

بررسی توابع برانگیختگی برهمکنش های $^{121,123}\text{natSb}(\alpha, xn)$ و محاسبه بهره تولید

دیفرانسیلی و انتگرالی گسیلنده پوزیترونی ید-۱۲۴

عزیزاکرم، حمید*^(۱) - صادقی، مهدی^(۲) - ذوالفقارپور، فرهاد^(۱)

^(۱) دانشگاه محقق اردبیلی، دانشکده علوم، گروه فیزیک

^(۲) سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشگاه کاربرد پرتوها

چکیده:

داده های سطح مقطع برای تولید گسیلنده پوزیترونی ^{124}I از طریق برهمکنش های القایی ذره α با ایزوتوپ های آنتیمونی و آنتیمونی طبیعی بدست آمده است. سازگاری مقادیر تجربی موجود با داده های سطح مقطع محاسبه شده با سه کد مدل سازی هسته ای $TALYS$ ، $ALICE$ و $EMPIRE$ بررسی شده است. توابع برانگیختگی بدست آمده برای محاسبه بهره تولید دیفرانسیلی ^{124}I و ناخالصی های ایزوتوپی ^{123}I ، ^{125}I و ^{126}I استفاده شده است. بهره تولید انتگرالی ^{124}I با استفاده از توابع برانگیختگی با کمترین انحراف از مقادیر تجربی محاسبه شده است. ارزیابی نتایج بدست آمده برای بهره تولید ^{124}I و ناخالصی های ایزوتوپی همراه آن نشان می دهد که برهمکنش $^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$ در بازه انرژی $32 \text{ MeV} \rightarrow 42 \text{ MeV}$ روش مناسبی برای تولید ^{124}I در بین برهمکنش های بررسی شده است. کلمات کلیدی: تابع برانگیختگی، بهره تولید، ید-۱۲۴، خلوص رادیونوکلئیدی، سطح مقطع

مقدمه :

رادیونوکلئید ^{124}I ($T_{1/2} = 4.18 \text{ d}$; $E_{\beta^+} = 2.13 \text{ MeV}$; $I_{\beta^+} = 22\%$) یکی از مهم ترین گسیلنده های پوزیترونی غیر استاندارد با نیمه عمر بلند و ویژگی های فیزیکی و شیمیایی مناسب است که قابلیت های فراوانی برای استفاده در پزشکی هسته ای و به خصوص در تصویربرداری PET^1 دارد. این رادیوایزوتوپ در ابتدا به عنوان یک ناخالصی در فرآیند تولید رادیوایزوتوپ ^{123}I که یکی از ایزوتوپ های مهم در تکنیک تصویربرداری SPECT است، شناخته شده بود. اما در یک دهه گذشته با افزایش مطالعات صورت گرفته بر روی خواص و ویژگی های این ماده، پتانسیل بالای این رادیونوکلئید به عنوان یک عامل تشخیصی و درمانی مناسب آشکار شده است. از جمله کاربردهای این رادیونوکلئید می توان به استفاده در کمیت سنجی ^{123}I SPECT و بررسی فرآیند جذب رادیوداروهای ید اشاره کرد. علاوه بر این، ^{124}I کاربردهای بالقوه ای نیز در تومورشناسی و محاسبات دوزیمتری در رادیوتراپی دارد. همچنین، به دلیل نیمه عمر نسبتاً بالای آن (4.18 d)، مطالعه فرآیندهای بیولوژیکی طولانی مدت با استفاده از این رادیوایزوتوپ با سهولت و دقت بیشتری انجام خواهد شد [۱].

¹ Positron Emission Tomography

امروزه برهمکنش $^{124}\text{I}(p,n)^{124}\text{Te}$ با استفاده از ^{124}Te غنای بالا روش مرسوم برای تولید ^{124}I است [۲]. اخیراً اسلام^۲ و همکارانش [۳] تمامی روش‌های ممکن برای تولید ^{124}I با پرتودهی هدف تلوریوم را بررسی کرده‌اند. علاوه بر این فرآیندها، تولید ^{124}I از طریق برهمکنش‌های القایی α بر روی هدف آنتیمونی^۳ نیز امکان پذیر است. در این پژوهش به ارزیابی داده‌های موردنیاز برای تولید ^{124}I با استفاده از برهمکنش‌ها پرداخته می‌شود.

