



امکان‌سنجی تولید رادیوایزوتوپ ^{139}Pr از طریق واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$

یکتائی^(۱)، مرضیه^(۱) - کاکاوند، طیب*^(۱) - میرزایی، محمد^(۲) - اسلامی، محمد^(۳) - رحیمی، محمد^(۲)

^۱دانشگاه بین‌المللی امام خمینی (ره)، دانشکده علوم پایه، گروه فیزیک

^۲سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، مرکز تحقیقات سلامت و کشاورزی البرز

^۳دانشگاه زنجان، دانشکده علوم، گروه فیزیک

چکیده:

برای تولید پراسئودیمیموم- ^{139}Pr ، تابع برانگیختگی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ با استفاده از کد TALYS-1.8 محاسبه شده است. با استفاده از تابع برانگیختگی، بازه‌ی انرژی بهینه برای پرتابه پروتون به منظور دست‌یابی به سطح مقطع بیشینه محصول (^{139}Pr) و آلودگی ایزوتوپی و غیرایزوتوپی کمینه، ناشی از کانال‌های واپاشی دیگر، تعیین گردید. با استفاده از سطح مقطع واکنش و محاسبات قدرت ایستاندگی پرتابه، بهره‌ی تولید نظری ^{139}Pr در طی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ محاسبه شده است. در نهایت مسیر تولید با استفاده از روش مونت‌کارلو شبیه‌سازی شده است. مقایسه‌ی مقادیر بهره‌ی تولید حاصل از شبیه‌سازی با بهره‌ی نظری و نتایج تجربی، توافق خوبی را نشان می‌دهد. کلمات کلیدی: تابع برانگیختگی، سطح مقطع، بهره تولید، ^{139}Pr ، روش مونت‌کارلو

A Feasibility study on production of ^{139}Pr radioisotope via $^{140}\text{Ce}(p,2n)$ reaction

Yektaee, Marzie¹; Kakavand, Tayeb*¹; Mirzaei, Mohammad²; Eslami, Mohammad³; Rahimi, Mohammad²

¹Imam Khomeini International University, Faculty of Science, Department of Physics

²Nuclear Science and Technology Research Institute, Agricultural and Health Research School

³University of Zanjan, Faculty of Science, Department of Physics

Abstract:

In order to ^{139}Pr production, the excitation function of $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ has been calculated using TALYS-1.8 code. The optimum energy rang of the projectile for this production is prepared for analyzing the maximum cross section and minimum impurity due to other reaction channels by excitation function results. The production yield of $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ reaction is calculated based on the result of the excitation function and stopping power calculation. Finally, the production route has been simulated using the Monte Carlo method. A good agreement is observed between the simulation, theoretical and experimental yields.

Keywords: Excitation function, Cross section, Production yield, ^{139}Pr , Monte Carlo method



مقدمه

رادیوایزوتوپ پراسئودیمیوم- ^{139}Pr (۱۳۹) با نیمه عمر ۴۸۱ ساعت با گسیل الکترون‌های اوژه ناشی از گیراندازی الکترون و تابش پوزیترون در تصویربرداری PET کاربرد وسیعی دارد [۱]. به‌طور کلی رادیوایزوتوپ‌های پراسئودیمیوم نقش مهمی در رادیوتراپی و تشخیص دارند. بیشترین اهمیت ^{139}Pr به دلیل حضور در دسته لاتانیدها است. لاتانیدها می‌توانند به راحتی به بیومولکول‌های آلبومین سرم انسان (HSA) متصل شوند. علاوه بر این، ^{139}Pr یک گسیلنده‌ی پوزیترون است و در نتیجه یک عامل تشخیص در روش PET است. نیمه عمر نسبتاً طولانی آن (h) ۴۸۱، بیش از دو برابر ^{18}F) این رادیوایزوتوپ را گزینه‌ی مناسبی برای مطالعه‌ی فرآیندهای متابولیک با زمان جذب چند ساعت کرده است. همچنین ^{139}Pr می‌تواند در کاربردهای تشخیصی با رادیونوکلید ^{142}gPr همراه شود [۲]. رادیوایزوتوپ ^{139}Pr را می‌توان از طریق واکنش‌های مختلفی تولید کرد که واکنش بهینه از نظر مواد در-دسترس و سطح مقطع، $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ است. ^{140}Ce با توجه به پایدار بودن و همچنین درصد فراوانی ایزوتوپی بالا (۸۸٫۸ درصد) هدف مناسبی است. در بازه‌ی پروتونی $32.22\text{ MeV} - 12.57\text{ MeV}$ تحقیقاتی بر روی اندازه‌گیری سطح مقطع واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ به روش قرصی توسط زیسلر^(۱) و همکاران [۳] انجام شده است، همچنین فیوروکاوا^(۲) و همکاران [۴] در بازه‌ی پروتونی $14.58\text{ MeV} - 13.28\text{ MeV}$ سطح مقطع واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ را در سال ۱۹۶۶ اندازه‌گیری کرده‌اند. در کار حاضر به منظور تعیین دقیق سطح مقطع تولید ^{139}Pr و همچنین ناخالصی‌های ایزوتوپی و غیرایزوتوپی از کد هسته‌ای TALYS-1.8 استفاده می‌شود [۵]. پس از بررسی تابع برانگیختگی واکنش و محاسبه‌ی ضخامت بهینه‌ی هدف، مسیر تولید با استفاده از کد مونت کارلوی MCNPX شبیه‌سازی شده و بهره‌ی تولید تخمین زده می‌شود.

