

УДК 539.172

ИССЛЕДОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛАХ С МЕТАЛЛАМИ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ НЕЙТРОНАМИ И ФОТОНАМИ

© 2019 г. Ю. М. Бурмистров¹, В. М. Скоркин¹, *

¹Институт ядерных исследований РАН, 117312 Москва, Россия

*E-mail: skorkin@inr.ru

Поступила в редакцию 24.05.2018 г.

После доработки 22.06.2018 г.

Принята к публикации 22.06.2018 г.

Исследовано вторичное рентгеновское излучение при облучении композитов нейтронами и фотонами. Изучено воздействие на биологические клетки характеристического рентгеновского излучения и конверсионных электронов от захвата жидкокристаллическими структурами ДНК–Gd замедляющихся нейтронов из DT-реакции. Жидкокристаллическая структура в виде микрочастиц объемом 0.1 мкм³ содержит 10000 атомов Gd на каждую молекулу ДНК. В процессе облучения нейтронами биологических образцов с концентрацией в 1000 частиц ДНК–Gd на одну биологическую клетку происходит поражение клеток вторичным радиационным излучением при флуенсе тепловых нейтронов ~10¹¹ н/см². С помощью спектрометра из особоочистого германия исследованы также радиационно-защитные свойства и характеристическое рентгеновское излучение композита с Pb при облучении фотонами от кобальт-57 активностью 100 кБк.

Ключевые слова: рентгеновское излучение, композит, металл, нейтрон, фотон.

DOI: 10.1134/S0207352819030053

ВВЕДЕНИЕ

Тяжелые металлы используются для создания препаратов ядерной медицины и материалов для защиты от радиационного излучения. Например, гадолиний и иттербий используются в препаратах для нейтрон-захватной терапии и брахитерапии злокачественных новообразований [1–4]. Микрочастицы свинца и вольфрама применяются в композитных радиационно-защитных материалах как поглощающие гамма и бета излучение агенты [5, 6]. Эти элементы интенсивно поглощают фотонное или нейтронное излучение и создают рентгеновское излучение и конверсионные электроны. В первом случае вторичное радиационное излучение от реакции захвата тепловых нейтронов используется для поражения раковых клеток в организме больного. В защитных материалах поглощение гамма и бета излучения применяется для уменьшения энергии и проникающей способности радиации и защиты жизненно важных органов персонала.

Гадолиний, имеющий большое сечение захвата тепловых нейтронов, используется в композитах (как источник характеристического рентгеновского излучения и конверсионных электронов) [7]. Эффективность применения препаратов с гадолинием зависит от локальной concentra-

ции гадолиния в используемых средствах. В работах [8–10] были исследованы свойства жидкокристаллической структуры комплекса ДНК–Gd с концентрацией гадолиния около 300 мг/мл. Исследованные жидкокристаллические структуры объемом 10⁻¹³ см³ в виде частиц цилиндрической формы содержали 10⁴ двух цепочечных молекул ДНК и 10⁸ атомов Gd. Определено, что в структуре ДНК–Gd три атома гадолиния соединяют 2 нуклеотида (фосфатные группу) молекул ДНК. Использование этих композитных материалов как основного компонента туморотропного вещества для поглощения нейтронного излучения может значительно повысить эффективность нейтрон-захватной терапии (НЗТ). Высокая концентрация гадолиния, доставляемого в опухоль, позволяет уменьшить необходимый для терапии поток нейтронов и вредное воздействие облучения на здоровые ткани.

Композитные материалы с элементами свинца и вольфрама в несколько раз увеличивают поглощение внешнего радиационного излучения, преобразуя его в локальное рентгеновское излучение.

