

ХАРКІВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ ІМЕНІ В.Н. КАРАЗІНА
ІНСТИТУТ ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ФАКУЛЬТЕТ

КАФЕДРА ФІЗИКИ ЯДРА ТА ВИСОКИХ ЕНЕРГІЙ ІМЕНІ О.І. АХІЄЗЕРА

Пояснювальна записка

до дипломного проекту (роботи)

МАГІСТРА

(освітньо-кваліфікаційний рівень)

на тему

Дослідження методом комп'ютерного моделювання накопичення медичного
радіонукліду ^{103}Pd при взаємодії протонів з ізотопами срібла

Investigation by the computer modeling method of ^{103}Pd medical isotope
production due the interaction of protons with silver isotopes

Виконав: студент 2 курсу навчання за ОНП
магістр

спеціальності 105 - Прикладна фізика та
наноматеріали

Григоренко В.А.

(Прізвище та ініціали)

Керівник к.ф.-м.н., Малихіна Т.В.

(Прізвище та ініціали)

Рецензент _____

(Прізвище та ініціали)

Анотація

Отримано перерізи утворення ^{103}Pd та інших ізотопів у реакціях пучка протонів з ізотопами срібла за допомогою коду Talys 1.95. Побудовано графіки для порівняння результату з програмою Medical Isotope Browser. Використання моноізотопної мішені з ^{107}Ag дозволяє збільшити вихід цільового ізотопу, зменшити вихід небажаних активних ізотопів та підвищити питому активність.

Abstract

The cross sections for the formation of ^{103}Pd and other isotopes in proton beam reactions with silver isotopes were obtained using the Talys 1.95 code. Graphs were plotted to compare the results with the Medical Isotope Browser. The use of a ^{107}Ag monoisotopic target increases the yield of the target isotope, reduces the yield of unwanted active isotopes, and increases the specific activity.

ЗМІСТ

ВСТУП	4
РОЗДІЛ 1. ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ	7
РОЗДІЛ 2. ОСНОВНА ЧАСТИНА	10
2.1. Переріз утворення ^{103}Pd та супутніх ізотопів на мішені зі збагаченого срібла	10
2.2 Переріз утворення ^{103}Pd на мішені з природного срібла	19
2.3. Порівняння результатів TALYS з Medical Isotope Browser	21
РОЗДІЛ 3. РЕЗУЛЬТАТИ РОЗРАХУНКІВ	
ВИСНОВКИ	26
ПЕРЕЛІК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	27
Додаток А. Фрагменти розробленого програмного коду для обробки даних	28

ВСТУП

Радіоізотопи знаходять широке застосування у промисловості, дослідженнях, сільському господарстві та медицині. Два основних джерела штучних радіоізотопів – прискорювачі та ядерні реактори. Радіоізотопи, що виробляються в реакторах [1], становлять велику частку від загального використання радіоізотопів через ряд факторів. Реактор пропонує великий об'єм для опромінення, одночасне опромінення кількох зразків, економічність виробництва та можливість виробництва широкого спектру радіоізотопів, але недоліком є низька питома активність. В реакторі мішень опромінюється нейтронами та зазвичай іде реакція (n,γ) в якій виходить ізотоп мішені, який важко відділити від матеріалу мішені. Для підвищення питомої активності продукту використовують реакції (n,p) та (n,α) , але вони мають менший переріз. Також більшу питому активність отримують якщо в реакції (n,γ) утворюється дуже короткоживучий β^- - активний ізотоп, що розпадається в цільовий ізотоп іншого хімічного елемента. В реакторі отримують переважно β^- - активні ізотопи. Прискорювачі дозволяють опромінювати мішень зарядженими частинками та отримувати недоступні для реактора ізотопи (наприклад β^+ - активні ізотопи для позитронно-емісійної томографії: ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F) та дуже високу питому активність.

В основному в медицині радіоізотопи використовуються у складі радіофармацевтичних препаратів, які використовуються для діагностики або для терапії. Діагностична візуалізація [2] в ядерній медицині – це унікальний метод, який надає функціональну інформацію про низку важливих захворювань. Методи ядерної візуалізації - це потужні неінвазивні інструменти, що надають унікальну інформацію про фізіологічні та біохімічні процеси. Вона доповнює інші методи візуалізації, такі як звичайна радіологія (рентгенівські промені), ядерний магнітний резонанс та ультразвук, які забезпечують відмінну фізичну та структурну інформацію. Крім того, ядерна діагностична візуалізація може надати інформацію на

клітинному рівні, що відображає локальну біохімію хворих або пошкоджених тканин. Ядерна діагностична візуалізація відіграє важливу роль в ідентифікації та лікуванні таких станів, як серцеві захворювання, розлади мозку, функції легень та нирок, а також широкий спектр видів раку. Висока чутливість та специфічність методів ядерної діагностичної візуалізації дає важливі переваги, що полягають у можливості виявляти захворювання на ранній стадії, відстежувати прогресування захворювання, дозволяти точно визначати стадію захворювання та надавати прогностичну інформацію про ймовірний успіх альтернативних варіантів терапії. Ядерна візуалізація поділяється на ПЕТ (позитронно-емісійна томографія) та ОФЕКТ (однофотонна емісійна томографія). Радіотоп вводиться у складі певного фармпрепарату, а його випромінення реєструється детекторами ззовні. Обидва методи реєструють фотони з високою проникаючою здатністю. В ПЕТ радіоізотоп розпадається на позитрон, який в результаті анігіляції дає два фотони з енергією 511 кеВ, які летять у протилежному напрямку, тому для визначення напрямку фотона використовують пари детекторів працюючих в схемі збігу, що дозволяє позбутися коліматору який знижує інтенсивність випромінювання.

Радіотерапія ракової пухлини заснована на пригніченні тканини іонізуючим випроміненням, вона буває зовнішня та внутрішня. Брахітерапія – це медична процедура лікування захворювань за допомогою внутрішньої радіотерапії із закритими радіоактивними джерелами з використанням імплантату з радіоактивного матеріалу, поміщеного безпосередньо в пухлину або поруч із нею. Імплант для брахітерапії – це невелике джерело випромінювання з низькою проникаючою здатністю, яке може мати форму тонких дротів, капсул або насіння. Імплант може бути поміщений безпосередньо в пухлину або вставлений у порожнину тіла з використанням катетерної системи. Іноді імплант поміщають в область, що залишилася порожньою після хірургічного видалення пухлини, щоб убити пухлинні

клітини, що залишилися. Основними радіоізопами, що використовуються для брахітерапії, є ^{103}Pd , ^{125}I , ^{137}Cs , ^{192}Ir та меншою мірою ^{106}Ru та ^{198}Au .

У даній роботі досліджується ізотоп ^{103}Pd . Він розпадається захопленням електрона на $^{103\text{m}}\text{Rh}$, який випромінює доволі м'який рентген та майже не випромінює γ -випромінювання. Це, а також зручний період напіврозпаду (16.9 діб), дає йому переваги у брахітерапії.

Мета роботи – за допомогою коду TALYS [3] версії 1.95 (2019 року) визначити переріз утворення ^{103}Pd в мішенях з природного та ізотопно-збагаченого срібла у реакціях з пучком протонів а також утворення супутніх ізотопів, визначити вихід в товстій мішені зі збагаченого срібла, порівняти результати з програмою Medical Isotope Browser [4, 5].

РОЗДІЛ 1

ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ

Ізотоп ^{103}Pd ($T_{1/2}=16.991$ діб) на 100% розпадається електронним захопленням у $^{103\text{m}}\text{Rh}$ ($T_{1/2}=56.114$ хвилин), який випромінює рентгенівські промені з енергією до 23 кеВ (більша частина до 20.2 кеВ) та Оже-електрони (див. Табл.1-Табл.2).

Табл. 1 Електрони від ^{103}Pd (Nudat 3.0 database [6])

	Енергія (кеВ)	Інтенсивність (%)
Auger L	2.39	168.0 % 4
CE K	16.528 8	9.521 %
Auger K	17.0	18.2 % 4
CE L	36.336 8	71.237 %
CE M	39.121 8	14.377 %
CE K	39.19 3	0.00119 % 4
CE L	59.00 3	1.47E-4 % 5
CE M	61.78 3	2.73E-5 % 9
CE K	334.23 8	3.02E-4 % 10
CE L	354.04 8	3.97E-5 % 13
CE M	356.82 8	7.50E-6 % 24

Табл. 2 Рентген та γ -кванти від ^{103}Pd (Nudat 3.0 database [6])

	Енергія (кеВ)	Інтенсивність (%)
XR 1	2.7	8.73 % 21
XR $k\alpha_2$	20.074	22.4 % 7
XR $k\alpha_1$	20.216	42.5 % 12
XR $k\beta_3$	22.699	3.54 % 10
XR $k\beta_1$	22.724	6.85 % 19
XR $k\beta_2$	23.172	1.64 % 5
γ	39.748 8	0.0683 %
γ	53.29 1	3E-5 % 3
γ	62.41 3	0.00104 % 4
γ	241.88 5	5E-7 % 5
γ	294.98 15	0.00280 % 7
γ	317.72 5	1.50E-5 % 7
γ	357.45 8	0.0221 % 7
γ	443.79 5	1.50E-5 % 7
γ	497.080 13	0.00396 % 14

