

ИЗЛУЧЕНИЕ ПРИ ПОГЛОЩЕНИИ ПРОТОНОВ С ЭНЕРГИЕЙ 2 МэВ В РАЗЛИЧНЫХ МАТЕРИАЛАХ

© 2015 г. Д. А. Касатов^{1),2)}, А. Н. Макаров¹⁾, С. Ю. Таскаев^{1),2)*}, И. М. Щудло¹⁾

Поступила в редакцию 06.03.2015 г.

Для развития методики бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей создан и функционирует источник надтепловых (эпитепловых) нейтронов на основе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишенью. С целью оптимизации нейтроногенерирующей мишени проведено облучение протонным пучком различных конструкционных материалов. Представлены результаты измерения мощности дозы и спектра излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в исследуемых материалах и обоснование выбора тантала в качестве оптимального материала для изготовления подложки мишени.

DOI: 10.7868/S0044002715110070

1. ВВЕДЕНИЕ

Перспективной методикой лечения злокачественных опухолей является бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) [1], обеспечивающая избирательное уничтожение клеток опухоли путем предварительного накопления в них стабильного нерадиоактивного изотопа ^{10}B и последующего облучения нейтронами. В результате поглощения нейтрона бором происходит ядерная реакция с большим выделением энергии в клетках опухоли. Для лечения глубокоосидающих опухолей требуются интенсивные потоки эпитепловых нейтронов. Реализация пороговой реакции $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ при энергии протонов от 2 до 2.5 МэВ является наилучшим способом получения таких нейтронов. Взаимодействие протонов с ядрами лития, помимо генерации нейтронов, приводит также к заметному выходу γ -квантов с энергией 0.478 МэВ [2]. Для уменьшения этого нежелательного сопутствующего потока γ -квантов толщина нейтроногенерирующего литиевого слоя должна быть такой, чтобы протоны в нем замедлялись до энергии порога генерации нейтронов — 1.882 МэВ. Дальнейшее поглощение протонов должно осуществляться в веществе, в котором реакции (p, γ) , $(p, p'\gamma)$, $(p, n\gamma)$ и $(p, \alpha\gamma)$ не приводят к заметному выходу γ -квантов [3]. Целью работы является экспериментальное изучение излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в различных материалах для определения конструкционного материала подложки

нейтроногенерирующей мишени, обеспечивающего минимальный выход сопутствующего γ -излучения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Исследования проведены на ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией, предложенном и изготовленном для развития методики БНЗТ [4]. На ускорителе в длительном стабильном режиме получают протонный пучок диаметром 1 см, энергией

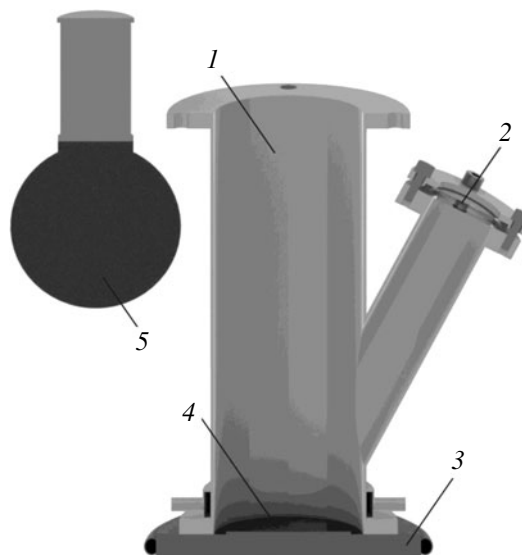


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — вакуумный объем, 2 — окно для наблюдения, 3 — охлаждаемое днище вакуумного объема, 4 — образец, 5 — сферическая ионизационная камера.

¹⁾Институт ядерной физики СО РАН, Новосибирск, Россия.

²⁾Новосибирский государственный университет, Россия.

