

УДК 539.1

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЫХОДА ЯДЕРНОЙ РЕАКЦИИ $B+p \rightarrow 3\alpha$ ВБЛИЗИ РЕЗОНАНСНОЙ ЭНЕРГИИ С ПОМОЩЬЮ ТРЕКОВЫХ ДЕТЕКТОРОВ CR-39

И. Н. Завестовская, А. С. Русецкий, А. В. Огинов, В. В. Кочеров,
К. В. Шпаков, А. Е. Шемяков, В. А. Рябов

Проведено исследование выхода ядерной реакции $B + p \rightarrow 3\alpha$ вблизи резонансной энергии протонов 675 кэВ на пучке инжектора протонного синхротрона комплекса протонной терапии “Прометеус”. Продукты реакции (альфа-частицы) регистрировались с помощью трекового детектора CR-39. Выход альфа-частиц из борной мишени оценен на уровне $\sim 10^{-4}$ на один протон.

Ключевые слова: протонный синхротрон, резонансная энергия, реакция ядерного синтеза, борная мишень, трековый детектор, альфа-частицы.

Введение. В исследованиях, связанных с развитием протонной терапии онкологических заболеваний, в настоящее время изучается перспективный метод борпротон-захватной терапии (БПЗТ), повышающий биологическую эффективность протонов [1–3]. В основе БПЗТ лежит ядерная реакция борпротонного синтеза, открытая в 1930-х годах Олифантом и Резерфордом [4]:



В результате такой реакции на очень короткий промежуток времени образуется составное ядро ${}^{12}\text{C}^*$, которое находится в возбужденном состоянии и распадается на альфа-частицу и ядро бериллия ${}^8\text{Be}$, которое затем распадается на две альфа-частицы. Данный процесс является экзотермическим, высвобождается полная энергия 8.7 МэВ в виде передаваемой трём альфа-частицам кинетической энергии. Альфа-частицы, генерируемые взаимодействием замедляющихся протонов с атомами ${}^{11}\text{B}$, имеют высокую радиобиологическую эффективность непосредственно в опухолевой ткани, что приводит к более эффективному терапевтическому воздействию на пораженные ткани по

ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: ruseckijas@lebedev.ru.

сравнению с протонами пучка. Следует отметить, что реакцию борпротонного синтеза можно рассматривать в качестве основного, но не единственного механизма, поскольку другие биологические реакции, вызываемые такими частицами, также могут играть важную роль [2]. При энергиях протонов 0.1–5 МэВ эффективное сечение реакции становится значительным, тем самым сильно повышая продуцирование альфа-частиц вокруг области пика Брэгга. Особый интерес представляет резонанс при 675 кэВ: он имеет наибольшее сечение –1.4 барн [5]. Это обстоятельство является одним из преимуществ потенциального применения реакции (1) в протонной терапии. Таким образом, измерение выхода альфа-частиц вблизи резонансной энергии из мишеней, содержащих бор, представляет большой научный и практический интерес для выявления механизмов БПЗТ и определения дополнительной дозы облучения в результате реакции борпротон-захватного синтеза.

Методика эксперимента. Эксперимент проводился на базе протонного ускорителя “Прометеус” [6]. В качестве источника протонов был использован инжектор, который дает пучок с энергией 0.6–1.1 МэВ. Схема эксперимента приведена на рис. 1.

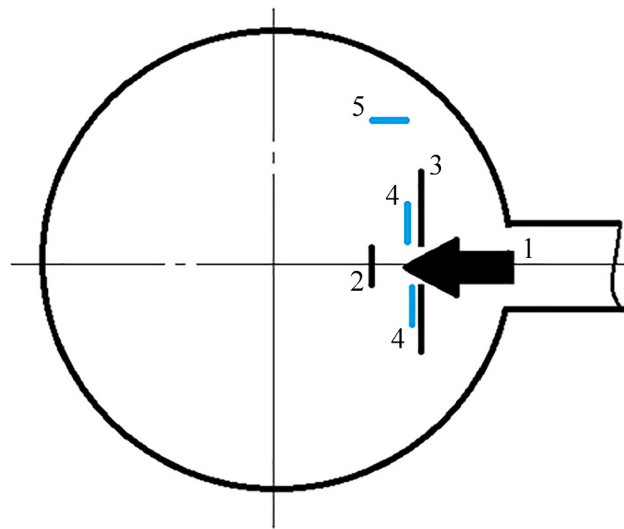


Рис. 1: Схема расположения детекторов и мишени в вакуумной камере. 1 – пучок протонов, 2 – мишень, 3 – диафрагма (диаметр – 8 мм), 4 и 5 – трековые детекторы CR-39.