Для виробництва ^{103}Pd у реакторі використовують реакції $^{102}\text{Pd}(n,\gamma)^{103}\text{Pd}$ [1] та $^{104}\text{Pd}(\gamma,n)^{103}\text{Pd}$ [7]. Для практичного застосування ^{103}Pd виробляють переважно на мішені з Родію [8 с.44]. В роботі [9] було розраховано функції збудження реакцій $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ та $^{103}\text{Rh}(d,2n)^{103}\text{Pd}$. У роботі також виміряні експериментальні дані для реакції $^{103}\text{Rh}(p,n)^{103}\text{Pd}$ в циклотроні (Cyclone-30, ІВА) з енергією 18 МеВ і силою струму пучка 200 мкА. Вихід реакції у товстій мішені склав 8.44 МБк/мкА·год. Також є дослідження [10] виходу ^{103}Pd на мішені з природного срібла $^{\text{nat}}\text{Ag}(p,x)^{103}\text{Pd}$. Вихід реакції склав 22.2 МБк/мкА·год при енергії протонів 66 МеВ. Для реакцій $^{100}\text{Ru}(\alpha,n)^{103}\text{Pd}$, $^{101}\text{Ru}(\alpha,2n)^{103}\text{Pd}$, $^{101}\text{Ru}(^3\text{He},n)^{103}\text{Pd}$, та $^{102}\text{Ru}(^3\text{He},2n)^{103}\text{Pd}$ було виміряно переріз у роботі [11]. Перелік деяких досліджених реакцій у Табл.3.

Табл. 3 Реакції утворення ^{103}Pd .

Реакції утворення ^{103}Pd	Автори
$^{100}\text{Ru}(\alpha,n)$; $^{101}\text{Ru}(\alpha,2n)$; $^{101}\text{Ru}(^3\text{He},n)$; $^{102}\text{Ru}(^3\text{He},2n)$	Ye. Skakun and S. M. Qaim [11]
$^{102}\text{Pd}(n,\gamma)$	IAEA-TECDOC-1340 [1]
$^{104}\text{Pd}(\gamma,n)$	N.P. Dikiy et al [7]
$^{103}\text{Rh}(p,n)$	S. Sudar et al. [12], P. Saidi and M. Sadeghi [9]
$^{103}\text{Rh}(d,2n)$	Hermanne et al. [13], P. Saidi and M. Sadeghi [9]
$^{\text{nat}}\text{Ag}(p,x)$	Fassbender et al. [10]

TALYS – це код для розрахунку ядерних реакцій написаний на Fortran, він відноситься до вільного програмного забезпечення, що розповсюджується за ліцензією GNU General Public License. Він може використовуватися для аналізу результатів експериментів або як джерело ядерних даних і на даний момент він активно розвивається, має велику та докладну документацію та безліч прикладів. У Talys налітаючими частинками можуть бути протони, нейтрони, дейтрони, тритони, γ -кванти,

ядра ^3He та ^4He . Їхня енергія лежить у діапазоні від 1 кеВ до 200 МеВ. Масове число нукліду мішені лежить у діапазоні від 12 до 339. Розробка програми йшла за принципом "спочатку повнота, потім якість", що означає, що зусилля були розподілені порівну між усіма типами ядерних реакцій замість бездоганної реалізації одного каналу ядерної реакції. База даних ядерних структур була створена з колекції "сирих" файлів даних, які значною мірою взяті з бібліотеки еталонних вхідних параметрів RIPL [14], яка є основою для Talys. Код відрізняється низькими вимогами до користувача, для отримання всіх перерізів достатньо вхідного файлу з чотирьох рядків, при цьому за замовчуванням враховуються різні канали ядерних реакцій. Але є можливість обрати застосовувані моделі та налаштувати їх параметри, а також налаштувати вихідні дані. Іншими прикладами універсальних програм є GNASH, ALICE, STAPRE, EMPIRE. GNASH та EMPIRE досі підтримуються та розширюються.

Незважаючи на досить великий науковий інтерес до ізотопу ^{103}Pd , а також наявність публікацій щодо методів його утворення (виходу радіонукліду), існує певна необхідність валідації результатів попередніх досліджень [8-11]. Тому важливою задачею роботи є дослідження методів для збільшення виходу ^{103}Pd в мішенях з природного та ізотопно збагаченого срібла. Ця наявна проблема досліджується у "Основній частині" представленої дипломної роботи.

РОЗДІЛ 2

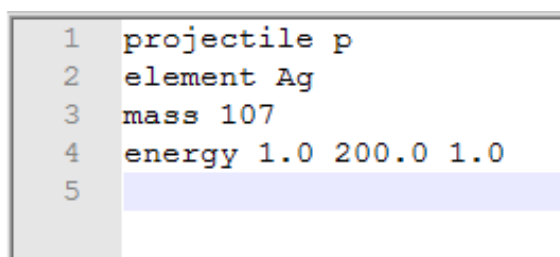
ОСНОВНА ЧАСТИНА

Представлені у роботі розрахунки виконано за допомогою програми Talys [3] сучасної версії 1.95 у середовищі операційної системи Linux, та після ретельного ознайомлення з технічною документацією й аналізу робіт з цієї тематики, які представлені у роботах [7-11].

Вся обробка даних обчислювальних експериментів та візуалізація результатів виконана за допомогою спеціально розроблених комп'ютерних програм, із використанням мови програмування Python.

2.1 Переріз утворення ^{103}Pd та супутніх ізотопів на мішені зі збагаченого срібла

Обчислення здійснюються шляхом запуску програми Talys зі вказанням на вхідний текстовий файл. Для визначення перерізу залишкового утворення ізотопів у вхідному файлі вказуємо чотири рядки з необхідною інформацією, приклад наведено на Рисунку 1.



```
1 projectile p
2 element Ag
3 mass 107
4 energy 1.0 200.0 1.0
5
```

Рис. 1 Приклад фрагменту вхідного файлу з мінімально допустимими параметрами для дослідження залишкового утворення ізотопів палладію

Проведені розрахунки для визначення перерізу утворення ізотопів з мішені ^{107}Ag , коли у якості налітаючих частинок використовуються протони. Діапазон енергій первинних протонів – від 1 MeV до 200 MeV.

Результати розрахунків для мішені з ^{107}Ag представлено на Рис. 2 та Рис. 3.

