

УДК 539.1.71.002

СОЗДАНИЕ МИКРОДОЗИМЕТРОВ ДЛЯ ЛУЧЕВОЙ ТЕРАПИИ НА ОСНОВЕ СВЕРХЧИСТОГО ТЕТРАМЕТИЛСИЛАНА И ПРОВЕРКА ЕГО ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ

В. В. Сиксин¹, Ю. П. Ендовин²

Разработан и испытан вариант установки для получения образцов тетраметилсилана (TMS) и для его очистки от электроотрицательных примесей. Очищенный TMS возможно использовать в микродозиметрах при работе на терапевтических ускорителях при планировании лучевой терапии. Описана система контроля за степенью чистоты TMS по величине электропроводности и выходу свободных электронов. Микродозиметр на TMS возможно использовать совместно с детектором телевизионного типа для повышения точности измерения поглощенной дозы в области пика Брэгга.

Ключевые слова: глубинное дозное распределение, электроотрицательные примеси, “теплые жидкости”, выход свободных электронов, тетраметилсилан (TMS), жидкостные ионизационные камеры, пик Брэгга.

Введение. Работа является продолжением работ [1–3]. Первоначально предполагалось использовать разработанную технологию очистки и контроля степени чистоты TMS для применения в адронной калориметрии на ускорителе ИФВЭ. Но в последние годы при продолжении работ по изучению области применения жидкостных ионизационных камер произошло смещение интересов в область применения ионизационной камеры на TMS (в дальнейшем ИК-TMS) в качестве сверхточного дозиметра смешанного излучения.

ИК-TMS может измерять поглощенную дозу в водных фантомах в области пика Брэгга для терапевтических энергий гамма-квантов, электронов, протонов и ядер уг-

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: antktech@yandex.ru.

² ГНЦ РФ Государственный научно-исследовательский институт химии и технологии элементоорганических соединений (ГНИХТЭОС), 105118 Россия, Москва, шоссе Энтузиастов, 38.

лерода с точностью, превышающей установленную нормативными актами для лучевой терапии, так как изначально является хорошим детектором смешанных излучений. Поскольку основная проблема в лучевой терапии – это определение с требуемой точностью отпускаемой дозы в определенной точке фантома, то ИК-ТМС будет являться важным инструментом при планировании сеансов лучевой терапии.

ИК-ТМС можно изготовить в микроварианте с чувствительным объемом не более 2 мм^3 . Это позволит избежать побочных эффектов, таких как, например, гало пучка, имеющих место при применении других дозиметров в водном фантоме при планировании лучевой терапии (кремневые ИК, воздушные ИК, диоды для гамма-квантов и диоды для электронов).

По своей плотности ТМС (0.65 г/см^3) близок к плотности воды и поэтому не вносит искажений в форму энергоделиения в пике Брэгга. Подробно технология очистки ТМС для использования в ИК описана далее в настоящей работе.

Критерием степени чистоты ТМС был выбран выход свободных электронов G_{if} при облучении ИК-ТМС гамма-квантами от источника ^{137}Cs с активностью $3 \cdot 10^7$ Бк.

Была изучена форма вольт-амперной характеристики (ВАХ), т.е. выхода электронов в ИК-ТМС, зависимости от напряженности электрического поля в ИК-ТМС и от “длины прилипания электронов”.

Электропроводность и обратная ей величина – удельное сопротивление жидкости в ИК-ТМС, при наличии достаточного плато в ВАХ также является характеристикой степени очистки ТМС, применяемого в ИК-ТМС [4].

Ранее исследования “теплых жидкостей” (имеющих электронную проводимость при комнатных температурах) в качестве активной среды (АС) ионизационных детекторов были проведены в работе [5].

Основные предпосылки для использования ТМС в качестве АС состоят в том, что электроны, образованные при прохождении ионизирующей частицы, должны обладать высокой дрейфовой подвижностью и иметь достаточно большое время жизни относительно захвата электроотрицательными примесями.

Для “теплых жидкостей” концентрация электронных акцепторов не должна превышать нескольких единиц на 10^{-8} моль/л.

Система тонкой очистки. В качестве источника ТМС использовались легкокипящие фракции (ЛКФ), образующиеся в промышленном производстве метилхлорсиланов. Обычно ЛКФ содержат 50–75% ТМС, а также хлористый метил (ХМ), хлор- и метил-

хлорсиланы (МХС) и углеводороды (в основном 2-метилбутан, метан). Для получения чистого ТМС легкокипящие фракции подвергали многостадийной обработке.

