

На правах рукописи



Бикчурина Марина Игоревна

**ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРИРУЮЩИХ СВОЙСТВ
ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ**

1.3.18. Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Новосибирск – 2024

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук.

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ – доктор физико-математических наук
Таскаев Сергей Юрьевич

ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОППОНЕНТЫ:

ОКС Ефим Михайлович – доктор технических наук, профессор, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники», заведующий лабораторией плазменной электроники;

ШВЕЦОВ Валерий Николаевич – кандидат физико-математических наук, Международная межправительственная организация Объединенный институт ядерных исследований, начальник Отделения ядерной физики Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка;

ВЕДУЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ – Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук».

Защита диссертации состоится «24» сентября 2024 года в «14:00» часов на заседании диссертационного совета 24.1.162.02 на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук по адресу: 630090, г. Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 11.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук и на сайте <https://inp.nsk.su/obrazovanie/dissertatsionnye-sovety#24-1-162-02>.

Автореферат разослан «10» июля 2024 года.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор физико-математических наук,
профессор РАН



Лотов Константин
Владимирович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

Распространенность онкологических заболеваний неуклонно растет. Одним из перспективных подходов в лечении злокачественных опухолей рассматривается бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ). БНЗТ является формой бинарной радиотерапии, когда в клетках опухолей с помощью специальных фармпрепаратов накапливают стабильный изотоп бор-10, а затем облучают потоком тепловых нейтронов (0,5 эВ – 10 кэВ). В результате захвата нейтрона атомным ядром бор-10 (сечение захвата теплового нейтрона 3838 барн) происходит ядерная реакция $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ с энергосвободением 2,79 МэВ. Поскольку длина пробега образующихся в процессе реакции α -частицы и ядра лития менее 10 мкм, то практически вся энергия ядерной реакции выделяется в объеме опухолевой клетки, что приводит к ее гибели.

Положительные результаты клинических испытаний, проведенных на ядерных реакторах с 1970-х годов, привели к обсуждению возможности внедрения методики БНЗТ в клиническую практику с применением ускорителей заряженных частиц, обеспечивающих лучшее качество терапевтического пучка нейтронов. С 1 июня 2020 г. в Корияма и Осака (Япония) началось клиническое применение БНЗТ в первых двух клиниках, оснащенных 30 МэВ 1 мА циклотроном с бериллиевой мишенью компании Сумитомо, с 9 октября 2022 г. в г. Сямынь (Китай) к проведению клинических испытаний методики приступили в клинике, оснащенной 2,5 МэВ 10 мА ускорителем-танDEMом с вакуумной изоляцией и литиевой мишенью ИЯФ СО РАН, с 27 декабря 2022 г. – в клинике г. Инчхон (Южная Корея), оснащенной 10 МэВ 2 мА линаком с бериллиевой мишенью. В ближайшее время к проведению клинических испытаний методики планируют приступить еще в ряде стран, в том числе и в Российской Федерации, для чего ИЯФ СО РАН изготавливает ускорительный источник нейтронов VITA. На сайте Международного сообщества нейтрон-захватной терапии представлено 26 проектов ускорительных источников нейтронов, в большинстве из которых для генерации нейтронов используют литиевую мишень.

Помимо основного применения в рамках БНЗТ литиевая генерирующая мишень в настоящий момент применяется во множестве других проектов, в том числе для исследования таких фундаментальных вопросов, как изучение термоядерных реакций, участвующих в звездном цикле синтеза тяжелых элементов во Вселенной.

Актуальной задачей становится исследование и подтверждение генерирующих свойств литиевой мишени для планирования и проведения терапии.

Степень разработанности темы исследования

Литиевая мишень в наибольшей степени подходит для применения в БНЗТ, поскольку в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ обеспечивается большой выход нейтронов с низкой энергией, но считалась плохим кандидатом из-за ее механических, химических и термических свойств. Также считалось, что кратковременное взаимодействие мишени с воздухом существенно снизит выход нейтронов. Примечательно, что выход нейтронов из разработанной литиевой мишени до настоящего момента получали исключительно расчетными методами. В ИЯФ СО РАН предложена, разработана и реализована тонкая литиевая мишень¹, используемая на экспериментальной установке в ИЯФ СО РАН, в клинике г. Сямыня (Китай) и планируемая к использованию в клиниках Москвы (Россия) и Павии (Италия).

Цели и задачи

Целью работы является измерение выхода нейтронов из разработанной литиевой мишени, исследование содержания примесей в литиевом слое и динамики их накопления по мере облучения мишени пучком протонов, измерение сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Измерить выход нейтронов из разработанной литиевой мишени и сравнить с расчетным значением;
2. Изучить элементный состав литиевого слоя мишени и определить влияние примесей на выход нейтронов;
3. Исследовать динамику накопления примесей при облучении литиевой мишени пучком протонов;
4. Измерить сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Научная новизна

Установлено, что выход нейтронов из разработанной литиевой мишени, измеренный при энергии протонов от 2 до 2,2 МэВ с точностью 5 %, согласуется с расчетным.

Установлено, что при вакуумном термическом напылении лития на подложку мишени литиевый слой покрывается пленкой толщиной от 10

¹ Термин “тонкая литиевая мишень” означает, что протоны проходят слой лития с энергией, достаточной для генерации нейтронов в пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, и поглощаются в медной подложке, на которую нанесен литий, как только энергия протонов становится ниже 1,882 МэВ – порога реакции.

до 50 нм, состоящей из атомных ядер лития, кислорода и углерода, защищающей литий от взаимодействия с сухим воздухом.

Установлено, что при длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см² образовавшаяся тонкая пленка увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При длительном облучении мишени пучком протонов с плотностью мощности выше 3 кВт/см² слой лития становится жидким и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

Установлено, что измеренное сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ согласуется со значениями, приведенными в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, и примерно в 2 раза больше значений, приведенных в базах данных ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019.

