

低能电子在水介质中的输运过程*

马云志^{1,2} 曹天光² 卓益忠^{2,3}

1(山西师范大学物理系 临汾 041004)

2(中国原子能科学研究院 北京 102413)

3(兰州重离子加速器国家实验室原子核理论中心 兰州 730000)

摘要 考虑到低能电子(能量下限为 1eV)在水中输运时的电离,激发,俘获以及超激发引起的自电离等非弹性散射机制,并且考虑到 OH[·], H[·] 等自由基的产生和分布,运用 Monte Carlo 方法模拟了电子在水中输运的径迹结构,揭示了电子在低能情况下输运时单条轨道的空间分布结构特点(云团,团点和短径迹等空间分布实体)和包含在大量轨道中的径迹结构的统计性质,并通过对比截止能量取 30 和 1eV 两种情况,分析了 30eV 以下的低能电子的作用。

关键词 Monte Carlo 方法 径迹结构 低能电子

1 引言

在重离子辐射导致 DNA 损伤的研究中,人们一直忽略低能电子的作用。然而,近来的一些实验表明:大量的低能电子(3—20eV)通过共振机制导致 DNA 的双链断裂损伤和单链断裂损伤^[1]。这引起了人们对低能电子辐射导致生物介质损伤机制的兴趣。

低能电子辐射的重要性来自两个方面。一是高能原初粒子在生物介质中产生的低能次级电子是大量的(约 $5 \times 10^4/\text{MeV}$);二是低能电子的能量主要分布在 1—30eV 之间,它们与介质有很大的反应截面,容易导致生物学效应。因此,对于任何辐射来说,其相当部分能量都是通过低能次级电子来沉积在介质中的。

就物理机制而言,低能电子在生物介质(水)中的输运有着不同于高能辐射输运的特点。首先,对于低能电子,介质不能再被看作是连续介质。因而,在低能情况下不能简单套用连续介质的方法和结论。对这一情况的研究我们采用 Monte Carlo 模拟的径迹结构方法。其次,低能电子能量沉积的分布将

更加弥散,例如用于计算平均射程的统计公式将不再适用。

因此,对于低能电子的输运过程的研究是有重要意义的。然而,以前的研究大都没有重视低能电子的作用,而是把能量截断在几个 keV 到 10eV^[2]。本工作着重研究 1—30eV 低能电子在生物介质(水)中的输运机制,运用径迹结构方法模拟了电子在生物介质中的输运过程,分析了低能电子导致生物损伤的重要性。我们选择的模拟介质是水。这是因为水是大多数生物细胞的主要物质,占细胞鲜重的 80%—90%,且绝大部分以游离态水的形式存在。水的密度选为 $1\text{g}/\text{cm}^3$,据此对辐射粒子的自由程抽样。但是,作为模拟程序输入数据的液态水的原子分子截面数据还比较缺乏,虽然近来已经有了一些这方面的理论计算^[3,4],但这些计算选用的参数过多,还有许多不确定性,所以在本文中我们仍用汽态水的截面来代替液态水的截面。

2 物理机制与截面数据

电子在水中输运的基本物理过程是发生在入射

电子与介质电子之间的静电相互作用. 当快电子在水分子附近通过时, 它会在 10^{-18} — 10^{-17} s 的时间内与介质分子的核外电子相互排斥, 发生动量的转移和/或能量的传递. 如果当入射电子与水分子比较靠近, 传递的能量 E 比较多 (E 大于水分子的第一电离能), 这个能量把核外电子“推出”水分子, 这时发生的是电离, 多余的能量转化为次级电子的动能. 如果当入射电子与水分子比较远离, 传递的能量 E 比较少 (E 小于水分子的第一电离能), 这个能量不能把核外电子“推出”水分子, 但可以把电子从基态“推到”激发态, 这时发生的是激发. 一个入射到介质中的电子在它的径迹中可以电离、激发许多分子, 它的能量也就沉积在介质中, 呈现出很不均匀的空间分布, 这种线性分布由电子的传能线密度 (LET) 决定.

辐射的能量沉积主要是通过非弹性散射完成的, 但是, 弹性散射也不能忽略. 虽然不损失能量, 但弹性散射能够影响电子径迹的结构和分布. 本工作使用的总截面和弹性散射截面采用 IAEA 推荐的计算和实验结果^[5-7] (见图 1).

