

基于加速器 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应的硼中子俘获治疗 中子源的优化设计

李长楷^{1,2} 马英杰¹ 汤晓斌² 谢芹² 耿长冉² 陈达²

1 (成都理工大学核技术与自动化工程学院 成都 610059)

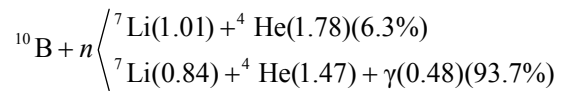
2 (南京航空航天大学核科学与工程系 南京 210016)

摘要 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应以中子产额大、反应阈能低等优点成为硼中子俘获治疗加速器驱动中子源所用中子反应的候选类型之一。本文重点研究了该中子产生反应作为加速器驱动中子源的中子产额及其能谱特性,并对产生的高能中子束流进行慢化,使其满足 BNCT 治疗要求。首先采用蒙特卡罗程序 MCNPX2.5.0 模拟加速器 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应过程,得到 1.9–3.0 MeV 能量入射质子的中子产额及其能谱,并详细研究了质子入射能量为 2.5 MeV 的最佳条件下产生的中子束流特性;进而提出中子束流的慢化设计方案,并对慢化所得超热中子束品质进行分析研究。模拟计算结果表明,10 mA 流量的 2.5 MeV 能量入射质子所产生的中子束经过慢化处理,可以很好地满足硼中子俘获治疗的中子束流要求。

关键词 硼中子俘获治疗,蒙特卡罗方法,超热中子,中子慢化

中图分类号 TL929

1936 年,Locher 提出硼中子俘获法(Boron Neutron Capture Therapy, BNCT)治疗恶性肿瘤,其基本原理是利用热中子和 ${}^{10}\text{B}$ 发生热中子俘获反应:



其反应产物 ${}^7\text{Li}$ 和 ${}^4\text{He}$ 均属于重粒子,具有射程短、高 LET(传能线密度)、高 REB(相对生物效应)等优点,配合亲肿瘤硼化合物使 ${}^{10}\text{B}$ 集中于肿瘤组织,可以局部性、选择性杀死肿瘤细胞,而对正常细胞造成较小伤害^[1]。

热中子由于散射、俘获等原因无法有效治疗位于体内的恶性肿瘤。超热中子(0.4 eV–10 keV)经表层组织慢化,到达肿瘤区域时已成热中子,且在表层组织能量沉积较少,因此 BNCT 的理想治疗中子束流一般选超热中子束^[2]。

目前,国内对 BNCT 研究所用的中子源为反应堆中子源,但由于反应堆安装复杂、造价和维护费用高及核安全方面的管制,因此,反应堆中子源难以在医院普及使用。相对于目前广泛使用的加速器驱动中子源以安全性高、公众接受度高、成本相对较低、慢化处理简单等特点,成为 BNCT 最具未来

应用潜力的中子源^[3,4]。目前,国内关于 BNCT 加速器中子源的研究还很少,国际上对 BNCT 加速器中子源所使用的中子产生反应主要包括 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 、 ${}^9\text{Be}(p,n)$ 、 ${}^9\text{Be}(d,n)$ 、 ${}^{13}\text{C}(d,n)$ 以及 D-T 和 D-D 裂变反应等,其中 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应具有中子产额大、反应阈能低、产出中子平均能量低等优点,成为首选方案;但由于该反应产生的中子束流平均能量较 BNCT 所需超热中子能量依然偏高,且存在 γ 光子污染,因此对病人照射前仍需对中子束流进行慢化处理^[5–8]。

本文主要采用蒙特卡罗程序 MCNPX2.5.0 对 BNCT 加速器中子源 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应过程进行模拟计算,获得超热中子束流的中子产额、能谱等信息;提出中子束流的慢化优化设计方案,并对慢化所得超热中子束品质进行研究,通过跟踪 2×10^9 个粒子的运输,整个过程计算误差在 5% 以内,从而证明加速器中子源应用于 BNCT 的可操作性。

1 研究方法

1.1 计算模型及计数方法

考虑到 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应阈能为 1.88 MeV,因此本文重点研究 1.9–3.0 MeV 的入射质子轰击靶核所得的中子能谱。计算模型为:质子束为半径 5 cm 的柱

