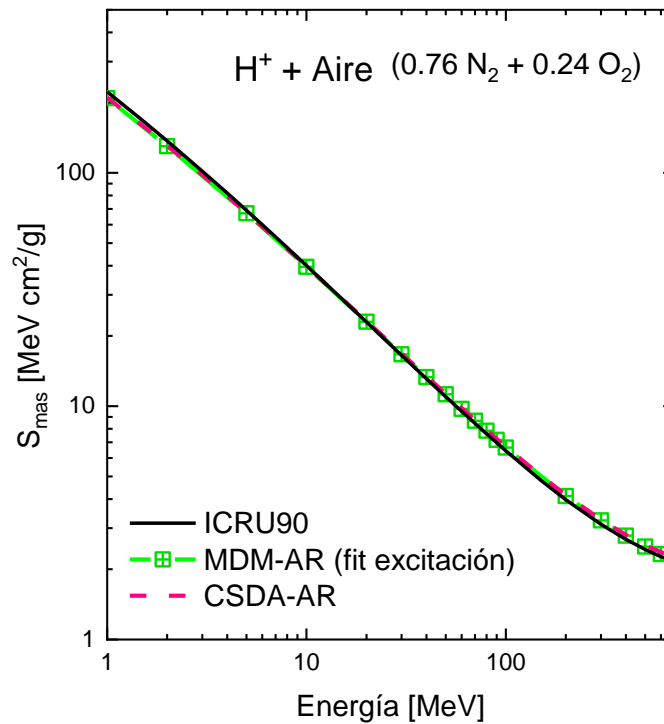


Figura 5.10:  $S_{mas}$  por impacto de protones en aire calculado con el modelo CSDA y MDM-Ion con aproximación relativista AR comparado con los valores de ICRU REPORT 90 (2016).

## 5.2 Valores $W$

El valor  $W$  es una cantidad ampliamente utilizada en física de la radiación, esto es: en dosimetría, física médica, astrofísica, etc. Corresponde a la energía media requerida para generar un par ion-electrón (electrón - molécula ionizada o átomo) en la desaceleración completa de la radiación ionizante en el medio. Se obtiene como la razón entre la energía cinética  $T$  de la partícula incidente y el número promedio de pares ion-electrón  $N$  formados luego de la disipación total de la energía cinética de la partícula primaria (incidente) y la de todos los electrones secundarios producidos en el proceso de ionización (ICRU REPORT 31 (1979)),

$$W = T/N \quad (5.10)$$

con unidades de eV. Otra notación en la literatura es  $W/e$ , donde  $e$  es la carga del electrón, con unidades de  $J C^{-1}$ .

Su correcta determinación es fundamental en dosimetría de referencia: conocida la cantidad de pares iónicos generados en un determinado volumen (medida del electrómetro en la cámara de ionización), se puede conocer la energía media depositada en el mismo multiplicando a este número por el valor  $W$ . Esto permite obtener, aplicando otros factores de conversión, la dosis en agua líquida. Como se comentó en el Capítulo 1, las incertezas en la determinación de este parámetro afectarán el cálculo de dosis física y, finalmente, incidirán sobre la dosis clínica que recibirán los pacientes.

El valor  $W$  da cuenta de cuán difícil es ionizar el medio. En general, estos valores son mayores que el menor potencial de ionización debido a que: *a*) parte de la energía depositada por el proyectil es usada en excitaciones discretas sin producir ionización y *b*) la energía perdida por el proyectil en procesos de ionización normalmente excede el mínimo potencial de ionización ya que parte de ella es entregada a los electrones emitidos como energía cinética. Estos electrones secundarios producirán excitaciones e ionizaciones adicionales en su camino, es decir, más pares iónicos mientras depositan energía en el medio.

El valor  $W$  presenta una dependencia con la composición atómica o molecular del blanco. Esta dependencia se basa en las secciones eficaces (SE) de los procesos inelásticos en la interacción de la radiación con el medio. Como se ha estudiado en los capítulos 2 y 3, estas secciones eficaces dependen no solo del medio, sino también de la energía y carga del proyectil. En el rango de energías bajas e intermedias las secciones eficaces de electrones e iones son muy distintas; sin embargo, a altas energías ambas convergen al mismo valor (a iguales velocidades de las partículas incidentes) como se ha visto (Dingfelder et al. (2000)). De esta forma, se espera que en el régimen de altas energías los valores  $W$  para electrones, protones e iones converjan al mismo valor. En efecto, se ha observado experimentalmente que este valor presenta un comportamiento asintótico a altas energía (IAEA TRS-398 (2000)), y es a partir del cual la dosimetría experimental se apoya. No obstante, estos datos experimentales son muy escasos, especialmente para el caso de impacto de protones e iones pesado. Es por ello que se necesita un estudio más profundo del comportamiento de este parámetro, no solo en función de la energía incidente, sino también de la dependencia con la carga del proyectil.

En el caso de impacto de partículas de alta energía atravesando un medio delgado (como las cámaras de ionización utilizadas en hadronterapia), éstas solo pierden una pequeña fracción de su energía y, por lo tanto, se debe emplear el valor  $w$  diferencial. Este se define en un pequeño segmento de la trayectoria del proyectil, en el que las secciones eficaces de colisión inelástica son casi constantes. Se calcula como la relación entre la energía promedio perdida por la partícula incidente  $dT$ , al atravesar un medio de espesor delgado, y  $dN$  el número promedio de pares ion-electrón producidos al disipar totalmente esa energía diferencial en el medio,

$$w(T) = dT/dN \quad (5.11)$$

La relación entre el valor  $W$  y  $w$  diferencial es de la forma:

$$1/w = d/dT (T/W) \quad (5.12)$$

En el límite de altas energías, donde el valor  $W$  toma valores constantes de acuerdo a datos experimentales (Srdoč et al. (1995)), ocurre que este coincide con el valor diferencial,  $w=W$ .

## 5.2.1 Estado del arte

Los datos experimentales disponibles de los valores  $W$  y  $w$  son deficientes, dispersos y a menudo fragmentados, sin embargo varias compilaciones y revisiones, como el ICRU REPORT 31 (1979) y el Capítulo 8 TECDOC 799 de la IAEA (Srdoč et al. (1995)), proporcionan una base para evaluar el conocimiento actual de los valores  $W$  para diferentes partículas cargadas en varios gases. Estas entidades recomiendan valores constantes para ciertos rangos de energías obtenidos por medio de un análisis estadístico, el cual contempla todos los datos disponibles. Todos los valores  $W$  se midieron y se informan para gases:  $N_2$ ,  $CH_4$ ,  $C_3H_8$ ,  $CO_2$ , Ar, aire. Las mediciones dosimétricas, incluidas las de los valores  $W$ , a menudo se realizan en mezclas gaseosas de tejido equivalente (TE). Las mezclas de gas TE más comunes, que simulan la composición del tejido biológico, son gas TE a base de metano (64,4%  $CH_4$ , 32,4%  $CO_2$ , 3,2%  $N_2$ ) y gas TE a base de propano (55%  $C_3H_8$ , 39,6%  $CO_2$ , 5,4%  $N_2$ ). En la Tabla 5.1 se presentan valores  $W$  para electrones, protones, partículas alfa y valores  $w$  para iones de carbono incidentes en algunos de estos medios a modo de comparación (ver artículo Bronić, Kimura (2007) para referencias).

Otro medio que debe ser estudiado, además de los gases, es el agua en su estado vapor y líquido. Las cámaras de ionización utilizadas en dosimetría contienen generalmente aire atmosférico con un cierto porcentaje de humedad ambiente (vapor de agua). Se ha observado que la humedad incrementa el número de iones en el interior de estas cámaras hasta en un 0.3% respecto al obtenido para aire seco (ICRU 31). De acuerdo a lo expresado por el reporte ICRU 31, esta influencia es corregida por medio de un factor de corrección obtenido a través de mediciones de cavidades con y sin presencia de humedad por impacto de fotones. Teniendo en cuenta este ajuste, ICRU 31 recomendó un valor  $W$  por impacto de electrones para aire seco igual a  $(33.85 \pm 0,15) J C^{-1}$ . Siendo que los valores de los poderes de frenado se actualizaron, Boutillon y Perroche-Roux (1987) reevaluaron todos los datos para aire seco del ICRU 31, y obtuvieron el valor medio  $W = (33.97 \pm 0.05) J C^{-1}$ . Para agua vapor ICRU 31 recomienda un valor de 29.6 eV. Los valores experimentales para agua vapor son escasos y están en el rango de bajas energías (IAEA TECDOC 799), solamente los valores obtenidos por Combecher por impacto de electrones llegan a 0.9 keV con un valor  $W$  de 30.38 eV.

El estudio de los valores  $W$  en agua líquida resulta relevante a la hora de verificar la confiabilidad de las secciones eficaces utilizadas en los códigos Monte Carlo de transporte de partículas. Tanto en las células como en el tejido blando, el agua líquida es el mayor constituyente (ICRU REPORT 44 1989), existiendo en la literatura varios códigos Monte Carlo que permiten estudiar la deposición de energía a nivel del micrómetro y del nanómetro en agua líquida a fin de evaluar la microdosimetría y correlacionar la efectividad biológica con estas determinaciones (Cunha, Monini, et al. (2017)). En estos códigos de transporte, la determinación del valor  $W$  podría utilizarse como parámetro para evaluar la confiabilidad de las secciones eficaces introducidas (tanto de la partícula incidente como de las secundarias producidas por ionización). Sin embargo, determinar experimentalmente los valores  $W$  en estado condensado es todo un desafío,

motivo por el cual los datos experimentales son muy escasos. Uno de los procedimientos más usados en los medios polares es la medición de la producción de especies radiolíticas/químicas producidas por la ionización del medio. En la literatura se encuentran los valores de  $(22.1 \pm 1)$  eV (Mozurnder, Hatano (2004) y las referencias allí incluidas) y 20.8 eV (Jonah et al. (1976); Sumiyoshi et al. (1985)) obtenidos al medir la producción de electrones solvatados luego de la irradiación con haces de electrones. Estos valores  $W$  se obtienen por medio del valor  $G$ , definido como la cantidad de elementos de esa especie química producidos por cada 100 eV de energía cedida al medio por el proyectil incidente. Desafortunadamente, las incertezas del segundo valor (20.8 eV) no fueron provistas por los autores, pero se estima que son altas ya que estos electrones solvatados representan un límite inferior en la producción de iones. Para el caso de protones e iones no se han encontrado valores experimentales en la literatura.

Tabla 5.1: Valores  $W$  por impacto de electrones, protones y alfa, y  $w$  diferencial por impacto de iones de carbono para los gases de metano y aire (Bronić, Kimura (2007)).

Partícula	Energía	Gas	$W$ o $w$ (eV)
Electrones	>10 keV	Metano	$27.3 \pm 0.3$
		Metano-TE	29.4
		Aire seco	$33.97 \pm 0.05$
Protones	100 keV	Metano-TE	$31.0 \pm 1.5$
		Metano	$30.5 \pm 1.0$
	70 keV	Metano	27.9
	> 1 MeV	Aire húmedo	$34.8 \pm 0.7$
	> 1 MeV	Aire seco	$34.02 \pm 0.1$
He <sup>2+</sup>	5.3 MeV	Metano	$29.1 \pm 1.0$
		Metano-TE	$31.1 \pm 0.3$
C <sup>6+</sup>	3 MeV/u	Aire	$32.7 \pm 1.3$

En protonterapia, el valor estudiado es el valor  $w$  diferencial, sin embargo para proyectiles de altas energías (>10 MeV) este valor coincide con el valor  $W$  (ver fórmula 5.12). Recientemente, Jones (2006) realizó un análisis exhaustivo de todos los datos publicados de valores  $W$  y  $w$  para protones en aire, y los comparó con los recomendados por varios protocolos de dosimetría. Los valores  $w$  recomendados diferían tanto en valores absolutos como en incertezas, y algunos de ellos se referían al aire húmedo y otros al aire seco. Analizando específicamente los valores recomendados por ICRU REPORT 59 (1998) y por IAEA TRS-398 (2000) se observa que el valor del ICRU 59 para aire húmedo convertido al valor equivalente para aire seco, se convierte en 35.0 eV el cual es un 2.3%

más alto que el valor de la IAEA. Esto se da a pesar de haber obtenido sus valores de la misma base de datos, por lo cual su diferencia se debe a los distintos métodos utilizados para obtener el valor  $w$ . Con respecto a los datos experimentales, el análisis reveló que los valores  $w$  medidos directamente para protones con energías superiores a 20 MeV (con un promedio de  $34.25 \pm 0.12$  eV) y los datos calorimétricos (promedio ponderado de  $34.15 \pm 0.13$  eV) coincidían bien entre sí y confirmaban el valor  $w$  en aire seco (promedio ponderado de  $34.23$  eV  $\pm 0.4\%$ ) recomendado por el protocolo TRS-398. Recientemente, ICRU REPORT 90 (2016) presenta nuevas recomendaciones para los valores de parámetros utilizados en la determinación de dosis, lo cual implica cambios en los valores  $w$  recomendados para aire seco. En la Tabla 5.2 se presentan los valores  $W$  asintóticos recopilados de distintos protocolos y datos experimentales por impacto de electrones, protones e iones de carbono de los medios en estudio en este trabajo. Se puede observar una discrepancia porcentual del 0.6% entre el valor recomendado por ICRU 90 y el de TRS-398IAEA TRS-398 (2000) para aire seco, tanto para protones como iones de carbono.

Los iones pesados considerados como proyectiles en radioterapia incluyen: He, O, C, Ne, Si y Ar. Las energías apropiadas para obtener una penetración suficiente del haz son típicamente 250 MeV/u para He, 200-400 MeV/u para C, 620 MeV/u para Ne, 800 MeV/u para Si y 860 MeV/u para Ar. Los datos existentes de los valores  $W$  o  $w$  son fragmentarios y la mayoría de ellos se miden para energías relativamente bajas por debajo de 1 MeV/u donde se observan variaciones importantes en la dependencia energética (ICRU 31 y IAEA TECDOC 799). Recientemente, se han extendido mediciones a altas energías (Rodríguez-Cossio et al. (1993); Sasaki et al. (2005); Sakama et al. (2009)) para iones de carbono y algunos otros iones (Tabla 5.2).

Hasta tanto no haya más información disponible, el protocolo IAEA TRS-398 (2000) establece un valor  $w$  constante de 34.5 eV con una incerteza del 1.5% para He, carbono y otros haces de iones a distintas energía de impacto, es decir, asume independencia con la carga y la energía de los iones proyectiles (ver Tabla 5.3 extraída del protocolo). Si observamos el valor promedio de los datos experimentales, solamente de iones de carbono, de  $(34.7 \pm 0.9)$  eV con energía  $>10$ MeV/u, vemos que es ligeramente superior al valor recomendado de la IAEA TRS-398 para todos los iones a energías  $> 1$  MeV/u. Sakama et al 2009 utilizó un calorímetro de grafito para evaluar el valor  $w$  en aire para el haz de iones C (energías 135, 290, 400 y 430 MeV/u) y obtuvo un valor de  $(35.72 \pm 1.55)$  J C<sup>-1</sup>. Si comparamos este valor con el recomendado vemos que es un 3.5% mayor. Incluyendo este nuevo valor de Sakama a los dos datos experimentales para un nuevo promedio, se obtiene un valor  $w$  de  $35.28 \pm 0.84$ , que difiere en un 2.3 % del recomendado. Por todo lo expuesto, es evidente que se necesitan nuevas mediciones del valor  $w$  para iones pesados en aire, especialmente para iones C de varios cientos de MeV/u al ser de interés en la terapia de iones. En la Figura 5.11 se muestran los valores tabulados con sus respectivas incertezas marcadas en franjas sombreadas.

Tabla 5.2: Valores  $W$  y  $w$  diferenciales para altas energías por impacto de electrones, protones y iones de carbono para los medio en estudio en este trabajo.

Partícula	Energía	Medio	Valor $W$ o $w$ (eV)	Referencia
Electrones	>10 keV	Aire seco	$33.97 \pm 0.05$	IAEA TECDOC-799; ICRU 90(*)
	>10 keV	N <sub>2</sub>	$34.8 \pm 0.2$	ICRU 31 (1979)
	>10 keV	Agua vapor	$29.6 \pm 0.3$	ICRU 31 (1979);
	0.9 keV	Agua vapor	30.38	Combecher (1980)
	>10 keV	Agua líquida	$22.1 \pm 1$	Mozunder y Hatano (2004)
		Agua líquida	20.8	Jonah et al.; Sumiyoshi et al.
Protones	> 1MeV	Aire seco	$34.23 \pm 0.13$	IAEA TRS-398 (2000) (**); Jones 2006
	> 1MeV		$34.44 \pm 0.14$	ICRU 90 (2014) (*)
	> 1MeV	Aire húmedo	$34.8 \pm 0.7$	ICRU 59 (1998)
	100keV	N <sub>2</sub>	$36.5 \pm 1.5$	ICRU 31 (1979)
	500keV	Agua vapor	30.5	Christophorou L.G. (1971)(exp)
C <sup>6+</sup>	> 10MeV/u	Aire seco	$34.71 \pm 0.52(1.5\%)$	ICRU 90 (2014) (*)
	> 10MeV/u		$34.7 \pm 0.9$ eV	Promedio de tres datos experimentales (***)
	> 10MeV/u		$35.28 \pm 0.84$	Promedio ponderado de los tres datos exp. incluyendo nuevos datos exp.de Sakama et al. (2009)
Todos los iones	> 1MeV/u	Aire seco	$34.5 \pm 0.5(1.5\%)$	IAEA TRS-398 (2000) (**)

(\*) Variación de las recomendaciones de los parámetros; (\*\*) Análisis estadístico utilizando mediana ponderada. (\*\*\*) Valores experimentales de Kanai et al. (1993) (129MeV/u), Stephens et al. (1976) Stephens et al. (1976); Thomas et al. (1980) (250MeV/u)

Tabla 5.3: Cuadro extraído del protocolo IAEA TRS-398 2000. Muestra los valores experimentales del valor  $W$  en aire para varios iones a diferentes energías de impacto y la mediana ponderada.