Теоретическая и практическая значимость

Основная теоретическая и практическая значимость диссертационной работы состоит в том, что измерен выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, используемой и планируемой к использованию для терапии пациентов, что критически важно для планирования терапии и оценки ее результатов. Получено понимание того, почему слой лития оказывается стойким к воздействию сухого воздуха, что может быть полезным при разработке технологии поставки мишени от производителя потребителю.

Установлено, что достоверное сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ представлено в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, а не в ENDF/B-VIII.0 или TENDL-2019.

Методология и методы исследования

Методологической основой диссертационной работы являются экспериментальные методы исследования, включая численное моделирование и экспериментальное исследование генерирующих свойств литиевой мишени, и применение метода сравнения для выявления сходства и различия.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Выход нейтронов из разработанной для бор-нейтронозахватной терапии литиевой мишени, измеренный при энергии протонов от 2 до 2,2 МэВ с точностью 5 %, согласуется с расчетным.
2. При вакуумном термическом напылении лития на подложку мишени литиевый слой покрывается пленкой толщиной от 10 до 50 нм, содержащей

литий, кислород ($40 \cdot 10^{15} - 300 \cdot 10^{15}$ ат/см²) и углерод ($5 \cdot 10^{15} - 20 \cdot 10^{15}$ ат/см²), защищающей литий от взаимодействия с сухим воздухом.

3. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см² пленка, содержащая литий, кислород и углерод, увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

4. Измеренное сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ в диапазоне энергии протонов от 0,6 до 2 МэВ согласуется со значениями, приведенными в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, и примерно в 2 раза больше значений, приведенных в базах данных ядерных реакций ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019.

Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность полученных результатов подтверждена применением большого набора независимых диагностических средств для анализа полученных результатов и тщательным проведением экспериментального исследования. При измерении выхода нейтронов абсолютная чувствительность HPGe γ -спектрометра определена с использованием девяти эталонных радионуклидных источников фотонного излучения с учетом геометрического размера детектора и влияния загрузки детектора на достоверность регистрации. При измерении сечения реакции толщина литиевого слоя с высокой точностью определена предложенным и реализованным *in situ* методом, а также еще пятью независимыми методиками. Достоверность полученных результатов подтверждена длительной и стабильной генерацией нейтронов, в том числе при успешном лечении домашних животных со спонтанными опухолями.

Основные результаты исследований, лежащие в основе диссертации, в виде 8 докладов представлены и обсуждались на 4 международных и 3 российских конференциях: XXVII и XXVIII Всероссийских конференциях по ускорителям заряженных частиц (Алушта, 2021; Новосибирск, 2023), 9-й Международной конференции по компактным ускорительным источникам нейтронов (Япония, 2022), LXXII Международной конференции ЯДРО 2022: Фундаментальные проблемы и применения (Москва, 2022), 11-й Международной школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Виртуальный конгресс, 2022), 29-м Международном семинаре по взаимодействию нейтронов с атомными ядрами (Дубна, 2023), 2-й школе молодых ученых по синхротронным методам исследования в материаловедении (Новосибирск, 2023).

Работа с результатами проведенных исследований отмечена дипломом третьей степени на 57-й Международной научной студенческой конференции

(Новосибирск, 2019) и отобрана в финал VIII Всероссийского молодежного научного форума «Наука будущего – наука молодых» (Орел, 2023).

Результаты работы вошли в научно-квалификационную работу магистра, которая успешно защищена в 2021 году.

Исследования поддержаны Российским научным фондом (Соглашение № 19-72-30005, 2019–2022), компанией TAE Technologies, Inc., США (контракт № 17-132, 2017–2020), персональными грантами молодежного конкурса «Рентгеновские, синхротронные, нейтронные методы междисциплинарных исследований» (2022 и 2023).

По теме диссертации опубликовано пять работ, из них четыре в рецензируемых научных журналах, рекомендованных ВАК и одна в сборнике тезисов докладов научных конференций. Все работы проиндексированы в международных базах данных SCOPUS и Web of Science Core Collection.

Личный вклад автора в получение научных результатов, лежащих в основе диссертации, является определяющим. Автором лично получены и проанализированы экспериментальные результаты при исследовании генерирующих свойств литиевой мишени [3, 4]. Автором лично измерен выход нейтронов из литиевой мишени и проведено сравнение экспериментальных результатов с теоретическими расчетами [3, 4]. При участии автора проведена абсолютная калибровка HPGe γ -спектрометра эталонными радионуклидными источниками фотонного излучения [3]. При содействии автора обеспечен пучок протонов с постоянной энергией, что достигнуто использованием поворотного магнита как энергоанализатора и контролем положения пучка на поверхности литиевой мишени [3, 4]. Автором лично освоены и применены для исследований α -спектрометр и средства моделирования исследуемых процессов. Автором определен элементный состав литиевой генерирующей мишени методом обратно отраженных протонов [2]. Автором установлено, что при создании мишени литиевый слой покрывается тонкой пленкой примесей, содержащей атомные ядра лития, кислорода и углерода [2]. Автором исследована зависимость толщины пленки от флюенса пучка протонов при использовании литиевой мишени в условиях, близких к клиническим, а также в условиях повышенной плотности мощности протонного пучка [2]. При ключевом участии автора проведено численное моделирование процессов взаимодействия протонного пучка с литиевой мишенью [2]. При ключевом участии автора измерено сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ [1]. Достоверность результатов обеспечивается несколькими способами измерения толщины литиевого слоя [1]. Автором написаны соответствующие разделы в опубликованных статьях.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Объем диссертации составляет 138 страницы и включает 44 рисунка, 10 таблиц и список литературы из 164 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность проведения исследований, определена цель, сформулированы задачи, отмечена научная новизны темы исследования, показана теоретическая и практическая значимость полученных результатов, представлены научные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена литиевой мишени для БНЗТ.