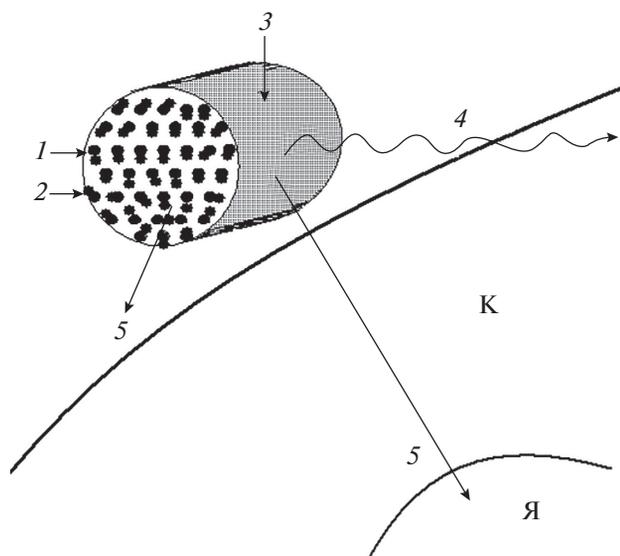


Рис. 1. Схематическое изображение процесса захвата нейтронов в частице ДНК-Gd с вылетом рентгеновского излучения, оже-электронов и конверсионных электронов на поверхности биологической клетки: 1 – молекула ДНК, 2 – ион гадолиния, 3 – нейтрон, 4 – вторичный фотон, 5 – вторичный электрон, К – клетка, Я – ядро клетки.

МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Модельные расчеты показывают, что двойное повреждение ядра раковой клетки приводит к ее гибели [11]. Реакция захвата тепловых нейтронов в частицах ДНК-Gd сопровождается образованием характеристического рентгеновского излучения (42.4 кэВ), оже-электронов (до 7 кэВ) и конверсионных электронов (от 30 до 200 кэВ). Оже-электроны почти полностью поглощаются в частице ДНК-Gd [12]. Рентгеновское излучение и конверсионные электроны вылетают из частиц и могут поражать ядра раковых клеток (рис. 1). Вероятность рентгеновского излучения и образования конверсионного электрона составляет около 50% на один захваченный частицей ДНК-Gd тепловой нейтрон. В биологическом материале объемом 1 мл содержится $\sim 10^8$ клеток, и при концентрации частиц ДНК-Gd около 10^{11} см $^{-3}$ (или гадолиния около 5 мг/мл 3) возможно гарантированное проникновение радиационного излучения в ядро клетки и его двойное повреждение. Двойной радиационный захват в частицах ДНК-Gd, приводящий к поражению клеток возможен при флуенсе тепловых нейтронов $\sim 10^{11}$ н/см 2

В настоящей работе исследование вторичного радиационного излучения от захвата нейтронов проводится по его действию на биологические клетки в образцах. В эксперименте с нейтронами использовались биологические образцы, содержащие около 10^7 биологических клеток в пита-

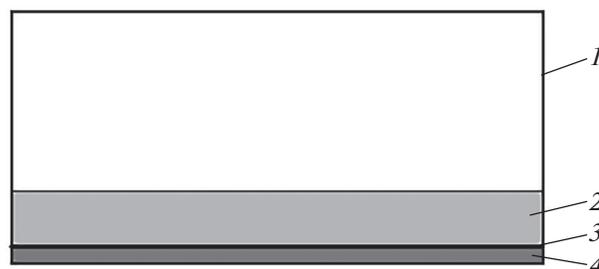


Рис. 2. Схематическое изображение образца с биологическими клетками и частицами ДНК-Gd: 1 – контейнер, 2 – водный раствор, 3 – слой из частиц ДНК-Gd, 4 – слой биологических клеток.

тельном водном растворе. Одноклеточный слой (объемом 0.1 мл) был равномерно распределен на дне пластмассового контейнера (рис. 2). Слой из частиц ДНК-Gd (с массой гадолиния Gd около 0.5 мг) покрывал слой биологических клеток и тем самым создавал концентрацию около 1000 частиц ДНК-Gd на клетку или концентрацию гадолиния в биологическом материале около 5 мг/мл.

В исследовании локального рентгеновского излучения в защитных материалах с элементами свинца (79 кэВ) и вольфрама (64.5 кэВ) измерялись спектры фотонов при облучении композиционных материалов излучением от источника ^{57}Co . Определялась степень ослабления первичного фотонного излучения и интенсивность характеристического локального рентгеновского излучения.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Устройство для облучения биологических образцов нейтронами располагалось вблизи мишени нейтронного генератора (рис. 3). Быстрые (14 МэВ) нейтроны от нейтронного генератора размножались за счет неупругого рассеяния и реакции ($n, 2n$) в конвертере из вольфрама толщиной 2 см и замедлялись до тепловой энергии в блоке-замедлителе из полиэтилена размером $20 \times 20 \times 20$ см [13]. Внутри куба в полости размером $5 \times 5 \times 10$ см располагались биологические образцы с клетками. Конвертер-отражатель из свинца толщиной 20 см создавал дополнительный поток нейтронов. Слои из висмута и борированного полиэтилена окружали устройство для поглощения внешних нейтронов и гамма излучения.

