

医院中子照射器 PGNAA 系统初步设计及测量

张紫竹^{1,2}, 李立华³, 高集金², 付金树²

(1. 中国原子能科学研究院中国核工业北京四〇一医院, 北京 102413; 2. 北京凯佰特科技有限公司, 北京 102413;
3. 中国原子能科学研究院计量测试部, 北京 102413)

[摘要] 完成了医院中子照射器(IHNI)瞬发 γ 中子活化分析(PGNAA)系统的初步设计,并按照设计完成系统搭建。该系统探测器屏蔽部分和中子束屏蔽部分内层均为天然LiF粉末,外层为铅屏蔽层。使用该系统进行的硼浓度测量实验结果表明,该系统可测量 ^{10}B 浓度为10 ppm($1\text{ ppm} = 10^{-6}$),体积为2 mL的样品, ^{10}B 元素测量灵敏度为 $0.822\text{ cps}(\text{s}^{-1})/\text{ppm}$ 。同时发现天然LiF粉末会在待测能区产生较高本底,影响测量精度。

[关键词] 硼中子俘获治疗; IHNI; PGNAA; 硼浓度; 屏蔽

[中图分类号] TL3 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1009-1742(2012)08-0028-05

1 前言

动物实验和临床试验都证明硼中子俘获治疗(boron neutron capture therapy, BNCT)过程中血液中 ^{10}B 的含量和肿瘤组织以及正常组织中 ^{10}B 的含量成一定比例^[1],所以通过测量血液中硼的含量可以推算出肿瘤组织和正常组织中硼的含量,且 ^{10}B 产生的剂量是患者接受总剂量的主要组成部分,因而准确测量 ^{10}B 的含量是准确计算患者所接受剂量的前提。

瞬发 γ 中子活化分析(prompt gamma neutron activation analysis, PGNAA)方法利用中子束轰击血液样品,样品中 ^{10}B 俘获中子后生成激发态 $^7\text{Li}^*$,其在 10^{-14} s 内退激,释放出能量为 0.478 MeV 的瞬发 γ 射线,通过高纯锗(HPGe)探测器探测瞬发 γ 射线,根据特征峰的能量和强度(峰面积)对 ^{10}B 浓度定量分析。该方法具有测量精度较高、速度快的特点,可以实现BNCT治疗过程中在线快速测量血硼浓度。国际上日本KUR^[2],美国MIT^[3,4],瑞典的SINQ^[5-7],韩国的SNU-KAERI^[8]等都已建立了PGNAA系统用以测量 ^{10}B 及其他元素含量。

医院中子照射器是专门设计用于BNCT的中子源装置,其共有3条中子束流:热中子束、超热中子

束和分析束,其中热中子束和超热中子束主要用于患者治疗照射,分析束是专门为用PGNAA方法测量硼浓度而设计建造的。笔者等根据医院中子照射器测量束实际参数,初步设计医院中子照射器PGNAA系统,并进行了硼浓度测量实验。

2 医院中子照射器 PGNAA 系统初步设计

2.1 系统组成

医院中子照射器PGNAA系统主要分为两部分:HPGe探测器及其电子学系统和屏蔽系统。笔者等利用现有的HPGe谱仪及电子学系统,主要进行了屏蔽系统的设计,其中包括中子束屏蔽、探测器屏蔽和中子捕集装置3部分。

医院中子照射器PGNAA系统主要用于测量微量硼-10元素含量,需要低本底的测量环境。测量时本底主要来自3个方面:a. 从中子引出孔道周边缝隙的泄露和从地板和墙壁散射的中子及二次 γ 射线形成的环境本底;b. 热中子束上的中子和 γ 射线通过在样品上反应及分析室中散射产生的中子及 γ 射线进入探测器形成本底;c. 中子与血液中的杂质元素作用发生(n, γ)反应形成本底,如 $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反应放出能量为 0.475 MeV 的瞬发 γ 射线。屏蔽系统设计主要考虑减少前两种本底。