Пучок протонов из инжектора с энергией 0.7 МэВ поступал в вакуумную камеру и через диафрагму диаметром 8 мм попадал на мишень. Начальная энергия протонов подобрана так, чтобы основная часть ядерных реакций происходила в тонком поверхностном слое мишени и большинство альфа-частиц смогли вылететь из нее. В качестве

мишени была использована пластина природного бора (с содержанием изотопа ^{11}B – 80%).

Расстояния от центра мишени до середины трековых детекторов 4 (на рис. 1) ~ 2 см и 5 (на рис. 1) ~ 10 см. Детекторы 4 располагались на плоскости диафрагмы параллельно поверхности мишени и частицы падали на них под углом. Один из этих детекторов имел покрытие 4 мкм Al, чтобы частично снизить загрузку. Плоскость детектора 5 (в 10 см от мишени) была повернута к мишени и частицы падали на нее нормально. Обратная сторона детектора, расположенного на расстоянии 10 см от мишени, была повернута к стенке вакуумной камеры. Передняя и задняя стороны детектора в равной мере способны регистрировать треки протонов и альфа-частиц.

В одном сбросе на мишень попадает $\sim 1.5 \cdot 10^{10}$ протонов. Энергия протонов ~ 0.7 МэВ. Время одной экспозиции – 3 или 6 мин, сброс происходит 1 раз в 2 с. Всего за 3 или 6 мин на мишень попадает $N_p \sim 1.35 \cdot 10^{12}$ или $2.7 \cdot 10^{12}$ протонов, соответственно.

Проведено 4 облучения – с борной мишенью (3 и 6 мин), с алюминиевой мишенью (3 и 6 мин). Облучение с алюминиевой мишенью проводилось, чтобы измерить выход протонов пучка, рассеянных от мишени, и его вклад в сигнал от альфа-частиц.

Заряженные частицы (протоны и альфа-частицы) регистрировались с помощью трековых детекторов CR-39. Калибровка детекторов была проведена с помощью радиоактивных источников ^{239}Pu и ^{241}Am в геометрии эксперимента, когда источник ставится на место мишени.

После облучения трековые детекторы травились в 6 М растворе NaOH при 70 °С в течение 7 ч. После травления детекторы были исследованы под микроскопом Nikon L200 с объективом 50х. Освещение в режиме Dark-field. Свет проходит через объектив, падает на прозрачный детектор, проходит сквозь него, отражается от белой матовой бумаги, приклеенной к поверхности предметного стекла, и подсвечивает поверхность детектора снизу. Получается круговое боковое рассеянное освещение, при котором все неровности поверхности затенены.

Для каждого детектора было сделано 100 фотографий поверхности в виде матрицы 10×10 на площади 1×1 см². Фотографии не пересекаются. Размер каждой фотографии 4908×3264 пикселей, что соответствует 288×191.5 микрон.

Микроскоп сохраняет цветные RGB изображения. Анализ треков производится с помощью инструмента AnalyzeParticles, который находит все треки, определяет их площадь, определяет два показателя округлости $\text{Circularity} = 4\pi S/P^2$, $\text{Roundness} = 4S/(\pi R^2)$, где S – площадь, P – периметр, R – максимальный радиус. Параметры

всех найденных областей записываются в csv файл. Для визуального контроля контуры всех найденных областей наносятся на исходное изображение и сохраняются отдельно. Как видно из рис. 2, помимо треков выделяются все достаточно темные дефекты поверхности.

