



بررسی تولید محصولات اصلی و ناخالصی‌های تولید شده در فرایند پرتودهی رنیم طبیعی در رآکتور تهران و مقایسه آن با روش شبیه‌سازی با MCNPX

حسن رنجبر^{۱*}، زهرا پورحبیب^۲، احسان بوستانی^۳

۱. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۳۳۶۵-۸۴۸۶، تهران - ایران

۲. دانشکده فیزیک، دانشگاه پیام نور، صندوق پستی: ۱۹۳۹۵-۴۶۹۷، تهران - ایران

۳. پژوهشکده‌ی رآکتور و ایمنی هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی: ۱۳۳۲۹-۱۴۱۵۵، تهران - ایران

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۹۹/۶/۲۴ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۹/۷/۲۷

چکیده

با توجه به این واقعیت که رادیوداروها ترکیبات رادیواکتیو هستند، قوانین و مقررات سختگیرانه‌ای در مورد جنبه‌های کنترل کیفی آن‌ها وجود دارد. یکی از پارامترهای اساسی در کنترل کیفی، تعیین نوع و میزان ناخالصی در رادیوداروها به منظور اطمینان از تجویز دز صحیح است. مقادیر ناخالصی معمولاً کم است، اما همین مقادیر کم نیز مهم هستند و باید با دقت بالا اندازه‌گیری شوند. هدف از این مطالعه ارزیابی تولید هم‌زمان رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸ با یک ماده هدف و بررسی تولید ناخالصی‌های احتمالی است. برای دستیابی به هدف این تحقیق، کار در دو مرحله انجام شد. در فاز اول، مدلی مبتنی بر کد MCNPX برای شبیه‌سازی پرتودهی هدف در رآکتور تحقیقاتی تهران طراحی شد. در فاز دوم، ارزیابی تجربی با استفاده از پرتودهی رنیم طبیعی در رآکتور تحقیقاتی تهران انجام گرفت. نتایج شبیه‌سازی و عملی (تجربی) نشان داد که رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸ می‌توانند به طور هم‌زمان و با اکتیویته مناسب و تقریباً برابر تولید شوند. هم‌چنین میزان ناخالصی‌ها در مقایسه با محصولات اصلی بسیار ناچیز است. یافته‌های ما نشان داد که داده‌های تجربی با داده‌های شبیه‌سازی مطابقت خوبی دارند (اختلاف کم‌تر از ۵٪) و در نتیجه، روش شبیه‌سازی روش قدرتمند و مفیدی برای بررسی جنبه‌های مختلف تولید رادیوایزوتوپ در رآکتورهای تحقیقاتی است.

کلیدواژه‌ها: ناخالصی، رادیودارو، کوکتل $^{186}\text{Re}/^{188}\text{Re}$ ، رآکتور تحقیقاتی تهران

Investigation of production of main products and impurities in irradiation process of natural rhenium in Tehran reactor and comparison with simulation method by MCNPX

H. Ranjbar^{*1}, Z. Pourhabib², E. Boustani³

1. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

2. Department of Physics, Payame Noor University, P.O. Box: 19395-4697, Tehran-Iran

3. Reactor and Nuclear Safety Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, P.O.Box: 14155-1339, Tehran - Iran

Research Article

Received 14.9.2020, Accepted 18.10.2020

Abstract

Considering the radioactivity of radiopharmaceuticals compounds, there are strict rules and regulations regarding their quality control aspects. One of the essential parameters in quality control is to determine the type and amount of radiopharmaceuticals impurities in order to ensure the prescribing of the correct dose. Impurity values are usually small, but these small amounts are also important and should be measured with high accuracy. The purpose of this study is to evaluate the simultaneous production of ^{186}Re and ^{188}Re with one target material and to investigate the production of probable impurities. To achieve the goal of this research, the work was carried out in two phases. In phase 1, a model based on the MCNPX code is designed to simulate target irradiation. In phase 2, the experimental assessment will be carried out using natural rhenium irradiation in Tehran research reactor. Both simulation and practical results showed that ^{186}Re and ^{188}Re can be produced with appropriate and nearly equal activities, simultaneously. Also, the amount of impurities is negligible compared to the main products. Our findings indicated that experimental data are in good agreement with simulation data (bias error less than 5%) and as a result, the simulation method is the powerful and useful technique to investigate different aspects of radioisotope production in reactor.

Keywords: Impurity, Radiopharmaceutical, $^{186}\text{Re}/^{188}\text{Re}$ cocktail, Tehran research reactor