В параграфе **1.1** приведено краткое описание основных ядерных реакций, рассматриваемых для БНЗТ – ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$, ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$, ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$. Показано, что тонкая твердая мишень из чистого металлического лития предпочтительна для применения в БНЗТ, так как она обеспечивает максимальный выход нейтронов оптимального спектра. Отмечено, что на момент начала исследований по теме диссертации некоторые вопросы, в частности измерение выхода нейтронов из литиевой мишени, созданной для БНЗТ, не освещены в литературе в силу отсутствия данных о них.

В параграфе **1.2** кратко приведен обзор методов измерения выхода нейтронов из литиевой генерирующей мишени, а также приведены работы по измерению выхода нейтронов. Подчеркнуто, что во всех работах измеренный выход нейтронов значительно отличался от расчетного: в одной работе он был в 1,7 раз меньше, в другой – в 2 раза меньше, в третьей – от в 7 раз меньше до в 1,4 раза больше. Других работ по измерению выхода нейтронов, сделанных до начала выполнения исследований по теме диссертационной работы, не выявлено.

В параграфе **1.3** рассмотрены методы определения элементного состава вещества, подходящие для применения на ускорительном источнике нейтронов ВИТА, и их особенности.

В параграфе **1.4** кратко приведены методы измерения сечения ядерной реакции.

Вторая глава посвящена измерению выхода нейтронов из литиевой генерирующей мишени.

В параграфе 2.1 приведено описание ускорительного источника нейтронов ВИТА (далее установка), используемого при проведении исследований. Установка включает в себя i) тандемный электростатический ускоритель заряженных частиц оригинальной конструкции (ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией) для получения стационарного моноэнергетичного пучка протонов или дейтронов энергией от 0,3 до 2,3 МэВ, током до 10 мА, ii) тонкую литиевую мишень для генерации нейтронов в реакциях ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и $\text{Li}(d,n)$, iii) систему формирования пучка нейтронов для получения пучка холодных, тепловых, эпитепловых или быстрых нейтронов. Установка оснащена γ -, α - и нейтронными спектрометрами и дозиметрами. Схема экспериментальной установки приведена на рисунке 1.

Для измерения выхода нейтронов использован тот факт, что продуктом реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, которое в результате электронного захвата превращается обратно в литий-7 с периодом полураспада 53,22 сут. В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием 478 кэВ фотона. Если не допустить распространение бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству сгенерированных нейтронов.

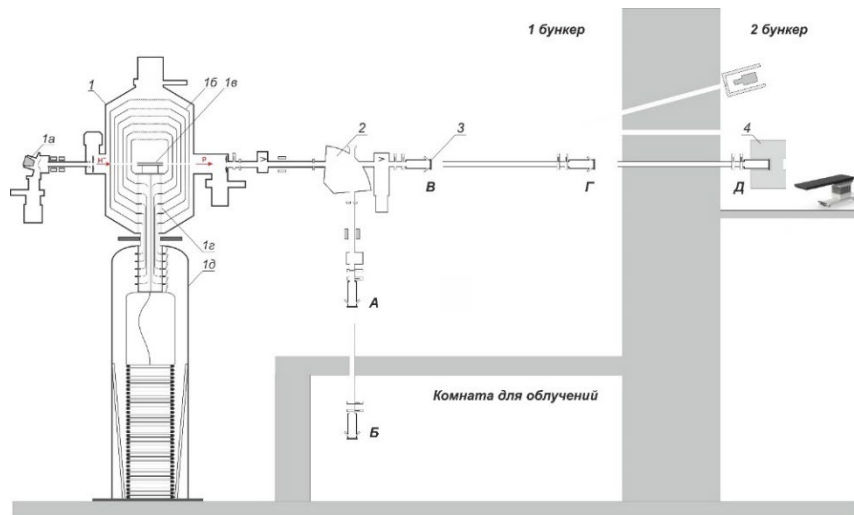


Рисунок 1 – Схема ускорительного источника нейтронов: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией (1а – источник отрицательных ионов водорода, 1б – высоковольтный и промежуточные электроды, 1в – газовая обдирающая мишень, 1г – проходной изолятор, 1д – высоковольтный источник питания), 2 – поворотный магнит, 3 – литиевая нейтроногенерирующая мишень, 4 – система формирования пучка нейтронов. Литиевую мишень размещают в положениях А, Б, В, Г или Д

В параграфе 2.2 описана проведенная калибровка γ -спектрометра. Калибровка по энергии и чувствительности детектора HPGe γ -спектрометра осуществлена девятью источниками фотонного излучения: источником γ -излучения с радионуклидом цезий-137 типа ИГИ-Ц-3-1 (ПО «Маяк», Озерск, Челябинская обл.), источником γ -излучения GBa3.11 на основе радионуклида барий-133 (АО «РИТВЕРЦ», Санкт-Петербург), семью эталонными радионуклидными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ (АО «РИТВЕРЦ», Санкт-Петербург): ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{54}Mn , ^{152}Eu , ^{207}Bi , ^{22}Na , а также тремя специально изготовленными радионуклидными источниками фотонного излучения: фольгой ^{197}Au , активированной до требуемой величины потоком нейтронов, и двумя источниками ^7Be , полученными соскребанием части литиевого слоя мишени после ее облучения пучком протонов, приведшего к образованию ^7Be в реакции $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$. Учет геометрического размера детектора и учет влияния загрузки детектора на достоверность регистрации позволил определить значение абсолютной чувствительности HPGe γ -спектрометра по линии 478 кэВ с точностью 4 %; оно составило величину $1,56 \pm 0,07 \cdot 10^{-5}$ при размещении исследуемого образца на расстоянии 1854 мм.