Стадия 1. Ректификация. Промышленную ЛКФ дополнительно ректифицировали по стандартной методике и выделяли фракцию ТМС в узком интервале температур: 25 ± 0.5 °С. Ректифицированный продукт содержит 85.0–95.0% масс. ТМС, 4.4–14.5% масс. 2-метилбутана и 0.1–0.5% примесей ХМ и МХС.

Стадия 2. Удаление кислых примесей. Ректификат ТМС обрабатывали в емкости, снабженной обратным холодильником, 3 часа при интенсивном перемешивании 10% водным раствором NaOH; реакцию смесь отстаивали 1 час, декантировали верхний слой и дважды промывали дистиллированной водой. На этой стадии удалялись примеси ХМ, HCl и МХС.

Стадия 3. Сушка. После водной промывки концентрат ТМС дистиллировали в емкость, содержащую осушенное молекулярное сито 4 Å. Концентрат ТМС выдерживали над ситом 4 Å не менее 8 часов, после чего его декантировали в емкость для хранения.

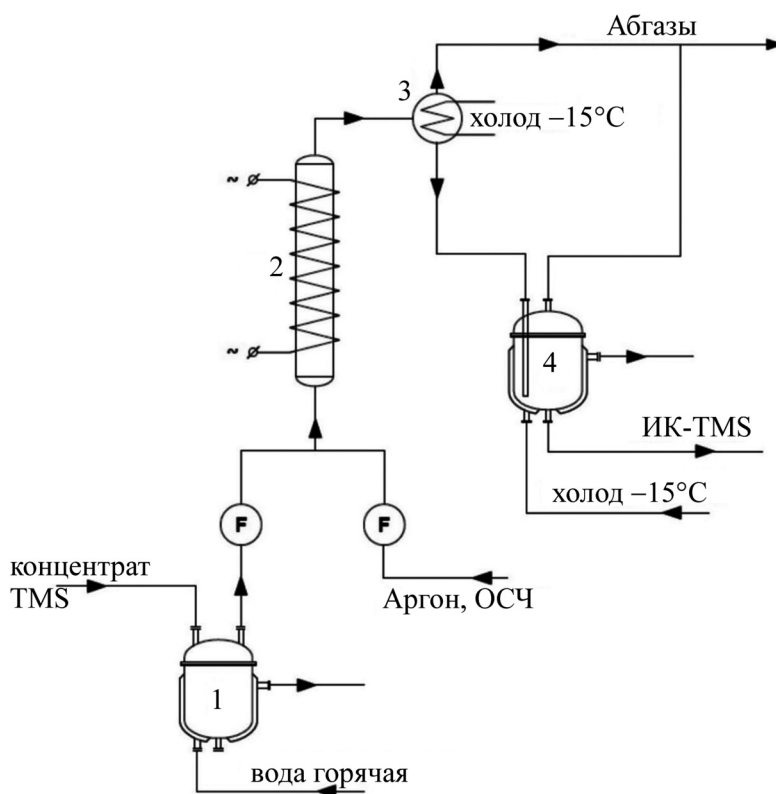


Рис. 1: Принципиальная схема очистки тетраметилсилана от примесей (Стадия 4. Адсорбционная очистка). Пояснения в тексте.

Стадия 4. Очистка концентрата TMS от 2-метилбутана (рис. 1). Для этого концентрат TMS, осушенный на стадии 3, пропускали в смеси с Ar (ОСЧ) через колонну, заполненную специально подготовленным цеолитом – морденитом.

На рис. 1 показаны: 1 – емкость с рубашкой, обогреваемая горячей водой (50–60 °С), заполненная осушенным концентратом TMS; 2 – адсорбционная колонна, заполненная молотым цеолитом морденитом (размер частиц 200–500 мкм); 3 – холодильник, охлаждаемый тосолом до минус 15 °С; 4 – приемная емкость чистого TMS (рубашка охлаждается до –15 °С); F – расходомеры.

На мордените адсорбировались следовые количества ХМ, воды и основной примеси в концентрате TMS: 2-метилбутана. Пары TMS проходили через колонну и конденсировались в емкости. Подготовка цеолита заключалась в удалении H_2O и O_2 нагреванием его до 250 °С и вакуумировании до 0.1 мм Hg в течение 4 часов. Адсорбция 2-метилбутана проводилась при 25 °С и атмосферном давлении 1–1.5 ата.

