

BNCT 医院中子照射器辐射场特性参数初步测量

陈 军¹, 李春娟¹, 宋明哲¹, 李 玮¹, 姚顺和¹,
刁立军¹, 姚艳玲¹, 张紫竹², 高集金², 张灏凡²

(1. 中国原子能科学研究院, 北京 102413; 2. 北京凯佰特科技有限公司, 北京 102413)

[摘要] 为验证 BNCT 医院中子照射器的设计效果, 对其辐射场的特性参数如中子能谱、中子通量密度及其空间分布、中子和 γ 吸收剂量率及其空间分布等进行了测量。针对该照射器的特点, 建立了一套由多球谱仪、²³⁵U 裂变电离室、金箔、组织等效正比计数器和热释光探测器组成的测量系统, 利用蒙特卡洛计算方法优化设计探测器的结构, 以提高超热能区的分辨率和甄别不同能量成分中子的能力。初步测量结果表明, 该照射器的中子通量密度达到了预期设计要求。

[关键词] BNCT 医院中子照射器; 中子能谱; 中子通量密度; 中子和 γ 吸收剂量率

[中图分类号] TP393 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1009-1742(2012)08-0106-07

1 前言

自 G. L. Locher 提出中子俘获治疗 (neutron capture therapy, NCT) 的概念后^[1], 其潜在的治疗功效备受人们关注。硼中子俘获治疗 (boron neutron capture therapy, BNCT) 是基于 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反应的二元疗法, 即将亲肿瘤细胞的含硼药物注射入病人血液中, 含硼药物在肿瘤细胞中聚集, 利用热中子或超热中子轰击病灶区, 与同位素 ^{10}B 反应产生具有较高能量的 α 粒子和反冲 ^7Li 核, 从而有选择性地杀死肿瘤细胞。目前, 我国首个用于临床治疗的 BNCT 医院中子照射器 I 型 (in-hospital neutron irradiator mark 1, IHNI-1) 已建造完毕, 但需开展照射器辐射场特性参数测量, 以验证照射器的设计效果并确定辐射源项, 为进一步开展临床生物剂量学试验研究奠定基础。

2 照射器结构与设计指标

IHNI-1 主体为 30 kW 的微型反应堆, 对称方向设置热中子和超热中子两个照射孔道, 标准孔径为 $\phi 12$ cm, 并由热中子孔道切向引出一条实验孔道,

孔径为 $\phi 3$ cm, 用于血硼浓度分析, 如图 1 所示。

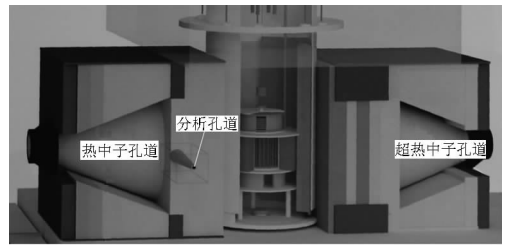


图 1 医院中子照射器 I 型结构示意图

Fig. 1 Structure diagram of IHNI-1

该照射器中子通量密度设计指标:

- 1) 热中子孔道口中心处热中子通量密度:
 $\geq 1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;
- 2) 超热中子孔道口中心处超热中子通量密度:
 $\geq 2.5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;
- 3) 实验孔道口中心处热中子通量密度: $\geq 1 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

3 实验方案设计

国际上针对 BNCT 照射器辐射场特性参数测量未形成通用的标准测量方法, 而是根据各自照射器

[收稿日期] 2012-06-14

[作者简介] 陈 军(1971—), 男, 辽宁沈阳市人, 研究员, 主要研究方向为中子计量学; E-mail: cj332@163.com

的特点,研发适当的测量装置,主要包括阈活化箔探测器^[2]、多球谱仪^[3,4]、气泡探测器^[5]、中子飞行时间测量系统^[6,7]、共振吸收过滤装置^[8]、电离室^[9,10]、带有中子转换体的半导体或闪烁体探测器^[11,12]、中子和 γ 成像装置^[13]、热释光剂量计(thermoluminescent dosimetry, TLD)^[14]、组织等效正比计数器(tissue equivalent proportional counters, TEPC)^[15,16]、电子自旋共振谱仪^[17]、硫酸亚铁剂量计^[18]等。本着充分利用现有资源,自主研发的原则,根据 IHNI-1 的特点,开展相关测量技术研究。