*Email: hranjbar@aeoi.org.ir

۱. مقدمه

^{188}Re بسیار ناچیز خواهد بود و مخلوط فقط حاوی ^{186}Re خواهد بود [۸، ۷] که این موضوع برای تولید رادیوداروی ترکیبی مناسب نیست. برای تولید رادیوداروی ترکیبی با کوکتل $^{186}\text{Re}/^{188}\text{Re}$ لازم است تا بعد از فرایند نشان‌دارسازی، ^{186}Re و ^{188}Re با مقدار اکتیویته کافی و به مقدار تقریباً برابر، به طور هم‌زمان و بدون ناخالصی تولید شوند [۹]. همان‌طور که در شکل ۱ دیده می‌شود، رنیم طبیعی دارای دو ایزوتوپ پایدار رنیم-۱۸۵ و رنیم-۱۸۷ است (رنگ مشکی) و می‌توان با پرتودهی آن در رآکتور، به طور هم‌زمان به رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸ دست یافت. با این کار نیاز به رنیم غنی‌شده نیست و هم‌چنین به انجام فرایندهای جداگانه پرتودهی و رادیوشیمیایی برای تولید جداگانه هر یک از رنیم‌های ۱۸۶ و ۱۸۸ نیاز نخواهد بود. چنان‌چه از رنیم طبیعی برای پرتودهی در رآکتور استفاده شود، علاوه بر تولید هسته‌های پرتوزای اصلی (رنیم ۱۸۶ و ۱۸۸)، احتمال تولید هسته‌های پرتوزای دیگر (ناخالصی) نیز وجود خواهد داشت، زیرا در نتیجه‌ی جذب یک نوترون توسط رنیم-۱۸۵ موجود در رنیم طبیعی، رنیم-۱۸۶ تولید می‌شود. رنیم-۱۸۶ تولیدی، در اثر واپاشی بتا (92.53%) تولید اسمیوم-۱۸۶ و در اثر گیراندازی الکترونی (7.47%) تولید تنگستن-۱۸۶ (پایدار) می‌کند. لذا اسمیوم-۱۸۶ نمونه‌ای از ناخالصی‌های احتمالی را تشکیل می‌دهد. جذب یک نوترون توسط رنیم-۱۸۶، باعث تولید رنیم-۱۸۷ شده و رنیم-۱۸۷ تولید شده با جذب یک نوترون، رنیم-۱۸۸ می‌کند که با واپاشی بتای منفی باعث ایجاد ناخالصی دیگر یعنی اسمیوم-۱۸۷ می‌شود. جذب یک نوتون توسط رنیم-۱۸۸ باعث ایجاد رنیم-۱۸۹ می‌شود. علاوه بر این، رنیم-۱۸۸ هم به نوبه‌ی خود با واپاشی بتا اسمیوم-۱۸۸ تولید می‌کند که محصول جانبی بعدی است. به این ترتیب زنجیره تولید هسته‌های پرتوزای رنیم همراه با محصولات جانبی ادامه می‌یابد.

Os 185 94 d	Os 186 2.0 · 10 ¹⁵ a	Os 187 1.6	Os 188 13.3	Os 189 6 h	Os 190 9.9 m	Os 191 13.10 h
Re 184 169 d	Re 185 37.40	Re 186 2 · 10 ¹⁵ a	Re 187 62.60	Re 188 18.6 m	Re 189 24.3 h	Re 190 3.0 h
W 183 5.3 s	W 184 30.67	W 185 1.67 m	W 186 75.1 d	W 187 23.72 h	W 188 69 d	W 189 11 m

شکل ۱. ایزوتوپ‌های رنیم و ناخالصی‌های احتمالی و مشخصات واپاشی آن‌ها.

پرتودرمانی هدفمند معمولاً با تک- هسته پرتوزا گسیلنده بتا انجام می‌شود. همان‌طور که تحقیقات پیشین نشان می‌دهند، پرتودرمانی مبتنی بر تک- هسته پرتوزا برای آزمایشات بالینی مربوط به بعضی بیماری‌ها مانند تومورهای گسترده‌شده در بدن (متاستازها) بهره‌برایی ندارد، زیرا تا حدود قابل توجهی، اثر درمانی رادیوداروهای گسیلنده بتا به برد و میزان نفوذ ذرات بتای آن بستگی دارد [۱]. تأثیر درمانی چشمگیر در بیماری‌هایی که تومورهای با اندازه و ابعاد مختلف دارند، تنها برای بازه معینی از اندازه تومور به دست می‌آید [۲، ۳]. مثلاً در درمان تومورهای کوچک، چنان‌چه انرژی ذرات بتا زیاد باشد، به عبارت دیگر برد ذرات بتا بلند باشد، اثر درمانی کاهش خواهد یافت، زیرا به جای این‌که انتقال انرژی ذرات بتا به تومور، قسمت عمده از انرژی در بافت‌های مجاور تومور آزاد می‌شود. به‌طور مشابه برای تومورهای بزرگ، اگر هسته پرتوزا مورد استفاده دارای انرژی کم باشد، به دلیل برد کوتاه ذرات بتا، تمام حجم تومور تحت پرتودهی و تابش قرار نخواهد گرفت و اثر درمان کاهش خواهد یافت.

با توجه به پژوهش علوی و همکاران [۴]، افزایش اثر درمان چنان‌چه از رادیودارویی با ترکیب دو هسته پرتوزا با انرژی‌های زیاد و کم استفاده شود دور از انتظار نخواهد بود. هسته پرتوزا ^{186}Re و ^{188}Re که هر کدام به صورت تک مورد استفاده قرار گرفته‌اند، گزینه‌های مناسبی برای این منظور هستند.

^{188}Re یک گسیلنده‌ی بتا با انرژی بالا ($E_{\max}\beta = 2120 \text{ keV}$) با برد حدود ۱۰ میلی‌متر در بافت و نیمه‌عمر ۱۷ ساعت است. این ویژگی‌ها باعث می‌شود که این هسته پرتوزا به طور بالقوه برای درمان توده‌های بزرگ تومور مفید باشد. ^{186}Re دارای نیمه‌عمر بیش‌تر از ۹۰ ساعت و انرژی بتای کم‌تر ($E_{\max}\beta = 1170 \text{ keV}$) با برد حدود ۴٫۵ میلی‌متر در بافت است که برای استفاده در درمان تومورهای کوچک‌تر مناسب است. این ویژگی‌های مکمل می‌توانند برای تولید رادیوداروی ترکیبی با بازدهی درمان بالاتر برای بیماران که متاستاز و تومورهای با سایزهای مختلف دارند، مورد استفاده قرار گیرد [۵، ۶].