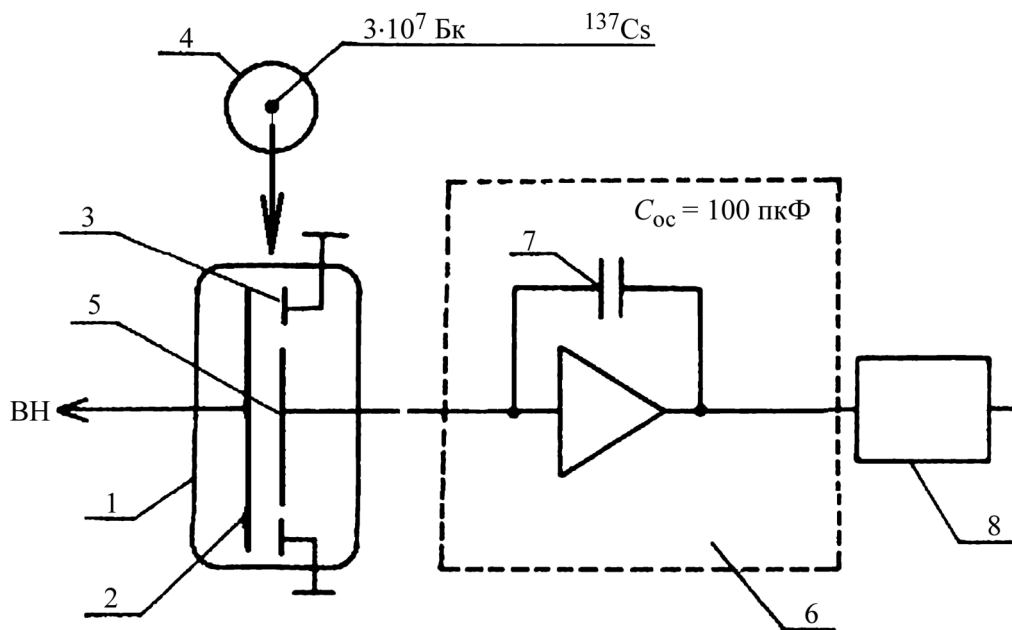


Рис. 2: Схема измерения электропроводности (свободного выхода электронов G_{if}): 1 – ИК-TMS; 2 – высоковольтный электрод диаметром 25 мм; 3 – охранный электрод; 4 – источник ионизирующего излучения; 5 – коллектор диаметром 18 мм; 6 – электрометрический усилитель типа ДРГ2-01; 7 – интегрирующая емкость операционного усилителя; 8 – вольтметр, ВН – высокое напряжение. Зазор между электродами – 1.6 мм.

Оценка качества очищенного TMS проводилась двумя методами: газожидкостной хроматографии [2] и по электропроводности в системе контроля (СК), описанной далее в настоящей работе и представляющей собой прецизионный электрометрический усилитель, позволяющий измерять токи проводимости в ИК-TMS.

Оценка качества чистого TMS с помощью системы контроля. Схема проведения эксперимента по измерению электропроводности TMS при прохождении потока гамма-квантов от источника приведена на рис. 2.

Мощность источника гамма-квантов с энергией 660 КэВ позволяет получать в рабочем объеме измерительной ячейки экспозиционную дозу, равную 20.6 мР/имп. Экспозиционное время составляло 100 с (один импульс). За время экспозиции на интегрирующей цепочке операционного усилителя собирался заряд Q , который определялся с помощью вольтметра 8 по напряжению на вторичной обкладке конденсатора C_{oc} операционного усилителя. Для каждого значения высокого напряжения (ВН) на ИК-TMS набиралась статистика и за несколько последовательных экспозиций вычислялось среднее значение Q .

На рис. 3 (верхний график) приведена разность $Q_0 - Q_T$, когда ИК-TMS облучалась источником и на нижнем графике – собираемый ИК-TMS темновой заряд (Q_T), когда источник отсутствовал (токи утечки очищенной жидкости).

