

داده‌های هسته‌ای برای تولید رادیونوکلئید برم-۷۷

طیب کاکاوند^۲، محمد میرزایی^{۱*}، زهرا تقویان^۲

۱- سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده‌ی تحقیقات کشاورزی، پزشکی و صنعتی کرج

۲- دانشگاه زنجان

چکیده:

برم-۷۷ یک عضو از خانواده هالوژن‌ها با نیمه‌عمر ۵۶.۴ ساعت یکی از رادیونوکلئیدهایی است که در امر پزشکی مورد استفاده قرار می‌گیرد. با استفاده از کدهای محاسباتی Alice/ash و Talys 1.0، واکنش‌های مختلف منجر به تولید این رادیونوکلئید مورد بررسی قرار می‌گیرند و به منظور اعتبار به این داده‌ها، با داده‌های تجربی مقایسه می‌شوند. همان‌طور که در نمودارهای تابع برانگیختگی دیده می‌شود نتایج حاصل از کدهای محاسباتی با نتایج تجربی توافق خوبی دارند و این نشانه‌ی کارآیی این کدهاست.

کلیدواژه: برم-۷۷، رادیونوکلئید، تابع برانگیختگی، Alice/ash, Talys 1.0

مقدمه: رادیونوکلئید برم-۷۷ (نیمه‌عمر ۵۶.۴ ساعت، ۹۹.۳ درصد الکترون اوژه، ۰.۷ درصد گسیل پزیترون، دارای پرتوهای گامای ۲۳۹keV و ۵۲۰KeV)، به علت داشتن پرتوهای گامایش در سیستم تصویربرداری SPECT مورد استفاده قرار می‌گیرد. همچنین به علت گسیل الکترون‌های اوژه در امر درمان نیز مورد استفاده قرار می‌گیرد [1]. رادیوداروهایی که از برم-۷۷ به وجود می‌آیند به گیرنده‌های دوپامین در مغز متصل می‌شوند، بعضی دیگر از طریق مایع میان‌سلولی درون بافت‌ها توزیع می‌شوند. از ترکیبی از برم به نام Bromine-77-deoxyuridine در درمان رادیویی تومورها استفاده می‌شود [2]. تیروسین، پروتئین‌ها و فیبرونوزن با برم-۷۷ نشاندار می‌شوند [3]. در این تحقیق داده‌های هسته‌ای برای تولید برم-۷۷ بررسی شده و با داده‌های آزمایشگاهی مقایسه شده است.

روش کار:

محاسبه تابع برانگیختگی: نمودار سطح مقطع بر حسب انرژی ذره فرودی که تابع برانگیختگی نامیده می‌شود برای واکنش‌های مختلف با استفاده از کدهای Alice/ash و Talys 1.0 رسم می‌شود و با داده‌های

آزمایشگاهی مقایسه می شود. کد Talys 1.0 سطح مقطع واکنش ها را برای هسته های پایدار و ناپایدار با نیمه-عمر بیشتر از ده دقیقه می دهد. محاسبات برای هسته هایی که حالت های ایزومری دارند نیز با استفاده از کد Talys 1.0 انجام می شود. اما محاسبات پیش تعادلی روی توابع برانگیختگی با استفاده از کد Alice/ash می شوند.

کد Talys 1.0 : یک کد کامپوتری است که واکنش های هسته ای با ذرات فرودی پروتون، دوترون، آلفا، تریتون و هلیوم-۳ در گستره انرژی ۱KeV تا ۲۰۰MeV، برای هسته های با جرم ۱۲ و بیشتر را برای ما شبیه سازی می کند [4].

کد Alice/as: این کد، انرژی و توزیع زاویه ای ذرات گسیل شده در واکنش های هسته ای و سطح مقطع غیرالاستیک را برای این واکنش ها تا انرژی ۳۰۰ MeV به دست می دهد [5].

تابع برانگیختگی تعدادی از واکنش های منجر به تولید برم-۷۷ با استفاده از این کدها رسم شده اند و بازده تولید برای هر کدام از این واکنش ها با استفاده از رابطه ی زیر محاسبه شده است.

$$y = 0.102 * H (1 - \exp(-\lambda t)) \frac{I}{M} \int \frac{\sigma(E)}{S_p(E)} dE \quad (1)$$

H= فراوانی ایزوتوپ، M= عدد جرمی (g)، $\sigma(E)$ = سطح مقطع (mb)، Sp(E)= توان

ایستاندگی (MeV/mg/cm^2)، I= جریان (μA)، t= زمان بمباران (h)