В параграфе 2.3 представлены результаты измерения выхода нейтронов из литиевой мишени по активации бериллия-7. Всего осуществлено 15 сеансов генерации нейтронов; использовано 13 литиевых мишеней. При изготовлении всех 13 мишеней использованы только новые медные подложки, на которые всегда напыляли новый слой лития.

При проведении исследований литиевую мишень устанавливают на ускорительном источнике нейтронов и облучают пучком протонов в течение 1 ч при токе 1 мА. Как правило, на следующий день с установки снимают мишенный узел, извлекают подложку мишени с литиевым слоем и HPGe γ -спектрометром измеряют ее активацию и активацию мишенного узла без подложки мишени с литиевым слоем. Установлено, что часть бериллия-7 перемещена с мишени на мишенный узел, но эта часть мала – менее 1 / 10 000 во всех сеансах облучения. Ввиду малости перемещения радиоактивного изотопа бериллий-7 с мишени предложенный метод измерения выхода нейтронов применим. По результатам измерения скорости счета в линии 478 кэВ с учетом малой поправки на вторичную эмиссию электронов при измерении тока протонов и с учетом длительности генерации, промежутка времени между окончанием генерации и началом измерения и времени измерения рассчитано количество атомных ядер бериллия-7, равное количеству сгенерированных нейтронов. Результат измеренного количества сгенерированных атомных ядер бериллий-7 представлен в таблице 1.

Таблица 1 – Результат проведенного исследования. № – порядковый номер мишени; Li – тип использованного лития (природный или обогащенный изотопом лития-7); $N_{7\text{Be}}$ – измеренное количество ядер бериллия-7; $E_{\text{реальное}}$ – реальная энергия протонов; Y_n – расчетное количество нейтронов; $N_{7\text{Be}} / Y_n$ – отношение измеренного количества ядер бериллия-7 к расчетному количеству нейтронов

№	Li	$N_{7\text{Be}}, 10^{14}$ шт. измеренное	$E_{\text{реальное}},$ кэВ	$Y_n, 10^{14}$ шт. расчетное	$N_{7\text{Be}} / Y_n,$ %
1	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$5,69 \pm 0,28$	1973 ± 4	$5,48 \pm 0,25$	104 ± 10
2	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$5,70 \pm 0,29$	1973 ± 5	$5,49 \pm 0,34$	104 ± 11
3	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$2,98 \pm 0,15$	1973 ± 5	$2,74 \pm 0,17$	109 ± 11
4	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$2,64 \pm 0,13$	1967 ± 6	$2,50 \pm 0,19$	106 ± 13
5	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$4,02 \pm 0,20$	2020 ± 8	$4,25 \pm 0,27$	95 ± 11
6	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$5,37 \pm 0,27$	2065 ± 5	$5,75 \pm 0,17$	93 ± 8
7	^7Li	$5,44 \pm 0,27$	2069 ± 6	$6,37 \pm 0,22$	85 ± 9
8	^7Li	$1,89 \pm 0,09$	2067 ± 5	$1,75 \pm 0,05$	108 ± 8
9	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$11,2 \pm 0,56$	2069 ± 6	$11,76 \pm 0,42$	95 ± 9
10	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$9,07 \pm 0,45$	2162 ± 6	$9,82 \pm 0,33$	92 ± 8
11	^7Li	$10,4 \pm 0,52$	2172 ± 7	$11,27 \pm 0,44$	92 ± 9
12	$^{\text{nat}}\text{Li}$	$9,19 \pm 0,46$	2174 ± 3	$10,57 \pm 0,17$	87 ± 7
13	^7Li	$11,1 \pm 0,56$	2176 ± 3	$11,59 \pm 0,2$	96 ± 7

Также в таблице 1 представлены значения расчетного количества сгенерированных нейтронов с учетом точности измерения энергии протонов, процентного содержания лития-7 и примесей в используемом для напыления литии. Особое внимание при проведении исследований уделено определению энергии протонов и ее удержанию на одном уровне при облучении мишени, поскольку реакция $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ пороговая (порог реакции 1882 кэВ), и выход нейтронов сильно зависит от энергии протонов. Так, при изменении энергии протонов с 2 МэВ на 1 % выход нейтронов изменяется на 18 %, а с 2,2 МэВ – на 11 %. Для определения энергии протонов используют омический делитель напряжения, подключенный к высоковольтному электроду ускорителя. Калибровку омического делителя напряжения с точностью 0,1 % проводят по пороговым реакциям $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ и $^9\text{Be}(p,n)^9\text{B}$ (порог реакции 2,057 МэВ). При облучении мишени пучком протонов учитывают то обстоятельство, что при длительной работе ускорителя из-за непропорционального изменения сопротивлений плеч омического делителя реальная энергия протонов

уменьшается на большую, чем 0,1 %, величину, вплоть до 0,6 %. Для исключения этого эффекта в сеансах облучения мишеней № 12 и 13 реализован режим с постоянной энергией протонов, используя поворотный магнит как энергоанализатор. В данном случае положение пучка протонов в центре мишени контролируют видеокамерой, регистрирующей люминесценцию лития под действием протонов, пятью термометрами, размещенными внутри медного диска литиевой мишени, и двумя малогабаритными детекторами нейтронов, приклеенными к вакуумной камере мишенного узла вблизи литиевой мишени.

Таким образом, в результате проведенного исследования с точностью 5 % измерен выход нейтронов из конкретно изготовленной литиевой мишени, применяемой для лечения, и показано, что он согласуется с расчетным (таблица 1 и рисунок 2). Полученный результат критически важен для планирования терапии и оценки результатов лечения.

