

مقایسه بهره تولید رادیوایزوتوپ مس-61 از طریق واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Cu}(p,x)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ در سیکلوترون‌های بیمارستانی با استفاده از کدهای هسته‌ای TALYS، MCNPX و EMPIRE

مائده حسینی^۱، علیرضا آزادبار^{۲*}

تاریخ دریافت ۱۴۰۱/۰۸/۱۵ تاریخ پذیرش ۱۴۰۲/۰۱/۳۰

چکیده

پیش‌زمینه و هدف: مس-61 (^{61}Cu) رادیوایزوتوپی با نیمه‌عمر ۳/۳۳ ساعت است که با گسیل β^+ (۶۱ درصد) و یا با گیراندازی الکترون (۳۹ درصد) به ایزوتوپ نیکل-61 واپاشی می‌شود. از این رادیوایزوتوپ می‌توان در بررسی خون‌رسانی قلب و تصویربرداری از بافت‌های سرطانی کم اکسیژن با PET استفاده کرد. ^{61}Cu عمدتاً از طریق بمباران هدف‌هایی از جنس روی (Zn)، نیکل (Ni) و کبالت (Co) در سیکلوترون‌های متوسط تولید می‌شود. هدف از این مطالعه، بررسی بهره تولید ^{61}Cu تحت واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Cu}(p,x)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ در سیکلوترون‌های بیمارستانی بود.

مواد و روش کار: در این مطالعه مداخله‌ای، توابع برانگیختگی این واکنش‌ها توسط کدهای TALYS-1/96 و EMPIRE-3-2-2 محاسبه شده و بهترین انرژی با بیشترین سطح مقطع واکنش و کمترین ناخالصی تولیدی، تعیین شد. توان ایستاندگی و ضخامت هدف در انرژی انتخابی توسط کد SRIM-2013 محاسبه شد. بهره تولید ^{61}Cu با انتگرال‌گیری از فرمول بهره تولید در محیط MATLAB به دست آمد و با نتایج حاصل از شبیه‌سازی MCNPX-2/6 و نتایج تجربی مقایسه شد.

یافته‌ها: حداکثر بهره حاصل از کد TALYS برای واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Cu}(p,x)^{61}\text{Zn}$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ به ترتیب در انرژی‌های ۱۴، ۱۴، ۹ و ۹ MeV برابر با ۱۱۳/۲۹، ۵۵/۰۷، ۴۹۸/۵۱ و ۴۶/۵۱ MBq/μAh بود. حداکثر بهره حاصل از کد EMPIRE برای واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ و $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ به ترتیب در انرژی‌های ۱۴ و ۹ MeV برابر با ۱۸۳/۲۴ و ۴۹۷/۲۱ MBq/μAh بود. حداکثر بهره حاصل از کد MCNPX برای واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ و $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ در انرژی‌های ۱۴ و ۹ MeV به ترتیب برابر با ۹۰/۷۳ و ۴۷۰/۲۶ MBq/μAh بود. حداکثر بهره تجربی واکنش‌های $^{61}\text{Cu}(p,\alpha)^{61}\text{Zn}$ و $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ در انرژی‌های ۱۴ و ۹ MeV به ترتیب برابر با ۱۵۵ و ۴۶۱/۳۲ MBq/μAh بود.

بحث و نتیجه‌گیری: از مقایسه نتایج حاصل از شبیه‌سازی و تجربی می‌توان دریافت که این نتایج در واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ در انرژی ۹ MeV توافق خوبی باهم دارند و این واکنش در این انرژی، بهترین واکنش برای تولید ^{61}Cu در سیکلوترون‌های بیمارستانی است.

کلیدواژه‌ها: مس-61، سیکلوترون بیمارستانی، شبیه‌سازی مونت‌کارلو، نیکل، بهره تولید، روی

مجله مطالعات علوم پزشکی، دوره سی و سوم، شماره دوازدهم، ص ۸۳۸-۸۲۳، اسفند ۱۴۰۱

آدرس مکاتبه: لاهیجان، گروه مهندسی هسته‌ای، دانشکده فنی مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد لاهیجان، تلفن: ۰۹۱۱۲۳۶۳۱۵۹

Email: azadbar@liau.ac.ir

مقدمه

انواع سرطان، ایفا می‌کند. در حال حاضر تکنسیم-99m (^{99m}Tc) و فلور-18 (^{18}F) پرکاربردترین رادیوایزوتوپ‌های مورد استفاده به ترتیب در SPECT و PET هستند. علاوه بر این دو رادیوایزوتوپ که می‌توان گفت بهترین رادیوایزوتوپ‌های شناخته شده برای تصویربرداری پزشکی هسته‌ای هستند؛ رادیوایزوتوپ‌های دیگری نیز

امروزه پزشکی هسته‌ای تشخیصی یکی از بازوهای مهم پزشکی به حساب می‌آید که با استفاده از دو ابزار تصویربرداری توموگرافی کامپیوتری گسیل تک فوتون (SPECT) و توموگرافی گسیل پوزیترون (PET)، نقش بسزایی را در تشخیص بیماری‌ها، مخصوصاً

^۱ دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی هسته‌ای- پرتوپزشکی، گروه مهندسی فنی مهندسی، دانشکده فنی مهندسی، واحد لاهیجان، دانشگاه آزاد اسلامی، لاهیجان، ایران

^۲ استادیار مهندسی هسته‌ای- پرتوپزشکی، گروه مهندسی پرتوپزشکی، دانشکده فنی مهندسی، واحد لاهیجان، دانشگاه آزاد اسلامی، لاهیجان، ایران (نویسنده مسئول)

بسته به ویژگی‌های فیزیکی، شیمیایی و پرتویی به صورت اختصاصی برای این سیستم‌های تصویربرداری توسعه پیدا کرده‌اند و در حال حاضر مورد استفاده قرار می‌گیرند. یکی از این رادیوایزوتوپ‌ها، مس-61 (^{61}Cu) است که به واسطه تابش β^+ از رادیوداروهای اختصاصی آن در تصویربرداری PET استفاده می‌شود (۱). ^{61}Cu رادیوایزوتوبی با نیمه عمر فیزیکی ۳/۳۳ ساعت است که در ۶۱ درصد از موارد با گسیل β^+ با انرژی معادل ۱/۲۲ MeV و در ۳۹ درصد از موارد با گیراندازی الکترون به ایزوتوپ پایدار نیکل-61 (^{61}Ni) واپاشی می‌کند. فوتون‌های شاخص تابش شده از آن، گاماها ۲۸۳ KeV (۱۲/۲ درصد)، ۶۵۶ KeV (۱۰/۷۷ درصد)، و تابش نابودی ۵۱۱ KeV (۱۲۰ درصد) هستند. مس دو ظرفیتی به واسطه خاصیت عالی کمپلکس پذیری، به راحتی کمپلکس‌های مسطح چربی دوست فاقد بار الکتریکی ایجاد می‌کند؛ در نتیجه از ^{61}Cu می‌توان در بررسی خون‌رسانی قلب و تصویربرداری از بافت‌های سرطانی کم اکسیژن استفاده کرد. علاوه بر این، این رادیوایزوتوپ به واسطه تابش ذره‌ای (e^+) و همچنین در ترکیب با بعضی از مولکول‌ها مانند مولکول آلی ۸- هیدروکسی کینولین در

کنار خاصیت تصویربرداری، می‌تواند به عنوان یک عامل درمانی در درمان بعضی از بدخیمی‌ها مانند درمان لوکمی، مورد استفاده قرار گیرد. ^{61}Cu به واسطه درصد تابش β^+ بیشتر نسبت به سایر رادیوایزوتوپ‌های مس، تصاویری با وضوح بالاتر به دست می‌دهد، در حالی که دوز تابشی آن در مقایسه با رادیوداروی پرکاربرد ^{18}F قابل قبول است (۱). نیمه عمر نسبتاً طولانی ^{61}Cu در مقایسه با رادیوایزوتوپ رایج ^{18}F (با نیمه عمر ۱۱۰ دقیقه) به تولیدکنندگان اجازه می‌دهد تا جداسازی شیمیایی و نشاندارسازی دارو را بدون از دست دادن حجم زیادی از پرتوایی ^{61}Cu به پایان برسانند؛ علاوه بر این، امکان تصویربرداری از فرآیندهای متابولیک کندتر در بدن را نیز فراهم می‌کند (۲). برخلاف سایر عناصر که تجزیه ترکیب‌های آن‌ها باعث تجمع و سمیت در به افت‌ها می‌شود؛ اتم‌های مسی که از ترکیبات آن جدا شده است، به سرعت از سلول‌های نرموکسیک خارج می‌شوند و سمیتی ایجاد نمی‌کنند (۳). (۴) با قبول اهمیت ^{61}Cu در تصویربرداری PET، مسیر تولید آن باید بهینه شود.