در سال ۲۰۰۹، تارکانی^۴ و همکارانش [۴]، بررسی دقیقی بر روی داده‌های این برهمکنش‌ها انجام داده و اندازه‌گیری‌های جدیدی را نیز منتشر کردند و همچنین محاسباتی با استفاده از کدهای هسته‌ای ALICE-EMPIRE و IPPE انجام دادند. نتیجه‌گیری آنها این بود که اختلاف داده‌ها از هم زیاد است. در این مقاله سه برهمکنش $^{124}\text{I}(p,n)^{124}\text{Te}$ ، $^{124}\text{I}(\alpha,n)^{124}\text{Te}$ و $^{124}\text{I}(\alpha,3n)^{124}\text{Te}$ بررسی شده‌اند. داده‌های تجربی موجود در هر برهمکنش با نتایج محاسبات هسته‌ای کدهای ALICE، TALYS و EMPIRE مقایسه شده است. همچنین توابع برانگیختگی تولید رادیوایزوتوپ‌های ^{123}I ، ^{125}I و ^{126}I ، که ممکن است در کنار ^{124}I به عنوان ناخالصی‌های رادیونوکلوئیدی تولید شوند، بررسی شده است. با استفاده از توابع برانگیختگی محاسبه شده، بهره تولید ^{124}I و ایزوتوپ‌های ^{123}I ، ^{125}I و ^{126}I برآورد شده است. حضور این چنین ناخالصی‌های رادیوایزوتوپی باعث تضعیف آشکار سازی تابش و نیز افزایش دز جزبی توسط بیمار خواهد شد. با توجه به نتایج، برهمکنش و بازه انرژی بهینه برای پرتودهی با هدف رسیدن به حداقل ناخالصی و بیشترین بهره تولید ^{124}I پیشنهاد شده است.

روش کار :

در محاسبه مقادیر سطح مقطع واکنش‌ها در بازه‌های انرژی مختلف از سه کد مدل سازی هسته‌ای، ALICE/ASH، TALYS-1.6 و EMPIRE-3.2.2 استفاده شده است [۵-۷]. در محاسبات کد TALYS مقادیر پارامترهای اپتیکی $\sigma_{\text{rwdadjust}}$ و σ_{avadjust} و تغییر داده شده و برای چگالی ترازهای انرژی هسته‌ای^۵ از مدل‌های پدیده‌شناختی FGM و GSM استفاده شده است تا سازگاری مناسبی بین نتایج محاسبات و داده‌های تجربی بدست آید. در محاسبات مربوط به کد ALICE، از مدل‌های GDH و Hybrid برای برهمکنش‌های پیش تعادلی^۶ استفاده شده و پارامتر a چگالی ترازهای هسته‌ای بهینه شده است. در کد EMPIRE نیز با تغییر پارامترهای GTILNO و ATILNO چگالی ترازهای هسته‌ای و انتخاب مدل‌های HFBM و GSM برای آن سازگاری نتایج بدست آمده با مقادیر تجربی بررسی شده است. تغییر مقادیر تمامی پارامترهای فیزیکی تا حدود ۲۰٪ مقدار پیش فرض بوده است تا از نظر فیزیکی خللی در صحت آن پیش

^۲ Aslam et al. (2010)

^۳ Antimony

^۴ Tarkanyi et al. (2009)

^۵ Nuclear level density

^۶ Preequilibrium reactions

نیاید. برای هر برهمکنش داده های تجربی آن از پایگاه داده ای EXFOR استخراج شده و به عنوان داده معیار برای مقایسه و تعیین سازگاری نتایج محاسبه ای استفاده شده است.