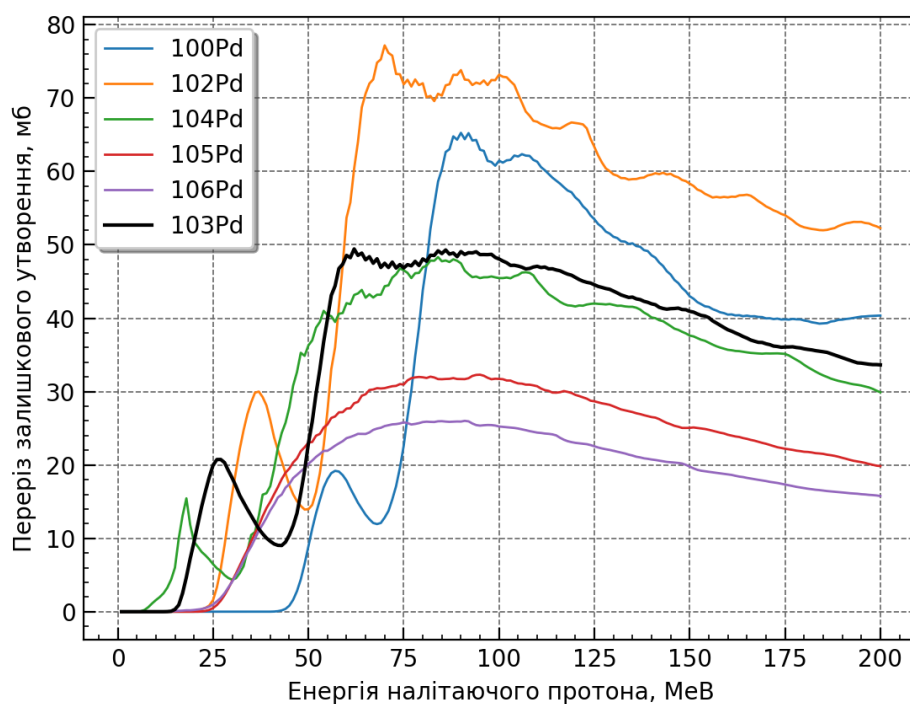


Рис. 2 Переріз утворення ізоотопів паладію для мішені з ^{107}Ag

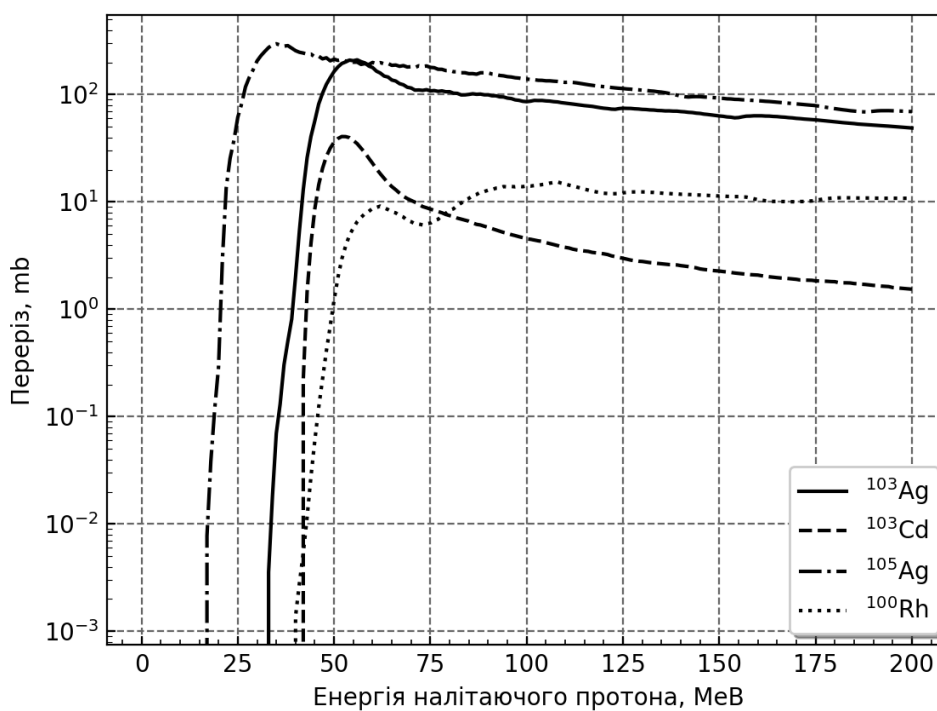


Рис. 3 Переріз утворення інших ізоотопів для мішені з ^{107}Ag

На Рис. 2 представлені результати розрахунків утворення ізоотопів паладію, усі стабільні за виключенням ^{103}Pd та ^{100}Pd . Чорною суцільною лінією позначено вихід ізоотопу ^{103}Pd . Утворення інших ізоотопів паладію бажано звести до мінімуму. Особливо слід уникати утворення ізоотопу ^{100}Pd ($T_{1/2} = 3.63$ доби) тому що він при розпаді випромінює жорстке γ -випромінювання і перетворюється на ^{100}Rh ($T_{1/2} = 20.8$ годин), який теж має γ та β^+ випромінювання досить високої енергії. Присутність ^{100}Pd перешкоджає медичному застосуванню продукту, а для його видалення потрібно застосовувати технологію розділення ізоотопів, що недоцільно. З графіку видно, що переріз утворення ^{100}Pd значно зростає з енергії 75 MeV. Можна бачити (Рис.3), що максимум перерізу утворення ^{103}Ag сягає понад 100 мілібарн. Якщо бути точним то максимум перерізу ^{103}Ag ($T_{1/2}=65.7$ хвилин) дорівнює 211 мб а максимум перерізу ^{103}Cd ($T_{1/2}=7.3$ хвилин) дорівнює 40 мб. Ці ізотопи швидко розпадаються (дивись Рис. 4) на ^{103}Pd , тобто вони утворюють більшу частину від виходу цільового ізоотопу.

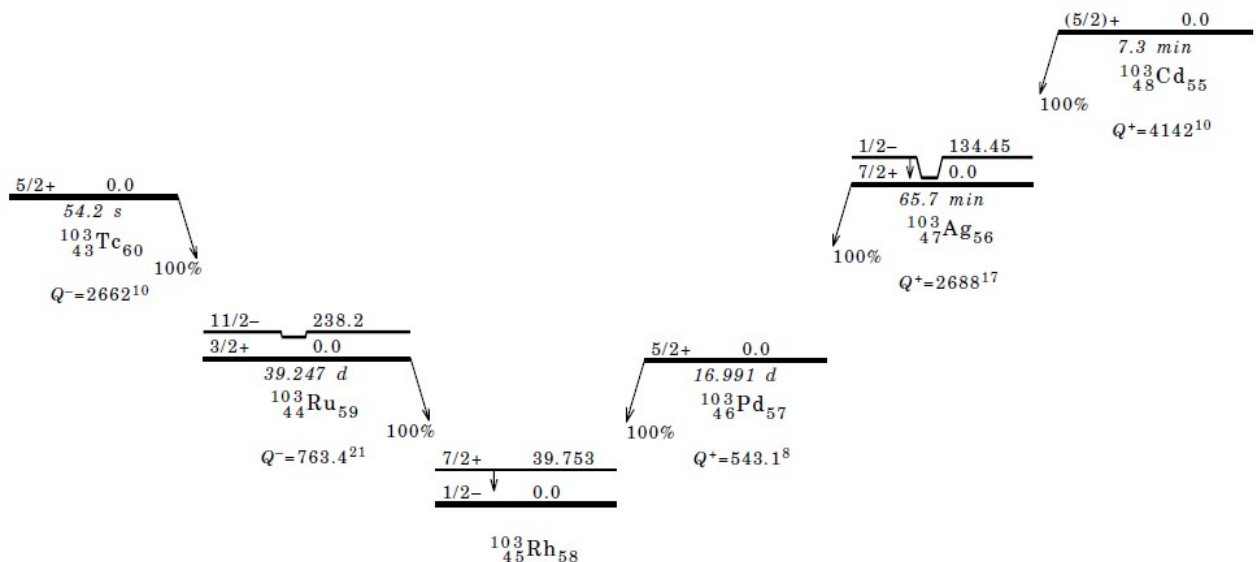


Рис. 4 Частина дерева розпаду ^{103}Rh [15, с. 2084 - 2085]

Аналогічні розрахунки перерізів утворення ізоотопів проведені для мішені з ^{109}Ag у діапазоні енергій первинних протонів від 1 до 200 MeV. Результати розрахунків для мішені з ^{109}Ag представлені на Рис. 5 та Рис. 6.

