

# $^{56}\text{Fe}+p$ 散裂核反应中的正电子放射核产生

程瑞学<sup>1</sup>, 许景丽<sup>2</sup>, 马春旺<sup>2</sup>, 王芳<sup>2</sup>, 代智涛<sup>3</sup>

(1. 新乡市中心医院 影像中心, 河南 新乡 453000; 2. 河南师范大学 物理与电子工程学院, 河南 新乡 453007;  
3. 第二军医大学附属长海医院 放射诊疗科, 上海 200433)

**摘要:**利用现有 GSI-FRS 实验测量的 300、500、750、1000 和 1500 MeV/u  $^{56}\text{Fe}+p$  散裂反应产物的结果, 分析了正电子放射核在散裂反应中产额随入射能量的变化关系. 对正电子放射核的半衰期按照时间量级分类统计表明, 半衰期在分钟以上的正电子放射核的总截面的总截面随系统能量在 50~70 mb 之间, 所有产生的正电子放射核的截面随反应系统能量变化较小, 保持在 103 mb 附近. 对一些正电子放射核的截面分析表明它们随入射能量指数变化. 这对于当前质子和重离子治疗中利用正电子放射核进行实时正电子监测成像研究具有意义.

**关键词:**散裂反应; 正电子放射性核素; 质子治疗; 正电子影像

**中图分类号:**O571.42+; R445.5; R73

**文献标志码:**A

目前, 国内正掀起质子和重离子治疗中心的建设浪潮. 截至 2015 年底, 国内在山东和上海已建成一家质子中心和一家质子重离子中心. 基于国产技术的甘肃武威重离子医院也将于 2016 年投入使用. 相比于光子放疗技术, 质子和重离子在肿瘤治疗方面具有明显的物理学和生物学优势, 但其技术成熟度不如光子治疗技术, 尤其是重离子治疗方法处于从研究到商用的过渡阶段.

在质子和重离子治疗中, 通过高能质子或重离子在肿瘤部位形成的很窄并且能量密度很高的布拉格(Bragg)能量沉积产生的生物学和物理学效应<sup>[1]</sup>, 可以实现高精度治疗和低辐射副作用的效果. 当前的质子和重离子治疗装置是集高能质子或重离子产生与运输、剂量监测、医学影像和医学治疗等治疗控制显示系统为一体的大型设施. 在监测系统中, 正电子成像(PET)是重要的组成部分. PET 系统是利用正电子放射性核素(positron emitting nucleus, PEN)的放射特点进行成像和诊断的高质量放射成像系统. 目前 PET 影像中常用的正电子放射性核素主要包括 $^{11}\text{C}$  [1-2],  $^{13}\text{N}$  [2-3],  $^{18}\text{F}$  [4-5],  $^{64}\text{Cu}$  [6] 和  $^{68}\text{Ga}$  [7] 等. 它们通常需要病人服用合成药剂的方式引入体内. 在质子和重离子治疗中, 由于质子和重离子具有很高的能量, 会在所经过路径上的诱发一定数量的原子核反应. 在这些核反应中, 散裂(spallation)反应是一种最激烈的核反应, 可以产生许多带有次级放射性核的核素. 这些次级放射性核素中就包含许多 PEN, 如 $^{11}\text{C}$ 、 $^{10}\text{C}$ 、 $^{13}\text{N}$  和  $^{15}\text{O}$  等<sup>[1]</sup>, 它们在质子和重离子治疗中的监测具有医学意义, 对 PEN 产物研究正变得热门<sup>[8-9]</sup>. 文献[9]中综述了在质子治疗过程中, 由高能质子诱发核反应产生的 PEN 的利用现状, 但仅考虑了半衰期时间较长 PEN 的在线和离线利用方法等. 另外, 这些工作中未考虑质子入射能量的影响.

本文将基于现有的不同反应能量下  $\text{Fe}+p$  逆动力学散裂反应测量的实验数据, 探讨在中高能质子诱发散裂反应中 PEN 随反应能量的变化规律.

## 1 质子诱发放裂反应的特点

散裂反应是利用具有几百 MeV 每核子能量的轻粒子炮弹, 如质子、中子和  $\alpha$  粒子等, 轰击大质量靶原

收稿日期:2016-04-09; 修回日期:2016-04-26.

