

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО ДИССИПАЦИИ ЭНЕРГИИ ПРИ КАСКАДНОМ РАСПАДЕ ВНУТРЕННИХ ВАКАНСИЙ В АТОМЕ ЖЕЛЕЗА, ПОМЕЩЕННОМ В ВОДУ

А. П. Чайников^{}, А. Г. Кочур, А. И. Дуденко*

*Ростовский государственный университет путей сообщения
344038, Ростов-на-Дону, Россия*

Поступила в редакцию 26 июля 2023 г.,
после переработки 12 августа 2023 г.
Принята к публикации 15 августа 2023 г.

Проведено моделирование методом Монте-Карло процессов вторичной ионизации воды, индуцированных каскадными распадами внутренних вакансий в атоме железа, помещенном в воду. Получены спектры электронов и фотонов, испускаемых в ходе распада вакансий в *K*- и *L*-оболочках атома железа. Рассчитаны зависимости числа актов вторичной ионизации и поглощенной в результате них энергии от радиуса сферы, внутри которой они происходят. Распад одиночной *1s*-вакансии в атоме железа порождает в среднем 232 акта вторичной ионизации электронным ударом, в которых поглощается энергия 3274 эВ, и 18 актов вторичной фотоионизации, в которых поглощается 256 эВ. Рассчитаны зависимости поглощенной дозы в воде от расстояния от атома железа.

DOI: 10.31857/S0044451023120076
EDN: MWZHUI

1. ВВЕДЕНИЕ

В фотонной лучевой терапии злокачественных опухолей такие металлы, как железо, серебро, золото, платина и другие в составе соединений и наночастиц используются в качестве радиосенсибилизаторов, т. е. агентов, способствующих усиленному поглощению энергии облучающего пучка внутри опухоли. При используемых энергиях фотонов облучающих пучков большую вероятность имеют процессы фотоионизации внутренних оболочек атомов радиосенсибилизаторов, приводящие к образованию ионов металлов с вакансиями в глубоких атомных электронных оболочках. Такие ионные состояния нестабильны и подвержены распаду.

Распад вакансии во внутренней электронной оболочке многоэлектронного атома представляет собой, как правило, каскад последовательных радиационных и безрадиационных переходов, продолжающийся до тех пор, пока после очередного перехода не образуется ион в устойчивом состоянии. При распаде

внутренних вакансий в тяжелых атомах образуется обычно достаточно большое число оже-электронов с энергией от 10 эВ до 10 кэВ. Средняя неупругая длина свободного пробега таких электронов в воде находится в диапазоне от 1 до 100 нм, благодаря чему оже-электроны обладают высокой линейной передачей энергии и способны произвести множество вторичных актов ударной ионизации молекул воды в непосредственной близости от тяжелого атома с распадающейся вакансией. Это свойство оже-электронов, испускаемых в ходе каскадных распадов внутренних вакансий в атомах с высоким атомным номером, лежит в основе современного направления лучевой терапии онкологических заболеваний — оже-терапии (см., например, [1, 2] и ссылки там). В качестве источников оже-электронов, вводимых в опухолевую ткань, могут использоваться радионуклиды, ядра которых испытывают электронный захват или внутреннюю конверсию, в результате которых во внутренней электронной оболочке радионуклида образуется вакансия. В альтернативном варианте оже-терапии, который называется фотонно-активационной терапией, используются радиосенсибилизаторы, представляющие собой соединения или наночастицы на основе тяжелых атомов, которые облучаются пучком рентгеновских или

^{*} E-mail: чайников.а.п@gmail.com

γ -квантов, что приводит к созданию внутренних вакансий в электронных оболочках атомов металлов за счет фотоионизации.

Теоретическое описание каскадных распадов глубоких вакансий представляет собой сложную задачу, так как деревья распадов могут быть очень сложными и иметь до миллионов ветвей [3, 4]. К решению этой проблемы имеется два альтернативных подхода. Первый из них — метод статистических испытаний Монте-Карло, в котором многократно моделируется распад исходной вакансии и на каждом шаге каскада на основе относительных вероятностей возможных каналов распада очередного ионного состояния случайным образом выбирается один из возможных переходов. Первые расчеты методом Монте-Карло были проведены в работах Карлсона и Краузе с сотрудниками [5–7]. Позднее метод Монте-Карло использовали Мукояма и др. [8], Мирахмедов и Парилис [9], Эль-Шеми с соавторами [10]. Второй подход заключается в построении и анализе всего дерева каскадного распада. Впервые такой подход был реализован в работе Якобса и др. [11], затем независимо развит в работах Кочура с соавторами [12, 13], Омара и Хана [14–16], Йонаускаса и др. [17, 18].

В работе [19] с помощью метода построения и анализа дерева распада [12, 13] были рассчитаны спектры фотонов и электронов, испускаемых в результате каскадных распадов вакансий во внутренних оболочках атома железа. Было установлено, что большая часть энергии, которую атом железа получает в результате первичной ионизации одной из его внутренних подоболочек (эта энергия равна потенциалу ионизации соответствующей подоболочки), переизлучается в ходе каскадного распада вакансии. Так, например, при распаде одиночной $1s$ -вакансии атом железа переизлучает в среднем примерно 63% энергии вместе с каскадными электронами, 34% вместе с фотонами, и только 3% энергии остается поглощенной самим атомом.

В работах [20, 21] с помощью метода Монте-Карло проведено моделирование воздействия фотонов на конденсированный неон и воду и исследован эффект увеличения поглощенной дозы при добавлении в облучаемое вещество небольшой примеси атомов железа. Следует отметить, что в работах [20, 21] поглощение энергии вокруг атомов железа отдельно не анализировалось; в них приведены данные, усредненные по состояниям начальной ионизации всех атомов образцов. В работе [22] этим же методом проведено моделирование облучения железной наночастицы фотонами УФ- и рентгеновского диа-

пазонов. Рассчитаны спектры испускаемых наночастицей фотонов и оже-электронов, зависимости поглощенной энергии и чисел испущенных фотонов и оже-электронов от размера наночастицы и энергии первичных фотонов.

Целью данной работы является детальное исследование процессов вторичной ионизации, происходящих в жидкой воде вокруг помещенного в нее атома железа после его ионизации и создания единичных вакансий во внутренних K - и L -оболочках. Основное внимание при этом уделено пространственному распределению поглощения энергии за счет вторичных актов ионизации кислорода и водорода окружающих атом железа молекул воды.

2. МЕТОД РАСЧЕТА

Моделирование вторичных процессов ионизации, происходящих в воде в результате каскадного распада внутренних вакансий в помещенном в воду ионе железа Fe^+ , проведено методом Монте-Карло, который был развит в работах [23–27]. В этом разделе приведено описание алгоритма Монте-Карло, а также описаны приближения, которые используются для расчета необходимых для проведения моделирования атомных характеристик и сечений взаимодействия фотонов и электронов с атомами.

Зона взаимодействия, т. е. объем, внутри которого проводится моделирование вторичных процессов ионизации, представляет собой сферу радиуса $R_{\text{zone}} = 10^4$ нм, заполненную водой. В центре зоны взаимодействия находится ион железа Fe^+ с вакансией в одной из внутренних nl_j -подоболочек. Вода рассматривается в приближении невзаимодействующих атомов кислорода и водорода с объемными концентрациями $n_{\text{O}} = 3.34 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ и $n_{\text{H}} = 2n_{\text{O}}$, которые соответствуют жидкой воде с плотностью 1 г/см^3 .

2.1. Моделирование каскадного распада вакансии

Каждое испытание в методе Монте-Карло начинается с моделирования каскадного распада nl_j -вакансии в ионе железа Fe^+ , находящемся в центре зоны взаимодействия. Пусть $C^{(0)}$ есть начальная электронная конфигурация иона железа с одной вакансией в nl_j -подоболочке. На первом шаге распада анализируются все разрешенные по энергии радиационные и безрадиационные каналы распада $C^{(0)} \rightarrow C_{\alpha}^{(1)}$, приводящие к образованию кон-

фигураций $\{C_\alpha^{(1)}\}$. Для каждого разрешенного канала распада рассчитываются относительные вероятности, называемые также отношениями ветвления (branching ratios):

$$\chi(C^{(0)} \rightarrow C_\alpha^{(1)}) = \frac{\Gamma(C^{(0)} \rightarrow C_\alpha^{(1)})}{\sum_{\alpha'} \Gamma(C^{(0)} \rightarrow C_{\alpha'}^{(1)})}, \quad (1)$$

где $\Gamma(C^{(0)} \rightarrow C_\alpha^{(1)})$ — парциальная ширина перехода, а суммирование в знаменателе выполняется по всем энергетически разрешенным радиационным и безрадиационным переходам из состояния $C^{(0)}$.

Затем с помощью генератора псевдослучайных чисел на основе рассчитанных относительных вероятностей (1) выбирается один из возможных каналов распада $C^{(0)} \rightarrow C_\alpha^{(1)}$, а испущенный в результате выбранного перехода фотон (в случае выбора радиационного перехода) или электрон (в случае безрадиационного) добавляется в список вторичных фотонов и электронов для дальнейшего моделирования его распространения в зоне взаимодействия.

Если выбранная на первом шаге каскада конфигурация $C_\alpha^{(1)}$ содержит вакансии во внутренних подоболочках, то моделирование каскада продолжается. Для этого на втором шаге анализируются все возможные каналы распада конфигурации $C_\alpha^{(1)}$, аналогичным образом рассчитываются их относительные вероятности, на основе которых случайным образом выбирается один из переходов $C_\alpha^{(1)} \rightarrow C_\beta^{(2)}$, а испущенный при этом фотон или электрон пополняет список анализируемых вторичных частиц.

