



انتخاب واکنش مناسب و تعیین پارامترهای پرتودهی برای تولید پالادیوم-۱۰۳

مهدی صادقی*، حسین آفریده، محمدرضا انصاف، نامی شادان پور، محسن کیومرثی

پژوهشکده تحقیقات کشاورزی، پزشکی و صنعتی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۳۱۴۸۵-۴۹۸، کرج-ایران

چکیده: برای داشتن بهترین بهره از نمودار سطح مقطع واکنش $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ و برای پرهیز از تولید ناخالصی ^{101}Pd باید انرژی پروتون فرودی 18MeV و انرژی خروجی ذرات 5MeV باشد (حاصل از کد ALICE و نتایج تجربی). بر اساس کد SRIM، ضخامت لایه رودیوم در زاویه 90° درجه پرتابه نسبت به هدف باید $480\mu\text{m}$ باشد. برای کاهش ضخامت لایه رودیوم (در نتیجه کاستن قیمت هدف رودیوم) زاویه پرتابه نسبت به هدف 6° درجه تنظیم شده است تا ضخامت به $48\mu\text{m}$ کاهش یابد.

واژه‌های کلیدی: پالادیوم-۱۰۳، تابع برانگیختگی، توان ایستاندگی، سیکلوترون، سطح مقطع، کد ALICE کد SRIM

Selection of Suitable Reaction and Determination of Irradiation Parameters for Palladium-103 Production

M. Sadeghi*, H. Afarideh, M.R. Ensaf, N. Shadanpour, M. Kiyomarsi

Agricultural, Medical and Industrial Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 31485-498, Karaj-Iran

Abstract: To benefit greatly from $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ cross section curve and to avoid formation of radionuclide ^{101}Pd impurity, the proton incident and exit energy of 18 and 5 MeV, must be considered, using ALICE code and experimental results. According to SRIM code, the Rh thickness must be $480\mu\text{m}$ for 90° beam/target angle geometry. To minimize the thickness of the rhodium layer, and hence to reduce the price of rhodium target, the angle of beam target has been adgusted to 6 degrees so as to decrease the thickness to $48\mu\text{m}$.

Keywords: Palladium-103, Excitation Function, Stopping Power, Cyclotron, Cross Section, ALICE Code, SRIM Code

جدول ۱ واکنش‌هایی که منجر به تولید پالادیوم-۱۰۳ می‌شود.

Reaction	Incident Particle Energy (MeV)
$^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$	$E_p = 18$
$^{103}\text{Rh}(d,2n)^{103}\text{Pd}$	$E_d = 21$
$^{100}\text{Ru}(\alpha, n\gamma)^{103}\text{Pd}$	$E_\alpha = 24$
$^{94}\text{Zr}(^{12}\text{C}, 3n\gamma)^{103}\text{Pd}$	$E_c = 54$
$^{\text{nat}}\text{Ag}(p, x)^{103}\text{Pd}$	$E_p = 100$
$^{104}\text{Pd}(d,t)^{103}\text{Pd}$	$E_d = 34$
$^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$	Reactor
$^{102}\text{Pd}(d,p)^{103}\text{Pd}$	$E_d = 20$
$^{106}\text{Cd}(p, 4n)^{103}\text{Pd}$	$E_p = 100$

خواهد داشت. بنابراین آکتیویته ویژه و درجه خلوص رادیونوکلئید پایین است. بعنوان مثال، مدت بمباران با شار نوترون $4 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ، ۲۱ روز می‌باشد. بعلاوه قیمت ^{102}Pd خالص بسیار زیاد بوده و دسترسی به آن دشوار است [۴].

برای تولید پالادیوم-۱۰۳ از نقره، به سیکلوترون با انرژی بالا نیاز است، همچنین پالادیوم-۱۰۰ که به رودیوم-۱۰۰ تبدیل خواهد شد، تولید می‌شود. رودیوم-۱۰۰ دارای انرژی ۷٪ زیاد است. بازده تولید به علت محدود بودن شدت جریان ($100 \mu\text{A}$) پایین می‌باشد. در این برهمکنش، ایزوتوپ‌های نقره و عناصر دیگر به مقدار زیاد تولید می‌گردد [۵]. تولید پالادیوم-۱۰۳ از کادمیوم خالص، به سیکلوترون با انرژی بالا نیاز دارد و شدت جریان آن به $250 \mu\text{A}$ محدود می‌شود. کادمیوم خالص بسیار گران و دسترسی به آن مشکل است. ولی هدف از جنس رودیوم بصورت صددرصد خالص در طبیعت یافت می‌شود و نیازی به جداسازی ایزوتوپی نیست. همچنین در این نوع واکنش، به دلیل تفاوت شیمیایی بین ماده هدف (Rh) و محصول (Pd)، می‌توان با روش‌های ساده و کم‌هزینه در مدت کوتاهی این دو عنصر را از یکدیگر جدا کرد.