基金项目:河南省科技创新人才计划项目(154100510007); 河南省高校科技创新人才计划项目(13HASTIT046).

第 1 作者简介:程瑞学(1971-), 男, 河南新乡人, 新乡市中心医院影像中心高级工程师, 研究方向:核磁共振原理与影像技术.

通信作者:马春旺, E-mail: machunwang@126.com.

子核的一种反应类型,由于轻粒子炮弹的入射能量高,会引发靶核的剧烈破碎和急剧升温,会产生丰富的核素品种,例如丰质子核和丰中子核.因此散裂反应是产生放射性核的一种重要方式<sup>[10]</sup>.

用于质子治疗的质子通常要利用加速器把质子的能量提高到几百 MeV 到 GeV 以上,并根据肿瘤部位在体内的深度不同调节质子束流的能量.这为研究不同质子能量下核散裂反应中 PEN 的产额提出了理论需求.2000年,Villagrasa-Canton 等利用德国 GSI 研究所的同位素分离器(Fragment Separator, FRS)测量了 300、500、750、1000 和 1500 MeV/u  $^{56}\text{Fe}+p$  的散裂反应产物,并对产物的截面进行了高精度测量.2007年他们报道了 $^{56}\text{Fe}+p$  散裂反应产物的截面等结果<sup>[11]</sup>.这些实验结果为研究不同能量散裂反应中 PEN 的产生规律提供了非常好的样本.本文将基于文献[11]中报道 PEN 的截面进行分析.

## 2 质子诱发散裂反应中正电子放射性核素的分类

表 1 中根据实验数据列出了不同能量下 Fe+p 反应中产生 PEN 的半衰期( $T_{1/2}$ )<sup>[12]</sup>,并把它们按照半衰期的时间量级进行了分类,即:毫秒类(I类)、秒类(II类)、分钟类(III类)、小时类(IV类)、天类(V类)和年类(VI类).由于不同寿命的 PEN 在 PET 中的作用不同,半衰期短的 PEN 可以用于治疗过程的在线监测,而半衰期长的 PEN 可用于治疗后的离线监测[9],本文分析中将对它们按照以上 6 个类别进行分析.对于不同半衰期时间类别的 PEN 分别定义它们的总截面,即半衰期为同一时间量级上所有 PEN 的截面总和  $\sigma_I$ 、 $\sigma_{II}$ 、 $\dots$ 、 $\sigma_{VI}$ .同时定义产生所有 PEN 的总截面为

$$\sigma_T = \sigma_I + \sigma_{II} + \dots + \sigma_{VI}. \quad (1)$$

表 1  $^{56}\text{Fe}+p$  散裂反应中产生 PEN 的半衰期

核素	$T_{1/2}$	核素	$T_{1/2}$	核素	$T_{1/2}$	核素	$T_{1/2}$	核素	$T_{1/2}$
$^{20}\text{Na}$	447.9 ms	$^{43}\text{Ti}$	509 ms	$^{22}\text{Mg}$	3.8755 s	$^{35}\text{Ar}$	1.775 s	$^{43}\text{Sc}$	3.891 h
$^{22}\text{Si}$	29 ms	$^{45}\text{V}$	547 ms	$^{23}\text{Mg}$	11.317 s	$^{37}\text{K}$	1.226 s	$^{44}\text{Sc}$	3.97 h
$^{28}\text{P}$	270.3 ms	$^{46}\text{V}$	422.5 ms	$^{25}\text{Al}$	7.183 s	$^{18}\text{F}$	109.77 min	$^{48}\text{Cr}$	21.56 h
$^{32}\text{Cl}$	298 ms	$^{46}\text{Cr}$	260 ms	$^{26}\text{Si}$	2.234 s	$^{30}\text{P}$	2.498 min	$^{52}\text{Fe}$	8.275 h
$^{34}\text{Ar}$	844.5 ms	$^{47}\text{Cr}$	500 ms	$^{27}\text{Si}$	4.16 s	$^{38}\text{K}$	7.636 min	$^{48}\text{V}$	15.9735 d
$^{38}\text{Ca}$	440 ms	$^{49}\text{Mn}$	382 ms	$^{29}\text{P}$	4.142 s	$^{45}\text{Ti}$	184.8 min	$^{52}\text{Mn}$	5.591 d
$^{39}\text{Ca}$	859.6 ms	$^{50}\text{Mn}$	283 ms	$^{30}\text{S}$	1.178 s	$^{47}\text{V}$	32.6 min	$^{22}\text{Na}$	2.6027 a
$^{41}\text{Sc}$	596.3 ms	$^{51}\text{Fe}$	305 ms	$^{31}\text{S}$	2.572 s	$^{49}\text{Cr}$	42.3 min	$^{26}\text{Al}$	$7.17 \times 10^5$ a
$^{42}\text{Sc}$	681.3 ms	$^{19}\text{Ne}$	17.296 s	$^{33}\text{Cl}$	2.511 s	$^{51}\text{Mn}$	46.2 min	$^{50}\text{V}$	$1.4 \times 10^{17}$ a
$^{42}\text{Ti}$	158 ms	$^{21}\text{Na}$	22.49 s	$^{34}\text{Cl}$	1.526 s	$^{53}\text{Fe}$	8.51 min		