Моделирование каскадного распада вакансий продолжается до тех пор, пока на очередном его шаге не будет выбран переход, приводящий к образованию иона устойчивой электронной конфигурации, в которой все вакансии находятся в самых внешних подоболочках.

Расчеты зарядовых спектров ионов, образующихся в результате каскадной релаксации внутренних вакансий в ионе Fe^+ [19], проведенные методом прямого построения и анализа дерева распада, показали, что каскады для начальных вакансий в K - и L -оболочках могут содержать достаточно большое число безрадиационных переходов, что приводит к образованию многозарядных ионов Fe^{q+} . Так, в случае распада одиночной вакансии $\text{Fe}1s^{-1}$ средний заряд образующихся ионов равен 4.79, а некоторые из возможных путей распада содержат до 7 безрадиационных переходов. В связи с этим при моделировании каскадного распада необходимо рассчитывать парциальные ширины радиационных и безрадиационных переходов для большого числа раз-

нообразных многодырочных электронных конфигураций, которые могут возникнуть в ходе распада. Строгий расчет парциальных ширин для конфигураций с несколькими незаполненными подоболочками представляет собой достаточно трудоемкую вычислительную задачу [28, 29], которая при моделировании каскадных распадов вакансий методом Монте-Карло дополнительно осложняется необходимостью ее многократного повторения.

Для расчета парциальных ширин радиационных и безрадиационных переходов в данной работе используется приближение, предложенное в работах [12, 13], которое позволяет достаточно просто и с приемлемой точностью рассчитывать парциальные ширины переходов в произвольных многодырочных электронных конфигурациях. В рамках этого приближения парциальные ширины радиационных переходов из произвольной ионной конфигурации C рассчитываются в дипольном приближении по формуле

$$\Gamma_{i-j}(C) = N_i^{vac} N_j \gamma_{ij}, \quad (2)$$

где индексы « i » и « j » обозначают соответственно подоболочки с начальной и конечной вакансиями перехода, N_i^{vac} и N_j — число вакансий в подоболочке i и число электронов в подоболочке j в конфигурации C (до перехода), а

$$\gamma_{ij} = \frac{4}{3} \left(\frac{E_{ij}}{c} \right)^3 \frac{\max(l_i, l_j)}{2(2l_i + 1)(2l_j + 1)} R_{ij}^2 \quad (3)$$

представляет собой парциальную ширину радиационного $i-j$ -перехода в расчете на одну $n_i l_i$ -вакансию и один $n_j l_j$ -электрон. В (3) E_{ij} — энергия испускаемого фотона, c — скорость света в вакууме, $R_{ij} = \langle n_i l_i | r | n_j l_j \rangle$ — радиальная часть оператора дипольного перехода в форме длины (все величины в атомной системе единиц). Для учета эффекта релаксации атомные орбитали $n_i l_i$ и $n_j l_j$, входящие в R_{ij} , оптимизируются в соответствующих конфигурациях $n_j l_j^{-1}$ и $n_i l_i^{-1}$.

Парциальные ширины безрадиационных переходов рассчитываются по формуле

$$\Gamma_{i-jk}(C) = N_i^{vac} N_{jk} \gamma_{ijk}, \quad (4)$$

в которой нижние индексы обозначают подоболочки с начальной i - и конечными j - и k -вакансиями перехода, N_i^{vac} — число вакансий в подоболочке i , N_{jk} — число пар электронов в подоболочках j и k в конфигурации C :

$$N_{jk} = \begin{cases} N_j N_k, & j \neq k, \\ N_j(N_j - 1)/2, & j = k. \end{cases} \quad (5)$$

В (4) γ_{ijk} представляет собой парциальную ширину безрадиационного $i-jk$ -перехода в расчете на одну начальную вакансию и одну пару электронов:

$$\gamma_{ijk} = \frac{\Gamma_{i-jk}^0}{N_{jk}^{max}}. \quad (6)$$

Парциальные ширины Γ_{i-jk}^0 в (6) рассчитываются для конфигурации с одной вакансией в подоболочке i и полностью заполненными подоболочками j и k и выражаются через слэтеровские интегралы $R^q(n_i l_i, \varepsilon l; n_j l_j, n_k l_k)$. Атомные орбитали подоболочек $n_i l_i$, $n_j l_j$ и $n_k l_k$ оптимизируются в конфигурации $n_i l_i^{-1}$, а волновая функция электрона непрерывного спектра εl оптимизируется в потенциале конфигурации $n_j l_j^{-1} n_k l_k^{-1}$, построенном на орбиталях конфигурации $n_i l_i^{-1}$. Величина N_{jk}^{max} в (6) есть число пар электронов, рассчитанное по формуле (5) для полностью заполненных подоболочек j и k .

В [30] было показано, что величины R_{ij} и γ_{ijk} слабо и практически линейно зависят от числа дополнительных вакансий, а вклады в изменения этих величин от дополнительных вакансий в различных подоболочках практически аддитивны. В данной работе используется линейная аппроксимация зависимостей величин R_{ij} и γ_{ijk} от числа вакансий, что позволяет с приемлемой точностью рассчитывать их для произвольных ионных конфигураций, возникающих в ходе каскадного распада вакансий.

Рассчитанные с помощью описанного выше приближения парциальные ширины радиационных $\Gamma_{i-j}(n_i l_i^{-1})$ и безрадиационных $\Gamma_{i-jk}(n_i l_i^{-1})$ переходов для конфигураций иона Fe^+ с одной вакансией в $n_i l_i$ -подоболочке приведены в работе [19].

Радиальные части атомных орбиталей и энергии разнообразных многодырочных конфигураций, возникающих в ходе каскадных распадов вакансий, были вычислены в квазирелятивистском приближении Паули–Фока [31]. Всего для моделирования каскадных распадов внутренних вакансий в ионе Fe^+ потребовалось оптимизировать 1647 различных электронных конфигураций.

Энергии радиационных и безрадиационных переходов, анализируемых при моделировании каскадных распадов вакансий, рассчитываются как разности средних паули–фоковских энергий начальной и конечной конфигураций перехода. Мультиплетная структура ионных конфигураций учитывается приближенно с помощью метода глобальных характеристик атомных спектров [32, 33]. В случае безрадиационных переходов между частично перекрывающимися мультиплетными парциальными ширинами (4) и

энергии переходов корректируются с помощью формул, приведенных в [3, 34].

После завершения моделирования каскадного распада внутренней вакансии в ионе Fe^+ , находящегося в центре заполненной водой сферической зоны взаимодействия, начинается моделирование распространения фотонов и электронов, испущенных атомом железа в ходе каскадного распада вакансии.

Взаимодействие фотонов и электронов с атомами кислорода и водорода рассматривается в рамках приближения парных столкновений как совокупность элементарных актов взаимодействия отдельных фотонов и электронов с отдельными атомами [35]. Между двумя последовательными актами взаимодействия (излучения, поглощения или рассеяния) рассматриваемая частица (фотон или электрон) движется прямолинейно. Длина свободного пробега между двумя последовательными актами взаимодействия определяется с помощью генератора псевдослучайных чисел по формуле

$$s = -\lambda \ln \xi, \quad (7)$$

где ξ — значение случайной величины с равномерным законом распределением на интервале $(0; 1]$, а λ — средняя длина свободного пробега, рассчитанная на основе сечений взаимодействия σ_a рассматриваемой частицы с атомами среды и атомных концентраций n_a :

$$\lambda = \frac{1}{\sum_{a=\text{O, H}} n_a \sigma_a}. \quad (8)$$

2.2. Моделирование распространения фотонов

Среди возможных процессов взаимодействия фотонов с атомами в данной работе учитывается только фотоионизация атомов, являющаяся наиболее вероятным типом взаимодействия в рассматриваемой области энергии. В соответствии с этим, испущенный в ходе распада вакансии фотон либо поглощается в зоне взаимодействия одним из атомов О или Н, либо покидает зону. Если выбранная длина свободного пробега (7) такова, что фотон поглощается внутри зоны, то на основе сечений фотоионизации атомов кислорода и водорода проводится случайный выбор атома, поглотившего фотон, и ионизированной подоболочки. Выбитый в результате фотоионизации фотоэлектрон добавляется в список вторичных частиц для дальнейшего моделирования его распространения внутри зоны, и если созданная в ионизированном атоме вакансия

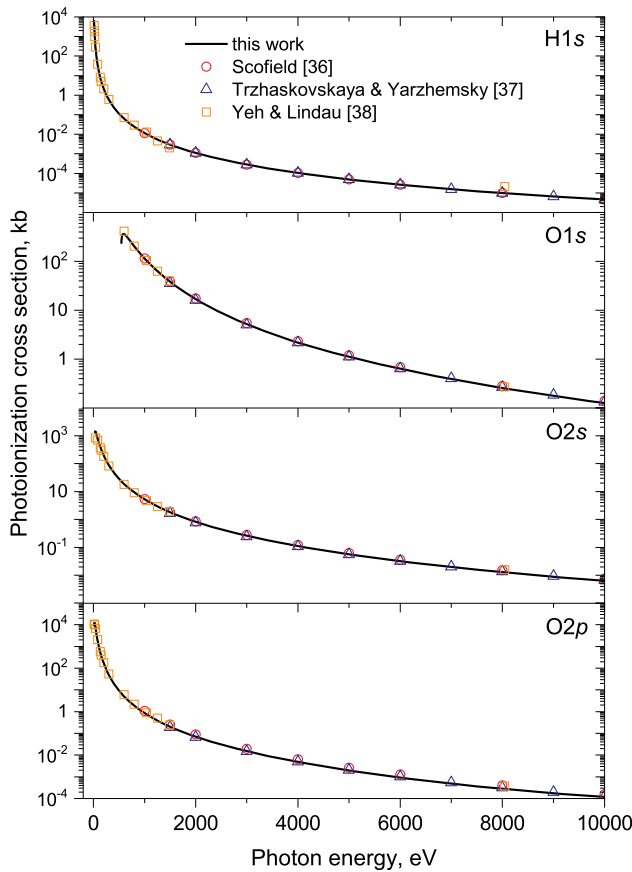


Рис. 1. (В цвете онлайн) Сечения фотоионизации атомов водорода и кислорода: сплошные линии — результаты расчета данной работы; кружки — расчет Скофилда в релятивистском приближении Хартри–Слэтера [36]; треугольники — расчет Тржасковской и Яржемского в приближении Дирака–Фока [37]; квадраты — расчет Йе и Линдау в приближении Хартри–Фока–Слэтера [38]

является внутренней и подвержена распаду (т.е. в случае фотоионизации 1s- или 2s-подоболочки кислорода), то проводится моделирование ее распада методом, описанным в разд. 2.1.

