

تولید و مدل‌سازی نانو ذرات ^{198}Au در راکتور تحقیقاتی تهران

حسینی، سیده فاطمه^(۱) - صادقی، مهدی^(۲) - عبودزاده، محمد رضا*^(۳)

^(۱) دانشگاه پیام نور، دانشکده فیزیک، صندوق پستی ۳۶۹۷-۱۹۳۹۵، تهران، ایران

^(۲) سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده کاربرد پرتوها، صندوق پستی ۸۴۸۶-۱۳۶۵، تهران، ایران

چکیده:

طلا دارای دو رادیوایزوتوپ مفید پزشکی ^{198}Au و ^{199}Au جهت کاربردهای تشخیصی و درمانی می‌باشد. در این تحقیق، رادیونوکلئید ^{198}Au از طریق تابش ۱ mg از نانو ذرات طلا در شار نوترونی $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ در زمانهای پرتودهی مختلف در راکتور تحقیقاتی تهران تولید شده است. همچنین، اکتیویته‌ی محصول ^{198}Au با استفاده از کدهای MCNPX-2.6 و TALYS-1.6 به دو روش شبیه‌سازی و تقریب تئوری به‌مراه ناخالصی ^{199}Au محاسبه شده است. نتایج محاسبه شده با مقادیر آزمایشگاهی بعنوان داده‌های معیار مقایسه شده است.

کلمات کلیدی: رادیونوکلئید، ^{198}Au ، ^{199}Au ، شبیه‌سازی MCNPX، اکتیویته، قلب راکتور

مقدمه :

در سالهای اخیر آزمایشات متعددی در جهت تولید $^{198}\text{AuNPs}$ بوسیله‌ی فعالسازی نوترونی طلا از طریق واکنش $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ انجام شده است. در سال ۲۰۱۶، سنتز نانو ذرات طلا بروش تقلیل شیمیایی محلول HAuCl_4 با پوشش سیترات و چیتوزان توسط عبودزاده و همکارانش [1] انجام شد. آنها نانو ذرات سنتزی را در شار نوترونی $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ بمدت ۳۰ min پرتودهی کردند و نانو ذرات اکتیو طلا را با سه نمونه $^{198}\text{Au}^{+3}$ ، $^{198}\text{AuNPs@chitosan}$ و $^{198}\text{AuNPs@citrate}$ بترتیب با اکتیویته‌ی $39,88 \text{ MBq/mg}$ ، $26,05 \text{ MBq/mg}$ و $47,76 \text{ MBq/mg}$ تولید نموده اند. کار مشابهی نیز توسط صادقی و همکارانش در سال ۲۰۱۲ [2] انجام شده است. آنها نمونه‌ی ۱,۱۲ mg از پودر HAuCl_4 را در شار $2.53 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ بمدت ۳۰ min پرتودهی کردند و اکتیویته‌ی $23,6 \text{ MBq}$ در ۶h پس از اتمام بمباران و اکتیویته‌ی $19,5 \text{ MBq}$ در ۲۴h پس از اتمام بمباران برای محصول بدست آوردند. در این تحقیق، با استفاده از دو روش شبیه‌سازی (با MCNPX-fm4 card [3]) و تقریب تئوری (با استفاده از تابع توزیع شار نوترونی و سطح مقاطع کد TALYS [4]) اکتیویته‌ی محصول ^{198}Au در تابش هدف خالص ^{197}Au در شار نوترونی $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ و در زمانهای مختلف پرتودهی محاسبه شده است. همچنین، تولید آزمایشگاهی $^{198}\text{AuNPs}$ با پوشش سیتراته در راکتور تحقیقاتی تهران انجام شده است. نهایتاً، مقادیر محاسبه شده با نتایج آزمایشگاهی متناظر مقایسه شده است.