[收稿日期] 2012-05-26

[作者简介] 张紫竹(1983—),女,河北保定市人,助理研究员,研究方向为辐射医学物理;E-mail: zizhuzhang@163.com

因此医院中子照射器 PGNAA 系统屏蔽系统三部分的主要作用是: a. 中子束屏蔽装置: 准直中子束, 保证到达样品处的中子注量率尽量大, 同时减少散射中子; 减少反应堆开启状态下分析室漏射中子及二次 γ 射线进入测量系统。 b. 探测器屏蔽装置: 减少散射中子对 HPGe 探测器的损伤, 同时屏蔽散射 γ 射线。 c. 中子捕集器: 吸收束上中子, 减小中子散射, 同时降低测量室内剂量水平, 减小操作人员受照剂量。

2.2 材料选择

由前面分析可知: PGNAA 屏蔽装置设计主要考虑吸收散射中子和二次 γ 射线。

医院中子照射器分析束为热中子束, 束孔直径 2 cm, 热中子通量密度设计值 $\varphi_{th} (< 0.4 \text{ eV}) = 3.08 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 方向性 $J_n^+ / \varphi_n = 96.8 \%$ 。因此设计时以屏蔽热中子为主。

常用热中子屏蔽材料一般含有硼元素、锂元素或氢元素。虽然 ^{10}B 的热中子截面 (3 838 b) 比 ^6Li (942 b) 大, 天然丰度也大于 ^6Li , 但是 ^{10}B 为待测元素, 会直接影响测量结果; 由于测量时会使用硼/氢光峰比, 所以屏蔽材料中不能含有 H 元素。因此选用含锂材料作为该系统热中子吸收材料。

常用的含锂材料有: 含锂聚乙烯, LiF 粉末和 Li_2CO_3 粉末。含锂聚乙烯易机械加工, 但因其含有 H 元素, 不能使用在本系统中; Li_2CO_3 粉末可以溶于水, 且 Li 元素质量百分比低于 LiF, 因此选用 LiF。此外由于含 ^6Li 材料的购买受到严格控制且造价高, 最终选择天然 LiF 作为热中子吸收材料。

对于二次 γ 射线的屏蔽, 测量室内 γ 射线主要来自于墙面重混凝土屏蔽层漏射, 混凝土漏射 γ 射线主要来自于混凝土中的氢俘获中子产生

2.224 MeV 的 γ 射线以及重混凝土中的铁俘获中子产生 2 ~ 3 MeV 的 γ 射线。采用低本底测量通用的 10 cm 厚铅屏蔽层屏蔽此能量下的 γ 射线。

2.3 系统设计

首先根据已有探测器情况和测量室实际情况设计样品位置, 探测器摆放方向等。HPGe 探测器冷指为水平方向, 因此设计探测器水平中心高度与束流中心高度一致, 且垂直于中子束流。样品摆放于位于中子束流上, 探测器正前方, 应尽量靠近中子束流孔道出口。

中子吸收材料为天然 LiF 粉末, 其实际封装密度 $\rho = 1.0 \text{ g/cm}^3$ 。对于中子束和探测器屏蔽装置, 采用厚度为 3 cm 的 LiF 粉末, 热中子通量下降倍数为 $1.59\text{E} + 02$; 对于中子捕集装置, 采用厚度为 20 cm 的 LiF 粉末, 热中子通量的下降倍数为 $4.67\text{E} + 14$ 。所有 LiF 粉末均封装于厚度为 3 mm 的聚四氟乙烯盒内。

图 1 为医院中子照射器 PGNAA 系统初步设计示意图。样品摆放位置距束流出口 45 cm, 距探测器铍窗表面 6 cm, 水平高度 110 cm。中子束屏蔽系统中心为直径 3 cm, 壁厚 3 mm 的圆柱形空心聚四氟乙烯管, 长度为 60 cm。管外为最小厚度为 3 cm 的 LiF 粉末, 封装于长方体聚四氟乙烯盒内, 横截面为边长是 12 cm 的正方形。中子捕集装置总长 20 cm, 也由聚四氟乙烯盒组成, 横截面也为边长是 12 cm 的正方形。最外层为 10 cm Pb 屏蔽层。探测器屏蔽系统结构与束屏蔽系统相同, 也为双层屏蔽结构, 但探测器前端增加厚度为 2 mm 的 $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 粉末, 粉末封装于 Al 盒内。图 2 为屏蔽系统搭建完成后的照片。