تحقیقات دیگران نشان می‌دهد که اصولاً در تولید رنیم رادیواکتیو از ایزوتوپ‌های غنی‌شده استفاده می‌کنند. البته در بعضی از کارهای دیگر از رنیم طبیعی استفاده شده است، ولی مدت زمان خنک‌سازی ۴ روز برای تولید مخلوط ^{188}Re و ^{186}Re در نظر گرفته شده است، که با توجه به نیمه‌عمر ۱۷ ساعت ^{188}Re و مدت زمان خنک‌سازی ۴ روز، مقدار اکتیویته

جعبه‌های پرتودهی روی یک صفحه مشبک با آرایه 6×9 قرار گرفته است [۱۰]. شکل ۲ پیکربندی قلب شماره ۷۶ رآکتور را از نمای بالا نشان می‌دهد [۱۱]. در شکل بالا، CFE^2 ، SFE^1 ، RR^3 ، IR^4 و GR^5 برای مجموعه سوخت استاندارد، مجموعه سوخت کنترلی، میله ایمنی تنظیمی، محل پرتودهی و گرافیت است.

۲.۲ شبیه‌سازی

شبیه‌سازی با استفاده از کد محاسباتی MCNPX 2.6.0 [۱۲] به عنوان یک کد پر قدرت چند منظوره انرژی پیوسته و وابسته به زمان مبتنی بر روش مونت کارلو انجام گرفت. محاسبات اکتیویته برای محصولات با استفاده از کارت KCODE و Burn در این کد انجام شد. این کد هسته‌ای از کتابخانه ENDF-VI برای سطح مقطع نوترونی ایزوتوپ‌های در دسترس استفاده می‌کند. ماده هدف برای پرتودهی، رنیم طبیعی با عدد اتمی ۷۵ و جرم ۱ میلی‌گرم انتخاب شد که به مدت ۴ روز پرتودهی و به مدت یک روز خنک‌سازی شد. نمونه در موقعیت D۶ قلب رآکتور که با توان ۵ مگاوات کار می‌کند قرار داده شد. ویژگی‌ها و مشخصات رآکتور تهران که شبیه‌سازی از روی آن انجام گرفته در جدول ۱ آورده شده است.

9	IR BOX	GR	GR	GR	IR BOX	GR
8	SFE	RR	SFE	SFE	SFE	SFE
7	SFE	SFE	SFE	SFE	CFE	SFE
6	SFE	CFE	SFE	IR BOX	SFE	SFE
5	SFE	SFE	SFE	SFE	CFE	SFE
4	SFE	SFE	CFE	SFE	SFE	SFE
3	IR BOX	SFE	SFE	SFE	SFE	IR BOX
2	GR	IR BOX	IR BOX	GR	GR	GR
1	GR	GR	GR	IR BOX	GR	GR
	A	B	C	D	E	F

شکل ۲. پیکربندی قلب رآکتور تحقیقاتی تهران.

1. Standard Fuel Element (SFE)
2. Control Fuel Element (CFE)
3. Regulating Rod (RR)
4. Irradiation Rod (IR)
5. Graphite (GR)

علاوه بر جذب نوترون توسط زنجیره‌ی اصلی رنیم، مسلماً این فرایند در محصولات جانبی هم رخ می‌دهد و بر میزان محصولات اصلی و جانبی یا ناخالصی‌ها می‌افزاید. مثلاً جذب نوترون توسط تنگستن-۱۸۶ ایجاد شده، تولید تنگستن-۱۸۷ می‌کند که با واپاشی بتا تولید رنیم-۱۸۷ می‌کند و با جذب نوترون منجر به تولید تنگستن-۱۸۸ می‌شود و این روند ادامه می‌یابد.

مشخص کردن و به‌دست آوردن نوع و مقدار اکتیویته ناخالصی در رادیوداروهای جدید، هرچند مقادیر آن‌ها کم باشد، الزامی است. این کار به‌وسیله طیف‌نگاری گاما که یکی از دقیق‌ترین روش‌های مفید در آنالیز کمی و کیفی است مورد بررسی و سنجش قرار می‌گیرد. با این وجود، به دلیل مقدار زیاد اکتیویته محصولات اصلی، بعضی از مواقع قله فوتونی حاصل از ناخالصی‌ها در طیف حاصل از طیف‌نگاری نمونه رادیودارو دیده نمی‌شود (هرچند که ممکن است ناخالصی در آن وجود داشته باشد). در چنین مواقع روش شبیه‌سازی تولید هسته پرتوزا می‌تواند این مشکل را برطرف کند.

لذا هدف از این تحقیق بررسی تولید محصولات اصلی و ناخالصی‌های تولیدشده در فرایند پرتودهی رنیم طبیعی در رآکتور تحقیقاتی تهران و مقایسه آن با روش شبیه‌سازی است. به این منظور در این پژوهش کار در دو مرحله انجام می‌شود. در فاز اول با شبیه‌سازی رآکتور تهران و ماده مورد پرتودهی، تولید هم‌زمان رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸ و تولید ناخالصی‌های احتمالی از پرتودهی رنیم طبیعی مورد بررسی قرار می‌گیرد و در فاز دوم به صورت تجربی، نمونه در رآکتور پرتودهی شده و نتایج عملی با داده‌های شبیه‌سازی مقایسه و راستی‌آزمایی می‌شود تا ناخالصی‌هایی که در عمل و در طیف گاما دیده نمی‌شوند، با شبیه‌سازی مشخص شده و مورد بررسی قرار گیرند.