با توجه به اینکه انرژی پروتون خروجی در شتابدهنده سیکلوترون موجود در پژوهشکده کرج بین 15 MeV تا 30 MeV و انرژی دوترون خروجی 15 MeV می‌باشد، بررسی واکنش‌های $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ و $^{103}\text{Rh}(d,2n)^{103}\text{Pd}$ منطقی است.

در مورد واکنش‌های هسته‌ای، تنها پارامترهایی که آزمایشگر می‌تواند تغییر دهد تا به شرایط مطلوب برسد، انرژی پرتابه و استفاده از مواد غنی شده در هدف می‌باشند. با بررسی

۱- مقدمه

پالادیوم-۱۰۳^(۱) یکی از رادیویزوتوپ‌های گروه پالادیوم با نیمه‌عمر حدود ۱۷ روز و با انرژی متوسط پرتو ایکس 21 keV ، برای درمان سرطان‌ها به روش براکی‌تراپی، اهمیت روز افزونی پیدا کرده است. بدلیل داشتن انرژی کمتر از رادیویزوتوپ ید-۱۲۵ (21 keV) و سرعت متلاشی شدن تقریباً سه برابر ید-۱۲۵ (با نیمه‌عمر حدود ۵۰ روز)، تقریباً به طور کامل جانشین آن در براکی‌تراپی شده است. پالادیوم-۱۰۳ یکی از رادیویزوتوپ‌هایی است که کاربرد گسترده‌ای در پزشکی داشته و در درمان انواع سرطان‌ها از جمله سرطان چشم، مغز، گردن، رحم، روده، پروستات و پانکراس بکار می‌رود و در رادیولوژی و رادیوتراپی نیز از آن استفاده می‌شود [۱، ۲ و ۳]. بنابراین تولید پالادیوم-۱۰۳ به وسیله سیکلوترون، به عنوان اولین رادیویزوتوپ درمانی در ایران از اهمیت خاصی برخوردار است. نخستین مرحله در تولید یک رادیویزوتوپ، انتخاب واکنش مناسب و شاخص‌های تولید برای آن رادیویزوتوپ می‌باشد. با بررسی این عوامل می‌توان به بهترین شرایط برای تولید بهینه رادیویزوتوپ موردنظر دست یافت.

۲- روش

واکنش‌های متعددی برای تولید پالادیوم-۱۰۳ وجود دارد، که از آن میان با توجه به شرایط، باید بهترین واکنش انتخاب شود. با بررسی جداول ایزوتوپ‌ها که حاکی از آن است واکنش‌های متفاوتی می‌توانند منجر به تولید پالادیوم-۱۰۳ گردند (جدول ۱). به دلیل عدم دسترسی به پرتو ذرات آلفا و ^{12}C با شدت بالا، همچنین واکنش‌هایی که نیاز به انرژی پروتون بیش از 30 MeV را داشتند، از بررسی حذف شدند. تولید پالادیوم-۱۰۳ از ^{102}Pd ناخالصی‌های زیادی دارد، زیرا ^{102}Pd همراه با ایزوتوپ‌های پایدار دیگر پالادیوم ($^{104,105,106,108,110}\text{Pd}$) است. همچنین در این نوع واکنش‌ها بدلیل یکسان بودن خواص شیمیایی محصول و هدف جداسازی امری مشکل، وقت‌گیر و پرهزینه خواهد بود.