* E-mail: taskaev@inp.nsk.su

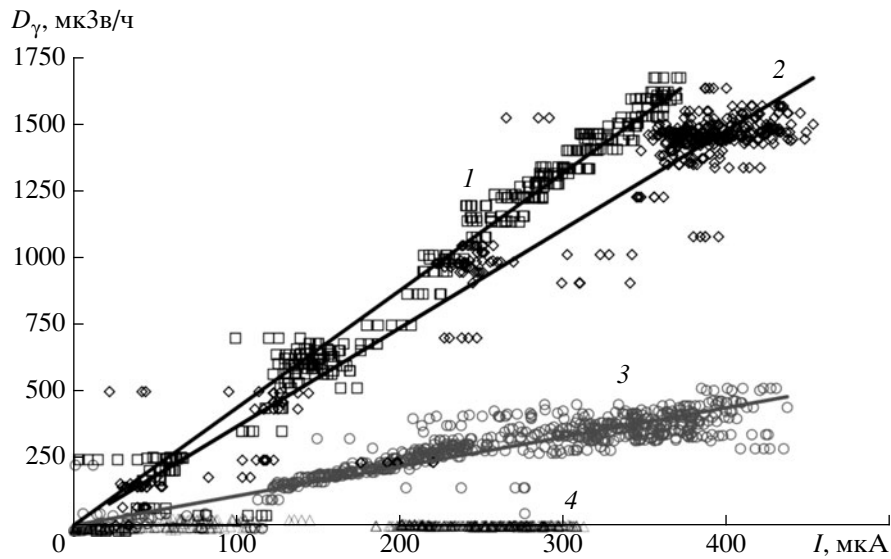


Рис. 2. Зависимость мощности дозы рентгеновского и γ -излучения от тока протонного пучка при облучении пучком ванадия (1, \square), титана (2, \diamond), нержавеющей стали (3, \circ) и тантала (4, \triangle).

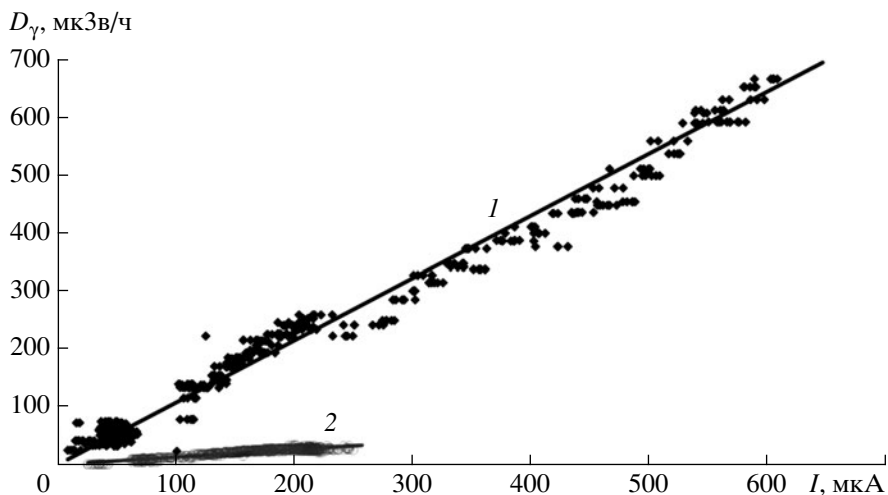


Рис. 3. Зависимость мощности дозы излучения от тока протонного пучка при облучении пучком нейтроногенерирующей мишени с напыленным на медную подложку мишени литием (1) и на подложку из чистой меди без напыления лития (2).

2 МэВ и током до 1.6 мА [5]. Пучок характеризуется высокой монохроматичностью энергии 0.1% и стабильностью тока 0.5%. Для проведения исследований нейтроногенерирующая мишень [6] была заменена на специально изготовленный вакуумный объем (рис. 1), состоящий из трубы из нержавеющей стали с внутренним диаметром 100 мм, толщиной стенки 2 мм, днища из медного диска толщиной 16 мм, охлаждаемого водой, и патрубка с кварцевым стеклом для наблюдения за образцом.