Ion	$W_{air/e}$ (J/C)	Energía (MeV/u)	Referencia
$^3\text{He}$	34.5	10.3	Kanai et al. (1993)
$^3\text{He}$	35.7	31.67	Hiraoka et al. (1989)
$^{12}\text{C}$	36.2	6.7	Kanai et al. (1993)
$^{12}\text{C}$	33.7	129.4	Kanai et al. (1993)
$^{12}\text{C}$	35.28	250	Stephens et al. (1976)
$^{12}\text{C}$	35.09	250	Thomas et al. (1980)
$^{20}\text{Ne}$	34.13	375	Thomas et al. (1980)
$^{40}\text{Ar}$	33.45	479	Thomas et al. (1980)
Iones con Z entre 9 y 14	31.81	170	Schimmerling et al (1982)

---

$W_{air/e}$  (mediana ponderada) = 34.50 J/C  $\pm$  1.5%

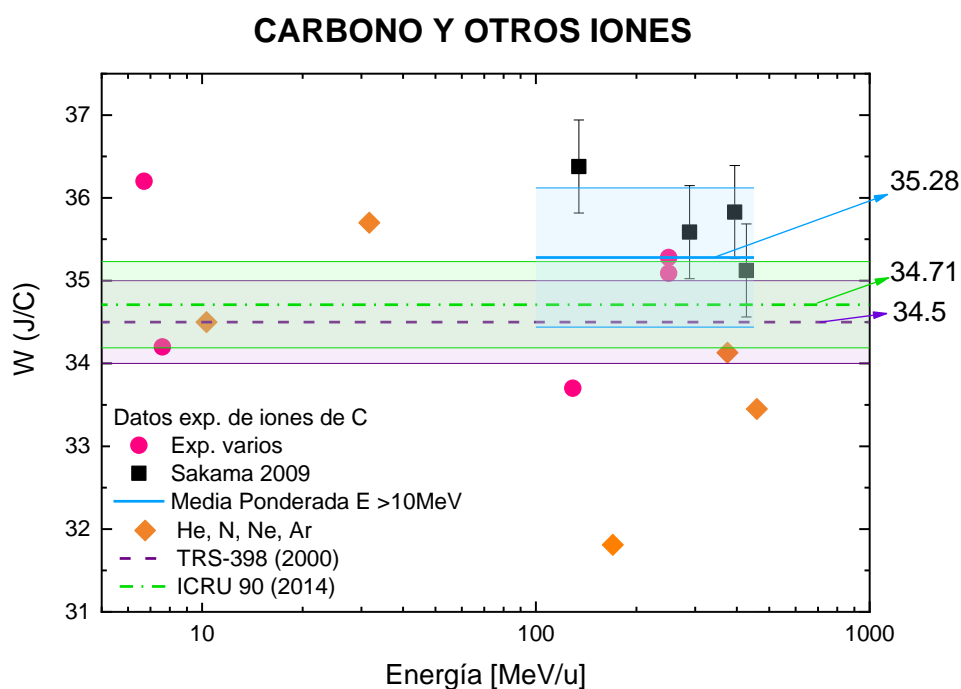


Figura 5.11: Valores  $W$  en aire para iones de carbono y otros en función de la energía del proyectil incidente. Se comparan valores recomendados (líneas constantes) con sus incertezas marcadas como franjas sombreadas con los datos experimentales de: ◆ de distintos iones y ● de iones de carbono, mostrados en Tabla 3; ■ Sakama et al. 2009.

## 5.2.2 Modelos teóricos: Aproximación de frenado continuo (CSDA) y Simulación Monte Carlo

Toda teoría de valores  $W$  debe contener la historia completa de la pérdida de energía de la partícula primaria y de todas las secundarias generadas en su camino. Para ello, se necesitan dos ingredientes esenciales: 1 - la determinación de las secciones eficaces inelásticas de colisión de todas las partículas energéticas, tanto de las incidentes como las secundarias generadas colisionando con las moléculas del medio; y 2 - la contabilidad de todos los procesos acumulativos provocados por todas las partículas. De estos dos ingredientes, la determinación de las secciones eficaces es la más importante. Debe ser completa y confiable, es decir, debe estar disponible para los procesos inelásticos, a todas las energías cinéticas para todas las partículas, y presentar muy buen acuerdo con valores experimentales, no sólo para el caso de secciones eficaces totales sino también simple diferenciales.

El problema del conteo acumulativo pertenece al campo de la física estadística, más particularmente a la teoría cinética de procesos de transporte. Este tipo de problemas puede resolverse de modo aproximado mediante diversos métodos, los más conocidos son el Método Monte Carlo y el Método Analítico de Fowler. En el Método Monte Carlo, se simulan historias de las partículas individuales mediante el uso de programas computacionales como se detalló en el capítulo 4. En el método analítico se plantean ecuaciones para obtener el número de pares iónicos producidos (Ecuación de Fowler) y se aplica la aproximación de frenado continuo o “continuous-slowing-down-approximation” (CSDA) que tiene en cuenta la generación de electrones secundarios. En esta sección se detallan el cálculo de los valores  $W$  mediante estos dos métodos.

### 5.2.2.1 Método Analítico de Fowler y Aproximación de Frenado Continuo

El método analítico de Fowler desarrollado por M. Inokuti (1975), se basa en la aproximación de frenado continuo o CSDA. Este método recursivo se utilizó en esta Tesis para estudiar los valores  $W$  y  $w$  por impacto de electrones e iones respectivamente, sobre agua vapor y líquida. El interés en realizarlos sobre agua fue justamente el de poder comparar los resultados con datos experimentales y con los publicados por otros autores.

#### *Impacto de electrones*

Los cálculos se iniciaron por impacto de electrones ya que dichas partículas no sólo pueden integrar el haz primario sino que son generadas también por impacto de iones mediante el proceso de ionización. Estos electrones secundarios son los que finalmente depositan la energía en el medio generando nuevos pares iónicos y provocando el daño biológico.

El valor  $W$  se obtiene a partir del valor  $w$  diferencial utilizando la siguiente expresión

$$W = T / \int_I^T \frac{dT'}{w(T')} \quad (5.13)$$

donde  $I$  es el menor potencial de ionización del medio y  $T'$  la energía instantánea de la partícula mientras se va frenando en el medio.

El valor  $w$  diferencial se calcula utilizando la siguiente expresión (Erskine (1954); Dalgarno, Griffing (1958)):

$$w(T) = \frac{\epsilon(T)}{\sigma_{ion}(T) + \sigma'_{ion}(T)} \quad (5.14)$$

donde  $\epsilon(T)$  es la sección eficaz de poder de frenado,  $\sigma_{ion}(T)$  es la sección eficaz de ionización y  $\sigma'_{ion}(T)$  es la sesión eficaz asociada a la producción de un par iónico por procesos secundarios. Si se considera la primera ionización solamente, se obtiene el valor  $w$  primario y la expresión anterior toma la forma:

$$w_{prim}(T) = \frac{\epsilon(T)}{\sigma_{ion}(T)} \quad (5.15)$$

La sección eficaz de ionización por procesos secundarios se define como:

$$\sigma'_{ion}(T) = \sum_k \left[ \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{d\sigma_k^{ion}}{dE} N_e(E) dE \right] \quad (5.16)$$

siendo  $d\sigma_k^{ion}/dE$  la sección eficaz simple diferencial de ionización del nivel molecular  $k$  por impacto de un electrón de energía  $T$  en función de la energía del electrón emitido  $E$ , y la función  $N_e$  es el número medio de pares iónicos producidos por el electrón emitido luego de haber perdido totalmente su energía cinética  $E$ . La función  $N_e(E)$  se obtuvo mediante la Ecuación de Fowler según lo describe Inokuti (Inokuti 1975),

$$N_e(E) = P_{ion}(E) + \sum_n P_n^{exc}(E) N_e(E - E_n^{exc}) + \sum_k \left[ \int_{E_{min}}^{(E-I_k)/2} \frac{d\sigma_k^{ion}}{dE'} \frac{1}{\sigma_T(E)} \{N_e(E - E' - I_k) + N_e(E')\} dE' \right] \quad (5.17)$$

siendo:

$P_{ion}(E) = \sum_k \sigma_k^{ion}(E) / \sigma_T(E)$  la probabilidad de ionización por impacto de electrones con energía  $E$ .

$P_n^{exc}(E) = \sigma_n^{exc}(E) / \sigma_T(E)$  la probabilidad de excitar la molécula a un estado discreto  $n$  por impacto de electrones con energía  $E$ .

$\sigma_T(E) = \sum_n \sigma_n^{exc}(E) + \sum_k \sigma_k^{ion}(E)$ , la sección eficaz total por impacto de electrones con energía  $E$ .

$\sigma_T(E)^{-1} d\sigma_k^{ion}/dE'$ , la probabilidad de generar un electrón con una energía cinética  $E'$  de una subcapa con energía de ligadura  $I_k$  al impactar otro electrón con energía  $E$ .

$N_e(E - E_n^{exc})$ , es el valor medio de pares iónicos generados por un electrón con energía  $E - E_n^{exc}$  luego de producida una excitación con una transferencia de energía  $E_n^{exc}$ .

$N_e(E - E' - I_k)$ , es el valor medio de pares iónicos generados por un electrón, que luego de colisionar con la molécula deposita una energía  $E' + I_k$ . Luego, el electrón eyectado con energía  $E'$  también podría generar nuevas ionizaciones dando lugar al número de pares iónicos  $N_e(E')$ .

Dado que en el trabajo de Inokuti no se incluyeron los efectos de emisión Auger, en el presente trabajo se modificó la fórmula (5.17) a fin de poder considerar su contribución al número de pares iónicos. Para incluirlo del modo más simple posible se consideró la emisión de un electrón Auger, con probabilidad del 100%, al ionizarse la capa más interna de la molécula no solo por impacto de la partícula primaria o proyectil, sino también por los electrones secundarios generados. Las expresiones anteriores del valor  $w$  y ecuación de Fowler, quedan modificadas de la siguiente forma:

$$w(T) = \frac{\epsilon(T)}{\sigma_{ion}^{Auger}(T) + \sigma'_{ion}{}^{Auger}(T)} \quad (5.18)$$

ahora  $\sigma_{ion}^{Auger}(T)$  es la sección eficaz de ionización considerando la emisión post-colisional definida de la forma,

$$\sigma_{ion}^{Auger}(T) = \sum_j \sigma_j^{ion}(T) + \sigma_K^{ion}(T)(1 + N_{e_{Aug}}) \quad (5.19)$$

El primer término representa la suma de las secciones eficaces de todos los orbitales moleculares excepto la correspondiente a la capa más interna K; el segundo término es la sección eficaz de esta capa K ponderada por el número de pares iónicos generados, siendo mayor a 1 ya que se cuenta una emisión Auger por cada ionización de esta capa. El número de pares iónicos que puede generar un electrón Auger  $N_{e_{Aug}}$  se determina utilizando la expresión de Fowler que también fue modificada al redefinir la probabilidad de ionización de la forma:

$$\begin{aligned} P_{ion}^{Auger}(E) &= \left[ \sum_k \sigma_k^{ion}(E) + \sigma_K^{ion}(E)(1 + N_{e_{Aug}}) \right] / \sigma_T(E) \\ &= P_{ion}(E) + \sigma_K^{ion}(E) N_{e_{Aug}}(E_{Auger}) \end{aligned} \quad (5.20)$$

Finalmente la expresión de Fowler queda:

$$N_e(E) = P_{ion}^{Auger}(E) + \sum_n P_n^{exc}(E) N_e(E - E_n^{exc}) + \sum_k \left[ \int_{E_{min}}^{(E-I_k)/2} \frac{d\sigma_k^{ion}}{dE'} \frac{1}{\sigma_T(E)} \{N_e(E - E' - I_k) + N_e(E')\} dE' \right] \quad (5.21)$$

En la Figura 5.12 se esquematizan el proceso de ionización y la consideración de los electrones generados en las sucesivas ionización que se tienen en cuenta en este modelo de CSDA.

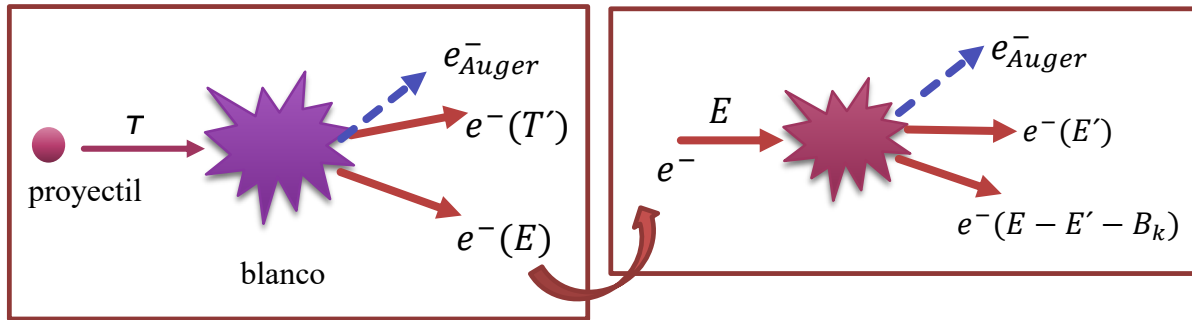


Figura 5.12: Producción de electrones por eventos directos de colisión y post-colisión en el proceso primario y secundario.

### Impacto de iones

Este método analítico también se utilizó para hallar el valor diferencial  $w$  por impacto de iones utilizando la expresión 5.14 con  $T$  ahora como la energía cinética del ion. El número medio de pares iónicos  $N_e(E)$ , ecuación 5.17, se calculó a partir de Ecuación de Fowler, donde ahora  $E$  es la energía cinética del electrón generado en el proceso de ionización ion-blanco. En la ecuación 5.16 la  $E_{max}$ , energía máxima del electrón ionizado, ahora cambia para hallar la SEI por procesos secundarios. Como vimos en el capítulo 3 la velocidad del electrón puede ser hasta 3 veces el valor de la del protón incidente, por lo cual esta cota máxima debe llegar a valores muy altos, por ejemplo para una energía del ion de 100 MeV la  $E_{max}$  supera los 150 keV. Esto impacta fuertemente en el cálculo del  $N_e$ , ya que ahora se necesita para un amplio rango de energía y con un paso muy pequeño, es decir, una gran cantidad de datos. Este detalle hace que el cálculo de  $N_e$  mediante la ecuación de Fowler sea muy pesado computacionalmente e introduzca una incerteza considerable al tratarse de un método recursivo. Por todo lo expresado, si bien se han realizados cálculos con este método, no se ha utilizado para obtener los valores  $w$  presentados en esta tesis. Se optó por utilizar el número medio de pares iónicos calculado con el Monte Carlo. A continuación se detalla este cálculo.

### 5.2.2.2 Método Monte Carlo

Los valores  $W$  y  $w$  diferencial se obtuvieron además utilizando simulación Monte Carlo. Se utilizó el código de simulación MDM para impacto de electrones y el MDM-Ion para protones e iones, siendo este último una extensión del primero como se describió en detalle en el capítulo 4. Para calcular el valor  $W$  se consideró al número de pares ion-electrón como el número de electrones generados en la simulación MDM, luego de la interacción de las partículas primarias y secundarias con las moléculas del medio a través de diferentes procesos inelásticos. Este valor es un valor promedio obtenido luego de realizar un gran número de simulaciones de forma tal de obtener baja fluctuación estadística con un nivel de confianza de  $3\sigma$  (99.7%). Todos los electrones generados se siguen hasta una energía suficientemente baja para garantizar que se agoten todos los procesos de ionización. Al considerar que la partícula primaria deposita toda su energía cinética  $T$  en el medio, el valor  $W$  por impacto de electrones se obtiene simplemente haciendo el cociente entre esta energía y el número medio de electrones generados  $\bar{N}$ ,

$$W = \frac{T}{\bar{N}} \quad (5.22)$$

Para el caso de protones e iones de carbono se calculó el valor  $w$  diferencial con el MDM-Ion. Para ello se realizó el cociente entre la energía perdida total promedio por el ion proyectil  $E_{lost}$ , y el número de electrones total promedio creados al ionizar las moléculas  $N_{tot}$ . Este número tiene en cuenta las ionizaciones generadas por el ion proyectil,  $N_{ion}$ , y las generadas por todos los electrones secundarios  $N_e$ . Por lo tanto, el valor  $w$  se puede expresar como:

$$w(T) = \frac{\overline{E_{lost}}}{\overline{N_{tot}}} \quad (5.23)$$

donde  $N_{tot} = N_{ion} + N_e$ .

## 5.2.3 Resultados

### 5.2.3.1 Impacto de electrones

En la Figura 5.13 se muestra el número medio de pares iónicos (o electrones)  $N_e$  calculados con la ecuación de Fowler (5.21), en la que se muestran las contribuciones de todos los términos. Se observa que esta función toma valores nulos para energías de impacto menores al mínimo potencial de ionización del blanco. El primer término, ecuación (5.21), contempla tanto la formación de iones debido al impacto de los electrones primarios como la generación de electrones Auger luego de haber ionizado la capa más interna de la molécula. La curva de ionización primaria presenta un comportamiento prácticamente constante, dando un valor cercano a uno en todo el rango de energías presentado. La curva post-colisión se observa que es nula para energías menores al potencial de ionización de la capa interna (540 eV para agua líquida y vapor) y luego crece

gradualmente para altas energías. El segundo término, corresponde al número de iones generados por aquellos electrones que anteriormente excitaron el blanco y quedaron con una energía cinética igual a  $E - E^{exc}$ , siendo  $E^{exc}$  la energía transferida en un proceso de excitación del blanco. Este término presenta un crecimiento a medida que aumenta la energía de impacto, ya que si bien el electrón de mayor energía puede generar más excitaciones, también podrá generar un mayor número de ionizaciones y en consecuencia aumenta el número de pares iónicos. Finalmente, se observa que el tercer término, que representa la producción de pares iónicos por los electrones secundarios generados por ionización, domina en el rango de energías intermedias y altas. Es por ello que el estudio de la producción de estos electrones secundarios, y las subsiguientes ionizaciones que pueden generar en un proceso físico, es de fundamental importancia para la determinación de los parámetros  $W$  y  $w$  utilizados en la dosimetría de referencia.

Si bien en la figura solo se muestra en detalle el número medio de pares iónicos obtenidos con la ecuación de Fowler para agua vapor, curvas similares se obtuvieron para todos los blancos en estudio en esta tesis.

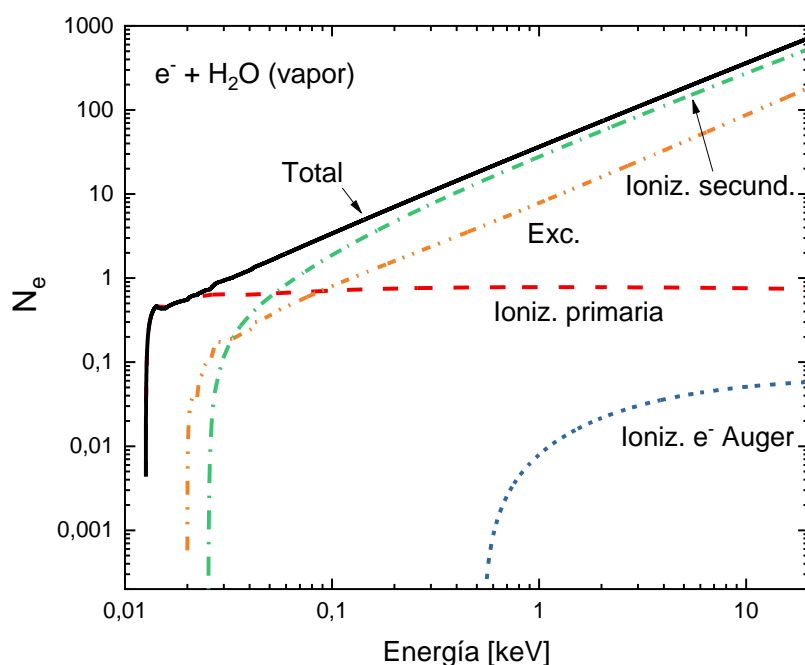


Figura 5.13: Número medio de electrones calculados con el método CSDA para agua vapor incluyendo los electrones Auger. Los modelos utilizados de las secciones eficaces es el de BEB para ionización y el de GS para la excitación. Ionización primaria: línea a trazo; Ionización por electrones Auger: línea trazo corto; Ionización por los electrones secundarios: línea y punto; y Ionización luego de una excitación: línea punto punto.