برای تولید پالادیوم-۱۰۳ به وسیله رآکتور، از هدف ^{102}Pd با درجه خلوص ۸۰-۵۰٪ استفاده می‌شود. همچنین به رآکتور با شار بالا نیاز است که در ایران موجود نیست و نیاز به مدت طولانی برای بمباران است. در هدف، عناصر دیگری (۲۰-۵۰٪) مانند ایزوتوپ‌های پالادیوم، یا ایزوتوپ‌هایی از عناصر دیگر وجود



$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi z^2 q^+ N z (\pi \times 10^8)}{M v^2 (1.6 \times 10^{-19})} \left[\ln \frac{2Mv^2}{I} - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right] \left(\frac{\text{MeV}}{\text{cm}} \right) \quad (2)$$

در این رابطه، Z عدد اتمی ذره، q بار الکتریکی واحد در $(1.6 \times 10^{-19} \text{C})$ ، M جرم سکون ذره (g)، v سرعت ذره ($\frac{\text{cm}}{\text{s}}$)، N تعداد اتم‌های ماده جاذب در هر cm^3 ، c سرعت نور ($3 \times 10^{10} \frac{\text{cm}}{\text{s}}$) و I میانگین پتانسیل یونش و برانگیزش اتم‌های جاذب برحسب eV است ($I=2.6 \times 10^{-11} Z$). با انتگرال‌گیری معین از رابطه بالا، روی کلیه فواصل dx می‌توان به میزان افت انرژی ذره پرتابی درون هدف پی‌برد. اما آنچه انتگرال‌گیری را مشکل می‌سازد، ثابت نبودن سرعت (v) و یا انرژی ذره پرتابی (MeV^2) در هر فاصله‌ای از انتگرال‌گیری است. کدهای کامپیوتری متعددی برای حساب کردن $\frac{dE}{dx}$ ، همچنین برد ذره پرتابی نوشته شده‌اند. منظور از برد فاصله‌ای است که ذره پس از طی این فاصله متوقف شده و انرژی جنبشی آن به صفر می‌رسد. از جمله این کدها SRIM می‌باشد. این کد، با استفاده از روش مونت کارلو به حل عددی معادله‌هایی از نوع معادله (۲) می‌پردازد.

با انتگرال‌گیری معین روی کلیه فواصل درون هدف می‌توان به میزان کل انرژی از دست رفته ذره پرتابی پی‌برد. کدهای کامپیوتری از جمله: SRIM-96، TRIM با محاسبه توان ایستاندگی، همچنین برد ذرات با انرژی‌های مختلف که در هدف‌های متفاوت نوشته شده است و نتایج حاصل از اجرای آن، ایده اولیه را در زمینه طراحی هدف به آزمایشگر می‌دهد.

توجه به نکات فوق ما را مقید می‌سازد که طول مناسب هدف را به گونه‌ای انتخاب کنیم که در آن انرژی پروتون از 18MeV تا 5MeV کاهش یابد. مسأله مهم دیگر در طراحی هدف اینست که انرژی از دست داده شده توسط پروتون‌ها به صورت انرژی حرارتی در آن آزاد شود و در صورتی که قادر به بازیافت حرارت ایجاد شده باشیم احتمال ذوب‌شدگی Rh روی هدف مسی و کنده شدن آن وجود دارد. در این صورت هدف باید دارای یک سیستم خنک‌کننده کارآمد باشد. اگر افت انرژی 15MeV و جریان باریکه پروتون‌ها $100 \mu\text{A}$ باشد طبیعی است که 1500 وات انرژی در هدف آزاد می‌شود که بازیابی آن نیازمند یک سیستم انتقال حرارتی دقیق است.

نمودار سطح مقطع^(۲) و تابع تحریک یا برانگیختگی^(۳) می‌تواند حوزه‌ای از انرژی را که در آن مقدار واکنش‌های مزاحم در کمترین حد و واکنش مطلوب در بیشترین بازدهی باشد، تعیین کرد.

آهنگ تغییرات سطح مقطع نسبت به انرژی $\sigma(E)$ یا تابع برانگیختگی در فرایند تولید از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. تابع برانگیختگی را می‌توان با استفاده از روش‌های تجربی، همچنین شبیه‌سازی‌های کامپیوتری مانند کد آلیس (ALICE) بدست آورد. سطح مقطع واکنش‌های ممکن در اثر بمباران پروتونی و دوترونی هدف هسته رودیوم- $103^{(۴)}$ در گستره انرژی 2MeV تا 30MeV با استفاده از کد آلیس برحسب میلی‌بارن بدست آمد.