روش کار :

تقریب تولید توسط تابع توزیع نوترونها در هدف

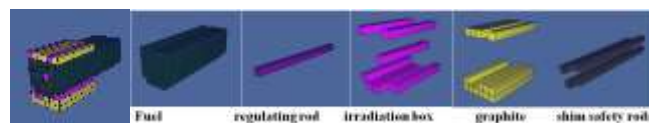
از میان انواع محصولات تولید شده در پرتو دهی هدف توسط راکتور، محصولات با نیمه عمر بلندتر و سطح مقاطع بیشتر در ناحیه‌ی حرارتی مورد توجه هستند، بدلیل اینکه ^{198}Au دارای سطح مقطع بیشتر در ناحیه‌ی حرارتی نسبت به ناحیه‌ی سریع است و بدلیل احتمال بیشتر واکنش (n,γ) از واکنش (n,p) ، تولید ^{198}Au قابل توجه است. در این روش از رابطه Bateman [5] که بصورت زیر عمومیت دارد، جهت محاسبه‌ی اکتیویته‌ی محصول استفاده شده است:

$$A_n(t) = \lambda_n N_n(t) = \lambda_n f_n N_1^0 \sum_{i=1}^n e^{-\Lambda_i t} \prod_{j=1}^n \frac{1}{(\Lambda_j - \Lambda_i)}, (n \geq 2 \text{ and } \Lambda_j = \lambda_j + \varphi \sigma_{a,j}, \lambda_1 = 0, j = 1, 2, \dots) \quad (1)$$

در رابطه‌ی بالا λ_n ثابت واپاشی هسته‌ی n ام، $N_n(t)$ تعداد اتمهای هسته‌ی n ام پس از گذشت زمان t از تابش دهی، N_1^0 تعداد اولیه‌ی اتمهای هدف، σ_a سطح مقطع جذب و f_n فاکتور تبدیل است که بصورت $f_n = \prod_{i=2}^n \varphi \sigma_{act,i}$ تعریف می‌شود و همچنین φ و $\sigma_{act,i}$ بترتیب شار نوترونی و سطح مقطع فعالسازی برای تولید ایزوتوپ n ام می‌باشند. بدلیل سطح مقطع بالا در نواحی حرارتی و فوق حرارتی و همچنین شار نوترونی بالا در این نواحی، سطح مقطع جذب به سطح مقطع گیراندازی پرتوزا تخمین زده می‌شود ($\sigma_a \sim \sigma_{\gamma}$). همچنین با گیراندازی نوترونی متعاقب ^{198}Au ، ^{199}Au بصورت ناخالصی ایزوتوپیک در محصول خواهد بود. جهت محاسبه‌ی تابع توزیع نوترونها درون هدف، طیف انرژی نوترونها به سه ناحیه‌ی انرژی حرارتی ($0 - 0.6 \text{ eV}$)، ناحیه‌ی انرژی فوق حرارتی ($0.5 \text{ MeV} - 6 \text{ eV}$) و ناحیه‌ی انرژی سریع ($10 \text{ MeV} - 0.5 \text{ MeV}$) تقسیم می‌شود [6]. توزیع نوترونهای حرارتی و فوق حرارتی در حجم هدف توسط MCNPX-F4 card محاسبه شده است. با تقریب واکنش در ناحیه‌ی حرارتی و فوق حرارتی و تابع توزیع نوترونها در هدف با استفاده از کد MCNPX و سطح مقاطع بدست آمده از کد TALYS (و همچنین سطح مقاطع استخراج شده از کتابخانه‌ی TENDL-2014) اکتیویته‌ی ویژه‌ی ^{198}Au و ناخالصی ^{199}Au محاسبه شده است.

روش شبیه‌سازی با کد MCNPX

بمنظور شبیه‌سازی تولید، در فایل ورودی کد (شکل ۱) که شامل مشخصات کامل قلب است هندسه‌ی هدف (1 mg) از هدف ^{197}Au واقع در ویال شیشه‌ای و ظرف آلومینیوم) تعریف شده است. برنامه برای ارتفاع‌های متفاوت و همچنین محل‌های مختلف پرتو دهی اجرا می‌شود تا شار $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ در محل هدف حاصل شود.