На днище вакуумного объема помещали различные материалы, изготовленные преимущественно в виде тонких дисков диаметром 95 мм,

и с помощью магнитной развертки равномерно облучали протонным пучком с энергией 2 МэВ и током до 500 мкА. Веб-камерой осуществляли наблюдение за состоянием поверхности образца и, в ряде случаев, по свечению образца — за равномерностью развертки пучка. Сферической ионизационной камерой, подобной описанной в работе [7], на расстоянии 25 см от центра образца измеряли мощность поглощенной дозы электромагнитного излучения, а дозиметром-радиометром ДКС-96 с блоком детектирования БДМН-96 на расстоянии 50 см — мощность дозы нейтронного излучения. Поскольку в показания ионизационной

Мощность поглощенной дозы γ -излучения при облучении материалов протонами с энергией 2 МэВ

Материал (массовое число)	Мощность дозы на единицу тока D_γ , мкЗв/(ч м ² мА)	Погрешность определения мощности дозы, %
Фторид лития	20 000	20
Фторид бария	6500	20
Слой лития толщиной 50 мкм на медной подложке	750	5
Графит	25	10
Алюминий (27)	150	5
Кремний (28)	23	2
Титан (48)	230	8
Ванадий (51)	270	4
Нержавеющая сталь 12Х18Н10Т	70	10
Медь (64)	90	5
Молибден (96)	<6	
Тантал (181)	<6	

камеры вносило вклад излучение от ускорителя, то для определения этого вклада использовали показания другой ионизационной камеры, расположенной на удалении от облучаемых образцов и регистрирующей тормозное излучение только от ускорителя [8]. На рис. 2 приведены зависимости мощности дозы рентгеновского и γ -излучения (с вычетом вклада излучения от ускорителя) от тока протонного пучка для разных образцов. Видно, что мощность дозы линейно растет с ростом тока.

Проводя линейную аппроксимацию данных методом наименьших квадратов (см. прямые на рис. 2), определяем для всех материалов величины мощности дозы излучения на единицу тока, они приведены в таблице. Также в таблице представлены значения погрешности определения мощности дозы, характеризующие разброс экспериментальных данных. Заметим, что данные для лития получены с использованием нейтроногенерирующей мишени [6]. Мощность дозы сначала была измерена без напыленного литиевого слоя — в этом случае протоны поглощались в медной подложке мишени, а затем с напыленным слоем чистого металлического лития толщиной 50 мкм (рис. 3) [9, 10]. Из таблицы видно, что поглощение протонов с энергией 2 МэВ в конструкционных материалах, особенно в молибдене или тантале, сопровождается заметно меньшим уровнем мощности дозы излучения, чем в литии.

Отдельно стоит обратить внимание на значительную мощность излучения из кристаллов фторида бария и фторида лития. Измерения мощности

дозы для исключения ошибки были продублированы гамма-детектором LB6500-3H-10 (Berthold Tech.). Данные кристаллы были подвергнуты облучению протонным пучком не потому, что рассматривались в качестве конструкционных материалов мишени, а для экспериментальной проверки возможности генерации мощного потока позитронов [11]. Известно, что при взаимодействии протона с фтором образуется ядро ^{20}Ne , которое распадается на α -частицу и ядро ^{16}O в возбужденном состоянии с энергией возбуждения 6.05 МэВ. Возбуждение снимается эмиссией электрон-позитронной пары. Данная реакция может быть записана как $^{19}\text{F}(p, \alpha e^+ e^-)^{16}\text{O}$; ее сечение достигает величины 0.2 бн при энергии протонов 2 МэВ. На рис. 4 представлен спектр γ -излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ во фториде бария, измеренный ВГО γ -спектрометром (сцинтиллятор диаметром 80 мм, высотой 100 мм), расположенным под вакуумным объемом, в нем отчетливо видны γ -кванты с энергией 511 кэВ, обусловленные аннигиляцией генерируемых позитронов. Данное свойство генерации мощного потока γ -квантов может быть использовано для диагностики тока или профиля тока протонного пучка, например, путем измерения мощности дозы γ -излучения при введении в пучок образца со фтором.