هر گاه جریان ذرات فرودی شامل I_a ذره در واحد زمان و هدف شامل N هسته در واحد سطح باشد و ذرات خروجی نیز با آهنگ R_b ظاهر شوند، سطح مقطع واکنش چنین است:

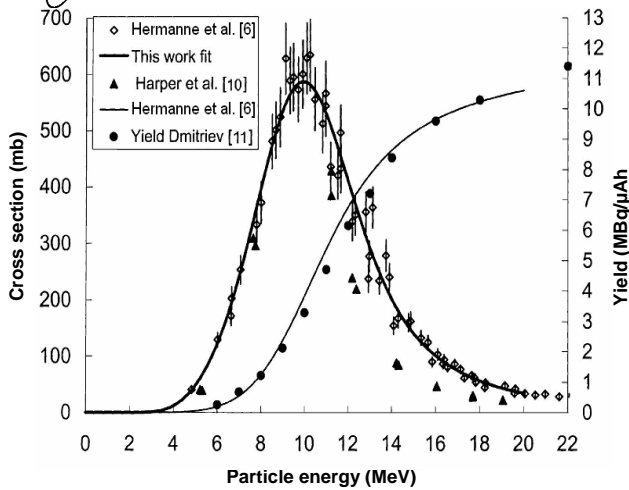
$$\sigma = \frac{R_b}{I_a N} \quad (1)$$

از نظر تئوری با انتگرال‌گیری از نمودار سطح مقطع می‌توان بازده تولید و میزان ناخالصی‌های ناشی از واکنش‌های مزاحم را تعیین و با توجه به نوع و مقدار آنها در مورد فرایند شیمیایی خالص‌سازی، طراحی لازم و تصمیم‌گیری معقول را انجام داد. یکی از مسایل مهم در طراحی هدف، طرح ابعاد بهینه هدف‌هاست. پروتون‌ها هنگام ورود به هدف مرتباً با اتم‌های رودیوم برخورد می‌کنند و در هر برخورد مقداری از انرژی خود را از دست می‌دهند. میزان از دست رفتن انرژی dE پروتون‌ها در یک بازه معین dx را توان ایستاندگی^(۵) می‌نامند، که بستگی به جرم پرتابه و هدف، انرژی پرتابه، چگالی هدف و بار پرتابه دارد. منظور از برخورد در اینجا، برخوردی از نوع واکنش هسته‌ای نیست، بلکه صرفاً برخورد کولنی موردنظر است و درصد اعظم برخوردهای درون هدف از این دسته‌اند.

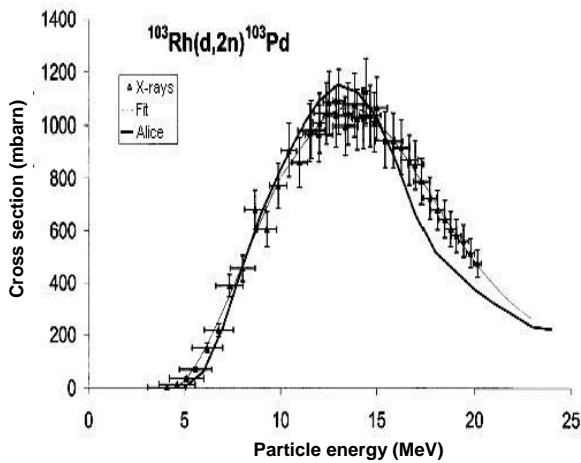
روابطی برای تعیین مقدار $\frac{dE}{dx}$ در کتاب‌های مختلف درج شده‌اند که برای ذرات باردار سنگین‌تر از الکترون، به این صورت است:

۳- یافته‌ها و بحث

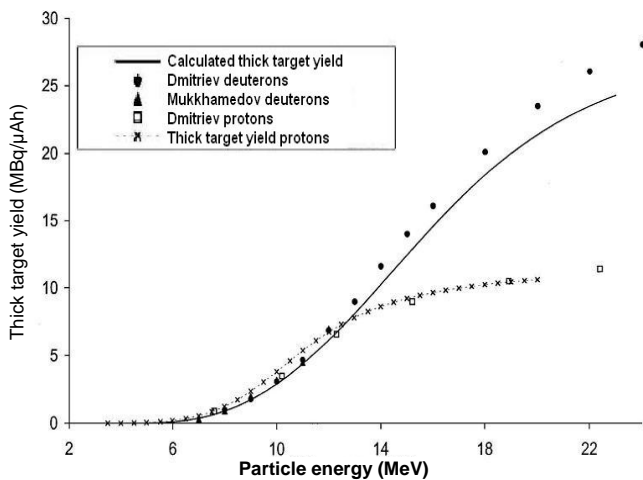
محاسبات سطح مقطع واکنش‌های $^{103}\text{Rh}(d,2n)^{103}\text{Pd}$ ، $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ با مقایسه و بررسی نمودارهای حاصل از کد ALICE و نمودارهای بدست آمده توسط دیگران می‌توان انرژی مطلوب را تعیین کرد. با نگاهی اجمالی به نمودار شکل‌های ۱ و ۳ می‌بینیم که بزرگترین سطح مقطع برای پروتون حدود انرژی ۱۰ MeV است ولی برای بازدهی بیشتر با توجه به شکل ۳، [۶، ۷، ۸، ۱۰ و ۱۱]. بهترین انرژی در حدود ۱۸ MeV می‌باشد که در آن تولید ناخالصی (دیگر ایزوتوپ‌ها) بسیار کم است و بیشترین سطح مقطع برای دوترون، نمودار شکل‌های ۲ و ۴، حدود انرژی ۱۴ MeV است. ولی برای بازدهی بیشتر، بهترین انرژی در حدود ۲۰ MeV می‌باشد [۹ و ۱۲] (شکل ۵).



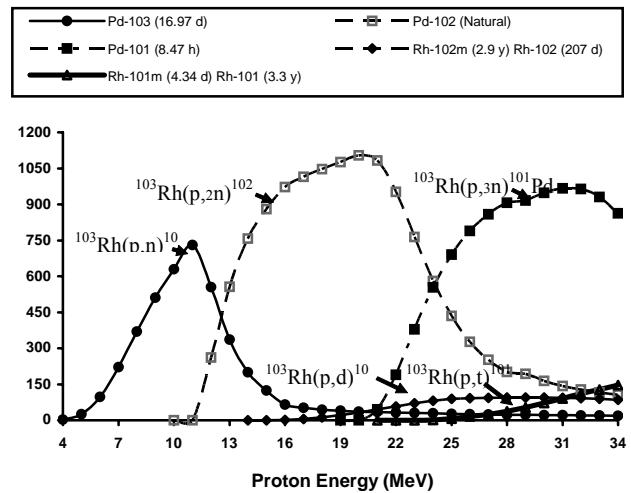
نمودار سطح مقطع و بهره واکنش $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$



نمودار سطح مقطع $^{103}\text{Rh}(d,n)^{103}\text{Pd}$

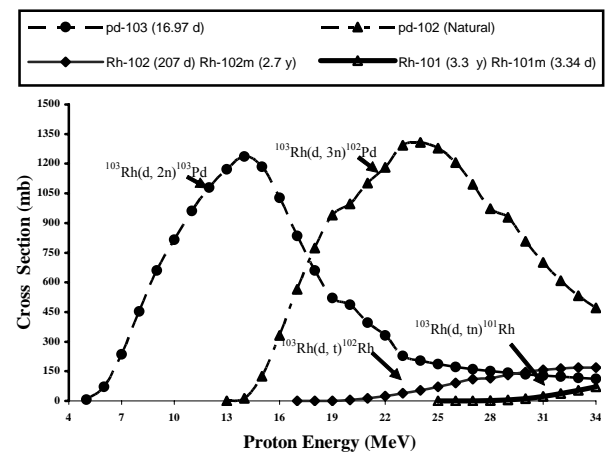


نمودار بهره واکنش $^{103}\text{Rh}(d,n)^{103}\text{Pd}$



۱- نمودار سطح مقطع برای واکنش

$^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ ، $^{103}\text{Rh}(p,3n)^{101}\text{Pd}$ توسط کد ALICE



نمودار سطح مقطع برای واکنش $^{103}\text{Rh}(d,n)^{103}\text{Pd}$ توسط کد

ALICE

۱-۳ مقایسه نتایج حاصل از کد آلیس با مطالعات تجربی قبلی

مقایسه نتایج تئوری محاسبات سطح مقطع حاصل از کد آلیس و مطالعات تجربی سطح مقطع واکنش‌های هسته‌ای رودیوم با پروتون یعنی واکنش $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ نشان می‌دهد که توافق خوبی بین نتایج تجربی و محاسبات کد آلیس وجود دارد، بطوریکه در هر دو مورد سطح مقطع از حدود انرژی پروتونی ۵ MeV به سرعت افزایش می‌یابد و در حدود ۱۰ MeV به بیشینه می‌رسد. هماهنگی و توافق بین روش شبیه‌سازی و مطالعات تجربی مبین توانایی و کارایی کد کامپیوتری آلیس است.