جدول ۱. واکنش های هسته ای منجر به تولید برم-۷۷

Reaction	Energy range (MeV)	⁷⁷ Br yield (mCi/ μAh)	Energy range (MeV)	⁷⁷ Kr yield (mCi/ μAh)	Abundance%
1. ^{nat} Se(p, xn) ⁷⁷ Br	28 to 15	2.2900	-	-	100
2. ⁷⁸ Se(p, 2n) ⁷⁷ Br	27 to 14	9.0437	-	-	23
3. ⁷⁷ Se(p, n) ⁷⁷ Br	14 to 5	2.8580	-	-	7.63
4. ⁷⁶ Se(³ He, 2n) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	18 to 9	0.1631	19 to 8	10.8162	9.36
5. ⁷⁷ Se(³ He, 3n) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	28 to 15	0.4771	29 to 20	15.6813	7.63
6. ^{nat} Se(³ He, xn) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	20 to 11	0.0257	21 to 10	1.4382	100
7. ⁷⁹ Br(d, 4n) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	40 to 29	1.7985	40 to 29	40.3211	50.69
8. ⁸¹ Br(d, 6n) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	67 to 50	1.3881	68 to 53	24.1317	49.31
9. ⁸¹ Br(p, 5n) ⁷⁷ Kr → ⁷⁷ Br	62 to 45	2.8155	61 to 52	25.4970	49.31
10. ⁷⁵ As(α , 2n) ⁷⁷ Br	25 to 16	1.3526	-	-	100

در واکنش های غیرمستقیم تولید برم-۷۷، ابتدا کریپتون-۷۷ تولید می شود، سپس این عنصر که یک نیا هسته ای تولید برم-۷۷ می باشد با واپاشی پزیترون و گیراندازی الکترون به برم-۷۷ تبدیل می شود.

در واکنش های غیرمستقیم تولید برم، در لحظه ای اتمام بمباران هم برم و هم کریپتون تولید می شوند. بازده تولید کریپتون خیلی بیشتر از برم می باشد و آن به این علت است که نیمه عمر کریپتون (۱.۲۳ ساعت) خیلی کوچکتر از نیمه عمر برم می باشد. با در نظر گرفتن بازده تولید برم و کریپتون، از میان واکنش های مستقیم واکنش $^{78}\text{Se}(p, 2n)^{77}\text{Br}$ و از بین واکنش های غیرمستقیم، واکنش $^{79}\text{Br}(d, 4n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$ بیشترین بازده تولید را دارند.

در واکنش های غیرمستقیم، کریپتون-۷۷ هسته ای مادر و برم-۷۷ هسته ای دختر است. ثابت واپاشی هسته ای مادر بیشتر از ثابت واپاشی هسته ای دختر است بنابراین حین واپاشی هسته های دختر و مادر به تعادل نمی رسند. کریپتون-۷۷ به علت داشتن نیمه عمر کوتاه به سرعت واپاشی می کند و به هسته ای دختر یعنی برم-۷۷ تبدیل می شود. در حالیکه هسته های برم-۷۷ به علت داشتن نیمه عمر نسبتاً طولانی ۵۶.۴ ساعت، به کندی واپاشی می کنند.

تعداد هسته های کریپتون بعد از گذشت زمان t عبارت است از: (2)

$N_{Kr} = N_0(Kr) \exp(-\lambda_{Kr}t)$ بعد از گذشت زمانی معادل ۴ تا ۵ برابر نیمه عمر کریپتون تقریباً چیزی از آن باقی نمی ماند و به برم-۷۷ تبدیل می شود. تعداد هسته های برم پس از گذشت زمان t عبارت است از:

$$N_{Br} = N_0(Kr) \frac{\lambda_{Kr}}{\lambda_{Br} - \lambda_{Kr}} (\exp(-\lambda_{Kr}t) - \exp(-\lambda_{Br}t)) \Rightarrow$$

$$N_{Br} = N_0(Kr) \frac{\lambda_{Kr}}{\lambda_{Kr} - \lambda_{Br}} \exp(-\lambda_{Br}t) \quad (3) \quad [6]$$