江苏省科技支撑计划(1006-KFA13001)资助

第一作者:李长楷,男,1987 年出生,成都理工大学在读硕士研究生,从事加速器硼中子俘获治疗研究

收稿日期:2013-07-15,修回日期:2013-08-24

状束；靶为圆盘状厚靶，半径 8 cm，厚 0.3 cm，经计算验证该厚度和半径的厚靶可获得较大中子产额。MCNPX 的计数方法：在靶外部设一计数球面，用 Ft 卡配合余弦卡将整个计数球面从质子入射方向按角度分为 18 个子区间，每个子区间对应的角度为 10° ，用 F1 卡对每个子区间计数计算出微分中子产额角分布；设 18 个楔体将整个计数球面按面积均分为 18 个子区间，对子区间内出射中子通量计数得出按立体角分布的微分中子产额分布；同时，设不同能量箱计算出微分中子产额按能量分布，为保证精确度对能量计数设 3500 个子区间。蒙特卡罗计算所用模型如图 1 所示。

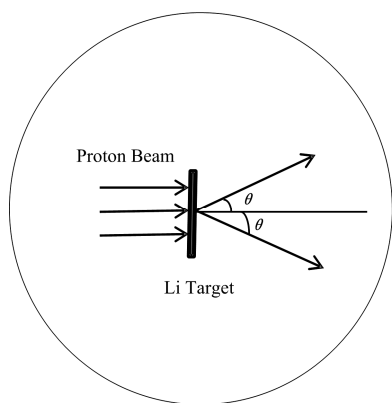


图 1 质子束轰击锂靶计算模型

Fig.1 Model of proton beam bombarding lithium target.

为研究 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应产生的高能中子束流经过慢化得到的超热中子束品质，本文通过检测、对比不同快中子慢化材料、慢中子和光子吸收材料以及反射材料后设计出一种新型慢化装置方案：快中子慢化和慢中子吸收材料选用 fluental 材料^[9]，此材料是由芬兰开发的一种专利材料，设计初衷是作为反应堆 BNCT 慢化剂，其成分是质量分数为 69% 的 AlF_3 、质量分数为 30% 的 Al 和质量分数为 1% 的 LiF ；光子吸收材料选用 PbF_2 。装置采用 2 cm 铅层作为锂衬底，装置末端采用 9 cm 铅板作为 γ 屏蔽材料；慢化物质存放在 2 mm 厚的铝制圆筒里，圆筒内半径为 12 cm，外围由 18 cm 厚的 PbF_2 反射层包围；整个装置外围由溶锂重水屏蔽，其中锂浓度为 $0.1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 。慢化装置结构如图 2 所示。

1.2 慢化反射装置设计标准^[10]

根据 BNCT 系统要求，超热中子场应符合以下指标：超热中子注量率 ϕ_{epi} 至少要达到 $10^9 \text{ cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上；超热中子注量率与热中子注量率的比值 $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$ 要达到 100 以上；快中子剂量率与超热中子注量率的比值 D_f/ϕ_{epi} 不能大于 $2\times 10^{-13} \text{ Gy}\cdot\text{cm}^2$ ； γ

剂量率与超热中子注量率的比值 $D_\gamma/\phi_{\text{epi}}$ 不能大于 $2\times 10^{-13} \text{ Gy}\cdot\text{cm}^2$ 。

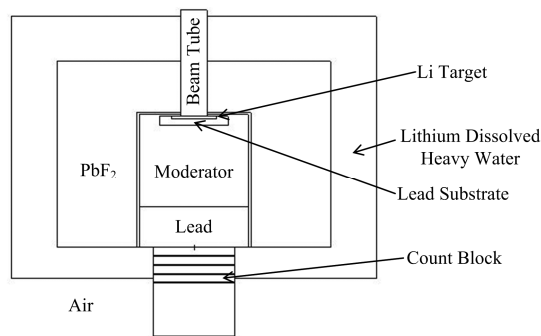


图 2 中子束流慢化/屏蔽装置结构示意图

Fig.2 Moderating and shielding device.