На рис. 5 приведены спектры γ -излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в конструкционных материалах, измеренные ВГО γ -спектрометром. Напомним, что поглощение протонов в литии приводит к генерации монохрома-

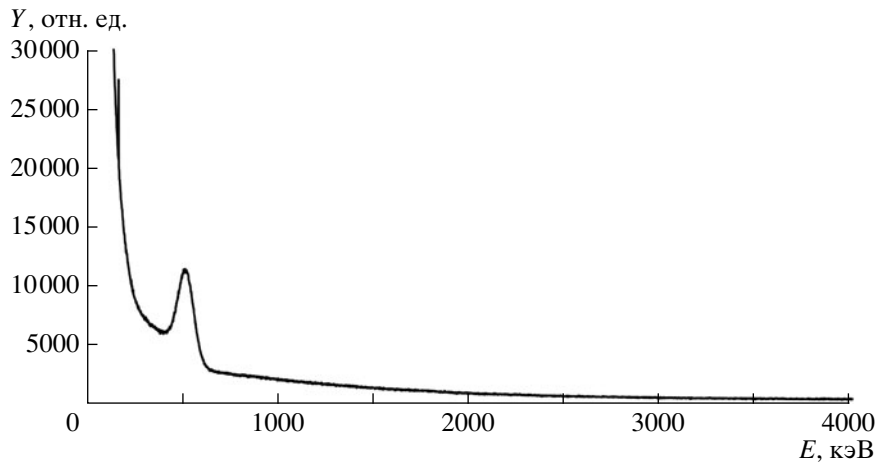


Рис. 4. Спектр γ -излучения при облучении фторида бария протонным пучком с энергией 2 МэВ.

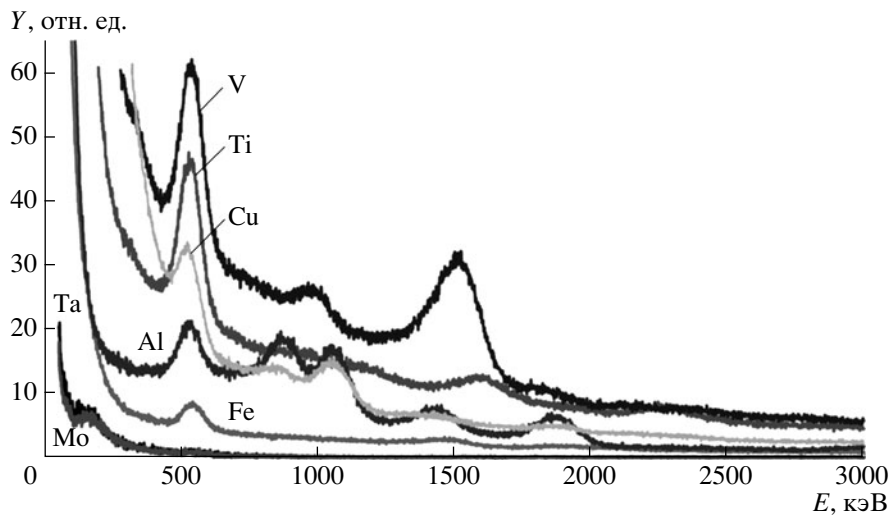


Рис. 5. Спектры γ -излучения материалов, облучаемых протонным пучком с энергией 2 МэВ: ванадий (V), титан (Ti), медь (Cu), алюминий (Al), нержавеющая сталь (Fe), тантал (Ta), молибден (Mo).

тического потока γ -квантов с энергией 478 кэВ — экспериментальные результаты приведены в работе [12]. На рис. 5 видно, что практически полностью отсутствует излучение из молибдена и тантала.