Для обеспечения жизнедеятельности клеток температура внутри полости устройства поддерживалась около 36°C с помощью термостата. Стабильность температуры обеспечивалась регулировкой нагревательных элементов термостата, помещенных в полость с биологическими образцами и датчиками температуры.

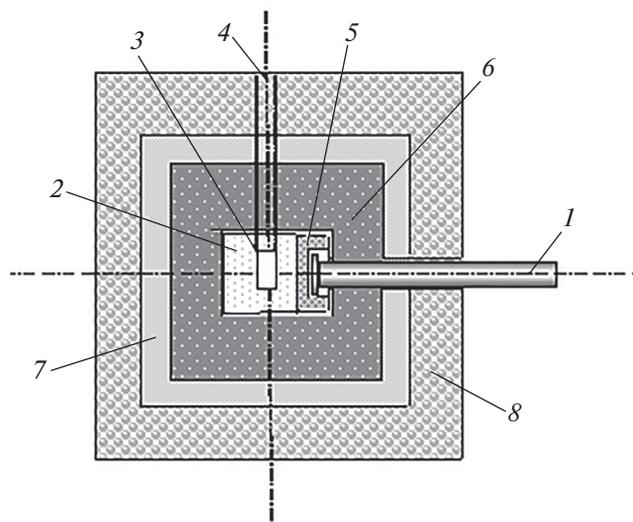


Рис. 3. Устройство для облучения биологических образцов: 1 – источник быстрых нейтронов (нейтронный генератор), 2 – блок-замедлитель быстрых нейтронов, 3 – полость внутри куба, 4 – входное отверстие для размещения облучаемых образцов, 5 – конвертер из вольфрама, 6 – конвертер-отражатель из свинца, 7 – слой защиты от гамма-излучения и нейтронного излучения, 8 – слой защиты из борированного полиэтилена.

Для исследования характеристического рентгеновского излучения в композитном защитном материале использовался источник ^{57}Co (активностью 10^5 Бк) с энергией фотонов 122.06 кэВ (85.5%), 136.47 кэВ (10.7%). Спектры рентгеновского излучения от защитного материала и фотонов от источника измерялись низкофоновым гамма-спектрометром на основе детектора из сверхчистого германия [14].

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Для оптимизации экспериментальных условий были выполнены измерения и расчеты плотности потоков тепловых и быстрых нейтронов в замедлителе. Расчет проводился по программе NCNP4V с библиотекой MCNPXS. Измерения выполнены методом активационного анализа с использованием образцов Mn, Nb, In. Значения потоков тепловых и быстрых нейтронов в месте расположения биологических образцов приведены на рис. 4.

Облучение образцов с биологическими клетками проводилось в нескольких сеансах. Перед каждым сеансом готовились три образца с клетками: контрольный, образец для облучения с частицами ДНК–Gd и образец без частиц. Длительность облучения для каждого из двух образцов составляли от 15 мин до 1 ч. Флуенс тепловых и быстрых нейтронов измерялся активационным ме-

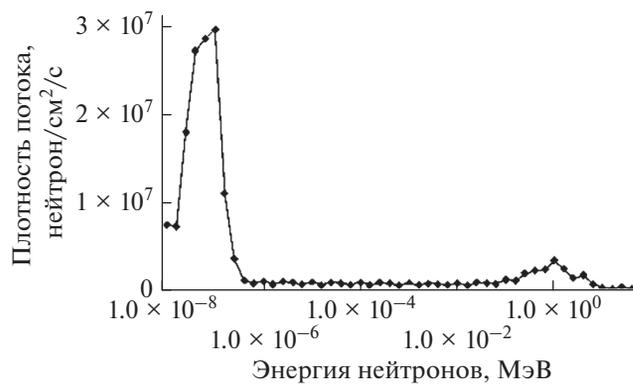


Рис. 4. Расчетное энергетическое распределение нейтронов в полости с облучаемыми биологическими образцами внутри устройства.

тодом и изменялся в интервале $(0.5–5) \times 10^{11}$ н/см² в зависимости от величины тока дейтронов на мишени НГ-400. Плотность потока быстрых и тепловых нейтронов в образцах менялась в интервалах $(1–3) \times 10^7$ и $(0.5–1.5) \times 10^8$ н/см²/с соответственно.

После сеансов образцы выдерживались несколько дней, а затем проверялись на наличие в них живых, размножающихся клеток. Отсутствие таких клеток в образце свидетельствует о гибели клеток под облучением.