2 计算结果与分析

2.1 加速器 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应中子束流特性

2.1.1 模拟计算方法的可行性验证

经模拟计算得出 2.5 MeV 能量入射质子产生的中子总产额为 $0.90\times 10^{12} \text{ n}\cdot\text{mC}^{-1}$ ；中子最大能量 0.782 MeV；中子平均能量 0.332 MeV；中子角度区间为 $0^\circ\text{--}180^\circ$ ；中子平均角度为 62.7° 。以上各参数已有的研究数据^[11]如下：中子总产额为 $0.89\times 10^{12}\text{n}\cdot\text{mC}^{-1}$ ；中子最大能量 0.786 MeV；中子平均能量 0.326 MeV；中子角度区间为 $0^\circ\text{--}180^\circ$ ；中子平均角度为 62.9° 。对比本文数据与已有实验数据看出，本文所用方法与实验数据有较高的吻合度，从而验证了该方法的可行性。

2.1.2 1.9–3.0 MeV 能量入射质子产生中子特征分析

为全面获取 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应产出中子能谱特性，对单位立体角中子产额、单位弧度角中子产额和单位能量中子产额等微分中子产额进行模拟计算。图 3(a)、(b) 分别给出单位立体角中子产额和单位弧度角中子产额随角度的分布 ($0^\circ\leq\theta\leq 180^\circ$)，其中，质子入射方向为 0° 。

由图 3(a)，单位立体角中子产额在 10° 时达到最大，从 90° 开始曲线明显变缓，可见在质子入射方向上的中子产额面积密度较大。由图 3(b)，单位角度中子产额在 40° 达到最大，从 90° 开始变缓。综合两图可见，对于能量大于 1.9 MeV 的入射质子，其产出中子在 90° 以上的分布还是很可观的。因此，为充分利用这些“向后”方向的中子，在设计慢化装置时可将靶置于慢化材料之中，并在后面再加上反射层。

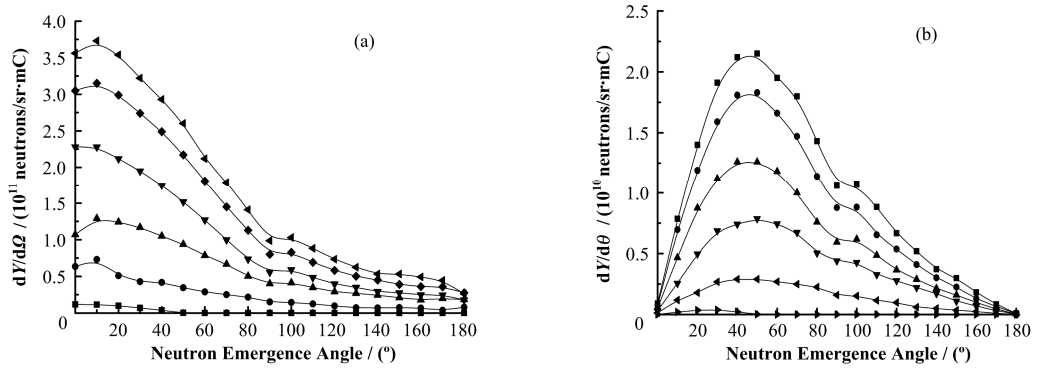


图 3 不同能量入射质子单位立体角中子产额 $dY/d\Omega$ (a) 和单位弧度角中子产额 $dY/d\theta$ (b) 随角度分布
 Fig.3 Different neutron yield distribution $dY/d\Omega$ (a) and $dY/d\theta$ (b) as a function of angle for incidence proton.

图 4 为单位能量区间的中子产额随中子能量的分布情况。由图 4，随着入射质子能量的升高，高能量的出射中子逐渐出现且额度逐渐增多；当入射质子能量大于 2.3 MeV 时，出射中子能谱有两个峰，第二个峰形成的原因是 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 在 2.25 MeV 处有个共振峰(图 5)，同时，中子总产额随入射质子能量分

布(图 6)中，入射质子能量从 2.1 MeV 提高到 2.3 MeV，中子产额有个较陡增幅也归因于此。考虑利用此共振峰使中子产额较大，以缩短治疗时间，且不致使产出中子能量过高，本文最终选择 2.5 MeV 入射质子所产生的中子束流作为实验对象。