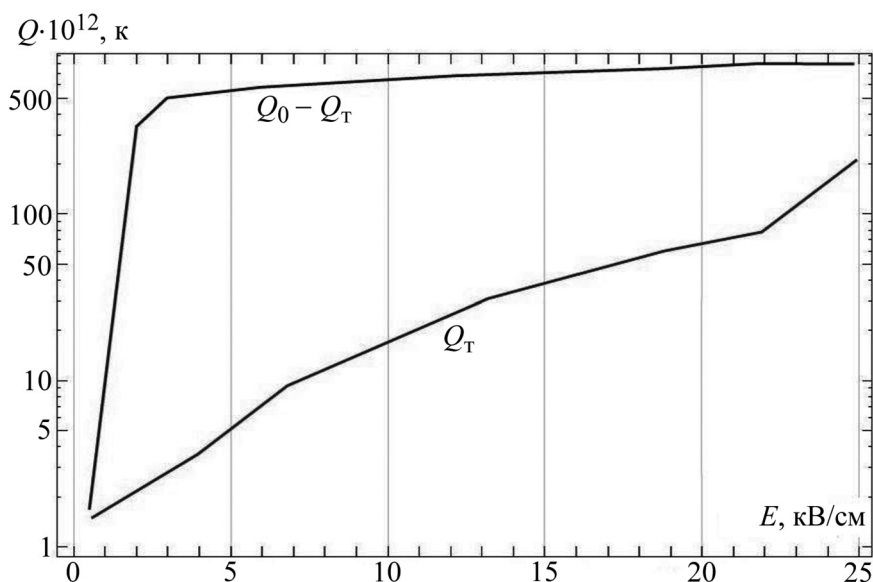


Рис. 3: Заряд, собранный ИК-TMS, в зависимости от напряженности электрического поля в виде кривых, аппроксимирующих экспериментальные точки.

Видно, что при прохождении гамма-квантов от источника верхняя кривая имеет хорошее плато по напряжению, что говорит о высокой степени очистки TMS, обеспечивающей эффективную работу ИК-TMS.

В настоящей работе были получены вольт-амперные характеристики (ВАХ), точнее, зависимости собранного заряда в ИК-TMS от высокого напряжения, подаваемого на ИК-TMS, с источником гамма-квантов и без него:

- Q_0 – заряд в кулонах, собранный в ИК-TMS при облучении ее от источника;
- Q_T – заряд в кулонах, собранный в ИК-TMS при отсутствии источника.

Вычислялась разность $Q_0 - Q_T$, представленная верхней кривой рис. 3, когда ИК-TMS облучалась источником, и на нижней кривой – собираемый ИК-TMS темновой заряд (Q_T), когда источник отсутствовал (токи утечки очищенной жидкости).

Из ВАХ следует, что в данном образце TMS наблюдается электронная проводимость, превышающая ток утечки в 5–100 раз. Кривая Q_T (заряд утечки) на рис. 3 характеризует токи утечки. Обратная ей величина характеризует удельное сопротивление (УС) и является основной величиной, характеризующей степень очистки TMS от электроотрицательных примесей.

Величины УС до и после очистки получены следующие: 10^{12} Ом·см до тонкой очистки после автоматизированной ректификационной установки (АРУ) и $4.8 \cdot 10^{17}$ Ом·см после тонкой очистки при 3.75 кВ/см. Полученные результаты согласуются с результатами работы [4].

Измерение выхода свободных электронов. При измерениях выхода свободных электронов (ВЭ) G_{if} использовалась схема измерительной электроники, представленная на рис. 2, аналогичная схеме системы контроля за степенью чистоты TMS. При данной схеме подключения ИК-TMS к электрометрическому усилителю измерялась только электронная компонента тока, наведенного источником в ИК-TMS. Выход электронов (ВЭ) на каждые 100 эВ энергии, потерянной на ионизацию, вычисляется по формуле:

$$G_{if} = \frac{Q \cdot 10^{10}}{D \cdot d \cdot v}, \quad (1)$$

где D – доза, поглощенная в рабочем объеме (МР/имп); d – плотность TMS (г/см³); v – рабочий объем ячейки (см³).

Выход электронов является одной из основных физических величин, использующихся при проектировании ионизационных камер на “теплых жидкостях”.

На рис. 4 показан выход свободных электронов G_{if} в зависимости от напряженности электрического поля в ИК-TMS.