На рис. 6 приведены спектры остаточной активности графита, титана и фторида лития, на других материалах заметной активности не обнаружено. Определено, что активация графита обусловлена процессом $^{12}\text{C}(p, n)^{13}\text{C} \xrightarrow{\beta^+ (10 \text{ мин})} ^{13}\text{C}$, активация титана — поглощением протонов изотопами ^{46}Ti и ^{47}Ti с последующим β^+ -распадом ядер ^{47}V , ^{48}V и электронным захватом ^{48}V [13], активация фторида лития — наработкой радиоактивного изотопа ^7Be в результате реакции $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$. Активация титана протонным пучком может быть также использова-

на в диагностических целях для измерения перенесенного пучком заряда.

Обнаружено, что облучение 2-МэВ протонным пучком нержавеющей стали, титана и ванадия приводит к выходу нейтронов, облучение других материалов выходом нейтронов не сопровождается. Поглощенная мощность дозы измерена дозиметром-радиометром ДКС-96. Для ванадия она составила величину 7000 мкЗв/(ч м² мА), для нержавеющей стали — в 25 раз меньше. Генерация нейтронов подтверждается присутствием характерного сигнала детектора с литийсодержащим сцинтиллятором GS20 диаметром 18 мм, толщиной 4 мм (The Saint-Gobain Crystals, США), обусловленного реакцией $^6\text{Li} + n \rightarrow ^3\text{H} + \alpha + 4.785 \text{ МэВ}$ (каналы № 300–400 на рис. 7). На рис. 8 представлена зависимость скорости счета детектора в