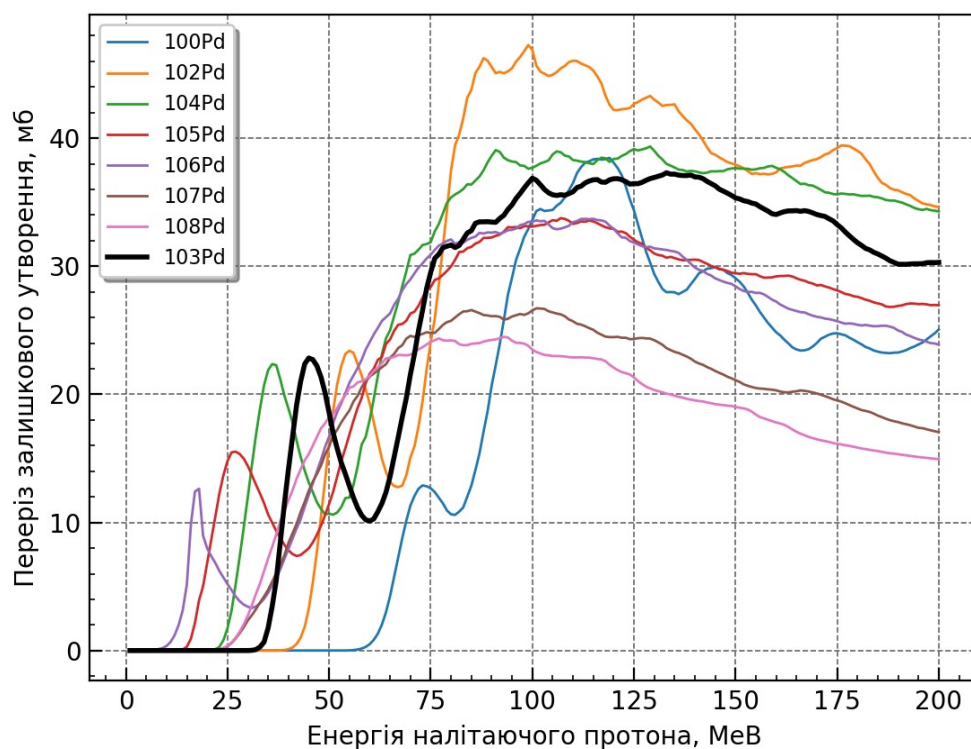


Рис. 5 Переріз утворення ізоотопів паладію для мішені з ^{109}Ag

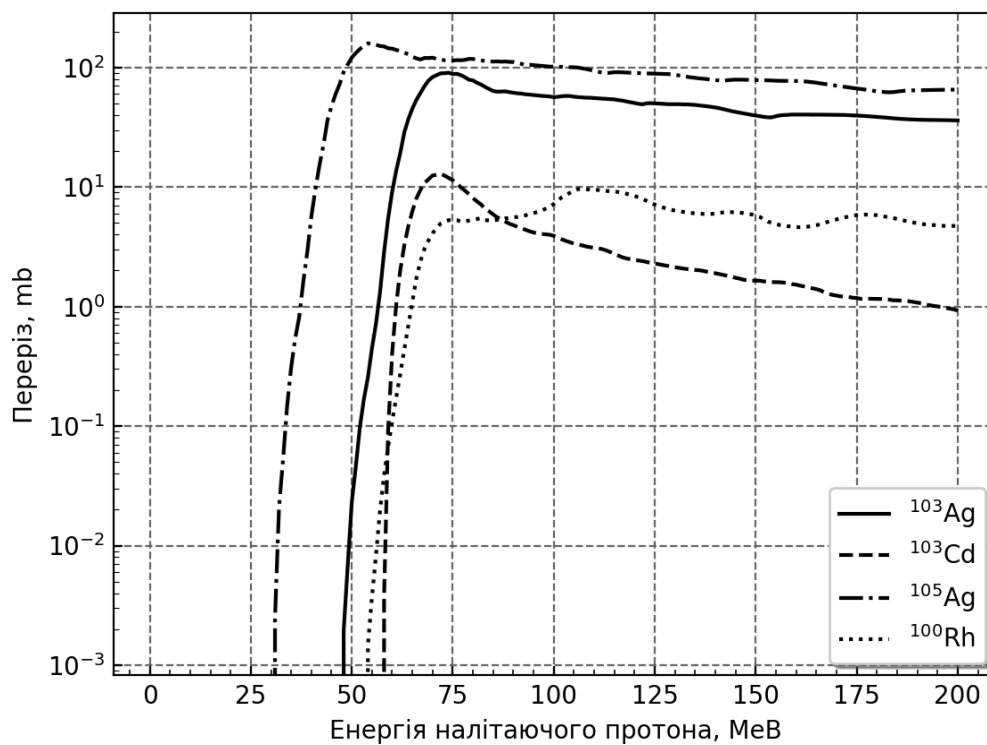


Рис. 6 Переріз утворення інших ізоотопів для мішені з ^{107}Ag

На рисунку 5 зображено переріз утворення ізоотопів паладію. У випадку ^{109}Ag виходить два додаткових відносно стабільних ізоотопи ^{107}Pd ($T_{1/2}=6.5\cdot 10^6$ років) та ^{108}Pd , що знизить питому активність. На рисунку 6 наведено вихід інших активних ізоотопів. Максимум перерізу утворення ^{103}Ag дорівнює 90 мб, максимум для ^{103}Cd дорівнює 13 мб, тобто максимумами мають більшу енергію та менші за величиною. Вихід з “тонкої” мішені отримано шляхом проведення розрахунків виходу в мішені з достатньо малою товщиною (протони при проходженні втрачають 10 кеВ енергії) для кожної енергії з усього діапазону. Приклад вхідного файлу для однієї з енергій:

```

1
2 projectile p
3 element Ag
4 mass 109
5 energy energies
6
7 production y
8 Ebeam 29.000
9 Eback 28.990
10 Ibeam 0.001
11 Area 1.0
12
13 Tirrad 1 h
14 Tcool 68 d
15
16 radiounit MBq
17 yieldunit num
18

```

Рис. 7. Приклад вхідного файлу для розрахунків виходу на товстій мішені

Параметр `energies` – це файл з енергетичною сіткою в діапазоні від 28.99 до 29.0. Параметр `production y` вмикає розрахунки виходу в товстій мішені. Час опромінення `Tirrad = 1 година`, Сила струму `Ibeam = 1 мкА`. Параметри `radiounit MBq` та `yieldunit num` встановлюють одиниці вимірювання активності та кількості отриманих нуклідів відповідно (не обов’язкові). На графіках нижче (Рис. 8, Рис. 9) представлено результати, час витримки мішені дорівнює приблизно 17 днів.

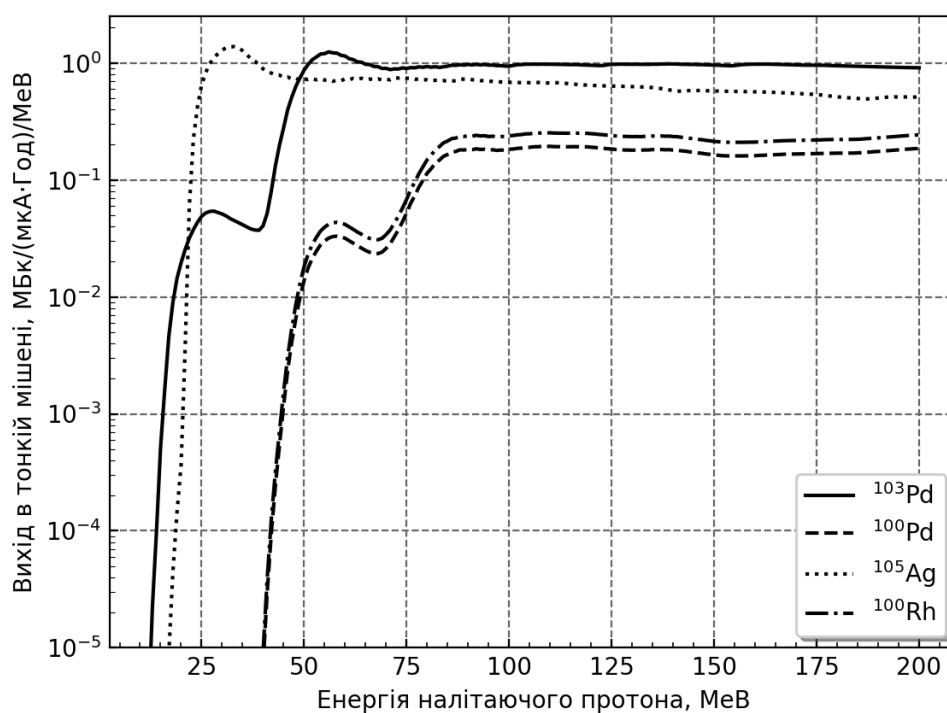


Рис. 8 Вихід на тонкій мішені з ^{107}Ag , час витримки 17 днів

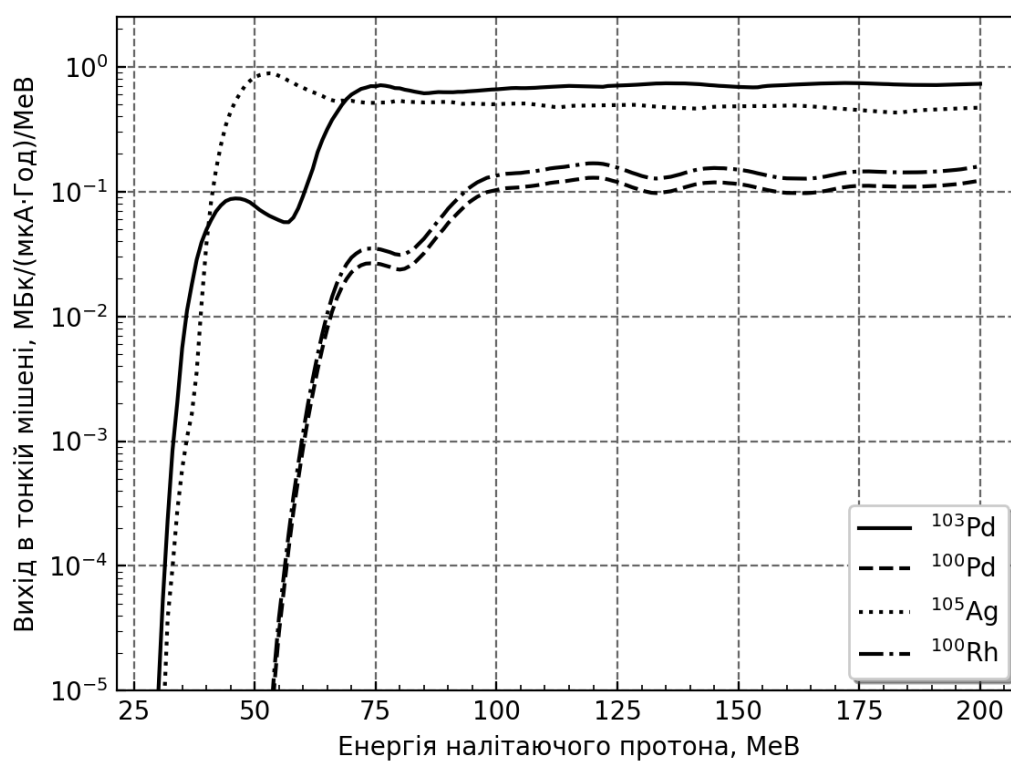


Рис. 9 Вихід на тонкій мішені з ^{109}Ag , час витримки 17 днів

Максимум виходу ^{103}Pd на мішені з ^{107}Ag дорівнює 1.24 МБк/(мкА·Год·МеВ) за енергії 56 МеВ проти 0.71 МБк/(мкА·Год·МеВ) за енергії 76 МеВ у ^{109}Ag . З міркувань зменшення виходу небажаних супутніх ізотопів обрано проміжки енергій: (56 – 46) МеВ для ^{107}Ag та (75 – 65) МеВ для ^{109}Ag . На графіках нижче (Рис. 10, 11) представлено активність деяких ізотопів в мішені як функцію часу при опроміненні впродовж години струмом в 1 мкА.