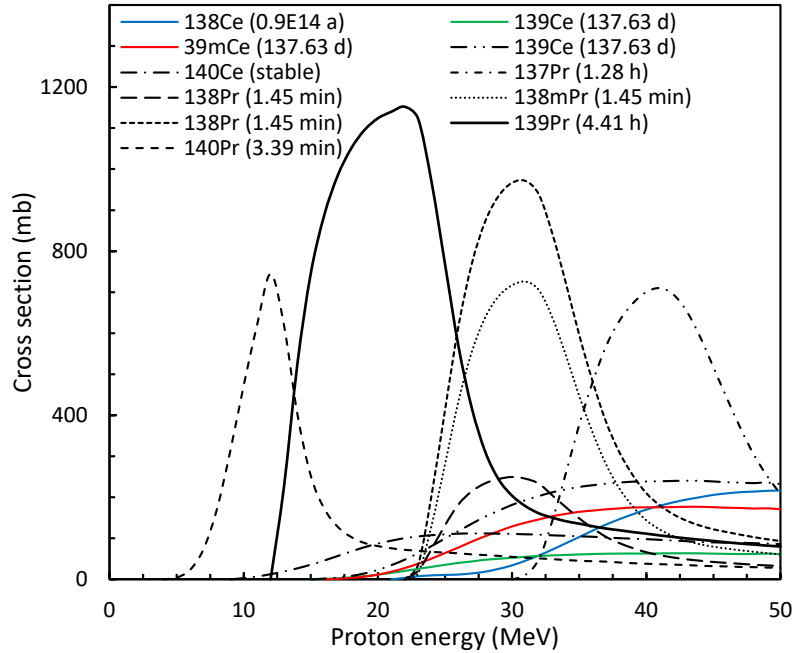
روش کار

محاسبه سطح مقطع با استفاده از کد TALYS-1.8

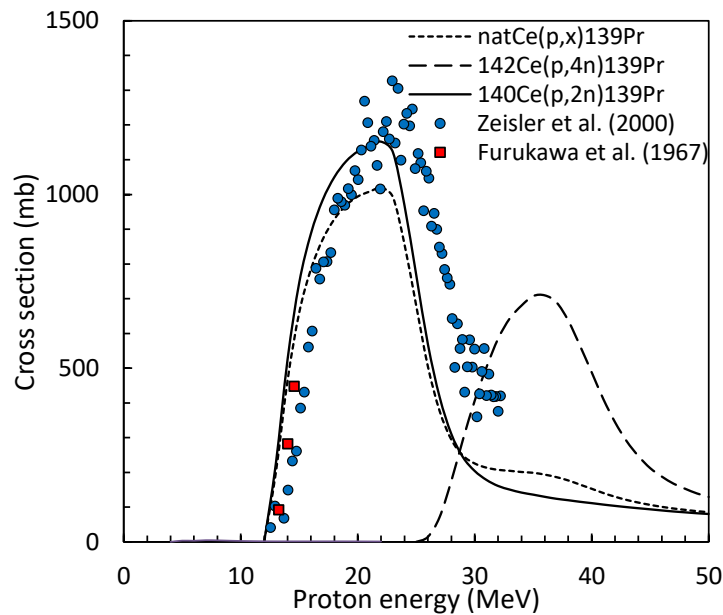
(1) : Zeisler
(2) : Furukawa



کد TALYS [۵] یک برنامه کامپیوتری است که بر اساس مدل اپتیکی به محاسبه سطح نوترون، فوتون، پروتون، دوترون، تریتیون، ^3He و ذره‌ی آلفا باشد، می‌پردازد. این کد قادر است سطح مقطع کل تولید یک ایزوتوپ از طریق کانال‌های مختلف در یک عنصر طبیعی، و همچنین سطح مقطع تولید حالت‌های ایزومری یک ایزوتوپ را انجام دهد. با استفاده از این کد، تابع برانگیختگی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,x)$ در بازه انرژی پروتون‌های $0-30\text{ MeV}$ محاسبه گردید (شکل ۱). باتوجه به این شکل در بازه انرژی پروتون $30-13\text{ MeV}$ تولید ماده محصول را داریم. درعین حال، در این بازه شاهد میزان تولید ناخالصی ایزوتوپی ^{140}Pr با نیمه عمر 339 ر دقیقه و ^{138}Pr با نیمه عمر 142 ر دقیقه هستیم، که باتوجه به نیمه عمر 148 ر ساعتی محصول هدف (^{139}Pr)، با تخصیص زمان مناسب و پاشیده می‌شوند. ناخالصی غیرایزوتوپی تولیدشده در این بازه مقدار ناچیزی از تارگت، ^{140}Ce پایدار است. ناخالصی غیرایزوتوپی ^{139}Ce با نیمه عمر طولانی 13763 ر روز از انرژی 19 MeV شروع به تولید می‌شود و همچنین ایزوتوپ دیگر ماده‌ی هدف، ^{138}Ce با نیمه عمر $10^{14} \times 9\text{ ر}$ سال از انرژی 23 MeV شروع به تولید می‌شود. البته ناخالصی‌های غیرایزوتوپی با روش‌های شیمیایی قابل جداسازی هستند. نکته حائز اهمیت دیگر، وجود خنک‌کننده و روکش آلومینیومی پیش از قرص حاوی هدف (^{140}Ce) است که باعث کاهش انرژی فرودی می‌شود، مقدار کاهش انرژی به کمک کد SRIM محاسبه شده [۶] و