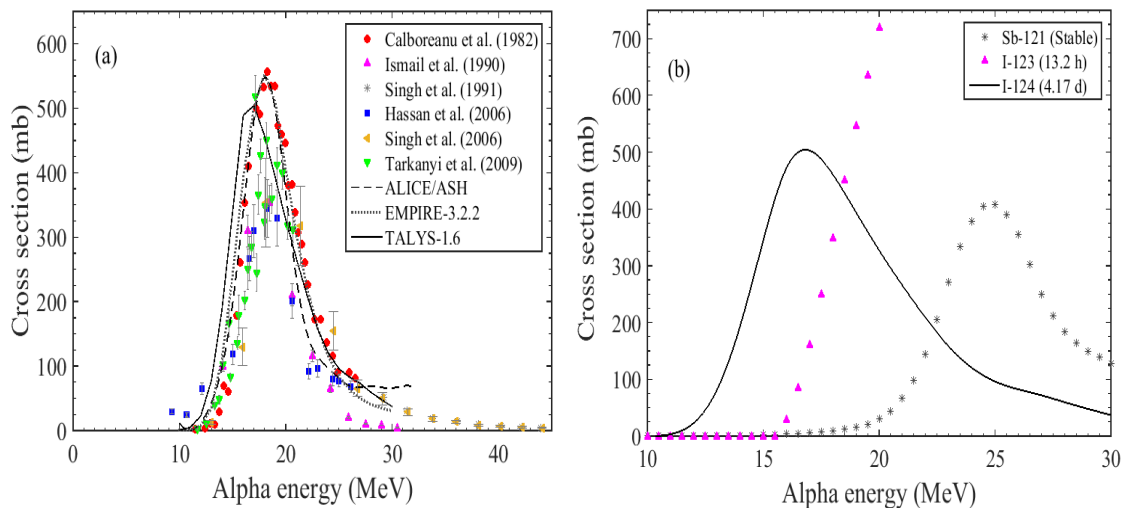
بهره تولید ^{124}I و ناخالصی های ایزوتوپی آن با جایگذاری مقادیر سطح مقطعی کدهای محاسباتی و توان توقف ذره فرودی در ماده هدف حاصل از کد SRIM^۷ [۸] در معادله انتگرالی زیر بدست می آید [۹]:

$$Y_{\text{EOB}} = \frac{N_A I}{A_T} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_E}^{E_1} \sigma_T(E) \frac{dE}{S_T(E)} \quad (1)$$

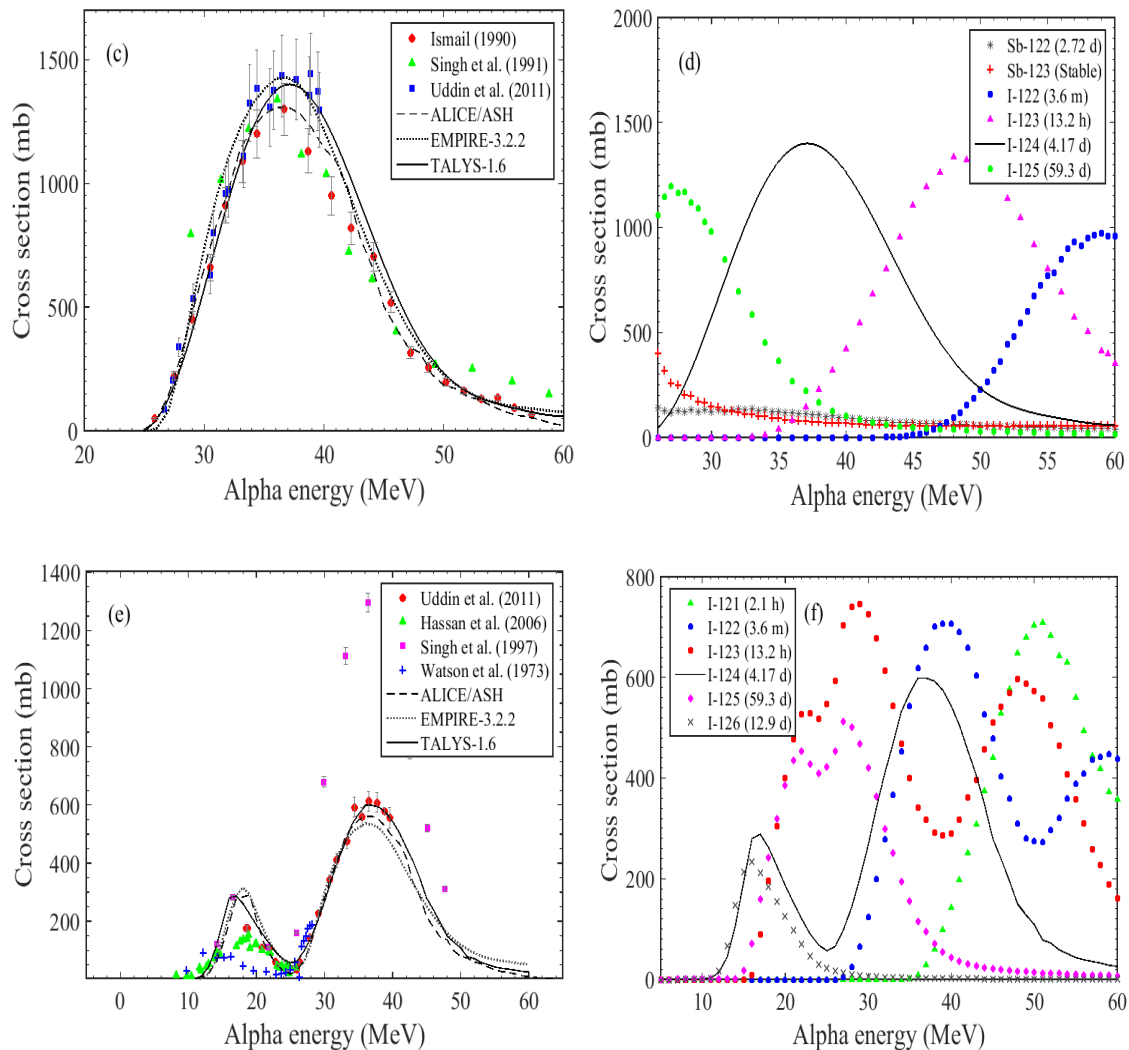
که در آن $\sigma_T(E)$ سطح مقطع برهمکنش (cm^2) در انرژی های مختلف و $S_T(E)$ توان توقف ($\text{MeV mg}^{-1} \text{cm}^2$) ذره فرودی در ماده هدف است. Y بهره تولید (Bq)، N_A عدد آوودگادرو، A_T وزن اتمی ماده هدف بکار رفته (mg)، I شدت جریان باریکه (A)، λ ثابت واپاشی و t مدت زمان پرتودهی است. انتگرال گیری از انرژی ورودی پرتابه به لایه هدف تا انرژی نهایی است که پرتابه از ضخامت معین هدف خارج می شود.