3.1 中子能谱测量

采用多球谱仪测量热中子孔道和超热中子孔道中子能谱。除已建常规多球谱仪(包括裸³He 正比计数器及将其置于 2.5 ~ 12 in 聚乙烯球中共 10 个探测单元)外(1 in = 25.4 mm),为提高谱仪在超热能区的分辨率,利用 MCNP - 4C 程序优化设计了 4 个包硼壳(1 mm 铝包裹天然 B₄C 粉末)探测单元,分别为 4 mm、10 mm、30 mm 厚硼壳包裹 3 in 球和 40 mm 厚硼壳包裹 4 in 球,如图 2 所示。计算了各探测单元的响应函数,如图 3 所示,并经过²⁵²Cf 中子源校准和验证。

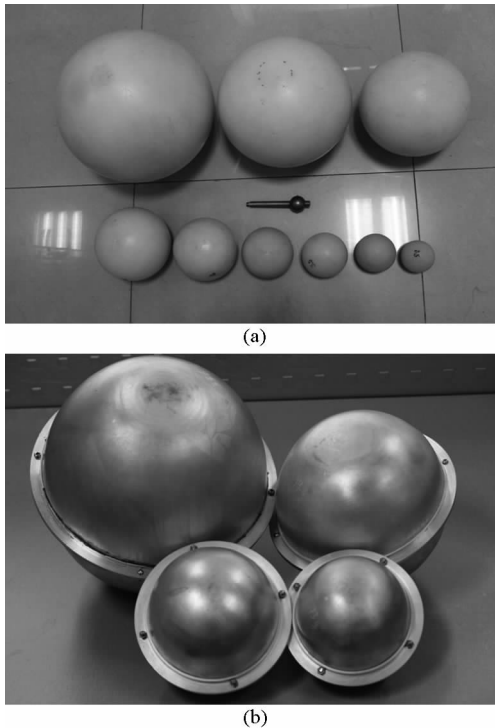


图 2 多球谱仪的探测单元

Fig. 2 Detection units of the multi-sphere spectrometer

由于孔道口处中子束不能覆盖所有探测单元,

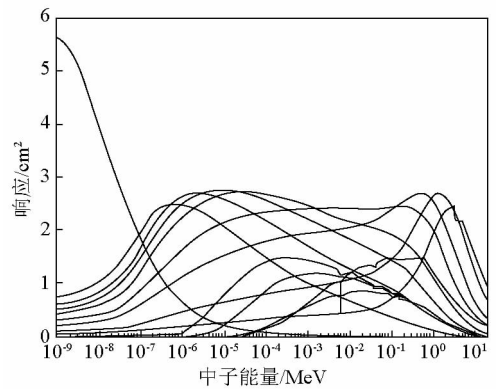


图 3 多球谱仪响应函数

Fig. 3 Response functions of the multi-sphere spectrometer

且多球谱仪探测效率高,无法选择适当的反应堆功率消除死时间过大的影响,为此设计的实验方案如下:

1) 在孔道口处增加一个 $\phi 3$ cm 的小准直器进行限束,小准直器结构如图 4 所示。探测单元距准直器口 110 cm 处进行测量,在反应堆运行于最小稳定功率时(此时堆芯通量密度为 $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,反应堆最大功率时堆芯通量密度为 $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$),各探测单元计数率死时间影响均小于 10%,同时,测量位置的中子束可覆盖所有探测单元。