## 3 质子诱发散裂反应中 PEN 的产额

### 3.1 不同半衰期量级 PEN 的产额

图 1 是 Fe+p 反应中产生 PEN 按照半衰期量级分类的总截面随反应能量的变化.从结果可以看出,半衰期为毫秒类和秒类 PEN 的截面  $\sigma_I$  和  $\sigma_{II}$  较低, $\sigma_I$  随入射能量变化不大,但  $\sigma_{II}$  随入射能量以接近指数的幅度增加.分钟量级 PEN 的总截面  $\sigma_{III}$  随入射能量有少量减小,但变化幅度很小;小时量级 PEN 的总截面  $\sigma_{IV}$  随入射能量增加,但在 1500 MeV/u 时变小;天量级 PEN 的总截面  $\sigma_V$  随入射能量降低,而长寿命半衰期以年为单位 PEN 的总产额  $\sigma_{VI}$  基本不变.总体来看,半衰期为分钟量级以上的具有 PET 指示意义 PEN 的总截面处于 10~50 mb 之间.所有 PEN 的总截面  $\sigma_T$  随反应能量变化不大,保持在 103 mb 附近.

### 3.2 PEN 的产额规律

图 2 显示了  $^{18}\text{F}$  ( $T_{1/2} = 107.99$  min),  $^{22}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 2.6027$  a),  $^{23}\text{Mg}$  ( $T_{1/2} = 11.317$  s),  $^{39}\text{Ca}$  ( $T_{1/2} = 859.6$  ms),  $^{52}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 5.591$  d) 和  $^{52}\text{Fe}$  ( $T_{1/2} = 8.275$  h) 等 PEN 在 Fe+p 散裂反应中随反应能量的变化.选择它们的原因是其质量数由小逐渐增大,其中含  $^{18}\text{F}$  核素的药物在目前 PET 中较为常用.另外在图 2 中还画出了利用指数函数对 PEN 截面和反应能量的拟合线.对于  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{23}\text{Mg}$ ,  $^{39}\text{Ca}$ ,  $^{52}\text{Mn}$  和  $^{52}\text{Fe}$ , 指数拟合结果的调整离平方差(adjusted R-square)分别为 0.999、0.996、0.916、0.978 和 0.922 ( $^{18}\text{F}$  拟合结果未获得调整离平方差).从图 2 中及拟合的调整离平方差结果可以看出,这些 PEN 的产额随着反应能量的变化呈现很好的指数变化规律.除了  $^{52}\text{Mn}$  和  $^{52}\text{Fe}$  随反应能量指数减小外,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{39}\text{Ca}$  和  $^{23}\text{Mg}$  的截面均随入射能量

呈指数增加关系. 这表明 PEN 在散裂反应中和反应能量有很好的指数依赖关系. 由于质子治疗中, 涉及组成人体组织各种元素的同位素被不同能量质子轰击的散裂反应产物, 如 p+C/N/O/Ca 等反应, PEN 对这反应能量的指数依赖关系将为其他散裂反应系统中的 PEN 估算提供理论参考.