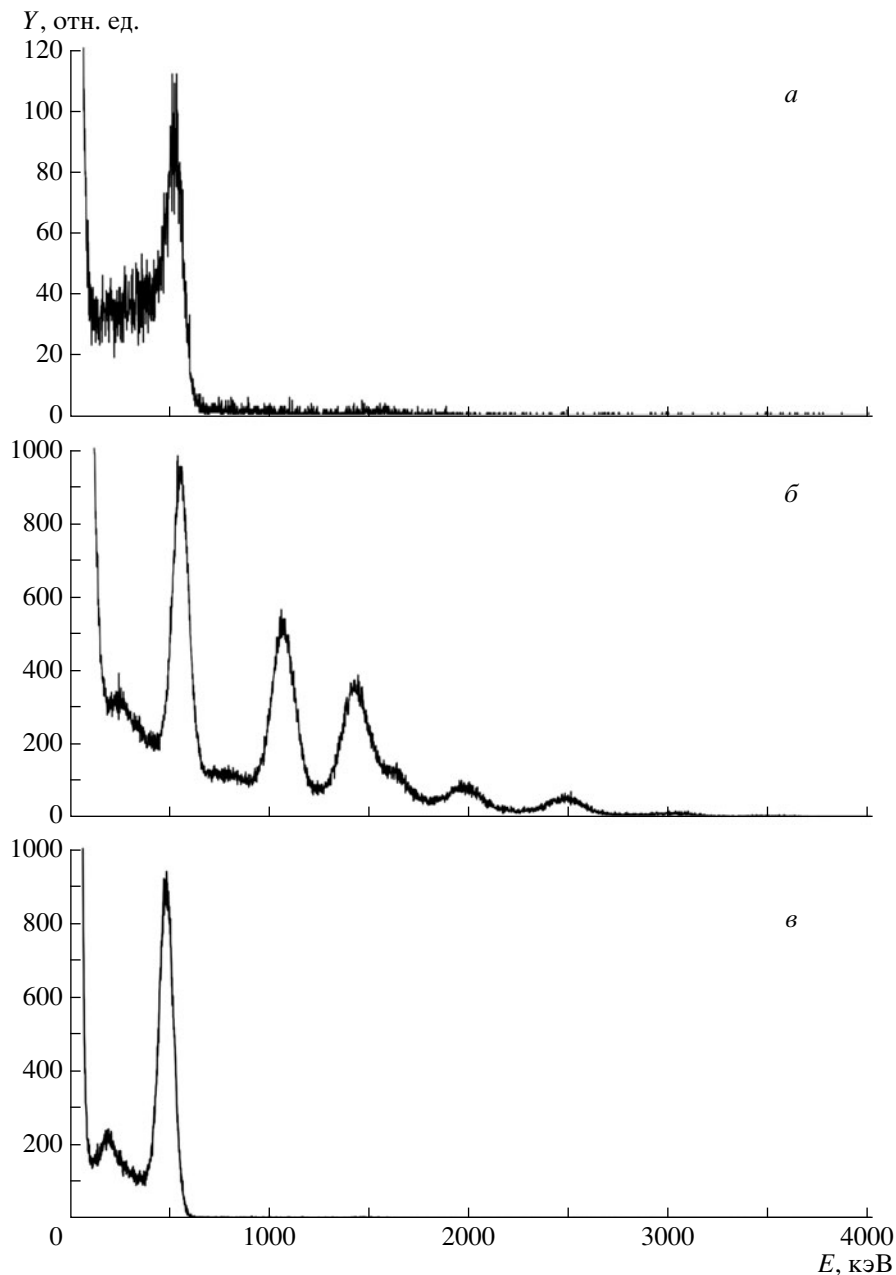


Рис. 6. Спектр γ -излучения остаточной активности графита (а), титана (б), фторида лития (в).

области этого нейтронного пика от энергии протонов. Полученные зависимости позволили определить, что генерация нейтронов в нержавеющей стали обусловлена реакцией $^{55}\text{Mn}(p, n)^{55}\text{Fe}$ (порог реакции 1.034 МэВ) из-за присутствия марганца в виде примеси, в титане — $^{49}\text{Ti}(p, n)^{49}\text{V}$ (порог реакции 1.43 МэВ) и в ванадии — $^{51}\text{V}(p, n)^{51}\text{Cr}$ (порог реакции 1.562 МэВ). Поскольку порог данных реакций существенно ниже порога реакции $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$, энергия генерируемых нейтронов выше энергии нейтронов, испускаемых литием. По этой причине применение данных конструкцион-

ных материалов — нержавеющей стали, титана и ванадия — в качестве подложки нейтроногенерирующей мишени нежелательно. Дело в том, что система формирования пучка эпитепловых нейтронов [14] оптимизирована на замедление нейтронов из реакции $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ и не обеспечит должного замедления быстрых нейтронов. Как следствие, при проведении терапии появится дополнительная нежелательная доза от быстрых нейтронов.

Таким образом, применение тантала или молибдена для изготовления подложки нейтроногенерирующей мишени обеспечивает минималь-

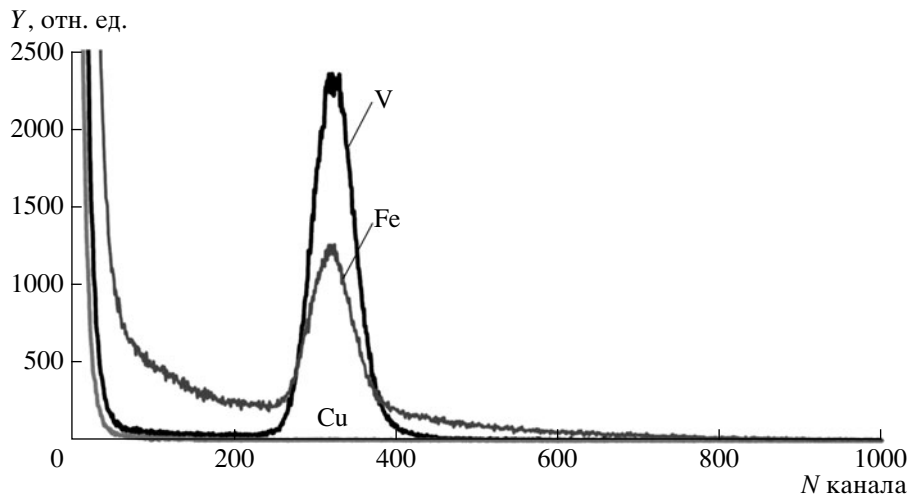


Рис. 7. Зависимость скорости счета нейтронного детектора от номера канала (энергии) при облучении протонами с энергией 2 МэВ меди (Cu), нержавеющей стали (Fe) и ванадия (V).

