



مطالعه تئوری تولید رادیوایزوتوپ فسفر-۳۲ با استفاده از نوترون‌های تولید شده از سیکلوترون

دهقان، زهرا السادات^(۱) - تاتاری، منصوره^{(۱)*}

^۱دانشگاه یزد، دانشکده فیزیک، گروه فیزیک هسته‌ای

چکیده:

در این مقاله به محاسبه‌ی بهره تولید شبیه‌سازی واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ با استفاده از نوترون‌های تولید شده در واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)$ پرداخته می‌شود. سطح مقطع واکنش‌های $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ و $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ با استفاده از کد TALYS 1.9 محاسبه شده و با سطح مقطع نتایج تجربی موجود مقایسه شده است. توان توقف پروتون‌ها در ^{68}Zn با استفاده از کد SRIM-2013 محاسبه شده است. همچنین شار نرمالیزه شده نوترون‌ها درون هدف ^{32}S استفاده از کد MCNPX2.6 به دست آمده است. بهره تولید شبیه‌سازی واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ با انتگرال‌گیری به روش سیمپسون به دست آمده و با نتایج تجربی موجود مقایسه شده است. توافق خوبی بین نتایج محاسبات و نتایج تجربی مشاهده می‌شود.

کلمات کلیدی: بهره واکنش، توان توقف، رادیوایزوتوپ‌های گالیم-۶۸ و فسفر-۳۲، سطح مقطع واکنش

مقدمه :

رادیوایزوتوپ‌ها به طور گسترده در پزشکی، کشاورزی، تحقیقات، صنعت و غیره استفاده شده و کاربردهای جدید آن‌ها دائما در حال توسعه است [۱]. رادیوایزوتوپ‌های فسفر، گالیم، ید، تکنسیم، تالیم و زنون از جمله رادیوایزوتوپ‌های مهم و رایج در پزشکی هسته‌ای هستند. ^{32}P از طریق عمل جراحی به طور موضعی برای درمان، به توده سرطانی کبد تزریق می‌شود و در درمان التهاب‌های مفصلی نیز با تزریق مستقیم نتیجه خوبی داشته است [۲]. در بیماری‌هایی که تعداد گلبول‌های قرمز خون توسط مغز استخوان افزایش می‌یابد از ^{32}P برای جلوگیری از این ازدیاد استفاده می‌شود. رادیوایزوتوپ فسفر-۳۲ دارای نیمه عمر ۱۴/۳ روز است و با انتشار ذرات بتا با انرژی بیشینه ۱/۷۲ MeV به حالت پایداری می‌رسد. همچنین فسفر-۳۲ مناسب برای تصویربرداری SPECT است. می‌توان با شبیه‌سازی تولید رادیوایزوتوپ‌ها بهره تولید را به دست آورد و در صورتی که این مقدار برای مسئله مورد نظر مناسب بود آنگاه به تولید آزمایشگاهی آن پرداخته شود [۳]. در این مقاله ابتدا بهره تولید رادیوایزوتوپ گالیم-۶۸ در واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)$ محاسبه شده است و سپس نوترون‌های تولید شده در این واکنش، به عنوان پرتابه در واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ مورد استفاده قرار گرفته و بهره تولید رادیوایزوتوپ فسفر-۳۲ محاسبه شده است.



روش کار :

در ابتدا از بین تمام واکنش‌های با پرتابه‌های مختلف با هدف روی (Zn) که منجر به تولید ^{68}Ga می‌شوند واکنشی که دارای بیشترین سطح مقطع، کمترین ناخالصی ایزوتوپی و غیرایزوتوپی و انرژی آستانه پایین است، انتخاب می‌شود که این واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ است. با استفاده از کد TALYS-1.9 تابع برانگیختگی واکنش پروتون با ^{68}Zn که منجر به تولید ایزوتوپ‌های مختلف گالیم در بازه‌ی انرژی ۰-۱۰۰ MeV می‌شوند محاسبه شده و در شکل ۱ نشان داده شده است. در ادامه با استفاده از نوترون‌های خروجی از واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ به راه‌اندازی واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ توجه شده است. بازه‌ی بهینه انرژی به روشی مشابه قبل انتخاب می‌شود. با استفاده از کد SRIM توان توقف پروتون‌ها درون هدف ^{68}Zn محاسبه می‌شود و سپس با نتایج حاصل از کد TALYS1.9 و کد SRIM، بهره تولید تئوری واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ در بازه‌ی بهینه‌ی انرژی با حل انتگرال عددی به روش سیمپسون با استفاده از رابطه ۱ محاسبه می‌شود:

$$A(\text{Bq}) = \frac{3.76 \times 10^6 a_{is} a_{ch} I}{M} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_{out}}^{E_{in}} \frac{\sigma_T(E)}{\sigma_P(E)} dE \quad (1)$$