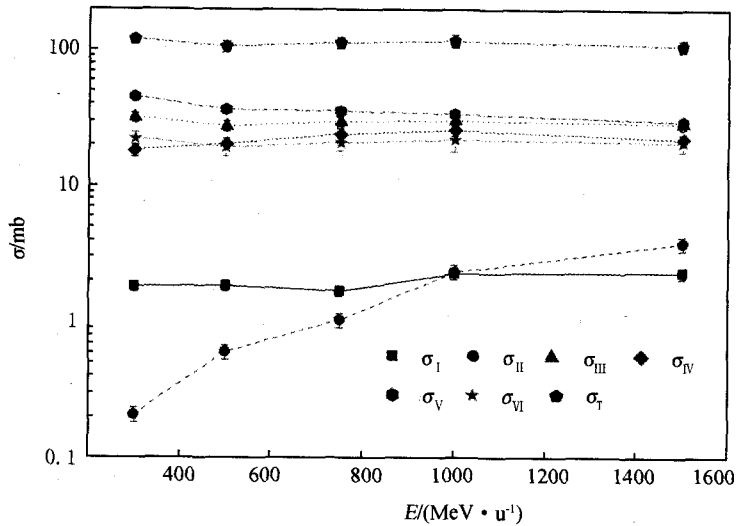
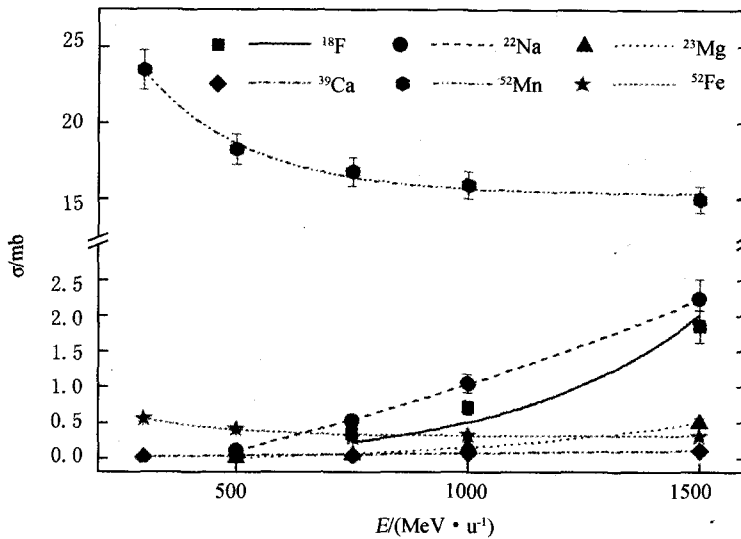


图1 Fe + p散裂反应中不同半衰期量级分类的PEN总截面随入射能量的变化



图中线为利用指数函数 $y = y_0 + A \exp(R_0 x)$ 拟合的结果.

图2 Fe + p散裂反应中产生的<sup>18</sup>F, <sup>22</sup>Na, <sup>23</sup>Mg, <sup>39</sup>Ca, <sup>52</sup>Mn, <sup>52</sup>Fe等PEN随反应能量的变化

### 4 结 论

本文讨论了 PEN 在 Fe+p 散裂反应中的产额规律. 利用现有 GSI-FRS 装置测量的 300、500、750、1000 和 1500 MeV/u <sup>56</sup>Fe+p 反应中余核的截面结果, 分析了 PEN 截面随反应能量的变化规律. 结果表明, 半衰期在 1 min 以上 PEN 的总截面随入射能量的增加值保持在 50~70 mb 之间, 所有产生 PEN 总截面随入射能量变化不大, 维持在 103 mb 作用, 而单个 PEN 的截面随入射能量呈现指数变化关系. 由于半衰期较短和较长的 PEN 在质子和重离子治疗中存在的时间长短不同, 它们分别在治疗过程中的在线监测和治疗后的离线检测方面, 本文对结果利用正电子放射核开展质子和重离子治疗的实时正电子监测和 PET 成像具有参考

意义.