Парциальные сечения фотоионизации nl -подоболочек атомов кислорода и водорода рассчитаны в дипольном приближении по формуле

$$\sigma_{nl}(h\nu) = \frac{N_{nl}}{2(2l+1)} \sum_{l'=\pm 1} \sigma_{nl \rightarrow \varepsilon l'}(h\nu), \quad (9)$$

где N_{nl} — число электронов в nl -подоболочке, а

$$\sigma_{nl \rightarrow \varepsilon l'}(h\nu) = \frac{8}{3} \pi^2 \alpha a_0^2 \max(l, l') h\nu \langle nl | r | \varepsilon l' \rangle^2. \quad (10)$$

Здесь α — постоянная тонкой структуры, a_0 — боровский радиус, $h\nu$ — энергия фотона (все величины

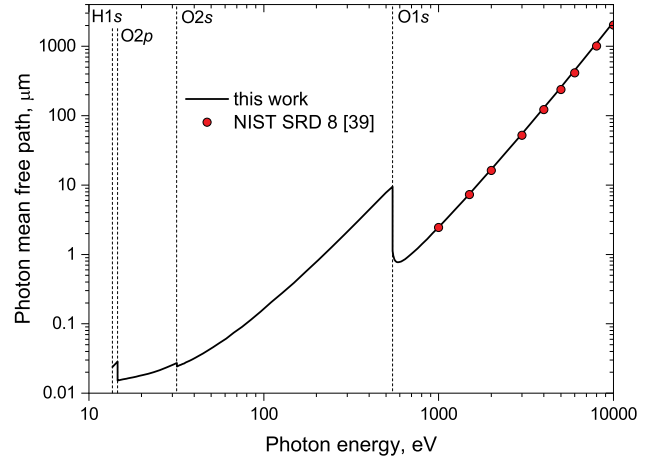


Рис. 2. Средняя длина свободного пробега фотона в воде в зависимости от энергии фотона. Сплошная линия — расчет данной работы на основе сечений фотоионизации атомов водорода и кислорода, кружки — данные базы NIST SRD 8 [39]. Вертикальными штриховыми линиями показано положение порогов ионизации атомов H и O

в атомной системе единиц), а

$$\langle nl | r | \varepsilon l' \rangle = \int_0^\infty P_{nl}^{[0]} r P_{\varepsilon l'}^{[nl^{-1}]} dr \quad (11)$$

есть радиальная часть матричного элемента дипольного перехода между атомной орбиталью nl -электрона, оптимизированной в конфигурации основного состояния, и орбиталью $\varepsilon l'$ -фотоэлектрона с энергией $\varepsilon = h\nu - I_{nl}$, рассчитанной в потенциале конфигурации $nl^{-1}\varepsilon l'$, I_{nl} — потенциал ионизации nl -подоболочки.

Рассчитанные парциальные сечения фотоионизации атомов кислорода и водорода представлены на рис. 1 и находятся в отличном согласии с результатами расчетов других авторов: Скофилда в релятивистском приближении Хартри–Слэтера [36]; Тржасковской и Яржемского в приближении Дирака–Фока [37]; Йе и Линдау в приближении Хартри–Фока–Слэтера [38]. На рис. 2 представлена рассчитанная на основе полных сечений фотоионизации атомов кислорода и водорода зависимость средней длины свободного пробега фотонов в воде от их энергии в сравнении с данными из базы NIST SRD 8 [39].

2.3. Моделирование распространения электронов

При моделировании распространения электронов в данной работе учитываются два типа процес-

сов: упругое рассеяние электрона атомом и ионизация атома электронным ударом.

Полное сечение взаимодействия электрона с атомом складывается из сечения упругого рассеяния σ^{elast} и сечения ударной ионизации σ^{ioniz} . Полные и дифференциальные сечения упругого рассеяния электрона на атомах водорода и кислорода при энергии электрона менее 50 эВ были рассчитаны в приближении парциальных волн [40]. При энергии электрона более 50 эВ были использованы сечения из базы NIST SRD 64 [41].

Сечения прямой ионизации атомов кислорода и водорода рассчитаны в данной работе в полуклассическом приближении бинарных столкновений Бете (binary-encounter Bethe, BEB), предложенном Кимом и Раддом в [42]. Пусть T — кинетическая энергия налетающего на атом электрона, а I_{nl} — потенциал ионизации nl -подоболочки атома. В результате ионизации nl -подоболочки в конечном состоянии образуются два электрона, которые делят между собой энергию $T - I_{nl}$. Будем условно называть выбитым электроном тот из них, энергия которого W меньше. Тогда рассеянный электрон имеет энергию $T' = T - I_{nl} - W > W$. Дифференциальное по энергии выбитого электрона W сечение ионизации электронным ударом nl -подоболочки атома в BEB-приближении определяется формулой

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{nl}(w, t)}{dw} = & \frac{S_{nl}}{t + u_{nl} + 1} \times \\ & \times \left\{ \frac{Q_{nl} - 2}{t + 1} \left[\frac{1}{w + 1} + \frac{1}{t - w} \right] + \right. \\ & + (2 - Q_{nl}) \left[\frac{1}{(w + 1)^2} + \frac{1}{(t - w)^2} \right] + \\ & \left. + Q_{nl} \ln(t) \left[\frac{1}{(w + 1)^3} + \frac{1}{(t - w)^3} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (12)$$

где

$$t = T/I_{nl}, \quad w = W/I_{nl}, \quad S_{nl} = 4\pi a_0^2 N_{nl} (R/I_{nl})^2,$$

$R \approx 13.6$ эВ — ридберговская энергия, $u_{nl} = U_{nl}/I_{nl}$, U_{nl} — средняя кинетическая энергия электрона nl -подоболочки:

$$U_{nl} = \left\langle nl \left| \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} \right| nl \right\rangle. \quad (13)$$

Величина Q_{nl} в (12) называется дипольной постоянной и определяется формулой

$$Q_{nl} = \frac{2}{N_{nl}} \int_0^\infty \frac{1}{w + 1} \frac{df_{nl}(w)}{dw} dw, \quad (14)$$

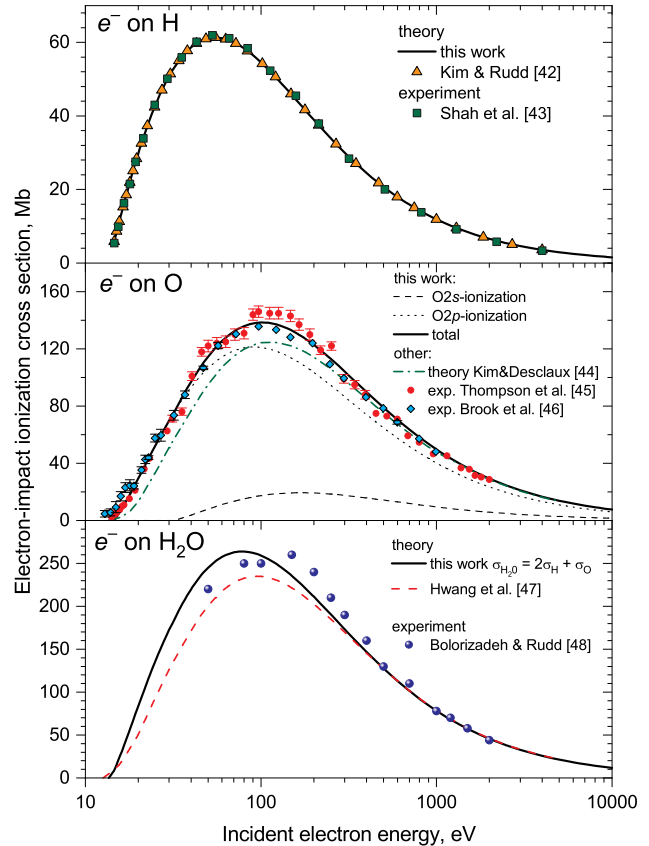


Рис. 3. (В цвете онлайн) Сечения ионизации электронным ударом атома H (верхняя панель), атома O (средняя панель) и молекулы воды (нижняя панель)

где df_{nl}/dw — плотность обобщенных сил осциллятора.

