

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
Ордена Ленина Сибирское отделение
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ им. Г.И. Будкера

Б.Ф. Баянов, В.П. Белов,
Е.В. Журов, С.Ю. Таскаев

НАПЫЛЕНИЕ ЛИТИЕВОГО СЛОЯ
НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩЕЙ МИШЕНИ

ИЯФ 2007-3

Новосибирск
2007

Напыление литиевого слоя нейтроногенерирующей мишени

Б.Ф. Баянов, В.П. Белов, Е.В. Журов, С.Ю. Таскаев

Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера
630090, Новосибирск, Россия

В Институте ядерной физики СО РАН сооружается пилотный источник эпитепловых нейтронов на основе компактного тандемного ускорителя, рассматриваемый как возможное решение проблемы проведения нейтронозахватной терапии рака в онкологической клинике.

Данная работа связана с разработкой нейтроногенерирующей мишени и посвящена напылению литиевого слоя на подложку мишени. На созданном стенде была отработана технология нанесения литиевого слоя и проведено напыление. Предложена оригинальная методика определения толщины литиевого слоя и измерено его радиальное распределение.

© *Институт ядерной физики им. Г.И.Будкера СО РАН*

Введение

В 1936 году, спустя 4 года после открытия нейтрона, была предложена концепция нейтронозахватной терапии рака [1]. Её физический принцип прост и элегантен. Раствор, содержащий стабильный изотоп бор-10, вводят в кровь человека, и через некоторое время бор накапливается в клетках. Затем опухоль облучают потоком эпитепловых нейтронов. В результате поглощения нейтрона стабильным изотопом ^{10}B происходит ядерная реакция, и образующиеся энергетичные α -частица и ^7Li быстро тормозятся на длине менее 10 μm , т.е. выделяют энергию $\sim 2,3$ МэВ в пределах именно той клетки, которая содержала ядро бора, что приводит к её поражению. Т.о., обеспечение более высокой концентрации ^{10}B в раковой клетке по сравнению со здоровой позволяет осуществить избирательное поражение клеток злокачественных опухолей. Проведенные клинические испытания на реакторах показали, что бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) лечит глиобластомы мозга и метастазы меланомы [2]. Для широкого внедрения методики в клиническую практику необходимы компактные и недорогие источники эпитепловых нейтронов.

В 1998 году был предложен новаторский источник эпитепловых нейтронов на основе ускорителя для проведения нейтронозахватной терапии рака в клинике [3], и с 2004 года в Институте ядерной физики СО РАН сооружается пилотный вариант такого источника. Генерация нейтронов осуществляется при сбросе 2 МэВ протонного пучка на мишень в результате пороговой реакции $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$. Мишень представляет собой хорошо охлаждаемый металлический диск, на который со стороны протонного пучка нанесен тонкий слой лития.

В работе описывается методика напыления литиевого слоя требуемой толщины и приводятся результаты измерений радиального распределения толщины слоя по мишени.

1. Методика напыления лития

Для отработки методики напыления литиевого слоя на мишень был создан экспериментальный стенд, оснащенный турбомолекулярным насосом ТМН-150, форвакуумным ЗНВП-1ДУХЛ 4.2, азотной ловушкой, манометром Pfeiffer PKR 251, системой напыления лития с нагревателем и терпарами.

Ранее разработанный прототип нейтроногенерирующей мишени [4] представлен на рис.1 и 2. Мишень представляет собой тонкий металлический диск диаметром 10 см, на который со стороны протонного пучка напыляется тонкий слой чистого лития, а обратная сторона диска интенсивно охлаждается турбулентным потоком воды с тем, чтобы поддерживать литиевый слой в твердом состоянии (ниже температуры 180 °С) при ее нагреве 25 кВт протонным пучком. Металлический диск является приёмником пучка; он изготовлен из меди и с обратной стороны имеет 4 двухоборотных спиралевидных канала для охлаждения.