2) 由于 IHNI-1 照射器孔道为锥形准直,中子束呈发散状分布,因而需利用蒙特卡洛方法将各探测单元的计数率从不均匀束修正到均匀束。

设计的小准直器应满足以下条件:a. 准直器具有良好的限束效果;b. 准直器对中子能谱没有较大改变。为此,利用 MCNP - 4C 程序对其进行了模拟分析(源项为设计计算的中子能谱),结果如图 5 和图 6 所示。对于热中子束和超热中子束,从准直器屏蔽层透射的中子分别占总中子数的 0.08% 和 0.15%,且对中子能谱未产生较大影响。

3.2 中子通量密度测量及其空间分布

利用¹⁹⁷Au 箔和²³⁵U 裂变电离室测量中子通量密度及其空间分布。为实现不同能区中子通量密度的测量,利用裸¹⁹⁷Au 箔和包镉(1 mm 厚)¹⁹⁷Au 箔测量热中子(0.5 eV 以下)和超热中子(0.5 eV ~ 10 keV)通量密度,计算公式如式(1)和式(2)。利用 30 mm 厚硼壳(1 mm 镉包裹天然 B₄C 粉末)包裹²³⁵U 裂变电离室测量快中子(10 keV 以上)通量密度,计算公式如式(3)。

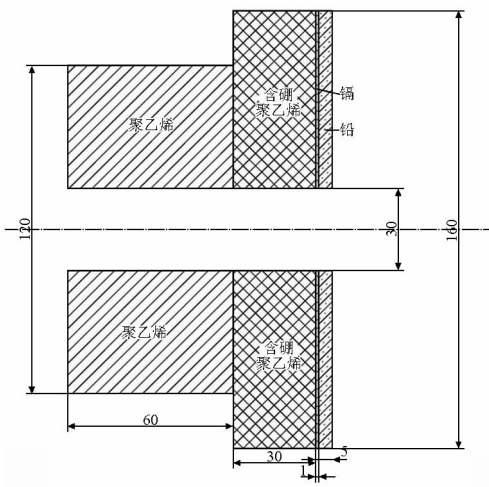
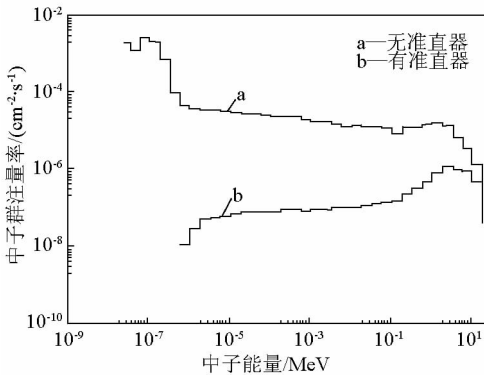
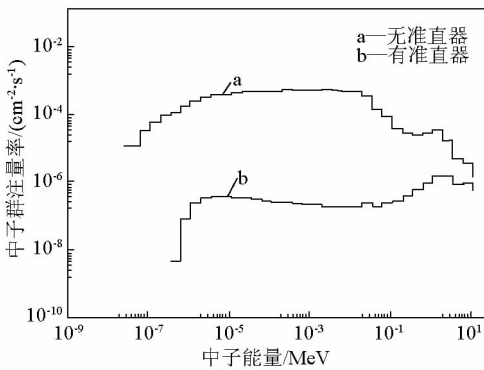


图4 $\phi 3$ cm 孔径小准直器结构示意图(单位:mm)
Fig.4 Structure diagram of the small collimator with a $\phi 3$ cm aperture(unit:mm)