نتایج:

نتایج محاسبات توابع برانگیختگی برهمکنش های $^{124}\text{I}(\alpha, n)^{121}\text{Sb}$ ، $^{124}\text{I}(\alpha, 3n)^{123}\text{Sb}$ و $^{124}\text{I}(\alpha, xn)^{\text{nat}}\text{Sb}$ با هدف تولید رادیونوکلوئید ^{124}I با سه کد محاسباتی و ناخالصی های ایزوتوپی تولیدی، به همراه مقادیر تجربی موجود به عنوان معیاری برای تعیین صحت و سازگاری این نتایج، در این نمودارهای شکل (۱) ارائه شده اند.



⁷ Stopping and Range of Ions in Matter



شکل ۱. توابع برانگیختگی و داده های تجربی واکنش های (a) $^{121}\text{Sb}(\alpha, n)^{124}\text{I}$ (b) $^{121}\text{Sb}(\alpha, xn)$ (c)، $^{123}\text{Sb}(\alpha, xn)$ (d)، $^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$ (e)، $^{124}\text{I}(\alpha, xn)$ (f) و $^{124}\text{I}(\alpha, 3n)$

آنتیمونی طبیعی دارای دو ایزوتوپ پایدار با درصد فراوانی تقریباً یکسان ^{121}Sb (۵۷/۳۶٪) و ^{123}Sb (۴۲/۶۴٪) است که هر دو این ایزوتوپ ها از طریق برهمکنش های $^{121}\text{Sb}(\alpha, n)^{124}\text{I}$ و $^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$ در فرآیند تولید ^{124}I شرکت می کنند. تابع برانگیختگی برهمکنش $^{124}\text{I}(\alpha, xn)$ با نرمالیزه کردن توابع برانگیختگی دو برهمکنش مذکور برای هدف آنتیمونی طبیعی بدست آمده است.