El número medio  $N_e$  se calculó además teniendo en cuenta la aproximación relativista en la secciones eficaces con el método CSDA. Comparando estas curvas con y sin la aproximación relativista, se observó que la incorporación de estas SE relativistas para los procesos de ionización y excitación por impacto de electrones no cambia el número de electrones generado por las colisiones. Esto ocurre ya que la relación entre las

secciones eficaces de ionización y excitación permanece constante, independientemente de la formulación clásica o relativista.

En la Figura 5.14 se muestra el número medio de electrones calculados utilizando el método CSDA y el MDM para agua vapor utilizando diferentes modelos en las secciones eficaces de excitación (presentadas en el capítulo 2). En todos los casos se consideró el efecto post-colisional de emisión Auger. Comparando los valores de CSDA y MDM con los mismos modelos BEB+GS se observa un buen acuerdo en todo el rango de energías. Al comparar estos con los valores calculados con BEB+Nikjoo et al (Nikjoo et al. (2006)) se aprecia una diferencia importante a bajas energías, la discrepancia llega a casi el 50% a una energía de 15 eV. A medida que la energía del electrón incidente se incrementa esta curva sigue la misma tendencia pero con valores menores. La discrepancia entre las curvas va disminuyendo, a 100 eV hay un porcentaje del 12% mientras que en 1 keV es del 8.5% aproximadamente. Esta diferencia era esperada ya que las  $SEE_e$  de GS son menores que las de Nikjoo para energías menores a 1 keV (ver gráficas en capítulo 2), por lo tanto hay mayor probabilidad de generar pares iónicos con el primer modelo.

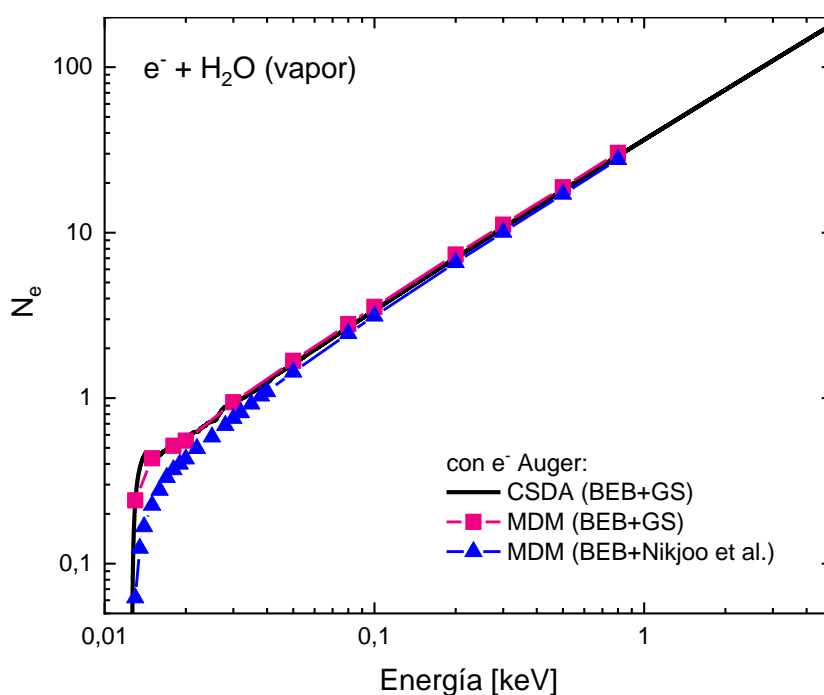


Figura 5.14: Numero medio de electrones calculados con los métodos de CSDA y MDM para agua vapor incluyendo electrones Auger. Se muestran los valores del MDM calculados con diferentes modelos para las secciones eficaces de excitación.

En la Figura 5.15 se muestra el valor  $W$  por impacto de electrones sobre agua vapor calculado utilizando la aproximación CSDA y la simulación MDM, con diferentes modelos para representar las secciones eficaces de excitación electrónica. Como se puede observar en la figura, la diferencia entre los diferentes modelos para las secciones eficaces de excitación impacta directamente en el cálculo del valor  $W$  especialmente a bajas energías. Tanto los valores calculados con MDM como con CSDA están lejos de los valores experimentales de Combecher en este rango de energías. Sin embargo entre ellos

tienen un buen acuerdo. Los valores obtenidos por el código Monte Carlo KURBUC y por método analítico de Inokuti tienen un mejor acuerdo con estos datos experimentales, esto se debe a los métodos y secciones eficaces utilizadas. Inokuti calculó el valor  $W$  utilizando una expresión lineal ajustada a datos experimentales. El código KURBUC utiliza el método de Seltzer (1988) para calcular las secciones eficaces simple diferenciales de ionización, donde considera una suma de dos contribuciones, una de colisión cercana y la otra distante. El modelo utilizado para las secciones eficaces de excitación es el mismo que se referencia en la presente Tesis como Nikjoo et al. (modelo de Paretzke et al.), con los mismos estados de excitación y parámetros. Por este motivo, la diferencia observada entre estas curvas a bajas energías puede atribuirse a la diferencia entre las secciones eficaces de ionización utilizadas. En el rango de altas energías se muestra con una flecha el valor recomendado por ICRU 31 de 29.6 eV. Los valores asintóticos de los cálculos CSDA y MDM, 26.38 eV y 28.89 eV, no están tan alejados del valor recomendado, lográndose un mejor acuerdo con los datos experimentales al considerar las secciones eficaces de excitación de Nikjoo et al., con una discrepancia relativa porcentual del 2.4%.

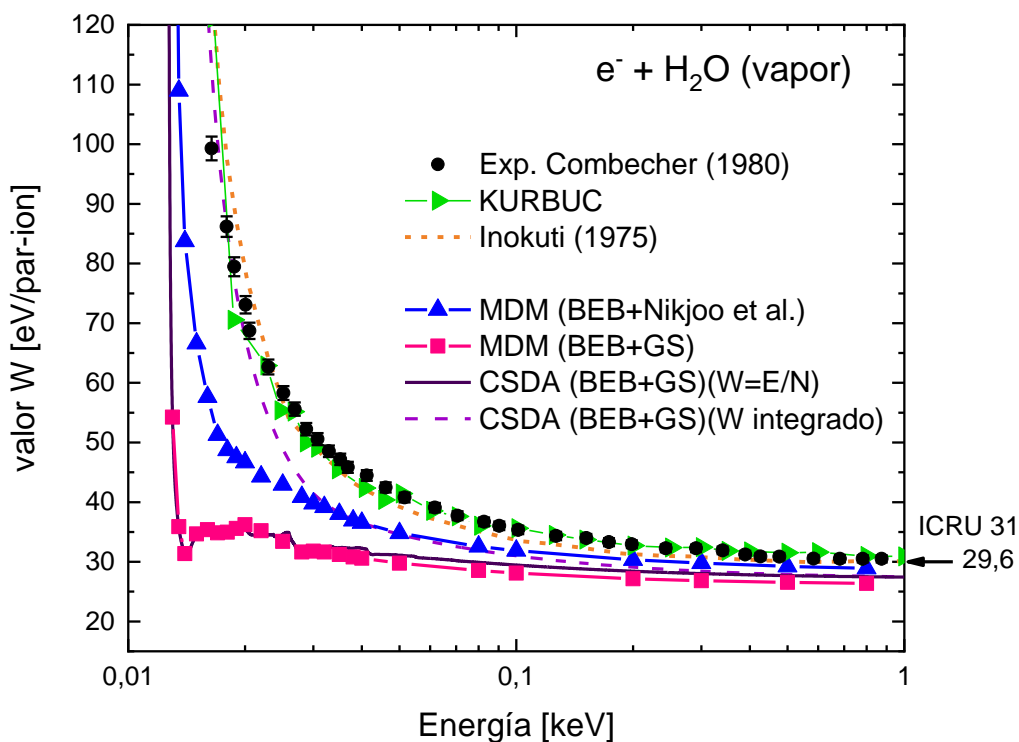


Figura 5.15: Valor  $W$  por impacto de electrones en agua vapor calculado con los métodos de CSDA y MDM. Se comparan con otros valores teóricos y recomendados y datos experimentales.

En la Figura 5.16 se muestra el valor  $W$ , figura izquierda, y el número medio de electrones calculados, figura derecha, utilizando el código MDM para agua líquida por impacto de electrones. Los modelos de secciones eficaces utilizados son BEB\_Gerv+Gervais et al. Se observan diferencias en los valores  $W$  dependiendo de si se considera o no la emisión de electrones Auger. La discrepancia entre estas curvas alcanza el 4% para una energía cinética del electrón incidente de 20 keV, aumentando para energías superiores. Esta misma discrepancia se encuentra también en el número medio

de electrones  $N_e$ , por lo cual se evidencia que este efecto post-colisional solo impacta en el número de electrones generados sin pérdida extra de energía del proyectil. Por lo tanto, al incrementarse el valor de  $N_e$  al considerar la emisión de electrones Auger, el valor  $W$  será menor. También se indican con flechas los dos valores experimentales mencionados al comienzo de la sección. Se observa que los valores calculados con MDM se encuentran entre ellos en el rango de altas energías.

En el panel de la derecha de la figura 5.16 se muestra un ajuste lineal realizado sobre los valores calculados utilizando el código MDM considerando emisión Auger. Este ajuste lineal para  $N_e$  fue implementado en el cálculo del valor  $w$  diferencial por impacto de iones con el modelo CSDA. Esto se hizo así, ya que para impacto de iones se necesita un valor muy grande de  $N_e$  a altas energía y el método recursivo de Fowler no es confiable en ese rango de energías. Se observó que a partir de 1 keV este método subestima los valores obtenidos por otros modelos. Al ser un método de cálculo analítico recursivo es muy sensible al cálculo numérico utilizado y requiere un tiempo computacional excesivo para obtener resultados precisos sin fluctuaciones para altas energías.

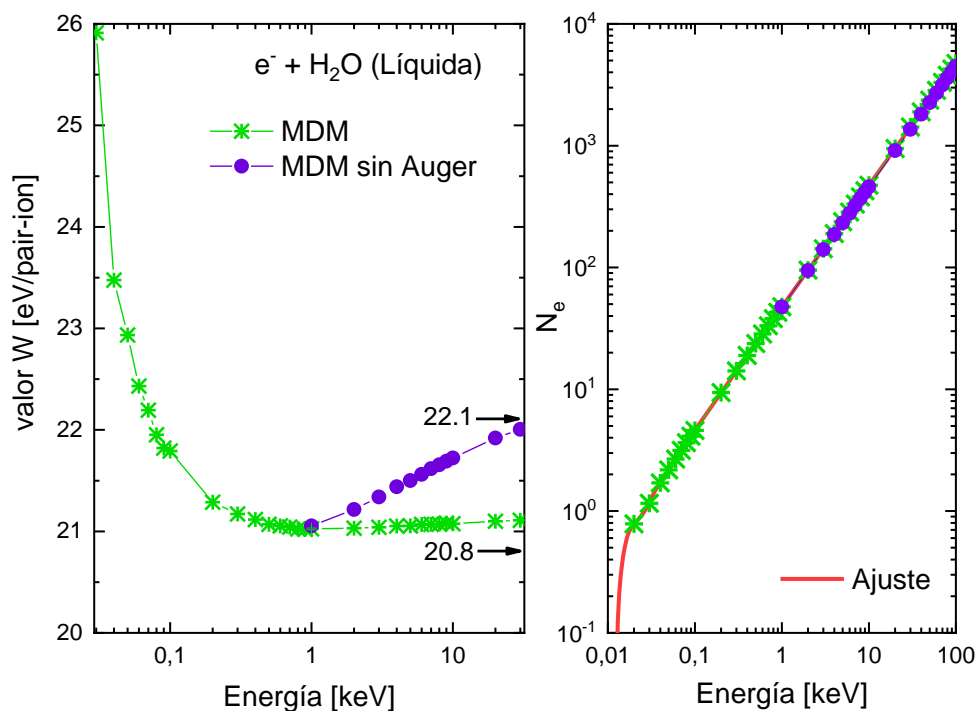


Figura 5.16: Valor  $W$ , figura de la izquierda, y el número medio de electrones, figura de la derecha, por impacto de electrones en agua líquida calculados con el código MDM. Se muestran la diferencia al considerar los electrones Auger. Con flechas se muestran los valores experimentales. La línea llena en la figura de la derecha es un ajuste/interpolación a los valores.

La Figura 5.17 muestra el valor  $W$  por impacto de electrones en nitrógeno calculado con el código MDM considerando los electrones Auger. Estos valores se comparan con datos experimentales tomados de Srdoč et al. (1995) IAEA TECDOC 0799, de Combecher (1980) y el valor recomendado del ICRU 31. Los valores calculados subestiman los datos experimentales en todo el rango de energía; sin embargo, los resultados teóricos muestran

un comportamiento asintótico a altas energías en concordancia con los datos experimentales. Se observa también que la diferencia entre simulaciones y experimentos disminuye a energías mayores a 1 keV. Las secciones eficaces utilizadas para los cálculos fueron las de BEB+GS. En la figura se muestran los resultados en los cuales se han corregido las evoluciones asintóticas de los procesos de excitación electrónica. En particular, se ha realizado un ajuste en los últimos tres estados de excitación, de forma tal de seguir la pendiente de las SE de ionización a partir de los 2 keV. Este ajuste se realizó para evitar que las curvas de excitación e ionización se crucen a altas energías (ver capítulo 2). En la Figura 5.17 se observa una pequeña diferencia en el valor  $W$  con este ajuste, lográndose un comportamiento asintótico a un valor constante.

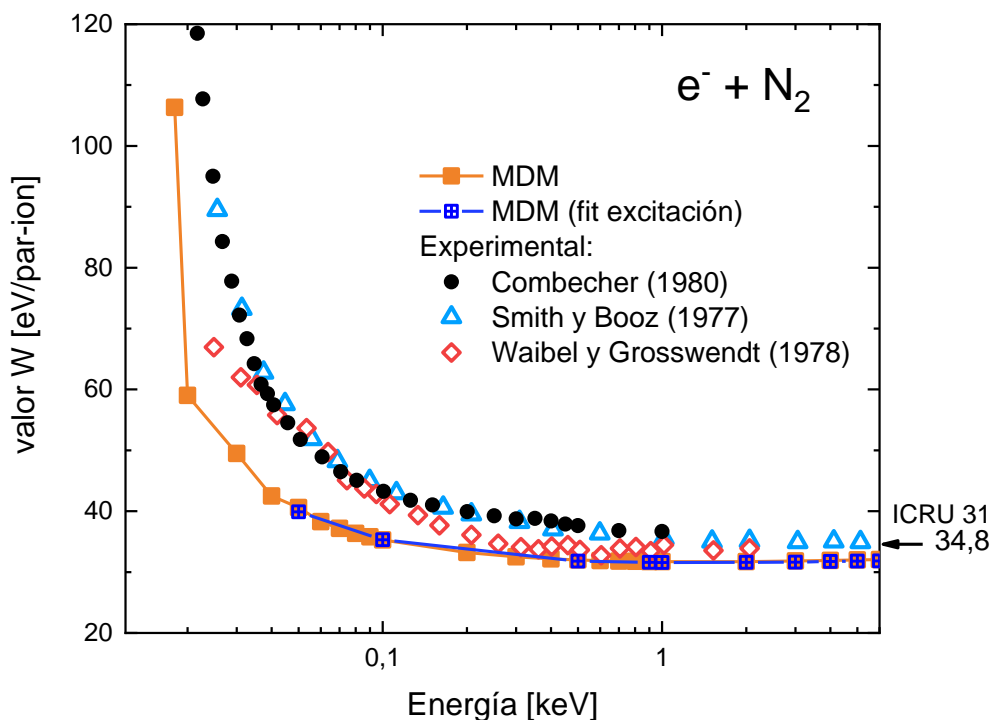


Figura 5.17: Valor  $W$  por impacto de electrones en nitrógeno calculado con MDM. Se comparan datos experimentales y recomendados.

El valor  $W$  por impacto de electrones en oxígeno se calculó con el código MDM, teniendo en cuenta los electrones Auger. En la Figura 5.18. se comparan los resultados con datos experimentales de Combecher (1980), donde se observa una gran diferencia a bajas energías, logrando un mejor acuerdo a energías a partir de 200 eV. Los modelos de las secciones eficaces utilizadas para los cálculos fueron las de BEB+GS. La diferencia entre los cálculos presentados se debe al tipo de ajuste asintótico que se realizó a algunos estados de excitación electrónica. Se observa una pequeña diferencia entre estas curvas, las cuales no superan el 1% a altas energías.

El valor  $W$  para aire se calculó a partir de los valores calculados para los gases de  $N_2$  y  $O_2$  considerando la mezcla de estos gases en las proporciones:

$$\text{Aire} = 0.76 N_2 + 0.24 O_2$$

En la Figura 5.19 se muestran estos valores  $W$  y se comparan con los de Combecher, los cuales se obtuvieron de realizar la mezcla con los valores experimentales de nitrógeno y oxígeno con las proporciones mencionadas. Además se comparan con datos experimentales extraídos de IAEA TECDOC-799 (Srdoč et al. (1995)) y de Büermann et al. (2006). En el reporte TECDOC-799, no especifica la composición y proporción de los elementos que componen el aire. En la publicación de Büermann menciona que utiliza nitrógeno, oxígeno y argón en las proporciones conocidas y utilizadas por otros reportes como el ICRU, esto es 0.7554 de N, 0.2317 de O y 0.0129 de Ar para una energía de impacto del electrón  $> 4$  keV. Se observa un buen acuerdo entre los valores calculados en la presente tesis y el valor recomendado, con un error relativo porcentual menor al 6%. Es importante mencionar que la diferencia observada a bajas energía tiene un fuerte impacto luego sobre el cálculo del valor  $w$  para iones.