در این رابطه، A اکتیویته محصول برحسب Bq، I جریان پرتو فرودی برحسب μA و a_{ch} و a_{is} به ترتیب فراوانی ایزوتوپی و شیمیایی هدف، M وزن مولکولی هدف بر حسب (g/mol)، λ ثابت واپاشی محصول برحسب s^{-1} یا h^{-1} ، t زمان پرتودهی برحسب s یا h ، σ_T سطح مقطع واکنش برحسب mb و σ_P توان توقف جرمی برحسب $(\text{cm}^2 \cdot \text{MeV} \cdot \text{g}^{-1})$ هستند [۴]. در مرحله‌ی بعد به شبیه‌سازی شار پروتون‌ها درون هدف ^{68}Zn با استفاده از کد MCNPX توجه شده است. برای این منظور با استفاده از کد SRIM میزان نفوذ پروتون‌ها درون هدف ^{68}Zn (برد پروتون‌ها) را به دست آورده و با توجه به رابطه‌ای که بین برد و انرژی پروتون‌ها است ضخامت هدف مشخص می‌شود. همچنین انرژی چشمه با استفاده از رابطه برد-انرژی پروتون‌ها در هوا که با کد SRIM محاسبه می‌شود، به دست می‌آید. هندسه هدف به صورت استوانه‌ای با شعاع ۱ cm شبیه‌سازی شده است که توسط ذرات خروجی از چشمه سطحی و با توزیع گوسی بمباران می‌شود. سپس تابع توزیع نرمالیزه شده پروتون‌ها و نوترون‌ها بر حسب انرژی بهینه با استفاده از تالی F4 در کد MCNPX به دست آمده است. اکتیویته محصول واکنش بر حسب Bq از رابطه ۲ با کمک برنامه MATLAB و روش انتگرال‌گیری سیمپسون به صورت رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$A(\text{Bq}) = \frac{3.76 \times 10^9 a_{is} a_{ch} I \rho d}{M} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_{out}}^{E_{in}} P(E) \sigma(E) dE \quad (2)$$