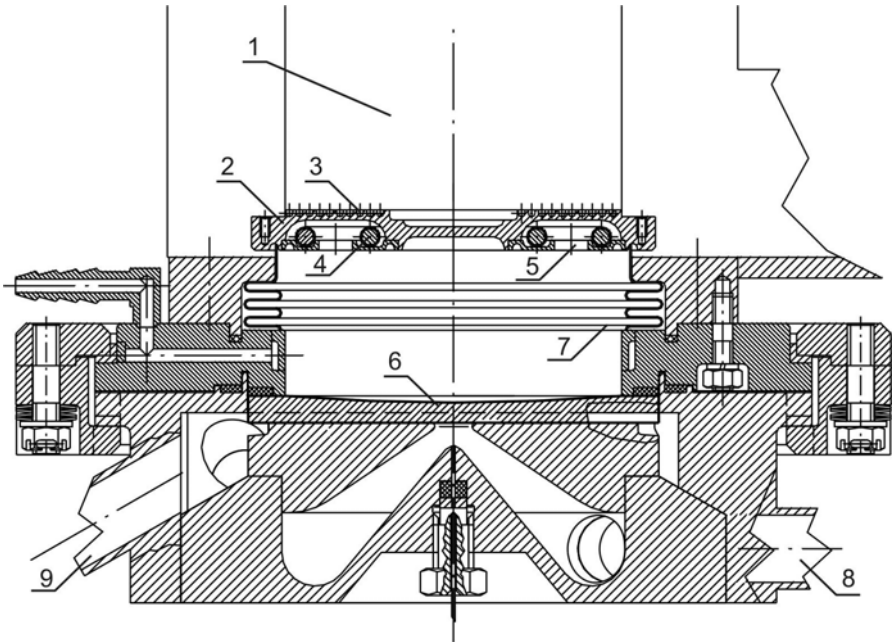


Рис. 1. Чертеж нейтроногенерирующей мишени: 1 – протонопровод, 2 – тарелка шибера, 3 – нагреватель, установленный на тарелку шибера, 4 – контейнер с литием, 5 – круговое отверстие для выхода паров лития, 6 – приемник пучка, на который напыляется литиевый слой, 7 – сильфон, 8 и 9 – ввод и вывод воды для охлаждения.

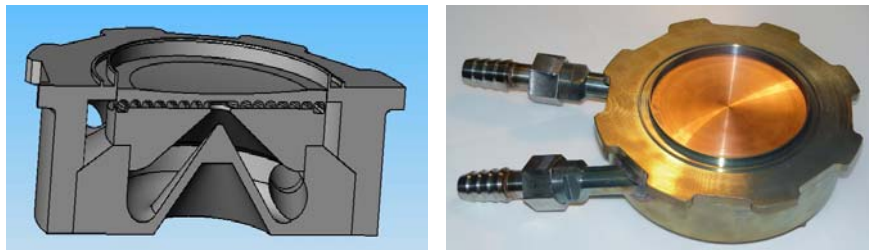


Рис. 2. Разрез и фотография изготовленной мишени.

Система напыления лития (рис. 3) позволяет производить напыление непосредственно на установке; при ее изготовлении был использован промышленно производимый шибер. На тарелку шибера был помещен нагреватель, а под тарелку установлен испаритель с круговой щелью, в который закладывается контейнер с литием. Перед напылением тарелка шибера выезжает в протонопровод и сдвигается в направлении к мишени на 5 мм, используя механизм уплотнения шибера. В результате такого сдвига тарелка упирается в сильфон, что ограничивает объем напыления. Затем включается нагреватель, и происходит процесс напыления. Поскольку сильфон теплоизолирован и в процессе напыления нагревается, то напыления на сильфон не происходит. Напыление осуществляется только на мишень, которая охлаждается водой.



Рис. 3. Устройство напыления лития.

Известно, что при начальной энергии протонов 2,5 МэВ торможение протонов до пороговой энергии генерации нейтронов 1,882 МэВ происходит на толщине лития 88 $\mu\text{м}$, а при 1,915 МэВ – 4,3 $\mu\text{м}$ [5]. Следовательно, для генерации нейтронов требуется напылять литиевый слой толщиной от 10 до 100 $\mu\text{м}$. Более толстый слой будет приводить к большему испарению лития, опасному из-за распространения образующегося радиоактивного изотопа бериллия, и к существенному увеличению сопутствующего нежелательного потока 0,477 МэВ γ -квантов в результате неупругого рассеяния протонов на ядрах лития.