۲. مواد و روش

۱.۲ توصیف رآکتور تهران

رآکتور تحقیقاتی تهران یک رآکتور ۵ مگاواتی است در رده رآکتورهای با قدرت متوسط، یک رآکتور از نوع استخری باز و با سوخت صفحه‌ای از نوع اکسید اورانیوم با غنای ۲۰ درصد است. از این رآکتور برای تولید رادیوایزوتوپ‌ها، تحقیقات و تست مواد، آموزش، مطالعات پراکندگی نوترون، پرتونگاری نوترون و فعال‌سازی نوترونی استفاده می‌شود. آب سبک به عنوان کندکننده، خنک‌کننده و بازتابنده و گرافیت نیز به عنوان بازتابنده قلب رآکتور است. سوخت رآکتور شامل مجتمع سوخت استاندارد و سوخت کنترلی، به همراه گرافیت‌ها و

K_4 ضریب تصحیح برای از دست رفتن شمارش بر اثر هم‌فرودی تصادفی^۲، K_5 ضریب تصحیح هم‌فرودی می‌باشند.

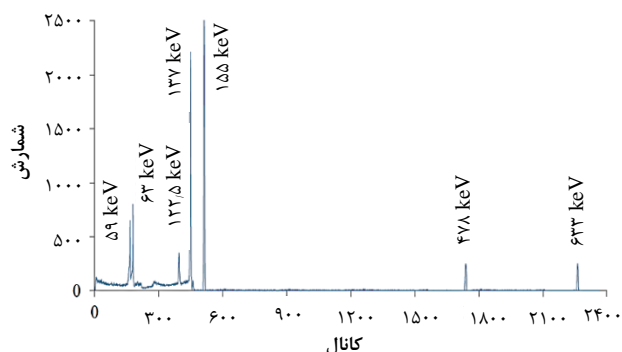
۳. یافته‌ها و بحث

۱.۳ نتایج عملی پرتودهی رنیم طبیعی در رآکتور

پس از پرتودهی پودر رنیم طبیعی در رآکتور و بازگشت نمونه، محصول رادیواکتیو با پراکسید هیدروژن و سپس سالیسین حل شده و برای اندازه‌گیری هسته‌های پرتوزای ^{186}Re و ^{188}Re و نیز بررسی وجود یا عدم وجود ناخالصی احتمالی قابل رؤیت توسط طیف‌سنجی گاما مورد شمارش و آنالیز قرار گرفت. شکل ۳ طیف گاما مربوط به نمونه مورد نظر را نشان می‌دهد.

طیف گاما در شکل ۳، تعداد ۷ قله فوتونی را به‌وضوح نشان می‌دهد. قله‌های فوتونی مربوط به انرژی به‌ترتیب ۵۹، ۶۳، ۱۲۲/۵، ۱۳۷، ۱۵۵، ۴۷۸، ۶۳۳ کیلو الکترون ولت هستند. همان‌طور که شکل ۳ نشان می‌دهد، چهار قله‌ی اول (۵۹، ۶۳، ۱۲۲/۵ و ۱۳۷ کیلو الکترون ولت) متعلق به ^{186}Re است. لازم به ذکر است که قله دوم (۶۳ کیلو الکترون ولت) ناشی از گامای ^{186}Re و ^{188}Re با هم است. سه قله باقی‌مانده (۱۵۵، ۴۷۸ و ۶۳۳ کیلو الکترون ولت) ناشی از گامای ^{188}Re ایجاد شده‌اند. همان‌طور که پیش‌بینی می‌شد، چنان‌چه ناخالصی هم وجود داشته باشد (به میزان کم)، به دلیل اکتیویته زیاد دو محصول اصلی، در شکل طیف مشاهده نمی‌شود. بنابراین با روش شبیه‌سازی می‌توان از وجود یا عدم وجود ناخالصی‌ها اطمینان حاصل کرد.

با توجه به معادله ۱ و شمارش نمونه، میزان غلظت هسته‌های پرتوزای اصلی (رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸) محاسبه شد که در جدول ۲ آورده شده‌اند. همان‌طور که در جدول نشان داده شده، هر دو محصول به‌طور هم‌زمان تولید می‌شوند و اکتیویته آن‌ها تقریباً برابر است.



شکل ۳. طیف گاما مربوط به هدف رنیم پرتودهی شده در رآکتور با استفاده از آشکارساز HPGe.

جدول ۱. مشخصات و ویژگی‌های بنیادی رآکتور تحقیقاتی تهران

مؤلفه	توضیح
توان رآکتور	۵ MW
جنس سوخت	^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , MTR-type, Al clad
چگالی سوخت	2.9617 gr/cm^3
کندکننده و خنک‌کننده/بازتابنده	آب سبک / گرافیت
ابعاد قلب	$40.5 \times 78.54 \times 89.7 \text{ cm}$
شبكة (Grid plate)	$6 \times 9 \text{ array, pitch } 7.71 \times 8.1 \text{ cm}$
تعداد صفحات در سوخت	۱۹ for SFE, ۱۴ for CFE
ضخامت غلاف و گوشت	$0.07, 0.04 \text{ cm}$
پهنای کانال آب	0.27 cm
اورانیم در صفحه سوخت	۷۶ gr
میانگین شار نوترون حرارتی	$3.1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$