جدول (۱): رادیوایزوتوپ‌های کاربردی Cu گسیلنده β^+

فوتون نابودی (%)	γ (KeV)(%)	(%)EC	β^+ (%) (MeV)	β^- (%) (MeV)	نیمه عمر	رادیوایزوتوپ
	۳۱۲۴/۱ (۴/۸)					
	۲۱۵۸/۹ (۳/۳۴)		۱/۹۸۰۵ (۴۹)			
	۱۸۶۱/۶ (۴/۸)		۲/۹۴۵۶ (۱۵)			
	۱۷۹۱/۶ (۴۵/۴)	۱۲/۰۱	۱/۹۱۰۵ (۱۱/۶)		۲۳/۷ m	^{60}Cu
۱۸۵/۱۹	۱۳۳۲/۵ (۸۸)		۳/۷۷۱۹ (۵)			
	۱۰۳۵/۲ (۳/۷)		۱/۸۳۵۲ (۴/۵۹)			
	۸۲۶/۴ (۲۱/۷)		۲/۴۷۸۴ (۲/۸)			
	۴۶۷/۳ (۳/۵۲)					
	۶۵۶/۰۱ (۱۰/۷۷)		۱/۲۱۶۴ (۵۱)			
	۳۷۳/۰۵ (۲/۱۰)	۳۸/۶	۱/۸۹/۱۴ (۲/۳)		۳/۳۳ h	^{61}Cu
۱۲۰/۸۷	۲۸۲/۹۵۶ (۱۲/۲)		۰/۹۳۳۴ (۵/۵)			
	۶۷/۴۱۲ (۴/۲۰)		۰/۵۶۰۴ (۲/۶)			
	۱۱۷۳/۰۲ (۰/۳۴۲)	۲/۸	۲/۹۲۷ (۹۷/۲)		۹/۷۴ m	^{62}Cu
۱۹۴/۸۶	۱۳۴۵/۷۷ (۰/۴۷۳)	۴۳/۶	۰/۶۵۳۱ (۱۷/۴)	۰/۵۷۸۷ (۳۹)	۱۲/۷ h	^{64}Cu

تا به امروز روش‌های مختلفی برای تولید ^{61}Cu ارائه شده که تقریباً تمام این روش‌ها در جدول ۲ آورده شده است. همان‌طور که

مشاهده می‌شود، نیکل، کبالت، روی و خود مس اصلی‌ترین هدف‌های مورد استفاده برای تولید این رادیوایزوتوپ هستند.

جدول (۲): روش‌های مختلفی تولید رادیوایزوتوپ ^{61}Cu

واکنش	سال	رفرنس
$^{62}\text{Ni}(p,2n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۵۵	Cohen and Newman (۵)
$^{58}\text{Ni}(\alpha,n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۵۹	Cumming (۶)
$^{64}\text{Zn}(d,\alpha n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۶۳	Williams and Irvine (۷)
$^{59}\text{Co}(^3\text{He},n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۶۳	Bryant et al. (۸)
$^{63}\text{Cu}(^3\text{He},\alpha n)^{61}\text{Cu}$		
$^{61}\text{Ni}(d,2n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۶۷	Cogneau et al. (۹)
$^{60}\text{Ni}(d,n)^{61}\text{Cu}$		
$^{63}\text{Cu}(p,t)^{61}\text{Cu}$	۱۹۶۷	Williams and Fulmer (۱۰)
$^{65}\text{Cu}(p,t2n)^{61}\text{Cu}$		
$^{63}\text{Cu}(d,d2n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۷۰	Fulmer and Williams (۱۱)
$^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۷۲	Tanaka et al. (۱۲)
$^{59}\text{Co}(\alpha,2n)^{61}\text{Cu}$	۱۹۷۶	Homma and Murakami (۱۳)
$^{58}\text{Ni}(\alpha,p)^{61}\text{Cu}$	۱۹۷۸	Muramatsu et al. (۱۴)
$^{nat}\text{Ni}(d,xn)^{61}\text{Cu}$	۱۹۹۸	Tolmachev et al. (۱۵)
$^{nat}\text{Cu}(\alpha,x)^{61}\text{Cu}$	۲۰۰۲	Szelecsenyi et al. (۱۶)
$^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$	۱۹۵۴	Cohen et al. (۱۷)

موجب افزایش ناخالصی‌های رادیوایزوتوپی، کاهش سطح مقطع تولید و در نتیجه کاهش بهره تولید می‌شود. Uddin و همکارانش در سال ۲۰۰۷ با استفاده از هدف عنصری خالص، واکنش $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{61}\text{Cu}$ را در بازه انرژی پروتون ۴ MeV تا ۳۹/۶ MeV به‌صورت تجربی مورد بررسی قرار دادند. با وجود تغییر ناچیز محدوده انرژی تولید رادیوایزوتوپ ^{61}Cu تحت واکنش $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{61}\text{Cu}$ نسبت به واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ ؛ سطح مقطع و بهره تولید ^{61}Cu تحت این واکنش تقریباً نصف شده است (۲۰). آزمایش تجربی Asad و همکارانش در سال ۲۰۱۴ تا حد زیادی نتایج آزمایش Uddin و همکارانش را تأیید می‌کند (۲۱).

در یکی از اولین مطالعات بر روی واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ ، Tanaka و همکارانش در سال ۱۹۷۲ هدف غنی شده‌ای از ^{61}Ni را با پروتون‌هایی در بازه انرژی ۲/۷ MeV تا ۱۳/۹ MeV پرتو دهی کردند. حداکثر سطح مقطع واکنش بررسی شده توسط آن‌ها در انرژی ۹ MeV و برابر با ۴۷۶ mbarn بود (۱۲). در مطالعه مشابهی که در سال ۱۹۹۳ توسط Szelecsenyi و همکارانش بر روی واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ در بازه انرژی پروتون ۳/۵ MeV تا ۱۸/۶ MeV انجام شد، حداکثر سطح مقطع واکنش در انرژی ۱۰/۳ MeV و برابر با ۵۰۸ mbarn بود (۲۲). در مطالعه Singh و همکارانش در سال ۲۰۰۶، حداکثر سطح مقطع ۴۰۷ mbarn در انرژی ۱۰/۶۵ MeV

امروزه مراکز تولید کننده رادیوایزوتوپ‌های مصنوعی، بسته به امکانات در دسترس، عمدتاً از یکی از پنج روش $^{58}\text{Ni}(\alpha,p)$ ، $^{59}\text{Co}(\alpha,2n)$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)$ و $^{60}\text{Ni}(d,n)$ و $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)$ برای تولید رادیوایزوتوپ ^{61}Cu استفاده می‌کنند که در این بین دو واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ به دلیل سطح مقطع تولید بالا در انرژی‌های پایین و استفاده از باریکه پروتون (p)، بیشتر مورد توجه مراکز سیکلوترون (تا ۲۰ MeV) بیمارستانی هستند.

Cohen و همکارانش در سال ۱۹۵۴ سطح مقطع واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ را در بازه انرژی پروتون ۷/۱ MeV تا ۲۳/۵ MeV به‌صورت تجربی مورد بررسی قرار دادند (۱۷). در سال ۱۹۹۱، Levkovski سطح مقطع این واکنش را در بازه انرژی پروتون ۷/۷ MeV تا ۲۹/۵ MeV مجدداً بررسی کرد و به نتایجی مشابه با نتایج Cohen و همکارانش دست یافت (۱۸). Gyürky و همکارانش در یک بررسی تجربی در سال ۲۰۱۴ مطالعه مشابهی را در بازه انرژی پروتون ۴/۴ MeV تا ۸/۸ MeV بر روی واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ انجام دادند که نتایج آن‌ها در این محدوده انرژی، نتایج دو مطالعه قبلی را تأیید می‌کرد (۱۹). به دلیل قیمت بالای هدف‌های غنی شده، اکثر محققان سعی می‌کنند از هدف‌های عنصری خالص استفاده کنند. هدف عنصری خالص ترکیبی از ایزوتوپ‌های پایدار آن عنصر است. استفاده از هدف عنصری خالص در کنار ارزان بودن،

به دست آمد (۲۳). در سال ۲۰۱۴ Aslam و Qaim نیز واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ را در بازه انرژی ۳/۵ MeV تا ۳۰ MeV انجام دادند که نتیجه آن حداکثر سطح مقطع ۵۰۴ mbarn در انرژی ۱۰ MeV بود (۲۴). عنصر نیکل خالص تنها ۱/۱۴ درصد از ایزوتوپ پایدار ^{61}Ni را در خود دارد و این درصد بسیار پایین موجب کاهش شدید سطح مقطع و در نتیجه بهره تولید مس-۶۱ از طریق واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ می‌شود. مطالعات تجربی بسیاری بر روی واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ انجام شده است که این واقعیت را نشان می‌دهند (شکل ۱۰).

در این مطالعه با استفاده از کدهای هسته‌ای TALYS، EMPIRE و MCNPX، سطح مقطع و بهره تولید دو واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ و $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ در حضور هدف‌های غنی شده ^{64}Zn ، ^{61}Ni و هدف‌های عنصری خالص نیکل و روی، مورد بررسی قرار گرفت و با نتایج تجربی مقایسه شد.

مواد و روش کار

در این مطالعه مداخله‌ای برای انتخاب واکنش مناسب و پارامترهای بهینه تولید، ابتدا توابع برانگیختگی دو واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ و $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ برای اهدافی از جنس ایزوتوپ غنی‌شده و عنصر طبیعی خالص با استفاده از کدهای هسته‌ای EMPIRE و TALYS و در بازه انرژی ۰ تا ۴۰ MeV، محاسبه و ترسیم می‌شود. از توابع برانگیختگی به دست آمده، بهترین انرژی باریکه فرودی تعیین شده و با استفاده از کد مونت‌کارلو SRIM، توان ایستاندگی و برد ذرات باریکه فرودی برای برآورد بهترین ضخامت ماده هدف، محاسبه می‌شود. با انتگرال‌گیری معین از فرمول بهره تولید در محیط نرم‌افزار MATLAB، بهره تولید ^{61}Cu در هر واکنش به دست می‌آید. علاوه بر این با استفاده از کد مونت‌کارلو MCNPX، محاسبات بهره تولید مجدداً انجام شده و نتایج حاصل از این دو شبیه‌سازی با نتایج تجربی مورد قبول پایگاه داده‌های هسته‌ای EXFOR مقایسه می‌شود.