Т а б л и ц а 1

Результаты обработки трековых детекторов

Индекс детектора	Расстояние до мишени, см	Покрытие детектора, мкм	Условия облучения	Время облучения, мин	Число всех треков, n , см^{-2}	Число треков протонов от 0.7 до 3.5 мкм ² , n_p^* , см^{-2}	Число треков альфа-частиц от 3.6 до 47.0 мкм ² , n_α^* , см^{-2}	Число альфа-частиц, вылетевших из мишени в 4π ср
1	2	Без покрытия	В камере. Мишень – Al	3		$1.007 \cdot 10^7$	$3.687 \cdot 10^2$	–
2	2	Al, 4 мкм	В камере. Мишень – Al	3		$2.959 \cdot 10^6$	Меньше фона	–
3	10	Без покрытия	В камере. Мишень – Al	3		Меньше фона	Меньше фона	–
4	2	Без покрытия	В камере. Мишень – Al	6		$1.276 \cdot 10^7$	$8.51 \cdot 10^3$	–
5	2	Al, мкм	В камере. Мишень – Al	6		$7.497 \cdot 10^6$	Меньше фона	–
6	10	Без покрытия	В камере. Мишень – Al	6		$3.395 \cdot 10^5$	Меньше фона	–
7	2	Без покрытия	В камере. Мишень – В	3		$1.105 \cdot 10^6$	$4.669 \cdot 10^5$	$4.67 \cdot 10^7$
8	2	Al, мкм	В камере. Мишень – В	3		$3.887 \cdot 10^5$	$1.123 \cdot 10^6$	$1.123 \cdot 10^8$
9	10	Без покрытия	В камере. Мишень – В	3		Меньше фона	$5.832 \cdot 10^4$	$7.03 \cdot 10^7$
10	2	Без покрытия	В камере. Мишень – В	6		$3.389 \cdot 10^6$	$1.216 \cdot 10^6$	$1.207 \cdot 10^8$
11	2	Al, мкм	В камере. Мишень – В	6		$6.512 \cdot 10^5$	$1.712 \cdot 10^6$	$1.712 \cdot 10^8$
12	10	Без покрытия	В камере. Мишень – В	6		$1.65 \cdot 10^5$	$8.615 \cdot 10^4$	$1.04 \cdot 10^8$

* – плотность треков с размерами, определенными по калибровке.

Треки альфа-частиц и протонов различаются по размерам. В разных положениях и при разных временах экспозиции использовалось 12 детекторов (см. табл. 1). Исходя из характера результатов калибровки, распределения площадей, а также из того, что на детекторах 1–6 обнаружены преимущественно треки протонов, получено, что треки протонов имеют характерные площади: от 0.7 мкм^2 до 5.9 мкм^2 , а альфа-частицы – от 6.0 мкм^2 до 30.0 мкм^2 .

В данной постановке эксперимента было необходимо учесть вклад в общую статистику от дефектов на поверхности детектора (имеющих размеры, сравнимые с реальными треками) и вклад от протонов, которые попадают на детекторы, рассеявшись от стенок вакуумной камеры. Для этого были использованы показания с обратных сторон детекторов, повернутых к стенке камеры, которые были расположены на расстоянии 10 см от мишени и примерно таком же расстоянии от стенки.

Из показаний детекторов, смотрящих на стенки камеры, получен вклад дефектов поверхности и рассеянных от стенок камеры протонов в общую статистику треков: протоны (фон) – $5.034 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2}$, альфа-частицы (фон) – $4.099 \cdot 10^4 \text{ см}^{-2}$.

Результаты эксперимента и обсуждение. Было обработано 12 детекторов. Детекторы, облученные с алюминиевой мишенью, являются фоновыми для детекторов, облученных с борной мишенью. Кроме того, фоном для каждого детектора является вклад от дефектов и протонов пучка, рассеянных от стенок камеры. На рис. 3 представлены фрагменты фотографий поверхности для детекторов 1 и 7. Также представлены гистограммы по полученным площадям объектов поверхности (треков и различных дефектов). Средний поток протонов и альфа-частиц получен в результате вычитания среднего “фона” из результатов обработки каждого конкретного детектора.

Эффективность регистрации альфа-частиц трековыми детекторами, расположенных на расстоянии 2 см от мишени, измерили с помощью радиоактивного альфа-источника ^{239}Pu , помещенного на место мишени – $\varepsilon(2 \text{ см}) = 0.01$. Эффективность регистрации альфа-частиц трековыми детекторами, расположенными на расстоянии 10 см от мишени, можно оценить как $\varepsilon(10 \text{ см}) = 8.3 \cdot 10^{-4}$.