انرژی پروتون فرودی از مقدار 285 MeV تا مقدار 197 MeV کاهش پیدا می‌کند. باتوجه به این شرایط، بازه بهینه تولید را $13-197\text{ MeV}$ اختیار می‌کنیم. مقایسه نتایج محاسبات کد TALYS-1.8 با نتایج تجربی برگرفته از مرکز داده‌های هسته‌ای EXFOR در شکل (۲) آمده است. تطبیق سطح مقطع بدست آمده از داده‌های تجربی با نتایج محاسبات کد TALYS-1.8 در مورد واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ به وضوح مشاهده می‌شود.



شکل (۱) سطح مقطع تولید ^{139}Pr در واکنش $^{140}\text{Ce}(p,x)$ با استفاده از کد TALYS



شکل (۲) سطح مقطع‌های تجربی [۳، ۴] واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ در مقایسه با نتایج کد TALYS. سطح مقطع

نظری واکنش‌های $^{142}\text{Ce}(p,4n)^{139}\text{Pr}$ و $^{nat}\text{Ce}(p,x)^{139}\text{Pr}$ نیز آورده شده‌اند.



محاسبه ضخامت هدف و قدرت ایستاندگی

یکی از مسائل مهم در طراحی هدف، محاسبه ضخامت بهینه هدف است. کاهش انرژی ذرات فرودی (dE) در یک بازه معین (dx) را قدرت ایستاندگی می‌گویند. ضخامت مورد نیاز هدف با استفاده از کد SRIM [۶] به گونه‌ای محاسبه می‌شود که پروتون ورودی با انرژی مشخص به هدف وارد شده و با افت انرژی موردنظر از آن خارج شود. افت انرژی ذکر شده به دلیل وجود یک لایه‌ی آلومینیومی به ضخامت ۰.۶ mm و سپس یک لایه‌ی آب (mm) ۲ و مجدداً یک لایه‌ی آلومینیومی به ضخامت ۰.۳ mm است که در شاتل قرار دارند و قبل از برخورد پرتو به ماده هدف باعث کاهش انرژی پرتابه می‌شوند. ضخامت بهینه هدف در بازه انرژی پروتونی بهینه‌ی ۱۳-۱۹۷ MeV مقدار ۶۴۷ μm محاسبه گردید. هم‌چنین قدرت ایستاندگی به‌عنوان تابعی از انرژی ذره‌ی فرودی، با استفاده از این کد محاسبه گردید.