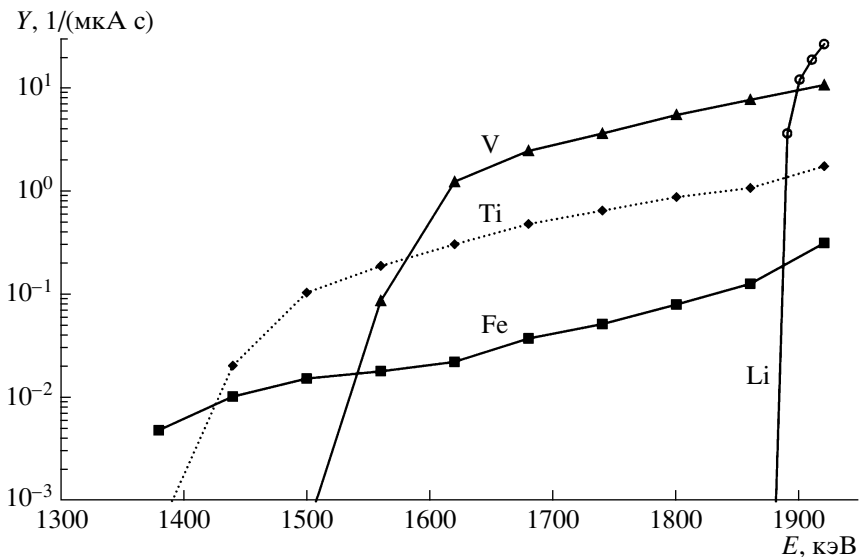


Рис. 8. Зависимость скорости счета детектора в области нейтронного пика от энергии протонов при их поглощении в ванадии (V), титане (Ti), нержавеющей стали (Fe) и фториде лития (Li).

ный уровень нежелательного γ -излучения, отсутствие нежелательного потока быстрых нейтронов и отсутствие активации материала. При выборе материала мишени необходимо также учесть его стойкость к радиационным повреждениям (блистерингу) при имплантации протонов. Поскольку торможение протонов в металле происходит практически по прямой, то все они останавливаются на одной глубине, происходит агломерация захваченных атомов газа, и поверхностный слой может деформироваться вплоть до образования блистеров (пластинчатые куполообразные вспучивания поверхностного слоя) и отслаивания чешуек из-за повышения внутреннего давления газа и боко-

вых напряжений сжатия. Блистеринг наблюдается в основном для металлов, плохо растворяющих водород, и к ним относится молибден [15]. Тантал же, наряду с ванадием и α -железом, как показано в работе [16], обладает максимальной стойкостью к блистерингу при поглощении в нем протонов с энергией 2 МэВ в том случае, когда температура металлов порядка 150°C , характерная для мишени при ее нагреве протонным пучком и охлаждении турбулентным потоком воды [6]. С учетом этих двух обстоятельств применение тантала для изготовления подложки нейтроногенерирующей мишени, на которую напыляется тонкий литиевый слой и в которой происходит поглощение протонов, является

наилучшим решением в ускорительном источнике эпитепловых нейтронов для БНЗТ.