### 参 考 文 献

- [1] 郭忠言, 祁辉荣, 肖国青, 等. 重离子肿瘤治疗中的 PET 设计[J]. 原子能科学技术, 2006, 40(Z): 164-169.
- [2] 何山震, 王淑侠, 王 朋, 等.  $^{18}\text{F}$  和  $^{11}\text{C}$  标记的氨基酸类分子探针的合成及应用研究进展[J]. 核技术, 2014, 37(8): 080302.
- [3] 韩婷婷, 杜 名, 张 新, 等.  $^{13}\text{N}-\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$  PET/CT 在大鼠肝纤维化模型成像的定量研究[J]. 中国临床医学影像杂志, 2014, 25(4): 243-248.
- [4] 何思敏, 罗健民, 张建平, 等.  $^{18}\text{F}-\text{FES}$  小动物 PET/CT 评价不同乳腺癌模型雌激素受体表达的差异[J]. 肿瘤影像学, 2015, 24(1): 35-40.
- [5] 齐传民, 周 黎, 贺 勇. 正电子发射断层显像剂的氟-18 标记[J]. 北京师范大学学报(自然科学版), 2015, 51(5): 492-497.
- [6] 洪 业, 朱 华, 胡 骥, 等. 新型核素  $^{64}\text{Cu}$  标记 D-脱氧葡萄糖及其小动物正电子发射断层扫描显像[J]. 高等学校化学学报, 2014, 35(4): 724-729.
- [7] 秦露平, 程木华. PET-CT 在肺癌鉴别诊断中的研究进展[J]. 新医学, 2015, 46(11): 713-718.
- [8] DENDOOVEN P, BUITENHUIS H J T, DIBLEN F, et al. Short-lived positron emitters in beam-on PET imaging during proton therapy[J]. Phys Med Biol, 2015, 60: 8923-8947.
- [9] ZHU X, FAKHRI G E. Proton Therapy Verification with PET Imaging[J]. Theranostics, 2013, 3(10): 731-740.
- [10] SCHMITT C, SCHMIDT K H, KELIC-HEIL A. SPACS: A semi-empirical parameterization for isotopic spallation cross section[J]. Phys Rev C, 2014, 90(6): 064605.
- [11] VILLAGRASA-CANTON C, BOUDARD A, DUCRET J-E, et al. Spallation residues in the reaction  $^{56}\text{Fe}+p$  at 0.3A, 0.5A, 0.75A, 1.0A, and 1.5A GeV[J]. Phys Rev C, 2015, 91(4): 044603.
- [12] AUDI G, KONDEV F G, WANG M, et al. The Nubase2012 evaluation of nuclear properties[J]. Chin Phys C, 2012, 36(12): 1157-1286.

## Yields of Positron Emitting Nuclei in $^{56}\text{Fe}+p$ Spallation Reactions

CHENG Ruixue<sup>1</sup>, XU Jingli<sup>2</sup>, MA Chunwang<sup>2</sup>, WANG Fang<sup>2</sup>, DAI Zhitao<sup>3</sup>

(1. Medical Imaging Centre, Xinxiang Centre Hospital, Xinxiang 453000, China;

2. College of Physics Electronic Engineering, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China;

3. Department of Radiation Oncology, Changhai Hospital, Second Medical University of PLA, Shanghai 200433, China)

**Abstract:** The fragment yields in the spallation reactions of  $^{56}\text{Fe}+p$  at different incident energies, i. e., 300, 500, 750, 1000, and 1500 MeV/u, which have been measured at GSI-FRS. It has been adopted to analyze the production dependence of positron-emitting nucleus on incident energy. It is found that the total cross sections of the positron-emitting nuclei with a half-life period longer than a minute fall in the range of 50–70 mb. The summary of all the positron-emitting nuclei almost keep as a constant with the incident energy around 103 mb. The cross sections of positron-emitting nuclei are found to depend exponentially on the incident energy of the reaction. The results in this article will be helpful to the online PET monitor in the proton and heavy-ion therapy.

**Keywords:** spallation reaction; positron-emitting nucleus; proton therapy; positron imaging