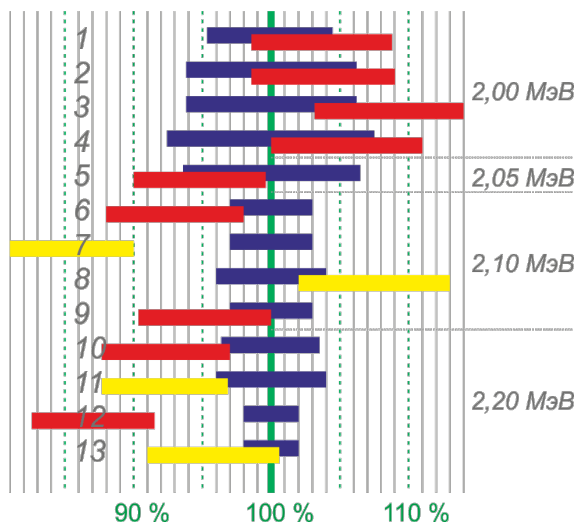


Рисунок 2 – Результат проведенного сравнения измеренного выхода нейтронов с расчетным: сверху вниз – мишени по порядку, синие прямоугольники – интервалы расчетного количества нейтронов, красные и желтые – интервалы измеренного количества нейтронов (красные – природный литий, желтые – обогащенный изотопом литий-7). Справа приведены характерные значения энергии протонов

В третьей главе приведены результаты исследования элементного состава литиевой генерирующей мишени. Проведено исследование динамики накопления примесей в мишени при длительном облучении ее пучком ионов, а также изучено взаимодействие литиевой мишени с газами и воздухом.

В параграфе **3.1** приведено подробное описание конструкции литиевой мишени. Мишень представляет собой тонкий медный диск, на одну из сторон которого термическим способом напыляют тонкий слой лития кристаллической плотности, а с обратной стороны сделаны четыре двухзаходных спиралевидных канала. Сторона с литием расположена в вакууме, и ее облучают протонами. К стороне с каналами прижимают плоский алюминиевый диск с отверстиями для подачи и отвода воды, что обеспечивает эффективный теплоотвод. Также в медном диске с торца сделаны отверстия, в которые вставлены термосопротивления для измерения температуры. Указывается, что литий – химически активный металл и активно вступает во взаимодействие с воздухом, вследствие чего выход нейтронов из литиевой мишени значительно снижается.

В параграфе **3.2** описана экспериментальная установка и оборудование, с помощью которого реализован метод спектроскопии ионного рассеяния (рисунок 3). Суть метода заключается в облучении мишени пучком протонов и измерении энергетического спектра обратно отраженных протонов, теряющих энергию в результате упругого или неупругого рассеяния на атомных ядрах мишени. Величина потери энергии характеризуется атомной массой элемента мишени, углом рассеяния и глубиной залегания; она рассчитывается теоретически. Для определения глубинного распределения элементного состава исследуемого образца используют программу SIMNRA v.7.03 (Max Planck Institute for Plasma Physics, Germany). Для измерения интенсивности и энергии обратно отраженных протонов используется спектрометр α -излучения на основе кремниевого детектора, установленного под углом 135° к оси пучка. При проведении измерений ток пучка протонов уменьшают введением охлаждаемого коллиматора с диаметром отверстия 1 мм. Положение протонного пучка на мишени контролируют по люминесценции лития, регистрируемой видеокамерой.

Первая серия экспериментов по исследованию чистоты свеженанесенного лития описана в параграфе **3.3**. Энергетический спектр обратно отраженных протонов представлен на рисунке 4. Установлено, что на поверхности лития после напыления образуется тонкая пленка толщиной от 10 до 50 нм, содержащая литий, кислород и углерод. Для доказательства того, что слой примесей находится на поверхности лития, использован узкий резонанс в сечении упругого рассеяния протона на атомном ядре ^{12}C . По полученным спектрам обратно отраженных протонов также установлено, что в составе

литиевого слоя мишени присутствуют тяжелые примеси, изначально содержащиеся в составе лития. Дополнительные исследования поверхности мишени методом рентгеноэлектронной спектроскопии позволяют однозначно утверждать, что поверхность мишени (~ 2 нм) состоит из карбоната лития (Li_2CO_3).

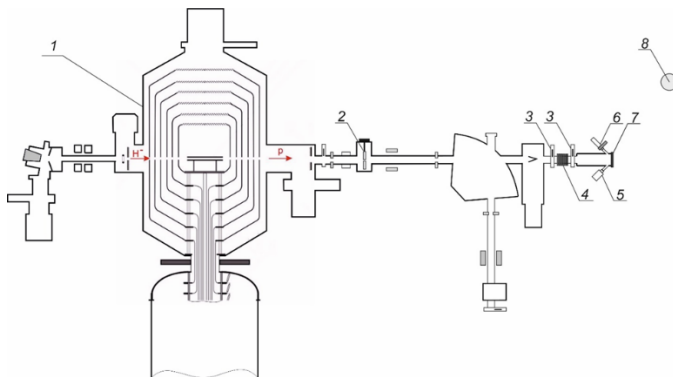


Рисунок 3 – Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – охлаждаемый коллиматор с апертурой 1 мм, 3 – шиберы, 4 – сильфон, 5 – видеокамера, 6 – α -спектрометр, 7 – литиевая мишень, 8 – дозиметр нейтронного излучения