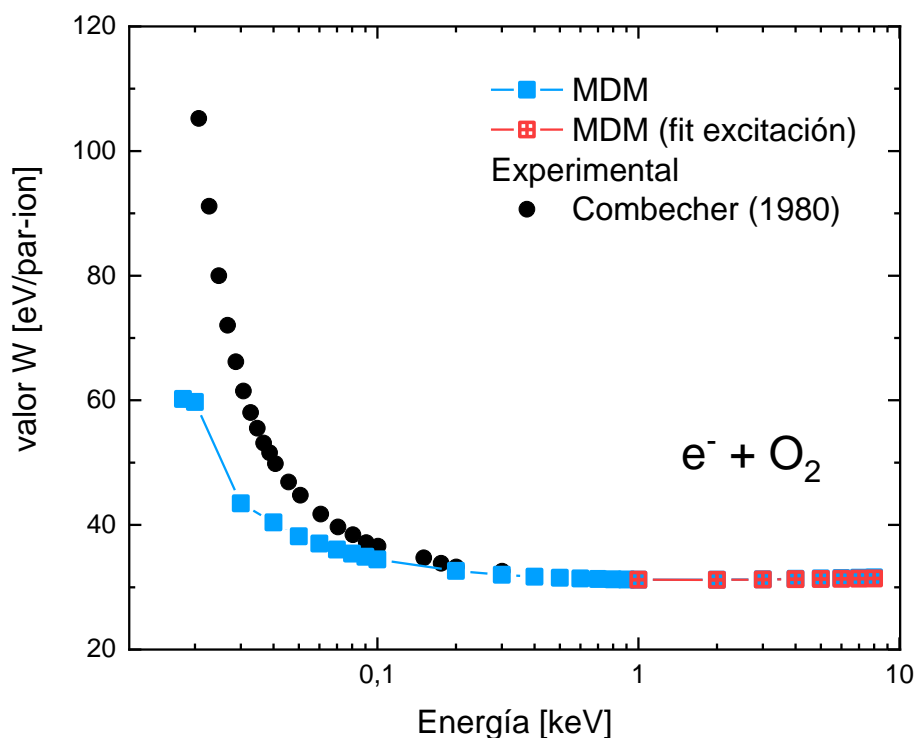


Figura 5.18: Valor  $W$  por impacto de electrones en oxígeno calculado con MDM. Se comparan con datos experimentales.

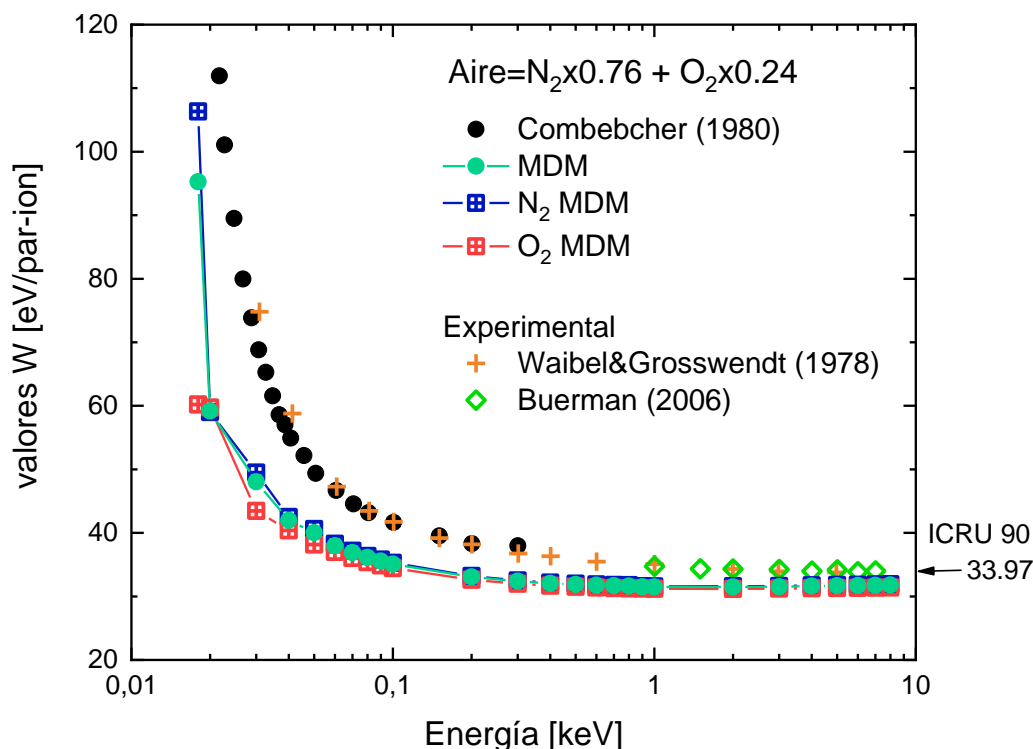


Figura 5.19: Valor  $W$  por impacto de electrones en aire obtenido de los valores de MDM, con ajuste en las pendiente de excitación, con las proporciones de 0.76% de nitrógeno y 0.24% de oxígeno. Se comparan datos experimentales y recomendados.

### 5.2.3.2 Impacto de protones e iones de carbono

Los valores  $w$  diferenciales para el caso de impacto de iones de carbono y de protones en agua líquida se calcularon utilizando el código MDM-Ion y el método CSDA.

En la Figura 5.20, se comparan los valores  $w$  calculados con MDM-Ion utilizando diferentes modelos teóricos para describir las SE de excitación, el de GS y Gervais et al., con diferentes números de estados (ver capítulo 3). En estos cálculos no se incluyeron la corrección relativista y los efectos post colisión, ya que se realizaron a fin de estudiar la influencia de las secciones eficaces de excitación electrónica en los resultados. Se puede observar un comportamiento casi constante con el modelo de Gervais et al. En el caso del modelo GS, se observa un valor  $w$  mayor cuando consideramos los mismos dos estados de excitación electrónica que el modelo de Gervais et al., y aumenta al considerar cinco estados de excitación electrónica. Esto se debe a que al incrementarse la excitación electrónica respecto al proceso de ionización, disminuye la cantidad de pares iónicos generados y en consecuencia el valor  $w$  se incrementa. Como puede observarse en la figura, la diferencia relativa porcentual al considerar diferentes modelos y estados excitados puede incrementarse notablemente con la energía del ion incidente hasta alcanzar valores cercanos al 10%. Esto da cuenta de la necesidad de lograr secciones eficaces de excitación electrónica confiables para aplicaciones en códigos de simulación de transporte de partículas para aplicaciones en física médica clínica.

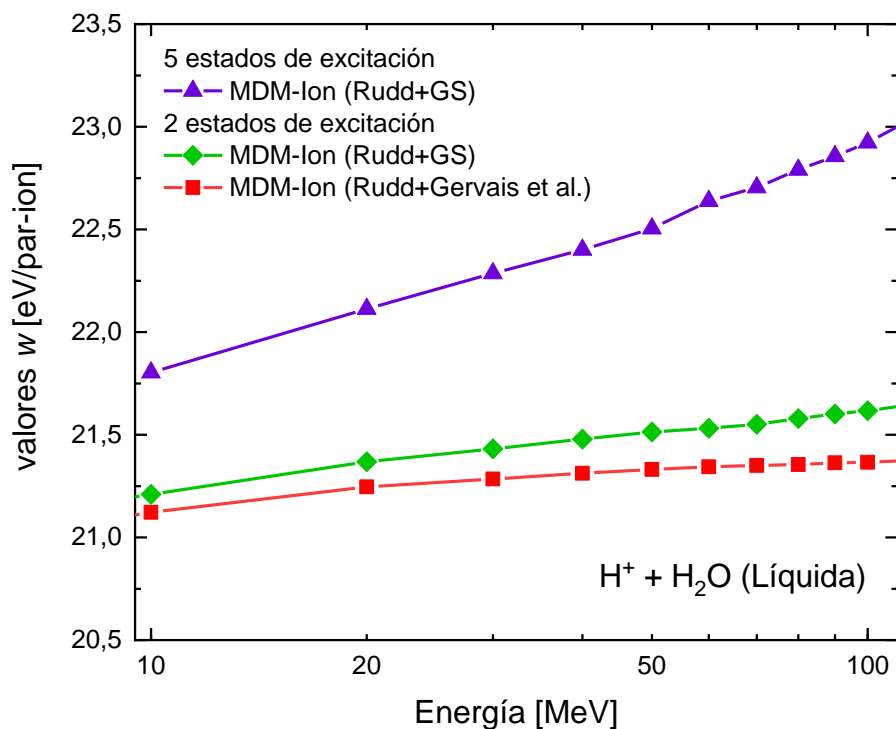


Figura 5.20: Valores  $w$  diferenciales calculados con MDM-Ion para impacto de protones en agua líquida. Se consideraron diferentes modelos de sección eficaz de excitación y número de estados electrónicos.

El conocimiento de las SED de ionización por impacto de iones nos permite estudiar el espectro energético de los electrones emitidos, y consecuentemente determinar si es necesario o no incluir las aproximaciones relativistas (AR) en las secciones eficaces en la interacción entre los electrones secundarios y el medio. En la Figura 3.3, se muestran las SED calculadas con los modelos Rudd y Rudd-AR en función de la energía del electrón emitido por impacto de protones en agua líquida con energías de 100 y 400 MeV. Al ser energías a las cuales comienzan a observarse efectos relativistas (superiores a los 50 MeV), se observó una diferencia entre las curvas con y sin AR. Del análisis de estas figuras se concluyó que la probabilidad de generar un electrón con energía cinética superior a los 10 keV era menor al 0.1% y que la energía promedio de los electrones emitidos es  $\sim 45$  eV. Sumado a esto, se determinó realizando cálculos con las simulaciones MDM y MDM-Ion que el número medio  $N_e$  es independiente de la AR. Por este motivo, y a fin de simplificar los cálculos, se utilizaron secciones eficaces sin corrección relativista para tratar las interacciones inelásticas entre los electrones emitidos y el medio en el cálculo de los valores  $w$  diferenciales por impacto de iones.

La Figura 5.21 muestra los valores  $w$  para el impacto de protones en agua líquida calculados con el código CSDA y MDM-Ion, introduciendo la aproximación relativista en las secciones eficaces de ionización y excitación por impacto del ion incidente. Se comparan los resultados de MDM-Ion con y sin AR. Las barras de error en estos valores representan un intervalo de confianza del 99.7 %. Para energías superiores a 50 MeV se puede observar que los valores con y sin correcciones relativistas difieren en menos del 0.5% contrariamente a los resultados mostrados de poder de frenado.

Los valores  $w$  con AR calculados con CSDA y MDM-Ion muestran una muy buena concordancia entre ellos. Se puede apreciar una pequeña diferencia más allá de 100 MeV, la cual podría atribuirse al ajuste realizado para determinar el número medio  $N_e$  de electrones presentado en la Figura 5.16 y a la determinación del valor  $w$  con el método CSDA, ya que es muy sensible al método numérico utilizado para su determinación, tales como como el método de integración, el paso en las energías de las partículas primarias y secundarias, etc. También en MDM-Ion a altas energías se observan mayores fluctuaciones estadísticas.

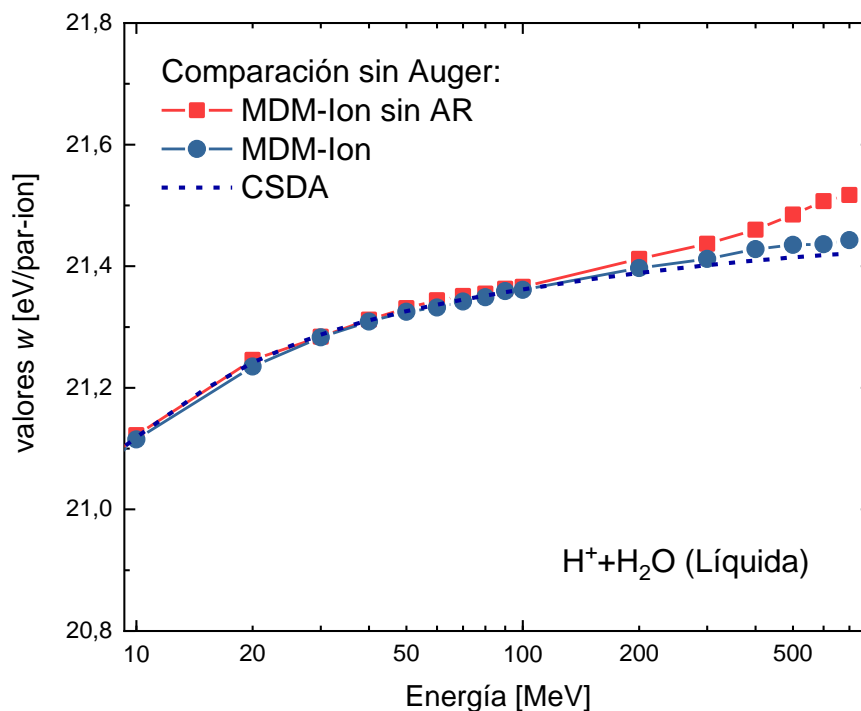


Figura 5.21: Valores  $w$  diferenciales para impacto de protones en agua líquida con y sin correcciones relativistas en la velocidad del proyectil calculadas con MDM-Ion y CSDA. El modelo de SE utilizado es Rudd + Gervais et al. .

La Figura 5.22 muestra los valores  $w$  diferenciales con y sin electrones Auger para proyectiles rápidos de iones de carbono y protones. Las curvas de ambos proyectiles coinciden en este rango de alta energía. Esto está relacionado a la dependencia de las secciones eficaces de ionización y excitación electrónica con el cuadrado de la carga del proyectil  $Zp^2$ , a altas energías de impacto. Se puede observar que los valores  $w$  considerando la emisión de electrones Auger son menores que sin ellos. Para el impacto de iones a alta energía, la emisión post-colisional de electrones tipo Auger domina las secciones eficaces de ionización múltiple, como se observó en el caso de Ne y otros objetivos atómicos (Galassi et al. (2007)). Un valor medio de 20.6 eV se marca en la figura con línea recta considerando los electrones Auger con una incertidumbre correspondiente al 1%. A energías medias y bajas, los procesos de captura electrónica e intercambio de carga iónica comienzan a dominar por sobre los procesos de excitación electrónica e ionización. Tales observaciones también se realizaron en el poder de frenado. El estudio de los valores  $w$  para energías menores a 10 MeV/u es relevante en dosimetría ya que es

allí donde el ion deposita su máxima energía en el medio, llamado pico de Bragg, y será objeto de futuras investigaciones que permitan extender los resultados aquí presentados.

También se realizaron cálculos estudiando el proceso de doble ionización directa. Al tener relevancia solo a energías más bajas, no influyó en los resultados de los valores  $w$ .

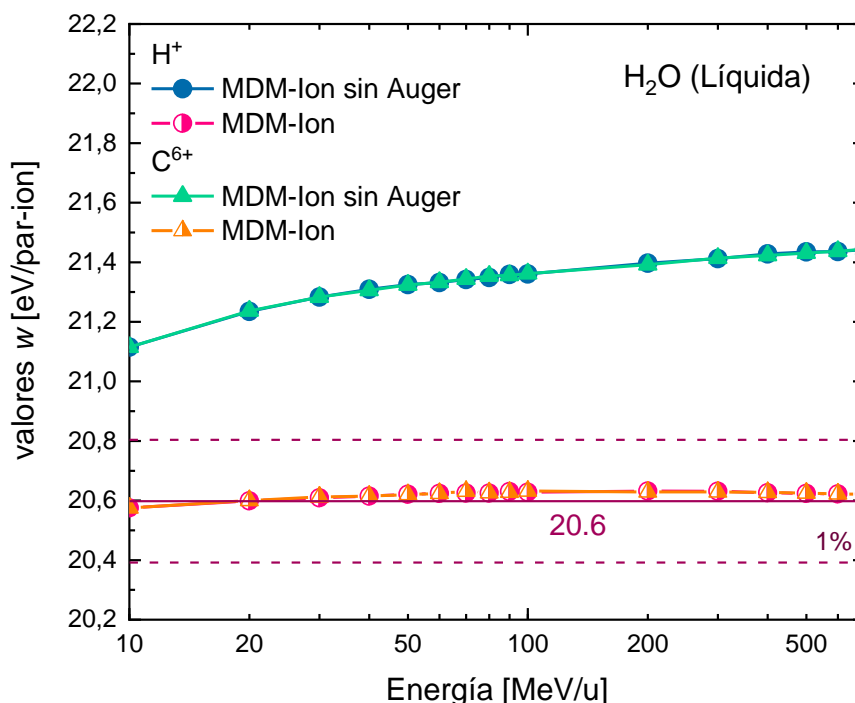


Figura 5.22: Valores  $w$  diferenciales para impacto de iones de carbono y protones en agua líquida con correcciones relativistas en la energía cinética del proyectil. También se tuvo en cuenta la emisión de electrones Auger. El modelo de SE utilizado es Rudd + Gervais et al. .

En la Figura 5.23, los valores  $w$  calculados con el código MDM-Ion se comparan con los obtenidos por otros autores mediante cálculos realizados con otros códigos Monte Carlo y con cálculos de CSDA para impacto de protones y electrones. Los resultados de MDM-Ion presentan un comportamiento asintótico a un valor de  $\sim 20.6$  eV. Baek, Grosswendt (2007) calcularon los valores  $W$  y  $w$  para impacto de protones en agua líquida utilizando una expresión analítica basada en la aproximación CSDA. Para ello, determinaron la relación entre la sección eficaces de ionización y los valores de poderes de frenado de ICRU. Para calcular las secciones eficaces de ionización diferencial única, utilizaron tres modelos diferentes, de Dingfelder et al. (2000), de Emfietzoglou et al. (2000) y el modelo HKS (Hansen-Kocbach-Stolterfoht) (ICRU REPORT 55 (1996)). Los valores  $w$  obtenidos se encuentran entre 21.5 eV y 26.5 eV en el rango de energía de 1 MeV a 10 MeV, y muestran un aumento al aumentar las energías. La tendencia de estos resultados no se condice con las observaciones experimentales en medios gaseosos.

A fin de incluir en la misma figura los resultados por impacto de electrones y de protones, se escaló la energía del electrón proyectil a una energía cinética del protón con la misma velocidad que el electrón incidente. Para energías mayores a 1 MeV, todas las

curvas tienden a valores constantes pero diferentes. El valor  $W$  para electrones calculado con el código MDM alcanza un valor constante de 21.1 eV que tiene una buena concordancia con el valor experimental de 20.8 eV. Este valor se ha determinado indirectamente a partir de mediciones del rendimiento radiolítico de electrones solvatados (Mozumder (1999)). También está muy cerca al obtenido con MDM-Ion para proyectiles de iones de carbono y protones, presentando un 2.3% de discrepancia a altas energías. Los códigos PARTRAC (Dingfelder et al. (2008)) y RETRACK (El Naqa et al. (2012)) dan valores superiores al obtenido por MDM, alcanzando 25.5 eV y 22.8 eV respectivamente. Las secciones eficaces inelásticas incluidas en el código PARTRAC se basan en una aproximación de Born de onda plana de primer orden no relativista y un modelo de la función de respuesta dieléctrica del agua líquida. Tiene en cuenta los cinco estados de excitación electrónica presentados con el modelo GS. También incluye la emisión de electrones Auger después de la ionización de la capa K. El código RETRACK utiliza el formalismo de Rudd para las secciones eficaces de ionización y el modelo de Gervais et al. para los estados de excitación electrónica  $A_1B^1$  y  $B_1A^1$ , pero agregando la excitación de plasmones aumentando considerablemente la sección eficaz de excitación total. Este código también incluye los procesos post-colisionales de recombinación entre electrones y iones parentales, autoionización y fragmentación molecular.