Детекторы 1, 2, 4, 5 (см. табл. 1), экспонированные с Al мишенью на расстоянии 2 см, показали плотность треков протонов на уровне $\sim 10^7 \text{ см}^{-2}$. Покрытие детектора Al фольгой 4 мкм приводит к уменьшению количества треков в 2–3 раза. Треки альфа-частиц по размеру превосходят треки протонов.

Результаты измерений представлены в табл. 1.

Детекторы 7–12, экспонированные с мишенью из бора, показали значительное превышение по количеству треков альфа-частиц над фоновым уровнем. По данным из табл. 1 можно оценить среднее число альфа-частиц, вылетевших из мишени в 4π ср за 3 и 6 мин на уровне $N_{\alpha 1} \sim 7.610^7$ и $1.32 \cdot 10^8$, соответственно.

Тогда выход альфа-частиц, испущенных из борной мишени на один протон, можно оценить как $Y_{\alpha 1} = N_{\alpha 1}/N_p$, $Y_{\alpha 1} = 7.610^7/1.35 \cdot 10^{12} \sim 5.7 \cdot 10^{-5}$ или $Y_{\alpha 1} = 1.32 \cdot 10^8/2.7 \times 10^{12} \sim 4.9 \cdot 10^{-5}$.

Оценку полного числа альфа-частиц, рожденных в борной мишени за время облучения, можно провести по формуле

$$N_{\alpha 2} \approx 3N_p\sigma_{\alpha}L_p n_B,$$

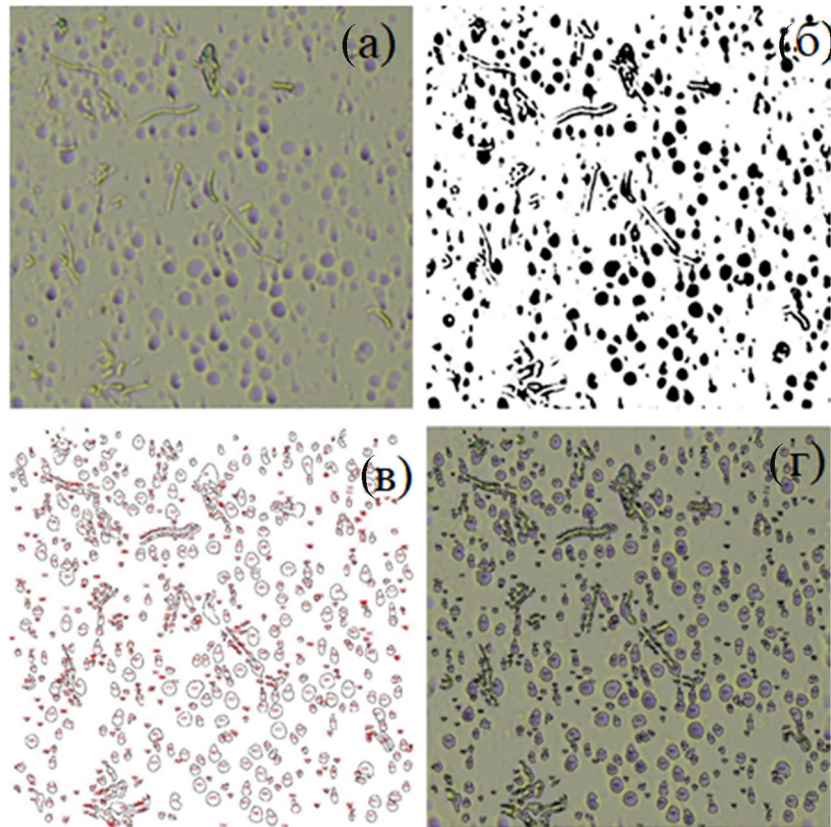


Рис. 2: Четыре стадии обработки изображения: (а) исходное изображение (фрагмент); (б) черно-белое изображение после всех преобразований и отсечки по выбранному вручную уровню порога; (в) контуры найденных областей; (г) исходное изображение с выделенными контурами найденных областей для визуального контроля.