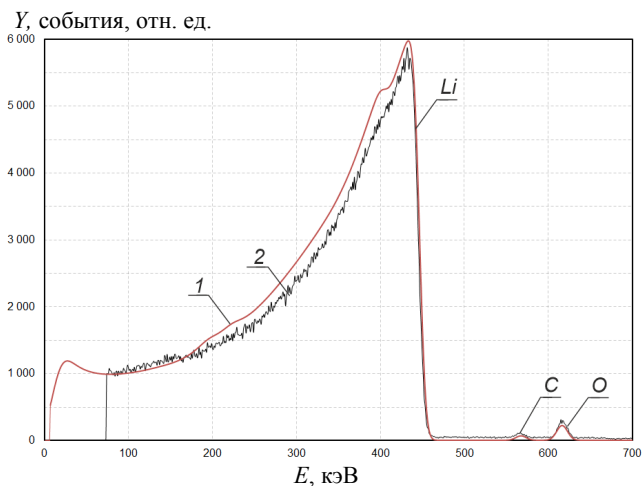


Рисунок 4 – Спектр обратно отраженных протонов для слоя свеженанесенного лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 – экспериментальные данные, 2 – расчетные, полученные с помощью программы SIMNRA, Li – сигнал от протонов, отраженных от лития, C – от углерода, O – от кислорода

Во второй серии экспериментов, параграф 3.4, проведено дополнительное исследование по изучению накопления азота в литиевой мишени. Несмотря на то, что литий быстрее всего вступает в реакцию именно с азотом, данный элемент не был обнаружен в составе свеженапыленного литиевого слоя мишени. Осуществлен дополнительный напуск азота в мишенный узел до атмосферного давления на 18 ч и установлено, что это не приводит к появлению азота в литиевом слое мишени. Отсутствие азота в литиевом слое детектируется как спектроскопией ионного рассеяния, так и отсутствием продуктов ядерной реакции $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$ при облучении мишени пучком дейтронов. Основываясь на отсутствии реакции литиевой мишени с азотом, изучена устойчивость мишени к атмосферному воздуху. Выяснено, что суточная экспозиция литиевой мишени на воздухе с высокой влажностью существенно ухудшает ее нейтроногенерирующие свойства, поскольку содержание кислорода увеличивается в 1000 раз, содержание углерода – в 25 раз, в то время как экспозиция на воздухе с низкой влажностью практически не ухудшает ее свойства, т.к. содержание кислорода и углерода увеличивается в 3–4 раза. Это свойство стойкости литиевого слоя мишени в сухом воздухе может быть учтено при разработке технологии поставки литиевых мишеней от производителя потребителю.

В третьей серии экспериментов, параграф 3.5, приведены результаты исследования чистоты литиевого слоя при облучении мишени пучком протонов с проектной плотностью мощности. Установлено, что количество кислорода и углерода на поверхности литиевой мишени растет, однако это практически не влияет на выход нейтронов. При облучении мишени пучком протонов с критически высокой плотностью мощности (более 3 кВт/см^2) литиевый слой становится жидким и в нем регистрируется появление тяжелой примеси. Вероятнее всего, чешуйки меди, образовавшиеся из-за радиационного блистеринга при имплантации протонов, конвективными потоками переносятся с поверхности медной подложки внутрь литиевого слоя, что приводит к уменьшению выхода нейтронов и делает мишень непригодной к эксплуатации.

Таким образом, методом спектроскопии ионного рассеяния установлено, что при термическом напылении лития в вакууме на медную подложку мишени формируемый слой лития толщиной до 100 мкм покрывается тонкой пленкой толщиной от 10 до 50 нм, содержащим атомные ядра лития, углерода и кислорода. Этот образовавшийся слой эффективно защищает литий от взаимодействия с сухим воздухом. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см^2 образовавшийся слой увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности выше

3 кВт/см² слой лития становится жидким и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

Четвертая глава посвящена измерению сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, характеризуемой высоким выходом энергии – 17,35 МэВ.

В параграфе 4.1 отмечены существенные противоречия в опубликованных данных о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ и обоснована цель исследования.

В параграфе 4.2 приведено описание экспериментальной установки, способа напыления тонкого слоя лития, используемого оборудования для измерения интенсивности и энергии образующихся α -частиц. Отмечено, что используемый α -спектрометр расположен под углом $168 \pm 0,5^\circ$ к импульсу протона.

В параграфе 4.3 приведены формулы, по которым рассчитаны дифференциальное и полное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, энергия α -частицы в зависимости от энергии протона и угла вылета, представлены результаты определения эффективности регистрации α -частиц спектрометром с указанием используемых радионуклидных источников, калибровки спектрометра по энергии, определения плотности атомных ядер литий-7 в литиевом слое и определения толщины литиевого слоя. Отмечено, что толщина слоя лития, равная $0,422 \pm 0,013$ мкм, измерена шестью независимыми методиками, в том числе дающей наилучшую точность 3 % – неразрушающей *in situ* методикой, когда сравнивают интенсивность излучения 478 кэВ фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ из исследуемого литиевого слоя и из толстого.

Характерный спектр, регистрируемый α -спектрометром, представлен на рисунке 5. Видно, что сигналы от α -частиц хорошо отдалены от сигналов, обусловленных обратно отраженными протонами, и их подсчет за вычетом фоновых событий позволяет достоверно восстановить дифференциальное и полное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$. Результаты измерения дифференциального и полного сечения реакции, полученные при 10 значениях энергии протонов, представлены на рисунке 6 и рисунке 7. Проведен дополнительный эксперимент по измерению выхода α -частиц под углом 135° к импульсу протонов. Показано, что, полагая излучение изотропным, измерение под углом 135° дает значение полного сечения реакции в среднем 98 ± 5 % от результатов измерения под углом 168° . Такое различие меньше точности измерения и нет оснований полагать неизотропность излучения в системе центра масс. Полученные значения дифференциального сечения реакции согласуются с большей частью данных Ciric и Cavallaro, измеренных при угле 90° , и отличаются от остальных данных. Полученные данные по полному сечению хорошо согласуются со значениями, приведенными в базе

данных ядерных реакций JENDL-4.0, и примерно в два раза больше значений, приведенных в базах данных ядерных реакций ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019. Результаты измерения сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ внесены в базы данных ядерных реакций IBANDL и Exfor.