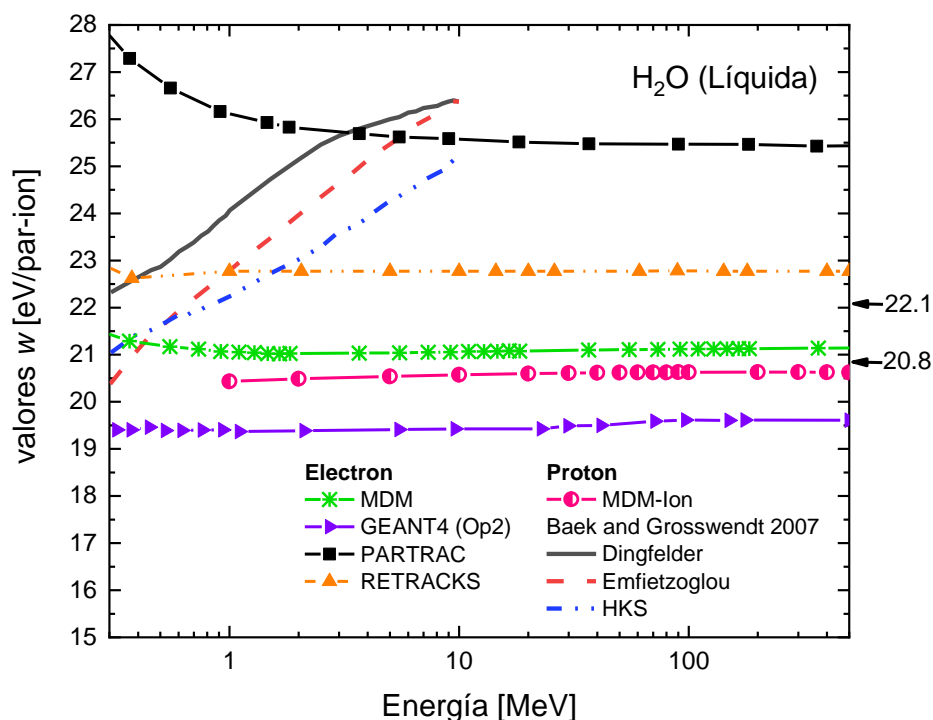


Figura 5.23: Valores de  $w$  diferenciales para impacto de protones se comparan con valores  $W$  por impacto de electrones para diferentes códigos Monte Carlo y métodos de CSDA en agua líquida. Proyectil de electrones: MDM (estrella verde), GEANT4\_Op2 (flecha morada), PARTRAC (cuadrado negro) y RETRACKS (triángulo naranja). Proyectil de protones: MDM-Ion (semicírculo rosa), CSDA con diferentes modelos (líneas rojas, azules y negras). Se indica con flechas los valores experimentales: 22.1 de Mozumder y Hatano y 20.8 de Jonah et al. y Sumiyoshi et al..

Los resultados de Geant4-DNA, calculados con una de las opciones de secciones eficaces inelásticas disponibles, también se muestran en la Figura 5.23. La "opción 2" (referida como Geant4\_Op2 en la figura) incluye el proceso de emisión de electrones Auger y toma una energía de corte de 7.4 eV para el seguimiento de los electrones, obteniendo así un valor  $W$  constante de 19.5 eV (Incerti et al. (2018)). Otra opción (Geant4\_Op4) (Kyriakou et al. (2015)) da el mismo valor asintótico que el código RETRACKS.

Para agua vapor se calcularon los valores  $w$  por impacto de protones utilizando el MDM-Ion considerando las SE de Rudd + Nikjoo et al. y la AR. Se eligió estas SE ya que por impacto de electrones eran las que más se aproximaban a los datos experimentales y de referencia. En la Figura 5.24 se muestra el valor  $w$  considerando la emisión de electrones Auger, obteniendo valores menores respecto a los cálculos en los que no se considera este efecto post-colisional, tal como se mencionó para agua líquida. Esto se debe a que los electrones Auger tienen energía suficiente para provocar varias ionizaciones, incrementándose de este modo el número de pares iónicos. Ambas curvas se calcularon con la corrección relativista en la energía cinética del proyectil.

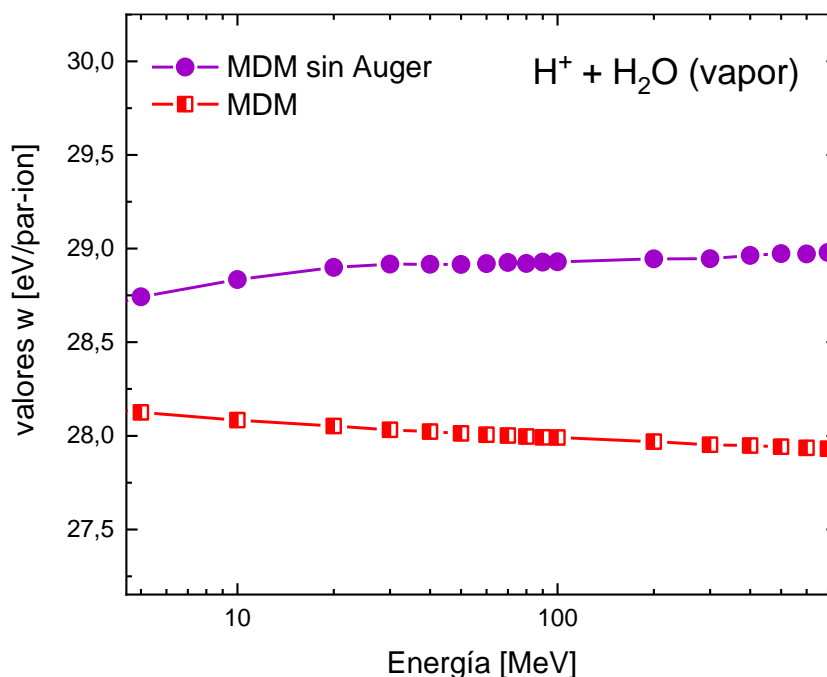


Figura 5.24: Valores  $w$  diferenciales para impacto de protones en agua vapor con correcciones relativistas en la energía cinética del proyectil. Se consideró además la emisión de electrones Auger. El modelo de SE utilizado es Rudd + Nikjoo et al. .

En la Figura 5.25 se comparan los valores  $W$  y diferenciales  $w$  en agua vapor por impacto de electrones y protones calculados con el MDM y el MDM-Ion respectivamente, utilizando una escala en las energías del electrón. Como se observó para agua líquida, los valores por impacto de electrones son mayores a los de agua vapor. Se comparan, además, con datos experimentales de Combecher por impacto de electrones, los cuales alcanzan un valor asintótico de 30.38 eV a altas energías, y el valor experimental obtenido por

Christophorou por impacto de protones de 30.5 (indicado con una flecha). En la misma gráfica se marca el valor constante establecido por ICRU 31 de 29.6 eV a altas energías. Los valores calculados con los códigos MDM y MDM-Ion difieren entre sí en un 1.2% para la máxima energía de electrones que se muestra en la figura, alrededor de los 18 MeV correspondiente a una energía cinética del electrón aproximada de 10 keV. Comparando el valor  $w$  diferencial calculado para haces de protones con el experimental vemos que difieren en un 8%. La discrepancia entre el valor  $W$  de electrones calculado con MDM y el valor recomendado es del 4% aproximadamente y entre el calculado y el experimental del 5%.

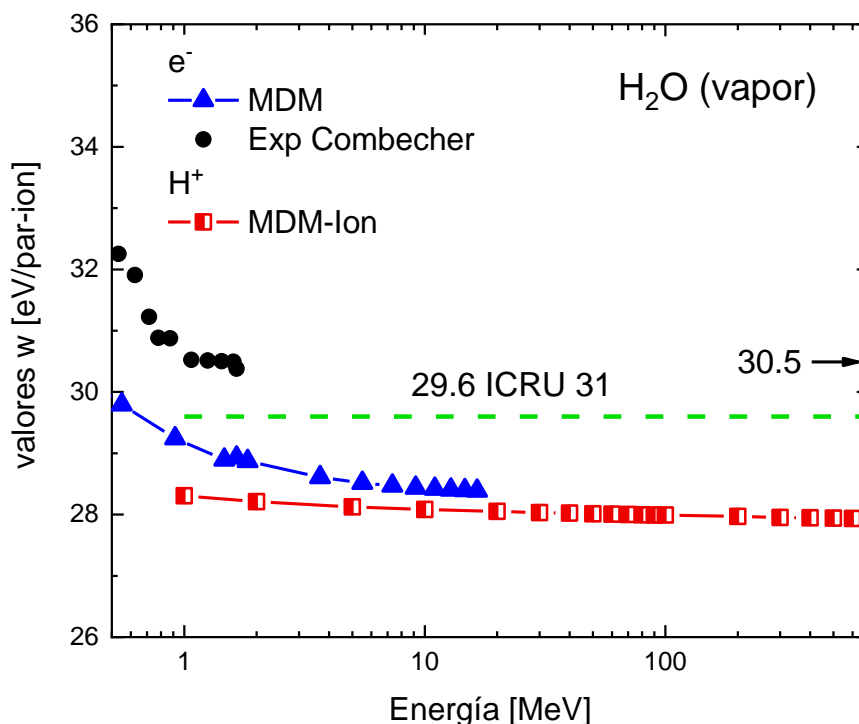


Figura 5.25: Valores  $w$  diferenciales por impacto de protones se comparan con valores  $W$  por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente. Se comparan con datos experimentales de Combecher y de Christophorou L.G. (1971) y de referencia del ICRU 31.

En la Figura 5.26 se presentan los valores  $w$  en nitrógeno gaseoso por impacto de protones y electrones. Los cálculos para protones se realizaron con el código MDM-Ion, mientras que los valores  $W$  para electrones se obtuvieron utilizando el código MDM. Para poder hacerlo, se adaptaron estos códigos a este blanco gaseoso, lo que implica un arduo trabajo en la incorporación de nuevas bases de datos. Los modelos de SE utilizados para estos cálculos son: BEB+GS para electrones y Rudd+GS para protones con AR. Se muestran los valores con y sin electrones Auger donde se observa una diferencia apreciable como en los medios estudiados anteriormente. Para ambos proyectiles se realizó el ajuste en la pendiente de las SE de excitación de forma tal de seguir la pendiente de las SE de ionización (ver capítulos 2 y 3 para más detalle). Para impacto de electrones este ajuste dio valores  $W$  menores siguiendo el mismo comportamiento que sin el ajuste, Figura 5.25. Para el caso de protones la diferencia es mas marcada, no solo da valores  $w$

menores si no que además presentan un comportamiento casi constante. Estas curvas se comparan con datos recomendados del ICRU 31. En electrones este protocolo da un valor de 34.8 eV para  $E > 10$  keV ( $\sim 18$  MeV en esta escala), el cual es muy superior al obtenido utilizando MDM con estas secciones eficaces ( $\sim 32$  eV), que corresponde a una diferencia relativa porcentual del 6%. Este valor de 32 eV es muy cercano al de impacto de protones de 32.4 eV con el ajuste en la pendiente para altas energías, diferencia menor al 2%. Sin este ajuste tenemos un valor de 34.1 eV y sin considerar los electrones Auger de 37 eV. Al comparar estos valores con el del ICRU 31 de 36.5 eV vemos que se consigue un mejor acuerdo con los resultados en los que no se consideraron los efectos post-colisionales a altas energías, aunque la curva siga un comportamiento creciente y no constante en el rango de valores estudiado. Resulta evidente que en este caso se deben mejorar las secciones eficaces de excitación electrónica, incluyendo estados que probablemente no hayan sido considerados o cuyas secciones eficaces no estén bien descritas por el modelo teórico.

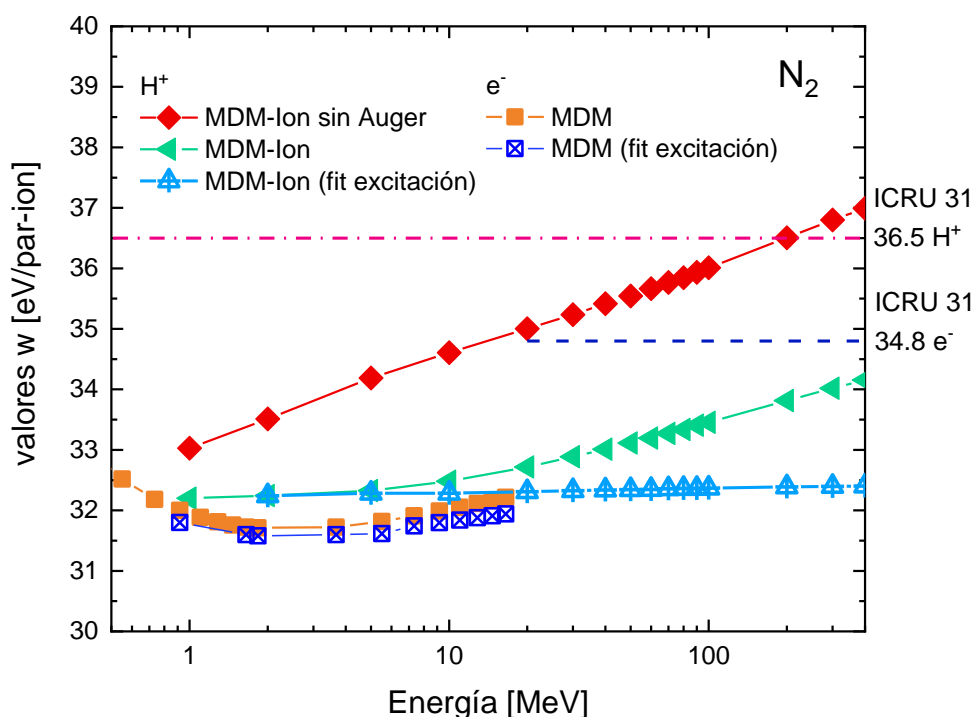


Figura 5.26: Valores  $w$  diferenciales por impacto de protones se comparan con valores  $W$  por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en nitrógeno. Se muestran las diferencias al ajustar las secciones eficaces de excitación y se comparan con datos recomendados del ICRU 31.

En la Figura 5.27 se presentan los valores  $W$  y  $w$  para impacto de electrones y protones sobre oxígeno gaseoso. Los modelos empleados para las SE son los mismos que para el caso de nitrógeno aunque solo se ha realizado el cálculo considerando el ajuste en la pendiente de las SE de excitación. Los valores para ambos proyectiles son cercanos, estos es 31.4 eV para electrones y 32.1 eV a altas energías (diferencia del 3%). No se ha encontrado datos teóricos, de referencia o experimentales para comparar con estos resultados.

Los valores  $w$  en nitrógeno y oxígeno para impacto de protones se combinaron para formar el valor correspondiente a aire en las proporciones: 0.76  $N_2$  y 0.24  $O_2$ , al igual que se realizó obtener los valores  $W$  en aire para impacto de electrones. Como se puede observar en la Figura 5.28, la curva de aire se posiciona entre las curvas de nitrógeno y oxígeno, siendo este último el menor al tener menor proporción en la mezcla. Al comparar este valor con el valor  $W$  para electrones, vemos que hay una diferencia del 1.5% tomando los valores asintóticos a altas energías. Se muestran además valores constantes establecidos por los protocolos internacionales, esto es: 34.44 eV del ICRU90 y 34.23 eV de la IAEA TRS-398 para protones y 33.97 eV de la IAEA TECDOC 799 para electrones. Al compararlos con nuestros valores calculados una diferencia aproximada del 6% para ambos proyectiles en el límite asintótico. Claramente, se debe avanzar en mejorar las secciones eficaces de excitación electrónica para estos gases.

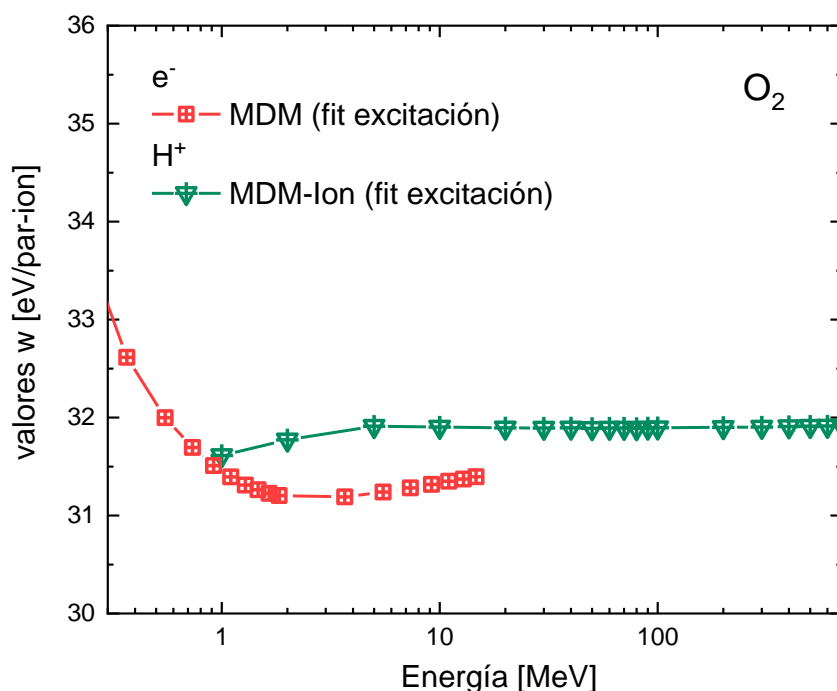


Figura 5.27: Valores  $w$  diferenciales por impacto de protones se comparan con valores  $W$  por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en oxígeno.