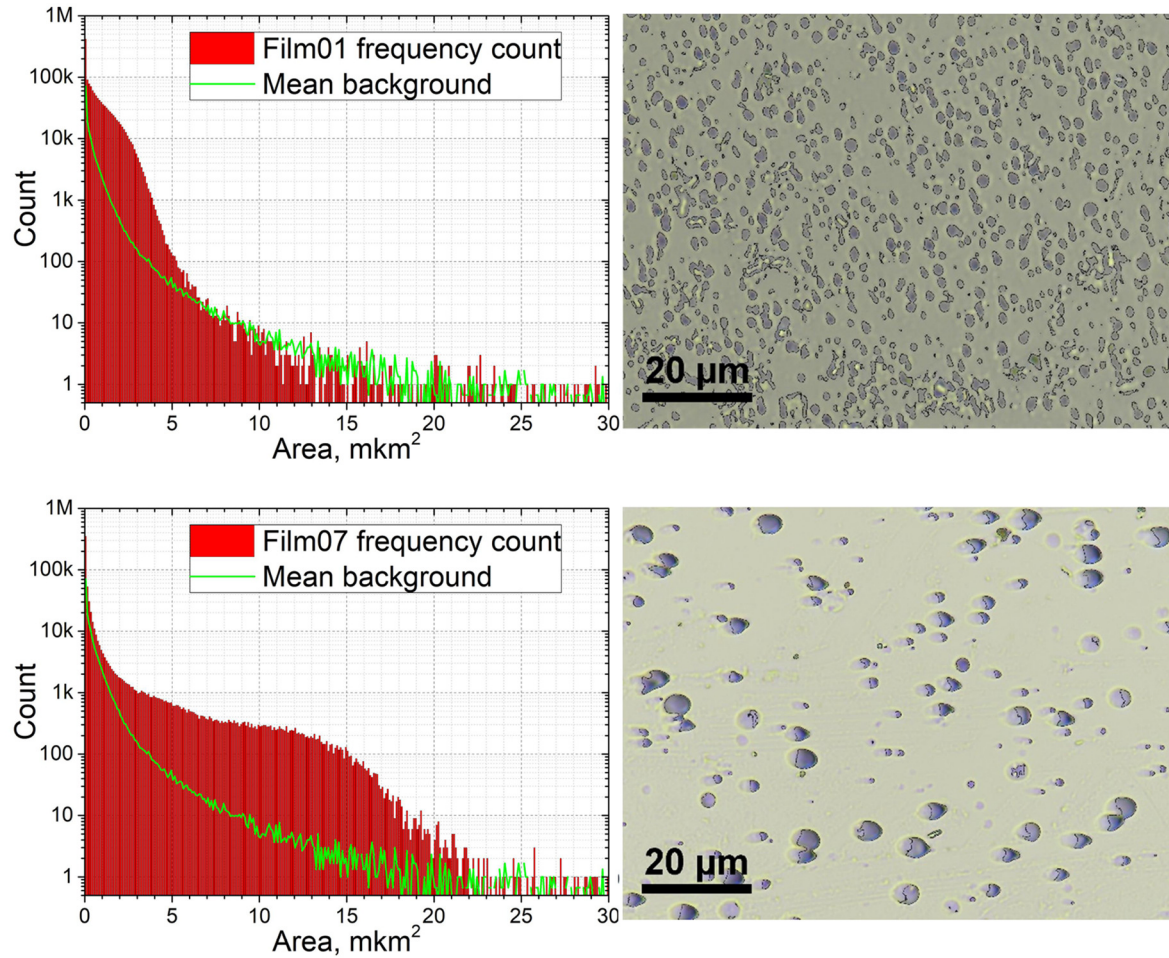


Рис. 3: Фрагменты микрофотографий (справа) детекторов 1 (вверху) и 7 (внизу) и распределения площадей треков (слева).