شکل ۱: قلب راکتور شبیه‌سازی شده با MCNPX

فاکتورهای قابل تغییر برای نمونه، شار در دسترس، مقدار نمونه و زمان پرتودهی می باشند. با استفاده از دستور MCNPX-FM4 card در نواحی مختلف انرژی نوترونی، اکتیویته‌ی اشباع محصول محاسبه می‌شود. در پایان زمان پرتودهی، اکتیویته‌ی محصول از رابطه‌ی زیر بدست می‌آید [7]:

$$A = A^{sat}(1 - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

که در آن λ و A^{sat} بترتیب اکتیویته‌ی اشباع بدست آمده از MCNPX و ثابت واپاشی محصول است.

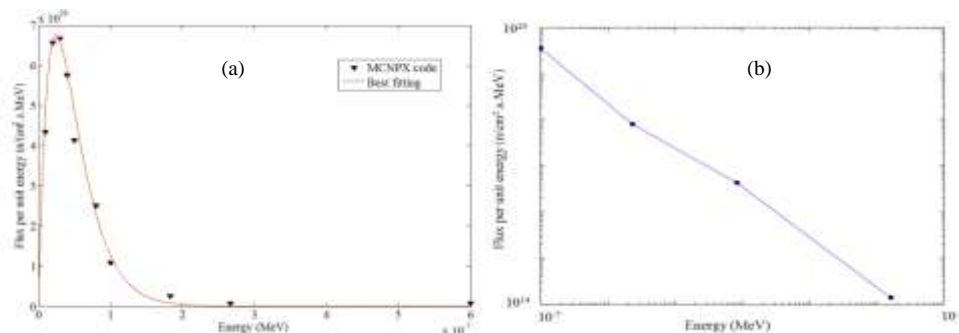
روش آزمایشگاهی

سنتز نانو ذرات طلا بروش شیمیایی گرم از محلول HAuCl_4 توسط کاهنده‌ی سیترات سدیم انجام شده است و ۱ میلی لیتر از محلول سنتزی که حاوی ۱mg از نانو ذرات طلا است در شار نوترونی‌های حرارتی $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ در زمانهای مختلف پرتودهی شده است (روش هسته‌ای سرد).

نتایج:

نتایج تقریب تنوری:

توزیع نوترونی‌های حرارتی و فوق حرارتی در حجم هدف توسط MCNPX- F4 card در شکل ۲ نشان داده شده است.

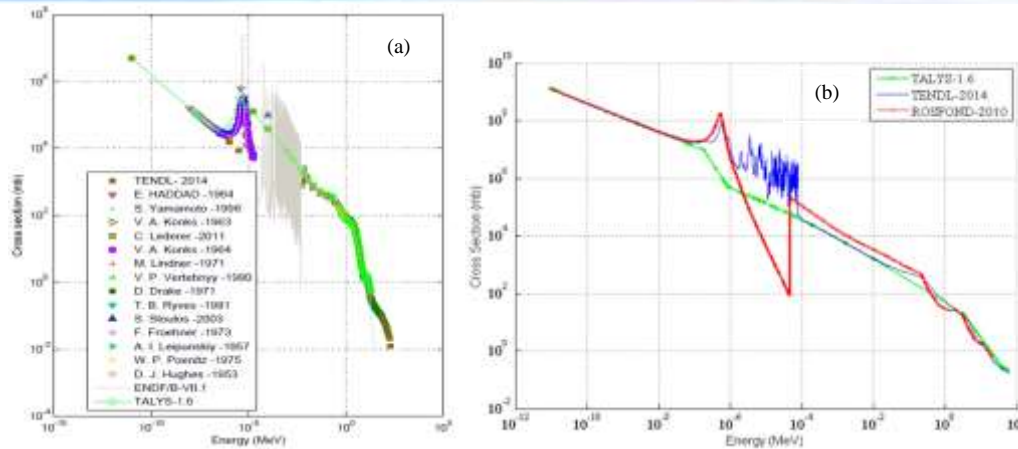


شکل ۲: توزیع شار نوترونی در ناحیه‌ی (a) انرژی حرارتی و (b) انرژی فوق حرارتی بدست آمده از MCNPX