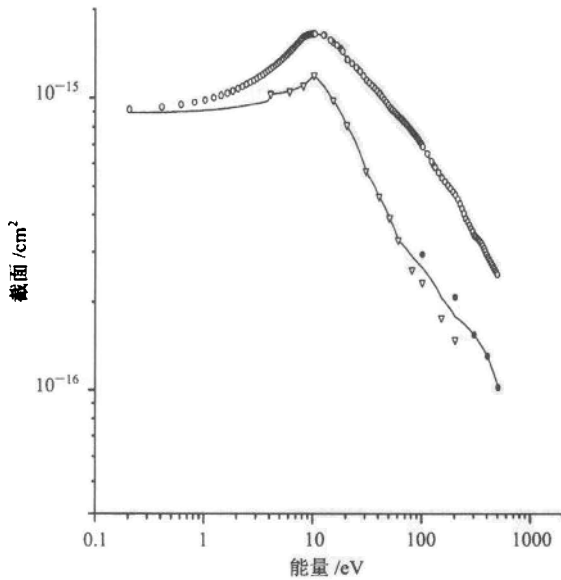


图 1 总散射截面(上)和弹性散射截面(下)

图中曲线是根据实验数据插值得到的: Danjo, 文献[6];

● Jain, 文献[7]; ○ Nishimura, 文献[5].

我们考虑的非弹性反应包括电离、激发(包括分解)和俘获, 它们是辐射输运中主要的能量囤积渠道. 在具体的工作中, 由于不同能量区间的反应类型不同, 把能量区间分成 3 个部分 (1—6eV, 6—12.6eV 和 12.6—2000eV). 下面讨论这种分段的原因、原则和低能电子在每个能量区间内的输运机制

(按能量减少的顺序):

(1) 2000—12.6eV: 该区间的下限 12.6eV 是水分子电离阈值(这也是选择 12.6 为分界点的原因). 在该区域内, 我们考虑弹性散射、电离和激发.

就电离而言, 液态水的电离产物包括 $H_2O^+ - e$ 对, OH^+ , H^+ , O^{++} 和 H_2^+ , 但是产生这些离子的作用截面有较大的差异. 由图 2 可见, 相对 $H_2O^+ - e$ 离子对而言, OH^+ , H^+ 是不可忽略的. 因而, 在我们的 Monte Carlo 模拟中, 考虑了 OH^+ , H^+ 自由基的产生和分布(但没有跟踪).

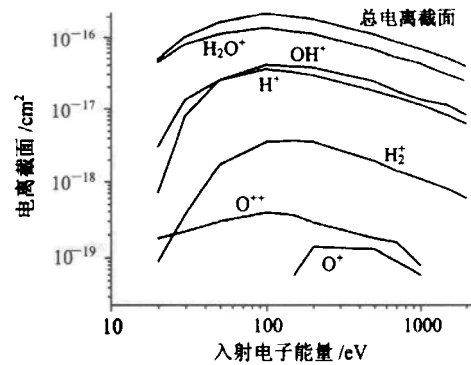


图 2 总电离截面和各种离子的部分电离截面
数据来源于文献[11]的表 4.

对于产生 $H_2O^+ - e$ 离子对的直接电离情形, 细分到 5 个子壳层 $1b_1, 2a_1, 1b_2, 1a_1$ 和 $O1s$. 它们的截面是通过不同的 $N(1, 2, 3, 4$ 和 $5)$ 积分 Mott 公式得到的,

$$\frac{d\sigma}{dE} = \frac{4\pi a_0^2 R^2}{T} \sum_i N_i \left[\frac{1}{Q_i^2} + \frac{1}{(T-E)^2} + \frac{1}{Q(T-E)} \right], \quad (1)$$

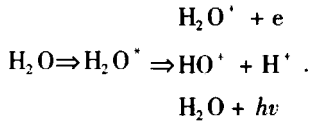
这里 E 为次级电子的出射能量, T 为入射粒子的能量, $Q_i = U_i + E$ 为能量转移, U_i 为第 i 壳层的束缚能, N_i 为第 i 壳层的电子数目. 但是, 最内层的 $O1s$ 层被电离的俄歇效应已经略去, 因为它的截面和 O^{++} , H_2^+ 离子的截面有相同的数量级, 都比较小(见图 2). 至于次级电子的出射能量由对上述 Mott 公式抽样得出, 但是, Mott 公式不适合低于 500eV 的情形, 所以, 对于 500eV 以下的电子直接对 Bolorizadeh 和 Rudd^[8] 的实验数据抽样.

