ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДУБНА

> 15/1-79 P3 - 11816

196 2-79 Я.Боганч, Й.Дюлан, А.Надь, В.М.Назаров, А.Сабо, З.Шереш

15 # 11 #######

.........

5-73

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПУЧКОВ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АТОМОВ БОРА В МАТЕРИАЛАХ



Я.Боганч, Й.Дюлаи,^{*} А.Надь^{*}, В.М.Назаров, А.Сабо, З.Шереш

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПУЧКОВ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АТОМОВ БОРА В МАТЕРИАЛАХ

Направлено на III Совещание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научнотехнических и народно-хозяйственных задач /Дубна,1978/

Q4n sates	`⊂),MŘ	श्र ंगम्बप्रा
5 3893	1202	-Cobaba ñ
6.1.	IN U	iek a

^{*} Центральный институт физических исследований, Будапешт.

Боганч Я. и др.

P3 - 11816

Использование пучков тепловых нейтронов для изучения распределения атомов бора в материалах

С целью изучения распределения атомов боре в полупроводниках, тонких пленках и биологических объектах разработаны экспериментальные методы кэмерений.основанные на использовании реакции 10 В(п.a) 7Li. Распределение атомов бора в приповерхностных слоях твердых тел определяется по потерям энергии альфа-частиц. Концентрация атомов бора в массивных или гетерогенных биологических объектах измеряется по выходу гамма-квантов (478 кэВ). испускаемых возбужденным ядром ⁷Li. В качестве источника нейтронов используется один из каналов реактора ИБР-30. Возможности методов иллюстрируются последними результатами, полученными при изучении: 1) распределения атомов бора при различных энергиях имплантации ионов 10 В в кремний, 2) приповерхностного распределения бора в стекловидных металлах типа В₂₀ Fe₈₀ , В₂₀ Fe₄₀ Ni₄₀, В₆ Р₁₂ Сг₁₄ Ni₃₆ Fe₃₂, 3) лиффузил в Аl бора в процессе его напыления и последующего отжига, 4) распретипа деления бора в стеблях кукурузы в зависямости от его концентрации в питательной среде. 5) возможностей применения методов для определения концентрации ¹⁰ В in vitro и in vivo для целей нейтронзахватной терапии и радиобиологических исследований.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1978

Bogancs J. et al.

P3 -11816

1

Utilization of Thermal Neutron Beams to Investigate Distributions of Boron Atoms in Materials

To investigate the distribution of atoms in semiconductors, thin films and biological objects, the experimental methods, based on the reacreaction ¹⁰B(n, a) ⁷Li. The distribution of B atoms is surface regions of solids is determined by the energy losses of a -particles. The concentration of B atoms is real biological objects is determined by the yield of γ -quanta (473 keV) emitted by the excited nucleus ⁷Li. The experiments were carried on at the reactor IBR-30. The possibilities of the method were illustrated by the results obtained in investigation of: 1) distribution of ¹⁰B atoms implanted at different energies in silicon, 2) distribution of B in surface regions in glass like metals of the type: B₂₀ Fe₈₀, B₂₀ Fe₄₀ Ni₄₀, B₆ P₁₂ Cr₁₄ Ni₃₆ Fe₃₂. 3) diffusion of B in Al in the process of evaporation followed by annea-

ling, 4) distribution of B in maize stems in dependence of its concentration in feed, 5) possibilities of application of those methods for determination of concentration of 10 B in vitro and in vivo for the neutron capture therapy and for radiobiological investigations,

The investigation has been performed at the Neutron Physics Laboratory, JINR,

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1978

ВВЕДЕНИЕ

С целью изучения распределения атомов бора в полупроводниках, тонких пленках и биологических объектах в ЛНФ ОИЯИ совместно с ЦИФИ /Будапешт/ разработаны экспериментальные методы измерений, основанные на использовании реакции

⁴He + ⁷Li^{*} \rightarrow ⁷Li + ⁴He + 0,478 *МэВ*, квант /93%/ ¹⁰B + ¹n \rightarrow ⁷Li + ⁴He (7%).