В результате исследований установлено, что после сеанса с флуенсом тепловых нейтронов свыше 10^{11} н/см², клетки в биологическом образце с частицами ДНК–Gd погибают и не размножаются (рис. 5). Биологические клетки в контрольных образцах и в облученных без частиц ДНК–Gd образцах остаются живыми и размножаются. Это свидетельствует о том, что дополнительное характеристическое рентгеновское излучение и конверсионные электроны от захвата нейтронов в частицах ДНК–Gd поражают биологические клетки. Исследованный композитный материал для нейтрон-захватной-терапии имеет

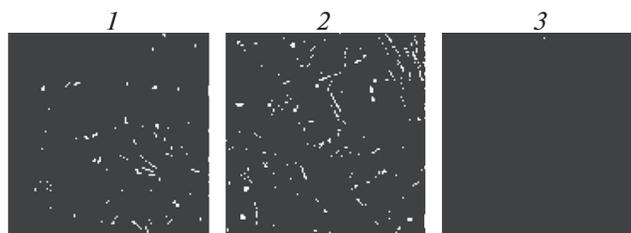


Рис. 5. Оптическое изображение биологических клеток из образцов после их облучения (получено с помощью микроскопа Leica DMI4000): 1 – контрольный, необлученный образец, 2 – облученный нейтронами образец без частиц ДНК–Gd (светлые точки-клетки), 3 – облученный образец с частицами ДНК–Gd.

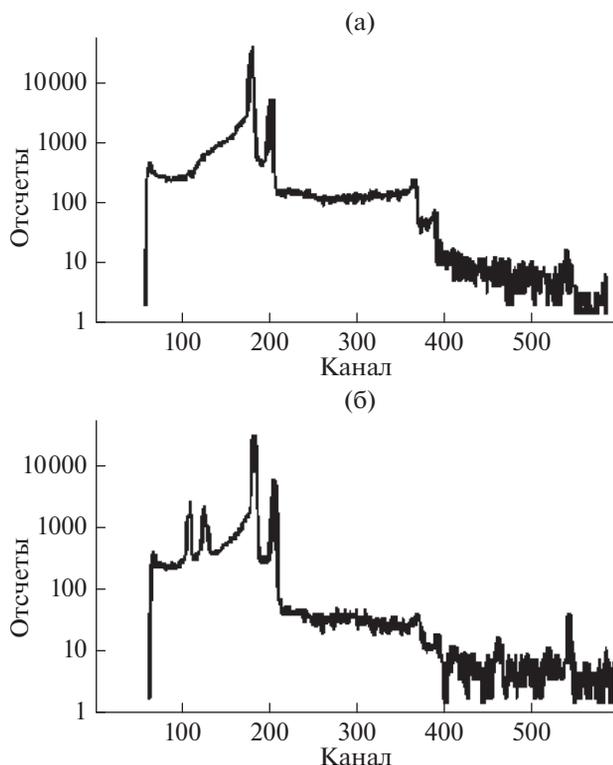


Рис. 6. Спектры фотонов от источника ^{57}Co , измеренные на низкофоновом гамма-спектрометре: а – спектр фотонов от открытого источника ^{57}Co , б – спектр фотонов от источника ^{57}Co , закрытого защитным материалом.

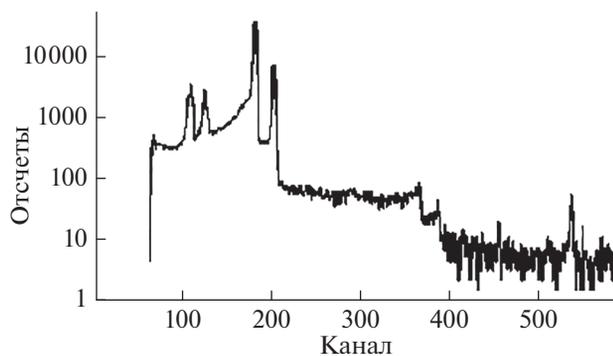


Рис. 7. Спектр вторичного рентгеновского излучения и фотонов от источника ^{57}Co , закрытого пластиной свинца.

высокую концентрацию гадолиния и позволяет в несколько раз уменьшить необходимый поток нейтронов и вредное воздействие облучения.