Парциальное сечение ионизации nl -подоболочки электронным ударом в BEB-приближении получается интегрированием (12) и равно

$$\begin{aligned} \sigma_{nl}(t) = & \int_0^{(t-1)/2} \frac{d\sigma_{nl}(w, t)}{dw} dw = \\ = & \frac{S_{nl}}{t + u_{nl} + 1} \left\{ \frac{Q_{nl}}{2} \left(1 - \frac{1}{t^2} \right) \ln t + \right. \\ & \left. + (2 - Q_{nl}) \left[1 - \frac{1}{t} - \frac{\ln t}{t + 1} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (15)$$

Рассчитанные в данной работе парциальные и полные сечения прямой ионизации атомов водорода и кислорода электронным ударом представлены на рис. 3 в сравнении с другими теоретическими и экспериментальными данными [42–46]. Для иллюстрации возможности применимости приближения невзаимодействующих атомов при моделировании ионизации воды электронным ударом на ниж-

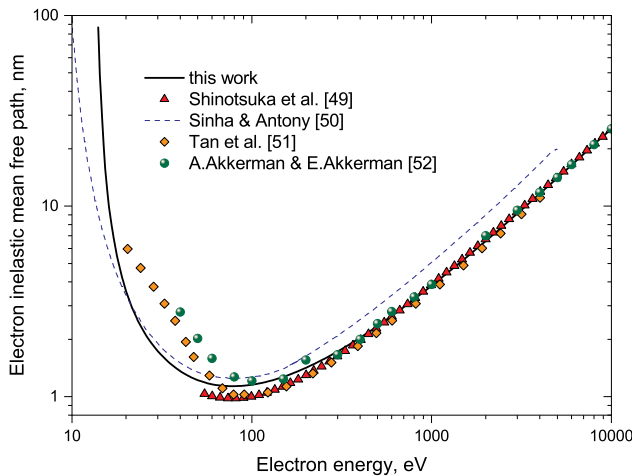


Рис. 4. (В цвете онлайн) Средняя неупругая длина свободного пробега электрона в жидкой воде. Сплошная линия — расчет данной работы; расчеты других авторов: треугольники — [49], штриховая линия — [50], ромбы — [51], кружки — [52]

ней панели рис. 3 показано сечение ионизации молекулы воды, рассчитанное как сумма сечений ионизации электронным ударом отдельных атомов водорода и кислорода, $\sigma_{\text{H}_2\text{O}} = 2\sigma_{\text{H}} + \sigma_{\text{O}}$. Рассчитанное таким образом сечение ионизации молекулы воды находится в неплохом согласии с результатами работы Хвана и др. [47], в которой авторы применили ВЕВ-приближение для расчета парциальных сечений ионизации электронным ударом молекулярных орбиталей молекулы H_2O . Оно находится также в хорошем соответствии с результатами измерений Болоризаде и Радда [48].

На рис. 4 представлена зависимость от энергии электрона его средней неупругой (обусловленной процессами ударной ионизации) длины свободного пробега в воде, рассчитанной на основе сечений ионизации электронным ударом атомов О и Н в ВЕВ-приближении:

$$\lambda_{el}^{inelast} = \frac{1}{\sum_{a=\text{O,H}} n_a \sigma_a^{ioniz}}. \quad (16)$$

Как видно на рис. 4, она достаточно хорошо согласуется с результатами расчета других авторов [49–52].

Наряду со средней неупругой длиной свободного пробега еще одной важной характеристикой является величина эффективного торможения, называемая также линейной тормозной способностью (stopping power), равная средней энергии, теряемой электроном на единице его пути в веществе [53]. В приближении парных столкновений и невзаимо-

действующих атомов линейная тормозная способность электронов, обусловленная процессами ударной ионизации, определяется формулой

$$-\frac{dT}{dx} = \sum_{a,nl} n_a I_{a,nl} \int_0^{(t-1)/2} (w+1) \frac{d\sigma_{a,nl}}{dw} dw, \quad (17)$$

где суммирование проводится по типам атомов a , входящих в состав вещества, и их подоболочкам nl . Величина $w+1 = t-t'$ в интеграле представляет собой потерянную рассеянным электроном энергию в результате ионизации nl -подоболочки атома a , отнесенную к ее потенциалу ионизации $I_{a,nl}$. Использование ВЕВ-приближения для дифференциального сечения ионизации атома электронным ударом (12) позволяет получить аналитическое выражения для интеграла в (17) (индекс a для краткости опущен)

$$\begin{aligned} \int_0^{(t-1)/2} (w+1) \frac{d\sigma_{nl}}{dw} dw &= \\ &= \frac{S_{nl}}{t+u_{nl}+1} \left\{ (Q_{nl}-2) \ln \frac{2t}{t+1} + \right. \\ &+ (2-Q_{nl}) \left(\ln \frac{(t+1)^2}{4t} + 1 - \frac{1}{t} \right) + \\ &\left. + Q_{nl} \ln(t) \frac{2t^3 - t^2 - 1}{2t^2(t+1)} \right\}. \quad (18) \end{aligned}$$

Рассчитанная с помощью (17), (18) зависимость линейной тормозной способности электрона в жидкой воде от его энергии представлена на рис. 5 в сравнении с результатами моделирования методом Монте-Карло с помощью Geant4-DNA [54] и с данными базы NIST SRD 124 [55]. Тормозная способность достигает максимального значения 219 МэВ/см при энергии 125 эВ. При этом в качестве диапазона энергии распространяющегося в воде электрона, в котором он наиболее эффективно передает свою энергию воде, можно указать интервал от 30 до 860 эВ, в котором тормозная способность превышает половину своего максимального значения. На рис. 5 представлена также тормозная способность электрона в воде, обусловленная тормозным излучением [55]. В диапазоне от 1 до 10 кэВ она в среднем на 4 порядка меньше, чем тормозная способность за счет процессов ударной ионизации. Поскольку рассматриваемые в данной работе оже-электроны, испускаемые в результате каскадного распада вакансий, и фотоэлектроны имеют энергию, не превышающую 10 кэВ, основным источником потерь энергии электронами является ударная

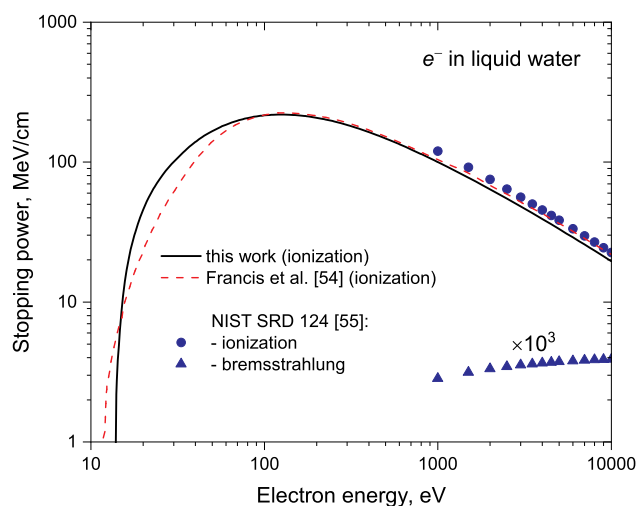


Рис. 5. (В цвете онлайн) Линейная тормозная способность электрона в жидкой воде. За счет процессов ударной ионизации: сплошная линия — аналитический расчет данной работы в BEB-приближении [42]; штриховая линия — результаты моделирования методом Монте-Карло с помощью Geant4-DNA [54]; кружки — данные базы NIST SRD 124 [55]. За счет тормозного излучения: треугольники — данные [55], умноженные на 10^3

ионизация. В связи с этим при проведении моделирования методом Монте-Карло тормозное излучение электронов нами не учитывалось. Однако оно будет играть заметную роль при энергиях электрона более 10 МэВ.

Если в результате моделирования электрон, совершая свободный пробег случайной длины (7), рассчитанной на основе полных $\sigma_a^{tot} = \sigma_a^{elast} + \sigma_a^{ioniz}$ сечений взаимодействия электрона с атомами Н и О, остается внутри зоны взаимодействия, то проводится выбор случившегося события — с каким атомом произошло столкновение электрона, и какой именно произошел процесс (упругое рассеяние или ионизация какой-либо электронной подболочки). В случае упругого взаимодействия изменяется направление движения электрона на основе дифференциальных сечений упругого рассеяния. Если же произошла ударная ионизация, то на основе дифференциальных по энергии выбитого электрона сечений (12) проводится деление энергии между рассеянным и выбитым электронами (выбитый электрон при этом пополняет список вторичных частиц внутри зоны), а затем моделирование углового распределения электронов. Возникшая в результате ионизации вакансия анализируется на возможность ее распада, и, если распад возможен, запускается процедура моделирования каскадного распада, описанная выше.

Моделирование распространения вторичных электронов внутри зоны взаимодействия продолжается до тех пор, пока каждый электрон не покинет зону или его энергия станет недостаточной для ионизации атомов Н и О (минимальный порог $I_{H1s} = 13.6$ эВ).

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

С помощью описанного в разд. 2 метода Монте-Карло было проведено моделирование каскадного распада вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа и последующих вторичных процессов ионизации атомов окружающих ион железа воды, вызванных фотонами и электронами, испущенными в ходе каскадного распада. Каждое моделирование методом Монте-Карло состояло из 10^6 испытаний.

На рис. 6 представлены рассчитанные спектры электронов, испускаемых в ходе каскадного распада вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках Fe^+ . Спектры электронов имеют сложную многокомпонентную структуру, обусловленную тем, что при распаде внутренней вакансии безрадиационные переходы $n_1l_1 - n_2l_2n_3l_3$ могут происходить в различных многодырочных электронных конфигурациях, возникающих в ходе развития каскада.