Распределение атомов бора в приповерхностных слоях твердых тел измеряется по потерям энергии альфачастиц /1-5/. Концентрация атомов бора в массивных или гетерогенных биологических объектах определяется по гамма-квантам, испускаемым возбужденным ядром ⁷Li^{/6/}.

Работы проводятся на 16-метровой пролетной базе одного из каналов импульсного периодического реактора ИБР-ЗО^{/7/}ЛНФ ОИЯИ. Определение концентрации атомов бора и их распределение по глубине в тонких слоях исследуемых материалов осуществляется в пучке тепловых нейтронов. Фон от быстрых нейтронов и гаммаквантов реактора устраняется по методу времени пролета.

Содержание ядер бора in vivo в крупных /более 2000 см³/ биологических объектах определяется тоже в поле тепловых нейтронов, но рождаемых испосредственно в исследуемом объекте при замедлении быстрых нейтронов. Кванты от реакции 10 В(n, a) 7 Li регистрируются после инжекции короткого /2-4 мкс/ импульса быстрых нейтронов в течение диффузии тепловых нейтронов в объекте. Этим самым практически устраняется фон от быстрых нейтронов и мгновенных квантов деления. Использование методов времени пролета и времени диффузии значительно увеличивает отношение эффект/фон по сравнению со стационарными реакторами.

1. ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АТОМОВ ¹⁰В В ПРИПОВЕРХНОСТНЫХ СЛОЯХ МАТЕРИАЛОВ

В данной работе показаны возможности использования реакции 10 B(n, α) 7 Li на примере полученных результатов при изучении:

- распределения по глубине всех, а не только электрически активных, ядер бора, после имплантации в кремний ионов 10 B + и 10 BF $_{2}^{+}$;

- влияния последующих технологических процессов /отжиг, нанесение окисных пленок/ на первичное распределение;

- приповерхностного распределения бора в стекловидных металлах типа $\rm Fe_{80}\,B_{20}$, $\rm Fe_{40}\,Ni_{40}\,B_{20}$, $\rm Fe_{40}\,Ni_{40}\,P_{14}$ B $_6$;

- диффузии в алюминий бора в процессе его напыления и последующего отжига;

- распределение бора в листьях куаурузы в зависимости от концентрации борной кислоты в питательной среде.

1.1. Методика измерений

Схема экспериментальной установки и измерительного тракта показана на *рис. 1.* Образец устанавливается в пучке нейтронов диаметром 4,0 см параллельно плоскости кремниевого поверхностно-барьерного детектора* на расстоянии 5 см от оси пучка. Для постоян-



Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1 - нейтронный пучок, 1а - коллиматор диаметром 4,0 см, 16 ловушка пучка, 2 - образец, 3 - монитор, 4 - свинцовая защита, 5 - детектор, 7-15 - спектрометрический тракт.

^{*} Разрешение используемых детекторов для альфачастиц ²⁴¹Am – 18-20 кэВ.

ного контроля измерительного тракта по энергии и для мониторирования пучка используется мишень из ⁶LiF толщиной O,O6 *мг.см*⁻². Таким образом, калибровка спектрометрического тракта по энергии осуществляется при каждом измерении по энергетическим линиям частиц и ядер, возникающих в реакциях ⁶Li(n, a) Т и ¹⁰B(n, a) ⁷Li, *рис. 2*.

Получаемый в измерениях аппаратурный спектр альфа-частиц $I(\epsilon)$, *рис.* 3, представляет собой свертку двух функций:

$$I(\epsilon) = \int_{\epsilon} F(\epsilon, E) \Phi(E) dE, \qquad /1/$$

где $\Phi(E)$ - реальный спектр альфа-частиц, вылетающих из образца; $F(\epsilon, E)$ - ядро интегрального уравнения /1/, представляющего собой аппаратурный спектр альфачастиц в зависимости от энергии (E), рожденной в образце частицы.