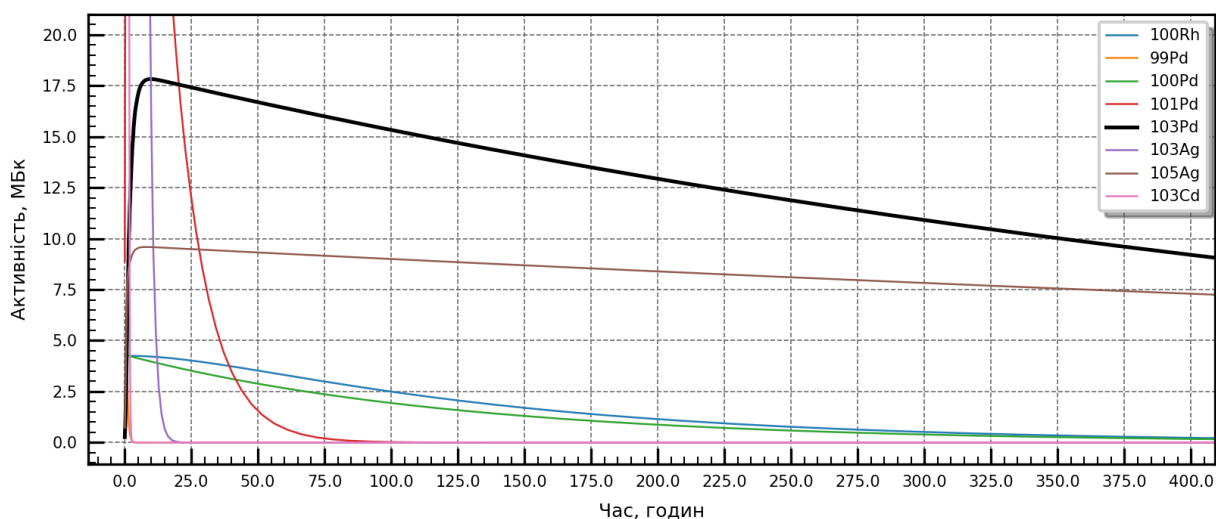


Рис. 10 Активність деяких ізотопів в опроміненій товстій мішені з ^{107}Ag . Початкова енергія протонів 56 МеВ, кінцева 46 МеВ, ефективна товщина мішені 1320 мкм, час опромінення 1 година, час витримки 17 днів.

На рисунку 10 видно, що ізоотопу ^{101}Pd не стало вже за 100 годин витримки, відсотковий вміст ^{100}Pd значно знижується з часом витримки. В таблиці 4 інформація про рентгевське та γ - випромінювання від ^{100}Pd . Вибором інтервалу енергії налітаючих протонів позбутися активного ізоотопу ^{105}Ag ($T_{1/2} = 41.29$ діб), на жаль, не вдалося.

Табл. 4 Рентгенівське та γ -випромінювання від ^{100}Pd .

Nudat 3.0 database [6]

	Енергія (кеВ)	Інтенсивність (%)
XR 1	2.7	8.7 % 5
	15.5 S	0.26 % 5
XR $k\alpha_2$	20.074	36.3 % 22
XR $k\alpha_1$	20.216	69 % 4
XR $k\beta_3$	22.699	5.7 % 3
XR $k\beta_1$	22.724	11.1 % 7
XR $k\beta_2$	23.172	2.66 % 16
	32.66 2	2.55 % 21
	42.08 2	7.0 % 6
	53.52 15	0.042 % 11
	61.60 5	0.27 % 5
	72.52 10	0.078 % 21
	74.78 2	48 % 4
	84.00 2	52 % 4
	86.37 15	0.026 % 11
	119.18 8	0.07 % 3
	126.15 2	7.8 % 7
	139.92 5	0.182 % 23
	151.88 5	0.32 % 3
	154.00 10	0.032 % 8
	158.87 5	1.66 % 14

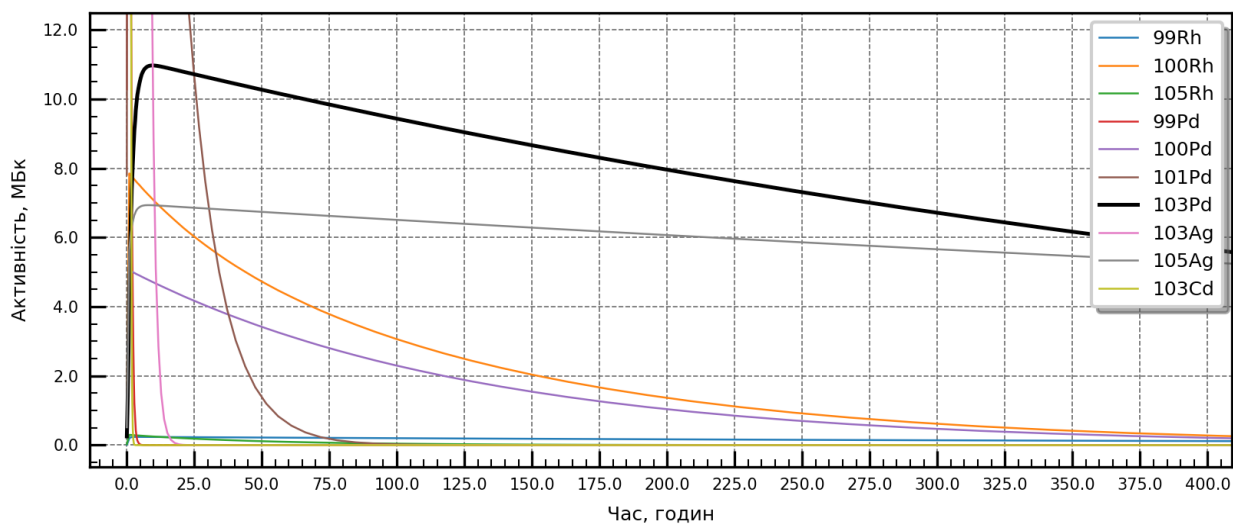


Рис. 11 Активність деяких ізотопів в опроміненій товстій мішені з ^{109}Ag . Початкова енергія протонів 75 MeV, кінцева 65 MeV, ефективна товщина мішені 1710 мкм, час опромінення 1 година, час витримки 17 днів.

Після витримки впродовж 17 діб вихід на мішені з ^{107}Ag склав 9.1 МБк/мкАгод проти 5.6 МБк/мкАгод на мішені з ^{109}Ag , при цьому товщина

мішені та необхідна енергія протонів на останній мішені значно вищі. В Табл. 5 наведено вихід деяких ізотопів в цих мішенях. З таблиці видно, що на мішені з ^{107}Ag отримано набагато менше стабільних ізотопів паладію, які знижують питому активність продукту, а також менше небажаних активних ізотопів, окрім ^{105}Ag . Вміст ^{100}Pd відносно ^{103}Pd склав на мішені з ^{107}Ag 1.8% проти 3.4% на мішені з ^{109}Ag . Слід зазначити, що отримані результати майже не враховують розпад ізотопів у випадку довготривалого опромінення мішені.

Табл. 5 Вихід ізотопів в мішенях після витримки впродовж 17 діб.

Ізотоп	^{107}Ag , (56 – 46) MeV		^{109}Ag , (75 – 65) MeV	
	Вихід, МБк/мкАгод	Кількість частинок	Вихід, МБк/мкАгод	Кількість частинок
^{99}Rh	0.0084	1.68E+10	0.12	2.31E+11
^{100}Rh	0.22	2.36E+10	0.26	2.79E+10
^{101}Rh	0.031	4.57E+12	0.029	4.26E+12
^{102}Rh	0.0015	2.01E+11	0.0030	3.97E+11
^{100}Pd	0.17	7.51E+10	0.20	8.89E+10
^{102}Pd	0	4.15E+12	0	5.52E+12
^{103}Pd	9.1	1.92E+13	5.6	1.18E+13
^{104}Pd	0	5.03E+13	0	3.39E+13
^{105}Pd	0	1.43E+13	0	1.31E+13
^{106}Pd	0	3.61E+12	0	6.48E+12
^{107}Pd	0	0	0	5.41E+12
^{108}Pd	0	0	0	5.19E+12
^{105}Ag	7.3	3.73E+13	5.2	2.70E+13
^{109}Cd	0	0	0.042	2.43E+12

2.2 Переріз утворення ^{103}Pd на мішені з природного срібла

На рисунку 12 побудовано перерізи утворення ^{103}Pd , ^{103}Ag , ^{103}Cd в залежності від енергії при опроміненні пучком протонів мішені з природного срібла.