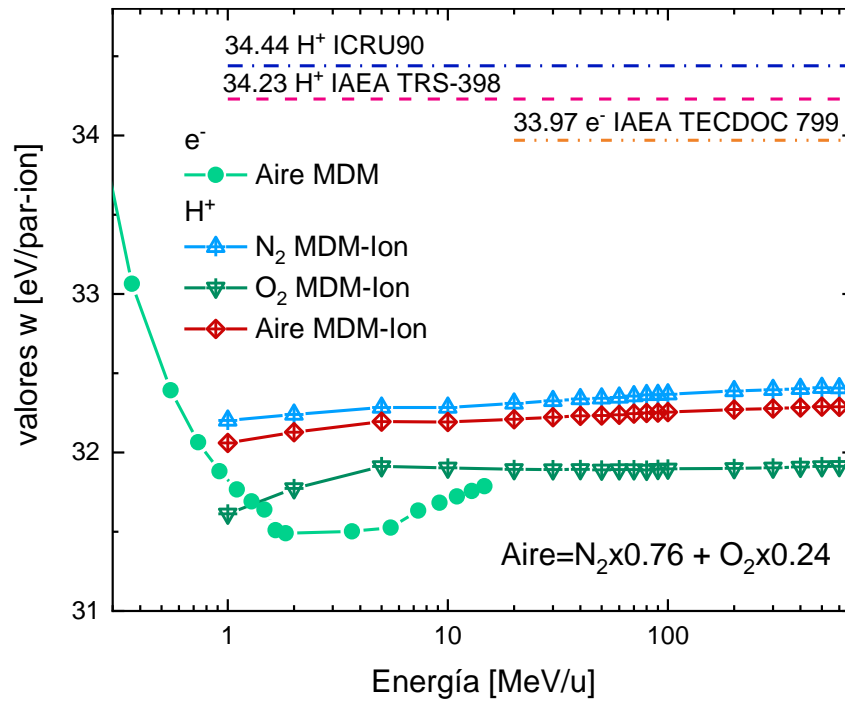


Figura 5.28: Valores  $w$  diferenciales por impacto de protones se comparan con valores  $W$  por impacto de electrones calculados con MDM-Ion y MDM respectivamente en aire. Se comparan con los valores de nitrógeno y oxígeno calculados con MDM-Ion, y con valores recomendados por la IAEA TECDOC-799, IAEA TRS-398 y ICRU 90.

## CONCLUSIONES

En este capítulo se calcularon los poderes de frenado másicos de electrones, protones e iones de carbono, los valores  $W$  para impacto de electrones y los valores  $w$  diferenciales para impacto de protones e iones de carbono. Ambos parámetros se estudiaron en los medios de agua líquida y vapor, nitrógeno y oxígeno para formar el aire ya que son los principales componentes del mismo.

El poder de frenado másico se calculó a través del método CSDA para todos los proyectiles, y con el código MDM-Ion para impacto de protones e iones de carbono, utilizando las secciones eficaces correspondientes a los procesos físicos inelásticos relevantes estudiados en los capítulos 2 y 3. Los resultados obtenidos muestran un buen acuerdo entre los dos métodos de cálculo utilizados y los datos recomendados por NIST e ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 49 (2015); ICRU REPORT 90 (2016) para dosimetría clínica. Se observó que el proceso de excitación tiene una contribución menor al 10% para energías intermedias y altas. Por el contrario, la ionización es el proceso dominante en la pérdida de energía del proyectil. La aproximación relativista aplicada al cálculo de las secciones eficaces, y con ella al poder de frenado, fue fundamental para poder obtener un acuerdo con los datos recomendados en el rango de energías superiores a los 20 keV para electrones y 50 MeV/u para iones. El buen acuerdo de los poderes de frenado encontrado entre los resultados obtenidos y los datos recomendados validan no solo la utilización de los modelos teóricos CSDA y el MDM-Ion, sino también la elección de las secciones eficaces inelásticas, lo cual es crucial para el cálculo posterior de los valores  $W$  al ser más complejos.

Los valores  $W$  y  $w$  diferenciales se calcularon por medio de los métodos CSDA y los códigos Monte Carlo MDM y MDM-Ion. Estos valores se compararon con datos experimentales, los cuales son escasos, y con otros valores teóricos derivados de códigos Monte Carlo y modelos teóricos analíticos. Se estudió en detalle el impacto de las secciones eficaces, la aproximación relativista a la energía cinética y la emisión de electrones Auger post-colisión utilizadas en los códigos. Se encontró que los valores  $W$  y  $w$  son muy sensibles a la elección de las secciones eficaces inelásticas, especialmente a las de excitación. Estos modelos semi-empíricos de excitación difieren considerablemente entre sí a pesar de que se basan en los mismos datos experimentales como se mostró en el capítulo 2. También se observó la relevancia en incluir la emisión de electrones Auger obteniendo un 4% de discrepancia al considerar o no este efecto post-colisional. En cuanto a la aproximación relativista realizada sobre la energía cinética del proyectil, podemos observar que los valores  $W$  y  $w$  calculados con y sin esta corrección presentan una diferencia muy pequeña entre ellos. Este comportamiento era el esperado, ya que la relación entre las secciones eficaces de ionización y excitación no se ve afectada por la aplicación o no de la aproximación relativista.

Los resultados obtenidos de los valores  $w$  con MDM-Ion para protones e iones de carbono presentan un muy buen acuerdo con los resultados de los valores  $W$  con MDM para impacto de electrones en el límite asintótico de altas energías, siendo que la

discrepancia porcentual entre ambas curvas no supera el 3% considerando la mayor diferencia entre todos los medios estudiados. Además, presentan comportamientos constantes en el rango de altas energías investigado. Los cálculos numéricos basados en el CSDA (utilizando las mismas secciones eficaces inelásticas) dan valores cercanos a los obtenidos con MDM y MDM-Ion. Si bien existen diferencias entre los valores calculados y los experimentales y recomendados, los resultados teóricos obtenidos para agua son cercanos y tienen el mismo comportamientos que otros códigos de simulación ampliamente utilizados en la actualidad para la dosimetría de radiación y la investigación radiobiológica. Los valores obtenidos en aire, como combinación de nitrógeno y oxígeno, con el Monte Carlo difieren de los valores recomendados en los protocolos de dosimetría en un 6% aproximadamente. Esta diferencia es elevada para los porcentajes de incertezas requeridos en el cálculo de la dosis; por lo tanto, se continuarán estudiando los procesos inelásticos más relevantes, junto a los modelos teóricos empleados para las describir las secciones eficaces de estos procesos. También se deben analizar otros parámetros que pueden influir, tales como la geometría de las cámaras de ionización, el efecto del potencial eléctrico dentro de ellas, etc.

De acuerdo a los resultados obtenidos para todos lo medios estudiados, se induce que los valores  $W$  y  $w$  muestran una independencia con la carga, masa y energía del proyectil en el régimen de altas energías. Siendo que esta independencia no se mantiene en el rango de energías bajas e intermedias, nuevas investigaciones son requeridas para comprender su comportamiento. También, se necesitan más datos experimentales ya que podrían ser utilizados como marcadores de referencia (junto con el poder de frenado) en los códigos Monte Carlo desarrollados actualmente para nano y microdosimetría.

## CONCLUSIONES GENERALES

Actualmente, el cáncer es una de las enfermedades de mayor incidencia en nuestro país y en el mundo. Tal como se vio en el Capítulo 1, la radioterapia permite tratar diversos tipos de tumores utilizando radiaciones ionizantes. Utiliza haces de fotones, electrones, neutrones e iones, cada uno de los cuales presenta un perfil de deposición de dosis diferente (característico del tipo de radiación). Para el caso de iones, el perfil de dosis presenta un pico máximo a una profundidad bien definida, cayendo rápidamente a cero (para el caso de protones) o a valores despreciables (partículas alfa o iones de carbono utilizados en hadronterapia). Esto permite una alta conformación del volumen a tratar, posibilitando concentrar altas dosis en el tumor sin dañar órganos vitales cercanos al mismo con precisión milimétrica. Luego, errores en la dosimetría pueden llevar a graves consecuencias para el paciente: volúmenes sobre-irradiados (puntos muy calientes) donde se puede producir necrosis de los tejidos o puntos fríos que reciben dosis menores, con la consecuente sobrevida de las células tumorales.

La dosimetría de referencia en hadronterapia se realiza utilizando cámaras de ionización (dosímetros) sumergidas en un fantoma de agua, las cuales miden el porcentaje de ionización provocado por la radiación. Para poder abordar el estudio de los parámetros físicos que intervienen en la dosimetría de hadrones se estudiaron los principales procesos físicos que toman lugar en la interacción de la radiación ionizante con el tejido biológico. Para ello, se emplearon secciones eficaces simple diferenciales y totales, ya que representan la probabilidad de ocurrencia de estos procesos. En los Capítulos 2 y 3 se estudiaron en detalle los procesos de ionización simple y múltiple con efecto post-colisión, y de excitación electrónica, al ser los mecanismos de deposición de energía más importantes. Se aplicó una aproximación relativista a la energía del proyectil para poder abarcar el rango de altas energías relevante en hadronterapia, esto es, haces con energías del rango de 250 MeV/u a 400 MeV/u. Se calcularon estas secciones eficaces a través de programas computacionales para electrones, protones y iones como proyectiles, en diversos blancos como el agua, líquida y vapor, nitrógeno y oxígeno molecular para formar el aire como una mezcla de estos últimos gases. Los modelos de secciones eficaces son derivados de ciertas aproximaciones, como el modelo BEB para la ionización por impacto de electrones, o de modelos semiempíricos donde los parámetros de ajuste han sido elegidos de modo tal de obtener un buen acuerdo con los datos experimentales presentes en la literatura y basados en la primera aproximación de Born (modelo de un centro coulombiano). En el marco de esta tesis se estudiaron estos modelos semiempíricos ya que son utilizados actualmente en los códigos de transporte de radiación. También se utilizó el modelo mecano-cuántico de dos centros coulombianos CDW-EIS, el cual permite estudiar las secciones eficaces doble diferenciales. Se analizó la contribución de cada proceso siendo la ionización dominante frente a la excitación (electrónica y vibracional), en casi todo el rango de energías estudiadas. En general se observa un muy buen acuerdo entre los valores calculados y experimentales para secciones eficaces totales de ionización en el rango de energías intermedias y altas (puesto que los parámetros del

modelo han sido ajustados de modo de presentar este comportamiento). En el caso de secciones eficaces de excitación electrónica hay muy pocos modelos en la literatura y menos aún datos experimentales. Los existentes se elaboraron en base a datos experimentales por impacto de fotones y electrones, por lo cual para el caso de protones o iones se utilizan estas secciones eficaces escaladas a igual velocidad. Esta aplicación tiene validez en el rango de energías intermedias y altas. Por todo ello, las secciones eficaces de excitación son las más difíciles de manejar y aportan significativas incertezas al cálculo de ciertos parámetros físicos como el valor  $W$  especialmente en el rango de bajas energías.

En el capítulo 4 se describió en detalle el código de transporte Monte Carlo MDM y su extensión como trabajo de esta tesis, MDM-Ion (MeDiuM Ion versión), utilizados para calcular los valores  $W$  y el poder de frenado. Se especificó el alcance de los mismos y las modificaciones realizadas para poder contemplar nuevos medios en estudio como el vapor de agua, nitrógeno y oxígeno, así como también proyectiles de protones y iones de carbono. Una ventaja en el desarrollo de este código ha sido la posibilidad de seleccionar los modelos teóricos y semiempíricos de secciones eficaces adecuados para poder describir las trazas de todas las partículas en el medio. De esta forma, se pudo estudiar en detalle la fuerte dependencia de los resultados obtenidos con la elección de estos modelos.

En el capítulo 5 se estudiaron los parámetros físicos de importancia fundamental en dosimetría de referencia para hadronterapia. Uno de ellos es el poder de frenado de la radiación incidente. Este parámetro se calculó con dos modelos teóricos: la Aproximación de Frenado Continuo (CSDA) y con el método Monte Carlo para los medios en estudio por impacto de electrones, protones y iones de carbono. Para ello, se utilizaron las secciones eficaces correspondientes a los procesos físicos relevantes estudiados en los capítulos 2 y 3. Se observó un buen acuerdo entre los dos métodos de cálculo utilizados y los datos recomendados por NIST, ICRU REPORT 37 (1984); ICRU REPORT 49 (2015) y ICRU REPORT 90 (2016), datos tomados actualmente para dosimetría clínica, en el rango de energías intermedias y altas.

Otro parámetro estudiado es el valor  $W$  para impacto de electrones y el  $w$  diferencial para impacto de iones por medio de la Ecuación de Fowler, basada en la CSDA, y los códigos Monte Carlo MDM y MDM-Ion. Presenta un comportamiento prácticamente constante en el rango de altas energías como el encontrado experimentalmente en ciertos gases (IAEA TRS-398 (2000)). Los resultados obtenidos de los Monte Carlo para los dos proyectiles, electrones y protones, tienen un muy buen acuerdo en el límite asintótico y son cercanos a los obtenidos con el método CSDA. Se encontró que es muy sensible a la elección de las secciones eficaces inelásticas, especialmente a las de excitación. También se observó la relevancia de incluir el efecto post-colisión de emisión de electrones Auger obteniendo un 4% de discrepancia al considerarlo o no. La aplicación de la aproximación relativista realizada sobre la energía cinética del proyectil no tiene un fuerte impacto sobre los valores  $W$  y  $w$  calculados. Las curvas con y sin esta corrección presentan una diferencia muy pequeña como se esperaba, ya que la razón entre las secciones eficaces de ionización y excitación no se ve afectada por la aplicación o no de esta aproximación relativista. Los

resultados obtenidos en agua se compararon con los obtenidos mediante otros códigos de simulación (ampliamente utilizados en dosimetría), observando el mismo comportamiento asintótico. Los valores obtenidos en aire, como combinación de nitrógeno y oxígeno, con el Monte Carlo difieren de los valores recomendados en los protocolos de dosimetría en un 6% aproximadamente. Esta diferencia es elevada para los porcentajes de incertezas requeridos en el cálculo de la dosis; por lo tanto, se continuarán estudiando los procesos inelásticos más relevantes, junto a los modelos teóricos empleados para las describir las secciones eficaces de estos procesos.

Observando los resultados en todos los medios estudiados, se induce que los valores  $W$  y  $w$  muestran una independencia con la carga, masa y energía del proyectil en el régimen de altas energías. Sin embargo, en la región de bajas energías esta independencia no se mantiene, por lo cual se necesitan nuevos datos experimentales y resultados de modelos teóricos para comprender su comportamiento. Los valores de este parámetro, junto a los del poder de frenado, se podrían utilizar como marcadores de referencia para corroborar la elección de las secciones eficaces utilizadas en los códigos Monte Carlo de transporte de partículas utilizados actualmente para nano y microdosimetría.

## REFERENCIAS

- Agostinelli, S., J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, et al. 2003. "GEANT4 - A Simulation Toolkit." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 506 (3): 250–303. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- Alcocer-Ávila, Mario E., Michele A. Quinto, Juan M. Monti, Roberto D. Rivarola, and Christophe Champion. 2019. "Proton Transport Modeling in a Realistic Biological Environment by Using TILDA-V." *Scientific Reports* 9 (1): 1–18. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-50270-5>.
- Allison, J., K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce Dubois, M. Asai, G. Barrand, et al. 2006. "Geant4 Developments and Applications." *IEEE Transactions on Nuclear Science* 53 (1): 270–78. <https://doi.org/10.1109/TNS.2006.869826>.
- Allison, J., K. Amako, J. Apostolakis, P. Arce, M. Asai, T. Aso, E. Bagli, et al. 2016. "Recent Developments in GEANT4." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 835 (February): 186–225. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.06.125>.
- Baek, Woon Yong, and B. Grosswendt. 2007. "W Values of Protons in Liquid Water." *Radiation Protection Dosimetry* 126 (1–4): 93–96. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncm019>.
- Baró, J., J. Sempau, J. M. Fernández-Varea, and F. Salvat. 1995. "PENELOPE: An Algorithm for Monte Carlo Simulation of the Penetration and Energy Loss of Electrons and Positrons in Matter." *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B* 100 (1): 31–46. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(95\)00349-5](https://doi.org/10.1016/0168-583X(95)00349-5).
- Bethe, H. 1930. "Zur Theorie Des Durchgangs Schneller Korpuskularstrahlen Durch Materie." In *Annalen Der Physik*, 397:325–400. <https://doi.org/10.1002/andp.19303970303>.
- Bolorizadeh, M. A., and M. E. Rudd. 1986. "Angular and Energy Dependence of Cross Sections for Ejection of Electrons from Water Vapor. II. 15 "150-KeV Proton Impact." *Physical Review A* 33 (2): 888–92. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.33.888>.
- Boutillon, M., and A. M. Perroche-Roux. 1987. "Re-Evaluation of the W Value for Electrons in Dry Air." *Physics in Medicine and Biology* 32 (2): 213–19. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/32/2/005>.
- Briesmeister, Judith F, T. E Booth, D. G Collins, J. J Devaney, G. P Estes, H. M Fisher, R. A Forster, et al. 1986. "MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A." *Los Alamos National Lab., NM (USA)*.
- Bronić, I. Krajcar, and M. Kimura. 2007. "Radiation Physics and Chemistry in Heavy-Ion Cancer Therapy." *Kemija u Industriji/Journal of Chemists and Chemical Engineers* 56 (12): 643–54.
- Büermann, L., B. Grosswendt, H. M. Kramer, H. J. Selbach, M. Gerlach, M. Hoffmann, and M. Krumrey. 2006. "Measurement of the X-Ray Mass Energy-Absorption Coefficient of Air Using 3 KeV to 10 KeV Synchrotron Radiation." *Physics in Medicine and Biology* 51 (20): 5125–50. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/51/20/004>.
- Carlson, A.T., E. W. Hunt, and O. K. Manfred. 1966. "Relative Abundances of Ions Formed as the Result of Inner-Shell Vacancies in Atoms." *Physics Review* 151: 41–47.
- Cartelli, D. E., M. E. Capoulat, M. Baldo, J. C.Suárez Sandín, M. Igarzabal, M. F.del Grosso, A. A. Valda, et al. 2020. "Status of Low-Energy Accelerator-Based BNCT

- Worldwide and in Argentina.” *Applied Radiation and Isotopes* 166 (August). <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109315>.
- Cavalcanti, E. G., G. M. Sigaud, E. C. Montenegro, M. M. Sant’Anna, and H. Schmidt-Böcking. 2002. “Post-Collisional Effects in Multiple Ionization of Neon by Protons.” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 35 (18): 3937–44. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/35/18/311>.
- Champion, C. 2003. “Multiple Ionization of Water by Heavy Ions: A Monte Carlo Approach.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 205: 671–76. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(03\)00585-8](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(03)00585-8).
- Champion, C., A. L’Hoir, M. F. Politis, P. D. Fainstein, R. D. Rivarola, and A. Chetioui. 2005. “A Monte Carlo Code for the Simulation of Heavy-Ion Tracks in Water.” *Radiation Research* 163 (2): 222–31. <https://doi.org/10.1667/RR3295>.
- Cobut, V., Y. Frongillo, J. P. Patau, T. Goulet, M. J Fraser, and J. P. Jay-Gerin. 1998. “Monte Carlo Simulation of Fast Electron And.” *Radiation Physics and Chemistry* 51: 229–43.
- Combecher, D. 1980. “Measurement of w Values of Low-Energy Electrons in Several Gases.” *Radiation Research* 84 (2): 189–218. <https://doi.org/10.2307/3575293>.
- Cunha, Micaela, Caterina Monini, Étienne Testa, and Michaël Beuve. 2017. “NanOx , a New Model to Predict Cell Survival in the Context of Particle Therapy.” *Physics in Medicine and Biology* 62: 1248–1268. <https://doi.org/10.1088/1361-6560/aa54c9>.
- Cunha, Micaela, Etienne Testa, Michael Beuve, Jacques Balosso, and Abdulhamid Chaikh. 2017. “Considerations on the Miniaturization of Detectors for in Vivo Dosimetry in Radiotherapy: A Monte Carlo Study.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 399: 20–27. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.03.078>.
- Dalgarno, A, and G W Griffing. 1958. “Energy per Ion Pair for Electron and Proton Beams in Atomic Hydrogen.” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 248 (1254): 415–28. <https://doi.org/10.1098/rspa.1958.0253>.
- Dingfelder, Michael, Detlev Hantke, Mitio Inokuti, and Herwig G. Paretzke. 1998. “Electron Inelastic-Scattering Cross Sections in Liquid Water.” *Radiation Physics and Chemistry* 53 (1): 1–18. [https://doi.org/10.1016/S0969-806X\(97\)00317-4](https://doi.org/10.1016/S0969-806X(97)00317-4).
- Dingfelder, Michael, Mitio Inokuti, and Herwig G. Paretzke. 2000. “Inelastic-Collision Cross Sections of Liquid Water for Interactions of Energetic Protons.” *Radiation Physics and Chemistry* 59 (3): 255–75. [https://doi.org/10.1016/S0969-806X\(00\)00263-2](https://doi.org/10.1016/S0969-806X(00)00263-2).
- Dingfelder, Michael, R. H. Ritchie, J. E. Turner, W. Friedland, H. G. Paretzke, and R. N. Hamm. 2008. “Comparisons of Calculations with PARTRAC and NOREC: Transport of Electrons in Liquid Water.” *Radiation Research* 169 (5): 584–94. <https://doi.org/10.1667/RR1099.1>.
- DuBois, R. D., H Toburen, and M. E. Rudd. 1984. “Multiple Ionization of Rare Gases by H<sup>+</sup> and H<sup>+</sup> Impact.” *Physics Review A* 29 (1).
- Emfietzoglou, D., G. Papamichael, K. Kostarelos, and M. Moscovitch. 2000. “A Monte Carlo Track Structure Code for Electrons (~10 eV-10 keV) and Protons (~0.3-10 MeV) in Water: Partitioning of Energy and Collision Events.” *Physics in Medicine and Biology* 45 (11): 3171–94. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/45/11/305>.
- Erskine, G. A. 1954. “Calculation of the Energy per Ion Pair for  $\alpha$ -Particles in Helium.” In *Proceeding of the Royal Society A*, 224:362–73. <https://doi.org/doi.org/10.1098/rspa.1954.0164>.