激发分为电子激发、振动激发和转动激发. 但由于后两种形式的激发导致很小的能量损失 ($< 1eV$), 在 6eV 以上忽略它们, 而仅仅考虑电子激发的贡献. 电子激发的截面, 根据 Bethe 的理论, 由下面的公式并选用适当的参数 ($M_{inel}^2 = 1.194$ 和 c_{inel})

= 8.2eV) 得到

$$\sigma_{exc} = \frac{4\pi a_0^2 R}{T} M^2 \ln\left(\frac{T}{c_{exc}}\right), \quad T = 1/2 m_e v^2, \quad (2)$$

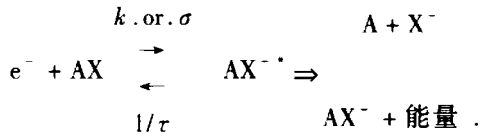
这里 $a_0 = 0.529 \times 10^{-8}$ cm 是波尔半径, $R = 13.6$ eV 是里德堡能量, M^2 是振子强度, c 是参数. 我们还考虑了所谓的超激发态和自电离. 当激发过程中, 能量的转移大于第一电离能时, 就生成不稳定的超激发态. 超激发态可能以多种方式退激:



由此可知, 激发效率小于 1; 这个过程将增加电离的贡献.

(2) 12.6—6eV: 在这个区间里, 弹性散射、电子激发和俘获是重要的. 前两种过程不论是截面还是能量损失都与 12.6—2000eV 区间采用同样的公式和方法. 惟一的不同是没有超激发和自电离的情况.

在电子俘获的过程中, 低能电子与水分子结合, 形成不稳定的负离子状态 AX^{-*} . AX^{-*} 可以由如下 3 个相互竞争的渠道分解^[9]



俘获反应的截面在 6—12.6eV 区间有一个峰, 但具体的分布并不清楚, 所以采取了 Ness 和 Robson^[10] 的简化的常数截面模型(见表 1). 在这个模型中, 电子激发和俘获的阈值和能量损失都是 6eV, 这也是选用 6eV 作为分界点的原因.

(3) 1—6eV: 在这里, 考虑弹性散射和振动激发. 振动激发损失较少的能量 (< 1eV), 但对于 1—6eV 间的电子来说, 是不能忽略的. 关于振动激发的截面, 我们仍然采用 Ness 和 Robson^[10] 的建议(见表 1).

表 1 常数截面模型^[9]

过程	阈值/eV	截面/Å ²
振动激发	0.198	0.2
	0.466	0.6
电子激发	6	1.0
俘获	6	0.06

3 结果与讨论

3.1 单条轨迹的空间分布

水的辐射分解过程就是生成离子、次级电子和

激发分子的过程. 由于处于液态的水密度比较高, 并且由于水分子自身的笼盒效应, 生成的那些离子、次级电子和激发分子都是处于一定空间区域内, 根据吸收能量的不同分别称作云团、团点和短径迹. 它们描述了辐射穿过介质时形成的初级活性粒子的初始非均匀分布, 其区别在于被吸收的次级电子的能量范围不同. 云团吸收次级电子的能量范围是 6—100eV, 团点 100—500eV, 短径迹 500—5000eV. 图 3 是本程序给出的一个例子, 图中标出了分别形成三层结构的能量, 其中云团的体积是 2.6nm³, 团点的体积是 16.9nm³, 图中坐标轴的单位是 Å.

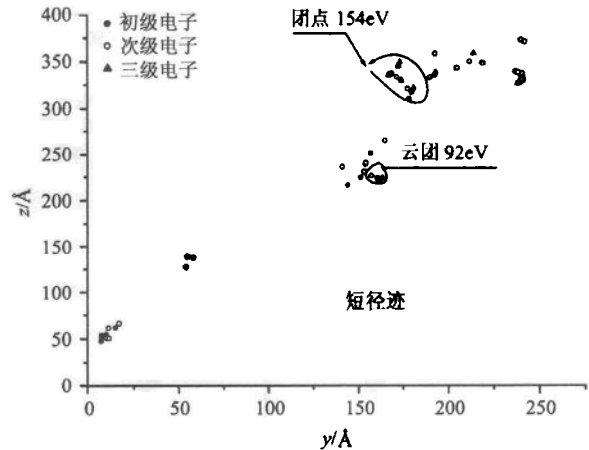


图 3 1000eV 电子径迹中的云团, 团点和短径迹

此外, 单条径迹结构还显示出了分岔, 其中可能包含一些分形特征和自相似的特征.