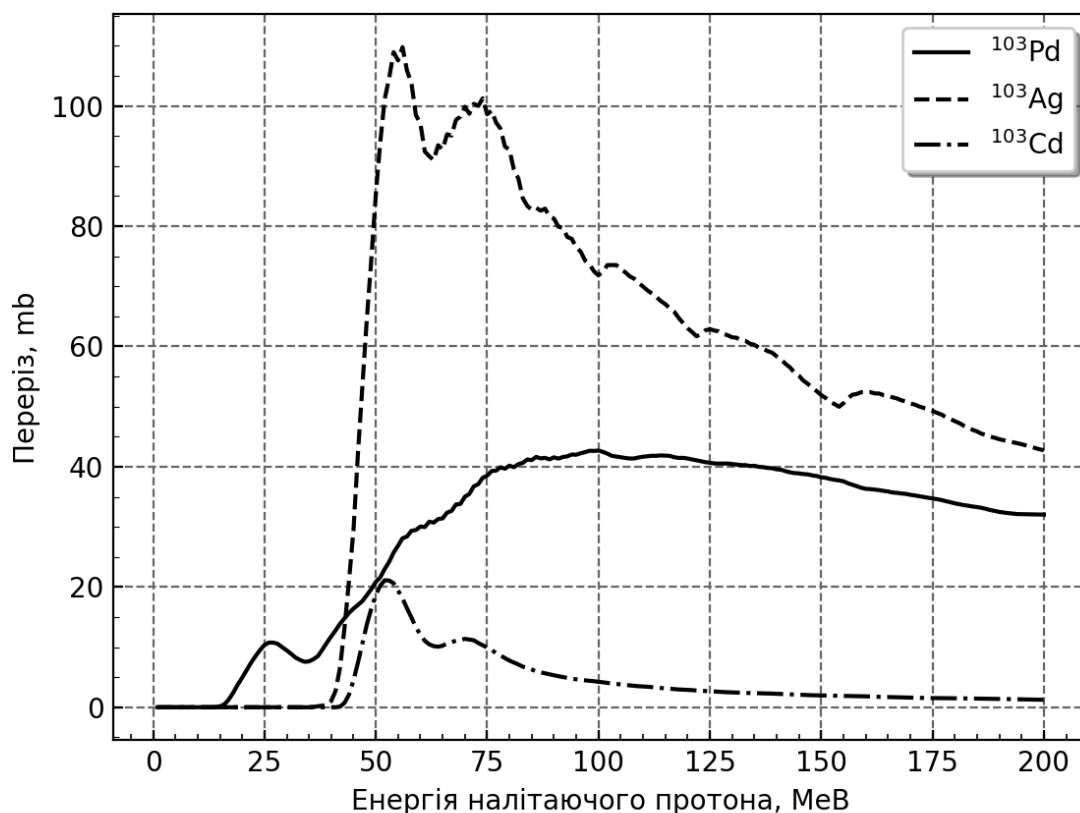


Рис. 12 Переріз залишкового утворення генетично пов'язаних ядер в реакції $^{nat}\text{Ag}(p,x)$

Найбільший внесок виходить від ^{103}Ag . Для порівняння з роботою Fassbender et al. [10] кумулятивний переріз утворення ^{103}Pd розраховано як суму цих перерізів. На Рис. 13 представлено кумулятивний переріз у порівнянні з експериментальними даними.

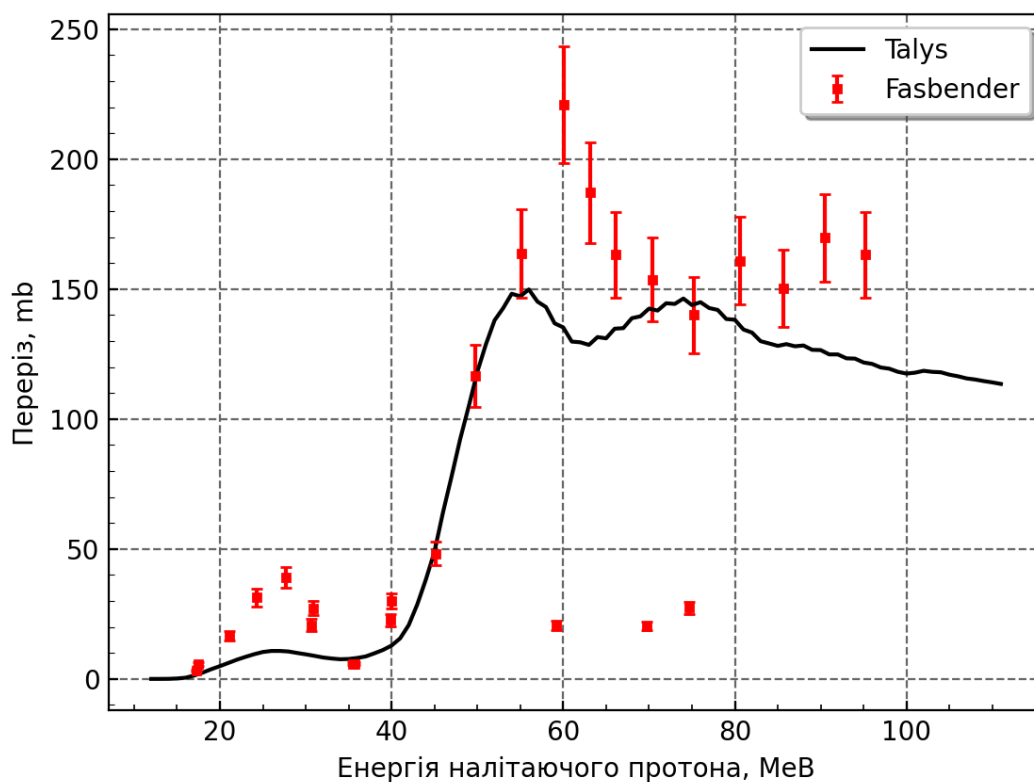


Рис. 13 Кумулятивний переріз утворення ^{103}Pd на мішені з природного срібла. Порівняння розрахунків Talys з експериментальними даними з роботи [10].

Розрахована крива в деяких місцях виходить за межі експериментальної похибки, що свідчить про можливі недоліки використовуваних у Talys моделей ядерних реакцій або таблиць ядерних даних. В роботі Fassbender et al. [10] також отримано вихід з товстої мішені з природного срібла за енергії налітаючих протонів 66 MeV. Після витримки впродовж 3 діб величина виходу склала 22.2 МБк/(мкА·год). Обчислення в Talys виходу з товстої мішені з такими умовами дає 22.4 МБк/(мкА·год). Зважаючи на те, що Talys в середньому занижив переріз утворення ^{103}Pd , низький вихід в експерименті можна пояснити втратами під час хімічної обробки.

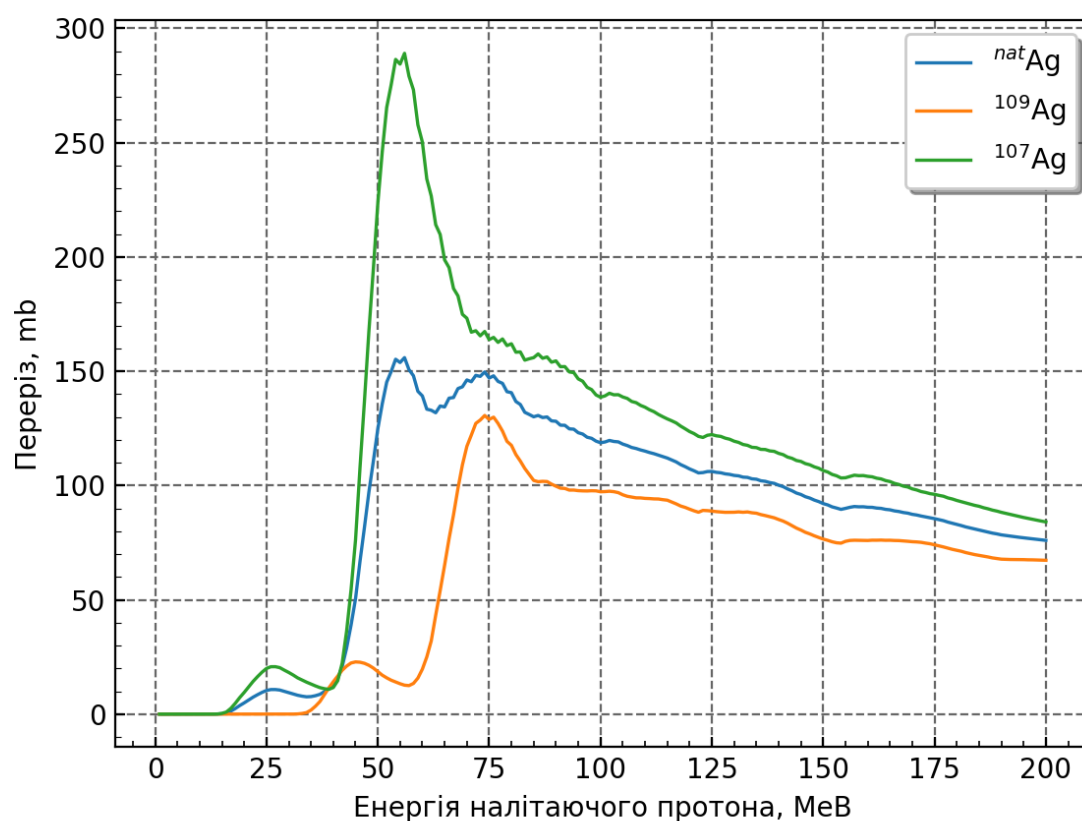


Рис. 14 Кумулятивний переріз утворення ^{103}Pd

На Рис. 14 порівняння кумулятивного перерізу утворення ^{103}Pd на окремих ізотопах срібла та на природній суміші ізотопів. Видно, що більший внесок робить ^{107}Ag , а його максимум має меншу енергію.

2.3 Порівняння результатів TALYS з Medical Isotope Browser

На сайті IAEA Nuclear Data Services (<https://www-nds.iaea.org>), серед іншого, є програма, яка схожа за функціоналом по темі виробництва медичних ізотопів на Talys: “Medical Isotope Browser” [4,5]. Вона побудована на базі коду ISOTOPIA [16] версії 1.0 та має зручний графічний інтерфейс.