محاسبه بهره تولید نظری

بهره تولید نظری در یک بازه مشخص از انرژی مطابق رابطه (۱) بدست می‌آید،

$$Y = \frac{N_A a_{is} a_{ch} I}{M} \int_{E_{in}}^{E_{out}} \frac{\sigma(E)}{S_p(E)} (1 - e^{-\lambda t}) dE \quad (1)$$

که در آن، N_A ، a_{is} ، a_{ch} ، I ، M ، E_{in} ، E_{out} ، $\sigma(E)$ ، $S_p(E)$ ، λ و t به ترتیب، عدد آووگادرو، درصد فراوانی ایزوتوپی هدف، فراوانی شیمیایی عنصر هدف، جریان باریکه‌ی پروتون فرودی، جرم مولی ماده هدف، انرژی باریکه فرودی، انرژی خروجی، سطح مقطع واکنش، توان ایستاندگی هدف، ثابت واپاشی محصول و زمان بمباران هستند. توان ایستاندگی با استفاده از کد SRIM و سطح مقطع با استفاده از کد TALYS-1.8 محاسبه می‌شوند. مطابق رابطه بالا، با افزایش جریان باریکه‌ی فرودی، زمان بمباران و سطح مقطع واکنش، بهره تولید افزایش می‌یابد. بهره تولید نظری ^{139}Pr در طی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ با استفاده از رابطه (۱) محاسبه شد (جدول ۱).

شبیه‌سازی تولید با استفاده از کد MCNPX

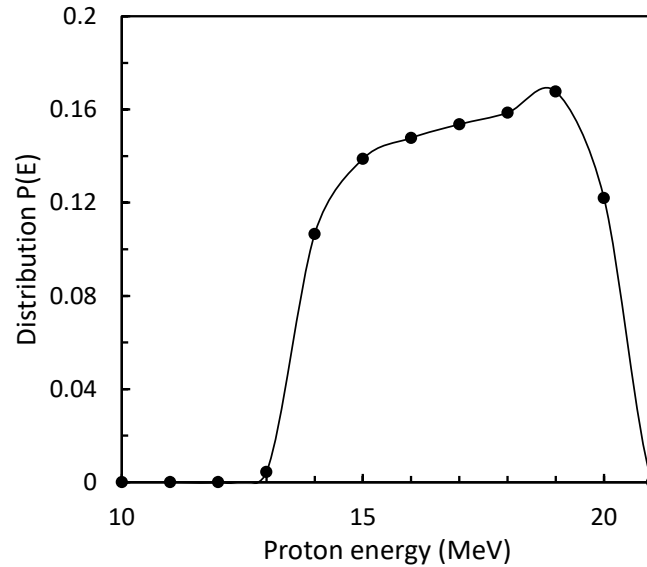
بهره تولید محصول با استفاده از خروجی کد MCNPX از طریق رابطه‌ی زیر محاسبه می‌شود:



که در آن ρ و $\varphi(E)$ به ترتیب چگالی ماده هدف و تابع توزیع انرژی ذره فرودی درون هدف هستند. d ضخامت هدف است. پارامترهای دیگر مانند پارامترهای رابطه (۱) تعریف می‌شوند. تابع توزیع انرژی با بهنجار-کردن خروجی کد باعنوان تالی حجمی برحسب انرژی به دست می‌آید که متوسط شار ذره را در واحد حجم سلول به دست می‌دهد.