- Ferrari, A., P. R. Sala, A. Fasso, and J. Ranft. 2005. "FLUKA: A Multi-Particle Transport Code, Available at <Http://Www.Slac.Stanford.Edu/Cgi-Wrap/Getdoc/Slac-r-773.Pdf>, Accessed February 15, 2016." *Cern-2005-010, Infn/Tc\_05/11, Slac-R-773*.
- Friedland, Werner, Michael Dingfelder, Pavel Kunderát, and Peter Jacob. 2011. "Track Structures, DNA Targets and Radiation Effects in the Biophysical Monte Carlo Simulation Code PARTRAC." *Mutation Research - Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis* 711 (1–2): 28–40. <https://doi.org/10.1016/j.mrfmmm.2011.01.003>.
- Galassi, Mariel Elisa, P. N. Abufager, P. D. Fainstein, and Roberto D. Rivarola. 2010. "Single-Electron Capture in Collisions of Proton Beams with Molecules of Biological Interest." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 81 (6): 2–5. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.062713>.
- Galassi, Mariel Elisa, Roberto D. Rivarola, Michael Beuve, G. H. Olivera, and P. D. Fainstein. 2000. "Theoretical Calculation of Single Ionization in Collisions between Protons and Low-[Formula Presented] Molecules at Intermediate and High Energies." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 62 (2): 6. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.62.022701>.
- Galassi, Mariel Elisa, Roberto D. Rivarola, and P. D. Fainstein. 2007. "Multiple Electron Emission from Noble Gases Colliding with Proton Beams, Including Postcollisional Effects." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 75 (5): 1–7. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.75.052708>.
- Gervais, Benoit, Michael Beuve, G. H. Olivera, and Mariel Elisa Galassi. 2006. "Numerical Simulation of Multiple Ionization and High LET Effects in Liquid Water Radiolysis." *Radiation Physics and Chemistry* 75 (4): 493–513. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2005.09.015>.
- Gervais, Benoit, Michael Beuve, G. H. Olivera, Mariel Elisa Galassi, and Roberto D. Rivarola. 2005. "Production of HO<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> by Multiple Ionization in Water Radiolysis by Swift Carbon Ions." *Chemical Physics Letters* 410 (4–6): 330–34. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2005.05.057>.
- Giovannini, Giulia, Till Böhlen, Gonzalo Cabal, Julia Bauer, Thomas Tessonier, Kathrin Frey, Jürgen Debus, Andrea Mairani, and Katia Parodi. 2016. "Variable RBE in Proton Therapy: Comparison of Different Model Predictions and Their Influence on Clinical-like Scenarios." *Radiation Oncology* 11 (1): 1–16. <https://doi.org/10.1186/s13014-016-0642-6>.
- Gray, Tom J., C. L. Cocke, and E. Justiniano. 1980. "Charge-State Correlated Cross Sections for the Production of Low-Velocity Highly Charged Ne Ions by Heavy-Ion Bombardment." *Physical Review A*. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.22.849>.
- Green, A. E. S., and R. J. McNeal. 1971. "Analytic Cross Sections for Inelastic Collisions of Protons and Hydrogen Atoms with Atomic and Molecular Gases." *Journal of Geophysical Research* 76 (1).
- Green, A. E.S., and R. S. Stolarski. 1972. "Analytic Models of Electron Impact Excitation Cross Sections." *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 34: 1703–17.
- Grosswendt, B., and E. Waibel. 1978. "Transport of Low Energy Electrons in Nitrogen and Air." *Nuclear Instruments and Methods* 155 (1–2): 145–56. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(78\)90198-2](https://doi.org/10.1016/0029-554X(78)90198-2).
- Gudowska, Irena, Nikolai Sobolevsky, Pedro Andreo, Dževard Belkic, and Anders Brahme. 2004. "Ion Beam Transport in Tissue-like Media Using the Monte Carlo Code SHIELD-HIT." *Physics in Medicine and Biology* 49 (10): 1933–58. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/49/10/008>.
- Gulyás, L., S. Egri, H. Ghavaminia, and A. Igarashi. 2016. "Single and Multiple Electron

- Removal and Fragmentation in Collisions of Protons with Water Molecules.” *Physical Review A* 93 (3): 1–9. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.032704>.
- Heller, J. M., R. N. Hamm, R. D. Birkhoff, and L. R. Painter. 1974. “Collective Oscillation in Liquid Water.” *The Journal of Chemical Physics* 60 (9): 3474–82. <https://doi.org/10.1063/1.1681563>.
- “<https://www.argentina.gob.ar/salud/instituto-nacional-del-cancer/estadisticas/incidencia>.” n.d.
- “<https://www.who.int/cancer/es/>.” n.d.
- Hwang, W., Y. K. Kim, and M. E. Rudd. 1996. “New Model for Electron-Impact Ionization Cross Sections of Molecules.” *Journal of Chemical Physics* 104 (8): 2956–66. <https://doi.org/10.1063/1.471116>.
- IAEA. 1995. *International Atomic Energy Agency. Atomic and Molecular Data for Radiotherapy and Radiation Research. IAEA VIENNA.*
- IAEA TRS-398. 2000. *IAEA TRS 398: Absorbed Dose Determination in External Beam Radiotherapy: An International Code of Practice for Dosimetry Based on Standards of Absorbed Dose to Water. Vol. 12.* [http://www-naweb.iaea.org/nahu/DMRP/documents/CoP\\_V12\\_2006-06-05.pdf](http://www-naweb.iaea.org/nahu/DMRP/documents/CoP_V12_2006-06-05.pdf).
- ICRU REPORT 16. 1970. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Linear Energy Transfer.”
- ICRU REPORT 31. 1979. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Average Energy Required To Produce An Ion Pair.”
- ICRU REPORT 37. 1984. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Stopping Power for Electrons and Positrons.”
- ICRU REPORT 49. 2015. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles.”
- ICRU REPORT 55. 1996. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Secondary Electron Spectra from Charged Particle Interactions.”
- ICRU REPORT 59. 1998. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Clinical Proton Dosimetry Part I : Beam Production , Beam Delivery and Measurement of Absorbed Dose.”
- ICRU REPORT 73. 2005. “International Commission on Radiation Units and Measurements. Stopping of Ions Heavier Than Helium.” *Journal of the ICRU*. Vol. 5. <https://doi.org/10.1093/jicru/ndi001>.
- ICRU REPORT 90. 2016. “Key Data for Ionizing-Radiation Dosimetry: Measurements Standards and Applications (ICRU Report 90).” *Journal of the International Commission on Radiation Units and Measurements* 14 (1): NP-NP. <https://doi.org/10.1093/jicru/ndw043>.
- Incerti, S., I. Kyriakou, M. A. Bernal, M. C. Bordage, Z. Francis, S. Guatelli, V. Ivanchenko, et al. 2018. “Geant4-DNA Example Applications for Track Structure Simulations in Liquid Water: A Report from the Geant4-DNA Project.” *Medical Physics* 45 (8): e722–39. <https://doi.org/10.1002/mp.13048>.
- Inhester, L., C. F. Burmeister, G. Groenhof, and H. Grubmüller. 2014. “Erratum: Auger Spectrum of a Water Molecule after Single and Double Core Ionization (The Journal of Chemical Physics (2012) 136 (144304)).” *Journal of Chemical Physics* 141 (6): 10–11. <https://doi.org/10.1063/1.4892982>.
- Inokuti, M. 1975. “Ionization Yields in Gases under Electron Irradiation.” *Radiation Research* 64 (1): 6–22. <https://doi.org/10.2307/3574165>.
- Inokuti, Mitio. 1971. “Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms AnInokuti, M. (1971). Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms and Molecules-The Bethe Theory Revisited. *Reviews of Modern Physics*, 43(3), 297–

347. [Http://Doi.Org/10.1103/RevModPhys](http://doi.org/10.1103/RevModPhys).” *Reviews of Modern Physics* 43 (3): 297–347.
- Itikawa, Yukikazu. 2006. “Cross Sections for Electron Collisions with Nitrogen Molecules.” *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 35 (1): 31–53. <https://doi.org/10.1063/1.1937426>.
- Itikawa, Yukikazu, A. Ichimura, K. Onda, K. Sakimoto, K. Takayanagi, Y. Hatano, M. Hayashi, N. Nishimura, and S. Tsurubuchi. 1989. “Cross Sections for Collisions of Electrons and Photons with Oxygen Molecules.” *Journal of Phy* 18 (1): 23–42. [https://doi.org/0047-2689/86/030985-26/\\$06.00](https://doi.org/0047-2689/86/030985-26/$06.00).
- Itikawa, Yukikazu, and Nigel Mason. 2005. “Cross Sections for Electron Collisions with Water Molecules.” *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 34 (1): 1–22. <https://doi.org/10.1063/1.1799251>.
- Jonah, C. D., M. S. Matheson, J. R. Mille, and E. J. Hart. 1976. “Yield and Decay of the Hydrated Electron from 100 Ps to 3 Ns.” *The Journal of Chemical Physics* 80: 1267–70.
- Jones, Dan T. L. 2006. “The w -Value in Air for Proton Therapy Beams.” *Radiation Physics and Chemistry* 75: 541–50. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2005.12.027>.
- Kanai, T., T. Kohno, S. Minohara, M. Sudou, E. Takada, F. Soga, K. Kawachi, and A. Fukumura. 1993. “Dosimetry and Measured Differential W Values of Air for Heavy Ions.” *Radiation Research* 135 (3): 293–301. <https://doi.org/10.2307/3578867>.
- Kim, Y. K. 2001. “Scaling of Plane-Wave Born Cross Sections for Electron-Impact Excitation of Neutral Atoms.” *Physics Review A* 64 (March): 1–10. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.64.032713>.
- Kim, Y. K., and M. Inokuti. 1971. “Total Cross Sections for Inelastic Scattering of Charged Particles by Atoms and Molecules. V. Evaluation to the Next Order beyond the Bethe Asymptote\*.” *Physical Review A* 3: 665–78.
- Kim, Y. K., and M. E. Rudd. 1994. “Binary-Encounter-Dipole Model for Electron-Impact Ionization.” *Physical Review A* 50 (5): 3954–67. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.50.3954>.
- Kim, Y. K., José Paulo Santos, and Fernando Parente. 2000. “Extension of the Binary-Encounter-Dipole Model to Relativistic Incident Electrons.” *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 62 (5): 052710–11. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.62.052710>.
- Knudsen, H, U Mikkelsen, K Paludan, K Kirsebom, S P Moller, E Uggerhoj, J Slevin, M Charlton, and E Morenzoni. 1995. “Non-Dissociative and Dissociative Ionization of N<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> by Impact of 50-6000 KeV Protons and Antiprotons.” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 28: 3569–92.
- Kolorenč, Přemysl, and Vitali Averbukh. 2011. “K-Shell Auger Lifetime Variation in Doubly Ionized Ne and First Row Hydrides.” *Journal of Chemical Physics* 135 (13): 1–6. <https://doi.org/10.1063/1.3646204>.
- Kutcher, G. J., and A. E. S. Green. 1976. “A Model for Energy Deposition in Liquid Water.” *Radiation Research* 67 (3): 408–25. <https://doi.org/10.2307/3574338>.
- Kyriakou, I., S. Incerti, and Z. Francis. 2015. “Technical Note: Improvements in Geant 4 Energy-Loss Model and the Effect on Low-Energy Electron Transport in Liquid Water.” *Medical Physics* 42 (7): 3870–76. <https://doi.org/10.1118/1.4921613>.
- Liamsuwan, Thiansin, Dimitris Emfietzoglou, Shuzo Uehara, and Hooshang Nikjoo. 2012. “Microdosimetry of Low-Energy Electrons.” *International Journal of Radiation Biology* 88 (12): 899–907. <https://doi.org/10.3109/09553002.2012.699136>.

- Ludde, H J, and R M Dreizler. 1985. "Comments on Inclusive Cross Sections." *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 18 (4): 107–12.
- Luna, H., A. L.F. De Barros, J. A. Wyer, S. W.J. Scully, J. Laconte, P. M.Y. Garcia, G. M. Sigaud, et al. 2007. "Water-Molecule Dissociation by Proton and Hydrogen Impact." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 75 (4): 1–11. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.75.042711>.
- Luna, H., and E. C. Montenegro. 2005. "Fragmentation of Water by Heavy Ions." *Physical Review Letters* 94 (4): 3–6. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.043201>.
- Meesungnoen, Jintana, and Jean Paul Jay-Gerin. 2005. "High-LET Radiolysis of Liquid Water with 1 H + , 4 He 2 + , Multiple Ionization." *The Journal of Physical Chemistry A* 109: 6406–19. <https://doi.org/10.1021/jp058037z>.
- Michaud, M., and L. Sanche. 1987. "Total Cross Sections for Slow-Electron (120 eV) Scattering in Solid H<sub>2</sub>O." *Physical Review A* 36 (10): 4672–83. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.36.4672>.
- Miller, J. H., and A. E.S. Green. 1973. "Proton Energy Degradation in Water Vapor." *Radiation Research* 54 (3): 343–63. <https://doi.org/10.2307/3573730>.
- Montanari, C. C., and J. E. Miraglia. 2014. "Neonization Method for Stopping, Mean Excitation Energy, Straggling, and for Total and Differential Ionization Cross Sections of CH<sub>4</sub>, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O and FH by Impact of Heavy Projectiles." *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 47 (1). <https://doi.org/10.1088/0953-4075/47/1/015201>.
- Montanari, C. C., J. E. Miraglia, W. Wolff, H. Luna, A. C.F. Santos, and E. C. Montenegro. 2012. "Multiple Ionization of Atoms Including Post-Collisional Contributions." *Journal of Physics: Conference Series* 388 (PART 1). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/388/1/012036>.
- Mozumder, A. 1999. "Chapter 4: Ionization and Excitation Phenomena." In *Fundamentals of Radiation Chemistry*.
- Mozurnder, A, and Y Hatano. 2004. *Charged Particle and Photon Interactions with Matter. Charged Particle and Photon Interactions with Matter*. New York. <https://doi.org/10.1201/b10389>.
- Murakami, Mitsuko, Tom Kirchner, Marko Horbatsch, and Hans Jürgen Lüdde. 2012. "Single and Multiple Electron Removal Processes in Proton-Water-Molecule Collisions." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 85 (5): 1–12. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.85.052704>.
- Naqa, Issam El, Piotr Pater, and Jan Seuntjens. 2012. "Monte Carlo Role in Radiobiological Modelling of Radiotherapy Outcomes." *Physics in Medicine and Biology* 57 (11): R75–79. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/57/11/R75>.
- Nikjoo, H., S. Uehara, D. Emfietzoglou, and F. A. Cucinotta. 2006. "Track-Structure Codes in Radiation Research." *Radiation Measurements* 41 (9–10): 1052–74. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2006.02.001>.
- NIST. n.d. "National Institute of Standards and Technology." <http://www.nist.gov/pml/data/ionization/>.
- Olivera, G. H., P. D. Fainstein, and Roberto D. Rivarola. 1996. "Contribution from the Inner Shell of Water Vapour to Dose Profiles under Proton and Alpha Particle Irradiation." *Physics in Medicine and Biology* 41 (9): 1633–47. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/41/9/005>.
- Olivera, G. H., A. E. Martinez, Roberto D. Rivarola, and P. D. Fainstein. 1995. "Theoretical Calculation of Electronic Stopping Power of Water Vapor by Proton Impact." *Radiation Research* 144 (2): 241–47. <https://doi.org/10.2307/3579265>.
- Olivero, J. J., W. R. Stagat, and A. E. S. Green. 1972. "Electron Deposition in Water