۳.۲ تجربی

در فاز دوم پژوهش، برای تولید رنیم-۱۸۶ و ۱۸۸، از پودر رنیم طبیعی استفاده شد. رنیم طبیعی از شرکت Merck با خلوص بالا (۹۹/۹۹٪) تهیه شد. ۱ میلی‌گرم رنیم طبیعی در کپسول کوارتز و سپس در قوطی آلومینیمی مهر و موم شده و برای پرتودهی در موقعیت D_6 قلب رآکتور ارسال گردید. برای دست‌یابی به اکتیویته‌های تقریباً برابر ^{186}Re و ^{188}Re ، نمونه در رآکتور تحقیقاتی تهران به مدت ۴ روز در شار نوترونی $3 \times 10^{13} \text{ n/(cm}^2 \text{ s)}$ پرتودهی شد. رنیم-۱۸۶ و ۱۸۸ طی واکنش‌های هسته‌ای $^{186}\text{Re}(n,\gamma)^{187}\text{Re}$ و $^{188}\text{Re}(n,\gamma)^{189}\text{Re}$ تولید شدند. پس از آن ۲۴ ساعت صرف خنک‌سازی نمونه شد. هم‌چنین بررسی خلوص رادیونوکلیدی برای ارزیابی هسته‌های پرتوزای اصلی و حضور ناخالصی‌های احتمالی با استفاده از طیف‌سنجی گاما با یک آشکارساز ژرمانیم با خلوص بالا (HPGe) ساخت شرکت ORTEC با بازده نسبی ۴۰٪ به‌همراه یک تحلیل‌گر چندکاناله مدل GC1020-7500SL ساخت شرکت ایتالیایی Selina، انجام شد. اکتیویته عناصر پرتوزا با استفاده از آشکارساز HPGe از معادله زیر محاسبه می‌شود [۱۳]:

$$A = \frac{cps}{\epsilon \cdot \gamma \cdot m \cdot K_1 \cdot K_2 \cdot K_3 \cdot K_4 \cdot K_5} \quad (1)$$

که در آن cps آهنگ شمارش، ϵ بازده آشکارساز در انرژی معین، γ احتمال گسیل گاما، m وزن نمونه مورد نظر، K_1 ضریب تصحیح برای واپاشی هسته پرتوزا از انتهای زمان پرتودهی تا ابتدای شمارش، K_2 ضریب تصحیح برای واپاشی هسته پرتوزا در حین شمارش، K_3 ضریب تصحیح خودجذب،

میزان غلظت اکتیویته محصولات اصلی و ناخالصی‌های تولید شده در طول ۴ روز پرتودهی و سپس ۱ روز خاموشی برای خنک‌سازی و فرایند رادیوشیمیایی، در جدول ۳ نشان داده شده است. خطای نسبی محاسبات در شبیه‌سازی‌ها کمتر از ۵ درصد به دست آمده است.

۳.۳ بحث و مقایسه نتایج تجربی و شبیه‌سازی

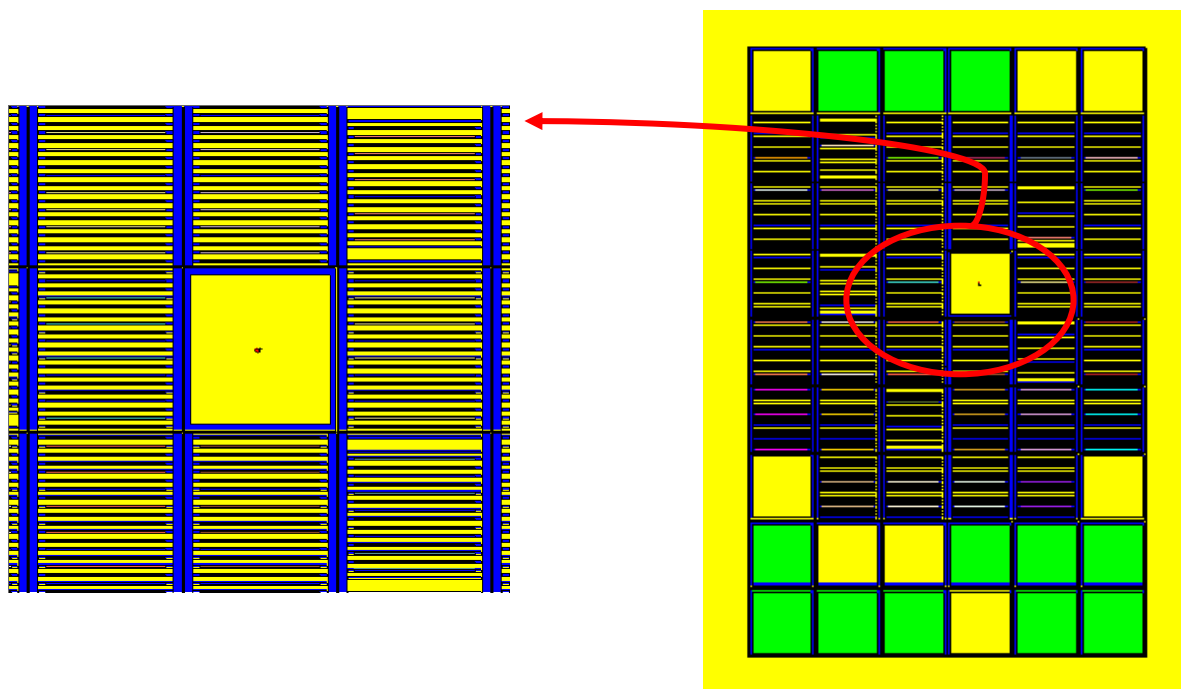
جدول ۴ مقایسه غلظت اکتیویته هسته‌های پرتوزای اصلی حاصل از روش شبیه‌سازی و تجربی را نشان می‌دهد. نتایج، بیان‌گر این است که تطابق خوبی بین دو روش وجود دارد و می‌توان نتیجه گرفت که نتایج شبیه‌سازی در مورد نوع و مقدار ناخالصی‌های تولیدی حین پرتودهی یک هدف در رآکتور که در طیف تجربی قابل مشاهده نیستند، قابل اعتماد است و با توجه به این نتایج، امکان بررسی‌های مقتضی درباره ناخالصی‌ها و محصولات اصلی وجود خواهد داشت.