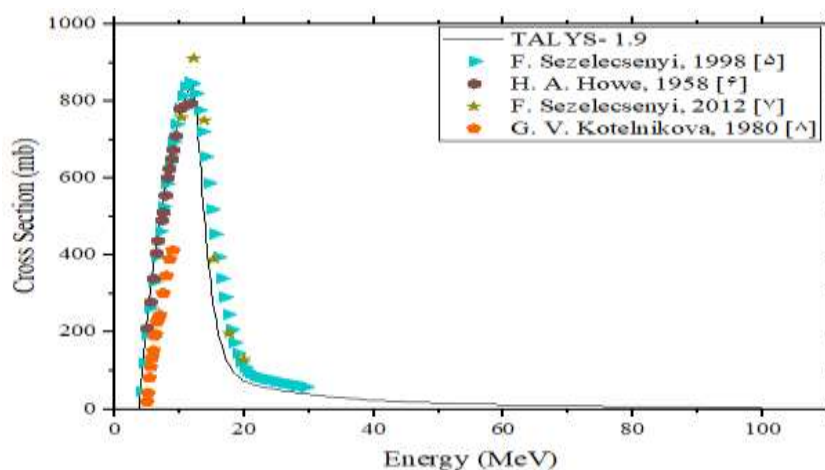


در این رابطه ρ چگالی هدف برحسب (g/cm^3) ، d ضخامت هدف برحسب cm ، $P(E)$ تابع توزیع شار نرمالیزه شده پروتون (یا نوترون) در هدف ^{68}Zn (یا ^{32}S) هستند و بقیه پارامترها نیز مانند رابطه ۱ می‌باشد [۴]. در ادامه با استفاده از نوترون‌های تولید شده در واکنش $^{68}Zn(p,n)^{68}Ga$ به محاسبه‌ی بهره تولید شبیه‌سازی در واکنش $^{32}S(n,p)^{32}P$ پرداخته می‌شود. لازم به ذکر است چون نوترون‌ها ذرات بدون بار هستند نمی‌توان به کمک کد SRIM برد ذرات را به‌دست آورد و به طبع آن بهره‌تولید تئوری نیز برای واکنش $^{32}S(n,p)^{32}P$ محاسبه نشده است. با توجه به اینکه متوسط انرژی نوترون‌های خروجی از واکنش اول، که با استفاده از کد MCNPX به‌دست آمده است، برابر با $1/2 MeV$ است و بیشتر از انرژی آستانه واکنش $^{32}S(n,p)^{32}P$ یعنی $0.95 MeV$ است واکنش قابل راه‌اندازی می‌باشد. برای محاسبه بهره تولید شبیه‌سازی، هدف ثانویه (^{32}S) به شکل استوانه‌ای به شعاع $1 cm$ شبیه‌سازی شده که پس از هدف اولیه (^{68}Zn) قرار گرفته است و ضخامت گوگرد تغییر داده می‌شود و شار نوترون‌ها در هر ضخامت محاسبه می‌شود. سپس شار نرمالیزه شده نوترون درون هدف گوگرد-۳۲ با کد MCNPX محاسبه شده و از آن برای محاسبه بهره تولید شبیه‌سازی با استفاده از رابطه ۲ استفاده شده است.

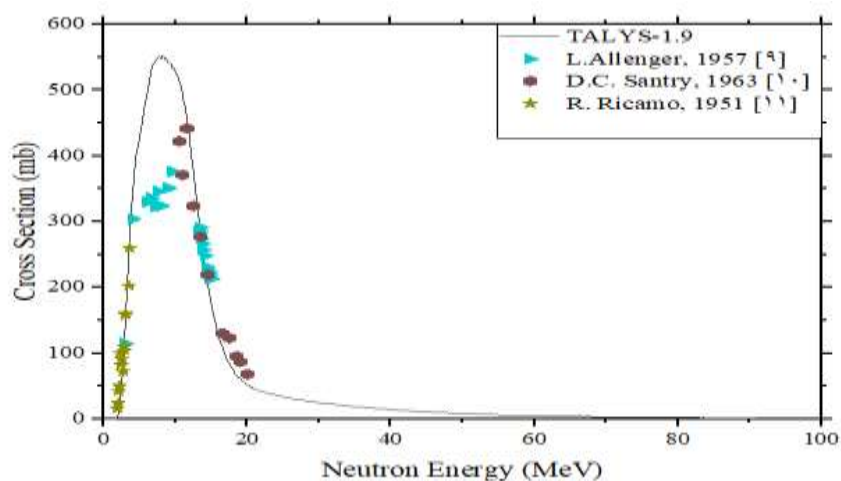
نتایج:

با توجه به شکل‌های ۱ و ۲ مشاهده می‌شود که توافق خوبی بین نتایج تجربی و نتایج محاسباتی با کد TALYS1.9 برای سطح مقطع واکنش‌های $^{68}Zn(p,n)^{68}Ga$ و $^{32}S(n,p)^{32}P$ وجود دارد [۱۱-۵]. با بررسی نمودار سطح مقطع برحسب انرژی، بازه‌ی بهینه‌ای که در آن بیشترین سطح مقطع تولید برای رادیوایزوتوپ‌های ^{68}Ga و ^{32}P همچنین کمترین میزان تولید رادیوایزوتوپ‌های ناخواسته موجود را داشته باشد، انتخاب می‌شود. با توجه به شکل ۱ بازه بهینه انرژی $5-12 MeV$ برای واکنش $^{68}Zn(p,n)^{68}Ga$ در نظر گرفته شده است و با توجه به شکل ۲ بازه‌ی انرژی $0.9-7/6 MeV$ برای واکنش $^{32}S(n,p)^{32}P$ انتخاب شده است. برای اطمینان از درستی نتایج، سطح مقطع دو واکنش که با کد TALYS-1.9 محاسبه شده با نتایج تجربی مقایسه شده است. بازه‌ی انرژی بهینه برای نوترون‌ها $7/6-0.9 MeV$ می‌باشد. عدد بالای بازه نشان دهنده بیشترین مقدار سطح مقطع است که ناخالصی ایزوتوپی ندارد و عدد پایین بازه معرف انرژی آستانه‌ی واکنش $^{32}S(n,p)^{32}P$ می‌باشد. در شکل ۳ منحنی شار درون هدف گوگرد-۳۲ بر حسب ضخامت گوگرد-۳۲ نشان داده شده است. برای بررسی تغییر بهره تولید ^{32}P ، ضخامت گوگرد-۳۲ را یکبار $2 cm$ و بار دیگر $13 cm$ در نظر می‌گیریم و بهره را محاسبه می‌کنیم. در