2. Методика измерения толщины литиевого слоя

Для измерения радиального распределения толщины напыленного литиевого слоя предложена новая методика. Необходимость данного предложения связана с тем, что, во-первых, литий очень активный металл, моментально образующий соединения при помещении его в воздушную среду, а во-вторых, многие стандартные методики измерения в вакууме не применимы, поскольку в непосредственной близости от охлаждаемой мишени находится испаритель с высокой температурой. Так, невозможно использовать метод определения массы напыленного на пьезокерамику лития по изменению собственной частоты колебаний керамики, поскольку процесс напыления на керамику существенно отличается от напыления на охлаждаемую медную подложку вследствие разных температур.

Суть предлагаемого метода состоит в измерении проводимости дистиллированной воды, в которой растворяются слои лития, напыленные на тонкие свидетели из того же самого материала, что и мишень, и находящиеся в хорошем тепловом контакте с мишенью в процессе напыления. Очевидное преимущество этого метода, как будет показано ниже, состоит в том, что проводимость воды зависит только от массы растворенного лития и не зависит от того, является ли литий чистым или является каким-либо соединением (гидридом, нитридом или оксидом лития). Измерения проведены на промышленно производимом оборудовании – иономере-кондуктометре Анион 410.

Для калибровки метода был проведен следующий эксперимент. Из силфона, в котором хранится литий, была выдавлена порция лития в виде стержня диаметром 4 мм длиной 34,5 мм, завернута в алюминиевую фольгу известной массы и взвешена. Из объема этого литиевой стержня, равного 0,433 см^3 , следует, что масса лития должна быть 0,234 г. Весы показали, что масса лития действительно равна 0,234 г. Следовательно, значительная часть лития за непродолжительное время нахождения в воздухе не превратилась в нитрид или оксид лития, что и было видно по его виду.

Весь этот литий (0,234 г) был растворен в 100 мл воды. Далее брали часть этого раствора, объем доводили до 250 мл и измеряли удельную электрическую проводимость при контролируемой температуре (табл. 1). На рис. 4 представлена зависимость удельной проводимости воды от объема раствора с литием, пропорционального массе растворенного лития, и видно, что она линейна.

Табл. 1. Зависимость удельной проводимости 250 мл воды от объема первоначального раствора лития при температуре раствора T .

Объем первоначального раствора, мл	Удельная электрическая проводимость, $\mu\text{См/см}$	T , °С
1	320	19,5
2	643 – 646	19,5
3	942 – 946	19,5
4	1240 – 1247	19,4
5	1548 – 1558	19,4
10	3040	19,1

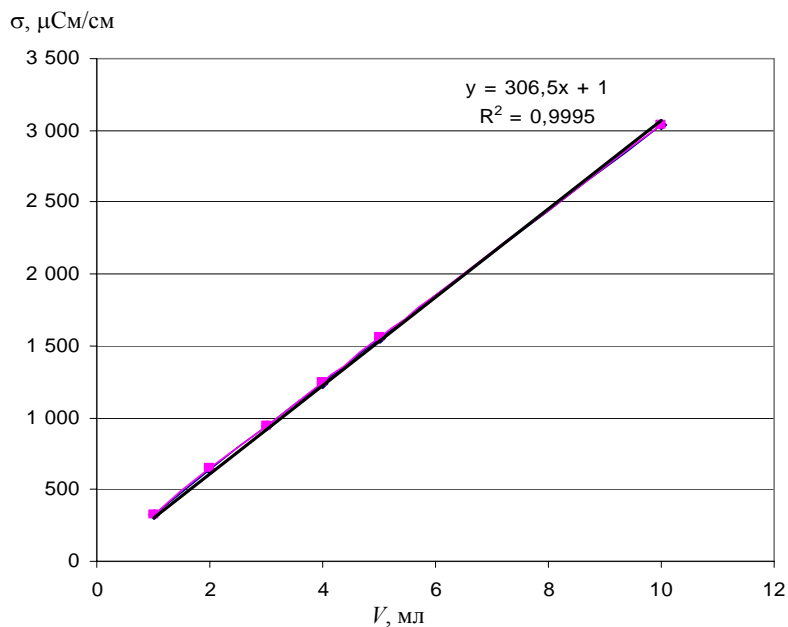


Рис. 4. Зависимость удельной проводимости σ от объема раствора лития V .