نتایج

پس از محاسبه تابع برانگیختگی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,x)$ با استفاده از کد TALYS-1.8 و مقایسه آن با نتایج تجربی، بازه‌ی انرژی پرتابه برای داشتن بیش‌ترین بهره تولید، با توجه به وجود خنک‌کننده پیش از تارگت، 197 MeV - 13 انتخاب می‌شود. همچنین با استفاده از کد SRIM ضخامت هدف برای پروتون ورودی با انرژی موردنظر مقدار $647\ \mu\text{m}$ محاسبه می‌شود. شبیه‌سازی تولید ^{139}Pr از طریق بمباران پروتونی هدف ^{140}Ce بوسیله کد MCNPX صورت گرفت. نتایج شبیه‌سازی به صورت متوسط شار پروتون درون حجم هدف، برحسب انرژی، توسط تالی F4/E4 بدست می‌آید. شکل (۳) تابع توزیع بهنجارشده‌ی پروتون را برحسب انرژی درون هدف ^{140}Ce نشان می‌دهد. می‌توان مشاهده کرد که پروتون‌های ورودی، انرژی خود را به تدریج درون هدف از دست می‌دهند. همچنین نمودار به درستی بر انتخاب بازه بهینه که قبلاً از روی محاسبات کد TALYS بدست آمده است صحه می‌گذارد.



شکل (۳) تابع توزیع انرژی بهنجار شده‌ی پروتون‌ها درون هدف ^{140}Ce

جدول (۱) مقایسه بهره‌ی تولید ^{139}Pr طی واکنش $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ در بازه انرژی پروتونی ۲۰-۱۳ MeV.

بهره تولید شبیه‌سازی (MCNPX) (mCi/ μAh)	بهره تولید نظری (SRIM) (mCi/ μAh)	بهره تولید تجربی (mCi/ μAh)	
		Steyn et al. (2006) (20-13 MeV) [1]	Dimitriev et al. (1983) (22-13 MeV) [7]
۳۴٫۷	۳۸٫۶	$۳۲٫۶ \pm ۰٫۱۵$	$۲۴٫۸ \pm ۳٫۵۱$

بحث و نتیجه‌گیری

در این کار، تولید سیکلوترونی رادیوایزوتوپ ^{139}Pr به‌وسیله بمباران پروتونی هدف ^{140}Ce بررسی و سطح مقطع این واکنش محاسبه شد. پس از انتخاب بازه انرژی پرتابه پروتونی، ۱۳-۱۹٫۷ MeV، که دارای بیشینه سطح مقطع و کمینه آلودگی‌های ایزوتوپی و غیرایزوتوپی بود، این واکنش توسط کد مونت کارلوی MCNPX شبیه‌سازی شد. باتوجه به این که تولید رادیودارو نیازمند وقت، هزینه و انرژی زیادی است، با تکیه بر بالاتر بودن دقت محاسبات نظری و کامپیوتری نسبت به کار تجربی، که از مشاهده توافق بین نتایج بدست‌آمده از شبیه‌سازی، نظری و تجربه



(جدول ۱) قابل استنباط است، به نظر می‌رسد که با استفاده از شبیه‌سازی مونت‌کارلو بتوان قبل از تولید رادیویزوتوپ‌ها، برآورد باارزشی از مقادیر بهره و اکتیویته آن‌ها بدست آورد.

مراجع

- [^۱] G.F. Steyn, C. Vermeulen, F.M. Nortier, F. Szelecsényi, F. Kovács, S.M. Qaim, Production of no-carrier-added ^{139}Pr via precursor decay in the proton bombardment of ^{nat}Pr , Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **252** (2006) 149.
- [^۲] S.K. Zeisler, D.W. Becker, A new method for PET imaging of tumours: human serum albumin labeled with the long-lived Nd-140/Pr-1410 in vivo radionuclide generator, Clin. Positron Imaging 2 (1999) 324.
- [^۳] S.K. Zeisler, D.W. Becker, A pellet method for the measurement of excitation functions: cross-sections for $^{140}\text{Ce}(p,2n)^{139}\text{Pr}$ and $^{140}\text{Ce}(p,3n)^{138m}\text{Pr}$, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **160** (2000) 216.
- [^۴] M. Furukawa, Excitation functions for proton-induced reactions of ^{140}Ce and ^{142}Ce up to $E_p = 15$ MeV, Nucl. Phys. A **90** (1967) 253.
- [^۵] A.J. Koning, S. Hilaire, M. Duijvestijn, TALYS-1.0, in: O. Bersillon, F. Gunsing, E. Bauge, et al. (Eds.), Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, ND-2007, Nice, France, EDP Sciences (2008) p. 211.
- [^۶] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010), Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B **268** (2010) 1818.
- [^۷] P.P. Dmitriev, G.A. Molin, Radionuclide yields for thick targets at 22 MeV proton energy, USSR report to the I.N.D.C., No. 188 (1983), Austria.