(a) 热中子孔道结果



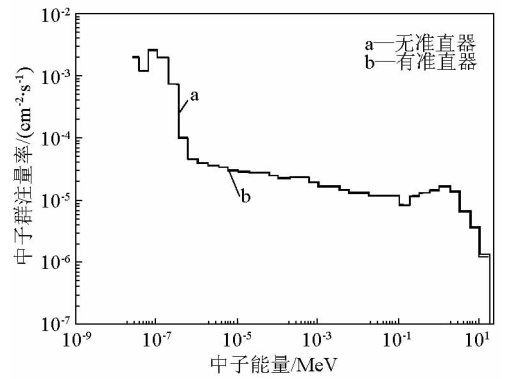
(b) 超热中子孔道结果

图5 小准直器的限束效果模拟计算

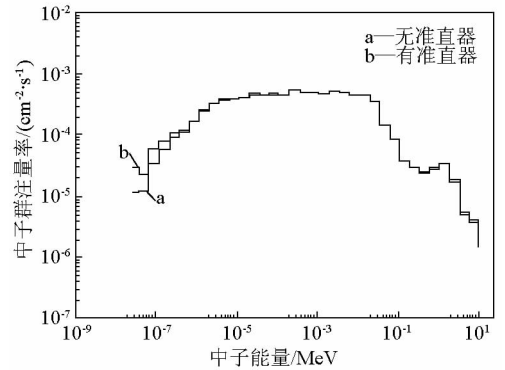
Fig.5 Simulation of the limitation of neutron beams with the small collimator

$$\phi_{th} = \frac{k \cdot A \cdot e^{\lambda t_c}}{N_{Au} \cdot \sigma_{(n,\gamma),th} \cdot (1 - e^{-\lambda t_r})} \quad (1)$$

式(1)中, k 为修正因子; A 为归一化辐照条件并按



(a) 热中子孔道结果



(b) 超热中子孔道结果

图6 小准直器对中子能谱的影响模拟计算

Fig.6 Simulation of the influence of neutron spectra with the small collimator

比活度扣除包镅金箔活度后,裸金箔测量时刻的活度; λ 为 ^{198}Au 的衰变常数; N_{Au} 为裸金箔内 ^{197}Au 的原子核数目; $\sigma_{(n,\gamma),th}$ 为 $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ 反应在热能区的谱平均截面; t_r 和 t_c 分别为裸金箔的辐照时间和冷却时间。

$$\phi_{epi} = \frac{k \cdot A_{Cd} \cdot e^{\lambda t_c^{Cd}}}{N_{Au}^{Cd} \cdot \sigma_{(n,\gamma),epi} \cdot (1 - e^{-\lambda t_r^{Cd}})} \quad (2)$$

式(2)中, A_{Cd} 为包镅金箔测量时刻的活度; N_{Au}^{Cd} 为包镅金箔内 ^{197}Au 的原子核数目; $\sigma_{(n,\gamma),epi}$ 为 $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ 反应在超热能区的谱平均截面; t_r^{Cd} 和 t_c^{Cd} 分别为包镅金箔的辐照时间和冷却时间。

$$\phi_f = F/R_f \quad (3)$$

式(3)中, F 为经阈下损失修正后的裂变碎片计数率; R_f 为包镅盒后裂变电离室的注量响应。

计算了 ^{197}Au 箔在不同能区的谱平均截面(见表1)和电离室包镅壳后 ^{235}U 的有效群平均截面(见图7)。计算结果表明,通过以上设计,快中子对 ^{197}Au 箔以及热中子和超热中子对 ^{235}U 裂变电离室的

测量影响得到有效控制。利用²³⁵U 裂变电离室扫描测量孔道外中子通量密度空间分布,利用¹⁹⁷Au 箔测量孔道内中子通量密度空间分布。

表 1 ¹⁹⁷Au 在不同能区的谱平均截面

Table 1 Spectrum-averaged cross sections of ¹⁹⁷Au in different energy ranges

中子能量	谱平均截面/b	
	热中子孔道	超热中子孔道
0.5 eV 以下	95.8	52.0
0.5 eV ~ 10 keV	195	143
10 keV 以上	0.294	0.622