При решении интегрального уравнения /1/ /нахождение искомой функции $\Phi(E)$ /⁸/ ядро уравнения представлялось в виде численных значений, получаемых экспериментально от образца кремния с имплантированными ионами ¹⁰ BF⁺₂ при энергии **3**О кэВ, рис. **3**.

По распределению числа альфа-частиц в зависимости от потерь их энергии $\Phi(\Delta E)$, найденному из функции $\Phi(E)$, вычисляется глубинное распределение атомов бора в исследуемых материалах.

Средний пробег частиц $\overline{R}(E)$, потерявших в образце энергию ΔE , определяется численным интегрированием уравнения

$$\overline{R}(E) = \int_{E}^{E - \Delta E} [L(E)]^{-1} dE, \qquad /2/$$

где L(E) - тормозная способность альфа-частиц (dE/dx). Значения L(E) для элементов брались из таблиц, составленных Ziegler /9/. В том случае, когда исследуемые образцы были многоэлементными, тормозная способность рассчитывалась согласно правилу Брэгга. Количественное определение ¹⁰ В осуществлялось путем сравнения с эталонами, количество бора в которых



Рис. 2. Амплитудный спектр частиц от реакций 10 B(n,a)⁷Li и 6 Li(n, a) T. N - номер канала, I - число импульсов на канал.



Рис. 3. Аппаратурные спектры альфа-частиц от образцов кремния с имплантированными ионами ${}^{10}B^+$ и ${}^{10}BF^+_2$. о - ионы ${}^{10}B^+$ с энергией 80 кэВ, • - ионы ${}^{10}BF^+_2$ с энергией 30 кэВ, E = 1,471 - энергия альфа-частиц от реакции ${}^{10}B(n, a)$ 7 Li на тепловых нейтронах.

было известно с точностью $\pm 2\%$ ^{/5/}.При потоке тепловых нейтронов 10⁶ нейтр./см²с минимальное определяемое количество ¹⁰В составляет О,5 *мкг*.

1.2. Результаты и обсуждения

На рис. 4 представлены полученные данные о глубинном распределении атомов бора в различных образцах кремния при имплантации в них ионов 10 B⁺ и 10 BF ${}^+_2$ с энергиями 10, 25, 60 и 80 кэВ. В полученных распределениях положение максимумов /средние пробеги ионов \bar{R}_p / хорошо согласуются с теоретическими данными Braice/ 10 /. Полуширина же распределений по сравнению с теорией на 20-30% шире.

Влияние последующего отжига при температурах 400 и 900°C на распределение атомов бора показано на рис. 5. Как видно из рис. 6, наличие на поверхности кремния окисной пленки толщиной 1200 А приводит к заметному накоплению ядер бора на границе раздела сред. В стекловидных металлах метод позволяет наблюлать концентрацию ¹⁰В до 1.2 мкм. Знание приповерхностного состава стекловидных металлов необходимо пля отработки технологии получения тонких пленок для задач микроэлектроники. Из полученных результатов видно /рис. 7/, что приповерхностные концентрации атомов бора одного и того же образца различны и меньше расчетных для этих сплавов. Непосредственно у поверхности, от О до О,2 мкм, наблюдается довольно значительное уменьшение концентрации бора по сравнению с концентрацией в глубине образцов.

На рис. 8 представлено распределение атомов бора в алюминиевой фольге, полученное при вакуумном напылении бора при температуре образца 150-200° С. Обращает на себя внимание диффузия атомов бора на большие глубины в процессе напыления, кривая 1, и отсутствие ее при последующем отжиге образца при температуре 400° С в течение 2 часов. Вероятно, это связано с тем, что в процессе напыления /10-15 с/ диффундирует атомарный бор, а после напыления - не свободный бор, а бориды алюминия.