کد TALYS

کد TALYS یک برنامه کامپیوتری است که می‌تواند سطح مقطع واکنش‌های هسته‌ای را بر اساس مدل‌های مختلف هسته‌ای همچون مدل اپتیکی، مدل گاز فرمی، مدل گاز فرمی پس رانده، مدل گیلبرت و کامرون، مدل ابر شار تعمیم یافته و مدل‌های آماری میکروسکوپی، محاسبه کند. این کد در طی همکاری دو مرکز تحقیقاتی در فرانسه و هلند توسط کونینگ^۱ و همکارانش با زبان فرترن نوشته شده و برای سیستم‌عامل لینوکس و یونیکس طراحی

شده است. در حالت پایه، فایل ورودی کد TALYS حداقل به چهار داده: ۱. نوع ذره پرتابه؛ ۲. عنصر هدف؛ ۳. عدد جرمی عنصر هدف؛ و ۴. انرژی اولیه پرتابه؛ نیاز دارد. این کد قادر است سطح مقطع کل تولید یک رادیوایزوتوپ را از طریق کانال‌های مختلف محاسبه کند. در این کد می‌توان واکنش‌های هسته‌ای با پرتابه t ، d ، p ، n ، $^3\text{He}^+$ و α در محدوده انرژی ۰/۰۰۱ MeV تا ۲۰۰ MeV را شبیه‌سازی کرد. محاسبات انجام شده در این مطالعه با استفاده از آخرین نسخه کد TALYS یعنی نسخه ۱/۹۶ (۲۰۲۱) انجام می‌شود.

کد EMPIRE

کد EMPIRE یک سیستم پیمانه‌ای از کدهای هسته‌ای شامل مدل‌های هسته‌ای متعددی از جمله مدل اپتیکی، واکنش مستقیم، مدل هسته مرکب، شبیه‌سازی مونت‌کارلو هیبریدی (DDHMS)، دستور چندمرحله‌ای (ORION+TRISTAN)، کانال‌های جفت شده و ESIS06 و OPTMAN)، مدل اکسیتون (PCROSS)، ترکیب چندمرحله‌ای (NVWY) و نسخه کامل مدل هاوزر- فشیباخ^۲ است که در سال ۱۹۸۰ برای بررسی واکنش‌های هسته‌ای و نیز ارزیابی داده‌های هسته‌ای در بازه وسیعی از انرژی‌ها و ذرات فرودی طراحی شده است. در این کد طیف وسیعی از ذرات از جمله فوتون، نوکلئون‌ها، t ، d ، $^3\text{He}^+$ ، α و یون‌های سبک و سنگین را می‌توان به‌عنوان پرتابه مورد بررسی قرار داد. محدوده انرژی مورد ارزیابی در این کد از اندکی بالاتر از ناحیه تشدید برای پرتابه n شروع شده و تا چند صد MeV برای واکنش‌های القایی با یون‌های سنگین ادامه می‌یابد. آخرین نسخه این کد که در سال ۲۰۲۱ منتشر شده، Empire-3-2-2zv2 است که در این مطالعه مورد استفاده قرار می‌گیرد.

کد مونت‌کارلو MCNPX

کد مونت‌کارلو MCNP برای اولین بار در سال ۱۹۶۳ در آزمایشگاه لوس آلاموس تحت عنوان MCS تهیه شده و در سال ۱۹۷۷ برای اولین بار با نام MCNP ارائه شد و در ادامه نسخه‌های 4A و 4B، که تنها ذرات n و فوتون را در نظر می‌گرفت، ارائه شد. در سال ۲۰۰۰، ذره e^- به نسخه‌های قبلی اضافه شد و با نام MCNP4C عرضه شد. بعد از آن نسخه‌های X، ۵ و ۶ ارائه شد که هر کدام قابلیت‌های فراوانی دارند. یکی از تفاوت‌های اساسی نسخه X به بالا نسبت به نسخه 4C و قبل از آن، پوشش طیف وسیعی از ذرات پرتابه است؛ به‌طوری که نسخه 4C تنها ۳ ذره فوتون، n و e^- را پوشش می‌دهد، اما در نسخه X به بالا می‌توان حداقل ۳۵ نوع ذره مختلف را به‌عنوان پرتابه انتخاب کرد. برای استفاده از این کد

2. Hauser-Feshbach model

1. Koning

باید یک فایل ورودی با ساختار مشخص شامل اطلاعات مسئله همچون هندسه، مواد، چشمه، نوع خروجی و ... تهیه شود. کد با در نظر گرفتن اطلاعات ورودی و استفاده از کتابخانه سطح مقطع‌ها، مسئله را حل و نتایج را در یک یا چند فایل خروجی تولید می‌کند. این کد علاوه بر محیط لینوکس، در محیط ویندوز نیز قابل اجرا است. در این مطالعه برای انجام محاسبات از نسخه X2/6 این کد که در سال ۲۰۰۸ ارائه شده، استفاده می‌شود.

کد مونت کارلو SRIM:

کد SRIM یک کد شبیه‌سازی مونت کارلو برای بررسی نفوذ یون‌ها در ماده است که در سال ۱۹۸۵ توسط زیگلر^۱ و همکارانش بر اساس تئوری LSS نوشته شده و تاکنون چندین بار اصلاح شده

است. این کد به حل معادله توان ایستاندگی (معادله ۱) با استفاده از رفتار کوانتومی برخورد یون-اتم پرداخته و توان ایستاندگی جرمی $\left(\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}\right)$ هدف و همچنین برد ذره پرتابه (معادله ۲) در بازه انرژی انتخابی را محاسبه می‌کند. محدوده انرژی ذرات در این کد بین ۱۰ eV تا ۲ GeV بر واحد جرم اتمی (amu) است. در ورودی کد SRIM باید داده‌هایی همچون نوع ذره پرتابه، نوع هسته هدف، بازه انرژی ذره پرتابه و چگالی هدف وارد شود. محاسبات انجام شده توسط این کد، دقت قابل قبولی دارند و می‌توان با اطمینان از آن در برآورد ضخامت هدف در تولید رادیوایزوتوپ‌ها، استفاده کرد. در این مطالعه از نسخه SRIM-۲۰۱۳ برای محاسبه میزان افت انرژی و برد پرتابه در هدف‌های مختلف استفاده شده است.

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 Z^2 \rho N_A Z}{m_0 v^2 M} \left[\ln \left(\frac{2m_0 v^2}{I} \right) - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right] \left(\frac{MeV}{cm} \right) \quad (1)$$

$$R = \int_{E_E}^{\sigma(E)} \left(-\frac{1}{dx} \right) dE \quad (2)$$

که در آن E_E انرژی اولیه ذره پرتابه است.

رابطه پرتوایی محصول و بهره تولید آن:

اگر لایه نازکی از یک ماده هدف به مدت مشخصی در معرض تابش باریکه‌ای از ذرات باردار قرار گیرد، پرتوایی رادیوایزوتوپ تولید شده برحسب MBq برابر است با

$$A(t) = 3.76 \frac{I \cdot f}{M} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_E}^{E_I} \sigma(E) \cdot \frac{dE}{S_T(E)}$$

برحسب $\frac{MeV \cdot cm^2}{mgr}$ است و در نهایت، E_I و E_E (برحسب MeV) به ترتیب انرژی ابتدایی و انتهایی ذره فرودی در حین عبور از لایه هدف است.

بهره تولید یک واکنش هسته‌ای به صورت نسبت تعداد هسته‌های تولید شده در پایان واکنش به تعداد ذرات پرتابه به صورت بار کل باریکه ذرات (برحسب کولن (C) و یا $\mu A \cdot h$) به دست می‌آید.

که در آن I شدت جریان باریکه فرودی برحسب μA ؛ f درصد فراوانی ماده هدف؛ M جرم مولی ماده هدف برحسب $\frac{gr}{mol}$ ؛ λ ثابت واپاشی محصول برحسب h^{-1} ؛ t مدت زمان بمباران هدف برحسب h ؛ $\sigma(E)$ تابع برانگیختگی ماده هدف (برحسب mbarn) برای تولید رادیوایزوتوپ مورد نظر است که از کدهای هسته‌ای TALYS و EMPIRE به دست می‌آید؛ $S_T(E)$ توان ایستاندگی جرمی هدف

$$Y_{EOB} = \frac{A(t)}{I} = 3.76 \frac{f}{M} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_E}^{E_I} \sigma(E) \cdot \frac{dE}{S_T(E)}$$

که در آن Y_{EOB} بهره تولید رادیوایزوتوپ مورد نظر برحسب $\frac{MBq}{\mu A}$ است. در صورتی که مدت زمان پرتودهی ۱ ساعت باشد، می‌توان بهره تولید محصول در پایان بمباران را برحسب یکای $\frac{MBq}{\mu A \cdot h}$ نیز بیان کرد.