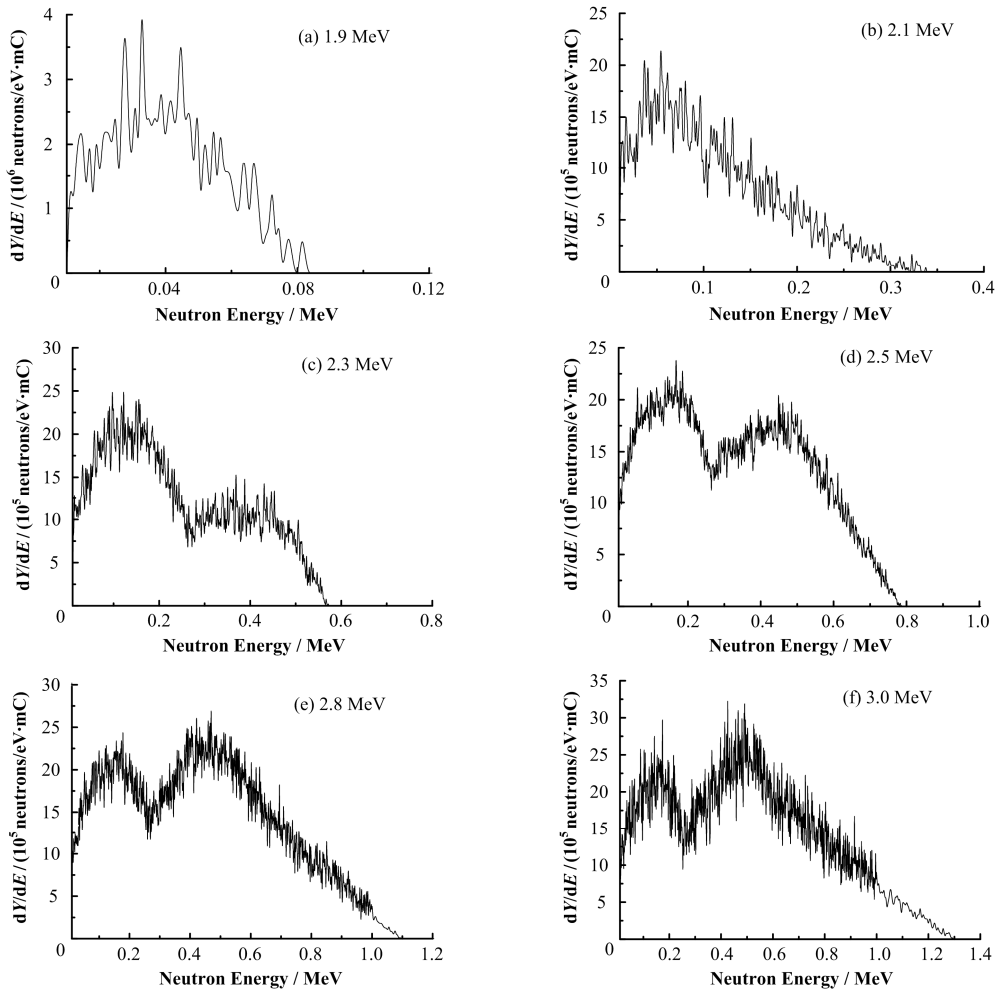


图 4 不同能量入射质子微分中子产额 dY/dE 随能量分布
 Fig.4 Different neutron yield distribution dY/dE as a function of energy for incidence proton.

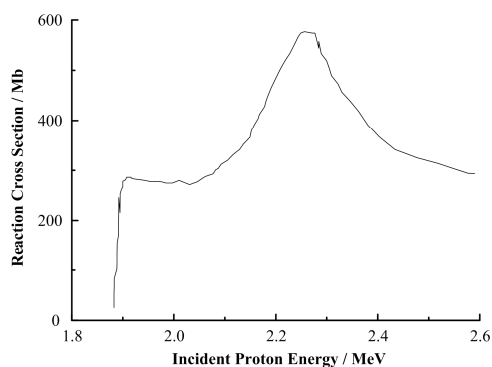


图 5 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应截面
Fig.5 ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction cross section.