- Vapor, with Atmospheric Applications.” *Journal of Geophysical Research* 77 (25).
- Oubaziz, Dahbia, Rachida Boulifa, Zakia Aitelhadjali, and Christophe Champion. 2018. “Double Ionization of Water Molecules by Proton Impact: The Role of the Direct Ionization Mechanism.” *European Physical Journal D* 72 (6). <https://doi.org/10.1140/epjd/e2018-80307-9>.
- Ouerdane, H., Benoit Gervais, H. Zhou, M. Beuve, and J.-Ph. Renault. 2010. “Radiolysis of Water Confined in Porous Silica : A Simulation Study of the Physicochemical Yields.” *The Journal of Chemical Physics* 114: 12667–74. <https://doi.org/10.1021/jp103127j>.
- Paganetti, Harald, Andrzej Niemierko, Marek Ancukiewicz, Leo E. Gerweck, Michael Goitein, Jay S. Loeffler, and Herman D. Suit. 2002. “Relative Biological Effectiveness (RBE) Values for Proton Beam Therapy.” *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics* 53 (2): 407–21. [https://doi.org/10.1016/S0360-3016\(02\)02754-2](https://doi.org/10.1016/S0360-3016(02)02754-2).
- Paretzke, H. G., J. E. Turner, R. N. Hamm, H. A. Wright, and R. H. Ritchie. 1986. “Calculated Yields and Fluctuations for Electron Degradation in Liquid Water and Water Vapor.” *The Journal of Chemical Physics* 84 (6): 3182–88. <https://doi.org/10.1063/1.450247>.
- Plante, Ianik, and Francis A. Cucinotta. 2008. “Ionization and Excitation Cross Sections for the Interaction of HZE Particles in Liquid Water and Application to Monte Carlo Simulation of Radiation Tracks.” *New Journal of Physics* 10. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/10/12/125020>.
- . 2009. “Cross Sections for the Interactions of 1 eV–100 MeV Electrons in Liquid Water and Application to Monte-Carlo Simulation of HZE Radiation Tracks.” *New Journal of Physics* 11. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/11/6/063047>.
- . 2010. “Energy Deposition and Relative Frequency of Hits of Cylindrical Nanovolume in Medium Irradiated by Ions : Monte Carlo Simulation of Tracks Structure.” *Radiat Environ Biophys* 49: 5–13. <https://doi.org/10.1007/s00411-009-0255-7>.
- Podgorsak, E. B. 2006. *Radiation Physics for Medical Physicists*. Berlin, Germany: Springer Berlin Heidelberg.
- Poignant, F., H. Charfi, Chen-H. Chan, E. Dumont, D. Loffreda, É. Testa, B. Gervais, and M. Beuve. 2020. “Monte Carlo Simulation of Free Radical Production under KeV Photon Irradiation of Gold Nanoparticle Aqueous Solution. Part I: Global Primary Chemical Boost.” *Radiation Physics and Chemistry*, 108790. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2020.108790>.
- Poignant, F., A. Ipatov, O. Chakchir, P. Lartaud, É. Testa, and B. Gervais. 2020. “Theoretical Derivation and Benchmarking of Cross Sections for Low-Energy Electron Transport in Gold.” *The European Physical Journal Plus* 123: 1–37. <https://doi.org/10.1140/epjp/s13360-020-00354-3>.
- PTCOG. n.d. “Particle Therapy Co-Operative Group. An Organisation for Those Interested in Proton, Light Ion and Heavy Charged Particle Radiotherapy.” <https://www.ptcog.ch/>.
- Rapp, D., and P. Englander-Golden. 1965. “Total Cross Sections for Ionization and Attachment in Gases by Electron Impact. I. Positive Ionization.” *Journal of Chemical Physics* 43: 1464.
- Rivarola, Roberto D., Mariel Elisa Galassi, Pablo D. Fainstein, and Christophe Champion. 2013. “Computation of Distorted Wave Cross Sections for High-Energy Inelastic Collisions of Heavy Ions with Water Molecules.” In *Advances in Quantum Chemistry. Theory of Heavy Ions Collision Physics in Hadron Therapy.*, 231–63.

Elsevier.

- Rodriguez-Cossio, J, D Schardt, C Brusasco, B Voss, and U Weber. 1993. "W-Value Measurements for Carbon Ions." *GSI Scientific Report 2000. Biophysics and Therapy* 135 (239): 1993. [http://webdoc.sub.gwdg.de/ebook/rd/2001/gsi/www-aix.gsi.de/annual\\_report/ann\\_rep/bio\\_ph/27/prueba.pdf](http://webdoc.sub.gwdg.de/ebook/rd/2001/gsi/www-aix.gsi.de/annual_report/ann_rep/bio_ph/27/prueba.pdf).
- Rudd, M. E., T. V. Goffe, R. D. DuBois, and L. H. Toburen. 1985a. "Cross Sections for Ionization of Water Vapor by 7-4000 KeV-Protons." *Physics Review AA* 31 (1): 492–94.
- . 1985b. "Cross Sections for Ionization of Water Vapor by 7 – 4000-KeV Protons." *Physical Review A* 31 (1): 492–94. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.31.492>.
- Rudd, M. E., Y. K. Kim, D. H. Madison, and T. J. Gallagher. 1985. "Electron Production in Proton Collisions: Total Cross Sections." *Reviews of Modern Physics* 57 (2): 965–94. <https://journals.aps.org/rmp/abstract/10.1103/RevModPhys.64.441>.
- Rudd, M. E., Y. K. Kim, D. H. Madison, and T. J. Gay. 1992. "Electron Production in Proton Collisions with Atoms and Molecules: Energy Distributions." *Reviews of Modern Physics* 64 (2): 441–90. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.64.441>.
- Sakama, Makoto, Tatsuaki Kanai, Akifumi Fukumura, and Kyoko Abe. 2009. "Evaluation of w Values for Carbon Beams in Air, Using a Graphite Calorimeter." *Physics in Medicine and Biology* 54 (5): 1111–30. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/54/5/002>.
- Sant'Anna, M. M., E. C. Montenegro, and J. H. McGuire. 1998. "Inversion Relations for Exclusive and Inclusive Cross Sections within the Independent Electron Approximation." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 58 (3): 2148–59. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.58.2148>.
- Sasaki, S., T. Sanami, K. Saito, K. Iijima, H. Tawara, Fukumura A., and T. Murakami. 2005. "Average Energy to Produce an Ion Pair for Heavy Charged Particles in Gases Measured as a Function of Particle Energy." In *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 1267–70. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2011.6154377>.
- Sato, Tatsuhiko, Yosuke Iwamoto, Shintaro Hashimoto, Tatsuhiko Ogawa, Takuya Furuta, Shin ichiro Abe, Takeshi Kai, et al. 2018. "Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) Version 3.02." *Journal of Nuclear Science and Technology* 55 (6): 684–90. <https://doi.org/10.1080/00223131.2017.1419890>.
- Schram, B. L., F. J. de Heer, M. J. van der Wiel, and J. Kistenmaker. 1965. "Ionization Cross Sections for Electrons (0.6–20 KeV) in Noble and Diatomic Gases." *Physica* 31: 94–112.
- Schutzen, J, F J De Heer, H R Moustafa, A J H Boerboom, and J Kistemaker. 1966. "Gross and Partial Ionization Cross Sections for Electrons on Water Vapor in the Energy Range 0.1 – 20 KeV Gross- and Partial-Ionization Cross Sections for Electrons on Water Vapor in The." *The Journal of Chemical Physics* 3924: 0–5. <https://doi.org/10.1063/1.1726553>.
- Scofield, J. H. 1978. "K- and L-Shell Ionization of Atoms by Relativistic Electrons." *Physical Review A* 18 (8): 963–70.
- Senger, B. 1988. "Calculated Molecular Double-Differential Cross-Sections for Ionisation under Proton Impact." *Zeitschrift Für Physik D Atoms, Molecules and Clusters* 9 (1): 79–89. <https://doi.org/10.1007/BF01384450>.
- Shimizu, M, M Kaneda, T Hayakawa, H Tsuchida, and A Itoh. 2009. "Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B Stopping Cross Sections of Liquid Water for MeV Energy Protons." *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B* 267 (16): 2667–70. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.05.036>.
- Siiskonen, T., H Kettunen, K Perajarvi, A Javanainen, M Rossi, W H Trzaska, J Turunen, and A Virtanen. 2011. "Energy Loss Measurement of Protons in Liquid Water."

- Physics in Medicine and Biology* 56: 2367. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/56/8/003>.
- Spranger, Tobias, and Tom Kirchner. 2004. "Auger-like Processes in Multiple Ionization of Noble Gas Atoms by Protons." *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 37 (20): 4159–65. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/37/20/010>.
- Srdoč, D., M. Inokuti, and I. KrajcarBronić. 1995. "Chapter 8: Yields of Ionization and Excitation in Irradiated Matter." In *Atomic and Molecular Data for Radiotherapy and Radiation Research IAEA-TecDoc-799*, 547–631.
- Stephens, L.D., R.H. Thomas, and L.S. Kelly. 1976. "A Measurement of the Average Energy Required to Create an Ion Pair in Nitrogen by 250 MeV/Amu C<sup>6+</sup> Ions." *Physics in Medicine and Biology* 21 (4): 570–576. <https://doi.org/DOI:10.1088/0031-9155/21/4/008>.
- Stolterfoht, N., R. D. DuBois, and Roberto D. Rivarola. 1997. *Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions, Springer Series on Atoms and Plasmas*. Edited by Ed. Springer-Verlag.
- Sumiyoshi, T., K. Tsugarau, T. Yamada, and M. Katayama. 1985. "Yield of Solvated Electrons at 30 Picoseconds in Water and Alcohols." *Bulletin of the Chemical Society of Japan* 58: 3073–75.
- Tachino, Carmen A., Mariel E. Galassi, and Roberto D. Rivarola. 2008. "Postcollisional Effects in Multiple Ionization of Diatomic Molecules by Ion Impact." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 77 (3): 1–6. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.77.032714>.
- Tachino, Carmen A., Mariel Elisa Galassi, and Roberto D. Rivarola. 2009. "Role of Auger-Type Emission from Diatomic Molecular Targets Interacting with Fast Multicharged Ions." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 80 (1): 014701-1 014701-3. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.80.014701>.
- Tate, John T, and P. T. Smith. 1932. "The Efficiencies of Ionization and Ionization Potentials At Various Gases under Electron Impact." *Physical Review* 39 (1930): 270–77.
- Tavares, A. C., H. Luna, W. Wolff, and E. C. Montenegro. 2015. "Double Ionization of Water Molecules Induced by Swift Protons." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 92 (3): 1–7. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.032714>.
- Tawara, H., K. G. Harrison, and F. J. De Heer. 1973. "X-Ray Emission Cross Sections and Fluorescence Yields for Light Atoms and Molecules by Electron Impact." *Physica* 63 (2): 351–67. [https://doi.org/10.1016/0031-8914\(73\)90321-2](https://doi.org/10.1016/0031-8914(73)90321-2).
- Tessaro, V. B., B. Gervais, F. Poignant, M. Beuve, and M. E. Galassi. 2021. "Monte Carlo Transport of Swift Protons and Light Ions in Water: The Influence of Excitation Cross Sections, Relativistic Effects, and Auger Electron Emission in w-Values." *Physica Medica* 88 (May): 71–85. <https://doi.org/10.1016/j.ejmp.2021.06.006>.
- Tessaro, V B, F Poignant, Benoit Gervais, M Beuve, and M. E. Galassi. 2019. "Theoretical Study of W-Values for Particle Impact on Water." *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*, no. August: 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.11.031>.
- Thomas, R. H., J. T. Lyman, and T. M. De Castro. 1980. "A Measurement of the Average Energy Required to Create an Ion Pair in Nitrogen by High-Energy Ions." *Radiation Research* 82 (1): 1–12. <https://doi.org/10.2307/3575232>.
- Wells, E., Vidhya Krishnamurthi, K. D. Carnes, Nora G. Johnson, Heather D. Baxter, David Moore, Kristana M. Bloom, B. M. Barnes, H. Tawara, and I. Ben-Itzhak. 2005. "Proton Carbon Monoxide Collisions from 10 KeV to 14 MeV." *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 72 (2): 1–11. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.72.022726>.

- Wilson, W. E., J. H. Miller, L. H. Toburen, and Steven T. Manson. 1984. "Differential Cross Sections for Ionization of Methane, Ammonia, and Water Vapor by High Velocity Ions." *The Journal of Chemical Physics* 80 (11): 5631–38. <https://doi.org/10.1063/1.446628>.
- Yuan, Tai Ze, Ze Jiang Zhan, and Chao Nan Qian. 2019. "New Frontiers in Proton Therapy: Applications in Cancers." *Cancer Communications* 39 (1): 1–7. <https://doi.org/10.1186/s40880-019-0407-3>.
- Ziegler, J.F., J.P. Biersack, and M.D. Ziegler. 2008. *SRIM The Stopping and Range of Ions in Matter*. James Ziegler (January 1, 2008). [www.SRIM.org](http://www.SRIM.org).

## TRABAJOS PRESENTADOS EN CONGRESOS Y JORNADAS

**2015 - Swift Heavy Ions in Matter (SHIM 2015)**, Darmstadt, Alemania.

Poster: *Study of the water-to-air stopping power ratio for swift hadron impact*. Galassi, Mariel E, Co-authors : Tessaro, Veronica B; Quiroga, Flavia; Mirandola, Dr. Mairani, Andrea; Molinelli, Vilches-Freixas, Gloria; Dr. Ciocca, Mario.

**2015 - XXIII Jornada de Jóvenes Investigadores - Asociación de Universidades Grupo Montevideo**, Universidad Nacional de La Plata, La Plata, Buenos Aires, Argentina.

Póster: *Estudio de la deposición de energía de radiación ionizante sobre sistemas de interés biológico y aplicaciones en dosimetría para hadronterapia*. V.Tessaro.

**2015 - 100° Reunión Nacional de Física - Asociación Física Argentina**, Villa de Merlo, San Luis, Argentina.

Presentación Oral y Póster: *Cálculo de Poderes de Frenado de electrones y protones en aguay aire. Aplicaciones en dosimetría y protonterapia*. V.Tessaro; M.E.Galassi.

**2016 - 13° Congreso Argentino de Física Médica y 7° Congreso Latinoamericano de Física Médica**, Villa Carlos Paz, Córdoba, Argentina.

Póster: *Estudio de la energía requerida para generar un par iónico por impacto de radiación ionizante. Aplicaciones en dosimetría para radioterapia y protonterapia*, V. Tessaro; M.E. Galassi.

**2017 - 102a Reunión Nacional de Física - Asociación Física Argentina**, La Plata, Buenos Aires, Argentina.

Presentación Oral y Póster: *Evaluación de la contribución de electrones Auger y efectos relativistas en la determinación de valores-W por impacto de electrones*. Tessaro V.B; Galassi M.E. Gervais B; Beuve M.

**2018 - SHIM-ICACS; 10th International Symposium Swift Heavy Ions in Matter and 28th International Conference on Atomic Collisions in Solids**, Caen, Francia.

Póster 1: *Theoretical study of w-values for particle impact on vapour and liquid water*. V.Tessaro, M. Beuve, B. Gervais, F. Poignant, M.E. Galassi.

Póster 2: *A single method to calculate multiple ionization cross sections of air molecules by ion impact*. V. Tessaro, M.E. Galassi, B. Gervais, M. Beuve. **Obtención del Premio "SHIM-ICACS Poster Prize"**.

Póster 3: *Multiple ionization cross sections by ion impact on Ne-like molecules*. M. Galassi, V. Tessaro, B. Gervais and M. Beuve.

**2018 - 103<sup>a</sup> Reunión Nacional de Física - Asociación Física Argentina**, Ciudad de Buenos Aires, Argentina.

Póster: *Estudio teórico de valores-w por impacto de partículas en agua vapor y líquido*. V. Tessaro, M. Beuve, B. Gervais, F. Poignant, M.E. Galassi.

**2019 - 54<sup>th</sup> Annual Conference of the particle therapy co-operative group**, Manchester, Reino Unido (PTCOG).

Póster: *Theoretical study of physical parameters of fundamental importance in reference dosimetry for hadrontherapy*. V. Tessaro, B. Gervais, F. Poignant, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2019 - 24<sup>th</sup> International Conference on Medical Physics 8<sup>th</sup> Latin American Congress of Medical Physics 2<sup>nd</sup> Chilean Congress of Medical Physics**, Santiago de Chile, Chile.

Presentación Oral: *Determination of the Mean Energy Required to form an Ion-Pair (w-value) in Gases of relevance in Reference Dosimetry for Protontherapy*. V. Tessaro, F. Poignant, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi.

Póster: *Calculation of the stopping power ratio water-to-air for reference dosimetry in hadrontherapy*. V. Tessaro, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2019 - 104<sup>a</sup> Reunión Nacional de Física - Asociación Física Argentina**, Ciudad de Santa Fe, Argentina.

Presentación Oral: *Simulación Monte Carlo de la traza de iones en agua y aire para aplicaciones en dosimetría de referencia para Hadronterapia*. V. Tessaro, F. Poignant, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2019 - XIII Jornada de Ciencia y Tecnología**, UNR, Rosario, Argentina.

Póster: *Estudio teórico de parámetros físicos relevantes en la dosimetría de referencia para hadronterapia*. V. Tessaro, B. Gervais, F. Poignant, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2019 - VI Jornada de Física Aplicada a las Ciencias Biomédicas Rodolfo J. Rasia**, Rosario, Argentina.

Presentación Oral: *Física Médica: Hadronterapia y Radioterapia*. V. Tessaro, M.E. Galassi.

**2020 - 105<sup>a</sup> Reunión Nacional de Física - Asociación Física Argentina**, Modalidad Virtual.

Presentación Oral: *Cálculo de valores-w por impacto de iones rápidos: relevancia al considerar emisión multielectrónica y correcciones relativistas*. V. Tessaro, F. Poignant, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2020 - XIV Jornadas de Ciencias, Tecnologías e Innovación**, Modalidad Virtual, UNR.

Póster: *Cálculo de valores-w por impacto de iones rápidos: relevancia al considerar emisión multielectrónica y correcciones relativistas*. V. Tessaro, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi.

**2021 - 27th International Symposium on Ion-Atom Collisions-ISIAC**, Modalidad Virtual.

Pósters: 1) *MDM-Ion Monte Carlo code: swift ion tracks in water to study physical parameters of interest in hadrontherapy*. V. Tessaro, F. Poignant, B. Gervais, M.Beuve, M.E. Galassi.

Presentación Oral: 2) *Neonization method to calculate multiple ionization cross sections of water molecules by ion impact*. M. E. Galassi, V. B. Tessaro, B. Gervais, M. Beuve

## **PUBLICACIONES EN REVISTAS CIENTÍFICAS**

**Theoretical study of W-values for particle impact on water**, V. Tessaro, F. Poignant, B. Gervais, M. Beuve, M.E. Galassi. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B DOI:10.1016/j.nimb.2018.11.0315/6.

**Monte Carlo transport of swift protons and light ions in water: The influence of excitation cross sections, relativistic effects, and Auger electron emission in w-values**, V. Tessaro, B. Gervais, F. Poignant, M. Beuve, M.E. Galassi. Physica Medica 88 (2021) 71–85 DOI:doi.org/10.1016/j.ejmp.2021.06.006.

## **ENVIADO PARA SU PUBLICACIÓN:**

**Theoretical multiple ionization cross sections of Ne-like molecules by light ion impact. Part I: H<sub>2</sub>O**, M. E. Galassi, V. B. Tessaro, B. Gervais and M. Beuve. Physical Review A