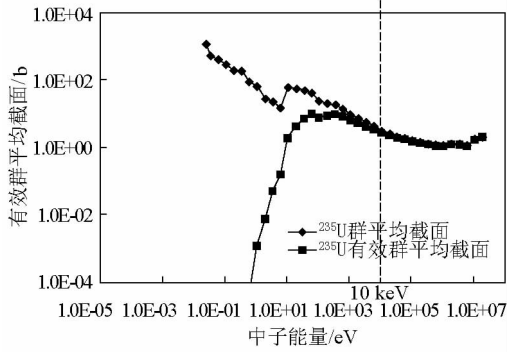


图 7 ²³⁵U 裂变电离室包 30 mm 厚硼壳后 ²³⁵U 的有效群平均截面

Fig. 7 Effective group-averaged cross sections of ²³⁵U while the ²³⁵U fission chamber covered by a 30 mm thick boron shell

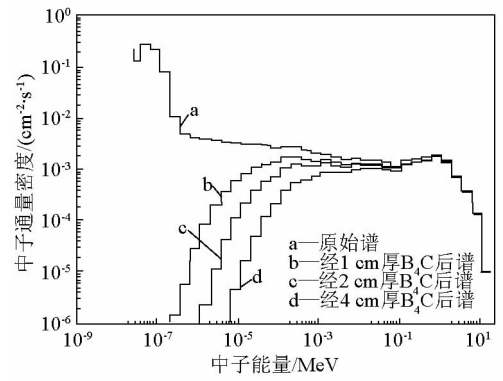
3.3 中子和 γ 射线吸收剂量率及其空间分布测量

利用 TLD-600 和 TLD-700(美国 Harshaw 公司)和 TEPC(美国 Far West 公司的 LET-1/2 型)测量中子及 γ 射线的吸收剂量率及其空间分布。其中,利用 TLD(裸和包镅)测量热中子、超热中子和 γ 射线剂量率,利用包 40 mm 厚硼壳(1 mm 铝包裹天然 B₄C 粉末)的 TEPC 测量快中子剂量率。并利用热中子参考辐射场、¹³⁷Cs γ 源和 ²⁵²Cf 中子源对 TLD 和 TEPC 进行校准和线能刻度。

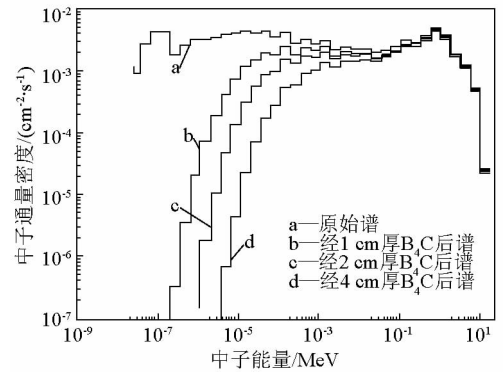
利用 MCNP-4C 程序优化设计 TEPC 探测系统结构。计算不同厚度硼壳对中子通量密度的衰减情况,如图 8 所示,结果表明,40 mm 厚的硼壳对热中子孔道和超热中子孔道 10 keV 以下中子通量密度分别衰减了 180 倍和 10 倍,而对 10 keV 以上中子只衰减了 20 %。

4 初步测量结果

对各照射孔道中子通量密度及其空间分布和镅



(a) 热中子孔道结果



(b) 超热中子孔道结果

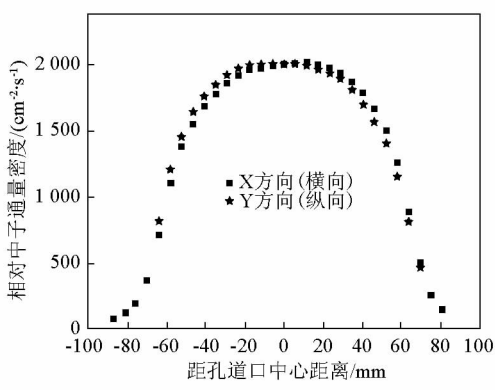
图 8 模拟计算的不同厚度硼壳对中子通量密度的衰减情况

Fig. 8 Simulation of the attenuation of neutron flux densities resulted from boron shells with different thickness