Рис. 15 Зовнішній вигляд інтерфейсу Medical Isotop Browser

ISOTOPIA - це програмний пакет прогнозування виходу медичних ізотопів на прискорювачах заряджених частинок. В принципі, можна розрахувати вихід ізотопів для будь-якого шляху виробництва з падаючими протонами, дейтронами, тритонами, геліонами або α -частинками, а також для природних або збагачених мішеней. Хоча більшість обчислювальних компонентів для моделювання прискорювачів, що виробляють ізопои, досить прості, вирішальними компонентами для надійного моделювання виходу ізотопів є переріз ядерних реакцій. Для ISOTOPIA використовується бібліотека IAEA medical isotope data library приблизно для 150 каналів реакцій, доповнена TENDL-2017 для всіх інших реакцій. Цікаво, що для встановлення програми з бібліотеками потрібно 20 Гб дискового простору проти 6 Гб у Talys.

Веб-додаток Medical Isotope Browser являє собою графічний інтерфейс для коду ISOTOPIA з деякими додатковими функціями, такими як розрахунок втраченої у мішені енергії (завдяки чому у вхідних даних є можливість визначити товщину мішені замість вказання кінцевої енергії) та побудова графіків.

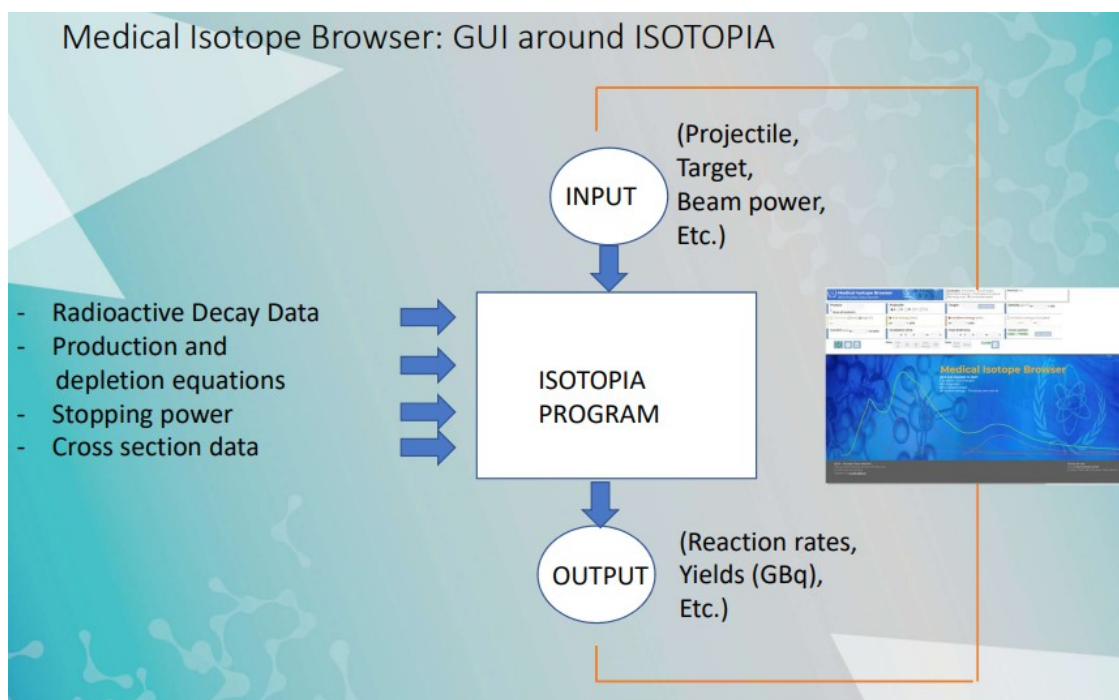


Рис. 3 Структура програми Medical Isotope Browser.

На графіках (Рис.16,17) порівняно результати Talys 1.95 та Medical Isotope Browser (ISOTOPIA 1.0).

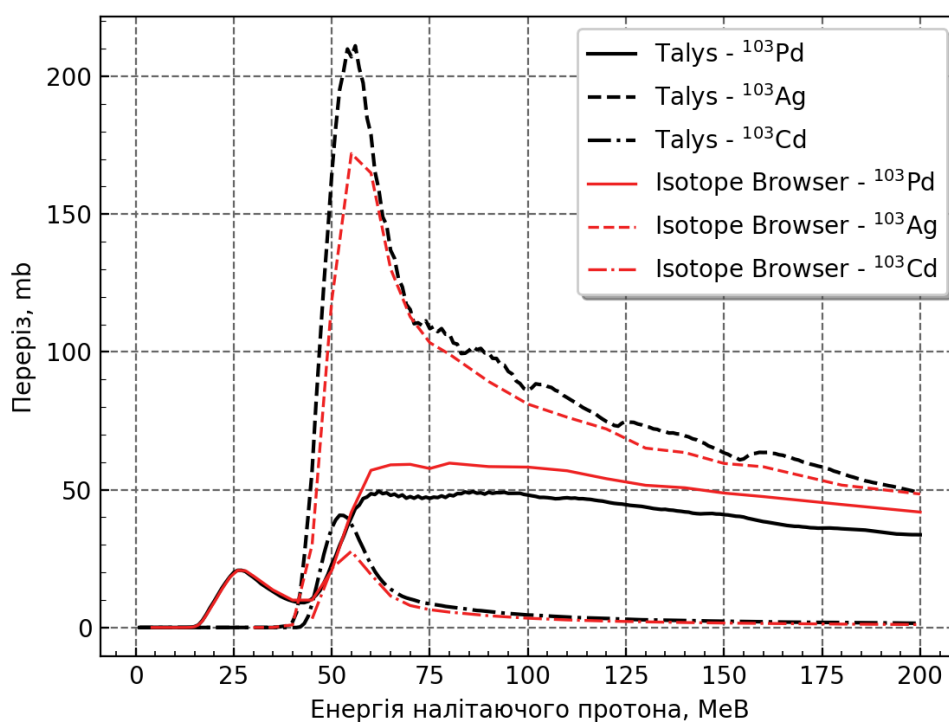


Рис. 16 Переріз утворення ізоотопів на мішені з ^{107}Ag

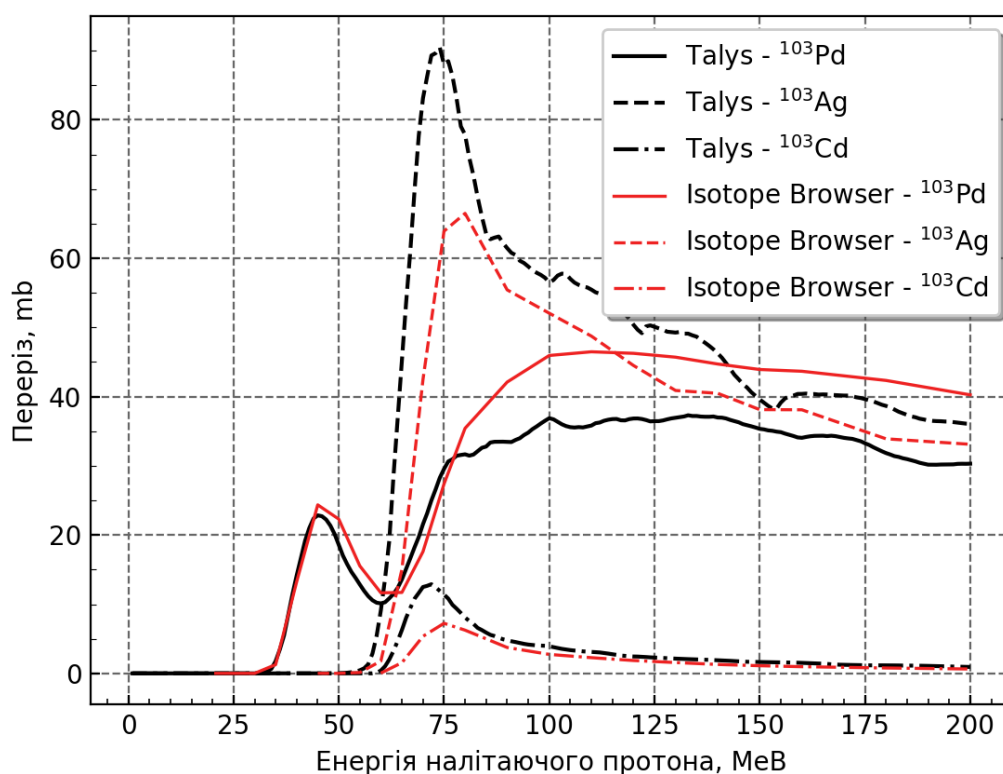


Рис. 17 Переріз утворення ізотопів на мішені з ^{109}Ag

На графіках видно значні розходження розрахунків у Talys та Medical Isotope Browser. Можливо це пов'язано з використанням бібліотеки TENDL-2017 згенерованої у Talys старішої версії. До того ж програма з'явилася відносно нещодавно, не виключено, що в майбутньому знайдуться та будуть виправлені помилки.

ВИСНОВКИ

Отримано графіки перерізів утворення ізотопів у реакціях пучка протонів з ізотопами срібла та кумулятивний переріз утворення ^{103}Pd за допомогою коду Talys 1.95. Побудовано графіки для порівняння результату з програмою Medical Isotope Browser. За отриманими даними обрано діапазон енергії пучка в суцільній мішені так, щоб отримувати менше небажаних ізотопів, які перешкоджають вимірюванню активності зразка (через низьку інтенсивність γ -випромінювання) і медичному застосуванню. Важливо уникнути накопичення ^{100}Pd ($T_{1/2} = 3.63$ доби) тому що він при розпаді випромінює жорстке γ -випромінювання і перетворюється на ^{100}Rh ($T_{1/2} = 20.8$ годин), який теж γ - та β^+ - активний. Використання мішені зі срібла, збагаченого ізотопом ^{107}Ag , дозволяє збільшити вихід цільового ізотопу, зменшити вихід небажаних активних ізотопів та підвищити питому активність, а також вимагає меншу енергію пучка протонів. Кількість ^{100}Pd можна зменшити шляхом витримки мішені, оскільки він має менший період напіврозпаду ніж ^{103}Pd .