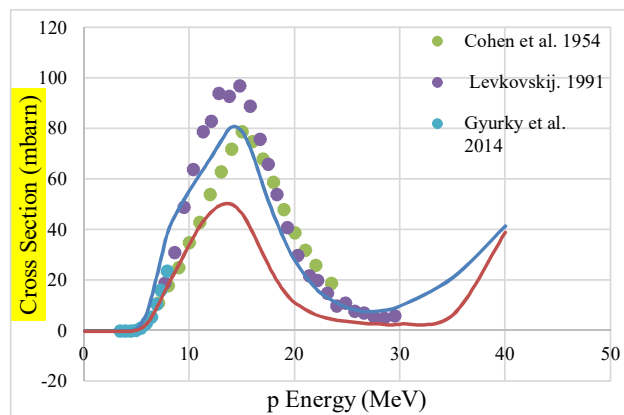
با استفاده از کدهای هسته‌ای EMPIRE و TALYS و در بازه انرژی ۰ تا ۴۰ MeV، مطابق شکل‌های ۱ تا ۱۰ محاسبه و ترسیم شده و با داده‌های تجربی مقایسه شد.

تابع برانگیختگی واکنش $^{64}Zn(p,\alpha)^{61}Cu$

همان‌طور که در شکل ۱ قابل مشاهده است، تابع‌های برانگیختگی تولید شده توسط کدهای TALYS و EMPIRE برای واکنش $^{64}Zn(p,\alpha)^{61}Cu$ دارای شکل و ارتفاع تقریباً یکسانی هستند؛ به طوری که اختلاف ارتفاع این دو تابع در حد ۳۰ mbarn

در این مطالعه مداخله‌ای ابتدا تابع برانگیختگی واکنش‌های هسته‌ای $^{64}Zn(p,\alpha)^{61}Cu$ ، $^{nat}Zn(p,x)^{61}Cu$ ، $^{61}Ni(p,n)^{61}Cu$ و

^۱. Ziegler

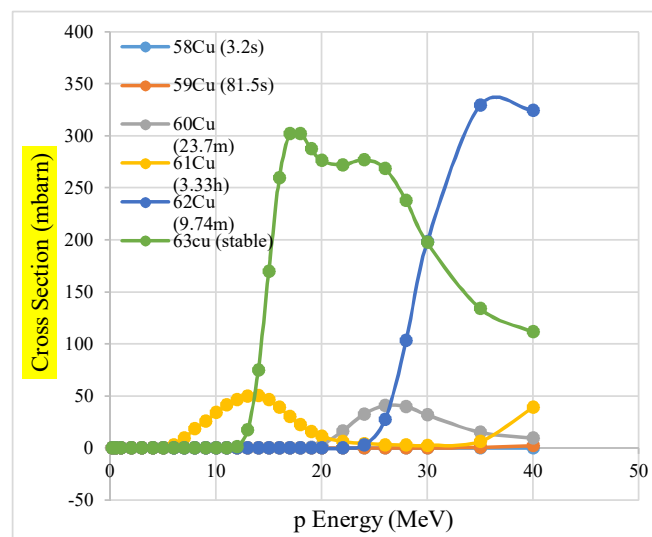


است. قله تابع برای کد TALYS و EMPIRE در انرژی ۱۵ MeV قرار دارد و مقدار آن به ترتیب برابر با ۵۰/۲۶۶ mbarn و ۸۰/۶۶ mbarn است. از شکل ۲ می‌توان دید که ^{63}Cu و ^{60}Cu دو ناخالصی عمده تولید شده در بازه انرژی ۰ MeV تا ۲۰ MeV است که ایزوتوپ ^{63}Cu به دلیل پایدار بودن، ناخالصی پرتویی ایجاد نمی‌کند و تنها مشکل حضور آن در محصول نهایی، کاهش پرتوایی ویژه است. رادیوایزوتوپ ^{60}Cu را نیز می‌توان با انتخاب انرژی باریکه فرودی مناسب، تا حد زیادی حذف کرد. بر اساس شکل‌های ۲ و ۳ بهترین بازه انرژی برای باریکه فرودی برای پرتوهدی هدفی از جنس ^{64}Zn غنی شده، محدوده ۷ MeV تا

۱۵ MeV است تا ^{60}Cu تولید نشود و تولید ^{63}Cu حداقل مقدار باشد.

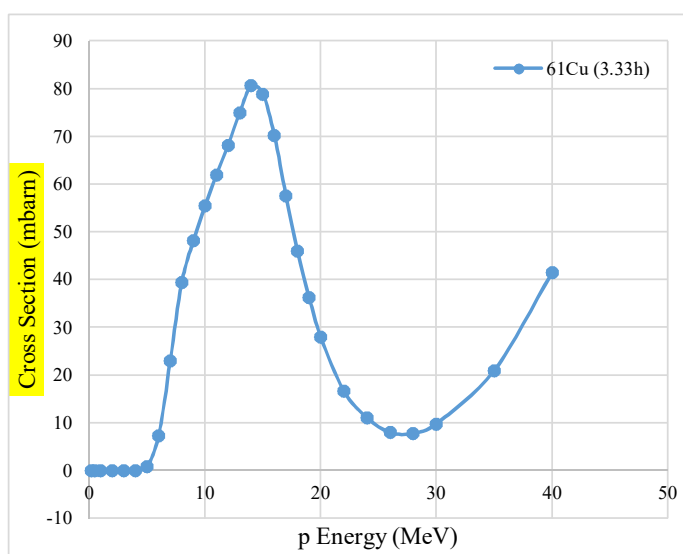
شکل ۳ مقایسه‌ای بین نتایج شبیه‌سازی و آزمایش‌های تجربی تولید ^{61}Cu از طریق واکنش $^{61}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ است. همان‌طور که قابل مشاهده است، داده‌های تجربی به لحاظ قله تابع و محدوده انرژی در توافق خوبی با نتایج شبیه‌سازی، مخصوصاً داده‌های کد شبیه‌سازی EMPIRE هستند (۱۷-۱۹). در کدهای TALYS و EMPIRE برای به دست آوردن داده‌هایی دقیق و مشابه نتایج تجربی از مدل چگالی سطحی میکروسکوپی HFB^۱ استفاده شده است که به وضوح می‌توان آن را در شکل ۱ دید.

شکل (۱): مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کدهای EMPIRE و TALYS با داده‌های تجربی



شکل (۲): تابع برانگیختگی واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد TALYS

^۱. Hartree-Fock-Bogoliubov



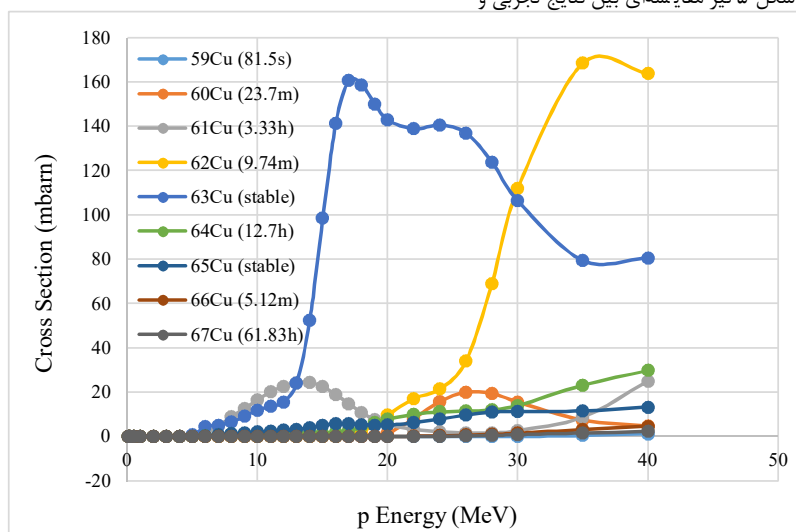
شکل (۳): تابع برانگیختگی واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد EMPIRE

شبیه‌سازی برای تولید ^{61}Cu از ^{64}Zn به نمایش گذاشته شده است.

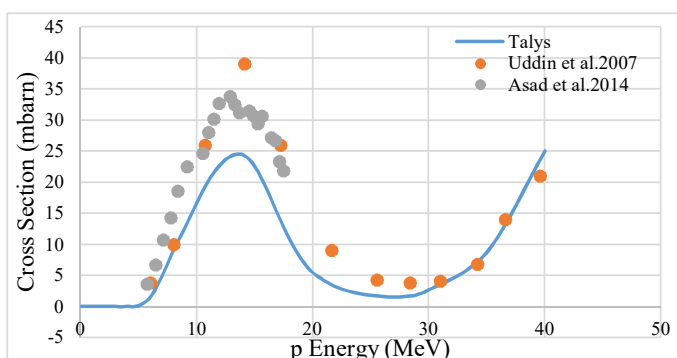
از شکل ۴ می‌توان این نتیجه را گرفت که سطح مقطع تولید ^{61}Cu از ^{64}Zn به نصف کاهش یافته است؛ اما محدوده انرژی آن تغییر محسوسی نکرده است. ناخالصی عمده در محدوده انرژی ۷ MeV تا ۱۵ MeV ایزوتوپ ^{63}Cu است که پایدار بوده و نگرانی پرتویی ایجاد نمی‌کند. علاوه بر این، داده‌های تجربی نشان داده شده در شکل ۵، تا حدودی با نتایج شبیه‌سازی در توافق هستند (۲۰، ۲۱).

تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Cu}(p,x)^{\text{nat}}\text{Zn}$:

عنصر روی خالص ترکیبی از ۴ ایزوتوپ پایدار ^{64}Zn ، ^{66}Zn ، ^{67}Zn و ^{68}Zn با درصد فراوانی به ترتیب ۴۸/۶ درصد، ۲۷/۹ درصد، ۴/۱ درصد و ۱۸/۸ درصد است. برخورد باریکه p با انرژی‌های مختلف به هر یک از این ایزوتوپ‌ها، با احتمال‌های متفاوتی منجر به تولید طیف وسیعی از رادیوایزوتوپ‌ها می‌شود. در شکل ۴ تابع برانگیختگی رادیوایزوتوپ‌های مس در واکنش $^{61}\text{Cu}(p,x)^{\text{nat}}\text{Zn}$ در بازه انرژی ۰ تا ۴۰ MeV نشان داده شده است. احتمال تولید سایر رادیوایزوتوپ‌های این خانواده خیلی پایین است؛ از این رو در این شکل ذکر نشده‌اند. در شکل ۵ نیز مقایسه‌ای بین نتایج تجربی و



شکل (۴): تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Cu}(p,x)^{\text{nat}}\text{Zn}$ حاصل از کد TALYS



شکل (۵): مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{nat}\text{Zn}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد TALYS با داده‌های تجربی

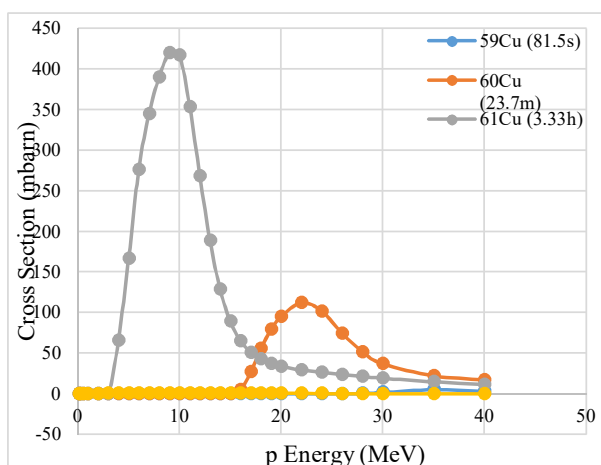
تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$:

شکل‌های ۶ و ۷، $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ است؛ از این رو با انتخاب بازه انرژی مناسب تا $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ می‌توان از تولید این رادیوایزوتوپ جلوگیری کرد. علاوه بر ^{60}Cu ، دو رادیوایزوتوپ ^{59}Cu و ^{60}Cu نیز در مقادیر ناچیز تولید شوند که چون نیمه‌عمر هر سه آن‌ها کمتر از ^{61}Cu است، با سردسازی مناسب می‌توان آن‌ها را تا حد زیادی حذف کرد. در نتیجه مناسب‌ترین بازه انرژی برای باریکه p ، محدوده $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ تا $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ است.

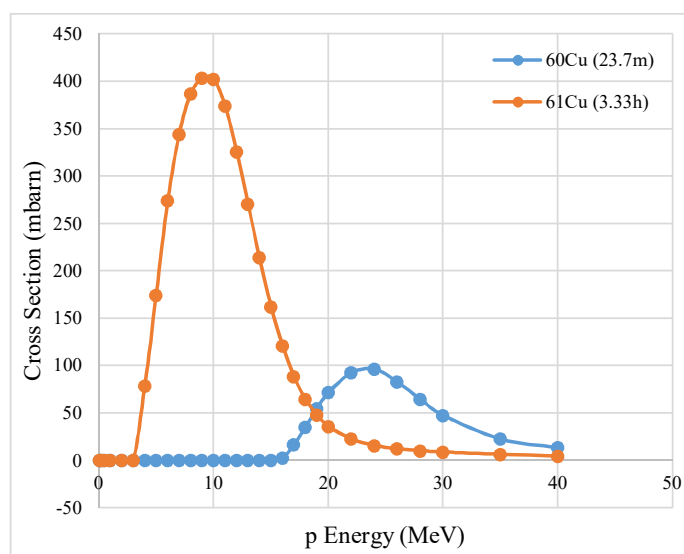
با مشاهده شکل ۸ که مقایسه‌ی بین داده‌های تجربی مربوط به واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ و داده‌های حاصل از شبیه‌سازی را ارائه می‌دهد، می‌توان به وضوح توافق این دو دسته از داده‌ها را دید. داده‌های تجربی به‌جز در قله تابع برانگیختگی، در تمام نقاط بر نمودار TALYS و EMPIRE منطبق هستند. با این حال، انرژی قله تابع برانگیختگی حاصل از داده‌های تجربی نیز در انرژی $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ قرار دارد (۱۲، ۲۶، ۲۲).

تابع برانگیختگی شبیه‌سازی شده واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ توسط کدهای هسته‌ای TALYS و EMPIRE در محدوده انرژی ۰ تا $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ به ترتیب در شکل‌های ۶ و ۷، و مقایسه بین نتایج شبیه‌سازی تولید ^{61}Cu با نتایج تجربی در شکل ۸ به نمایش گذاشته شده است. تابع برانگیختگی تولید ^{61}Cu شبیه‌سازی شده توسط کدهای TALYS و EMPIRE در محدوده انرژی ۰ تا $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ کاملاً بر هم منطبق هستند، قله هر دو تابع با اختلاف $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ در انرژی ۹ MeV قرار دارد و از انرژی ۱۰ MeV به بعد، اختلاف ناچیزی دارند؛ به‌طوری که می‌توان گفت که نتیجه شبیه‌سازی هر دو کد تقریباً با هم یکسان هستند. مدل چگالی سطحی میکروسکوپی HFB، مدل هسته‌ای است که در این شبیه‌سازی‌ها مورد استفاده قرار گرفته است.

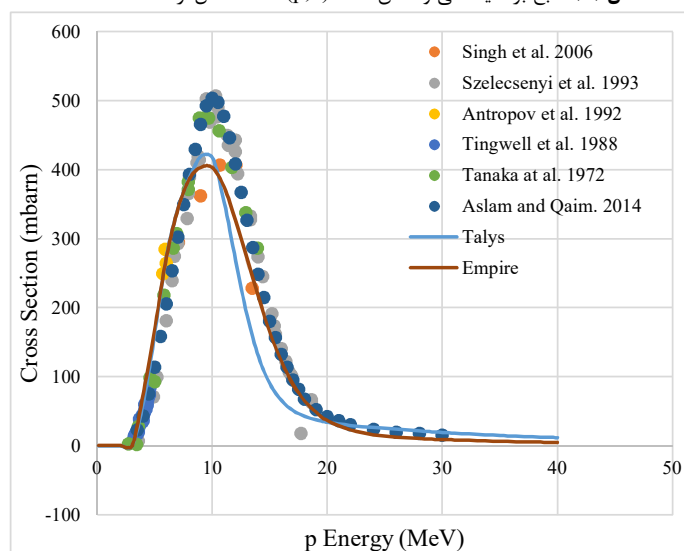
در این واکنش مهم‌ترین ناخالصی تولید شده، رادیوایزوتوپ ^{60}Cu است که انرژی آستانه تولید آن بر اساس نتایج هر دو کد در



شکل (۶): تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد TALYS



شکل (۷): تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد EMPIRE



شکل (۸): مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کدهای TALYS و EMPIRE با داده‌های تجربی

تابع برانگیختگی واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$:

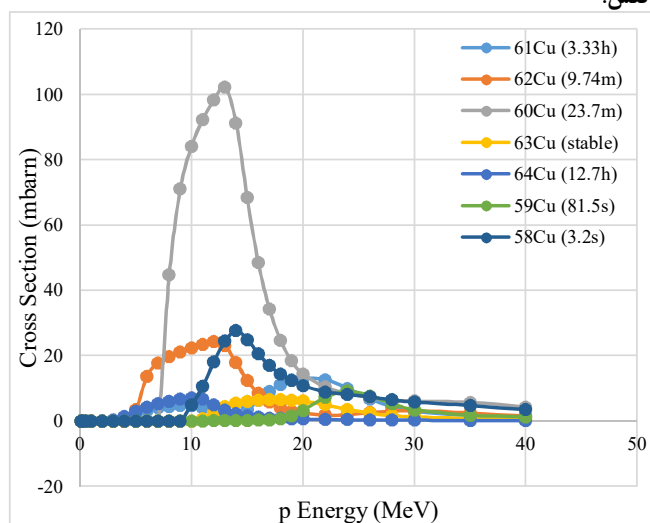
نمی‌شود. علاوه بر این، احتمال تولید ^{61}Cu از طریق واکنش $^{60}\text{Ni}(p,\gamma)^{61}\text{Ni}$ نیز بسیار پایین است. در نتیجه حدود ۹۴ درصد از نیکل طبیعی تحت واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ عملاً کاربردی ندارد. بین واقعیت را می‌توان در شکل ۹ به وضوح مشاهده کرد. در حالی که برای واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ ، حداکثر سطح مقطع ۱۳ mbarn است و ناخالصی محدودی وجود دارد که با انتخاب بازه انرژی مناسب و سردسازی می‌توان آن‌ها را حذف کرد؛ برای واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ ، حداکثر سطح مقطع به سختی به ۱۳ mbarn