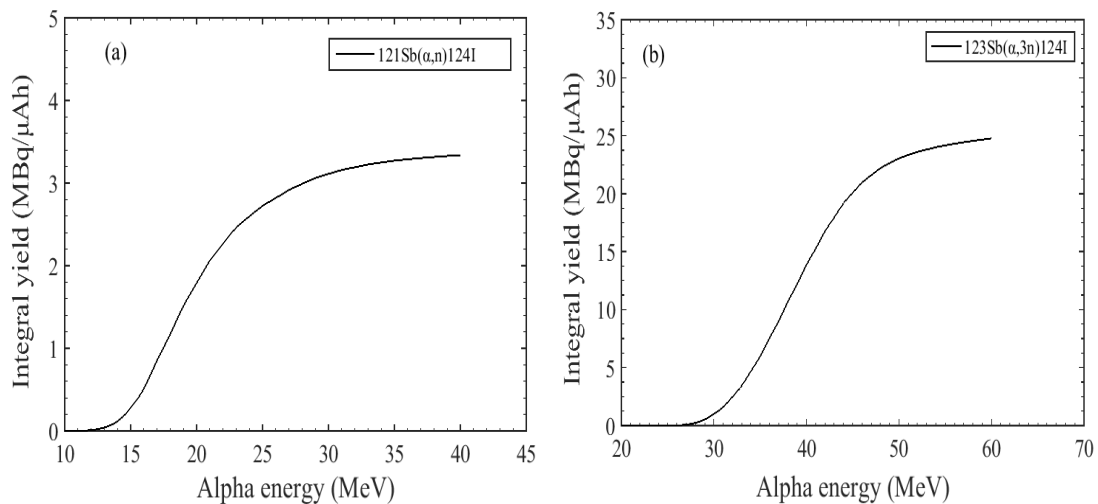
با استفاده از سطح مقطع های بدست آمده، بهره تولید ^{124}I و ناخالصی های ایزوتوپی آن با جایگذاری نتایج بدست آمده در رابطه (۱) محاسبه شده است که در جدول (۱) ارائه شده است. بهره تولید تجربی ^{124}I با سطح مقطع های تجربی، به عنوان یک معیار برای انتخاب کد مدل سازی مناسب جهت محاسبه بهره تولید رادیوایزوتوپ ها با کمترین انحراف از مقادیر تجربی، محاسبه شده است.

جدول ۱. بهره تولید رادیوایزوتوپ‌های حاصل از پرتو دهی آنتیمونی با هدف تولید ید-۱۲۴ به همراه مقادیر تجربی و بازه انرژی مناسب برای تولید ید-۱۲۴

برهمکنش	بازه انرژی (MeV)	بهره تولید تنوری ^{124}I (MBq/ $\mu\text{A.h}$)			درصد ناخالصی های ایزوتوپی ^۱ (%)			بهره تجربی ^{124}I
		ALICE /ASH	TALYS -1.6	EMPIRE -3.2.2	^{123}I (13.2 h)	^{125}I (59.3 d)	^{126}I (12.9 d)	
$^{121}\text{Sb}(\alpha, n)^{124}\text{I}$	۲۲→۱۳	۱/۹۵	۲/۱۸	۲/۲۲	۶۵۸	۰/۰۰۸	<۰/۰۰۱	۲/۱ [۱۰]
$^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$	۴۲→۳۲	۱۳/۲۷	۱۳/۸۴	۱۴/۲۱	۱۳۴	۱/۵۴	۰/۲	۱۴/۶۷ [۱۱]
$^{\text{nat}}\text{Sb}(\alpha, xn)^{124}\text{I}$	۴۲→۳۲	۵/۸۳	۶/۱۵	۵/۵۰	۵۰۴	۱/۴۸	۰/۱۹	۶/۲ [۱۱]

^۱ با سطح مقطع های کد TALYS

بهره تولید انتگرالی ^{124}I با دو برهمکنش $^{121}\text{Sb}(\alpha, n)^{124}\text{I}$ و $^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$ تا انرژی ۶۰ MeV با استفاده از توابع برانگیختگی حاصل از کد TALYS محاسبه شده و در شکل (۲) قابل مشاهده است.



شکل ۲. بهره تولید انتگرالی ^{124}I محاسبه شده با سطح مقطع های TALYS برای برهمکنش های (a) $^{121}\text{Sb}(\alpha, n)^{124}\text{I}$ (b) $^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)^{124}\text{I}$

بحث و نتیجه گیری :

مطابق نتایج بدست آمده، در اکثر برهمکنش ها سطح مقطع های محاسبه شده با کد TALYS تقریباً کمترین انحراف را از مقادیر تجربی نسبت به کدهای ALICE و EMPIRE دارند و در اکثر موارد سازگاری مناسبی بین نتایج محاسباتی و داده های تجربی مشاهده می شود. در برهمکنش $^{121}\text{Sb}(\alpha, xn)$ ، در بازه انرژی که