Рис. 5. Влияние отжига на распределение атомов ¹⁰ В в кремнии. Доза имплантации - 2000 мкКл · см⁻² при энергии E_i . — — – до отжига, $E_i = 25$ кэВ; – Λ - Λ - – после отжига при температуре 400°С в течение 30 мин, $E_i = 25$ кэВ; — – – до отжига, $E_i = 40$ кэВ; – – – после отжига при температуре 900°С в течение 30 мин. d - глубина, мкм; с - концентрация ¹⁰ В атом/см³.

8

Рис. 7. Приповерхностное распределение ядер ¹⁰ В в стекловидных металлах.

000	Fe40 ^{Ni40} B20	теоретическая и	концентрация.
• • •	Fe ₈₀ P ₁₀ B ₁₀ .	d - глубина, мкм; (е – концен-
	$Fe_{40}Ni_{40}P_{14}B_6$.	трация ¹⁰ В, атом/см	t^{-3} .

В качестве примера применения метода в биологии в табл. 1 приведены полученные данные о концентрации бора в листьях кукурузы при различных концентрациях борной кислоты в питательной среде и распределение бора по длине листа.

Таблица 1

Концен т ра- ция Н ₃ ВО ₃ , мол/л	10 ⁻²	10 ⁻³	10 ⁻⁴	Контроль	Примечание
Концентра- ция ¹⁰ В, атом/см ³ .	8,6	0,79	0,65	0,35	время роста 72 час
• 10 ⁻²⁰	1,9	0,57	0,28		24 час
Участок стебля листа расст. (в мм от черешка	a,) 0-15	15-27	27-42		
Концен т рани атом/см ³ .10 ⁻	я ¹⁰ В, -20 14,0	9,60	8,2		

2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ БОРА ПО ГАММА-КВАНТАМ

В последние годы большое внимание исследователей привлекает использование в нейтронозахватной терапии боросодержащих соединений типа $B_{12}H_{11}$ SH⁻ и Na $_2B_{12}H_{11}$ SH^{-/11/}. Знание распределения этих соединений в облучаемом объекте необходимо для определения дозного поля. Для выбора наиболее оптимальных условий облучения мишени требуется непрерывное наблюдение in vivo за процессами накопления /задержки/ боросодержащих соединений в опухолевых и нормальных

Рис. 8. Распределение атомов бора в алюминии. ----после вакуумного распыления бора, температура подложки около 200°С, -0-0- - этот же образец, но после отжига при температуре 400°С в течение 120 мин. d глубина, мкм; с - концентрация ¹⁰В, атом/см³.

Рис. 9. Распределение плотности потока тепловых нейтронов $\Psi(\mathbf{x})$ по оси пучка при облучении фантома: 1 быстрыми нейтронами со средней энергией 3,0 МэВ, 2 - надтепловыми нейтронами со средней энергией 100 эВ, 3 - тепловыми нейтронами, X - глубина фантома, мм.

тканях. Кроме того, необходимо in vitro изучать процессы выведения соединений из крови. Для этих целей и была разработана методика определения концентрации ¹⁰В по гамма-лучам.

2.1. Методика измерений

Для определения концентрации атомов бора в крупных объектах in vivo использовался мононаправленный пучок быстрых нейтронов. Использование быстрых нейтронов обосновывается тем, что в водородосодержащих средах определяющую роль в формировании поля тепловых нейтронов несут первичные нейтроны пучка и потому затухание результирующего поля тепловых нейтронов в направлении пучка $\Phi(x)$, *рис.* 9, значительно меньше, чем для тепловых и надтепловых нейтронов.

Результирующее временное поле тепловых нейтронов в любой точке г среды после инжекции в нее короткого импульса быстрых нейтронов, как известно, затухает по закону:

$$\Phi(\vec{\mathbf{r}},t) = \sum_{\alpha} S_{\alpha} R_{\alpha}(\vec{\mathbf{r}}) \exp(-\alpha t).$$
 /3/

Операцию суммирования гармоник с постоянными затуханиями α можно провести экспериментально, если регистрировать нейтроны по захватным гамма-лучам со всего объема облучаемого объекта. Тогда усредненный по объему поток нейтронов затухает с постоянной затухания основной гармоники $\alpha_0 = \tau^{-1}$ *.