Рассмотрим подробнее спектр электронов, испускаемых при распаде $Fe1s$ -вакансии (верхняя панель рис. 6). В низкоэнергетической области спектра от 0 до 120 эВ в среднем на один распад $Fe1s^{-1}$ в результате костер-крониговских LLM , LLN , MMN и супер-костер-крониговских MMM переходов испускается 1.85 электронов, общая энергия которых составляет примерно 32 эВ (среди этих электронов энергией, достаточной для ионизации атомов Н и О, обладают 0.76 электронов с общей энергией 26 эВ). В диапазоне от 355 до 830 эВ испускается в среднем 1.46 LLM и LMN оже-электронов с суммарной энергией 866 эВ. В диапазоне 5355–5630 эВ в результате KLL оже-эмиссии испускается 0.51 электронов с суммарной энергией 2835 эВ. Наконец, в высокоэнергетической области спектра, от 6140 до 6980 эВ, на один распад $1s$ -вакансии приходится примерно 0.13 $KL\{M, N\}$ и $KM\{M, N\}$ оже-электронов с суммарной энергией 806 эВ. Таким образом, за один распад $Fe1s$ -вакансии во всем диапазоне энергий в среднем испускается 2.86 электронов, способных ионизировать окружающие атомы водорода и кислорода. Их суммарная энергия составляет 4533 эВ.

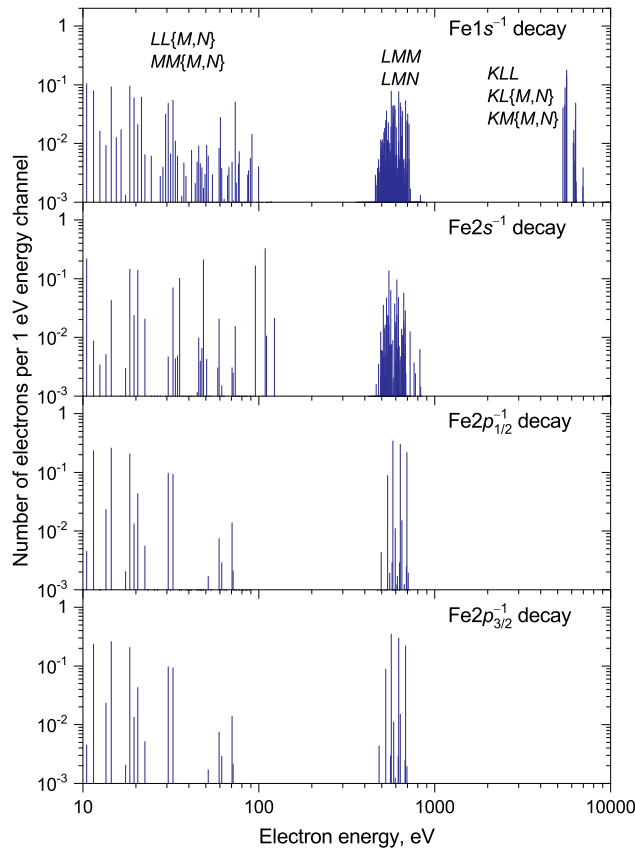


Рис. 6. Спектры электронов, испускаемых в результате каскадного распада вакансии в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа

Спектры фотонов, испускаемых ионом Fe^+ при распаде вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках, представлены на рис. 7. При распаде $\text{Fe}1s^{-1}$ (верхняя панель рис. 7) в среднем испускается 0.326 $1s$ - $2p$ -фотонов с суммарной энергией 2087 эВ, 0.037 $1s$ - $3p$ -фотонов с общей энергией 264 эВ, 0.009 фотонов в результате L -эмиссии с суммарной энергией 6.3 эВ и примерно 0.536 фотонов, уносящих энергию 33 эВ в результате низкоэнергетических $3p$ - $4s$ -, $3p$ - $3d$ - и $3s$ - $3p$ -переходов. Отметим, что все фотоны, которые испускаются в результате распадов вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа, обладают энергией, достаточной для ионизации атомов Н и О молекул воды.

При создании начальной nl_j -вакансии атом железа получает от ионизирующего его объекта (фотона или заряженной частицы) энергию, равную энергии ионизации nl_j -подоболочки, I_{nl_j} . В результате каскадного распада образовавшейся вакансии часть этой энергии переизлучается вместе с электронами и фотонами. В табл. 1 приведены рассчитан-

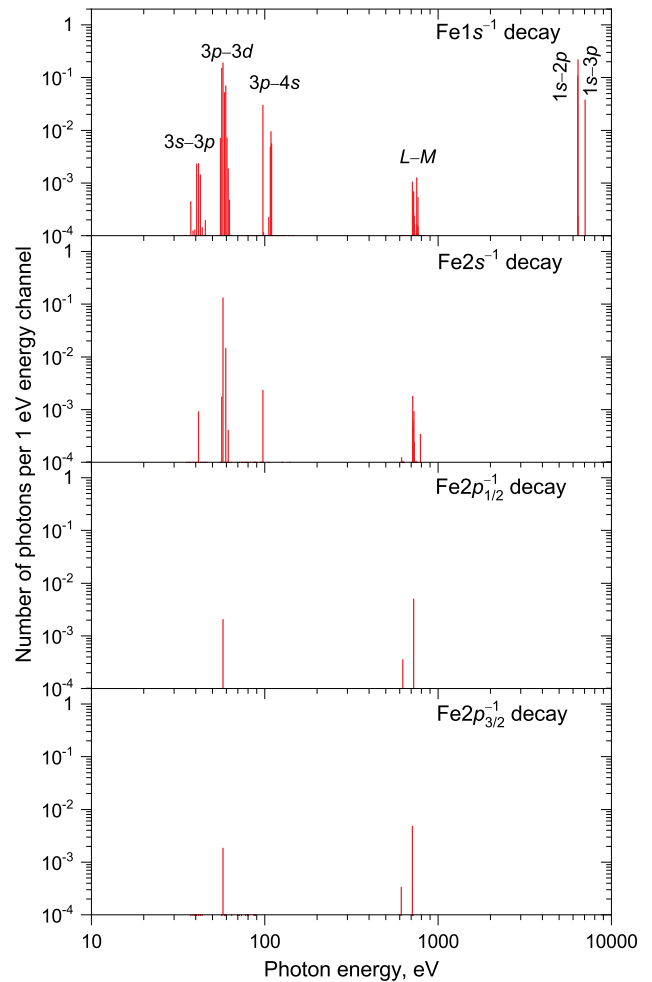


Рис. 7. Спектры фотонов, испускаемых в результате каскадного распада вакансии в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа

ные средние числа электронов $N_{out}^{el}(nl_j)$ и фотонов $N_{out}^{phot}(nl_j)$, испускаемых при каскадном распаде вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома Fe и средние суммарные энергии, уносимые этими электронами $E_{out}^{el}(nl_j)$ и фотонами $E_{out}^{phot}(nl_j)$. Разность

$$E_{abs}(nl_j) = I_{nl_j} - E_{out}^{el}(nl_j) - E_{out}^{phot}(nl_j) \quad (19)$$

представляет собой энергию, которая остается запасенной в атоме после полного завершения каскадной релаксации исходной nl_j -вакансии, т. е. энергию, поглощенную самим атомом. Из табл. 1 можно видеть, что большая часть энергии I_{nl_j} , затраченной на создание начальной внутренней вакансии в атоме железа (например, в результате фотоионизации), в ходе каскадной релаксации вакансии переизлучается вместе с каскадными электронами и фотонами. Так, в случае распада $\text{Fe}1s^{-1}$, средняя суммар-

Таблица 1. Средние числа электронов $N_{out}^{el}(nl_j)$ и фотонов $N_{out}^{phot}(nl_j)$, испускаемых ионом железа в результате каскадного распада одиночных вакансий в атоме Fe, средние энергии, уносимые каскадными электронами $E_{out}^{el}(nl_j)$ и фотонами $E_{out}^{phot}(nl_j)$, и энергия, поглощенная атомом $E_{abs}(nl_j)$ (в скобках указаны доли от энергии, полученной атомом Fe при ионизации, звездочкой отмечены величины для электронов, способных ионизировать атомы H и O молекул воды)

Начальная вакансия	N_{out}^{el}	N_{out}^{phot}	I_{nl_j} , эВ	E_{out}^{el} , эВ	E_{out}^{phot} , эВ	E_{abs} , эВ
1s	3.949 2.856*	0.908	7134	4539 (63.6%) 4533* (63.5%)	2390 (33.5%)	205 (2.9%)
2s	3.713 2.366*	0.156	862	678 (78.7%) 670* (77.7%)	12.7 (1.5%)	171 (19.8%)
2p _{1/2}	2.310 1.744*	0.008	736	637 (86.5%) 634* (86.1%)	4.1 (0.6%)	95 (12.9%)
2p _{3/2}	2.305 1.747*	0.007	723	625 (86.5%) 621* (85.9%)	3.8 (0.5%)	94 (13.0%)

Таблица 2. Радиусы сферических объемов R_{sat}^{el} и R_{sat}^{phot} вокруг атома железа, внутри которых количество актов вторичной ионизации электронным ударом N_{ioniz}^{el} и количество актов фотоионизации N_{ioniz}^{phot} атомов H и O достигает насыщения, числа актов ионизации $N_{ioniz}^{el}(R_{sat}^{el})$ и $N_{ioniz}^{phot}(R_{sat}^{phot})$, порожденных каскадными электронами и фотонами, испущенными при распаде вакансий в подболочках атома Fe, и средние энергии $E_{abs}^{el}(R_{sat}^{el})$ и $E_{abs}^{phot}(R_{sat}^{phot})$, поглощенные в актах вторичной ионизации

nl_j	R_{sat}^{el} , нм	$N_{ioniz}^{el}(R_{sat}^{el})$	$E_{abs}^{el}(R_{sat}^{el})$, эВ	R_{sat}^{phot} , нм	$N_{ioniz}^{phot}(R_{sat}^{phot})$	$E_{abs}^{phot}(R_{sat}^{phot})$, эВ
1s	1405	231.5	3274	1435	18.0	256
2s	105	34.4	484	205	2.2	31
2p _{1/2}	95	32.3	456	125	2.0	29
2p _{3/2}	95	31.7	447	115	2.0	28

ная энергия всех испущенных электронов составляет $E_{out}^{el}(1s) = 0.64I_{1s}$, а энергия испущенных фотонов $E_{out}^{phot}(1s) = 0.33I_{1s}$, и только 3% энергии, полученной атомом при создании 1s-вакансии, остается запасенной в атоме. В случае же распада вакансий в 2s-, 2p_{1/2}- и 2p_{3/2}-подболочках энергия, поглощенная атомом железа, составляет 13–20% от потенциала ионизации, суммарная энергия испущенных в ходе распада фотонов мала (0.5–1.5%), и большую часть энергии (79–87%) уносят с собой каскадные электроны.