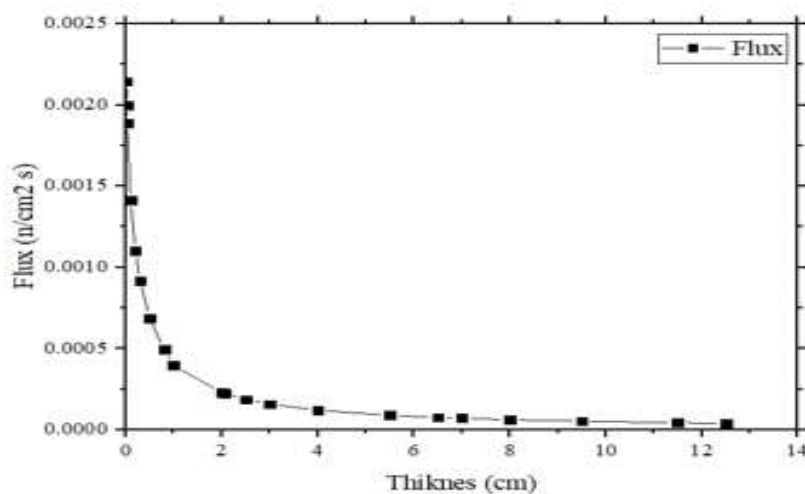
شکل ۴ نمایی از هندسه شبیه‌سازی شده با کد MCNPX نشان داده شده است. همانطور که قبلاً توضیح داده شد انرژی چشمه پروتون با استفاده از رابطه برد-انرژی پروتون‌ها در هوا که از کد SRIM به دست آمده، برابر با ۱۲/۳ MeV است. در جدول ۱ نتایج محاسبات بهره تولید واکنش‌های $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ و $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ آمده است.



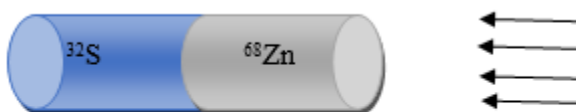
شکل ۱: مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ به دست آمده از کد TALYS و نتایج تجربی



شکل ۲: مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ به دست آمده از کد TALYS و نتایج تجربی



شکل ۳: منحنی تغییر شار نوترون‌ها درون هدف گوگرد-۳۲ بر حسب ضخامت گوگرد-۳۲



شکل ۴: نمایی از هندسه شبیه‌سازی شده به استفاده از کد MCNPX

جدول ۱. نتایج محاسبات بهره تولید تئوری، شبیه‌سازی و تجربی

واکنش	بهره تولید تئوری (MBq/μA.h)	بهره تولید شبیه‌سازی (MBq/μA.h)	بهره تولید بدست آمده از آزمایش تجربی (MBq/μA.h)
$^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$	$3583/5$ $4213/4$	$3227/5$ $4490/2$	$4033[12]$ $2997[5]$
$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	—	$1557/4$ (d=13 cm) $78/933$ (d=2 cm)	$1472/11[13]$



بحث و نتیجه گیری :