ПЕРЕЛІК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

- [1] Manual for reactor produced radioisotopes. Vienna: IAEA-TECDOC-1340, 2003. ISBN: 92-0-101103-2.
- [2] Beneficial Uses and Production of Isotopes: 2000 Update. ISBN: 92-64-18417-1.
- [3] A.J. Koning, S. Hilaire and M.C. Duijvestijn, "TALYS-1.0", Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, April 22-27, 2007, Nice, France, editors O.Bersillon, F.Gunsing, E.Bauge, R.Jacqmin, and S.Leray, EDP Sciences, 2008, p. 211-214.
- [4] Medical Isotope Browser:
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/isotopia/isotopia.html> .
- [5] Arjan Koning and Marco Verpelli. The Medical Isotope Browser. An app for prediction of radioisotope production yields. Nuclear Data Section, IAEA INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON TRENDS IN RADIOPHARMACEUTICALS, 2019.
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/isotopia/presentation.pdf> .
- [6] Nudat 3.0 database: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/> .
- [7] Mazhar Hussain, "Evaluation of nuclear reaction cross sections relevant to the production of emerging therapeutic radionuclides ^{103}Pd , ^{186}Re and ^{67}Cu ", Department of Physics Government College University Lahore, Reg. No. 10-GCU-PhD-Phy-04, 2009.
- [8] N.P. Dikiy et al. Pd and Re isotope production in the field of mixed x,n-radiation of electron accelerator. National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology", Kharkov, Ukraine. ISSN 1562-6016. БАХТ. 2013. №6(88).
- [9] Pooneh Saidi and Mahdi Sadeghi (May 15th 2020). "Production of the ^{103}Pd via Cyclotron and Preparation of the Brachytherapy Seed", Recent Techniques and

Applications in Ionizing Radiation Research, Ahmed M. Maghraby and Basim Almayyahi, IntechOpen, DOI: 10.5772/intechopen.92457.

<https://www.intechopen.com/chapters/72182> .

[10] M. Faßbender, F. M. Nortier, I. W. Schroeder and T. N. Van der Walt, *Radiochim. Acta* 87, 87-91 (1999).

[11] Skakun, Ye, Institut fuer Nuklearchemie, Forschungszentrum Juelich GmbH, D-52425 Juelich, and Qaim, S M. Excitation Functions of Helion-Induced Nuclear Reactions for the Production of the Medical Radioisotope ^{103}Pd . United States: N. p., 2005. doi:10.1063/1.1945320.

[12] S. Sudar, F. Cserpak, S.M. Qaim. Measurements and nuclear model calculations on protoninduced 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 . *Applied Radiation and Isotopes* 56 (2002) 821–831. DOI:10.1016/S0969-8043(02)00054-4 .

[13] 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. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 187 (2002) 3–14. DOI:10.1016/S0168-583X(01)00851-5 .

[14] R. Capote, M. Herman et al, “RIPL - Reference Input Parameter Library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluation”, *Nucl. Data Sheets* 110, 3107 (2009).

[15] *Nuclear Data Sheets* 110 (2009) 2081 - 2256, D. De Frenne, University Ghent Vakgroep Subatomaire en Stralingsfysica Proeftuinstraat 86, B–9000 Gent, Belgium. doi:10.1016/j.nds.2009.08.002 .

[16] Arjan Koning. ISOTOPIA-1.0. Simulation of medical isotope production with accelerators. 2019. <https://www-nds.iaea.org/relnsd/isotopia/isotopia.pdf> .

Додаток А. Фрагменти розробленого програмного коду для обробки даних.

```

8 import os
9
10 energies=[float(i) for i in range(1,201)]
11 loss=0.01
12 N=5
13
14 for energy in energies:
15     Input=\
16     """
17     projectile p
18     element Ag
19     mass 109
20     energy energies
21
22     production y
23     Ebeam %0.3f
24     Eback %0.3f
25     Ibeam 0.001
26     Area 1.0
27
28     Tirrad 1 h
29     Tcool 68 d
30
31     radiounit MBq
32     yieldunit num
33     ""%(energy,energy-loss)
34
35     name="%0.3f"%energy
36     if not os.path.isdir(name):
37         os.mkdir(name)
38     file=open(name+"/input","wt")
39     file.write(Input)
40     file.close()
41
42     energiesFile=[energy-loss*(1.0-float(i)/float(N)) for i in range(N+1)]
43
44     file=open(name+"/energies","wt")
45     for i in energiesFile:
46         file.write("%0.5f\n"%i)
47     file.close()

```

```

8 import os
9
10 L=os.listdir()
11
12 for i,Dir in enumerate(L):
13     if os.path.isdir(Dir):
14         os.chdir(Dir)
15         print(i,os.getcwd())
16         os.system("talys <input> output")
17         os.chdir("../")
18
19

```

```

8 import os
9 from Elements import Elements
10
11 def Pass(file,n):
12     """ Функция пропускает нужное число строк в открытом файле """
13     for i in range(n):
14         file.readline();
15
16     ProdTotal=dict()
17
18     # 91 108
19     Files=[["Y",".tot",108,0,(1,2)]]
20
21     L=os.listdir()
22     Tcool=[0]
23
24     i2=0
25
26     for Dir in L:
27         try: float(Dir)
28         except: continue
29         if os.path.isdir(Dir):
30             os.chdir(Dir)
31
32             i2+=1
33             print(i2,Dir)
34
35             Prod=[]
36
37             for File in Files:
38
39                 Begin=File[0]
40                 Ext=File[1]
41                 N=File[2]
42                 n=File[3]
43                 Data=File[4]
44
45                 List=os.listdir()
46                 List=[ i for i in List if ( i[:len(Begin)] == Begin \
47                     and i[len(i)-len(Ext):] == Ext ) ]
48
49                 file=open(List[0],"rt")
50                 Pass(file,N)
51                 x=file.readline()
52

```

```

1 Elements=[
2     '0',
3     'H',
4     'He',
5     'Li',
6     'Be',
7     'B',
8     'C',
9     'N',
10    'O',
11    'F',
12    'Ne',
13    'Na',
14    'Mg',
15    'Al',
16    'Si',
17    'P',
18    'S',
19    'Cl',
20    'Ar',
21    'K'

```

```

1
2 import numpy as np
3 from matplotlib import pyplot as plt
4 import os
5
6 def Pass(file,n):
7     for i in range(n):
8         file.readline()
9
10 def Save(myPlot, Name=""):
11     if Name=="":
12         i=0
13         while os.access("myPlot"+str(i)+".png",mode=os.F_OK):
14             i+=1
15             if i>100000: break;
16         else:
17             myPlot.savefig("myPlot"+str(i)+".png",dpi=200)
18         else: myPlot.savefig(Name,dpi=200)
19
20
21 Files=dict()
22
23 #Files["rp046103.tot"] = "103Pd"
24
25
26 Files["107Prod103Pd.txt"] = "${103}$Pd"
27 Files["107Prod100Pd.txt"] = "${100}$Pd"
28 Files["107Prod105Ag.txt"] = "${105}$Ag"
29 Files["107Prod100Rh.txt"] = "${100}$Rh"
30
31 #####
32 ##                                     ##
33 ##      1. Настройка параметров      ##
34 ##                                     ##
35 #####
36
37 Dir="./"
38 if os.path.isdir(Dir):
39     os.chdir(Dir)
40
41 #столбцы нумеруются с нуля, нулевой это аргумент обычно
42 CN=1
43 #PN=9
44 #PN=5
45 PN=0
46

```

```

46
47 YEN=2
48 #XEN=3
49
50 Mult=100.0
51 #Mult=1e13
52
53 SizeLegend=10
54 SizeFont=10
55
56 WidthGrid=0.8
57 WidthMain=1.5
58 WidthRest=1.2
59 WidthMajorTick=0.7
60 WidthMinorTick=0.4
61 Flag=0
62
63 #XLabel="Час, годин"
64 XLabel="Енергія налітаючого протона, MeV"
65
66 #YLabel="Кількість ядер, 10"+chr(185)+chr(179)
67 YLabel="Вихід в тонкій мішені, МБк/(мкА"+chr(183)+"Год)/MeV"
68 #YLabel="Кількість ядер на MeV в тонкій мішені"
69 #YLabel="Переріз, mb"
70 #Title="Кумулятивний переріз утворення %s%s%sPd на мішені\nз природного срібла (ох
71 #Title="Переріз утворення ізотопів на мішені з $^{109}$Ag:\nпорівняння розрахунків
72 Title=""
73
74 myPlot, ax = plt.subplots(1,1)
75
76 for name in Files:
77     X=[]
78     Y=[]
79     YE=[]
80
81     file=open(name,"rt")
82     Pass(file,PN)
83

```