Для исследования пространственного распределения актов вторичной ионизации атомов H и O, производимых испущенными в результате каскадного распада вакансий ионов Fe⁺(nl_j^{-1}) электронами и фотонами, сферическая зона взаимодействия радиуса $R_{zone} = 10^4$ нм была разбита на концентрические шаровые слои одинаковой толщины $\Delta r = 10$ нм с

центром, совпадающим с центром зоны взаимодействия, в котором находится ион Fe⁺ с заданной начальной вакансией в определенной nl_j -подболочке. В результате моделирования методом Монте-Карло определялись среднее (приходящееся на один nl_j^{-1} каскадный распад) число актов вторичной ионизации атомов H и O электронным ударом, $\Delta N_{ioniz}^{el}(r_i)$, и среднее число актов вторичной фотоионизации, $\Delta N_{ioniz}^{phot}(r_i)$, происходящих внутри каждого i -го шарового слоя (между сферами радиусов $r_i - \Delta r/2$ и $r_i + \Delta r/2$).

Также в результате моделирования определялись средние энергии, поглощенные внутри каждого шарового слоя в результате актов ионизации атомов H и O электронным ударом, $\Delta E_{abs}^{el}(r_i)$ и актов фотоионизации, $\Delta E_{abs}^{phot}(r_i)$. Энергия, поглощенная внутри слоя, рассчитывалась как сумма энергий, поглощенных во всех актах вторичной ионизации, произо-

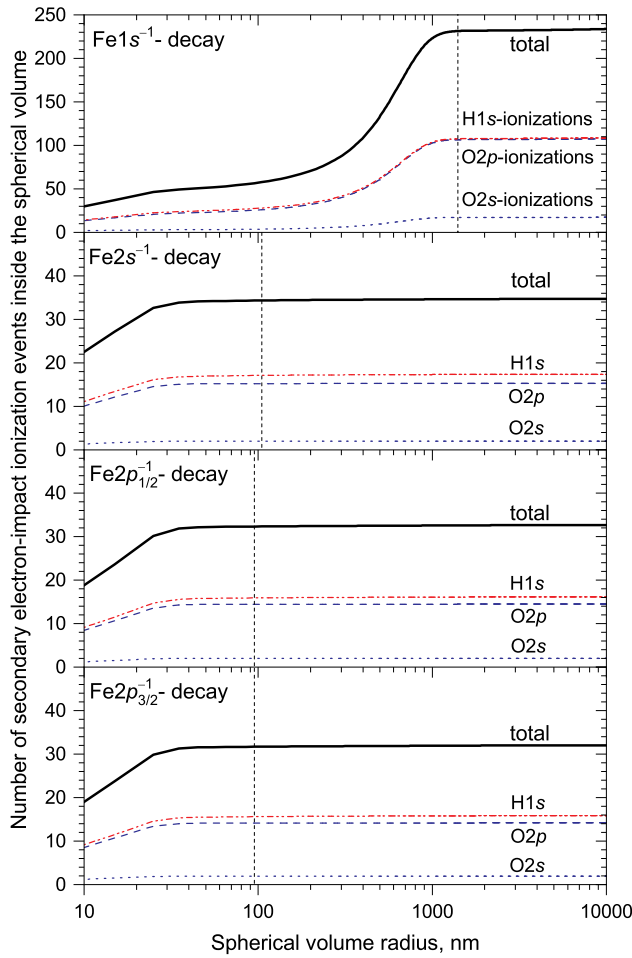


Рис. 8. Числа актов вторичной ионизации электронным ударом атомов Н и О, происходящих внутри сферического объема вокруг атома Fe в результате каскадного распада вакансий в его $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках. Вертикальными штриховыми линиями отмечены радиусы сфер R_{sat} , при которых достигается насыщение

шедших внутри слоя. При этом энергия, поглощенная в отдельно взятом акте ионизации, рассчитывалась как разность полной энергии иона, образовавшегося в результате каскадной релаксации (т. е. после распада образовавшейся в результате ионизации вакансии) и полной энергии атома в основном состоянии до ионизации. Полные энергии атомов и ионов в различных электронных конфигурациях рассчитаны в приближении Паули – Фока [31].

Для иллюстрации того, сколько актов вторичной ионизации происходит в воде за счет электронов и фотонов, испускаемых в результате распада внутренней nl_j -вакансии в ионе железа, и какая при этом поглощается энергия, просуммируем

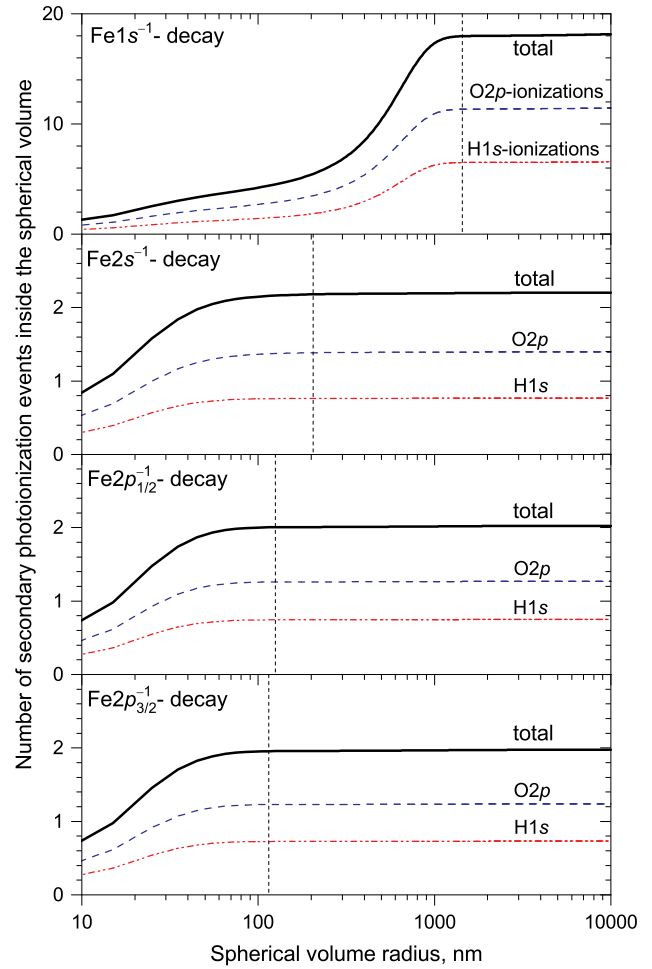


Рис. 9. Числа актов вторичной фотоионизации атомов Н и О, происходящих внутри сферического объема вокруг атома Fe в результате каскадного распада вакансий в его $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках. Вертикальными штриховыми линиями отмечены радиусы сфер R_{sat} , при которых достигается насыщение

$\Delta N_{ioniz}^{el}(r_i)$, $\Delta E_{abs}^{el}(r_i)$ и $\Delta N_{ioniz}^{phot}(r_i)$, $\Delta E_{abs}^{phot}(r_i)$ по шаровым слоям:

$$\begin{aligned}
 N_{ioniz}^{el}(r) &= \sum_{r_i \leq r} \Delta N_{ioniz}^{el}(r_i), \\
 E_{abs}^{el}(r) &= \sum_{r_i \leq r} \Delta E_{abs}^{el}(r_i), \\
 N_{ioniz}^{phot}(r) &= \sum_{r_i \leq r} \Delta N_{ioniz}^{phot}(r_i), \\
 E_{abs}^{phot}(r) &= \sum_{r_i \leq r} \Delta E_{abs}^{phot}(r_i).
 \end{aligned} \tag{20}$$

В результате получим количества актов вторичной ионизации электронным ударом $N_{ioniz}^{el}(r)$ и актов