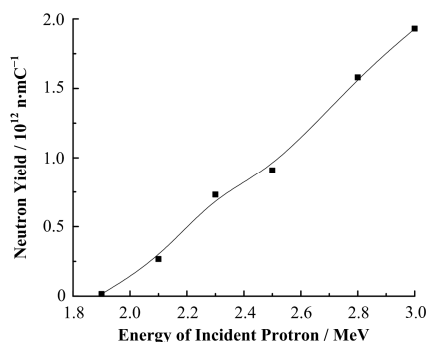


图 6 不同入射能量质子对应的中子产额
Fig.6 Neutron yield for incidence proton with different energy.

2.1.3 2.5 MeV 能量入射质子产出中子特性

图 7 给出微分中子产额随能量和角度的分布, 由 19×3500 个数据经 matlab 绘出, 可以精细反应出微分中子产额随能量和出射角度的分布以及中子出射能量和中子出射角度二者之间的分布关系; 同时,

由图 7 可见, 高能中子的分布角度较小。

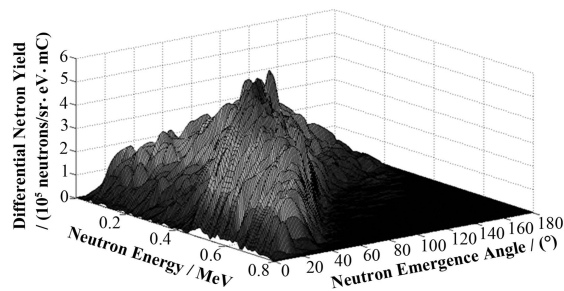


图 7 2.5 MeV 入射质子能量多对应的微分中子产额
Fig.7 Different neutron yield for incidence proton with energy 2.5 MeV.

2.2 中子束慢化模拟计算

由于加速器 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反应产生的中子束流还需进行慢化, 因此本文提出了一种新型慢化装置设计方案, 并对慢化装置出口 2 cm、4 cm、6 cm、8 cm 处的超热中子注量率 φ_{epi} 、热中子注量率 φ_{th} 、快中子剂量率 D_f 以及 γ 剂量率 D_γ 进行计数, 慢化材料厚度选择 15–23 cm。

慢化装置的快中子慢化材料和热中子吸收材料为 flumantal 材料, γ 屏蔽材料为铅板。分别计算了超热中子注量率 φ_{epi} 、超热中子注量率与热中子注量率比值 $\varphi_{\text{epi}}/\varphi_{\text{th}}$ 、快中子剂量与超热中子注量率比值 D_f/φ_{epi} 、 γ 剂量与超热中子注量率比值 $D_\gamma/\varphi_{\text{epi}}$ 随慢化材料厚度的变化, 如图 8 所示。