نیکل و همکارانش [۱۲] در سال ۱۹۹۱ به محاسبه‌ی بهره‌ی تولید ^{68}Ga از طریق واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ با هدف ^{68}Zn غنی شده در بازه‌ی انرژی ۱۱-۴ MeV پرداختند و بهره تولید آن را $4033 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ اندازه گیری کردند. همچنین در سال ۱۹۹۸ سیزی لکسنی و همکارانش [۵] بهره تولید واکنش $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ که درصد فراوانی ایزوتوپی هدف ۱۰۰٪ است، را در بازه انرژی ۱۱-۴ MeV برابر با $2997 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ بدست آوردند. سعید بشیر محمد و همکارانش در سال ۲۰۱۵ به مطالعه و محاسبه بهره تولید تجربی واکنش $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ با انرژی نوترون‌های ورودی ۲۰-۲ MeV پرداختند و بهره تولید تجربی را $1472/11 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ به دست آوردند [۱۳]. در جدول ۱ نتایج تئوری و شبیه‌سازی بهره تولید واکنش‌های $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ و $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ به دست آمده در این پژوهش با نتایج سایر محققان مقایسه شده است. مشاهده می‌شود که با در نظر گرفتن ضخامت گوگرد ۳۲ به اندازه ۱۳ cm نتیجه محاسباتی به نتیجه تجربی نزدیکتر می‌شود. همچنین توافق خوبی بین نتایج محاسبه شده در این پژوهش و نتایج تجربی سایر محققان در هر دو واکنش مشاهده می‌شود.

مراجع :

- [۱] م. عارف، پایان‌نامه کارشناسی‌ارشد فیزیک هسته‌ای، دانشگاه زنجان، ۱۳۸۸..
- [۲] س. م. ج. مرتضوی، ت. بغدادی، الف. فرهود، غ. توگه، م. افتخاری، م. ر. منقچی، ر. اسپندار، نقش سینوویورتز با فسفر رادیواکتیو در درمان آرتروپاتی هموفیلیک، مجله دانشگاه علوم پزشکی تهران، ۶۸ (۱۳۸۹) ۳۶۴-۳۷۱.
- [۳] م. اسلامی، پایان‌نامه کارشناسی‌ارشد فیزیک هسته‌ای، دانشگاه زنجان، ۱۳۹۲.
- [4] M. Eslami and T. Kakavand; "Simulation of the direct production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ at a small cyclotron", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 329 (2014) 18-21.
- [5] F. Szelecsényi, T. E. Boothe, S. Takács, F. Tárkányi, E. Tavano, "Evaluated cross section and thick target yield data bases of $\text{Zn} + p$ processes for practical applications", Applied radiation and isotopes, 49 (1998) 1005-1032.
- [6] H. A. Howe, "(p, n) Cross Sections of Copper and Zinc", Physical Review, 109(6) (1958), 2083.
- [7] F. Szelecsényi, Z. Kovács, K. Nagatsu, K. Fukumura, K. Suzuki, K., & K. Mukai, "Investigation of direct production of ^{68}Ga with low energy multiparticle accelerator", Radiochimica Acta International journal for chemical aspects of nuclear science and technology, 100(1) (2012), 5-11.
- [8] G. V. Kotel'nikova, G. N. Lovchikova, O. A. Sal'nikov, S. P. Simakov, A. M. Trufanov, & N. I. Fetisov, "The investigation of neutron energy spectra for $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ reaction", Fiz. Energ Institut, Obninsk Reports, 1141 (1980), 1.



- [9] L. Allen Jr, et al., "Cross sections for the $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ and the $^{34}\text{S}(n,\alpha)^{31}\text{Si}$ reactions", Physical Review, 107 (1957) 1363.
- [10] D. C. Santry, J. P. Butler, "The $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ reaction as a fast-neutron flux monitor", Canadian Journal of Chemistry, 41 (1963) 123-133.
- [11] C. J. Umbarger, et al., "Excitation Functions for the Reactions $^{34}\text{S}(p,n)^{34}\text{Cl}$ and $^{31}\text{P}(\alpha,n)^{34}\text{Cl}$ ", Physical Review C, 2 (1970) 1378.
- [12] R. J. Nickles, "A shotgun approach to the chart of the nuclides. Radiotracer production with an 11 MeV proton cyclotron", Acta radiologica Supplementum, 376 (1991) 69-71.
- [13] B. M. Saied, N. F. Nagi, "Yields for the production of phosphors-32 using the charged and uncharged particles in medical practice", (2014) 67-76.