عنصر نیکل خالص ترکیبی از ۵ ایزوتوپ پایدار ^{58}Ni ، ^{60}Ni ، ^{61}Ni ، ^{62}Ni و ^{64}Ni با درصد فراوانی به ترتیب ۶۸/۰۷۷ درصد، ۲۶/۲۲۳ درصد، ۱/۱۴ درصد، ۳/۶۳۴ درصد و ۰/۹۲۶ درصد است. هنگامی که باریکه‌ای از p با انرژی‌های مختلف به عنصر نیکل خالص برخورد می‌کند، تحت واکنش‌های $^{60}\text{Ni}(p,\gamma)^{61}\text{Ni}$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ و $^{62}\text{Ni}(p,2n)^{61}\text{Cu}$ می‌تواند منجر به تولید ^{61}Cu شود. بزرگ‌ترین رادیوایزوتوپی که از برخورد باریکه p با ^{58}Ni تولید می‌شود، ^{69}Cu است و عملاً تحت این برهمکنش، ^{61}Cu تولید

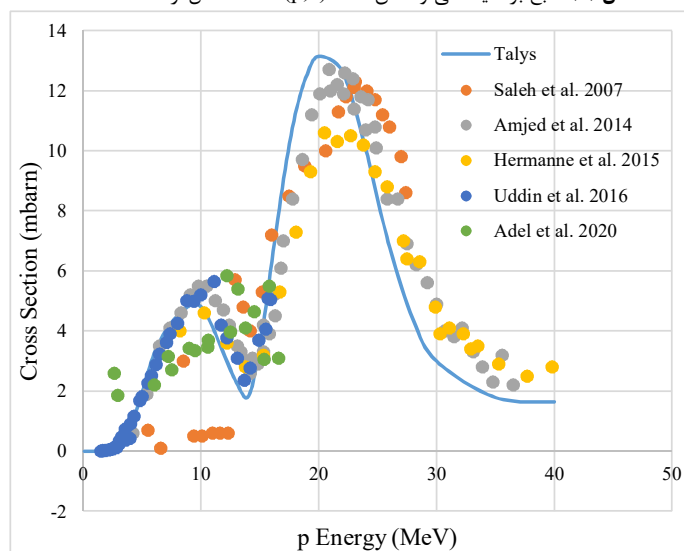
با استفاده از کد مونت کارلو SRIM، برد ذرات p (ضخامت هدف) و توان ایستاندگی جرمی آن‌ها در هدف‌هایی از جنس ^{61}Ni ، ^{nat}Ni ، ^{64}Zn و ^{nat}Zn در بازه انرژی ۰ تا ۴۰ MeV شبیه‌سازی شد. با استفاده از نرم‌افزار متلب، معادله تابع برانگیختگی $\sigma(E)$ واکنش‌های هسته‌ای $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ ، $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ ، $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{61}\text{Cu}$ و $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ توان ایستاندگی جرمی $S_T(E)$ آن‌ها در بازه انرژی ۰ تا ۴۰ MeV به دست آمد. با انتگرال‌گیری عددی از فرمول ۴ در بازه انرژی ۰ تا انرژی قله تابع برانگیختگی، حداکثر بهره تولید به دست می‌آید. داده‌های مربوط به محاسبه حداکثر برد پرتو و حداکثر بهره واکنش در جدول ۳ نشان داده شده است.

می‌رسد و حجم ناخالصی به حدی زیاد است که عملاً استفاده از این واکنش برای تولید ^{61}Cu را با چالش جدی رو به رو می‌کند. تعدادی از جدیدترین داده‌های تجربی مربوط به واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ تابع برانگیختگی حاصل از کد TALYS برای این واکنش، در شکل ۱۰ قابل مشاهده است. به جز داده‌های حاصل از آزمایش Al-Saleh و همکارانش (۲۰۰۷) (۲۷) و Adel و همکارانش (۲۰۲۰) (۲۸)، سایر داده‌ها در محدوده انرژی مورد بررسی توسط محققان، تا حد زیادی بر داده‌های حاصل از شبیه‌سازی منطبق هستند و می‌توان گفت که توافق خوبی بین داده‌های تجربی و شبیه‌سازی وجود دارد (۳۱-۲۹).

محاسبه ضخامت هدف و بهره واکنش:



شکل (۹): تابع برانگیختگی واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد TALYS



شکل (۱۰): مقایسه تابع برانگیختگی واکنش $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$ حاصل از کد TALYS با داده‌های تجربی

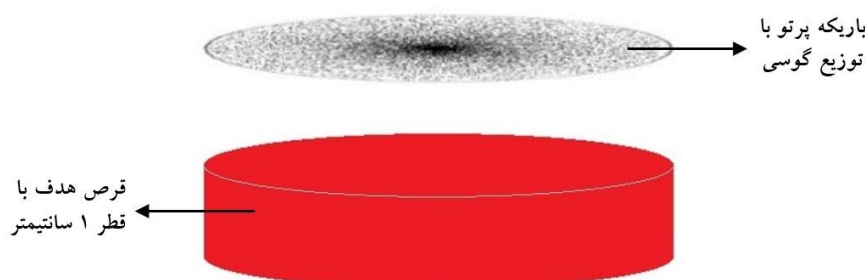
جدول (۳): حداکثر برد پرتو و حداکثر بهره تولید برای پرتودهی عمودی هدف توسط باریکه فرودی

واکنش هسته‌ای	انرژی باریکه (MeV)	حداکثر برد پرتو در هدف (μm)	حداکثر بهره تولید TALYS (MBq/μAh)	حداکثر بهره تولید EMPIRE (MBq/μAh)
$^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$	۱۴	۵۲۹/۰۹	۱۱۳/۲۹	۱۸۳/۲۴
$^{nat}\text{Zn}(p,x)^{61}\text{Cu}$	۱۴	۵۴۱/۱۸	۵۵/۰۷	----
$^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$	۹	۲۰۲/۳	۴۹۸/۵۱	۴۹۷/۲۱
$^{nat}\text{Ni}(p,x)^{61}\text{Cu}$	۲۰	۷۶۰/۱	۴۶/۵۱	----

محاسبه بهره واکنش با MCNPX:

از آنجایی که دو واکنش $^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ در انرژی سطح مقطع حداکثر خود، بهره تولید ^{61}Cu بالاتری دارند؛ محاسبات بهره تولید با استفاده از کد MCNPX-2/6 فقط برای این دو واکنش انجام شد.

برای شبیه سازی این دو واکنش، هدف قرصی شکل به قطر ۱ cm و با ضخامتی برابر با برد باریکه فرودی در هدف، مطابق با ابعاد واقعی سیستم هدف سیکلوترون طراحی شد. باریکه فرودی به صورت عمود بر هدف می تابد. باریکه پرتو در واقعیت باریکه پروتونی خروجی از شتابدهنده سیکلوترون است که به صورت



شکل (۱۱): شماتیکی از سیستم هدف و باریکه فرودی طراحی شده برای فایل ورودی MCNPX

دست آوردن $P(E)$ ، به یک نرمالیزه می شود. برای کاهش انحراف معیار نتایج، محاسبات برای ۱۰ میلیون ذره تکرار شد. برای محاسبه بهره، محاسبات از طریق فرمول انتگرالی زیر انجام می شود.

$$Y_{EOB} \left(\frac{\text{MBq}}{\mu\text{Ah}} \right) = 3.76 \times 10^3 \frac{\rho \cdot d \cdot f}{M} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_E}^{E_I} \sigma(E) \cdot P(E) dE \quad (5)$$

هدف برای تولید ^{61}Cu که از کدهای TALYS گرفته می شود؛ $P(E)$ ، تابع توزیع ذرات برحسب انرژی است و در نهایت، E_I و E_E (برحسب MeV) به ترتیب انرژی ابتدایی و انتهایی ذره فرودی در حین عبور از لایه هدف به ضخامت x است.

برای محاسبه بهره تولید حاصل از شبیه سازی MCNPX، تابع توزیع انرژی ذرات فرودی در محیط هدف با کارت تالی F4/E4 که متوسط شار ذره در واحد حجم سلول (particle/cm^3) را حساب می کند، به دست می آید. سپس این تابع توزیع انرژی ذرات برای به

که در آن ρ ، چگالی ماده هدف برحسب $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ ، d ، ضخامت ماده هدف برحسب cm؛ f ، درصد فراوانی ماده هدف؛ M ، جرم مولی ماده هدف برحسب $\frac{\text{g}}{\text{mol}}$ ، λ ، ثابت واپاشی محصول برحسب h^{-1} ؛ t ، مدت زمان بمباران هدف برحسب h؛ $\sigma(E)$ ، تابع برانگیختگی ماده

جدول (۴): مقایسه نتایج حاصل از شبیه‌سازی واکنش‌های $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ و $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ با نتایج تجربی

واکنش	انرژی باریکه (MeV)	ضخامت هدف (μm)	بهره تولید TALYS (MBq/ μAh)	بهره تولید MCNPX (MBq/ μAh)	نتایج تجربی* (MBq/ μAh)
$^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$	۱۴	۵۲۹/۰۹	۱۱۳/۲۹	۹۰/۷۳	۱۵۵ (۳۳)
$^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$	۹	۲۰۲/۳	۴۹۸/۵۱	۴۷۰/۲۶	۴۶۱/۳۲ (۳۳)

* نتایج تجربی ارائه شده توسط آژانس بین‌المللی انرژی اتمی (آپدیت ۲۰۱۹)

واکنش $^{nat}\text{Zn}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ بر اساس داده‌های کد TALYS در انرژی ۱۴ MeV برابر با ۵۵/۰۷ MBq/ μAh است؛ حال آنکه در مطالعه Uddin و همکارانش (۲۰۰۷) و Asad و همکارانش (۲۰۱۴) بهره تجربی به دست آمده در انرژی ۱۴ MeV در محدوده MBq/ μAh ۹۰ تا ۹۵ MBq/ μAh است (۲۰، ۲۱). دو دلیل اصلی اختلاف زیاد بین بهره تجربی و بهره محاسبه شده در این مطالعه عبارتند از: اولاً، هیچ مدل هسته‌ای نمی‌تواند به‌طور کامل اتفاقات واقعی رخ داده در واکنش‌های هسته‌ای را بیان کند. دوماً، در محاسبات تئوری مدت‌زمان پرتودهی و شدت جریان بیم خروجی ۱ در نظر گرفته می‌شود؛ اما در کارهای تجربی همیشه بیشتر از ۱ هستند و پرتوایی به دست آمده بر این عدد تقسیم می‌شود که معمولاً عدد حاصل بزرگتر از زمانی است که مخرج ۱ باشد.