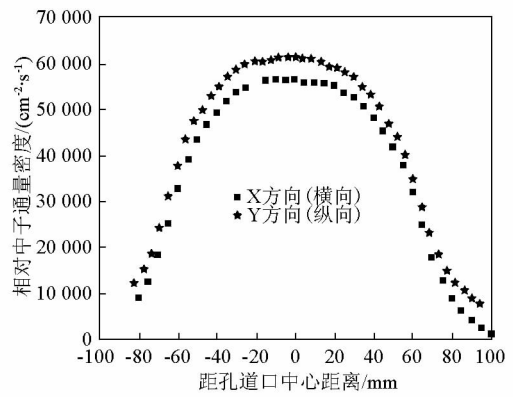
比进行了测量,结果见表 2 和图 9 ~ 图 12。

表 2 中子通量密度及其空间分布和镅比的初步测量结果
Table 2 Preliminary results of neutron flux densities and their spatial distributions and cadmium-ratio

参数	热中子孔道	超热中子孔道	实验孔道
热中子通量密度/ (cm ⁻² · s ⁻¹) (0.5 eV 以下)	1.92 × 10 ⁹	9.11 × 10 ⁷	3.08 × 10 ⁶
超热中子通量密度/ (cm ⁻² · s ⁻¹) (0.5 eV ~ 10 keV)	1.06 × 10 ⁸	3.53 × 10 ⁸	—
快中子通量密度/ (cm ⁻² · s ⁻¹) (10 keV 以上)	7.17 × 10 ⁷	1.32 × 10 ⁸	—
金镅比	7.8	1.1	7.4
锰镅比	37.7	1.2	—



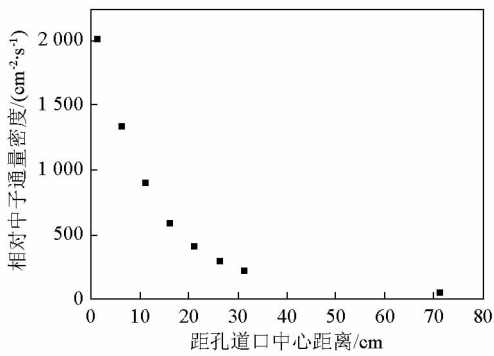
(a) 热中子孔道结果



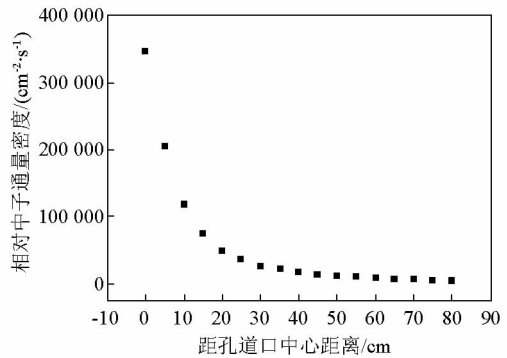
(b) 超热中子孔道结果

图 9 孔道口处中子通量密度径向空间分布

Fig. 9 Radial spatial distributions of neutron flux densities at the exit of neutron beam