3.2 大量轨道的统计性质

利用 Monte Carlo 模拟程序模拟了 10000 个电子的径迹结构, 给出了电子在水中输运的径向剂量分布、射程分布. 以往的模拟程序都把能量低于 10eV, 甚至 30eV 的电子忽略. 但是, 我们通过对模拟知道, 对于入射能量为 1keV 的电子来说, 小于 30eV 电子的能量约占总能量的 17.3%, 小于 10eV 电子的能量约占总能量的 11.5%, 也就是说, 由于截断能量取 30eV, 约 17.3% 的能量的效应被略掉了, 由于截断能量取 10eV, 约 11.5% 的能量的效应被略掉了. 我们尝试了低能电子的输运行为, 并在程序中把截断能量降低到 1eV, 而此时忽略的能量仅约占总能量的 1.6%.

从本程序给出的径迹结构来看(见图 4(a), (b), (c)), 那些能量高于 30eV 的电子(原初电子、次级电子)所起的作用主要是支撑起径迹结构的骨架, 它们影响径迹结构的长度和宽度, 尽可能把能量带

到更远的地方.而那些低于 30eV 的低能电子所起的作用是充实径迹结构,它们影响径迹结构的密度,使能量的沉积更加弥散.

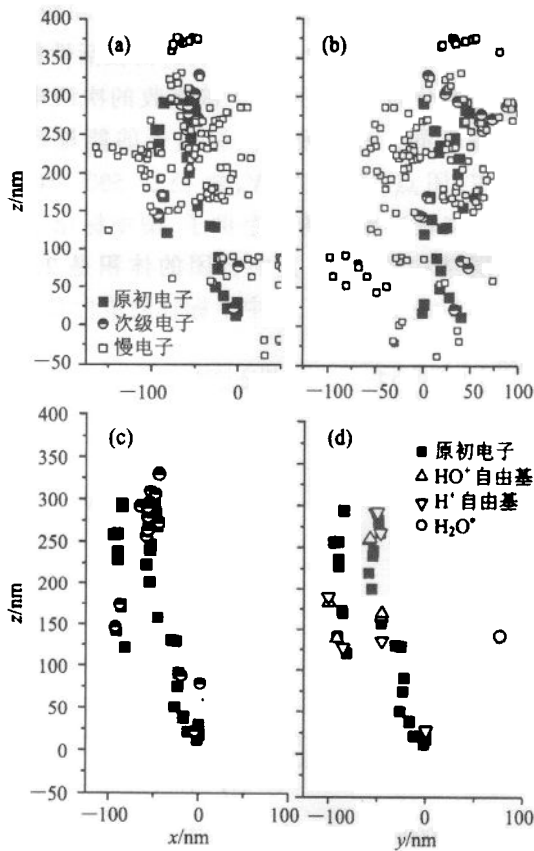


图 4 1keV 电子在水蒸气中的径迹结构

正是由于这些低能量电子的作用,截断能量取 1 和 30eV 时的径向剂量和平均射程都呈现出不同的性质.

图 5 给出了截断能量取 1 和 30eV 时的剂量比值随半径的变化曲线.由图可知,当截断能量取 1eV 时,剂量分布比截断能量取 30eV 的剂量平均大

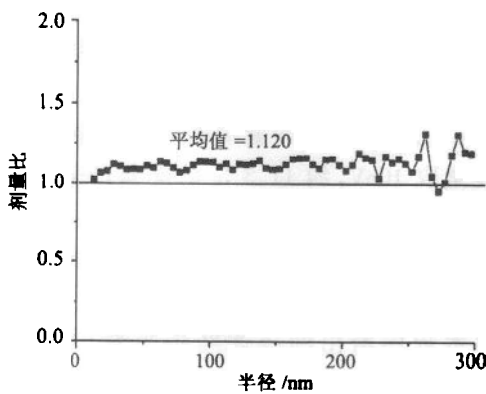


图 5 截断能量分别取 1eV 和 30eV 时的剂量之比随半径的变化

12%.这是由于考虑了 30eV 以下电子的缘故.这部分电子虽然能量低,但是数目是大量的,能量占入射电子总能量的 17.3%,它们均匀地填充介质,使剂量有所提高.

由于离子在介质中运输的随机本性,离子的射程不可能是确定性的,而是一个随机变量,它遵从一个分布.图 6 给出了 50—1000eV 电子的射程分布,由图可知,每个能量的射程都有一个最可几值,并有一个宽度.宽度的大小代表了随机性的大小.