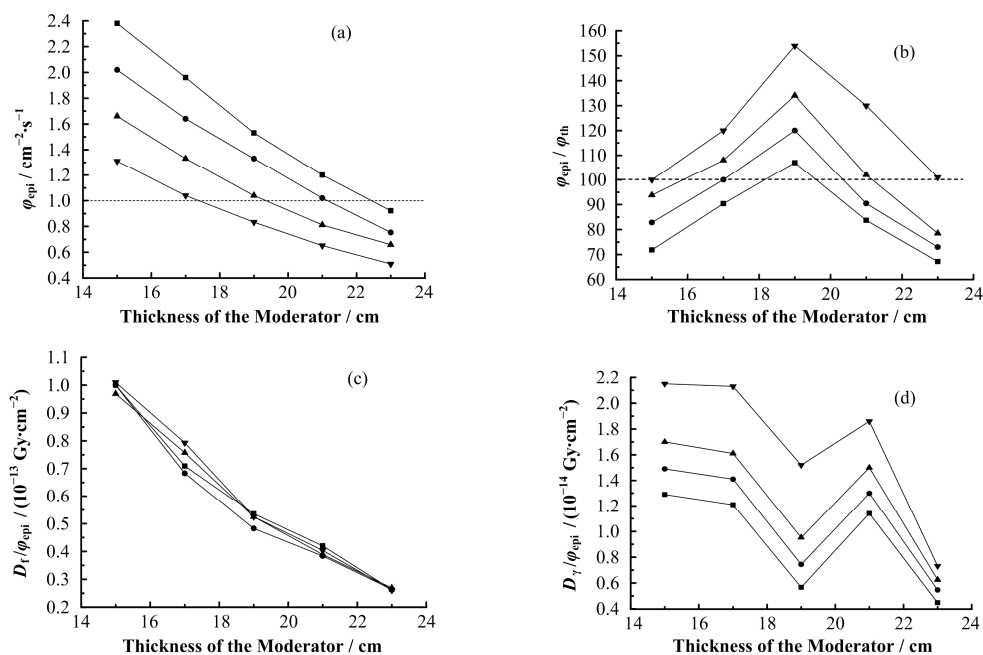


图 8 φ_{epi} (a)、 $\varphi_{\text{epi}}/\varphi_{\text{th}}$ (b)、 D_f/φ_{epi} (c) 和 $D_\gamma/\varphi_{\text{epi}}$ (d) 随慢化材料厚度的变化
Fig.8 φ_{epi} (a), $\varphi_{\text{epi}}/\varphi_{\text{th}}$ (b), D_f/φ_{epi} (c) and $D_\gamma/\varphi_{\text{epi}}$ (d) as a function of moderating material thickness.

由图 8(a), 慢化材料厚度小于 21 cm 时距出口 2–4 cm 处的超热中子辐射场可满足要求, 6 cm、8 cm 处满足要求的慢化材料最大厚度分别为 17.4 cm 和 19.4 cm。由图 8(b), 距出口 8 cm 处 15–23 cm 厚度慢化材料均可满足要求, 2 cm、4 cm、6 cm 处为满足要求对应的慢化材料厚度区间分别为 16–21 cm、17–20.4 cm、18.2–19.7 cm。由图 8(c)、(d)可以看出, 距出口 2–8 cm 各点及 15–23 cm 各厚度的慢化材料均可满足要求。综上分析, 最后选定慢化剂厚度为 17 cm, 满足要求的最大超热中子束通量治疗点为距出口 4 cm 处。

2.3 慢化后超热中子束流技术指标参数

经计算得出慢化材料厚度 17 cm 时距出口 4 cm 处的各项技术指标参数为: ϕ_{epi} 为 $1.98 \times 10^9 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$ 为 100; D_f/ϕ_{epi} 为 $7 \times 10^{-14} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$; D_g/ϕ_{epi} 为 $1.4 \times 10^{-14} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$ 。可以很好符合 BNCT 所需超热中子束标准。

图 9 为慢化后出射中子随角度的分布。可以看出, 中子出射角集中在 50° 左右。

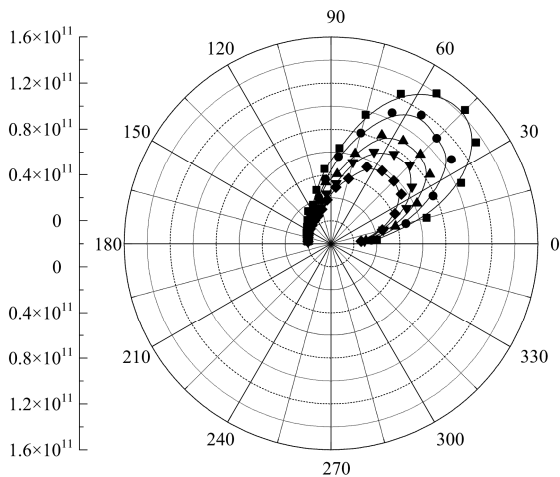


图 9 慢化后中子出射角分布
Fig.9 Neutron emergence angle as a function of different moderator thickness.

■ 15 cm, ● 17 cm, ▲ 19 cm, ▼ 21 cm, ◆ 23 cm

3 结语

利用蒙特卡罗程序 MCNPX 的模拟计算, 研究了 ⁷Li(p,n)反应作为加速器驱动中子源的中子产额及其能谱特性; 并提出慢化处理方案, 确保产生的超热中子束满足 BNCT 治疗要求; 从理论上验证了基于加速器 10 mA 流量 2.5 MeV 入射质子轰击锂靶所得中子束流经过慢化可作 BNCT 中子源使用。⁷Li(p,n)反应阈能较低, 通过提高入射质子流量可以为加速器小型化提供可能。研究结果将有助于推动