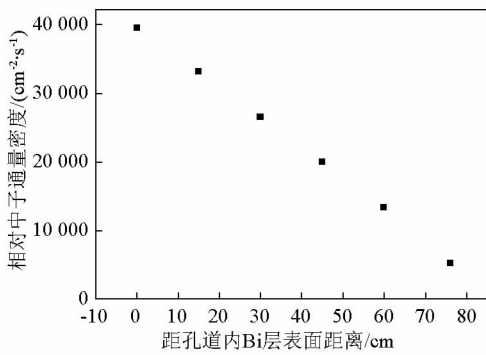
(a) 热中子孔道结果



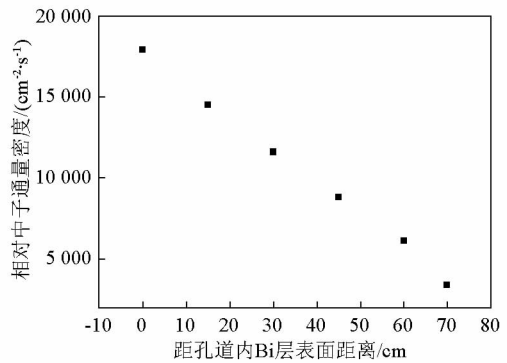
(b) 超热中子孔道结果

图 10 孔道口外中子通量密度轴向空间分布

Fig. 10 Axial spatial distributions of neutron flux densities outside the exit of neutron beam



(a) 热中子孔道结果



(b) 超热中子孔道结果

图 11 孔道口内中子通量密度轴向空间分布

Fig. 11 Axial spatial distributions of neutron flux densities inside the exit of neutron beam

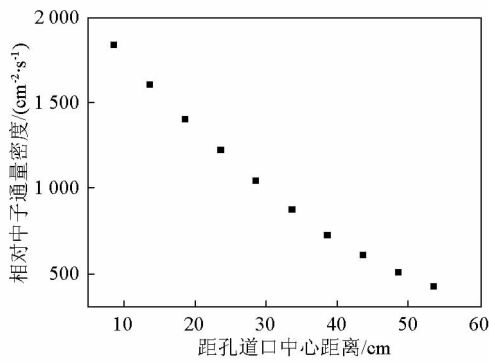


图 12 实验孔道口外中子通量密度轴向空间分布
Fig. 12 Axial spatial distributions of neutron flux density outside the exit of neutron beam for the analysis of blood-boron concentration

5 结语

针对 BNCT 医院中子照射器开展了辐射场特性参数测量方法研究,建立了相关测量装置,初步获得了各照射孔道的中子通量密度及其空间分布。结果表明,该 BNCT 照射器的中子通量密度达到了预期设计指标,为进一步开展临床研究奠定了基础。

参考文献

[1] Locher G L. Biological effects and therapeutic possibilities of neutrons[J]. American Journal of Roentgenology, 1936, 36:1 - 13.

[2] Auterinen I, Serén T, Anttila K, et al. Measurement of free neutron spectra at eight BNCT facilities worldwide[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, 61: 1021 - 1026.

[3] Elisabetta Nava, Stefano Agosteo, Maurizio Angelone, et al. Preliminary characterization of the epithermal beam at the TAPIRO reactor[C]//Proceedings of the 13th International Conference on Neutron Capture Therapy. Florence, 2008:537 - 540.

[4] Ueda H, Tanaka H, Maruhashi A, et al. Spectral evaluation of cyclotron-based epithermal neutron irradiation field for BNCT using Bonner Sphere[C]//Proceedings of 14th International Congress on Neutron Capture Therapy. Buenos Aires, Argentina, 2010:459 - 462.

[5] Errico F d', Ciolini R, Fulvio A Di, et al. Angle- and energy-differential neutron spectrometry for the SPES BNCT facility[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(7 - 8 suppl.):141 - 144.

[6] Yasuhiro Unno, Shunsuke Yonai, Mamoru Baba, et al. Benchmark experiments on neutron moderator assembly for cyclotron-based boron neutron capture therapy[C]//Proceedings of ICNCT - 12

12th International Congress on Neutron Capture Therapy. Takamatsu, Kagawa, Japan, 2006:331 - 334.

[7] Kononov V N, Bokhovko M V, Kononov O E, et al. The time-of-flight epithermal neutron spectrum measurement from accelerator based BNCT facility[C]// Proceedings of ICNCT - 12 12th International Congress on Neutron Capture Therapy. Takamatsu, Kagawa, Japan, 2006:368 - 370.