Y , события, отн. ед.

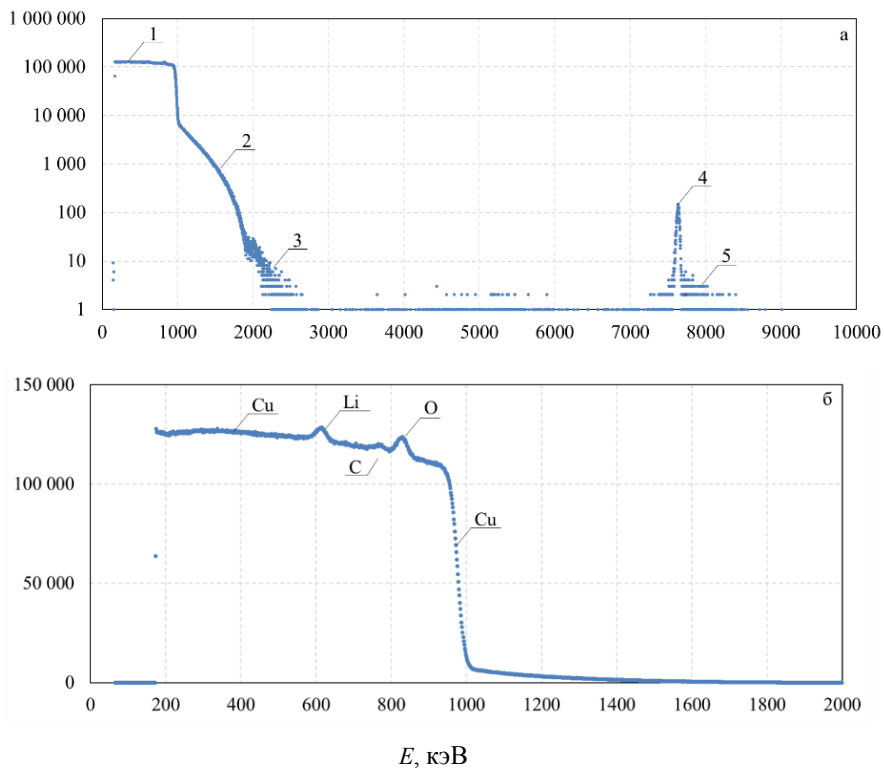


Рисунок 5 – Спектр заряженных частиц, зарегистрированных α -спектрометром при энергии протонов 1 МэВ: 1–3 – обратно отраженные протоны от атомов меди (1 – одиночные события, 2 – двойные, 3 – тройные), 4 – α -частицы, 5 – одновременная регистрация α -частицы и протона. Cu, Li, C, и O – обратно отраженные протоны от атомов меди, лития, углерода и кислорода

$d\sigma/d\Omega$, мбарн/ср

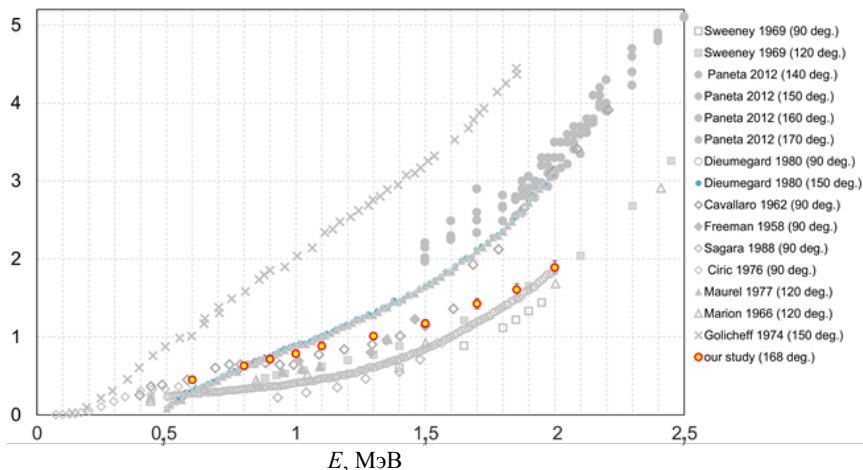


Рисунок 6 – Дифференциальное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

σ , мбарн

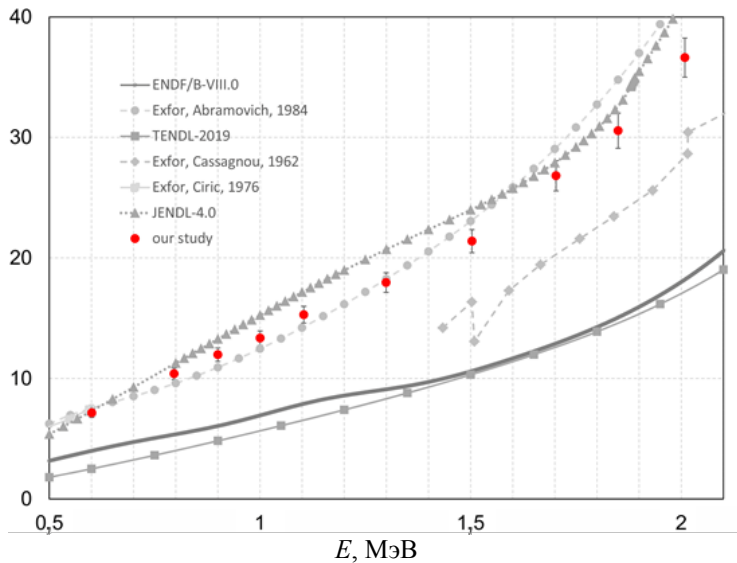


Рисунок 7 – Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

В Заключении представлены основные результаты работы и даны рекомендации по дальнейшей разработке темы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В качестве перспективной методики лечения злокачественных опухолей рассматривается бор-нейтронозахватная терапия, обеспечивающая избирательное уничтожение клеток опухоли путем накопления в них нерадиоактивных атомных ядер бор-10 и последующего облучения нейтронами. В результате поглощения нейтрона ядром бора происходит ядерная реакция с большим выделением энергии в клетке, что приводит к ее гибели. Общеизвестно, что применение ускорителя с относительно малой энергией протонов и большим током и литиевой мишени обеспечивает наилучшее качество терапевтического пучка нейтронов. В настоящее время наибольшее количество проектов клинического применения БНЗТ предусматривает использование литиевой мишени, и актуальной задачей становится исследование и подтверждение генерирующих свойств литиевой мишени для планирования и проведения терапии.