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией проведено облучение протонным пучком образцов, изготовленных из лития, графита, фторида магния, фторида бария, алюминия, кремния, титана, ванадия, нержавеющей стали, меди, молибдена и тантала. Измерены мощность дозы и спектр рентгеновского и γ -излучения, мощность дозы нейтронного излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в материалах и спектр излучения остаточной активности. Зарегистрирована генерация нейтронов из лития, ванадия, нержавеющей стали и титана и активация лития, графита и титана. Определено, что поглощение протонов с энергией 2 МэВ в молибдене или тантале сопровождается минимальным уровнем мощности дозы рентгеновского и γ -излучения и не приводит к генерации быстрых нейтронов и к остаточной активности. С учетом ранее проведенных исследований блистеринга рекомендовано изготовить подложку литиевой нейтроногенерирующей мишени для БНЗТ из тантала, обеспечивающего минимальный поток нежелательного излучения и максимальную стойкость к радиационным повреждениям.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 14-32-00006) при поддержке Института ядерной физики СО РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Neutron Capture Therapy. Principles and Applications*, Ed. by W. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, and Y. Nakagawa (Springer, Heidelberg; New York; Dordrecht; London, 2012).
2. В. Н. Кононов, М. В. Боховко, О. Е. Кононов и др., Препринт ФЭИ-2643 (Обнинск, 1997).
3. A. Savidou, X. Aslanoglou, T. Paradellis, and M. Pilakouta, *Nucl. Instrum. Methods B* **152**, 12 (1999).
4. В. Ф. Баянов, В. Р. Белов, Е. Д. Бендер, *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods A* **413**, 397 (1998).
5. D. Kasatov, A. Kuznetsov, A. Makarov, I. Shchudlo, I. Sorokin, and S. Taskaev, *JINST* **9**, P12016 (2014).
6. В. Баянов, В. Белов, and S. Taskaev, *J. Phys.: Conf. Ser.* **41**, 460 (2006).
7. В. Г. Баркова, О. М. Корябкин, А. В. Репков, В. Я. Чудаев, в сб. *Труды 9-го Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц* (Дубна, 1985), т. 2, с. 318.
8. Д. А. Касатов, А. Н. Макаров, С. Ю. Таскаев, И. М. Щудло, Письма в ЖТФ **41** (3), 74 (2015) [*Tech. Phys. Lett.* **41**, 139 (2015)].
9. Б. Ф. Баянов, Е. В. Журов, С. Ю. Таскаев, ПТЭ, № 1, 160 (2008) [*Instrum. Exp. Tech.* **51**, 147 (2008)].
10. Б. Ф. Баянов, С. Ю. Таскаев, В. И. Ободников, Е. Г. Тишковский, ПТЭ, № 3, 119 (2008) [*Instrum. Exp. Tech.* **51**, 438 (2008)].
11. P. Farrell, V. Dudnikov, N. Guardala, *et al.*, in *Proceedings of the 7th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC-7)*, Knoxville, USA, 2002 (Pergamon, 2003), p. 47.
12. А. С. Кузнецов, Г. Н. Малышкин, А. Н. Макаров, И. Н. Сорокин, Ю. С. Суляев, С. Ю. Таскаев, Письма в ЖТФ **35** (8), 1 (2009) [*Tech. Phys. Lett.* **35**, 346 (2009)].
13. *Таблицы физических величин*, Справочник под ред. И. К. Кикоина (Атомиздат, Москва, 1976).
14. V. Aleynik, A. Bashkirtsev, V. Kanygin, D. Kasatov, A. Kuznetsov, A. Makarov, I. Schudlo, I. Sorokin, S. Taskaev, and M. Tiunov, *Appl. Radiat. Isot.* **88**, 177 (2014).
15. М. И. Гусева, Ю. В. Мартыненко, УФН **135**, 671 (1981) [*Sov. Phys. Usp.* **24**, 996 (1981)].
16. V. T. Astrelin, A. V. Burdakov, P. V. Bykov, *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **396**, 43 (2010).

RADIATION DURING THE ABSORPTION OF 2-MeV PROTONS IN DIFFERENT MATERIALS

D. A. Kasatov, A. N. Makarov, S. Yu. Taskaev, I. M. Shchudlo

For the development of Boron Neutron Capture Therapy of malignant tumors the source of epithermal neutrons based on a tandem accelerator with vacuum insulation and a lithium target was created and launched. In order to optimize a neutron producing target the irradiation of various construction materials with proton beam has been carried out. The paper presents the results of measurements of the dose rate and the radiation spectrum during the absorption of 2-MeV protons in the investigated materials and explains the selection of tantalum as the optimal material for the target substrate.