[8] Hamidi S, Scott M C. BNCT neutron beam characterization using a resonance absorption filter method[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2002, 476:99 - 105.

[9] Antoaneta Roca, Yuan-Hao Liu, Cecile Wojnecki, et al. A preliminary inter-centre comparison study for photon, thermal neutron and epithermal neutron responses of two pairs of ionization chambers used for BNCT [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(7 - 8 suppl.):134 - 136.

[10] Fujii T, Tanaka H, Maruhashi A, et al. Study on optimization of multi ionization-chamber system for BNCT[C]//Proceedings of 14th International Congress on Neutron Capture Therapy. Buenos Aires, Argentina, 2010:177 - 180.

[11] Almaviva S, Macro Marinelli, Milani E, et al. Thermal neutron dosimeter by synthetic single crystal diamond devices [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(7 - 8 suppl.): 183 - 185.

[12] Marek M, Viererbl L. Spatial characterization of BNCT beams [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, 61:1051 - 1055.

[13] Ming-Chen Hsiao, Wei-Lin Chen, Pi-En Tsai, et al. A preliminary study on using the radiochromic film for 2D beam profile QC/QA at the THOR BNCT facility[C]//Proceedings of 14th International Congress on Neutron Capture Therapy. Buenos Aires, Argentina, 2010:203 - 206.

[14] Gambarini G, Klamert V, Agosteo S, et al. Study of a method based on TLD detectors for in-phantom dosimetry in BNCT[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2004, 110(1 - 4): 631 - 636.

[15] Endo S, Onizuka Y, Ishikawa M, et al. Microdosimetry of neutron field for boron neutron capture therapy at Kyoto University reactor[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2004, 110(1 - 4): 641 - 644.

[16] Fang-Yuh Hsu, Hsiu-Wen Hsiao, Chuan-Jong Tung, et al. Microdosimetry study of THOR BNCT beam using tissue equivalent proportional counter[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(7-8 suppl.):175 - 178.

[17] Bartolotta A, M C D' Oca, B Lo Giudice, et al. Combined TL and ¹⁰B-Alanine ESR dosimetry for BNCT [J]. Radiation Protection Dosimetry, 2004, 110(1 - 4):627 - 630.

[18] Baetesaghi G, Burian J, Gambarini G, et al. Evaluation of all dose components in the LVR-15 reactor epithermal neutron beam using Fricke gel dosimeter layers [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2009, 67(7 - 8 suppl.):199 - 201.

Preliminary characterization of radiation fields of IHNI-1 for BNCT

Chen Jun¹ , Li Chunjuan¹ , Song Mingzhe¹ , Li Wei¹ ,
Yao Shunhe¹ , Diao Lijun¹ , Yao Yanling¹ ,
Zhang Zizhu² , Gao Jijin² , Zhang Yifan²

(1. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

2. Beijing Capture Technology Co. Ltd. , Beijing 102413, China)

[**Abstract**] The characteristic parameters of the neutron radiation fields produced by an in-hospital neutron irradiator for boron neutron capture therapy (BNCT), such as neutron energy spectra, neutron flux density and neutron absorbed dose rate and their spatial distributions in free air, etc., were measured to verify the design effect. According to the traits of the irradiators, a measuring system composed of a multi-sphere spectrometer, a ²³⁵U fission ionization chamber, gold foils, a tissue equivalent proportional counter and thermoluminescent detectors was established. In order to improve the energy resolution in epithermal energy range and the ability to discriminate different neutron components, the Monte Carlo method was used for optimizing the detectors. The preliminary results show that the neutron flux densities of the irradiators achieve the expected levels.

[**Key words**] in-hospital neutron irradiator for BNCT; neutron energy spectrum; neutron flux density; absorbed dose rate of neutron and γ ray