همانطور که در شکل ملاحظه می‌شود رفتار نوترونی‌های حرارتی از توزیع ماکسول تبعیت می‌کند. بهترین تابع برازش شده به نتایج MCNPX بر طبق توزیع ماکسولی، بصورت زیر بدست آمده است:

$$\phi(E) = \frac{0.5 \times 10^{14} \times E}{(kT)^2} E^{-\frac{E}{0.95 \times (kT)}} \quad (3)$$

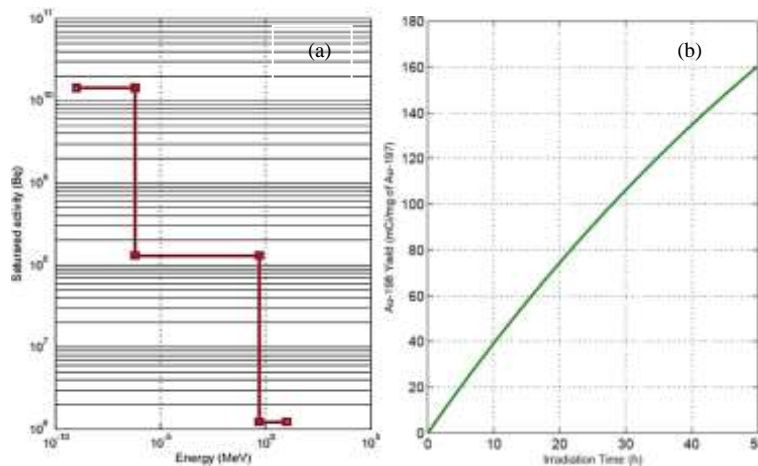
در رابطه‌ی بالا E انرژی بر حسب MeV، k و T ثابت بولتزمان و دما بر حسب درجه‌ی کلوین است. هدف طلا در محل پرتودهی تحت شار $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ از نوترونی‌های حرارتی، $1.1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ از نوترونی‌های فوق حرارتی و $5.3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{s}$ از نوترونی‌های سریع است. با استفاده از کد TALYS توابع برانگیختگی واکنشهای $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ و $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ محاسبه شده و همراه با مقادیر کتابخانه TENDL-2014 و داده‌های آزمایشگاهی [8] در شکل ۳ آمده است.



شکل ۳: مقایسه بین نتایج TALYS و داده‌های آزمایشگاهی برای واکنشهای $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ (a) و $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ (b). از نتایج کد TALYS و تعداد اتمهای ^{197}Au که در معرض شار نوترونی هستند برابر 3.0568×10^{18} است. از نتایج کد TALYS و توزیع نوترونهاي حرارتی و فوق حرارتی چنین برمی آید که هدف با نرخ 1.0568×10^{17} atoms/s کاهش می یابد، رادیونوکلئید ^{198}Au پس از تولید با نرخ λ شروع به واپاشی می کنند و با نرخ ثابت 1.09×10^{-6} /s ناپدید می شوند. با استفاده از رابطه ی ۱ اکتیویته ی محصول محاسبه شده است و نتایج این روش در جدول ۱ درج شده است.

نتایج شبیه سازی با MCNPX

اکتیویته ی اشباع محصول از طریق MCNPX-FM4 card در سه ناحیه ی حرارتی، فوق حرارتی و سریع و نیز اکتیویته ی قابل حصول برای محصول بصورت تابعی از زمان تابش در شکل ۴ نمایش داده شده است.