جدول ۲. غلظت هسته‌های پرتوزای رنیم-۱۸۶ و رنیم-۱۸۸ در نمونه پرتودهی شده

رنیم-۱۸۸	رنیم-۱۸۶	محصولات اصلی
$5.62 \times 10^1 \pm 0.3 \times 10^1$	$5.97 \times 10^1 \pm 0.27 \times 10^1$	غلظت اکتیویته (میلی کوری/ میلی گرم)

۲.۲ نتایج شبیه‌سازی پرتودهی رنیم در رآکتور

ارزیابی میزان اکتیویته‌ی دیگر هسته‌های پرتوزای تولید شده در فرایند پرتودهی برای بررسی خلوص هسته‌های پرتوزای محصولات اصلی حایز اهمیت است. چرا که هسته‌های پرتوزای فرعی یا ناخالصی‌های تولید شده در صورت داشتن اکتیویته‌ی قابل ملاحظه باعث ایجاد دز غیرضروری به بدن بیمار می‌شوند. از آنجایی که برخی از ناخالصی‌های با میزان تولید کم و یا نیمه‌عمر زیاد را نمی‌توان در روش تجربی در طیف مشاهده و اندازه‌گیری کرد، استفاده از روش‌های شبیه‌سازی امکان محاسبات مربوط به اکتیویته‌ی همه محصولات را به‌سهولت امکان‌پذیر می‌سازد (شکل ۴).



شکل ۴. مدل شبیه‌سازی شده هدف در رآکتور.

جدول ۳. غلظت هسته‌های پرتوزای محاسبه شده در پایان پرتودهی و پایان فرایند خنک‌سازی با کد MCNPX

فعالیت (mCi/mg)		رادیونوکلید تولیدی
پایان فرایند (EOP)	پایان پرتودهی (EOI)	
$5.70E+01$	$6.65E+01$	^{186}Re
$5.44E+01$	$1.24E+02$	^{188}Re
$1.39E-08$	$1.39E-08$	^{187}Re
$4.22E-04$	$8.34E-04$	^{189}Re
$1.85E-16$	$1.40E-16$	^{186}Os
$5.85E-03$	$1.17E-04$	^{187}W
$5.99E-06$	$6.02E-06$	^{188}W

جدول ۴. مقایسه نتایج تجربی و شبیه‌سازی

نمونه	محل پرتودهی	اکتیویته ویژه رنیم-۱۸۶		اکتیویته ویژه رنیم-۱۸۸	
		(میلی کوری/ میلی گرم)	خطای نسبی	(میلی کوری/ میلی گرم)	خطای نسبی
رنیم طبیعی	D۶	شبه‌سازی	$۵,۷۰ \times ۱۰^۱$	شبه‌سازی	$۵,۴۴ \times ۱۰^۱$
		تجربی	$۵,۹۷ \times ۱۰^۱$	تجربی	$۵,۶۲ \times ۱۰^۱$
			٪۴,۵		٪۳,۲

همان‌گونه که در بالا ذکر شد، تولید تنگستن-۱۸۷ بسیار کم است، که متعاقباً باعث تولید مقدار کمی از تنگستن-۱۸۸ و البته اکتیویته‌ی تولیدی ناشی از این رادیونوکلید نیز بسیار پایین باشد.

علت اکتیویته‌ی کم رادیونوکلید رنیم-۱۸۹، سطح مقطع بسیار پایین تبدیل رنیم-۱۸۸ به رنیم-۱۸۹ است. نیمه‌عمر پایین رنیم-۱۸۹، سبب واپاشی سریع‌تر این رادیونوکلید و به دنبال آن، کم‌بودن اکتیویته‌ی این رادیونوکلید در نمونه است. هم‌چنین علت اکتیویته‌ی بسیار ناچیز رادیونوکلید اسمیوم-۱۸۶، نیمه‌عمر بسیار طولانی آن (۲×۱۰^{۱۵} سال) است.

دو ناخالصی تنگستن-۱۸۷ و رنیم-۱۸۹ نیمه‌عمری نزدیک به محصولات اصلی دارند. این موضوع باعث می‌شود اکتیویته‌ی بیش‌تری در مقایسه با سایر ناخالصی‌ها تولید کنند. با این حال، همان‌طور که جدول ۴ نشان می‌دهد، اکتیویته‌های تنگستن-۱۸۷ و رنیم-۱۸۹ نسبت به محصولات اصلی مورد نظر، بسیار کم بوده و قابل اغماض هستند. بنابراین، آن‌ها تأثیر زیادی بر دز دریافتی به بیمار نخواهد داشت.