Следовательно, при проведении измерений во временном окне /от 20 до 400 мкс/, рис. 10, практически

^{*} Измеряя постоянные затухания для отравленной 1/v поглотителем (a_{0B}) и неотравленной (a_{00}) среды, можно определить среднюю концентрацию вводимых ядер N_B по выражению N_B = $\frac{a_{0B} - a_{00}}{v\sigma_a}$, где σ_a - сечение поглощения вводимых ядер. Таким способом можно определять концентрацию Li.

Рис. 10. Временное распределение N(t) гамма-квантов при инжекции в фантом быстрых нейтронов с длительностью импульса $\tau = 4,0$ мкс. $\tau = 130$ мкс - среднее время жизни нейтронов в тканеэквивалентном фантоме объемом 4000 см³, t - время в мкс.

Рис. 11. Амплитудный спектр 'Ge(Li)-детектора при концентрации ${}^{10}B$ в фантоме 10 мкг/см ${}^3.2223$ -линия водорода в кэВ, 1201 - линия двойной утечки в кэВ, 478 - линия ${}^{10}B$ в кэВ.

регистрируются только гамма-кванты от захвата тепловых нейтронов элементами исследуемого объекта.

Из примера амплитудного спектра, *рис. 11*, видно, что фон в районе линии 478 $\kappa_3 B^*$ определяется в основном комптоновскими квантами от водородной линии 2223 $\kappa_3 B$. Концентрация ядер бора in vitro в толстых, относительно пробега альфа-частицы, образцах определялась тоже по гамма-лучам, но в пучке тепловых нейтронов. В обоих случаях для регистрации гаммаквантов используются Ge(Li)-детекторы объемом 20-30 см³.Схема расположения детекторов и образцов относительно пучка нейтронов показана на *рис. 12*.

2.2. Результаты и обсуждения

Для определения чувствительности и диапазона измеряемых концентраций атомов ¹⁰В были экспериментально получены следующие характеристики метода.

1. Зависимость числа импульсов в фотопике линии 478 кэВ от концентрации ¹⁰ В в тканеэквивалентном фантоме объемом 4000 см³, рис. 13. Эта зависимость была получена при диаметре коллиматора на Ge(Li) детекторе 30 мм и расстоянии от оси пучка до оси детектора 350 мм. При указанных условиях надежно определяется концентрация 3,0±0,35 мкг при локальной дозе быстрых нейтронов 1,0 рад. Нелинейность зависимости N(c) при концентрациях выше 50 мкг/см объясняется уменьшением плотности потока тепловых нейтронов, рис. 14а, за счет увеличения макроскопического сечения захвата Σ_{a} .

2. Определен диапазон измеряемых концентраций ¹⁰В в модели опухоли объемом 10 см³ при концентрации бора в окружающей среде 20 мкг/см³Из аналогичных, представленных на *рис.* 13 зависимостей N(C)/*рис.* 146/ видно, что in vivo можно определять концентрацию ¹⁰В в диапазоне 30-100 мкг/см³

^{*} Уширение линии 478 κ_{3B} объясняется доплеровским сдвигом ($\pm v/c$) гамма-квантов, испускаемых возбужденным ядром ⁷ Li.

Рис. 12. Схема эксперимента. 1 - водяная защита, 2 свинцовый коллиматор, 3 - образец, 4 - защита из ⁶LiF, , 5 - свинцовая защита, 6 - Ge(Li) - детектор, 7 - фантом, 8 - модель опухоли, 9 - механизм перемещения фантома по оси пучка.

Рис. 13. Зависимость числа импульсов от концентрации ${}^{10}\text{B}$. N \cdot 10 $^{-3}$ - число импульсов, с - концентрация ${}^{10}\text{B}$ в фантоме, мкг/см 3 .