Т. о., пересчет толщины литиевого слоя h (в микронах) в предположении, что плотность лития в слое соответствует плотности металлического лития $0,54 \text{ г/см}^3$, от удельной проводимости σ (в $\mu\text{См/см}$) дается следующим выражением, в котором учитывается, что удельная проводимость дистиллированной воды равна $1 \mu\text{См/см}$, а площадь поверхности свидетеля равна 1 см^2 : $h = 0,141 (\sigma - 1)$.

Было исследовано влияние других факторов на проводимость, а именно, зависимость проводимости воды от вида соединения лития и возможный вклад в проводимость индий-галлиевого соединения, обеспечивающего хороший тепловой контакт между свидетелем и мишенью и неизменно присутствующего в некотором количестве на свидетеле.

Для выяснения влияния вида соединения лития на проводимость воды, в которой он растворяется, был проведен следующий эксперимент. Из силфона, в котором хранится литий, был выдавлен литий и специальным устройством отрезаны три максимально одинаковых образца. Первый образец, который сохранял металлический блеск, был растворен сразу. Второй образец был растворен через 4 ч и к этому времени его цвет стал черным, что, возможно, связано с появлением нитрида лития на поверхности. Последний образец через сутки выглядел беловато-серым, что, возможно, говорит о замещении азота кислородом и о превращении лития или его значительной части в оксид лития. Результаты измерений представлены в табл. 2. Видно, что проводимость воды не изменилась, несмотря на изменение вида лития, что делает применение этого метода безусловно привлекательным.

Табл. 2. Зависимость проводимости воды от времени нахождения лития в воздухе перед растворением.

№ образца	Время экспозиции в воздухе	Проводимости воды, $\mu\text{См/см}$
1	5 мин	2000
2	4 ч	2000
3	28 ч	2020
Без образца	—	1

Очень важным преимуществом данной методики также является то, что нанесённое с обратной стороны свидетеля индий-галлиевое соединение не дает никакого вклада в изменение проводимости и потому не влияет на определение количества растворённого лития. Для проверки этого утверждения в 250 мл воды был помещен примерно 1 г индий-галлиевого соединения, что на порядок больше того количества, которое может присутствовать на свидетеле, но показания проводимости не отклонились от эталона.

3. Результаты эксперимента

Для определения толщины литиевого слоя на охлаждаемую мишень диаметром 10 см в два ряда (крестом) были выложены свидетели площадью 1 см^2 каждый, которые через индий-галлиевое соединение имели хороший тепловой контакт с мишенью. Следует заметить, что если свидетеля просто положить на поверхность, то напыляется значительно более тонкий слой, что связано с бóльшей температурой свидетеля. После заложения в тарелку шибера контейнера с литием и откачки до вакуума 10^{-5} торр включался нагреватель. Временная зависимость температуры испарителя представлена на рис. 5.

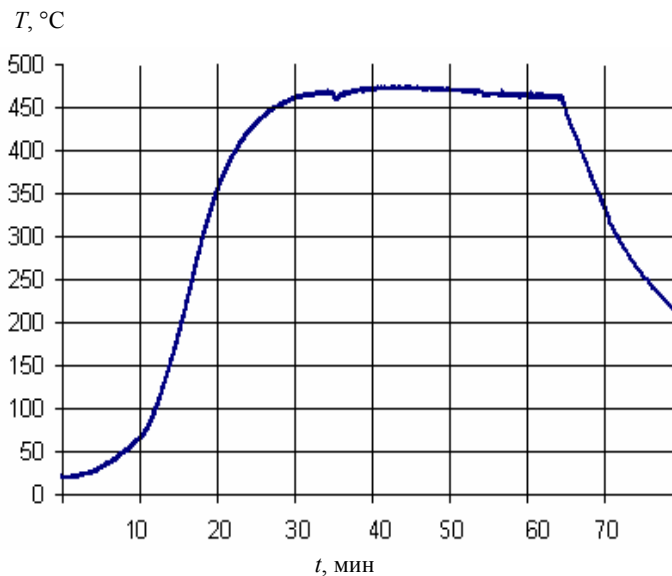


Рис. 5. Временная зависимость температуры термпары, расположенной на тарелке шибера.