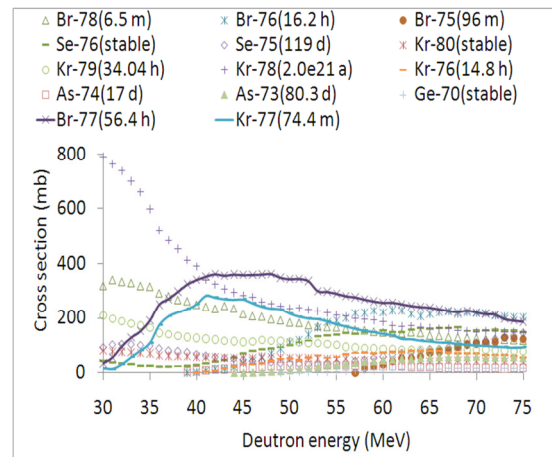
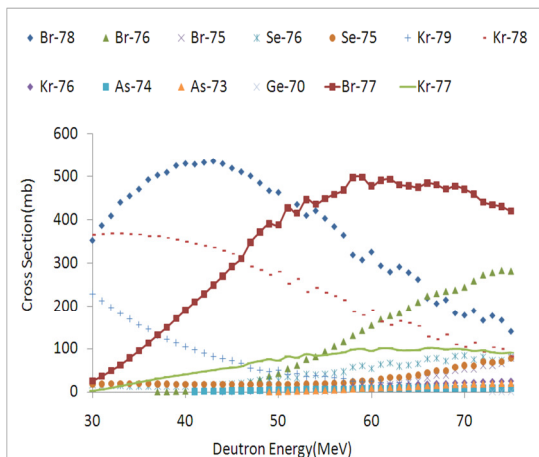
بحث و نتایج:

تابع برانگیختگی واکنش های با بیشترین بازده برای تولید برم-۷۷ با استفاده از کدهای محاسباتی Talys 1.0 و Alice/ash محاسبه شده است. نتایج حاصل از این کدها به همراه داده های آزمایشگاهی در زیر آورده شده است.

تابع برانگیختگی واکنش $^{79}\text{Br}(d, 4n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$:

این واکنش یک واکنش غیرمستقیم تولید برم است. همان طور که در شکل ۱ دیده می شود بهترین بازه انرژی ذره فرودی، برای تولید برم-۷۷ و کریپتون-۷۷، از ۴۰ تا ۲۹ MeV می باشد. در این بازه ناخالصی های سلنیوم-۷۶ (پایدار)، سلنیوم-۷۵ (۱۱۹ روز)، کریپتون-۷۹ (۳۴ ساعت)، کریپتون-۸۰ (پایدار)، برم-۷۸ (۶.۵ دقیقه) و کریپتون-۷۸ که تقریباً پایدار است، می باشند.

ناخالصی های سلنیوم و کریپتون به وسیله ی روش های شیمیایی از محصول قابل جداسازی هستند [8,7]. با انتخاب بازه ی انرژی ۴۰ تا ۲۵ MeV، بقیه ی ناخالصی هایی که در شکل دیده می شوند تولید نخواهند شد. این واکنش در سال ۱۹۷۷ توسط S. M. Qaim و همکارانش انجام شده است [8]. آن ها از روش stacked-foil برای اندازه گیری سطح مقطع استفاده کرده اند. اما داده های تجربی برای این واکنش در exfor (سایت داده های تجربی واکنش های هسته ای [9]) موجود نمی باشد. منحنی داده های ALICE/ASH و TALYS 1.0 با وجود اندکی تفاوت در سطح مقطع برای تولید برم-۷۷ تقریباً شبیه به هم می باشند. ولی نتایج این کدها همان طور که در نمودارهای زیر مشاهده می شود برای تولید کریپتون-۷۷ با هم سازگاری ندارند.



شکل ۲. تابع برانگیختگی واکنش $^{79}\text{Br}(d, 4n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$

با استفاده از کد TALYS 1.0

شکل ۱. تابع برانگیختگی واکنش $^{79}\text{Br}(d, 4n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$

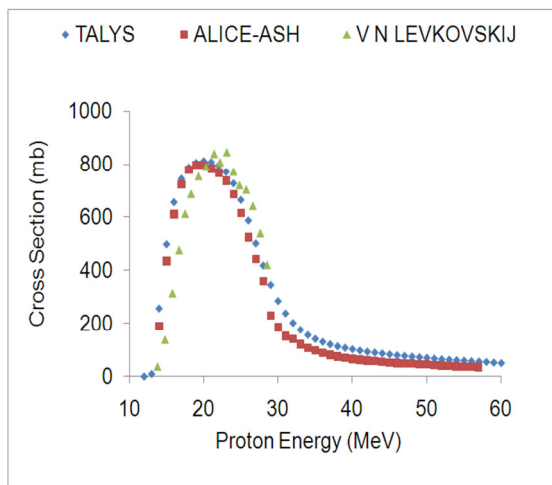
با استفاده از کد Alice/ash

تابع برانگیختگی واکنش $^{78}\text{Se}(p, 2n)^{77}\text{Br}$:

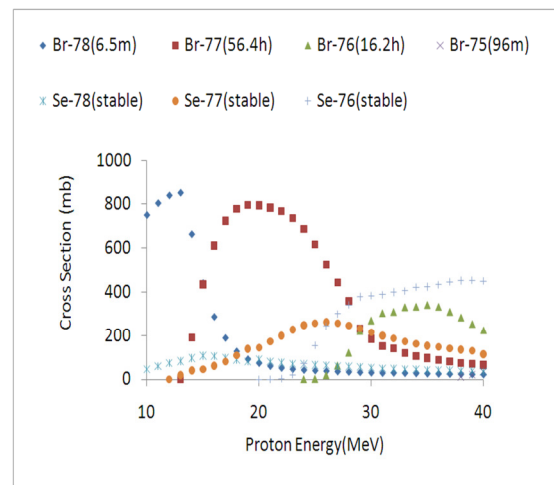
تابع برانگیختگی واکنش $^{78}\text{Se}(p, 2n)^{77}\text{Br}$ با استفاده از کدهای Talys 1.0 و Alice/ash محاسبه شده است. در نمودار ۳، داده‌های کد Alice/ash و در نمودار ۲ داده‌های حاصل از این کدها به همراه داده‌های تجربی آمده است.

همان‌طور که در شکل ۴ دیده می‌شود نتایج Talys 1.0 و Alice/ash مطابقت خوبی با هم دارند و این نتایج با نتایج تجربی سازگاری دارند.

ناخالصی‌های موجود در بازه انرژی ۲۷ تا ۱۴ MeV برای این واکنش، ایزوتوپ‌های آرسنیک و سلنیوم می‌باشند که با روش‌های شیمیایی قابل جداسازی هستند [7].



شکل ۴. تابع برانگیختگی حاصل از کدهای Talys 1.0 و Alice/ash و نتایج تجربی [10]



شکل ۳. تابع برانگیختگی واکنش $^{78}\text{Se}(p, 2n)^{77}\text{Br}$ با استفاده از کد Alice/ash

نتیجه‌گیری:

برم-۷۷ از طریق واکنش‌های مستقیم و غیرمستقیم متعددی می‌تواند تولید شود. داده‌های محاسباتی تولید برم-۷۷

توافق نسبتاً خوبی با داده‌های آزمایشگاهی دارند. با در نظر گرفتن بازده تولید، واکنش $^{78}\text{Se}(p, 2n)^{77}\text{Br}$ برای سیکلوترون‌های انرژی-پایین و واکنش غیرمستقیم $^{79}\text{Br}(d, 4n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$ برای سیکلوترون‌های انرژی-متوسط، واکنش‌های بهینه می‌باشند.

References:

- [1] I. Spahn, G.F. Steyn, C. Vermeulen, et.al, New Cross Section Measurements for the Production of Medically Interesting Radio-nuclides $^{75}, ^{76}, ^{77}, ^{80\text{m}}\text{Br}$, SEVENTH INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR AND RADIOCHEMISTRY, Budapest, Hungary 24-29 August 2008
- [2] A. I. Kassis, et al, Lethality of auger electrons from the decay of Bromine-77 in the DNA of mammalian cells, Radiation research society, vol. 90, pp. 362-373, 1982.
- [3]. Linda C. Knight, Sylvia S. L. Harwig, and Michael J. Welch, In Vitro Stability and in vivo clearance of fibrinogen or Serum Albumin labeled with ^{77}Br , ^{131}I or ^{125}I by direct or indirect synthetic methods, J Nucl Med, 18, 282-288, 1977
- [4] A.J. Koning, S. Hilaire and M.C. Duijvestijn, TALYS-1.0., Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology - ND2007, April 22-27 2007 Nice France, 2008.
- [5] C. H. M. Broeders, A. Yu. Konobeyev, Yu. A. Korovin, V. P. Lunev, M. Blann, ALICE/ASH, 2006.
- [6] کنت کرین، آشنایی با فیزیک هسته‌ای، مرکز نشر دانشگاهی، تهران، صفحات ۲۲۶ و ۲۲۷، ۱۳۷۳.
- [7] G. Blessing, R. Weinreich, S. M. Qaim and G. Stocklin, Production of ^{75}Br and ^{77}Br via the $^{75}\text{As}(^3\text{He}, 3n)^{75}\text{Br}$ and $^{75}\text{As}(\alpha, 2n)^{77}\text{Br}$ reactions using Cu_3As -alloy as a high-current target material, International journal of applied radiation and isotopes, vol. 33, pp. 333-339, 1982.
- [8] S. M. Qaim, G. Stocklin and R. Weinreich, Excitation functions for the formation of neutron deficient isotopes of Bromine and Krypton via high energy deuteron induced reactions on Bromine, International journal of applied radiation and isotopes, vol. 28, pp. 947-953, 1977.
- [9] www.exfor.com