При гамма-облучении радиационно-защитного материала были измерены спектры характеристического рентгеновского излучения и спектры ослабленного гамма излучения источника ^{57}Co , прошедшего через композитный материал с ме-

таллом (рис. 6). Спектр от открытого гамма источника ^{57}Co измерялся 50 с. Спектр от источника ^{57}Co , закрытого защитным материалом измерялся 150 с. Пик в спектре характеристического рентгеновского излучения с энергией около 80 кэВ указывает на наличие в защитном материале свинцовой компоненты. Интенсивность характеристического излучения составляет 3% от интенсивности линии 122 кэВ источника. Наличие элементов свинца в защитном композите подтверждается также измерением спектра характеристического излучения от свинцовой пластины, закрывающей источник (рис. 7). Из анализа гамма пиков на спектрах при энергиях 122.06 и 136.47 кэВ определены величина ослабления защитным материалом гамма-излучения при этих энергиях (3.7 и 2.8 соответственно). Оценка концентрации свинцовой компоненты в защитном материале по этим величинам дает значение около 0.3 г/см^2 .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования композитов с компонентами тяжелых металлов важны для создания препаратов ядерной медицины и радиационно-защитных материалов. Гамма-, бета-излучение и нейтроны (как наиболее распространенный и проникающий вид радиации) может эффективно поглощаться компонентами композитных материалах и создавать локальное рентгеновское и электронное излучение. Результаты проведенных исследований важны для создания композитных материалов с высокой способностью поглощения радиации и уменьшения вредного воздействия облучения на человека.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Miller G.A., Hertel N.E., Wehring B.W. et al. // Nuclear Technology. 1993. Т. 103. 320.
2. Piermattei A., Azario L., Montemaggi P. // Phys. Med. Biol. 1995. V. 40. P. 1331.
3. David C.M., Mark A.T., John J.M. et al. // Med. Phys. Biol. 2007. V. 34. P. 3614.
4. Mitin V.N., Kulakov V.N., Khokhlov V.F. et al. // Applied Radiation and Isotopes. 67 2009. Т. 67. P. 299.
5. Гелашвили В.Р. Пленочные материалы для защиты от радиации: Автореф. дис. ... канд. техн. наук. Пенза: ПГАСА, 1997. 24 с.
6. Гришина А.Н. Структура и свойства радиационно-защитных жидкостекловых композиционных материалов повышенной плотности: Дис. ... канд. техн. наук. Воронеж: Воронеж. гос. архитектур.-строит. ун-т, 2010. 230 с.
7. Greenwood R.C., Reich C.W., Baader H.A. et al. // Nucl. Phys. 1978. V. A304. P. 327.

8. Евдокимов Ю.М., Салянов В.И., Нечипуренко Ю.Д. и др. // Молекулярная биология. 2003. Т. 37. С. 1.
9. Yevdokimov Yu.M., Salyanov V.I., Kondrashina O.V. et al. // Int. J. Biol. Macromol. 2005. V. 370. P. 165.
10. Акулиничев С.В., Скоркин В.М. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2008. Т. 12. С. 74.
11. Goorley T., Zamenhof R., Nikjoo H. // Int. J. Radiat. Biol. 2004. V. 80. P. 933.
12. Акулиничев С.В., Евдокимов Ю.М., Лазебник Д.Б. и др. // Медицинская физика. 2006. № 4. С. 54.
13. Andreev A.V., Makarov S.A., Skorkin V.M. // Proc. of XII Int. Conf. on Electrostatic Accelerators. Obninsk. Russia, 2000. P. 94.
14. Andreev A.V., Burmistrov Yu.M., Konobeevski E.S. et al. // Proc. of 4th Int. Conf. "NPAE-Kyiv 2012", 2013. Part 2. P. 575. <http://www.npae2012.kiev.ua/docs/NPAE-Kyiv2012-Part202.pdf>.

Study of X-Ray Radiation in Composites with Metals Irradiated by Neutrons and Photons

Yu. M. Burmistrov, V. M. Skorkin

Secondary X-ray radiation was studied upon irradiation of composites by neutrons and photons. The effect on the biological cells of characteristic X-ray radiation and conversion electrons upon the absorption by liquid-crystal structures of DNA–Gd slowing neutrons from the DT-reaction was studied. In a liquid crystal structure in the form of microparticles with a volume of $0.1 \mu\text{m}^3$, there are 10000 Gd atoms per DNA molecule. At a fluence of thermal neutrons of $\sim 10^{11} \text{ n/cm}^2$ and a concentration of 1000 particles of DNA–Gd per cell, the cells are damaged by secondary radiation. Using the spectrometer from the HPG, the radiation-protective properties and characteristic X-ray emission of a Pb composite were studied under irradiation with photons from cobalt-57 with an activity of 100 kBq.

Keywords: X-ray radiation, composite, metal, neutron, photon.