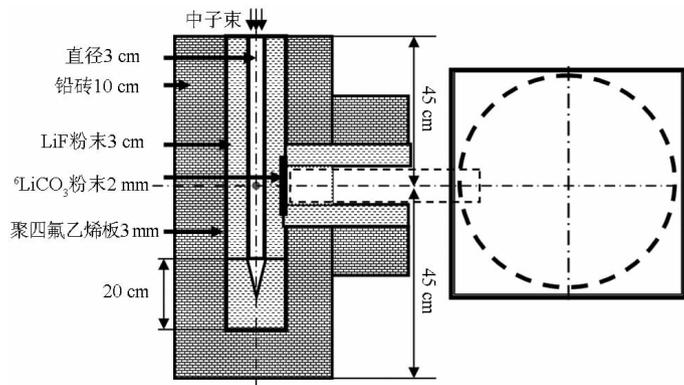


图 1 医院中子照射器 PGNAA 系统初步设计图

Fig. 1 Diagram of preliminary designed PGNAA system of IHNI



图2 按初步设计方案搭建的
PGNAA 屏蔽系统照片
Fig.2 The photo of PGNAA
system as the design

3 硼浓度测量实验

3.1 实验方法

当热中子束轰击样品时,样品中的 ^{10}B 发生 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^*$ 反应, $^7\text{Li}^*$ 在 10^{-14} s 内退激。一般血液样品中 ^{10}B 和 H 分布均匀,中子轰击样品后, $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^*$ 反应和 $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$ 反应所产生的瞬发 γ 射线计数之比与中子束的参数(中子注量率、中子能谱和中子束均整性等)无关。所以 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^*$ 反应产生瞬发 γ 射线的计数与 $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$ 反应所

产生的瞬发 γ 射线的计数之比正比于样品中 ^{10}B 和 H 的浓度之比。待测样品的 ^{10}B 可由标准样品的 $^{10}\text{B}/\text{H}$ 光峰比推出。该方法属于相对测量方法,用该方法测量未知样品中的血硼浓度时结果与中子束参数无关,与HPGe探测器的探测效率无关。对样品的量以及样品容器的几何尺寸无严格要求,但样品的量会影响到测量结果的统计误差。文章使用样品由标准硼酸溶液配制。

3.2 实验装置

实验使用HPGe γ 射线探测器型号为Ortec-GMX35P4,高纯锗晶体尺寸为 $\phi 58.8 \times 80.0\text{ mm}^3$,Be窗厚0.5 mm。实测 ^{60}Co 1.332 MeV特征峰半高宽FWHM = 1.82 MeV,峰康比65:1。图3为HPGe探测器电子学线路框图。屏蔽系统如上所述。标准样品由硼标准溶液加去离子水配置而成。样品容器为圆柱形聚四氟乙烯瓶。由于束流出口直径为2 cm,因此样品溶液高度应小于2 cm,瓶直径小于2 cm,因此样品容器直径为16 mm,高30 mm。同时考虑尽量增加计数率因此实验选用2 mL样本进行测量。由血液样本中添加不同质量硼酸得到含硼血液。

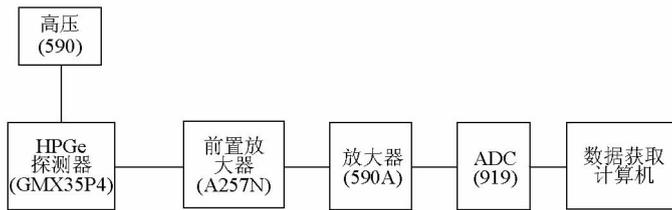


图3 HPGe探测器电子学线路框图

Fig.3 Electronic circuit diagram of HPGe detector

3.3 实验结果

测量样品时,反应堆功率30 kW,分析室HPGe探测器一侧环境 γ 剂量率 $< 7\mu\text{Sv/h}$,中当量剂量率 $< 3\mu\text{Sv/h}$ 。图4为满功率情况下测量50 ppm ^{10}B ,测量时间600 s, γ 射线全谱。

实验主要测量了不同 ^{10}B 浓度样本。图5为测量硼-10浓度为10 ppm,50 ppm标准样品,水和空瓶时450~550 keV能量段 γ 能谱。 ^{10}B 多普勒展宽峰能段计数由多到少依次为50 ppm标样、10 ppm标样、水样品和空样品瓶。