مقایسه غلظت هسته‌های پرتوزای اصلی که از روش شبیه‌سازی و تجربی به‌دست آمدند، تطابق خوبی با یک‌دیگر دارند. بر این اساس می‌توان نتیجه گرفت که می‌توان به نوع و مقدار ناخالصی‌های تولیدی حین پرتودهی یک هدف در رآکتور با این‌که در طیف تجربی دیده نمی‌شوند، اعتماد کرد و بررسی‌های مقتضی در مورد آن‌ها را انجام داد.

۴. نتیجه‌گیری

رادیوداروهای گسیلنده‌ی ذرات بتای پرنرژی مانند ^{188}Re برای تومورهای بزرگ‌تر و رادیوداروهای گسیلنده‌ی ذرات بتاهای کم‌انرژی نظیر ^{186}Re برای تومورهای کوچک بازدهی بهتری دارند، چرا که اگر تومور کوچک و انرژی بتا زیاد باشد، ذرات بتا بیش‌تر انرژی خود را بیرون تومور انباشت می‌کنند. علاوه بر این، هر چه نیمه‌عمر رادیودارو کوتاه‌تر باشد، انباشت انرژی در ناحیه‌ی تومور ناگهانی‌تر و بیش‌تر است. چنان‌چه نیمه‌عمر بلند باشد، اگرچه ممکن است انباشت انرژی به‌صورت یک‌باره نباشد، ولی این انباشت در مدت زمان طولانی‌تر صورت می‌گیرد و

منابع خطا و عدم قطعیت در میزان اکتیویته اندازه‌گیری شده بسیار گسترده و متنوع است که می‌توان به عدم قطعیت‌ها در اندازه‌گیری جرم نمونه هدف پرتودهی، میزان شار نوترونی، زمان پرتودهی، زمان خنک‌سازی و شمارش با آشکارساز اشاره کرد. این منابع خطا می‌توانند نتایج اندازه‌گیری را افزایش و یا کاهش داده باشند، ولی در این تحقیق اثر نهایی خطاها سبب اختلاف زیاد نتایج تجربی با شبیه‌سازی نشده است، اما به دلیل تنوع در منابع عدم قطعیت، تفاوت‌های بسیار بیش‌تر بین نتایج در تحقیقات مشابه محتمل خواهد بود.

نتایج جدول ۳ نشان می‌دهند که در مدت زمان پرتودهی، رنیم-۱۸۸ دارای اکتیویته‌ی بیش‌تری است. به این دلیل که علاوه بر تولید رنیم-۱۸۸ از رنیم-۱۸۷ موجود در رنیم طبیعی، تولید رنیم-۱۸۸ از طریق زنجیره‌ی تولیدی شروع شده از رنیم-۱۸۵، تولید رنیم-۱۸۶ و متعاقباً تولید رنیم-۱۸۷ و ۱۸۸ صورت می‌پذیرد، بنابراین میزان این رادیونوکلید در حال افزایش است. هم‌چنین، واپاشی بتای منفی تنگستن-۱۸۷ و ۱۸۸ هم در این روند افزایشی، تأثیرگذار است. علاوه بر این، با توجه به این‌که نیمه‌عمر رنیم-۱۸۸ کم‌تر از رنیم-۱۸۶ است، در زمان پرتودهی میزان اکتیویته‌ی بالاتری نسبت به رنیم-۱۸۶ دارد. پس از اتمام مدت زمان پرتودهی هدف، خنک‌سازی فرایندهای رادیوشیمیایی به مدت ۲۴ ساعت انجام شد. همان‌طور که انتظار می‌رود طی این زمان، اکتیویته‌ی محصولات کاهش می‌یابد.

یکی از عوامل کم‌بودن میزان اکتیویته‌ی تنگستن-۱۸۷، تولید کم این رادیونوکلید از رنیم-۱۸۶ می‌باشد (تنها ۷,۴۷٪ از واپاشی رنیم-۱۸۶ به‌علت به‌دام‌اندازی الکترون توسط این رادیونوکلید منجر به تولید تنگستن-۱۸۶ و در پی آن تنگستن-۱۸۷ می‌شود). هم‌چنین نیمه‌عمر کوتاه این رادیونوکلید عامل دیگری است که باعث واپاشی سریع آن به رنیم-۱۸۷ می‌شود. عامل دیگر، کم‌بودن میزان اکتیویته‌ی تنگستن-۱۸۷، سطح مقطع بالای تبدیل تنگستن-۱۸۷ به تنگستن-۱۸۸ است که منجر به تبدیل میزان زیادی از این رادیونوکلید تولید شده به تنگستن-۱۸۸ می‌شود.