Контейнер с литием представляет собой чистый литий, завёрнутый в тонкую алюминиевую фольгу [6]. Алюминиевая фольга предотвращает взаимодействие лития с воздухом и позволяет отказаться от необходимости работать в инертной среде для закладки лития в нагреватель. Выяснено, что для испарения лития не требуется нагревать контейнер до температуры плавления алюминия $660 \text{ }^\circ\text{C}$ – достаточно нагревать до меньшей температуры, поскольку, вероятнее всего, при нагревании литий вступает во взаимодействие с алюминием и этот сплав расплавляется при меньшей температуре.

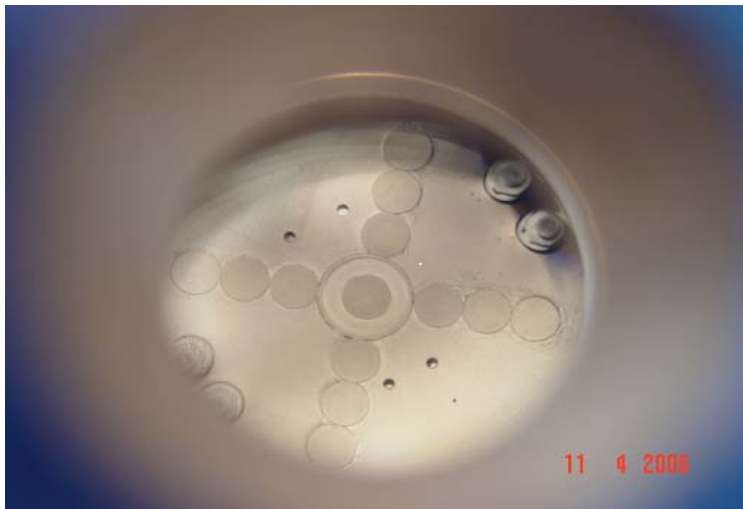


Рис 6. Фотография мишени со свидетелями, сделанная через окно в вакуумной камере сразу после напыления лития.

Пары лития вылетают через круговое отверстие диаметром 7 см шириной 0,6 см, вырезанного внизу под тарелкой шибера (5 на рис. 1). На рис. 6 приведена фотография мишени, на которой расположены свидетели, после окончания процедуры напыления.

После напыления рабочий объём заполняется воздухом. Мишень, на которую напылён литий, снимается, и свидетели растворяются в воде. По проводимости воды измеряется количество лития, напыленного на свидетеля.

На рис. 7 приведено измеренное распределение толщины литиевого слоя. Видно, что распределение достаточно хорошо согласуется с простым расчетом бесстолкновительного разлетаия паров лития из кругового отверстия. Статистический разброс имеет величину порядка 10 % и он меньше расчетной разницы толщины слоя в 20 %. Поскольку этот разброс, скорее всего, связан с разными тепловыми контактами между свидетелем и мишенью, однородность слоя может быть только лучше. В любом случае, для получения более равномерного слоя следует доработать напылитель сделав отверстие для напыления посередине и немного увеличив диаметр имеющегося кругового отверстия.

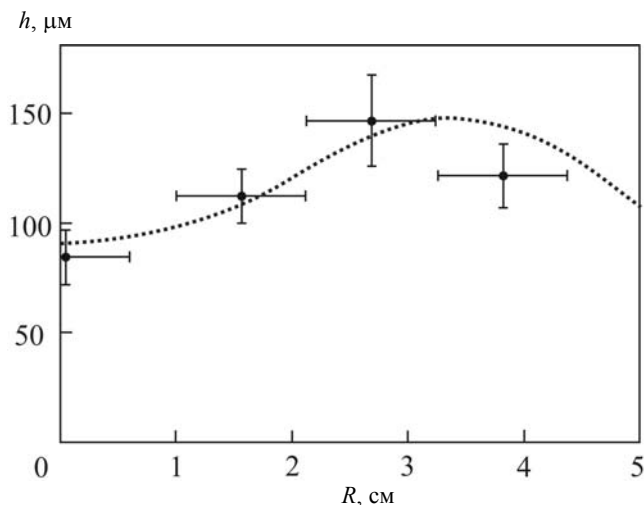


Рис. 12. Радиальное распределение литиевого слоя: ● – измеренное, – расчетное.