где $N_p = 1.35 \cdot 10^{12}$ или $2.7 \cdot 10^{12}$ – количество протонов с энергией $E_p = 0.7$ МэВ, которые попадают на мишень из бора за 3 или 6 мин, тормозятся до резонансной энергии в 0.6 МэВ и инициируют ядерные реакции $p + {}^{11}\text{B} = 3\alpha$. $\sigma_\alpha = 1$ бн – сечение реакции (1) вблизи резонансной энергии протонов 0.6–0.7 МэВ; L_p – длина пробега протонов в мишени из бора, при которой энергия протонов уменьшается от 0.7 до 0.5 МэВ (расчет дает $L_p = 2.6$ мкм); $n_B = 10^{23}$ см $^{-3}$ – концентрация ядер изотопа ${}^{11}\text{B}$ мишени из бора с плотностью 2.34 г/см 3 (80% от общего количества бора).

Расчет дает $N_{\alpha 2} = 1.1 \cdot 10^8$ (за 3 мин) и $N_{\alpha 2} = 2.2 \cdot 10^8$ (за 6 мин). Сравнение этих значений с числом альфа-частиц, испущенных из борной мишени в 4π ср за 3 и 6 мин $N_{\alpha 1} \sim 7 \cdot 10^7$ и $1.32 \cdot 10^8$, соответственно, позволяет сделать вывод, что около

60% альфа-частиц покидает мишень. Остальные теряют энергию за счет торможения и остаются в мишени. Тогда выход альфа-частиц, рожденных в борной мишени на один протон, можно оценить как $Y_{\alpha 2} = 1.1 \cdot 10^8 / 1.35 \cdot 10^{12} \sim 8.1 \cdot 10^{-5}$ (облучение 3 мин) или $Y_{\alpha 2} = 2.4 \cdot 10^8 / 2.7 \cdot 10^{12} \sim 8.1 \cdot 10^{-5}$ (облучение 6 мин).

Данные оценки выхода альфа-частиц, рожденных в борной мишени на один протон, не противоречат модельным расчетам [7], проведенным с помощью программного пакета Geant4, поскольку не учитывают вклад от альфа-частиц испарительного спектра (девозбуждение ядер) и от распадов вторичных нестабильных изотопов. Более точный учет вклада данных процессов в общий выход альфа-частиц является темой отдельного исследования.

Заключение. Таким образом, проведено исследование выхода альфа-частиц ядерной реакции $^{11}\text{B} + p \rightarrow 3\alpha$ вблизи резонансной энергии протонов 675 кэВ на пучке инжектора протонного синхротрона комплекса протонной терапии “Прометеус” и мишени из природного бора. Продукты реакции (альфа-частицы) регистрировались с помощью трекового детектора CR-39. Экспериментально измеренный выход альфа-частиц вполне совпадает с расчетами выхода вблизи резонанса. Выход альфа-частиц из борной мишени на один протон оценен на уровне $\sim 10^{-4}$. Для определения общей терапевтической эффективности БПЗТ и вклада в нее борпротон-захватной реакции требуются дополнительные *invitro* & *invivo* эксперименты по выявлению сопутствующих физико-химических и радиобиологических механизмов, происходящих в раковых клетках.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России в рамках Соглашения № 075-15-2021-1347.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] G. A. P. Cirrone et al., Scientific Reports **8**(1141), 1 (2018). DOI: 10.1038/s41598-018-19258.
- [2] P. Bláha, Ch. Feoli, St. Agosteo, et al., Front. Oncol. **11**, 682647 (2021). <https://doi.org/10.3389/fonc.2021.682647>.
- [3] Indrajit Roy, Sunil Krishnan, Andrei V. Kabashin, et al., ACS Nano **16**(4), 5036 (2022). DOI: 10.1021/acsnano.1c10550.
- [4] M. L. E. Oliphant and E. Rutherford, Proc. R. Soc. A **141**, 259 (1933).
- [5] M. H. Sikora, H. R. A. Weller, J. Fusion Energ. **35**, 538 (2016). DOI: 10.1007/s10894-016-0069-y.
- [6] A. A. Pryanichnikov, V. V. Sokunov, and A. E. Shemyakov, Physics of Particles and Nuclei Letters **15**(7), 981 (2018). DOI: 10.1134/S1547477118070592.

- [7] А. В. Багуля, В. М. Гришин, И. Н. Завестовская, В. А. Рябов, Краткие сообщения по физике ФИАН **50**(4), 27 (2023). DOI: 10.3103/S1068335623040036.

Поступила в редакцию 10 апреля 2023 г.

После доработки 30 мая 2023 г.

Принята к публикации 31 мая 2023 г.