بهره واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ برای کدهای TALYS و EMPIRE در انرژی ۹ MeV به ترتیب برابر با MBq/ μAh ۴۹۸/۵۱ و ۴۹۷/۲۱ MBq/ μAh و داده تجربی ارائه شده توسط IAEA برابر با ۴۶۱/۳۲ MBq/ μAh است (۳۴). مطالعه Aslam و Qaim (۲۰۱۴) بر روی این واکنش نشان داد که در این انرژی، بهره‌ای تجربی در حدود ۵۵۰ MBq/ μAh نیز قابل دستیابی است (۲۴). داده‌های حاصل از شبیه‌سازی واکنش $^{nat}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ توسط کد TALYS در انرژی ۲۰ MeV، بهره‌ای برابر با MBq/ μAh ۴۶/۵۱ به دست می‌دهد که کمترین بهره محاسباتی در بیشترین انرژی ممکن است. Amjed و همکارانش (۲۰۱۴) در این انرژی، بهره تجربی ۴۵ MBq/ μAh را برای واکنش $^{nat}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ به دست آوردند که با بهره محاسبه شده توافقی خوبی دارد (۲۹).

با توجه به فاکتورهای بهره تولید بالا و میزان ناخالصی پایین، دو واکنش $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ به‌عنوان بهترین واکنش‌های تولید ^{61}Cu در یک سیکلوترون بیمارستانی انتخاب شدند. ضخامت هدف برای واکنش‌های $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ و $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ به ترتیب در انرژی‌های ۱۴ MeV و ۹ MeV برابر با μm ۵۲۹/۰۹ و μm ۱۲۰۲/۳ است. بهره این دو واکنش از طریق شبیه‌سازی MCNPX مجدداً مورد بررسی قرار گرفته و با نتایج تجربی IAEA مقایسه شدند. بر اساس این نتایج می‌توان گفت که

از داده‌های ارائه شده در جدول‌های ۳ و ۴ می‌توان به این نتیجه رسید که بهره تولید ^{61}Cu شبیه‌سازی شده توسط کدهای TALYS و MCNPX برای واکنش $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ ، اختلاف کمی با هم دارند و می‌توان گفت که تقریباً با هم در توافق هستند؛ اما این نتایج اختلاف زیادی با نتایج کد EMPIRE و آزمایش‌های تجربی دارند که می‌توان این واقعیت را از اختلاف زیاد در بین تابع برانگیختگی شبیه‌سازی شده و تجربی در شکل ۳ نیز مشاهده کرد. با این حال، نتایج حاصل از شبیه‌سازی توسط کدهای TALYS، EMPIRE و MCNPX برای واکنش $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ با نتایج تجربی اختلاف ناچیزی دارند که این واقعیت را می‌توان در شکل ۸ نیز مشاهده کرد.

بحث و نتیجه‌گیری

در این مطالعه مداخله‌ای شرایط بهینه تولید رادیوایزوتوپ مس-۶۱ با پرتودهی هدف توسط باریکه فرودی شتاب‌دهنده سیکلوترون، از طریق شبیه‌سازی توسط کدهای محاسباتی TALYS-1/96، EMPIRE-3-2-2 و MCNPX-2/6 مورد بررسی قرار گرفت.

در ابتدا تابع برانگیختگی واکنش‌های $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ ، $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ و $^{nat}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ از طریق کدهای محاسباتی TALYS و EMPIRE به دست آمد و بعد از مقایسه با نتایج تجربی، بهترین بازه انرژی که دارای بیشترین سطح مقطع واکنش و کمترین میزان ناخالصی باشد، برای آن‌ها تعیین شد. سپس به‌طور تئوری بهره تولید این واکنش‌ها در بازه انرژی انتخابی محاسبه شد که نتایج آن در جدول ۳ موجود است.

برای واکنش $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ ، بهره حاصل از کدهای TALYS و EMPIRE در انرژی ۱۴ MeV به ترتیب برابر با MBq/ μAh ۱۱۳/۲۹ و ۱۸۳/۲۴ MBq/ μAh است؛ در حال که داده تجربی ارائه شده توسط IAEA برابر با ۱۵۵ MBq/ μAh است (۳۳). علاوه بر این، Aslam و Qaim (۲۰۱۴) به‌صورت تجربی این واکنش را بررسی کرده و بهره تجربی نزدیک به ۱۶۵ MBq/ μAh را در انرژی ۱۴ MeV به دست آوردند که در توافق با داده تجربی IAEA است (۳۴). بهره به دست آمده برای

انرژی سیکلوترون‌های پزشکی خود به خود موجب حذف تعدادی از واکنش‌های مطلوب در تولید یک رادیوایزوتوپ می‌شود. برای یافتن یک واکنش مطلوب برای تولید یک رادیوایزوتوپ، نیاز به انجام آزمایش است که در آزمایش‌های تجربی علاوه بر مشکلات ذکر شده؛ زمانبر بودن، هزینه‌بر بودن، مستعد خطا بودن و پرتوگیری را نیز باید به مشکلات اضافه کرد. امروزه ابزارهای شبیه‌سازی کامپیوتری با کمترین هزینه، در کمترین زمان ممکن، با دقت مطلوب (همان‌طور که در این مطالعه مشاهده شد) و به دور از هر نوع پرتوگیری، امکان انجام محاسبات هسته‌ای در طیف وسیعی از موضوعات را فراهم کرده‌اند. از این رو پیشنهاد می‌شود قبل از انجام کارهای عملی، با استفاده از کدهای هسته‌ای همچون TALYS، MCNPX، EMPIRE و SRIM، شبیه‌سازی‌های لازم انجام شود تا بهترین واکنش ممکن بر اساس امکانات موجود به دست آید.

References:

- Williams HA, Robinson S, Julyan P, Zweit J, Hastings D. A comparison of PET imaging characteristics of various copper radioisotopes. *European journal of nuclear medicine and molecular imaging*. 2005;32:1473-80.
- Rowshanfarzad P, Sabet M, Jalilian AR, Kamalidehghan M. An overview of copper radionuclides and production of ^{61}Cu by proton irradiation of natZn at a medical cyclotron. *Appl Radiat Isot* 2006;64(12):1563-73.
- Laforest R, Dehdashti F, Lewis JS, Schwarz SW. Dosimetry of ^{60}Cu /ATSM: a hypoxia imaging agent for PET. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 2005;32:764-70.
- Szymański P, Frączek T, Markowicz M, Mikiciuk-Olasik E. Development of copper based drugs, radiopharmaceuticals and medical materials. *Biometals* 2012;25:1089-112.
- Cohen BL, Newman E. (p, pn) and (p, 2 n) Cross Sections in Medium Weight Elements. *Phys Rev* 1955;99(3):718.
- Cumming J. Decay of ^{61}Zn . *Phys Rev* 1959;114(6):1600-4.
- Williams DC, Irvine Jr JW. Nuclear Excitation Functions and Thick-Target Yields: $\text{Zn} + d$ and Ar 40 (d, α). *Phys Rev* 1963;130(1):265.
- Bryant E, Cochran D, Knight J. Excitation Functions of Reactions of 7-to 24-MeV He 3 Ions with $\text{Cu } 63$ and $\text{Cu } 65$. *Phys Rev* 1963;130(4):1512.
- Cogneau M, Gilly L, Cara J. Absolute cross sections and excitation functions for deuteron-induced reactions on the nickel isotopes between 2 and 12 MeV. *Nucl Phys A* 1967;99(4):686-94.
- Williams I, Fulmer C. Excitation functions for radioactive isotopes produced by protons below 60 MeV on Al, Fe, and Cu. *Phys Rev* 1967;162(4):1055.
- Fulmer C, Williams I. Excitation functions for radioactive nucleides produced by deuteron-induced reactions in copper. *Nucl Phys A* 1970;155(1):40-8.
- Tanaka S, Furukawa M, Chiba M. Nuclear reactions of nickel with protons up to 56 MeV. *J Inorg Nucl Chem* 1972;34(8):2419-26.
- Homma Y, Murakami Y. Production of ^{61}Cu by α - and ^3He bombardments on cobalt target. *Chem Lett* 1976;5(5):397-400.
- Muramatsu H, Shirai E, Nakahara H, Murakami Y.