该能谱表明使用该系统可以分辨 ^{10}B 浓度为

10 ppm,体积为2 mL的样品。但同时也发现在只放置空瓶和样品为水时依然可以探测到较高的 ^{10}B 0.478 MeV多普勒展宽峰(0.470~0.485 MeV)。此外反应堆满功率运行情况下还测量了2 mL血液样品,如图6所示。含50 ppm ^{10}B 血液样本与50 ppm标样测量结果基本一致。血液中含有Na,会发生 $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ 反应,产生能量为475 keV的 γ 光子,但其热中子截面较小,该能量光峰湮没于本底中。单纯血液样本计数明显少于50 ppm ^{10}B 血液样本与50 ppm标样。

反应堆满功率30 kW运行,50 ppm ^{10}B 样品净

计数率为 41.578 ± 0.658 cps; 2 mL, 10 ppm ^{10}B 样品净计数率为 8.223 ± 0.386 cps。 ^{10}B 元素测量灵敏度为 0.822 cps/ppm。

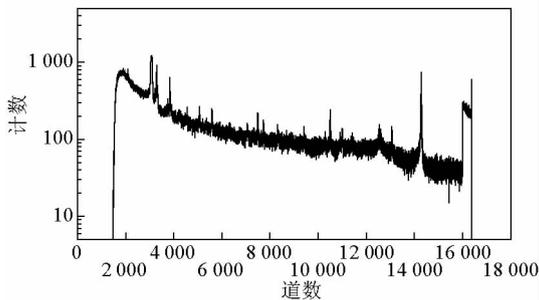


图4 满功率情况下测量 50 ppm ^{10}B 2 mL 样品 600 s 得到 γ 射线全谱图

Fig. 4 γ -ray full spectra of 50 ppm ^{10}B 2 mL sample with measuring time 600 s for the reactor at full power

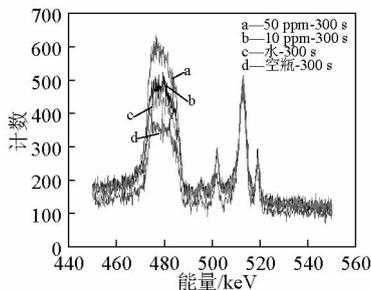


图5 满功率情况下测量不同 ^{10}B 浓度 2 mL 样品 300 s 得到的 γ 能谱图

Fig. 5 γ -ray spectra of 2 mL sample of different ^{10}B concentrations with measuring time of 300 s

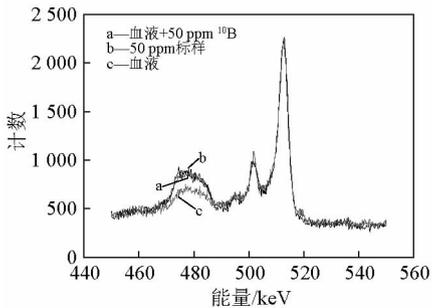


图6 满功率情况下测量 2 mL 血液样品及标样 300 s 得到的 γ 能谱图

Fig. 6 γ -ray spectra of 2 mL blood sample and standard sample with measuring time of 300 s

4 讨论

根据测量结果可知, ^{10}B 光峰能段本底较高, 该本底可能产生的原因有: a. 系统所用材料中杂质 ^{10}B ; b. 除 ^{10}B 外其他元素产生激发态 $^7\text{Li}^*$ 其退激产生 0.478 MeV 多普勒展宽峰。

如图 7 所示, 将系统中所用材料做成样品放入系统中测量, 由图可知 LiF 样品产生计数最多, 铝样品和空样品瓶在本能段计数基本相同且均少于 LiF 样品。LiF 屏蔽系统中子吸收体正为此种材料。根据 ^7Li 各反应道反应截面, 中子能量大于 0.5 MeV 时会发生 $^7\text{Li}(n, n')^7\text{Li}^*$ 反应, 反应截面小于 1 b, 该反应产生的激发态 $^7\text{Li}^*$ 退激同样产生 0.478 MeV 的 γ 射线。