شکل ۴: (a) اکتیویته ی اشباع ^{198}Au در نواحی انرژی مختلف و (b) بهره ی تولید بصورت تابعی از زمان پرتودهی با استفاده از MCNPX

شکل ۴ نشان می دهد که در زمانهای کوتاه پرتودهی در مقایسه با نیمه عمر ^{198}Au ، اکتیویته ی رادیونوکلئید با یک آهنگ ثابت افزایش می یابد. در زمانهای طولانی تر پرتودهی، تولید به مقدار اشباع خود می رسد. چنین استنتاج می شود که حداکثر اکتیویته ی قابل حصول 1.437×10^{10} Bq در ناحیه ی حرارتی خواهد بود. نتایج

اکتیویته‌ی محاسبه شده بروش شبیه‌سازی برای محصول ^{198}Au در زمانهای مختلف پرتودهی در جدول ۱ ارائه شده است.

نتایج آزمایشگاهی و مقایسه با مقادیر محاسبه شده

نتایج آزمایشگاهی بدست آمده از تابش ۱ mg هدف AuNPs در جدول ۱ گزارش شده است.

جدول ۱: نتایج محاسبه شده و آزمایشگاهی اکتیویته‌ی ^{198}Au با تابش دهی در زمانهای مختلف نمونه‌ی ۱ mg از ^{197}Au در شار نوترونیهای

حرارتی $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$

زمان تابش - دهی (h)	اکتیویته با MCNPX		اکتیویته با MCNPX			اکتیویته‌ی آزمایشگاهی (MBq)
	FM4 card (MBq)	اختلاف نسبی (with Exp.)	TALYS code (MBq)	اختلاف نسبی (with Exp.)	^{199}Au (TALYS) (MBq)	
۱	1.52×10^2	۰.۰۵۱	1.655×10^2	۰.۱۲۸	۰.۲۴۵	$1.443 \times 10^2 \pm 0.15 \times 10^2$
۲	3.03×10^2	۰.۰۵۹	3.288×10^2	۰.۱۳۳	۰.۹۷۵	$1.849 \times 10^2 \pm 0.28 \times 10^2$
۳	4.51×10^2	۰.۰۴۹	4.893×10^2	۰.۱۲۲	۲.۱۷۶	$4.292 \times 10^2 \pm 0.32 \times 10^2$
۱۰	1.45×10^3	۰.۰۵۱	1.551×10^3	۰.۱۱۲	۲۲.۸۹۰	$1.376 \times 10^3 \pm 0.19 \times 10^3$
۳۰	3.93×10^3	۰.۰۵۱	4.052×10^3	۰.۰۸۰	۱۷۶.۵۰۰	$3.726 \times 10^3 \pm 0.65 \times 10^3$

اختلاف نسبی = (Cal.-Exp.)/Cal.

در پرتودهی طولانی، بدلیل جذب نوترونی ^{198}Au شار نوترونی در محل تغییر می‌کند و متعاقباً سهم ناخالصی ^{199}Au افزایش می‌یابد. بطوریکه برای زمانهای پرتودهی بیشتر از ۳۰h، تولید ناخالصی ^{199}Au بیشتر از ۵٪ می‌شود. کار مشابهی نیز در مورد آزمایش صادقی و همکارانش در سال ۲۰۱۲ انجام شد، نتایج در این مورد در جدول ۲ گزارش شده است.