در میان این ۴ واکنش، واکنش $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$ با بهره‌سازی MCNPX، EMPIRE، TALYS و تجربی به ترتیب $470/26 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ ، $497/21 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ ، $498/51 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ و $461/32 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ در انرژی ۹ MeV، بهترین واکنش برای تولید ^{61}Cu در سیکلوترون‌های بیمارستانی است. یکی از مشکلات عمده در تولید رادیوایزوتوپ‌های پزشکی، قیمت بالای ایزوتوپ‌های غنی شده است. علاوه بر آن در حین استفاده از هدف‌های عنصری خالص، رادیوایزوتوپ‌های مزاحم بیشتری تولید می‌شود که برای جلوگیری از آن باید تا حد امکان بازه انرژی باریکه فرودی را محدود کرد. البته در بعضی از مواقع این روش نیز کارساز نیست و باید از آن واکنش صرفنظر کرد. یکی دیگر از مشکلات مهم در زمینه تولید رادیوایزوتوپ‌ها، کمبود تأسیسات تولید از جمله راکتورهای تحقیقاتی و شتابدهنده‌های سیکلوترون انرژی متوسط به بالا است. علاوه بر این محدودیت

- Alpha particle bombardment of natural nickel target for the production of ^{61}Cu . *Int J App Radiation Isotopes* 1978;29(11):611-4.
15. Tolmachev V, Lundqvist H, Einarsson L. Production of ^{61}Cu from a natural nickel target. *Appl Radiat Isot* 1998;49(1-2):79-81.
 16. Szelecsényi F, Suzuki K, Kovács Z, Takei M, Okada K. Production possibility of 60, 61, 62Cu radioisotopes by alpha induced reactions on cobalt for PET studies. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 2002;187(2):153-63.
 17. Cohen B, Newman E, Charpie R, Handley T. (p, pn) and (p, α n) Excitation Functions. *Phys Rev* 1954;94(3):620.
 18. Levkovski V. Cross sections of medium mass nuclide activation ($A=40-100$) by medium energy protons and alpha-particles ($E=10-50$ MeV). *Inter-Vesi, Moscow, USSR*. 1991.
 19. Gyürky G, Fülöp Z, Halász Z, Kiss G, Szücs T. Direct study of the α -nucleus optical potential at astrophysical energies using the $\text{Zn } 64(p, \alpha) \text{ Cu } 61$ reaction. *Phys Rev C* 2014;90(5):052801.
 20. Uddin M, Khandaker M, Kim K, Lee Y, Kim G. Excitation functions of the proton induced nuclear reactions on ^{nat}Zn up to 40 MeV. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 2007;258(2):313-20.
 21. Asad AH, Chan S, Morandau L, Cryer D, Smith SV, Price RI. Excitation functions of $^{nat}\text{Zn}(p, x)$ nuclear reactions with proton beam energy below 18 MeV. *Appl Radiat Isot* 2014;94:67-71.
 22. Szelecsényi F, Blessing G, Qaim S. Excitation functions of proton induced nuclear reactions on enriched ^{61}Ni and ^{64}Ni : Possibility of production of no-carrier-added ^{61}Cu and ^{64}Cu at a small cyclotron. *Appl Radiat Isot* 1993;44(3):575-80.
 23. Singh B, Sharma MK, Musthafa M, Bhardwaj H, Prasad R. A study of pre-equilibrium emission in some proton-and alpha-induced reactions. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 2006;562(2):717-20.
 24. Aslam M, Qaim SM. Nuclear model analysis of excitation functions of proton, deuteron and α -particle induced reactions on nickel isotopes for production of the medically interesting copper-61. *Appl Radiat Isot* 2014;89:65-73.
 25. Tingwell CIW, Hansper VY, Tims SG, Scott AF, Sargood DG. Cross sections of proton induced reactions on ^{61}Ni . *Nucl Phys A* 1988;480(1):162-74. Available from: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(88\)90390-9](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(88)90390-9)
 26. Antropov A, Gusev V, Zhuravlev Y, Zarubin P, Kolozhvari A, Smirnov A. Total cross sections of (p, n) reaction on the nuclei of isotopes nickel and zink at $E(p) \frac{1}{4}5-6$. MeV. *Bull Russ Acad Sci: Phys* 1992;56:1829.
 27. Al Saleh F, Al Mugren KS, Azzam A. Excitation functions of (p, x) reactions on natural nickel between proton energies of 2.7 and 27.5 MeV. *Appl Radiat Isot* 2007;65(1):104-13.
 28. Adel D, Mohamed GY, Yousef Z, Abd El Wahab M, Ditroi F, Takács S, et al. Experimental investigation and theoretical evaluation of proton induced nuclear reactions on nickel. *Appl Radiat Isot* 2020;159:109094.
 29. Amjed N, Tárkányi F, Hermanne A, Ditroi F, Takacs S, Hussain M. Activation cross-sections of proton induced reactions on natural Ni up to 65 MeV. *Appl Radiat Isot* 2014;92:73-84.
 30. Hermanne A, Rebeles RA, Tárkányi F, Takacs S. Excitation functions of proton induced reactions on ^{nat}Os up to 65 MeV: Experiments and comparison with results from theoretical codes. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 2015;345:58-68.
 31. Uddin MS, Chakraborty AK, Spellerberg S, Shariff MA, Das S, Rashid MA, et al. Experimental determination of proton induced reaction cross sections on ^{nat}Ni near threshold energy. *Radiochimica Acta* 2016;104(5):305-14.
 32. Feghhi SA, Gholamzadeh Z, Alipoor Z, Zali A, Joharifard M, Aref M, et al. A benchmark study on uncertainty of ALICE ASH 1.0, TALYS 1.0 and

- MCNPX 2.6 codes to estimate production yield of accelerator-based radioisotopes. *Pramana* 2013;81:87-101.
33. Tárkányi F, Ignatyuk A, Hermanne A, Capote R, Carlson B, Engle JW, et al. Recommended nuclear data for medical radioisotope production: diagnostic positron emitters. *J Radioanal Nucl Chem* 2019;319:533-666.
34. Aslam M, Qaim S. Nuclear model analysis of excitation functions of proton and deuteron induced reactions on ^{64}Zn and ^3He -and α -particle induced reactions on ^{59}Co leading to the formation of copper-61: Comparison of major production routes. *Appl Radiat Isot* 2014;94:131-40.

COMPARISON OF COPPER-61 RADIOISOTOP PRODUCTION YIELD VIA REACTIONS OF $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$, $^{\text{nat}}\text{Zn}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$, $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$, AND $^{\text{nat}}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ IN HOSPITAL CYCLOTRON USING TALYS, EMPIRE, AND MCNPX NUCLEAR CODES

Maedeh Hasani¹, Alireza Azadbar^{*2}

Received: 06 November, 2022; Accepted: 19 April, 2023

Abstract

Background & Aims: Copper-61 (^{61}Cu) is a radioisotope with a half-life of 3.33 hours which decays to nickel-61 isotope by β^+ emission (61%) or electron capture (39%). This radioisotope can be used in the evaluation of the blood supply of the heart and low-oxygen cancer tissues imaging with PET. ^{61}Cu is mainly produced by bombarding zinc (Zn), nickel (Ni) and cobalt (Co) targets in medium cyclotrons. The aim of this study was to investigate the ^{61}Cu production yield via the reactions of $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$, $^{\text{nat}}\text{Zn}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$, $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$, and $^{\text{nat}}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ in hospital cyclotrons.

Materials & Methods: In this experimental study, the excitation functions of these reactions were calculated by TALYS-1/96 and EMPIRE-3-2-2 codes, and the best energy with highest reaction cross-section and lowest impurity was determined. The stopping power and target thickness at the selected energy were calculated by SRIM-2013 code. ^{61}Cu production yield was obtained by integrating the production yield formula in MATLAB environment, and compared with the results of MCNPX-2/6 simulation and experimental works.

Results: The maximum yield of the TALYS code for $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$, $^{\text{nat}}\text{Zn}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$, $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$, and $^{\text{nat}}\text{Ni}(\text{p},\text{x})^{61}\text{Cu}$ at 14, 14, 9 and 20 MeV were 113/29, 55/07, 498/51 and 46/51 MBq/ μAh , respectively. The maximum yield of the EMPIRE code for $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ and $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ at 14 and 9 MeV were 183/24 and 497/21 MBq/ μAh , respectively. The maximum yield of MCNPX code for $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ and $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ at 14 and 9 MeV were 90/73 and 470/26 MBq/ μAh , respectively. The maximum experimental yield of $^{64}\text{Zn}(\text{p},\alpha)^{61}\text{Cu}$ and $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ at 14 and 9 MeV were 155 and 461/32 MBq/ μAh , respectively.

Conclusion: It could be concluded from the comparison of simulation and experimental results that these results are in concurrence with $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ at 9 MeV, and this reaction in this energy is the best reaction for producing ^{61}Cu in hospital cyclotrons.

Keywords: Cu-61, Hospital Cyclotron, Monte Carlo Simulation, Nickel, Production Yield, Zinc

Address: Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Islamic Azad University, Lahijan Branch, Lahijan, Iran

Tel: +989112363159

Email: azadbar@liau.ac.ir

SOURCE: STUD MED SCI 2023; 33(12): 838 ISSN: 2717-008X

Copyright © 2023 Studies in Medical Sciences

This is an open-access article distributed under the terms of the [Creative Commons Attribution-noncommercial 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/) which permits copy and redistribute the material just in noncommercial usages, as long as the original work is properly cited.

¹ MSc Student, Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Lahijan Branch, Islamic Azad University, Lahijan, Iran

² Assistant Professor, Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Lahijan Branch, Islamic Azad University, Lahijan, Iran (Corresponding Author)