我国基于加速器驱动硼中子俘获治疗技术的发展, 可作为未来研制 ⁷Li(p,n)反应 BNCT 加速器中子源的重要理论依据。

参考文献

- 1 Blue T E, Yanch J C. Accelerator-based epithermal neutron sources for boron neutron capture therapy of brain tumors[J]. *Journal of Neuro-oncology*, 2003, **62**(1): 19–31
- 2 Hiroyuki Miyamaru, Isao Murata. Neutron and gamma-ray dose evaluation on accelerator neutrons source using p-Li reaction for BNCT[J]. *Progress in Nuclear Science and Technology*, 2011, **1**: 533–536
- 3 刘云鹏, 陈达, 汤晓斌, 等. 质子放疗过程中射束与人眼体作用的蒙特卡罗模拟计算[J]. *原子能科学技术*, 2010, **44**: 1–3
LIU Yunpeng, CHEN Da, TANG Xiaobin, *etal.* Monte-Carlo simulation of proton radiotherapy for human eye[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2010, **44**: 1–3
- 4 汤晓斌, 谢芹, 耿长冉, 等. 基于 MCNP 的超临界水堆堆芯建模及中子通量计算[J]. *科技导报*, 2012, **30**(20): 39–43
TANG Xiaobin, XIE Qin, GENG Changran, *etal.* Core modeling and neutron flux calculation for supercritical water reactor using MCNP[J]. *Science & Technology Review*, 2012, **30**(20): 39–43
- 5 Tang X B, Geng C R, Xie Q, *etal.* The simulation of effective dose of human body from external exposure by Monte Carlo methods[J]. *First International Workshop on Complexity and Data Mining*, 2011: 152–155
- 6 Verbeke J M, Vujic J L, Leung K N. Neutron beam optimization for boron neutron capture therapy using the DD and DT high-energy neutron sources[J]. *Nuclear Technology*, 2000, **129**(2): 257–278
- 7 Friedman M, Cohen D, Paul M, *etal.* Simulation of the neutron spectrum from the ⁷Li(p,n) reaction with a liquid-lithium target at soreq applied research accelerator facility[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2013, **A698**: 117–126
- 8 Miyamaru H, Murata I. Neutron and gamma-ray dose evaluation on accelerator neutron source using p-Li reaction for BNCT[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2011, **1**: 533–536
- 9 Allen D A, Beynon T D. A design study for an accelerator-based epithermal neutron beam for BNCT[J].

- Physics in Medicine and Biology, 1995, **40**(5): 807–809
- 10 江新标, 陈达, 朱广宁, 等. 西安脉冲堆超热中子束的理论设计[J]. 核动力工程, 2001, **22**(3): 199–203
- JIANG Xinbiao, CHEN Da, ZHU Guangning, *etal.* Design of an epithermal neutron beam for Xi'an pulsed reactor[J]. Nuclear Power Engineering, 2001, **22**(3): 199–203
- 11 Lee C L, Zhou X L. Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 1999, **152**(1): 1–11

Research of accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy

LI Changkai^{1,2} MA Yingjie¹ TANG Xiaobin² XIE Qin² GENG Changran² CHEN Da²

¹(College of Nuclear Technology and Automation Engineering, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China)

²(Department of Nuclear Science and Engineering, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

Abstract Background: ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction of high neutron yield and low threshold energy has become one of the most important neutron generating reactions for Accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy(BNCT). **Purpose:** Focuses on neutron yield and spectrum characteristics of this kind of neutron generating reaction which serves as an accelerator-based neutron source and moderates the high energy neutron beams to meet BNCT requirements. **Methods:** The yield and energy spectrum of neutrons generated by accelerator-based ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction with incident proton energy from 1.9 MeV to 3.0 MeV are researched using the Monte Carlo code-MCNPX2.5.0. And the energy and angular distribution of differential neutron yield by 2.5-MeV incident proton are also given in this part. In the following part, the character of epithermal neutron beam generated by 2.5-MeV incident protons is moderated by a new-designed moderator. **Results:** Energy spectra of neutrons generated by accelerator-based ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction with incident proton energy from 1.9 MeV to 3.0 MeV are got through the simulation and calculation. The best moderator thickness is got through comparison. **Conclusions:** Neutron beam produced by accelerator-based ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction, with the bombarding beam of 10 mA and the energy of 2.5 MeV, can meet the requirement of BNCT well after being moderated.

Key words Boron neutron capture therapy, Monte Carlo method, Epithermal neutron, Neutron moderator

CLC TL929