سطح مقطع تولید ^{124}I بیشینه است، ^{123}I تنها ناخالصی ایزوتوپی می باشد که به مقدار قابل ملاحظه ای تولید می شود. به طور تقریبی میزان این ناخالصی ۶ برابر ^{124}I است. هر چند با گذشت چند روز از اتمام فرآیند تولید این ناخالصی به دلیل نیمه عمر نسبتاً کوتاه خود واپاشی کرده و حذف خواهد شد. در این روش ید-۱۲۴ با خلوص بالایی تولید می شود ولی بهره تولید آن پایین است و در نتیجه برای تجاری سازی مناسب نیست. در برهمکنش $^{123}\text{Sb}(\alpha, xn)$ ، در بازه انرژی مورد بررسی، دو ناخالصی عمده، ^{123}I و ^{125}I ، به ترتیب به میزان ۱۳٪ و ۱/۵٪ تولید می شوند. ناخالصی اول به دلیل نیمه عمر کوتاه خود نگرانی عمده ای را در پی نخواهد داشت ولی ناخالصی دوم به دلیل نیمه عمر نسبتاً بلند خود ناخالصی مهمی است و باید با انتخاب بازه انرژی بهینه پرتودهی مقدار تولیدی آن را به حداقل رساند. در این برهمکنش، رادیونوکلئید ید-۱۲۴ در بازه انرژی $32 \rightarrow 42 \text{ MeV}$ به مقدار بالایی یعنی، $13/84 \text{ MBq}/\mu\text{A.h}$ تولید می شود. پرتودهی هدف آنتیمونی طبیعی با ذرات آلفا نیز به دلیل ناخالصی های ایزوتوپی متعددی که تولید می شوند، روش مناسبی برای تولید ^{124}I با خلوص بالا نیست. بنابراین، در مجموع برهمکنش $^{124}\text{I}^{123}\text{Sb}(\alpha, 3n)$ در بازه انرژی $32 \rightarrow 42 \text{ MeV}$ روش منتخب در بین برهمکنش های القایی با ذره آلفا با هدف تولید ^{124}I است.

مراجع :

1. Qaim, S.M., Hohn, A., Bastian, Th., El-Azoney, K.M., Blessing, G., Spellerberg, S., Scholten, B., Coenen, H.H., Some optimization studies relevant to the production of high purity ^{124}I and ^{120g}I at a small sized cyclotron, Appl. Radiat. Isot. 58, 69–78 (2003).
2. Lambrecht, R.M., Sajjad, M., Qureshi, M.A., Al-Yanbawi, S.J., Production of iodine-124, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. 127, 143–150 (1988).
3. Aslam, M.N., Sudar, S., Hussain, M., Malik, A.A., Shah, H.A., Qaim, S.M., Evaluation of excitation functions of proton and deuteron induced reactions on enriched tellurium isotopes with special relevance to the production of iodine-124, Appl. Radiat. Isot. 68, 1760–1773 (2010).
4. Tarkanyi, F., Takacs, S., Kiraly, B., Szelecsenyi, F., Ando, L., Bergman, J., Heselius, S.J., Solin, O., Hermanne, A., Shubin, Yu.N., Ignatyuk, A.V., Excitation functions of ^3He - and α particle induced nuclear reactions on ^{nat}Sb for production of medically relevant ^{123}I and ^{124}I radioisotopes, Appl. Radiat. Isot. 67, 1001–1006 (2009).
5. Zerkin, V., Expanding EMPIRE usability: portable package for Windows, Web interface, remote server calculations, IAEA workshop on Modelling and Evaluating Nuclear Reaction Data for Energy and Non-energy Applications (2013).
6. Broeders, C.H.M., Konobeyev, A.Y., Korovin, Y.A., Lunes, V.P., Blann, M., ALICE/ASH Pre-compound and evaporation model code system for calculation of excitation functions, energy and angular distributions of emitted particles in nuclear reaction at intermediate energies (2006). <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA7183.pdf>
7. Koning, A., Hilaire, S., Goriely, S., TALYS-1.6 a nuclear reaction program. Nuclear, User Manual, Research and Consultancy Group (2013).
8. Ziegler, J.F., Interactions of ions with matter. <http://www.srim.org/> Accessed 19 Nov 2015.
9. Azizakram, H., Sadeghi, M., Ashtari, P., Zolfagharpour, F., An overview of ^{124}I production at a medical cyclotron by ALICE/ASH, EMPIRE-3.2.2 and TALYS-1.6 codes, Appl. Radiat. Isot. 112 147-55 (2016).

10. Hassan, K.F., Qaim, S.M., Saleh, Z.A., Coenen, H.H., Alpha-particle-induced reactions on ^{nat}Sb and ^{121}Sb with particular reference to the production of the medically interesting radionuclide ^{124}I , Appl. Radiat. Isot. 64, 101-109 (2006).
11. Uddin, M.S., Hermanne, A., Sudar, S., Aslam, M.N., Scholten, B., Coenen, H.H., Qaim, S.M., 2011. Excitation functions of α -particle induced reactions on enriched ^{123}Sb and ^{nat}Sb for production of ^{124}I . Appl. Radiat. Isot. 69, 699-704.