مراجع

1. E. Seregn, et al., *Treatment with tandem [⁹⁰Y] DOTA-TATE and [¹⁷⁷Lu] DOTA-TATE of neuroendocrine tumours refractory to conventional therapy.* *Eur J Nucl Med Mol Imaging*, **41**(2), 223 (2014).
 2. J. Kunikowska, et al, *Clinical results of radionuclide therapy of neuroendocrine tumours with ⁹⁰Y-Dotatate and tandem ⁹⁰Y/¹⁷⁷Lu-Dotatate: which is a better therapy option?.* *Eur J Nucl Med Mol Imaging*, **38**(10), 1788-1797 (2011).
 3. H. Ranjbar, et al, *Dosimetric evaluation of ¹⁵³Sm-EDTMP, ¹⁷⁷Lu-EDTMP and ¹⁶⁶Ho-EDTMP for systemic radiation therapy: Influence of type and energy of radiation and half-life of radionuclides.* *Radiat Phys Chem*. **108**, 60-64 (2015).
 4. M. Alavi, et al, *¹⁷⁷Lu/¹⁵³Sm-Ethylenediamine Tetramethylene Phosphonic Acid Cocktail: A Novel Palliative Treatment for Patients with Bone Metastases.* *Cancer biotherapy & radiopharmaceuticals*. **34**(5), 280-287 (2019).
 5. H. Ranjbar, et al, *Determination of human absorbed dose of cocktail of ¹⁵³Sm/¹⁷⁷Lu-EDTMP, based on biodistribution data in rats.* *J. Radioanal Nucl Chem*. **307**(2), 1439-1444 (2016).
 6. P. Unak, B. Cetinkaya, I. Unak, *Absorbed dose estimates at the cellular level for ¹⁸⁶Re and ¹⁸⁸Re.* *Radiat Phys Chem*. **73**(3), 137-146 (2005).
 7. K. Kothari, et al, *Preparation, stability studies and pharmacological behavior of [¹⁸⁶Re] Re-HEDP, Applied radiation and isotopes*, **51**(1), 51-58 (1999).
 8. D. Bagatti, et al., *Analytical and radioanalytical quality control of purity and stability of radiopharmaceutical compound [^{186g}Re] Re-HEDP for bone metastases pain palliation.* *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **263**(2), 515-520 (2005).
 9. H. Ranjbar, et al, *Development of ¹⁵³Sm/¹⁷⁷Lu-EDTMP as a possible therapeutic complex.* *Iran J Nucl Med*. **25**(1), 11-16 (2017).
 10. E. Boustani, R. Shahhosseini, M. Hassanzadeh, *The use of new irradiation instrument in a pool type research reactor,* *Progress in Nuclear Energy*, **113**, 45-52 (2019).
 11. E. Boustani, H. Ranjbar, A. Rahimian, *Developing a new target design for producing ⁹⁹Mo in a MTR reactor.* *Applied Radiation and Isotopes*, **147**, 121-128 (2019).
 12. D.B. Pelowitz, *MCNPXTM user's manual.* Los Alamos National Laboratory, Los Alamos. (2005).
 13. Gilmore, Gordon, *Practical gamma-ray spectroscopy.* John Wiley & Sons, (2011).
- اجازه‌ی تکثیر مجدد به سلول‌های سرطانی را نخواهد داد، بنابراین جهت افزایش بازدهی، هم از لحاظ پوشش‌دادن تومورهای با اندازه‌های مختلف، و هم از لحاظ انباشت انرژی به‌صورت یک‌باره و طولانی‌مدت، رادیوداروی ترکیبی تا حدود بسیار زیادی می‌تواند مؤثر و مفید باشد.
- اولین مرحله در تولید رادیودارو، تولید هسته پرتوزا است. محاسبات نظری اکتیویته‌ی تابشی نقش مهمی در امکان‌سنجی تولید هسته‌های پرتوزا دارد، زیرا برخی از ناخالصی‌ها با میزان تولید کم و یا نیمه‌عمر زیاد را نمی‌توان در روش تجربی اندازه‌گیری کرد. استفاده از روش‌های نظری، امکان محاسبات مربوط به اکتیویته‌ی محصول را به‌سهولت امکان‌پذیر می‌سازد. با به‌کاربردن روش‌های نظری و با استفاده از نرم‌افزار محاسباتی، می‌توان اکتیویته را در زمان‌های مختلف پرتودهی و هم‌چنین بعد از اتمام دوره پرتودهی محاسبه کرد. بنابراین با توجه به اهمیت کاربرد هسته‌های پرتوزا به‌ویژه در پزشکی، خلوص آن‌ها می‌تواند پس از اتمام پرتودهی مورد بررسی قرار گیرد.
- نتایج این پژوهش و این‌که رنیم طبیعی دارای دو ایزوتوپ رنیم-۱۸۵ ($37/4\%$) و رنیم-۱۸۷ ($62/6\%$) است، نشان دادند که با پرتودهی مشخص می‌توان از رنیم طبیعی برای تولید هم‌زمان و بدون نیاز به جداسازی رنیم-۱۸۶ و ۱۸۸ استفاده کرد که از نظر اقتصادی نیز مقرون‌به‌صرفه هست.
- نتایج این پژوهش نشان می‌دهد که اکتیویته‌ی ناخالصی‌ها مانند ¹⁸⁷Re ($10^{10} \times 4,33$ سال)، ¹⁸⁸W ($69,8$ روز)، ¹⁸⁶Os (15×2 سال)، ¹⁸⁹Re ($24,3$ ساعت) و ¹⁸⁷W (24 ساعت) در مقایسه با محصولات اصلی یعنی ¹⁸⁶Re (90 ساعت) و ¹⁸⁸Re (17 ساعت) بسیار ناچیز بوده و قابل چشم‌پوشی است. از آن‌جایی‌که نتایج شبیه‌سازی توسط داده‌های تجربی تأیید می‌شود، می‌توان نتیجه گرفت که روش شبیه‌سازی، روشی قدرتمند و مفید برای بررسی جنبه‌های مختلف تولید هسته‌های پرتوزا در رآکتور است.

COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



استناد به این مقاله

حسن رنجبر، زهرا پورحییب، احسان بوستانی (۱۳۹۹)، بررسی تولید محصولات اصلی و ناخالصی‌های تولید شده در فرایند پرتودهی رنیم طبیعی در رآکتور تهران و مقایسه آن با روش شبیه‌سازی با MCNPX. *۹۴، ۱۴۶-۱۵۲*

DOI: 10.24200/nst.2021.1177

Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1177.html

www.SID.ir