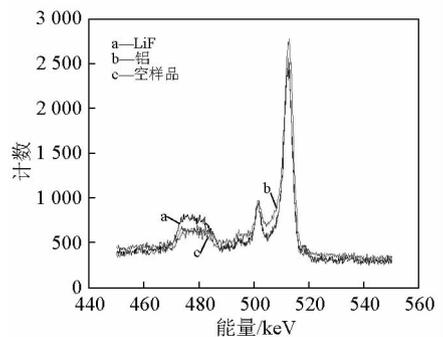


图7 满功率情况下测量不同样品 600 s 得到的 γ 能谱图

Fig. 7 γ -ray spectra of samples of different materials with measuring time of 300 s

虽然 $\text{Li}(n, n')^7\text{Li}^*$ 反应截面较 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}^*$ 截面小 3~4 个量级, 但由于分析束根据计算值能量大于 0.5 MeV 中子的通量密度约 $6.1 \times 10^3 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 且 LiF 用量很大, 样品室体积较小, 因此该反应造成影响不可忽略。

如果在吸收中子的同时又要避免使用硼和锂作为吸收体, 而镉等中子吸收材料在吸收中子的同时会产生大量的 γ 光子, 使得探测器的死时间过大, 不利于测量。因此考虑在 LiF 中子吸收层内侧添加 γ 屏蔽层, 该材料应具备以下 3 个特点: a. 中子截面小; b. γ 射线屏蔽能力强; c. 与中子反应不产生 0.478 MeV 能区附近的二次 γ 射线。此外, 应考虑增大样品室体积, 减少散射中子及屏蔽材料产生二次 γ 射线进入探测器的几率。

参考文献

- [1] Hatanaka H, Nakagawa Y. Clinical results of long-surviving brain tumor γ patients who underwent boron neutron capture therapy [J]. *Int J Radiat Oncol Biol Phys*, 1994, 28(5): 1061–1066.
- [2] Kobayashi T, Kandak. Microanalysis system of PPM – order ^{10}B concentration in Tissue for neutron capture therapy by prompt gamma – ray spectrometry [J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 1983, 204(2–3):525–531.
- [3] Harling O K, Chabeuf J M, Lambert F, et al. A prompt gamma neutron activation analysis facility using a diffracted beam [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Phys Res – Section B*, 1993, 83(4):57–61.
- [4] Riley K J, Harling O K. An improved prompt gamma activation analysis facility using a focused diffracted neutron beam [J]. *Nucl Instr Meth*, 143: 414–421.
- [5] Crittin M, Kern J, Schenker J L. The new prompt gamma – ray activation facility at the Paul Scherrer Institute [J]. *Switzerland Nucl. Instr. and Meth. A*, 2000, 449(1–2):221–236.
- [6] Byun S H, Choi H D. Design features of a prompt gamma neutron activation analysis system at HANARO [J]. *Radioanal. Nucl. Chem*, 2000, 244(2):413–416.
- [7] Byun S H, Sun G M, Choi H D. Development of a prompt gamma activation analysis facility using diffracted polychromatic neutron beam [J]. *Nucl Instr and Meth*, 2002, 487(3): 521–529.
- [8] Byun S H, Sun G M, Choi H D. Beam characteristics of polychromatic diffracted neutrons used for prompt gamma activation analysis [J]. *Korean Nucl Soc*, 2002, 34(1):30–42.

PGNAA system preliminary design and measurement of IHNI

Zhang Zizhu^{1,2}, Li Lihua³, Gao Jijin², Fu Jinshu²

(1. China Nuclear Industry Beijing 401 Hospital of China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China; 2. Beijing Capture Technology Co. Ltd., Beijing 102413, China; 3. Irradiation Metrology Division of China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

[**Abstract**] The preliminary design of PGNAA system of IHNI was completed and the system in accordance with the design was set up. For both detector shielding part and the neutron beam shielding part, the inner layer was natural LiF powder and the outer was lead. Then boron concentration measurement experiments using this system were finished. The results show that the the system can measure ^{10}B concentration of 10 ppm, with 2 mL of the sample volume. ^{10}B element measurement sensitivity was 0.822 cps/ppm. Also it was found that the natural LiF powder would produce a high background in the target part of the energy spectrum and affect the measurement accuracy.

[**Key words**] BNCT; IHNI; PGNAA; boron concentration; shielding