جدول ۲: نتایج محاسبه شده و مقادیر آزمایشگاهی نمونه‌ی ۱.۱۲mg با تابش دهی ۳۰min در شار نوترونیهای حرارتی $2.53 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$

زمان ثبت پس از پایان بمباران (h)	اکتیویته‌ی ^{198}Au بر حسب MBq			
	تئوری با استفاده از سطح مقاطع آزمایشگاهی	MCNPX-FM4 card	سطح مقاطع بدست آمده از TALYS و توزیع نوترونی از MCNPX	آزمایشگاهی (توسط صادقی و همکارانش در سال ۲۰۱۲)
۶	2.533×10	2.831×10	2.456×10	2.360×10
۲۴	2.092×10	2.321×10	2.028×10	1.950×10

نتایج بدست آمده با هر دو روش با مقادیر آزمایشگاهی در توافق خوبی هستند که نشان دهنده قابلیت استناد روشهای شبیه سازی در تخمین تولید است. بنابراین می توان از این روشها بعنوان روشهای کارآمد و قوی جهت پیش بینی و بهینه سازی تولید در راکتور بهره جست.

بحث و نتیجه گیری :

اکتیویتهی محصول $^{198}\text{AuNPs}$ از طریق واکنش $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ با تابش دهی 1 mg از هدف $^{197}\text{AuNP}$ در شار نوترونی $4.5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{s}$ در راکتور تهران در زمانهای تابش دهی مختلف آزمایش شد. با استفاده از تقریب تئوری در ناحیهی حرارتی و فوق حرارتی و تابع توزیع نرمالیزه ذرات در هدف توسط کد MCNPX، تخمینی از اکتیویتهی محصول را بدست آوردیم. توسط MCNPX-FM4 card بصورت مستقیم اکتیویتهی اشباع محصول بدست آمد و با رابطهی تئوری، تقریبی از اکتیویتهی ^{198}Au در زمانهای پرتودهی مختلف بدست آمد. در نتیجه، تولید از طریق واکنش اشاره شده نشان دهندهی درصد خلوص بالای ۹۵٪ محصول در پرتودهی کوتاه (کمتر از ۱۰h با اکتیویتهی 2 mCi) است. رادیونوکلئید ^{199}Au ناخالصی همراه محصول است که با نیمه عمر بیشتر در پرتودهی طولانی تر، ناخالصی قابل توجهی می باشد. در این مطالعه، مقایسه بین نتایج بدست آمده و نتایج آزمایشگاهی نشان دهندهی قابلیت اعتماد به روشهای بکارگیری شده در پیش بینی تولید دارد.

مراجع :

- [1] Aboudzadeh M. R., Moassesi M. E., Amiri M., Shams H., Alirezapour B., Sadeghi Met al., 2016. Preparation and characterization of chitosan-capped radioactive gold nanoparticles: neutron irradiation impact on structural properties. JICS 13, 339-345.
- [2] Sadeghi M., Jabal-Ameli H., Ahmadi S.J., Sadjadi S.S., Bakht M.K., 2012. Production of cationic $^{198}\text{Au}^{3+}$ and nonionic $^{198}\text{Au}^0$ for radionuclide therapy applications via the $^{nat}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ reaction. J. Radioanal. Nucl. Chem. 293, 45-49.
- [3] Pelowitz D.B., (Ed.), 2008. MCNPX User's Manual, Version 2.6.0 LA-CP-07-1473.
- [4] Koning A.J., Hilaire, S., Goriely, S., 2013. TALYS-1.6 A Nuclear reaction program. User Manual, Nuclear Research and Consultancy Group (NRG), Netherlands.
- [5] Le V.S., 2011. Specific Radioactivity of Neutron Induced Radioisotopes: Assessment Methods and Application for Medically Useful ^{177}Lu Production as a Case. Molecules 16, 818-846.
- [6] Omar H., Khattab K., Ghazi N., 2011. Neutron energy spectra calculation in the low power research reactor. Indian J. Pure Appl. Phys. 49, 723-730.
- [7] IAEA, Vienna, 2003. Manual for reactor produced radioisotopes. IAEA-TECDOC-1340.
- [8] EXFOR/CSISRS, 2016. Experimental Nuclear Reaction Data <<http://www.nds.iaea.org/exfor>>.