۲-۳ انتخاب انرژی پروتون

علیرغم اینکه در انرژی ۱۰ MeV بیشترین احتمال برای واکنش $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ پیش‌بینی می‌شود، در هدف‌های ضخیم با افزایش انرژی بهره نیز افزایش می‌یابد، اما این افزایش در انرژی تا جایی باید باشد که محصول دیگری تولید نشود. با توجه به اطلاعات بدست آمده از سطح مقطع متوجه می‌شویم که در انرژی‌های بالاتر از ۱۸ MeV احتمال رویکرد واکنش $^{103}\text{Rh}(p,3n)^{101}\text{Pd}$ وجود دارد. بنابراین تولید ^{101}Pd با وجود نیم‌عمر ۸/۵ ساعت را نمی‌توان نادیده انگاشت. با توجه به کلیه مطالب فوق و با در نظر گرفتن اینکه منظور از انتخاب هدف‌های ضخیم دستیابی به محصول بیشتر با کمترین میزان آلودگی آکتیو می‌باشد بهترین انرژی برای بمباران هدف ۱۸ MeV انتخاب شد.

۳-۳ تعیین ضخامت هدف با استفاده از کد SRIM

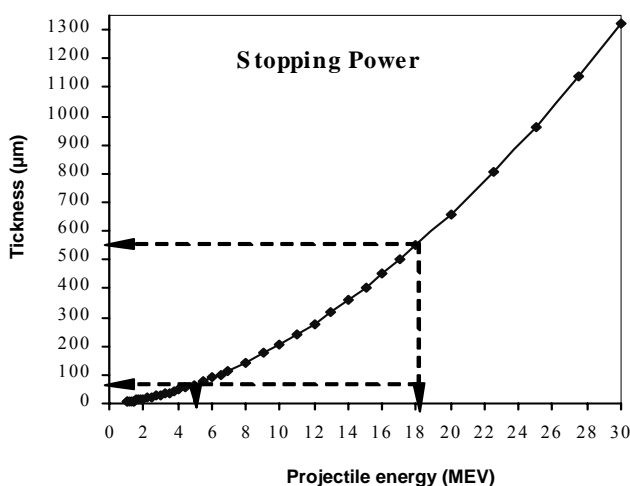
یکی از مسایل مهم در هدف‌ها، طراحی ابعاد بهینه هدف است. سطح مقطع واکنش تولید پالادیوم-۱۰۳ از رودیوم بررسی شده نشان داد که مقدار ضخامت بایستی به اندازه‌ای باشد که افت انرژی از ورود به هدف تا خروج از آن در حدود سیزده میلیون الکترون ولت باشد. زیرا در ناحیه انرژی بین ۵ تا ۱۸ میلیون الکترون ولت، بیشترین میزان تولید پالادیوم-۱۰۳ و کمترین میزان تولید ناخالصی وجود دارد. بنابراین ضخامت هدف باید به اندازه‌ای باشد که این مقدار افت انرژی پروتون در آن تأمین گردد. این طول را طول مؤثر هدف^(۶) می‌نامند.

توجه به معادله (۱) نشان می‌دهد که در ورودی کد بایستی داده‌هایی همچون نوع ذره پرتابی، نوع هسته هدف، چگالی اتمی و انرژی ذره پرتابی وارد گردد. خروجی کد، مقدار $\frac{dE}{dx}$ را در هر انرژی (همچنین برد ذره) را در اختیار استفاده‌کننده قرار می‌دهد. محاسبات انجام شده به وسیله کد از دقت قابل قبولی برخوردارند. با اجرای این کد در مورد ماده هدف Rh و پرتابه پروتونی عمودی در گستره انرژی از ۱۸ MeV تا ۵ MeV ضخامت از ماده در حدود ۴۸۰ μm لازم است. بهترین جریان پروتونی ۱ mA است، چون زاویه پرتو با هدف ۶ درجه است ضخامت ماده به ۴۸ μm کاهش می‌یابد (شکل ۶).