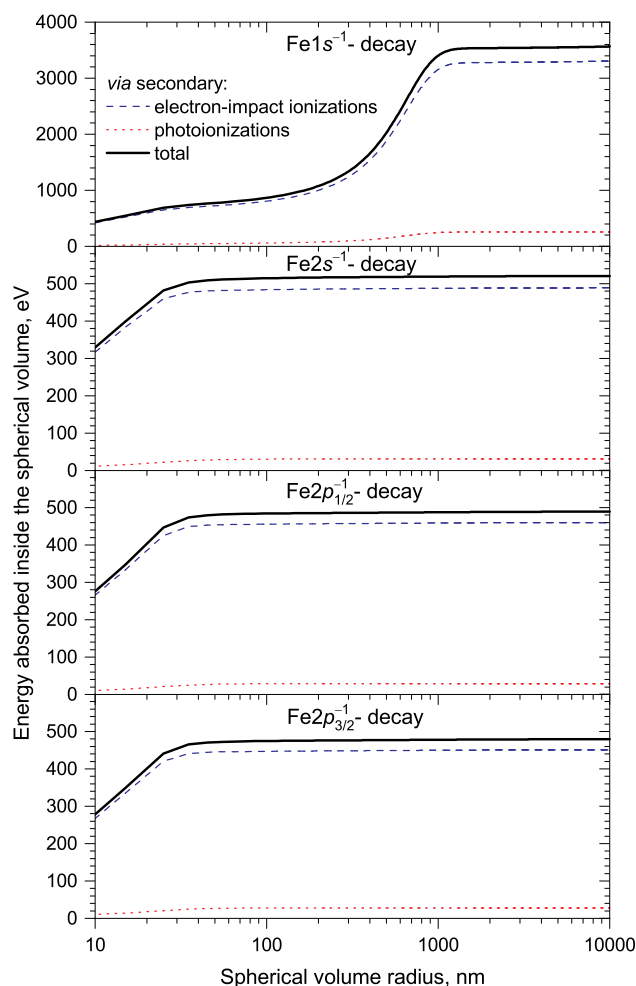


Рис. 10. Энергия, поглощенная в актах ионизации электронным ударом и фотоионизации атомами Н и О, находящимися внутри сферического объема вокруг атома Fe, в результате каскадного распада вакансий в его $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках

фотоионизации N_{ioniz}^{phot} , происходящих внутри сферы радиуса r , а также поглощенные в результате этих процессов энергии $E_{abs}^{el}(r)$ и $E_{abs}^{phot}(r)$.

На рис. 8 представлены зависимости $N_{ioniz}^{el}(r)$ при распаде вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа. В задачах оже-терапии представляет особый интерес знание радиуса сферы R_{sat}^{el} вокруг атома-источника оже-электронов, внутри которой количество актов вторичной ионизации электронным ударом достигает насыщения. Очевидно, R_{sat}^{el} задает границу области вокруг атома железа, в которой возможны процессы передачи энергии атомам окружения каскадными электронами, испущенными ионизированным атомом железа при каскадном распаде вакансий. Радиусы R_{sat}^{el} отмечены

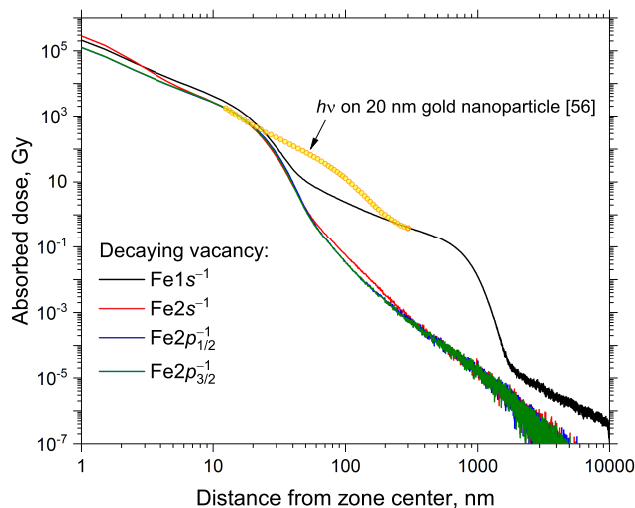


Рис. 11. (В цвете онлайн) Зависимости поглощенной дозы в воде за счет вторичных процессов ионизации электронным ударом и фотоионизации, инициированных каскадным распадом вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа, от расстояния от атома Fe. Кружки — поглощенная доза в зависимости от расстояния от центра наночастицы золота диаметром 20 нм при фотонном облучении (результат моделирования методом Монте-Карло [56])

на рис. 8 вертикальными штриховыми линиями, а их числовые значения вместе с максимальным количеством актов ударной ионизации $N_{ioniz}^{el}(R_{sat}^{el})$ приведены в табл. 2. Как видно из рис. 8 и табл. 2, в случае $Fe1s^{-1}$ -распада $R_{sat}^{el} = 1405$ нм, а максимальное число актов вторичной ионизации атомов О и Н равно $N_{ioniz}^{el}(R_{sat}^{el}) = 231.5$. Из них число актов $O2p$ -ионизации — 106.5, $O2s$ -ионизации — 17.2, $O1s$ -ионизации — 0.16 (не показаны на рис. 8) и $H1s$ -ионизации — 107.6.

На рис. 9 представлены зависимости числа актов вторичной фотоионизации $N_{ioniz}^{phot}(r)$. Обратим внимание, что числа актов вторичной фотоионизации внутри сфер большого радиуса превосходят число фотонов, испущенных ионом железа (см. табл. 2). Основным источником актов вторичной фотоионизации являются фотоны жесткого ультрафиолетового диапазона, испускаемые атомами кислорода, которые были ионизированы электронным ударом. Фотон, испускаемый в результате $O2s-2p$ -перехода, имеет энергию 17.2 эВ, что достаточно для фотоионизации атома водорода и $2p$ -подоболочки атома кислорода. Средняя длина свободного пробега фотона такой энергии в воде равна 16.6 нм (см. рис. 2). В связи с этим такие фотоны с большой вероятностью будут поглощены недалеко от испускающих

их атомов кислорода, а вызванное ими число актов вторичной фотоионизации будет равно числу актов $O2s$ -ионизации электронным ударом.

Радиусы насыщения R_{sat}^{phot} и числа актов фотоионизации $N_{ioniz}^{phot}(R_{sat}^{phot})$ приведены в табл. 2. В случае распада вакансий в $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома Fe число актов вторичной фотоионизации достигает полного насыщения внутри зоны взаимодействия. В случае распада $1s$ -вакансии на первом шаге каскада ион железа с большой вероятностью излучает $1s$ - $2p_{1/2}$ - или $1s$ - $2p_{3/2}$ -фотон с энергией 6399 или 6411 эВ соответственно. Средняя длина свободного пробега таких фотонов в воде составляет примерно 530 мкм (рис. 2), что в 53 раза больше радиуса зоны взаимодействия. Поэтому такие фотоны с наибольшей вероятностью будут поглощены за пределами рассматриваемой нами зоны. В связи с этим отметим, что насыщение числа актов вторичной фотоионизации N_{ioniz}^{phot} , наблюдаемое на рис. 9 для случая $Fe1s^{-1}$ -распада, носит лишь локальный характер.

На рис. 10 представлены энергии $E_{abs}^{el}(r)$ и $E_{abs}^{phot}(r)$, поглощенные атомами кислорода и водорода внутри сферического объема радиуса r в результате процессов ионизации электронным ударом и фотоионизации. Определенные из этих зависимостей значения энергий $E_{abs}^{el}(R_{sat})$ и $E_{abs}^{phot}(R_{sat})$, поглощенных внутри сфер, в которых достигают насыщения числа актов ионизации электронным ударом N_{ioniz}^{el} и фотоионизации N_{ioniz}^{phot} , приведены в табл. 2.

Во многих случаях представляет интерес пространственное распределение поглощенной дозы вблизи радиосенсибилизирующего агента на нанометровом масштабе. Определим локальную поглощенную дозу следующим образом:

$$D(r_i) = \frac{\Delta E_{abs}^{el+phot}(r_i)}{\rho \Delta V(r_i)}, \quad (21)$$

где $E_{abs}^{el+phot}(r_i) = E_{abs}^{el}(r_i) + E_{abs}^{phot}(r_i)$ — энергия, поглощенная внутри i -го шарового слоя за счет вторичных процессов ионизации электронным ударом и фотоионизации, $\rho \Delta V(r_i)$ — масса i -го шарового слоя, заполненного водой. Отметим, что для расчета поглощенной дозы (21) зона взаимодействия была разбита на слои толщиной $\Delta r = 1$ нм.

Рассчитанные зависимости поглощенной дозы $D(r)$ при распадах вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа представлены на рис. 11. В случае распада $Fe1s$ -вакансии поглощенная доза (21) убывает от $2.1 \cdot 10^5$ Гр при $r = 1$ нм до 2.4 Гр при $r = 100$ нм. Также на рис. 11 для сравнения представлена зависимость поглощенной дозы

от расстояния от центра наночастицы золота диаметром 20 нм (кружки), облучаемой рентгеновскими фотонами, полученная в результате моделирования методом Монте-Карло [56]. Как можно видеть, при r от 10 до 24 нм поглощенная доза в случае распада $Fe1s$ -вакансии даже несколько превышает поглощенную дозу в случае облучения золотой наночастицы.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом Монте-Карло проведено моделирование процессов вторичной ионизации воды, порожденных каскадными распадами внутренних вакансий в атоме железа, помещенном в воду. Рассчитаны спектры электронов и фотонов, испускаемых в ходе распада вакансий в $1s$ -, $2s$ -, $2p_{1/2}$ - и $2p_{3/2}$ -подоболочках атома железа. Рассчитаны зависимости числа актов вторичной ионизации электронным ударом и числа актов вторичной фотоионизации от радиуса сферы, внутри которой они происходят. Определены зависимости поглощенной дозы в воде от расстояния от атома железа. Результаты, полученные в работе, могут быть использованы в задачах оже-терапии при использовании в качестве источника оже-электронов соединений или наночастиц на основе железа.