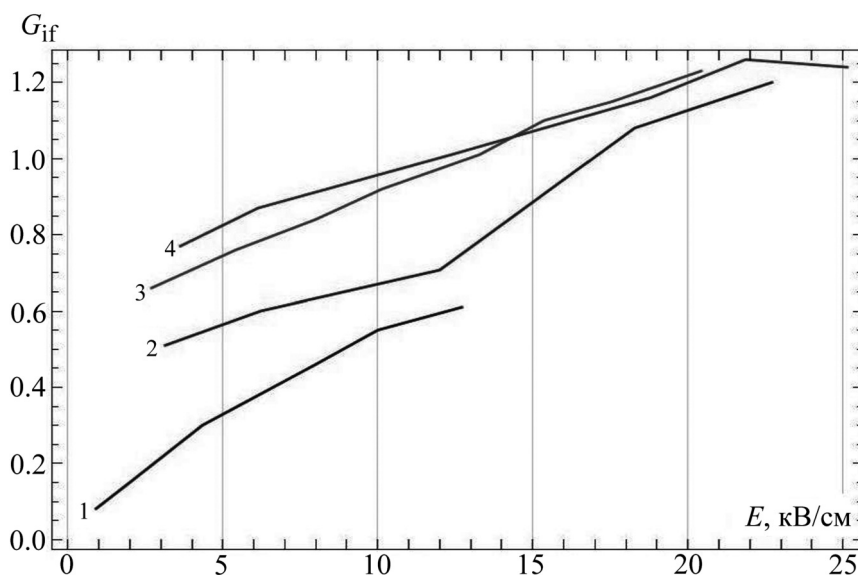


Рис. 4: Выход свободных электронов G_{if} в зависимости от напряженности электрического поля в ИК-TMS (пояснения в тексте).

На рис. 4 кривые 1, 2, 3, 4 – результаты, полученные в работах [4, 6, 7], и в настоящей работе, соответственно.

Результаты, полученные в настоящей работе с очищенными образцами ТМС позволяют сделать вывод о возможности применения данных образцов ТМС для изготовления дозиметров для планирования лучевой терапии и, в первую очередь, при конструировании микродозиметров для работы на протонных терапевтических ускорителях.

Выводы. Разработана лабораторная установка для очистки на АРУ исходного продукта – ТМС после первого этапа очистки. В работе был использован принцип контроля за степенью очистки ТМС, основанный на измерении величины выхода свободных электронов – G_{if} и сравнения результата с табличной величиной.

Для полученных образцов ТМС было измерено значение ВЭ, совпадающее с другими работами. Измеренное значение ВЭ говорит о том, что электроны в основном продукте обладают достаточным временем жизни и мобильностью, что позволяет использовать ТМС при конструировании высокоточных дозиметров для лучевой терапии и, в частности, для применения их на протонном терапевтическом ускорителе в Протвино.

Микродозиметр на ТМС предполагается использовать совместно с детектором телевизионного типа, проверенном на пучке протонов радиотерапевтического ускорителя г. Протвино, обеспечивающим визуализацию области энерговыделения в фантоме с

водой. Микродозиметр на ТМС позволит повысить точность измерения поглощенной дозы в области пика Брэгга.

На основе разработанной ИК-TMS возможно изготовление уменьшенной в размерах ИК, сопоставимой с ИК "MicroIion", у которой размеры чувствительной области равны 2 мм в диаметре (по электродам). Такая камера позволит подробно, с шагом 100 мкм, сканировать поглощенную дозу при прохождении протонов в водном фантоме при планировании протонной терапии. После изготовления уменьшенной в размерах ИК целесообразно провести ее испытания на терапевтическом ускорителе для сравнения с существующими видами детекторов.

Авторы выражают благодарность В. Е. Балакину за практические консультации и возможность применения данной технологии для работы на протонном ускорителе.

Авторы выражают благодарность А. И. Львову за консультации и поддержку работы.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] А. П. Воробьев, О. В. Матвеева, В. В. Сиксин, Препринт ИФВЭ 88-90 (ИФВЭ, Серпухов, 1988).
- [2] О. В. Матвеева, В. В. Сиксин, Препринт ИФВЭ 90-17 (ИФВЭ, Серпухов, 1990).
- [3] В. В. Сиксин, Препринт ИФВЭ 90-112 (ИФВЭ, Серпухов, 1990).
- [4] J. Engler, H. Keim, and B. Wild, Nucl. Instr. and Meth. A **252**, 29 (1986).
- [5] J. Engler and H. Keim, Nucl. Instr. and Meth. A **223**, 47 (1984).
- [6] J. P. Dodelet et al., Can. J. Chem. **54**, 741 (1976).
- [7] R. C. Munos, J. B. Cumming, and R. A. Holroyd, Chem. Phys. Lett. **115**, 477 (1985).

Поступила в редакцию 6 марта 2018 г.