Рис. 14. А. Зависимость плотности потока тепловых нейтронов от концентрации ${}^{10}\text{B}$ в фантоме. Ф-плотность потока в относительных единицах, с - концентрация ${}^{10}\text{B}$, мкг/см 3 , Σ_a - макроскопическое сечение, см ${}^{-1}$. В.Зависимость числа импульсов от концентрации ${}^{10}\text{B}$ при просматривании детектором: 2 - гомогенного фантома при концентрации бора 20 мкг/см 3 с моделью опухоли, в которой изменялась концентрация бора от 20 до 220 мкг/см 3 ; 3 - гомогенного фантома без опухоли; 4 - эффект только от модели опухоли. N·10 ${}^{-3}$ - число импульсов.

3. Найдена нижняя граница определяемых концентраций ¹⁰В in vitro в пучке тепловых нейтронов с потоком 10³ нейтр./см² с для следующих видов образцов:

- обезвоженных тканей экспериментальных животных - 10±0,5 *мкг*,

- водных растворов /кровь, плазма крови/ при объеме в пучке не менее 10 см³- 2,5<u>+</u>0,1 мкг/см³.

Благодаря таким значениям чувствительности определения ${}^{10}\text{B}$ метод можно использовать не только в практике нейтронзахватной терапии, но и при изучении распределения нуклидов, содержащих ${}^{10}\text{B}$, в экспериментальных животных.

выводы

Измерения, проведенные на импульсном реакторе ИБР-ЗО по методу времени пролета, показали, что в перспективе на ИБР-2 /7/при потоке тепловых нейтронов в пучках до 5.10⁸ нейтр./см² с время измерения одного образца с концентрацией¹⁰В 10¹⁵атом/см²сократился до 5-10 мин. В настоящее время на одно измерение профиля затрачивается 20-30 часов. Кроме того, увеличение интенсивности пучка позволит изучать профили бора в материалах в широком диапазоне доз ионов. В пучках ИБР-2 можно будет измерять распределение таких атомов, как Li, N и He по реакциям ${}^{6}Li(n,a)T$, $^{14}N(n,p)^{14}C$ и ³ He(n.p) T соответственно. Например, на ИБР-ЗО при размещении детектора и образца в пучке /плохая геометрия/ за 1 час измерений хорошо видна линия протонов в реакции ¹⁴N(n, p) ¹⁴C от азота воздуха /0.5 мм/, рис. 15. Сплошное распределение протонов обусловлено азотом лавсана /толщина О.3 мм/.

Рис. 15. Аппаратурный спектр протонов от реакции ¹⁴N(n,p)¹⁴C. п - номер канала, N(n) - число импульсов на канал.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Garbrah B.W., Whitley J.E. AnalChem., 1967, 39(3), p.345.
- 2. Comar D. e.a. Nucl. Appl., 1969, 6, p.344.
- 3. Bontemps A., Ligeon E. Rapport CEA-N-1492, Grenoble, 1971.
- 4. Kvitek J., Hnatowicz V., Kotas P. Radiochem. Radioan. Lett., 1976, 23 (3), p.205.
- 5. Боганч Я. и др. ОИЯИ, РЗ-10777, Дубна, 1977.
- 6. Murray B.W. e.a. Biomedical Dosimetry, Proceedings of a Symposium, Vienna, Inst. Atomic Energy Agency, Vienna, 1975, IAEA-SM-193/48, p.179.
- 7. Ананьев В.Д. и др. ОИЯЙ, 13-4395, Дубна, 1969.
- 8. Боганч Я. и др. ОИЯИ, Р11-11212, Дубна, 1978.
- 9. Ziegler J.F., Cole G.W., Baglin J.E.E. J.Appl. Phys., 1972, 43, p.3808.
- 10. Brice D.K. Ion-Implantation Range and Energy Deposition Distributions, vol. 1 (IFI), Plenum, New York, 1975, p.569.
- 11. Hatanaka H., Sweet W.H. Biomedical Dosimetry. Proc. of a Symposium, Vienna. IAEA-SM-193/79, 1975, p.147.

Рукопись поступила в издательский отдел 31 июля 1978 года.