۴- نتیجه گیری

بهترین انرژی پرتابه پروتونی برای تولید پالادیوم-۱۰۳ از هدف رودیوم، در حدود ۱۸ MeV می‌باشد که در آن تولید رادیویزوتوپ‌های دیگر (همچون ناخالصی ^{101}Pd) بسیار کم است. با انتخاب این انرژی فقط مقدار کمی $^{102m,102g}\text{Rh}$ که نیمه‌عمر طولانی دارند تولید می‌شود.

جداسازی، این رادیویزوتوپ‌ها را در طی بازیابی رودیوم مشخص می‌نماید. برای پرتابه پروتونی عمودی در گستره انرژی ۱۸ MeV تا ۵ MeV ضخامت از رودیوم در حدود ۴۸۰ μm لازم است، چون زاویه پرتو با هدف ۶ درجه است ضخامت به ۴۸ μm کاهش می‌یابد.



شکل ۶- نمودار تعیین ضخامت لایه رودیوم برای پرتابه پروتونی در گستره انرژی ۱۸ MeV تا ۵ MeV.

۱- Palladium-103

۲- Cross Section

۳- Excitation Function

۴- Rhodium-103 Target

۵- Stopping Power

۶- Effective Length

References:

1. M.D. Porrazzo, S. Michael, "Permanent interstitial implantation using palladium-103: The New York Medical College Preliminary Experience," *J. Radiation Oncology Biology Physics*, 23(5), 1033-1036 (1992).
2. S. Nag, M. Riborich, J.Z. Cai, "Palladium-103 vs. Iodine-125 brachytherapy in the Danning-PAP rat prostate tumor," *Endocuriether/Hyperthem. Oncol.* 12, 119-124 (1996).
3. S. Nag, P.J. Sweeney, M.G. Wientjes, "Dose-response study of iodine-125 and palladium-103 brachytherapy in a rat prostate tumor (Nb AI-1)," *Endocuriether/Hyperthem. Oncol.* 9, 97-104 (1993).
4. J.L. Carden Jr, Ga. Tucker, United States Patent. Patent Number: 5405309 (1995).
5. M. Fassbender, F.M. Nortier, I.W. Schroeder, T.N. van der Walt, "The production of ^{103}Pd via the $^{nat}\text{Ag}(p,x)^{103}\text{Pd}$ nuclear process," *Radiochim. Acta*, 87 (1999).
6. A. Hermanne, M. Sonck, A. Fenyvesi, L. Daraban, "Study on production of ^{103}Pd and characterization of possible contaminants in the proton irradiation of ^{103}Rh up to 28 MeV," *Nucl. Inst. & Meth. Phys. Res. B*, 170, 281-299 (2000).
7. S. Sudár, F. Cserpak, S.M. Qaim, "Measurements and nuclear model calculations on proton induced reactions on ^{103}Rh up to 40 MeV: evaluation of the excitation function of the $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ reaction relevant to the production of the therapeutic radionuclide ^{103}Pd ," *Appl. Radiat. Isot.* 56, 821 (2002).
8. Ch. Zhang, Y. Wang, Y. Zhang, X. Zhang, "Cyclotron production of no-carrier-added palladium-103 by bombardment of rhodium-103 target," *Appl. Radiat. Isot.* 55, 441-445 (2000).
9. A. Hermanne, M. Sonck, S. Takacs, F. Tarkanyi, Y. Shubin, "Study on alternative production of ^{103}Pd and characterisation of contaminants in the deuteron irradiation of ^{103}Rh up to 21 MeV," *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 187, 3-14 (2002).
10. P.V. Harper, K. Lathrop, J.L. Need, "The thick target yield and excitation function for the reaction $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$," ORNL-LR-DWG 51564 124 (1961).
11. P.P. Dmitriev, Radionuclide yield in reactions with protons, deuterons, alpha particles and helium-3, INDC(CCP)-263/G+CN+SZ, Vienna (1986).
12. S. Mukhammedov, A. Vasidov, E. Pardaev, "Application of proton and neutron activation method of analysis for the determination of elements with Z greater 42," *Atomnaya Energia*, 56.50 (1984).