Были проведены и прямые измерения толщины литиевого слоя микрометром путем сравнения толщины свидетеля до растворения слоя в воде и после. Результаты этих измерений и результаты определения толщины слоя по проводимости воды представлены в табл. 3. Их совпадение указывает на то, что получаемый литиевый слой не пористый и его плотность соответствует плотности металлического лития $0,54 \text{ г/см}^3$.

Табл. 3. Сравнение толщины литиевого слоя из измерений микрометром с толщиной из измерений проводимости воды.

№ свидетеля	Толщина по измерениям микрометром, μм			Толщина литиевого слоя по измерению проводимости, μм
	свидетель с литием	свидетель без лития	литиевый слой	
1	825	735	90	97,57
2	855	745	110	94,75
3	825	730	95	94,47

В работе [7], посвященной изучению влияния остаточного газа на состав литиевого слоя, было выяснено, что напыленный слой состоит преимущественно из чистого лития.

Заключение

В настоящее время в Институте ядерной физики СО РАН сооружается источник эпитепловых нейтронов на основе ускорителя для бор-нейтронозахватной терапии рака. Одной из основных составляющих частей установки является мишень, генерирующая нейтроны в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

В работе предложена и реализована методика напыления литиевого слоя толщиной от 10 до 100 μm на подложку мишени. Предложена оригинальная методика определения толщины литиевого слоя и измерено радиальное распределение толщины слоя. Выяснено, что напыляемый слой состоит из чистого лития и является плотным с плотностью металлического лития. Определено, что толщина слоя хорошо предсказывается расчетом бесстолкновительного испарения лития и массой лития, закладываемого в испаритель.

В результате проделанной работы получена уверенность в том, что необходимый плотный литиевый слой толщиной от 10 до 100 μm может быть получен на установке для генерации нейтронов.

В заключение авторы выражают искреннюю благодарность Л.А. Аниско за проведенные измерения на иономере-кондуктометре Анион 410 и Л.В. Желнову за помощь при подготовке экспериментов.

Литература

- [1] *G.Locher*. Biological Effects and Therapeutic Possibilities of Neutrons, *Am. J. Roentgenol, Radium Ther.*, **36** (1936) 1.
- [2] *H. Hatanaka*. Clinical results of boron neutron capture therapy, *Basic Life Sci.*, **54** (1990) 15-21.
- [3] *B. Bayanov, et al.* Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **A 413** (1998) 397-426.
- [4] *B. Bayanov, et al.* Lithium neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source, *Applied Radiation and Isotopes*, **61** (2004) 817-821.
- [5] *H. Andersen (Ed.)*. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements, Pergamon Press Inc., 1977.
- [6] *Б. Баянов, С. Таскаев*. Заявка на патент ROI 355, 2006.
- [7] *Б.Ф. Баянов, В.И. Ободников, С.Ю. Таскаев, Е.Г. Тишковский*. Изучение влияния остаточного газа на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени, Препринт ИЯФ 2007-2, Новосибирск, 2007.

Б.Ф. Баянов, В.П. Белов, Е.В. Журов, С.Ю. Таскаев

**Напыление литиевого слоя
нейтроногенерирующей мишени**

B. Bayanov, V. Belov, E.Zhoorov, S. Taskaev

**Lithium layer evaporation
on neutron producing target**

ИЯФ 2007-3

Ответственный за выпуск А.М. Кудрявцев

Работа поступила 16.01.2007 г.

Сдано в набор 17.01.2007 г.

Подписано в печать 18.01.2007

Формат 60x90 1/16 Объем 0.7 печ.л., 0.6 уч.-издл.

Тираж 125 экз. Бесплатно. Заказ № 3

Обработано на IBM PC и отпечатано

на ротапринтере "ИЯФ им. Г.И. Будкера" СО РАН

Новосибирск, 630090, пр. Академика Лаврентьева, 11