Финансирование. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда N 23-22-00222, <https://rscf.ru/project/23-22-00222/>.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Ku, V. J. Facca, Z. Cai, and R. M. Reilly, EJNMMI Radiopharm. Chem. **4**, 27 (2019); DOI: <https://doi.org/10.1186/s41181-019-0075-2>
2. Y. Liu, P. Zhang, F. Li, X. Jin, J. Li, W. Chen, and Q. Li, Theranostics **8**, 1824 (2018); DOI: <https://doi.org/10.7150/thno.22172>
3. A. P. Chaynikov, A. G. Kochur, A. I. Dudenko, I. D. Petrov, and V. A. Yavna, Phys. Scr. **98**, 025406 (2023); DOI: <https://doi.org/10.1088/1402-4896/acb407>
4. А. П. Чайников, А. Г. Кочур, А. И. Дуденко, В. А. Явна, Опт. и спектр. **131**, 563 (2023); DOI: <https://doi.org/10.21883/OS.2023.04.55563>
5. T. A. Carlson and M. O. Krause, Phys. Rev. **137**, A1655 (1965); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.137.A1655>

6. M. O. Krause, M. L. Vestal, W. H. Johnston, and T. A. Carlson, *Phys. Rev.* **133**, A385 (1964); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.133.A385>
7. M. O. Krause and T. A. Carlson, *Phys. Rev.* **149**, 52 (1966); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.149.52>
8. T. Mukoyama, T. Tonuma, A. Yagishita, H. Shibata, T. Koizumi, T. Matsuo, K. Shima, and H. Tawara, *J. Phys. B At. Mol. Phys.* **20**, 4453 (1987); DOI: <https://doi.org/10.1088/0022-3700/20/17/023>
9. M. N. Mirakhmedov and E. S. Parilis, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **21**, 795 (1988); DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/21/5/010>
10. A. El-Shemi, Y. Lofty, and G. Zschornack, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 237 (1997); DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/30/2/017>
11. V. L. Jacobs, J. Davis, B. F. Rozsnyai, and J. W. Cooper, *Phys. Rev. A* **21**, 1917 (1980); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.21.1917>
12. A. G. Kochur, A. I. Dudenko, V. L. Sukhorukov, and I. D. Petrov, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **27**, 1709 (1994); DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/27/9/011>
13. A. G. Kochur, V. L. Sukhorukov, A. I. Dudenko, and P. V. Demekhin, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 387 (1995); DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/28/3/010>
14. G. Omar and Y. Hahn, *Phys. Rev. A* **44**, 483 (1991); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.44.483>
15. G. Omar and Y. Hahn, *Z. Phys. D Atoms, Mol. Clust.* **25**, 31 (1992); DOI: <https://doi.org/10.1007/BF01437517>
16. G. Omar and Y. Hahn, *Z. Phys. D Atoms, Mol. Clust.* **25**, 41 (1992); DOI: <https://doi.org/10.1007/BF01437518>
17. V. Jonauskas, R. Karazija, and S. Kučas, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **107**, 147 (2000); DOI: [https://doi.org/10.1016/S0368-2048\(00\)00096-7](https://doi.org/10.1016/S0368-2048(00)00096-7)
18. V. Jonauskas, L. Partanen, S. Kučas, R. Karazija, M. Huttula, S. Aksela, and H. Aksela, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **36**, 4403 (2003); DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-4075/36/22/003>
19. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, A. I. Dudenko, and V. A. Yavna, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **286**, 108200 (2022); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2022.108200>
20. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *Eur. Phys. J. D* **73**, 80 (2019); DOI: <https://doi.org/10.1140/epjd/e2019-90185-2>
21. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **238**, 146863 (2020); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2019.05.012>
22. A. P. Chaynikov, A. G. Kochur, and V. A. Yavna, *Radiat. Eff. Defects Solids* **177**, 814 (2022); DOI: <https://doi.org/10.1080/10420150.2022.2082296>
23. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *Eur. Phys. J. D* **71**, 282 (2017); DOI: <https://doi.org/10.1140/epjd/e2017-80194-6>
24. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *Appl. Radiat. Isot.* **160**, 109144 (2020); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109144>
25. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **252**, 147111 (2021); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2021.147111>
26. A. G. Kochur, A. P. Chaynikov, and V. A. Yavna, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **256**, 147171 (2022); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2022.147171>
27. A. P. Chaynikov, A. G. Kochur, and V. A. Yavna, *Radiat. Eff. Defects Solids* **178**, 820 (2023); DOI: <https://doi.org/10.1080/10420150.2023.2185890>
28. V. G. Yarzhemsky and A. Sgamellotti, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **125**, 13 (2002); DOI: [https://doi.org/10.1016/S0368-2048\(02\)00042-7](https://doi.org/10.1016/S0368-2048(02)00042-7)
29. A. G. Kochur, A. I. Dudenko, I. D. Petrov, and V. F. Demekhin, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **156–158**, 78 (2007); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2006.11.033>
30. А. Г. Кочур, *Процессы распада вакансий в глубоких электронных оболочках*, Дисс. докт. физ.-мат. наук, Ростов-на-Дону (1997).
31. R. Kau, I. D. Petrov, V. L. Sukhorukov, and H. Hotop, *Z. Phys. D Atoms, Mol. Clust.* **39**, 267 (1997); DOI: <https://doi.org/10.1007/s004600050137>
32. R. Karazija, *Sums of Atomic Quantities and Mean Characteristics of Spectra*, Mokslas, Vilnius (1991).
33. S. Kučas and R. Karazija, *Phys. Scr.* **47**, 754 (1993); DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-8949/47/6/012>
34. A. P. Chaynikov, A. G. Kochur, A. I. Dudenko, and V. A. Yavna, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **302**, 108561 (2023); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2023.108561>
35. А. Ф. Аккерман, *Моделирование траекторий заряженных частиц в веществе*, Энергоатомиздат, Москва (1991).

36. J. H. Scofield, *Theoretical Photoionization Cross Sections from 1 to 1500 keV*, Lawrence Livermore National Laboratory (1973).
37. M. B. Trzhaskovskaya and V. G. Yarzhemsky, *At. Data Nucl. Data Tables* **119**, 99 (2018); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.adt.2017.04.003>
38. J. J. Yeh and I. Lindau, *At. Data Nucl. Data Tables* **32**, 1 (1985); DOI: [https://doi.org/10.1016/0092-640X\(85\)90016-6](https://doi.org/10.1016/0092-640X(85)90016-6)
39. M. J. Berger, J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. Chang, J. S. Coursey, R. Sukumar, D. S. Zucker, and K. Olsen, *NIST Standard Reference Database 8 (XGAM)*, NIST, PML, Radiation Physics Division (2010); DOI: <https://dx.doi.org/10.18434/T48G6X>
40. И. И. Собоelman, *Введение в теорию атомных спектров*, Наука, Москва (1977) [I. I. Sobelman, *Introduction to the Theory of Atomic Spectra*, Elsevier (1972); DOI: <https://doi.org/10.1016/C2013-0-02394-8>]
41. A. Jablonski, F. Salvat, C. J. Powell, *NIST Electron Elastic-Scattering Cross-Section Database - Version 3.2*, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (2010); DOI: <https://dx.doi.org/10.18434/T4NK50>
42. Y.-K. Kim and M. E. Rudd, *Phys. Rev. A* **50**, 3954 (1994); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.50.3954>
43. M. B. Shah, D. S. Elliott, and H. B. Gilbody, *J. Phys. B At. Mol. Phys.* **20**, 3501 (1987); DOI: <https://dx.doi.org/10.1088/0022-3700/20/14/022>
44. Y.-K. Kim and J.-P. Desclaux, *Phys. Rev. A* **66**, 012708 (2002); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.66.012708>
45. W. R. Thompson, M. B. Shah, and H. B. Gilbody, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 1321 (1995); DOI: <https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/28/7/023>
46. E. Brook, M. F. A. Harrison, and A. C. H. Smith, *J. Phys. B At. Mol. Phys.* **11**, 3115 (1978); DOI: <https://dx.doi.org/10.1088/0022-3700/11/17/021>
47. W. Hwang, Y.-K. Kim, and M. E. Rudd, *J. Chem. Phys.* **104**, 2956 (1996); DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.471116>
48. M. A. Bolorizadeh and M. E. Rudd, *Phys. Rev. A* **33**, 882 (1986); DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.33.882>
49. H. Shinotsuka, S. Tanuma, and C. Powell, *Surf. Interface Anal.* **54**, 534 (2022); DOI: <https://doi.org/10.1002/sia.7064>
50. N. Sinha and B. Antony, *J. Phys. Chem. B* **125**, 5479 (2021); DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c10781>
51. Z. Tan, Y. Xia, M. Zhao, and X. Liu, *Radiat. Environ. Biophys.* **45**, 135 (2006); DOI: <https://doi.org/10.1007/s00411-006-0049-0>
52. A. Akkerman and E. Akkerman, *J. Appl. Phys.* **86**, 5809 (1999); DOI: <https://doi.org/10.1063/1.371597>
53. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Курс теоретической физики. Том III. Квантовая механика (нерелятивистская теория)*, ФИЗМАТЛИТ, Москва (2004).
54. Z. Francis, S. Incerti, M. Karamitros, H. N. Tran, and C. Villagrasa, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B* **269**, 2307 (2011); DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.02.031>
55. M. J. Berger, J. S. Coursey, M. A. Zucker, and J. Chang, *NIST SRD 124: ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3)*, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (2005); DOI: <https://dx.doi.org/10.18434/T4NC7P>
56. K. T. Butterworth, S. J. McMahon, F. J. Currell, and K. M. Prise, *Nanoscale* **4**, 4830 (2012); DOI: <https://doi.org/10.1039/C2NR31227A>