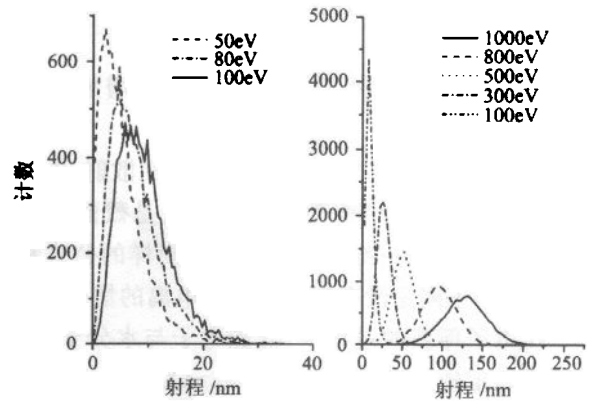


图 6 射程的分布

3.3 间接作用和自由基

电离辐射导致生物介质损伤的机制不仅包括电离辐射及其次级电子直接作用在生物大分子上的物理性直接损伤,而且也包括辐射离解水分子产生自由基的化学性间接损伤.本模型考虑了自由基的产生、数量和分布,这对于分析和评估电离辐射的损伤程度有一定的参考作用.我们模拟了不同能量的电子的径迹,并记录了 HO^\bullet , H^\bullet 和 $\text{H}_2\text{O}^\bullet$ 自由基的数量和分布,见图 4(d).由图可知,自由基的数量与电子的入射能量近似地成正比例关系.

4 结论和展望

近年来低能离子辐射导致生物损伤的问题越来越引起人们的重视,本文运用径迹结构方法研究了低能电子在水介质中运输的一些特点.

1) 从每一个电子的径迹结构看,电子的次级粒子的初始分布是不均匀的,呈现出多层次的空间结构,根据吸收次级电子能量的不同,分别形成云团、团点和短径迹,研究这些结构内部的特点有着重要意义;2) 10000 条径迹的统计结果说明次级低能电子数量极大,在空间上分布比较弥散,如果遇到生物

介质如 DNA,就可能与生物基元发生共振,导致生物介质损伤的机会比较多;3) 由于低能电子分布弥散,电子的射程呈现一个分布,并且这个分布很宽,所以连续介质时的公式就不再适用。

但是,10eV 以下弹性散射截面和总截面,我们是根据实验数据向低能外推得到的,没有实验的有力支持,其它截面采用了比较简化的常数截面模型,这些都能给我们的结果引入不确定性。此外,我们

还没有深入研究低能入射电子与水分子可能发生的共振机制。因此,低能离子辐射的实验和理论具有十分广阔的发展空间,我们的工作还有待于进一步地引向深入,还有着大量的工作要做。

感谢德国 GSF Herwig G. Paretzke 教授为我们提供质子输运程序 MC15。

参考文献 (References)

- 1 Badla Boudalffa, Pierre Cloutier, Darel Hunting et al. *Science.*, 2000, 287:1658
- 2 Kramer M, Kraft G. *Radiat. Environ. Biophys.*, 1994, 33:91
- 3 Uehara S, Toburen L H, Wilson W E et al. *Rad. Phys. Chem.*, 1998, 53:1
- 4 Michael Dingfelder, Mitio Inokuti, Herwig G. Paretzke. *Rad. Phys. Chem.*, 2000, 59:255
- 5 Nishimura. *J. Phys. Soc. Japan.*, 1988, 57:1951
- 6 Danjo. *J. Phys. Soc. Japan.*, 1985, 54:1224
- 7 Jain A K. *Phys. Rev.*, 1988, 37:2893
- 8 Bolorizadeh M A, Rudd M E. *Phys. Rev.*, 1985, A33:882
- 9 Hatano Y. *Radiat. Phys. Chem.*, 1989, 34:675
- 10 Ness K F, Robson R E. *Phys. Rev.*, 1987, A38:1446
- 11 Schutten J, Heer F J DE, Moustafa H R et al. *J. Chem. Phys.*, 1966, 44:3924

Low Energy Electron Transportation Process in Water Media

MA Yun-Zhi^{1,2} CAO Tian-Guang² ZHUO Yi-Zhong^{2,3}

1(Department of Physics, Shanxi Normal University, Linfen 041004, China)

2(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

3(Center of Theoretical Nuclear Physics, National Laboratory of Heavy Ion Accelerator, Lanzhou 730000, China)

Abstract The track structure of low energy electrons (with minimum energy of 1eV) in water as a media has been simulated with Monte Carlo method, taking into account inelastic processes such as ionization, excitation, attachment and auto-ionization caused by super-excitation, and the yield and distribution of some free radicals. The local energy deposit entities: spur, blob and short-track are obtained in any individual track yielded by our program, and radial dose distribution and range as statistical characteristics of 10,000 tracks are also presented. The role of low energy electrons in track structures is analyzed by contrasting with the characteristics of track structures with 1 and 30eV as cutoff energy.

Key words Monte Carlo method, track structure, low energy electron