Настоящая работа посвящена измерению выхода нейтронов из литиевой мишени, исследованию содержания примесей в литиевом слое и динамики их накопления по мере облучения мишени пучком протонов, измерению сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Основные результаты диссертационной работы следующие:

1. Предложена и реализована методика измерения выхода нейтронов из литиевой мишени. Измерен выход нейтронов из литиевой мишени, пригодной для клинического применения, и показано согласие измеренного выхода нейтронов с расчетным, что важно для планирования терапии и оценки результатов лечения.

2. Методом спектроскопии ионного рассеяния определена концентрация примесей в литиевом слое мишени, исследована динамика их накопления при длительной генерации нейтронов, определено их влияние на выход нейтронов. Показано, что при вакуумном термическом напылении лития на подложку мишени литиевый слой покрывается тонким слоем, содержащим атомные ядра лития, углерода и кислорода, защищающим литий от взаимодействия с сухим воздухом. Методом рентгеноэлектронной спектроскопии установлено, что на поверхности мишени образуется карбонат лития. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с проектной плотностью мощности образовавшийся слой увеличивается в толщину в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При облучении литиевой мишени

пучком протонов с критически высокой плотностью мощности слой лития становится жидким и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. Полученные знания представляются полезными для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя потребителю и при определении ресурса литиевой мишени.

3. С высокой точностью и достоверностью измерено сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ при энергии протонов от 0,6 до 2 МэВ. Установлено, что измеренное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ согласуется со значениями, приведенными в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, и примерно в 2 раза больше значений, приведенных в базах данных ядерных реакций ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019. Полученные данные о сечении реакции внесены в базы данных ядерных реакций IBANDL и Exfor.

Разработанная тонкая литиевая мишень обеспечивает длительную стабильную генерацию нейтронов без деградации выхода нейтронов. Она активно используется в ускорительном источнике нейтронов на площадке ИЯФ СО РАН для развития методики бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей, включая тестирование новых препаратов адресной доставки бора, разработку средств и методов дозиметрии, лечение крупных домашних животных со спонтанными опухолями, а также для радиационного тестирования и модификации перспективных материалов, в том числе для Международного термоядерного реактора ИТЭР и Большого адронного коллайдера ЦЕРН, и для других приложений. Разработанная тонкая литиевая мишень входит в состав ускорительного нейтронов, поставленного в Центр БНЗТ г. Сямынь (Китай), на котором вторыми в мире приступили к терапии больных методикой БНЗТ. Литиевая мишень будет использоваться для генерации нейтронов в ускорительных источниках нейтронов, изготавливаемых для клиник в России и для Национального центра адронной терапии в области онкологии в Павии (Италия). В связи с внедрением БНЗТ в клиническую практику актуальными становятся дальнейшие исследования литиевой мишени для определения ресурса ее использования, для разработки технологии безопасного извлечения активированной мишени и ее утилизации, для разработки технологии сохранной поставки мишеней от производителя потребителю.

Список работ, опубликованных автором по теме диссертации

В рецензируемых научных изданиях:

1. Cross-section measurement for the ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ reaction at proton energies 0.6 - 2 MeV / S. Taskaev, M. Bikchurina, T. Bykov [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2022. – Vol. 525. – P. 55-61. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2022.06.010>. – Дата публикации: 15.08.2022.
2. VITA high flux neutron source for various applications / M. Bikchurina, T. Bykov, E. Vyambatseren [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Neutron Research. – 2022. – Vol. 24, nr. 3-4. – P. 273–279. – URL: DOI 10.3233/JNR-220020. – Дата публикации: 18.01.2023.
3. The measurement of the neutron yield of the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction in lithium targets / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Biology. – 2021. – Vol. 10, nr 9. – P. 824 – URL: <https://doi.org/10.3390/biology10090824>. – Дата публикации: 24.08.2021.
4. Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target / S. Taskaev, E. Berendeev, M. Bikchurina [et al.]. Текст : электронный // Biology. – 2021. – Vol. 10, nr 5. – P. 350. URL: <https://doi.org/10.3390/biology10050350>. – Дата публикации: 21.04.2021.

В сборниках трудов конференций:

1. Measurement of Parameters of Neutron Radiation on the Accelerator-Based Epithermal Neutron Source / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Proceedings of the XXVII Russian Particle Accelerator Conference (Alushta, September 26th - October 2st 2021). – Alushta, 2021. – P. 337-339. – URL: <https://doi.org/10.18429/JACoW-RuPAC2021-TUPSB53>. – Дата публикации: 01.10.2021.

Бикчурина Марина Игоревна

Исследование генерирующих свойств литиевой мишени

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Сдано в набор 27.05.2024.
Подписано в печать 28.05.2024.
Формат 60×90 1/16 Объем 1.0 печ.л., 0.9 уч.-изд.л.
Тираж 100 экз. Бесплатно. Заказ № 3

Обработано на IBM PC и отпечатано на ротапринте ИЯФ СО РАН
630090, Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 11